



energie atomique • energies alternatives

EFMMIN 2011
Marseille - France
16-20 mai 2011

Les mesures neutroniques actives

Principe et application au cycle du combustible

Laboratoire de Mesures Nucléaires, CEA Cadarache



Sommaire

1. Besoins et motivations
2. Propriétés de la réaction de fission induite
3. Mesure des neutrons retardés : *Shuffler*
 - a) Principe physique
 - b) Origine du signal enregistré
 - c) Performances et limitations
 - d) Exemples d'applications
4. Mesure des neutrons prompts : *DDT*
 - a) Principe physique
 - b) Origine du signal enregistré
 - c) Performances et limitations
 - d) Exemples d'applications

Sommaire (suite)

5. Mesure des neutrons prompts et retardés

- a) Principe physique
- b) Interprétation du signal
- c) Performances et limitations
- d) Exemples d'applications

6. Mesure des coïncidences de neutrons prompts

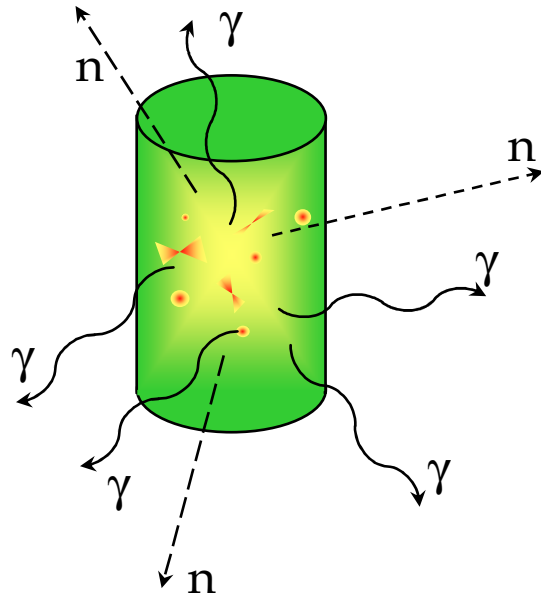
7. INA couplée à la spectrométrie gamma

- a) Principe physique
- b) Exemples d'applications

Mesures neutroniques passives et actives



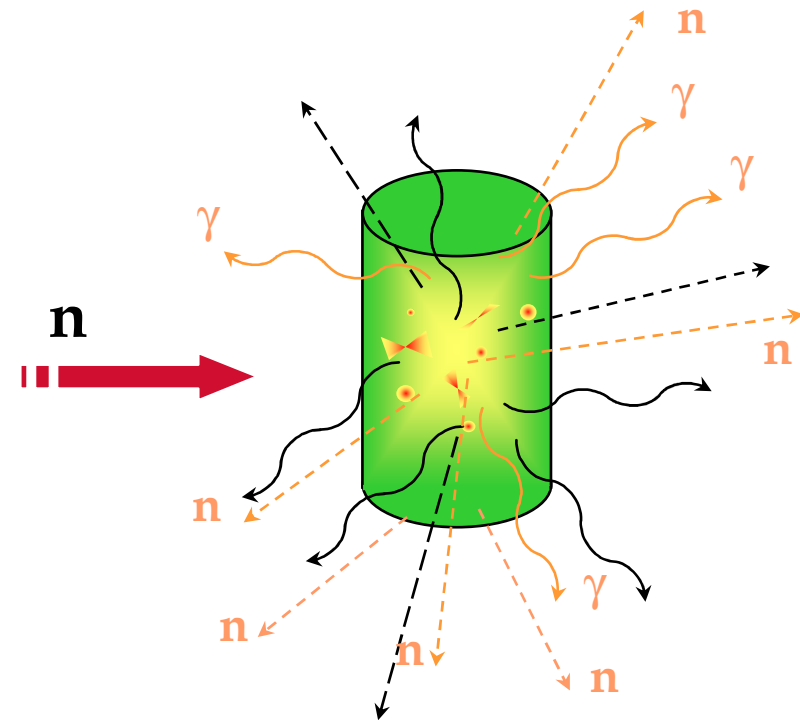
energie atomique • energies alternatives



Mesure passive : mesure globale

Un seul temps : comptage

- Fissions spontanées : isotopes pairs (^{238}U , ^{238}Pu , ^{240}Pu , ^{244}Cm , ...)
- Réactions (α,n) en présence d'éléments légers (O, F, B,...) et d'émetteurs α (Am, Cm, U, Pu, ...)



Mesure active : mesure globale

Deux temps : irradiation + comptage

- Fissions induites : isotopes impairs (^{235}U , ^{239}Pu , ^{241}Pu ,...)
- Fissions spontanées
- Réactions (α,n) , $(n,2n)$, (γ,n) , (n,γ) ...
- Neutrons interrogateurs

1. Besoins et motivations (1)

Pallier les déficiences d'autres techniques non destructives :

- Objet irradiant
- Densité élevée
- Présence d'émetteurs neutroniques interférents (Cm, Am,...)

Mesures de grandeurs difficilement accessibles par ailleurs :

- Matière Fissile
- Éléments stables
- β vie longue

1. Besoins et motivations (2)

- **Mesures directes :**

- d'un flux transmis
- d'un indicateur de présence/absence

- **Mesures indirectes :**

- d'une masse « totale » (U, Pu)
- d'une masse « équivalente » (^{239}Pu)
- d'une discrimination U/Pu
- d'une concentration élémentaire

- **Mesure des neutrons retardés**

- **Mesure des neutrons prompts**

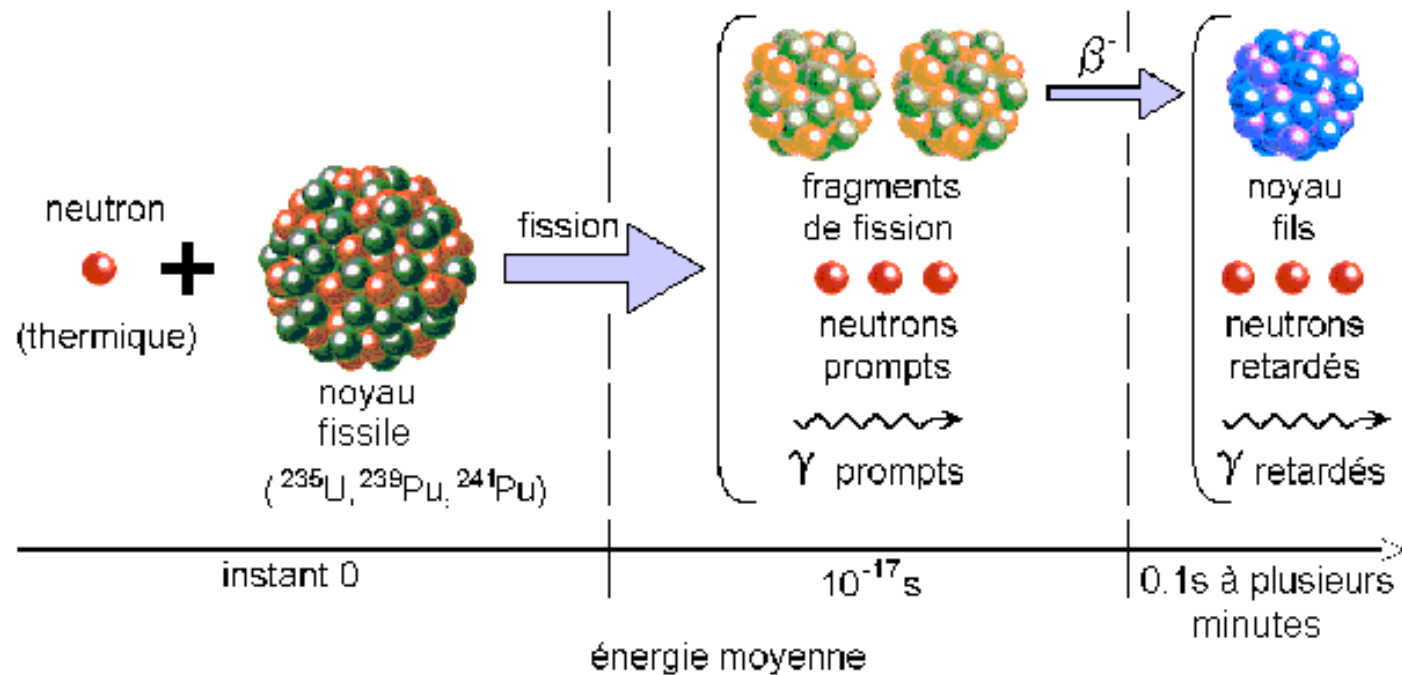
- **Mesure des neutrons prompts et retardés**

- **Coïncidence active**

- **Spectrométrie gamma « active »**

2. Propriétés de la réaction de fission induite (1)

PRINCIPE DE LA MESURE NEUTRONIQUE ACTIVE



- neutrons prompts : 2 MeV 2 à 3 par fission
- neutrons retardés : 500 KeV $0,6 \cdot 10^{-2}$ à $1,6 \cdot 10^{-2}$ par fission
- γ retardés : 1 MeV 5 à 7 par fission

2. Propriétés de la réaction de fission induite (2)



energie atomique • energies alternatives

- Sections efficaces de fission :

Isotope	^{235}U	^{239}Pu	^{241}Pu	^{238}U
σ thermique	583,2 b	747,6 b	1013 b	10^{-5} b
$\sigma \approx 2$ MeV	1,2 b	1,8 b	1,6 b	0,3 b

- Probabilité de fission pour 1 mg d'isotope fissile : $\approx 10^{-3} / n$ thermique.cm².s⁻¹

⇒ **La fission induite est un phénomène rare**

- Nécessité d'une source interrogatrice intense
- Nécessité de détecteurs supportant des flux élevés
- Nécessité de discriminer le signal induit du flux interrogateur
- Discriminations possibles
 - Temporelle : attendre la disparition du flux interrogateur (neutrons retardés)
 - Coïncidences : utiliser une source de « mono » neutrons pour mesurer des neutrons prompts de fission
 - Energétique : utiliser une source de spectre \neq des neutrons de fission
 - Type de particule : détection des gamma issus de réactions neutroniques

3. Mesure des neutrons retardés : *Shuffler* (1)

- Principe physique :

Deux temps : Irradiation – Comptage

➤ Irradiation :

- Source de ^{252}Cf : En jusqu'à 10^{10} n.s^{-1}

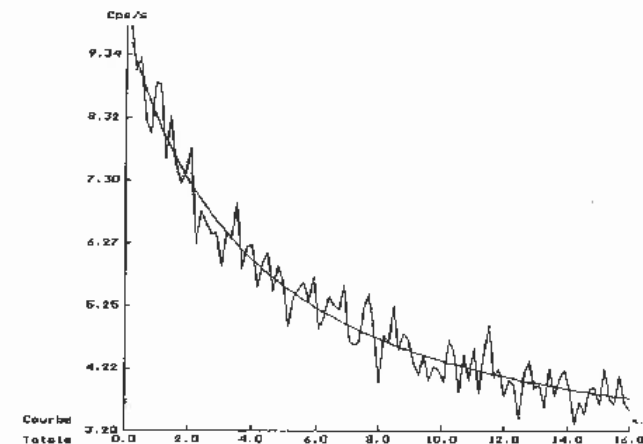
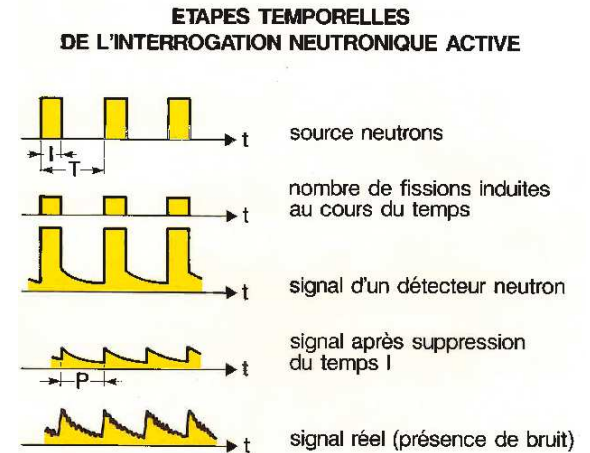
- Système de déplacement de la source entre le dispositif d'irradiation-comptage et le château de repli

- Durée typique : 10 à 30 s

➤ Comptage :

Après repli de la source dans le château

⇒ comptage des neutrons retardés de fissions induites proportionnel à la masse de Matière Fissile

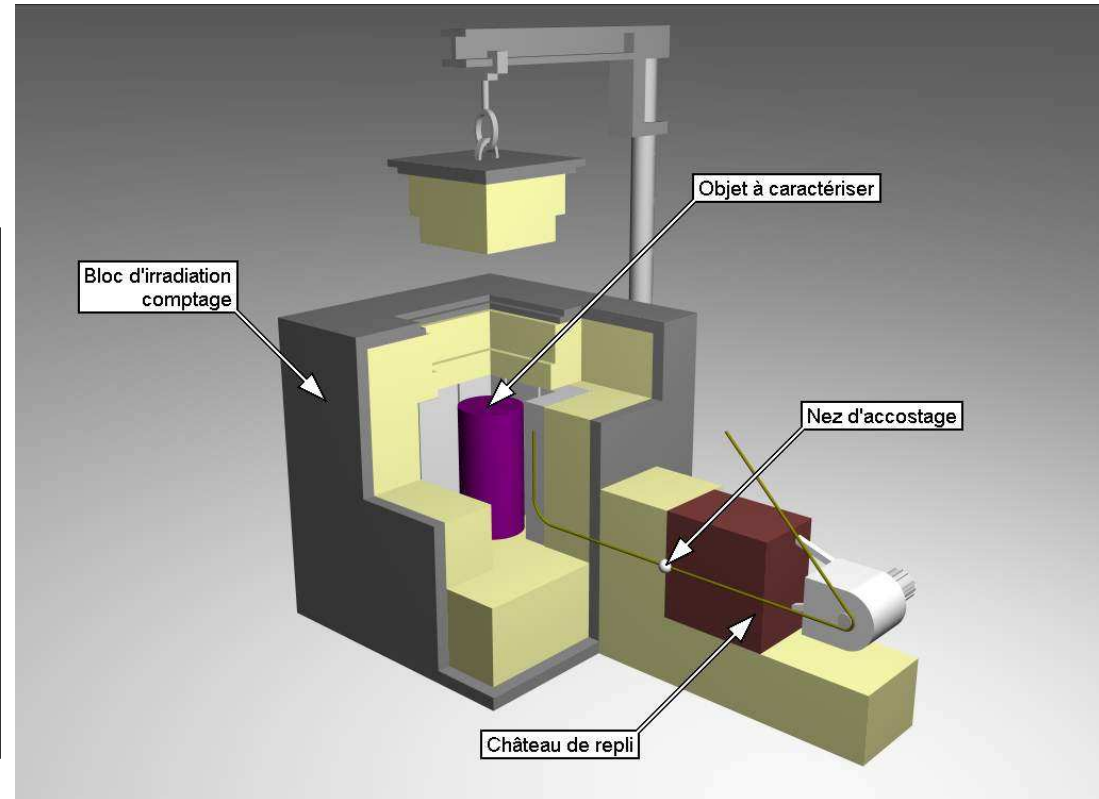


3. Mesure des neutrons retardés : *Shuffler* (2)



energie atomique • energies alternatives

- Pas d'information sur la nature des noyaux
- Pas d'information sur l'origine de l'émission
- Pas d'information exploitable sur l'énergie des neutrons



Discrimination temporelle
Réponse globale de l'objet

3. Mesure des neutrons retardés : *Shuffler* (3)



energie atomique • energies alternatives

• Origines du signal enregistré :

➤ neutrons retardés de fission induite

= Signal utile

➤ Signaux parasites dus :

- aux neutrons émis par l'objet (FS + (α, n))
- aux sources de neutrons externes à la mesure
- au rayonnement cosmique (n de spallation)
- au bruit électronique
- au rayonnement gamma

= Bruit de fond
= comptage total !

Signal mesuré = Signal utile + Bruit de fond

3. Mesure des neutrons retardés : *Shuffler* (3)



energie atomique • energies alternatives

Performances 😊	Limitations ☹️
<ul style="list-style-type: none">• mesure directe de la MF (mais pas de discrimination U/Pu)• dispositif pouvant être optimisé pour le passif et l'actif ⇒ discri U/Pu possible (si pas d'interférence en passif !)• utilisable sur flux mixte $^{235}\text{U}/^{239}\text{Pu}$ (avec étalonnage adapté)• possibilité de mettre en œuvre une correction d'effet de matrice (AAS)• possibilité de localiser la MF• possibilité d'adaptation du spectre interrogateur en fonction de l'objet et de la matrice• peut être optimisé pour une large gamme d'objet de différentes tailles	<ul style="list-style-type: none">• interprétation partielle si pas de CI• statistique moyenne, mesure des neutrons retardés (~ 1 / 100 fissions)• sensible à l'effet d'autoprotection sur MF massive (amélioré par ajout d'une peau Cd à l'intérieur du dispositif)• coût et maintenance du système de repli de la source• période de la source de ^{252}Cf (2,65 ans)• système et interprétation complexes• ↘ des performances en présence de Bdf passif élevé (ex : si Cm présent)• étalonnage exhaustif nécessaire (représentativité)• effet de matrice parfois important ⇒ nécessité d'une correction• dose intégrée lors du remplacement de la source interrogatrice• formation adaptée des opérateurs (maintenance interne du système)• méthode historique tend à disparaître

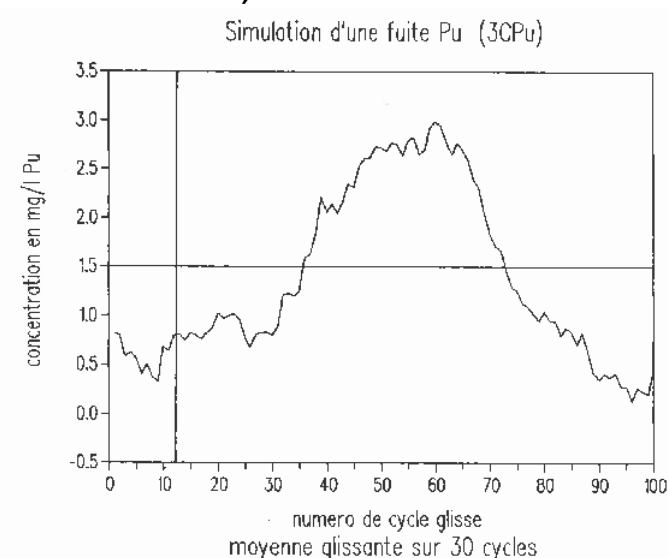
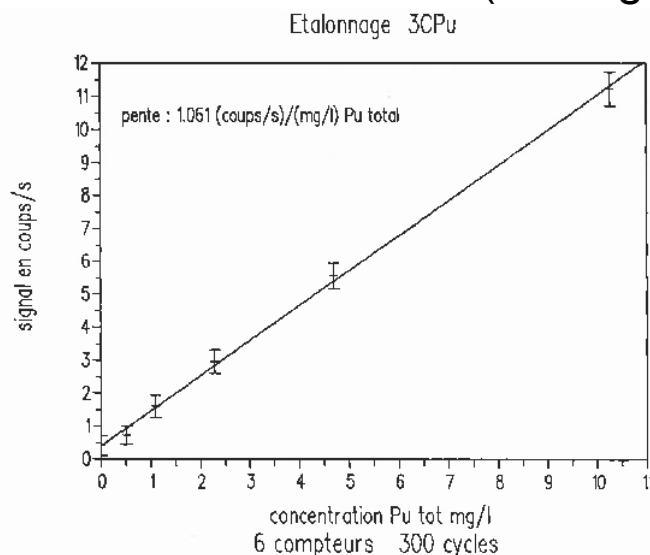
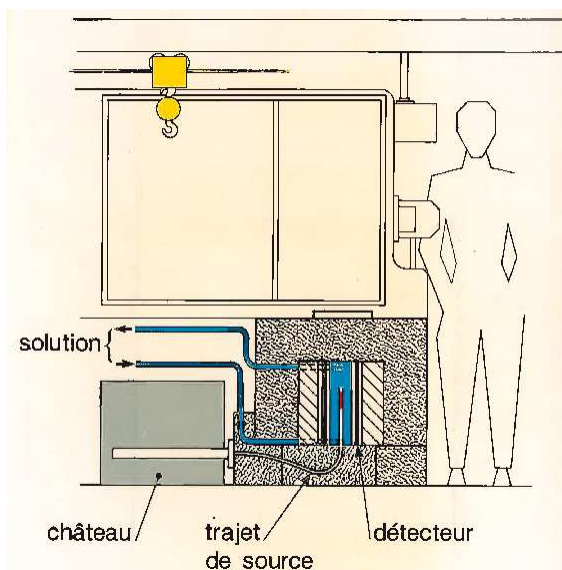
3. Mesure des neutrons retardés : *Shuffler* (4)



energie atomique • energies alternatives

- Exemples d'applications :

- ❖ *Mesure de déchets* : déchets uranium, déchets irradiants du procédé de retraitement \Rightarrow MF totale si de l'ordre de 100 mg
- ❖ *contrôle et détermination de concentration Pu en solutions* : usines de retraitement (\sim 1 mg/l en Pu total)



- ❖ *Détection d'accumulation ou de rétention de MF* : sur des équipements de volumes important (fonds de cuve, container ...), dans les usines d'enrichissement, de fabrication et de retraitement du combustible



energie atomique • energies alternatives

4. Mesure des neutrons prompts : *DDT* (1)

- Principe physique :

- Limitation à la mesure des neutrons retardés : faible nombre de neutrons par fission (~ 1 neutron retardé pour 100 fissions induites)

⇒ Intérêt de la mesure des neutrons prompts :

2 à 3 neutrons émis par fission

⇒ difficulté : émission quasi instantanée avec la fission (10^{-13} s)
impossible avec un système à retrait de source !

- Développement de nouveau matériel : générateurs de neutrons
 - ✓ plus performant : niveau d'émission neutronique
 - ✓ plus fiable en mode pulsé : durée d'utilisation, stabilité d'émission

DDT : Differential Die-Away Technique (ou DDA)

INA : Interrogation Neutronique Active



4. Mesure des neutrons prompts : *DDT* (2)

Deux temps : **Irradiation – Comptage**

➤ Irradiation :

- Générateur de neutrons : (*pas de source de n_{th} intense*)
 - ✓ D – D ($E_n = 2,4$ MeV) ou, plus courant, D – T ($E_n = 14,1$ MeV)
 - ✓ jusqu'à 10^{10} n.s⁻¹ (en mode pulsé)
 - ✓ **Mode pulsé** : impulsions de neutrons de qq 10 – qq 100 μ s répétées avec une fréquence $\sim 20 - 200$ Hz



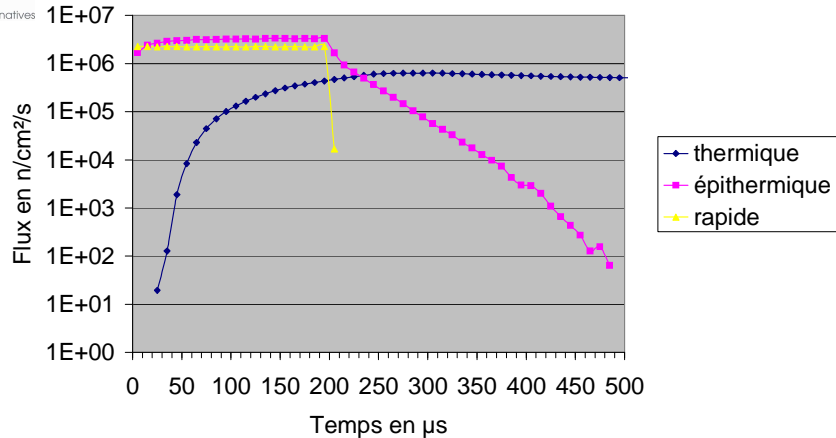
Type	réaction	intensité moy (n.s ⁻¹)	Fréquence de répétition	Largeur d'impulsion	En (MeV)
Génie 16	D – T	10^8	Continue à 10 kHz	200 μ s à continue	14,1
Génie 26	D – T	$2 \cdot 10^8$	Continue à 1 kHz	10 μ s à continue	14,1
Génie 36	D – T	$2 \cdot 10^9$	10 Hz à 125 Hz	200 μ s à 1 ms	14,1
Tube D – D	D – D	$\sim 10^8$	Continue à 1 kHz	10 μ s à continue	2,4
Linac	(γ ,n)	$\sim 10^{11}$	Continue à 1 kHz	<10 μ s à continue	3 ($E_e^- \sim 10$ MeV)

4. Mesure des neutrons prompts : *DDT* (3)

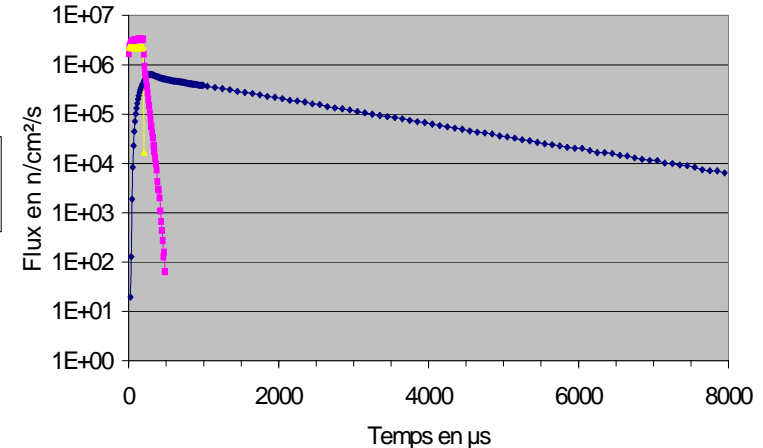


energie atomique • energies alternatives

Evolution des flux neutroniques après un tir de générateur



Evolution des flux neutroniques après un tir de générateur



- Le flux rapide décroît très vite après la fin du tir du générateur \Rightarrow plus de fissions rapides $\approx 10 \mu\text{s}$ après la fin du tir
- Le flux intermédiaire disparaît au bout de $\approx 500 \mu\text{s}$ \Rightarrow des **détecteurs « rapides »** permettraient de discriminer les neutrons de fission induite dans cette période
- Le flux thermique dure plusieurs ms \Rightarrow des **détecteurs insensibles aux neutrons thermiques** permettraient de discriminer les neutrons de fission thermique

4. Mesure des neutrons prompts : *DDT* (4)



energie atomique • energies alternatives

➤ Comptage :

- Entre chaque impulsion du générateur (inter-pulse) à l'aide :
 - ✓ de blocs de détection permettant la **discrimination énergétique et temporelle** entre les neutrons interrogateurs et les neutrons prompts
 - ✓ d'un système d'acquisition synchronisé sur les tirs du générateur
- + enceinte de mesure thermalisante (ralentissement des neutrons interrogateurs à $n_{th} \Rightarrow T_{1/2}(\text{cellule})$ long !)
 - \Rightarrow comptage séquentiel des **neutrons prompts de fissions induites proportionnel à la masse de Matière Fissile**



Bloc de détection : détection des neutrons rapides

- ✓ enveloppe de Cd et/ou B_4C = « filtre à n lents »
- ✓ polyéthylène = ralentissement des n rapides
- ✓ détecteurs 3He = comptage des n ralentis dans le bloc

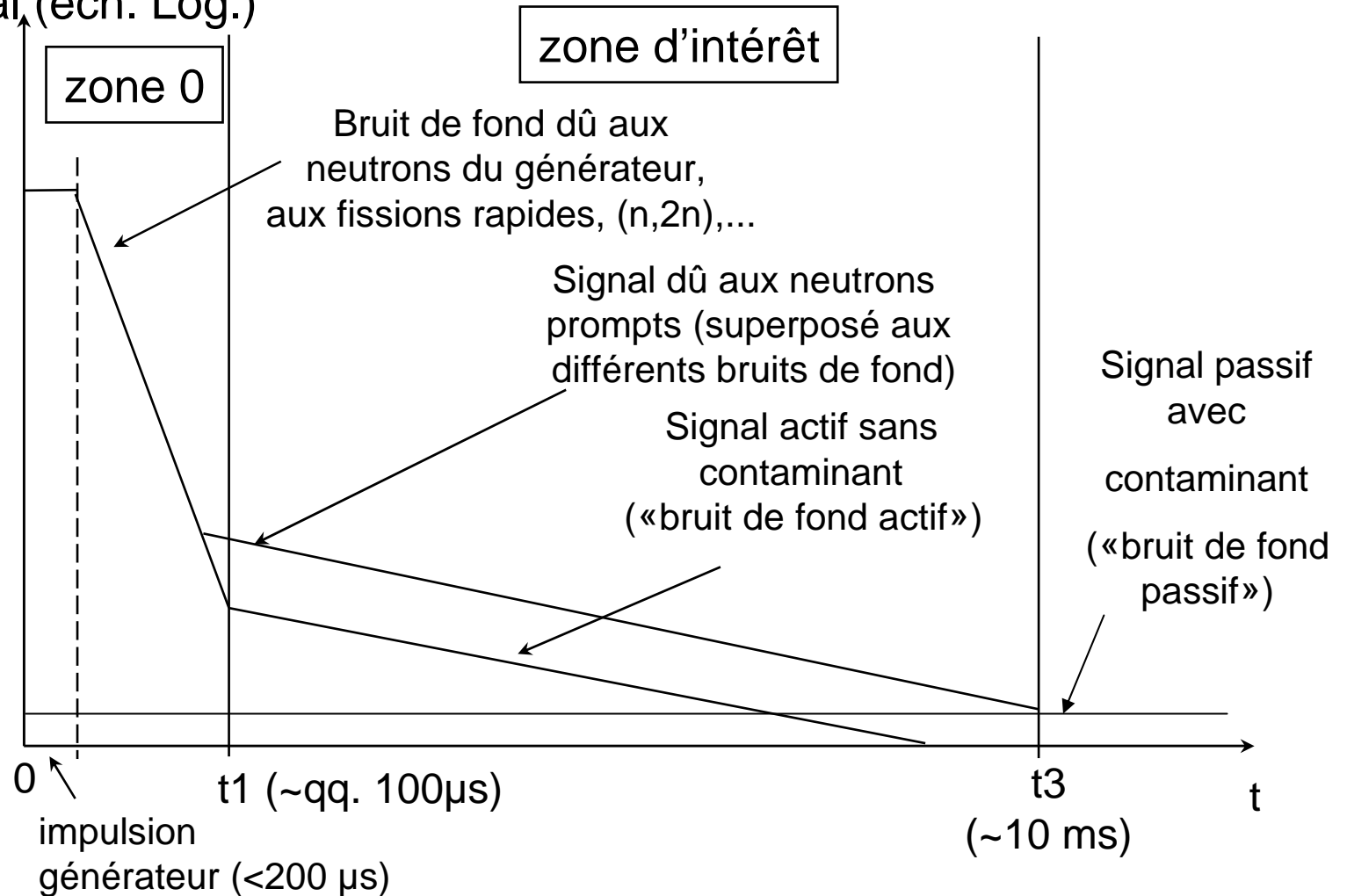
Capacité de détection/discrimination
 $\Rightarrow T_{1/2}(\text{bloc})$ court !

4. Mesure des neutrons prompts : *DDT* (5)



energie atomique • energies alternatives

Signal (ech. Log.)

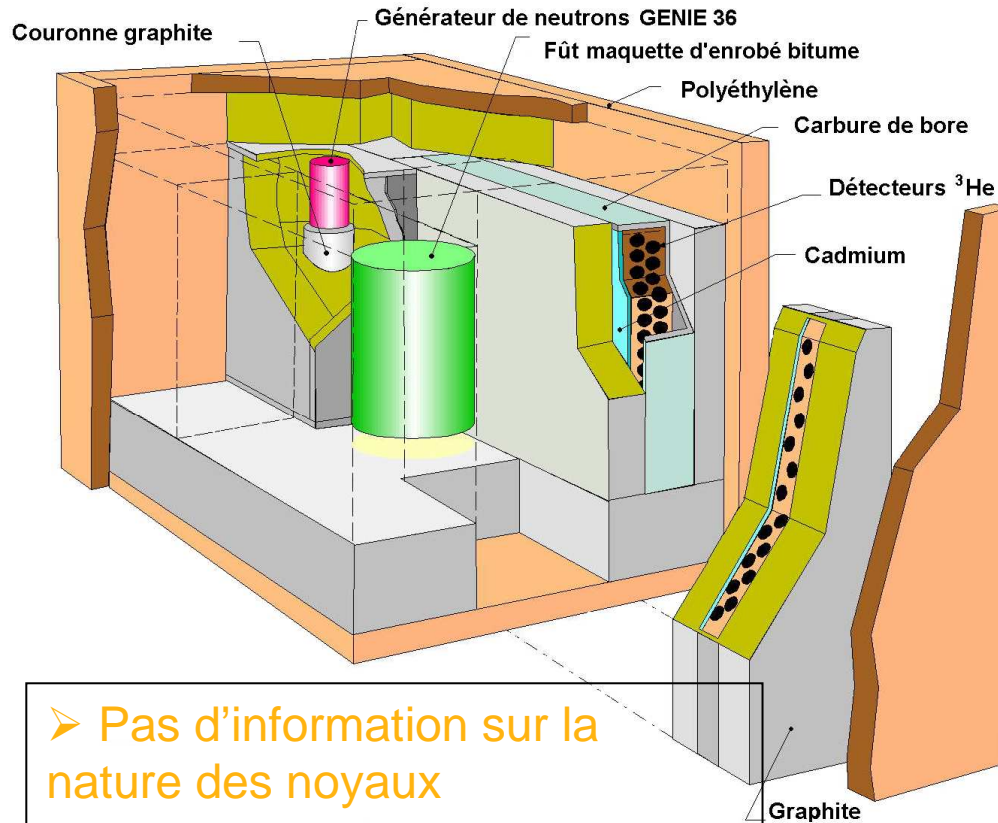


Acquisition : carte multiéchelles « rapide » (dwell time ~ 1µs)

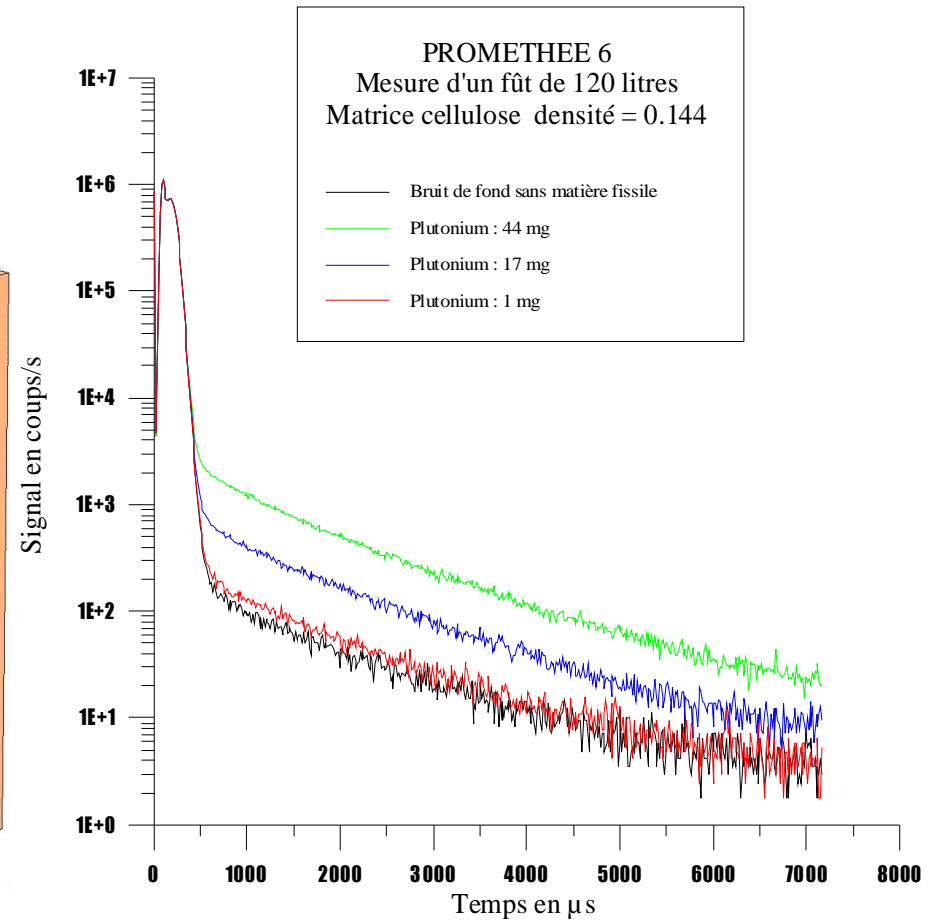
4. Mesure des neutrons prompts : *DDT* (6)



energie atomique • energies alternatives



- Pas d'information sur la nature des noyaux
- Pas d'information sur l'origine de l'émission
- Pas d'information exploitable sur l'énergie des neutrons



Discrimination temporelle et en énergie
Réponse globale de l'objet

4. Mesure des neutrons prompts : *DDT* (7)



energie atomique • energies alternatives

• Origines du signal enregistré :

➤ neutrons prompts de fission induite

= Signal utile

➤ Signaux parasites dus :

- aux neutrons émis par l'objet (FS + (α, n))
- aux sources de neutrons externes à la mesure
- au rayonnement cosmique (n de spallation)
- au bruit électronique
- au rayonnement gamma

= Bruit de fond passif

- aux neutrons retardés
- aux émissions parasites du générateur
- au bruit de fond actif (réactions $(n, \gamma) + (\gamma, n)$, imperfections des blocs...)

= Bruit de fond actif

Signal mesuré = Signal utile + Bruit de fond passif + Bruit de fond actif

4. Mesure des neutrons prompts : *DDT* (10)



energie atomique • energies alternatives

Performances ☺	Limitations ☹
<ul style="list-style-type: none">• mesure directe de la MF (mais pas de discrimination U/Pu)• combinaison de DDT et comptage de coïncidences ⇒ discri U/Pu possible, mais compromis sur optimisation du dispositif et si pas d'interférence en passif !• LD la plus faible (<< mg de MF)• utilisable sur flux mixte $^{235}\text{U}/^{239}\text{Pu}$ (avec étalonnage adapté)• flux interrogateur intense ⇒ opère en ambiance élevée• possibilité de caractériser la matrice• possibilité de localiser la MF• possibilité d'adaptation du spectre interrogateur en fonction de l'objet et de la matrice• système transportable (COQUINA)• peut être optimisé pour une large gamme d'objets de différentes tailles	<ul style="list-style-type: none">• interprétation partielle si pas de CI• pas de discrimination U/Pu : risque de surestimation de la MF d'un facteur 1,5 (⚠ $A\alpha$ 80 Bqα /mg ^{235}U – 2,3 MBqα /mg ^{239}Pu !!!)• sensible à l'effet d'autoprotection et de multiplication sur MF massive• coût élevé à l'achat et en maintenance• durée de vie limitée (~ 1000 h de tir)• système et interprétation complexes• étalonnage exhaustif nécessaire (représentativité)• effet de matrice important en analyse des déchets ⇒ nécessité d'une correction• effet de localisation de la MF parfois important (hypothèse d'homogénéité et/ou correction)• formation adaptée des opérateurs (maintenance interne du système)

4. Mesure des neutrons prompts : *DDT* (11)

- Exemples d'applications :

- ❖ *Mesure de déchets* : faible masse de MF totale < 1 mg
- ❖ *contrôle de sûreté – criticité* : analyse de la masse fissile totale résiduelle (usines de retraitement)
- ❖ *Mesure en ambiance radiologique élevée* : échantillons de combustible irradié, déchets irradiants
- ❖ *Détection d'accumulation ou de rétention de MF* : sur des équipements de volume important (fonds de cuve ...), dans les usines d'enrichissement, de fabrication et de retraitement du combustible

Développements en cours :

- analyse de forme du signal prompt
- analyse de coïncidence (de multiplicité) sur les neutrons prompts
 - ⇒ ε apparent, correction d'effet de matrice, discrimination U/Pu,...

4. Mesure des neutrons prompts : *DDT* (12)



energie atomique • énergies alternatives

- COQUINA : dispositif transportable de mesure des neutrons prompts
 - Générateur de neutrons Génie 16
 - système d'accostage PADIRAC
 - blindage neutron/gamma
 - LD en 15 min ≈ 1 mg ^{239}Pu



Cartouches FPT4

5. Mesure des neutrons prompts et retardés (1)



energie atomique • energies alternatives

- Principe physique :

- **Limitation des mesures actives : pas de discrimination U/Pu**

⇒ Mesure des neutrons prompts (Sp) : favorable à (^{239}Pu , ^{241}Pu)

1 g ^{239}Pu ~ 1,5 g ^{235}U

⇒ Mesure des neutrons retardés (Sr) : favorable à ^{235}U

1 g ^{239}Pu ~ 0,5 g ^{235}U

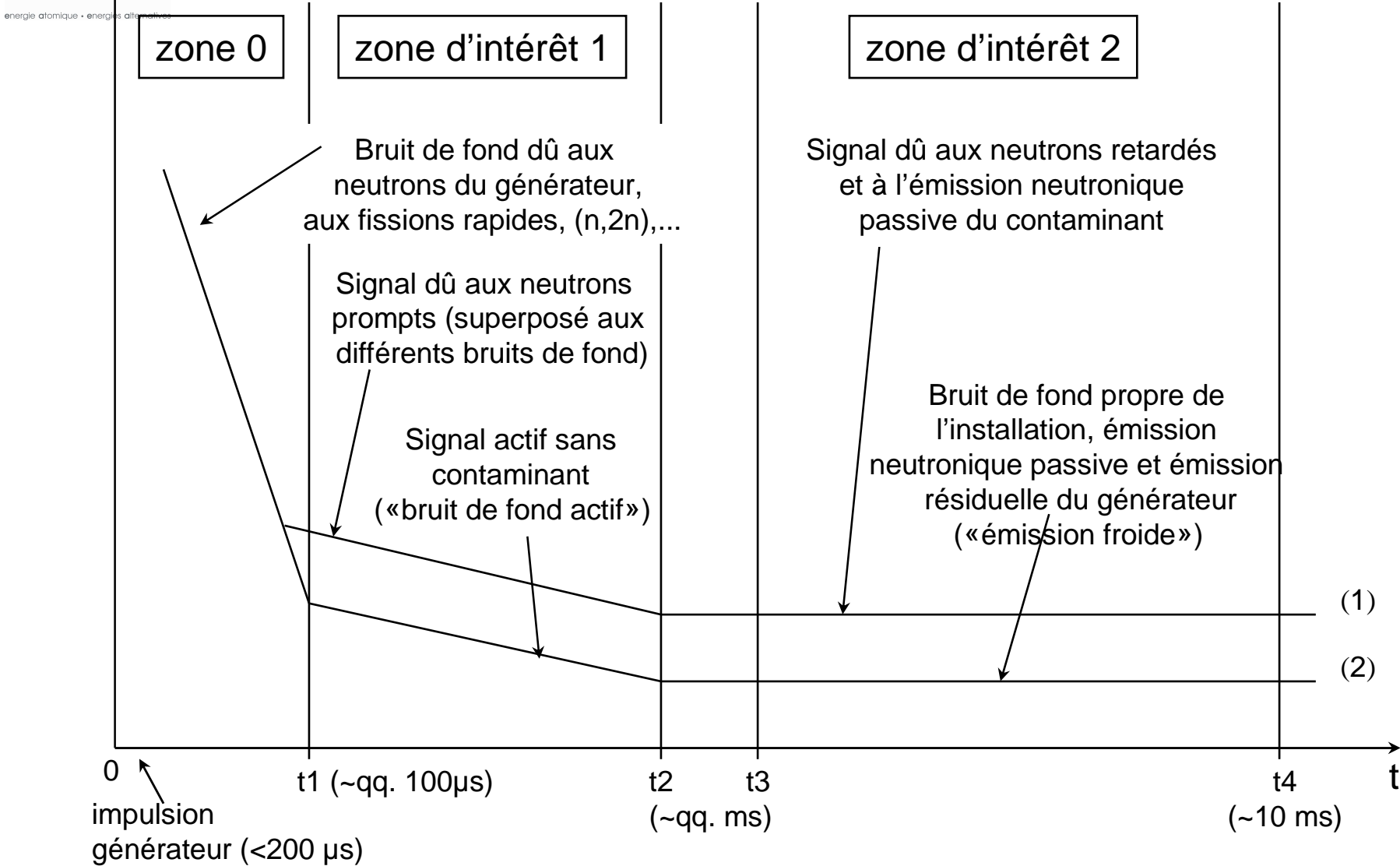
Deux temps : Irradiation – Comptage

- **Irradiation : Générateur de neutrons en mode pulsé :**
niveau d'émission neutronique ~ 10^9 n.s^{-1} ($f \sim 100 \text{ Hz}$,
 $L_{\text{imp}} = 200 \mu\text{s}$)
- **Comptage : acquisition des signaux prompt et retardé entre
chaque pulse**

5. Mesure des neutrons prompts et retardés (2)



Signal (ech. Log.)



5. Mesure des neutrons prompts et retardés (3)

- Interprétation du signal :

- Si ^{241}Pu et ^{238}U négligeables :

$$S_p = C_p 5.m(^{235}\text{U}) + C_p 9.m(^{239}\text{Pu})$$

$$S_r = C_r 5.m(^{235}\text{U}) + C_r 9.m(^{239}\text{Pu})$$

- Sinon :

$$S_p = C_p 5.m(^{235}\text{U}) + C_p 9.m(^{239}\text{Pu}) + C_p 1.m(^{241}\text{Pu})$$

$$S_r = C_r 5.m(^{235}\text{U}) + C_r 8.m(^{238}\text{U}) + C_r 9.m(^{239}\text{Pu}) + C_r 1.m(^{241}\text{Pu})$$

+ informations complémentaires (données producteur, autres techniques de mesure ND)

- Traitement de l'incertitude associée aux masses : méthode Monte Carlo (*RECITAL : REsolution et Combinaison d'Informations par Tirages ALéatoires*)

C_p et C_r : coefficients d'étalonnage en masse respectivement en mesure des neutrons prompts et des neutrons retardés

5. Mesure des neutrons prompts et retardés (4)



energie atomique • energies alternatives

Performances ☺	Limitations ☹
<ul style="list-style-type: none">• discrimination U/Pu• évaluation de l'autoprotection (si Pu seul)• combinaison à d'autres techniques et/ou à des données producteur si interférences• flux interrogateur intense \Rightarrow opère en ambiance élevée• possibilité de caractériser la matrice• possibilité de localiser la MF• possibilité d'adaptation du spectre interrogateur en fonction de l'objet et de la matrice• peut être optimisée pour une large gamme d'objets de différentes tailles• incertitude : distribution de probabilité	<ul style="list-style-type: none">• LD de la mesure des neutrons retardés (~ 10 mg de MF)• sensible à l'effet d'autoprotection et de multiplication sur MF massive• coût élevé à l'achat et en maintenance (système à ~ 1M€)• durée de vie limitée (~ 1000 h de tir)• système et interprétation très complexes• étalonnage exhaustif nécessaire (représentativité), utilisation de la simulation (MCNP)• effet de matrice important en analyse des déchets \Rightarrow nécessité d'une correction• effet de localisation de la MF parfois important (hypothèse d'homogénéité et/ou correction)• formation adaptée des opérateurs (maintenance interne du système)

5. Mesure des neutrons prompts et retardés (5)



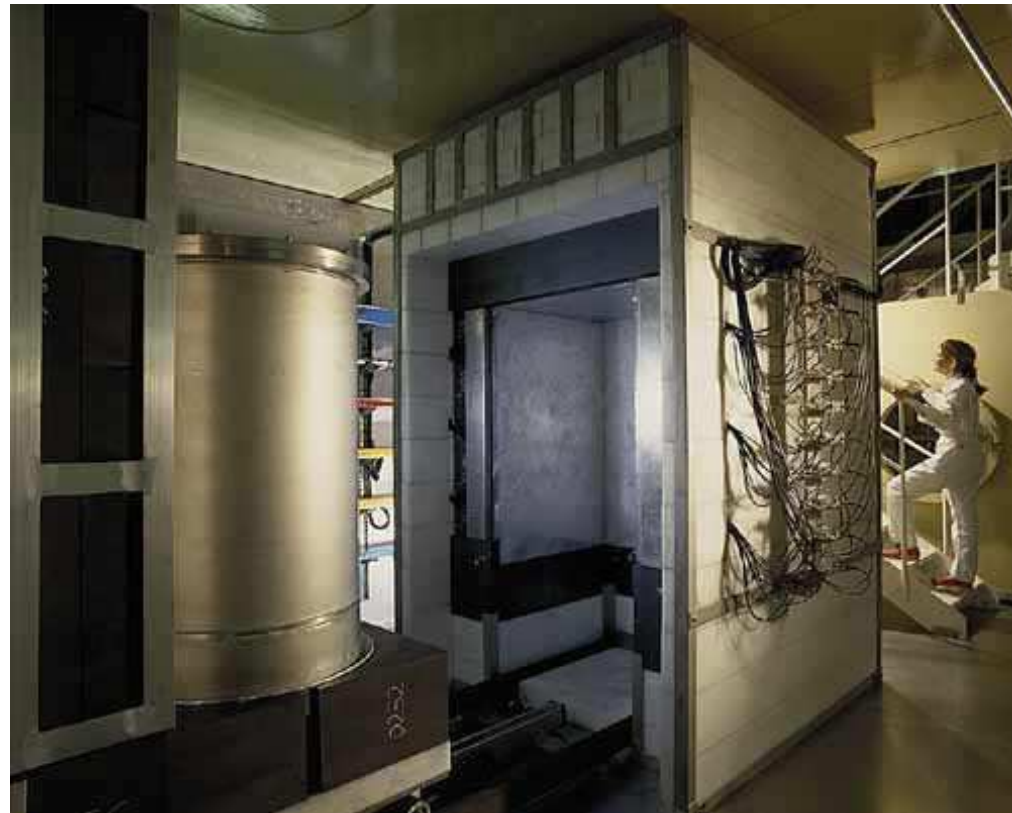
energie atomique • energies alternatives

- Exemples d'applications :

- ❖ *Mesure de déchets* : très irradiants et mélange U/Pu
 - fûts bitume de Marcoule
 - Atelier de Compactage des Coques de La Hague (ACC)

Maquette SYMETRIC :

- fût irradiant 200 l
- colis pré-bétonnés
- Super COntrôle (ANDRA)



6. Mesures des coïncidences de neutrons prompts

cea

energie atomique • energies alternatives

- Source (α, n) pure : AmLi $\sim 10^5$ n.s⁻¹
- ε : > 10 %
- mesure de coïncidences sur les neutrons prompts de fissions induites sur ²³⁵U

➤ *safeguards* :

- ✓ contrôle d'absence et/ou de substitution de crayons sur assemblage de combustible neuf REP, REB, CANDU (et en passif : contrôle d'assemblages neufs de MOX)
- ✓ contrôle de pastille combustible (LWR) et de pots UO₂



JCC72 (CANBERRA)

7. INA couplée à la spectrométrie gamma (1)

- Principe physique :

Deux temps : Irradiation – Comptage

➤ Irradiation :

- générateur de neutrons pour provoquer des réactions nucléaires sur les éléments à quantifier
- cellule d'irradiation pour ralentir les neutrons interrogateurs

➤ Comptage : spectrométrie gamma

- Des rayonnements de capture (n,γ)
- Des rayonnements de diffusion inélastique ($n,n' \gamma$)
- Des rayonnements de désactivation des produits de réactions (n,p), (n,α), ($n,2n$), (n,γ)

7. INA couplée à la spectrométrie gamma (2)

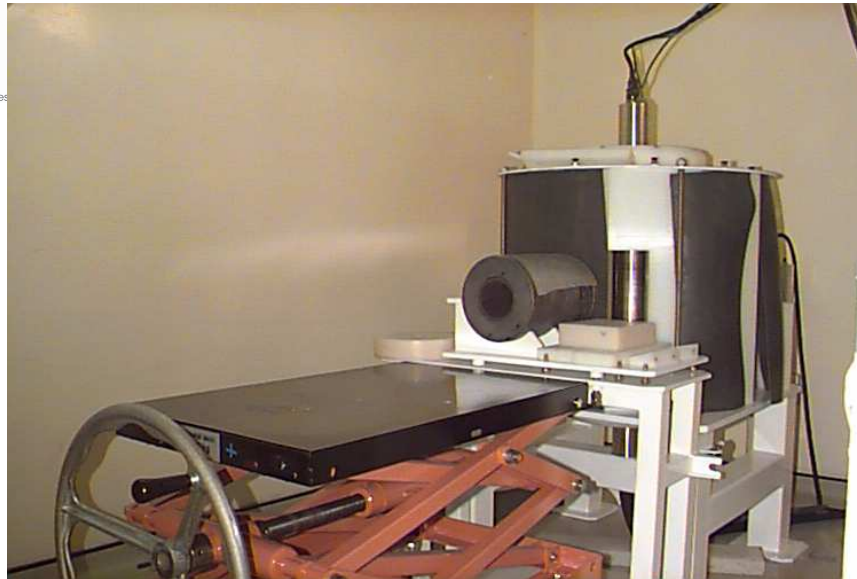
- Exemples d'applications :

- ❖ *NRBC (Nucléaire, Radiologique, Biologique, Chimique) :* recherche de toxique chimique (Hg, As, Cd,...), mines antipersonnelles, explosifs, matière nucléaire, ...
- ❖ *Émetteurs β purs et/ou à vie longue :* ^{151}Sm , ^{129}I
- ❖ *Caractérisation de matrice :* quantification d'éléments légers (Cl, H, B,...) pour corriger les effets de matrice en mesure neutronique active
- ❖ *Trafic illicite :* Projet EURITRACK (EUROpean Illicit TRAfficking Countermeasures Kit) pour la recherche de drogue et d'explosifs dans les containers sur les ports

7. INA couplée à la spectrométrie gamma (3)

cea

energie atomique • energies alternatives



- MEC :
Maquette d'Étude par Capture



- REGAIN :
REcherche des Gamma
d'Activation et d'Irradiation
Neutronique