

# Contrôler les matières nucléaires : la difficulté de mise en pratique d'une réglementation

par Pierre Funk  
Institut de RadioProtection et de Sûreté Nucléaire

Article paru dans « La Jaune et la Rouge » (Revue mensuelle de la société amicale des anciens élèves de l'Ecole polytechnique), février 2008.

## 1 INTRODUCTION

La réglementation française et internationale sur les *matières nucléaires* (matières susceptibles d'être utilisées pour la fabrication d'une arme nucléaire, tels que définit dans le code de la défense), prévoit que tout détenteur d'uranium connaisse d'une part les quantités d'uranium dont il dispose et d'autre part son *enrichissement* [1]. L'enrichissement est par définition le ratio entre la masse de l'isotope 235 de l'uranium et la masse totale d'uranium, généralement exprimé en pourcentage.

Dans cet article, nous nous intéressons aux méthodes d'analyse du spectre de rayonnements  $\gamma$  de l'uranium pour déterminer l'enrichissement d'un échantillon d'uranium. Dans ce domaine, l'IRSN ne développe pas ses propres outils d'analyse mais il utilise des logiciels du commerce. Le retour d'expérience montre que les incertitudes annoncées par ces logiciels ne sont pas toujours représentatives de l'erreur réellement commise et prennent assez mal en compte les réalités de terrain : il n'est pas rare de constater des sous-estimations des incertitudes d'un facteur 1,5 à 3 [2] [3] [4]. L'un des codes disponible n'annonce aucune incertitude, les développeurs considérant que cette démarche est de la responsabilité de l'utilisateur en fonction de ses applications. Ce constat est à l'origine des travaux présentés ici. L'objectif est de garantir la pertinence des résultats des mesures effectuées notamment dans le cadre des inspections du contrôle national et par suite d'assurer la crédibilité des mesures réalisées par l'IRSN vis à vis des pouvoirs publics et des exploitants.

Après avoir décrit l'organisation française de la protection et du contrôle des matières nucléaires, nous présentons la problématique spécifique à la mesure de l'enrichissement de l'uranium par spectrométrie  $\gamma$ , les outils utilisés, et quelques travaux réalisés à l'IRSN, en collaboration avec la Société de Calcul Mathématique, pour en déterminer les performances réelles.

## 2 PROTECTION ET CONTROLE DES MATIERES NUCLEAIRES

En France la détention de matières nucléaires est réglementée par un ensemble de textes (code de la défense, décrets, arrêtés) qui définit précisément les matières concernées et les obligations des détenteurs, et qui met en place le contrôle national.

Le titulaire d'une autorisation de détention de matières nucléaires est chargé d'effectuer le contrôle, dit de premier niveau, qui doit être exhaustif. A ce titre, il doit connaître à tout moment la qualité et la quantité des matières nucléaires qu'il détient. Pour cela, il doit notamment tenir une comptabilité des matières nucléaires détenues dans l'installation, assurer le suivi de ces matières – c'est-à-dire connaître leur localisation, leur usage, et leurs transformations – et vérifier par des inventaires périodiques que la situation physique des matières nucléaires est conforme aux données de leur comptabilité locale.

L'application de la réglementation par les exploitants fait l'objet d'un contrôle dit de deuxième niveau : des inspections dans les installations sont notamment réalisées par le service de Sécurité des Infrastructures Économiques et Nucléaires (SIEN), sous l'autorité du Haut Fonctionnaire de Défense et de Sécurité (HFDS) du ministre en charge de l'industrie, avec le concours technique de l'IRSN. Ce dispositif d'inspections ne vise pas à effectuer un contrôle à la place de l'exploitant mais à vérifier l'efficacité du système mis en œuvre par le titulaire de l'autorisation, conformément aux engagements pris.

### 3 INSPECTIONS AVEC MESURES

La plupart des inspections portent sur des aspects organisationnels, administratifs ou réglementaires. Concernant le suivi physique des matières nucléaires, un des contrôles consiste à réaliser des inspections dites renforcées qui donnent lieu à des vérifications par des mesures physiques. Ces inspections peuvent concerner toutes les étapes du cycle du combustible. La mise en œuvre de moyens de mesures par les inspecteurs permet de produire des résultats contradictoires de l'exploitant qui permettent de vérifier la qualité des moyens de mesure d'une installation, et la justesse des résultats exploités pour le suivi. Il est clair que pour être crédible, tant vis-à-vis des autorités que des exploitants, les inspecteurs doivent garantir la pertinence de leurs résultats des mesures.

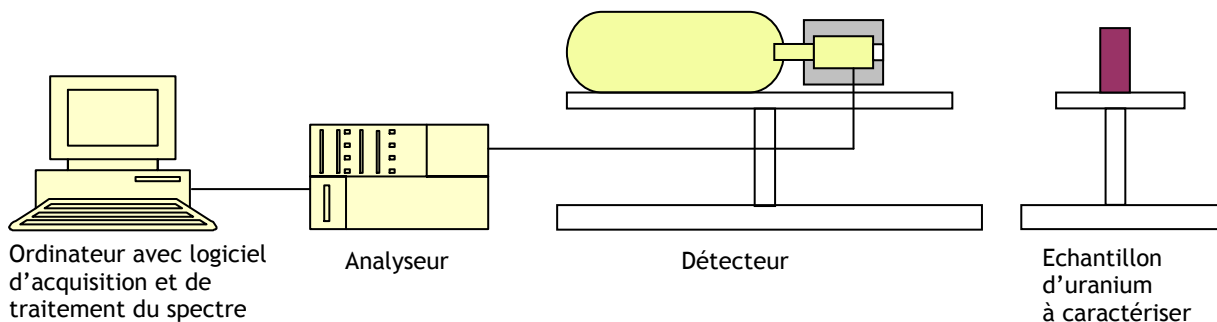
Les méthodes de mesures utilisées par les inspecteurs sont fondées sur des méthodes classiques de mesures non destructives (spectrométrie  $\gamma$ , mesure neutronique) adaptées aux contraintes particulières imposées par le cadre de l'inspection. Tout d'abord, les dispositifs de mesures doivent être transportables. Les locaux où sont réalisées les mesures sont peu, voire mal, adaptés, ce qui peut avoir une influence sur la qualité des résultats : l'espace de mesures n'est souvent que le stockage lui-même ou un local proche.

Dans cet article, nous traitons uniquement des performances de l'une des méthodes de mesures des inspecteurs : l'analyse du spectre de rayonnements  $\gamma$  d'un échantillon d'uranium pour en déterminer l'enrichissement.

### 4 MESURE D'ENRICHISSEMENT PAR SPECTROMETRIE GAMMA

#### 4.1 PRINCIPE [5]

Le phénomène de désintégration d'un élément radioactif s'accompagne en général d'émission de rayonnements  $\gamma$  à des énergies caractéristiques des transitions qui ont lieu lors de la désexcitation des noyaux. Par exemple, l'isotope 235 de l'uranium émet de manière spontanée des photons  $\gamma$  d'énergie 144 keV, 163 keV, 185,7 keV, 205 keV... La spectrométrie  $\gamma$  a pour objet la mesure de ces rayonnements au moyen d'un dispositif (association d'un détecteur et d'un analyseur multicanal, figure 1) qui permet de les classer en fonction de leur énergie : on obtient un spectre en énergie. Parmi tous les photons qui sont émis de manière isotrope, certains vont entrer dans le détecteur. Les phénomènes qui se produisent alors (absorption totale de l'énergie du photon dans le détecteur, diffusion Compton, rayonnement de freinage, créations de paires...) se traduisent par un dépôt d'énergie dans le détecteur constitué de la superposition d'une distribution continue et de raies caractéristiques de l'énergie initiale du photon. La radioactivité étant un phénomène statistique, il faut compter suffisamment longtemps pour accumuler un nombre de coup suffisant dans le spectre d'énergie  $\gamma$ . L'apparition d'un pic à une énergie donnée permet non seulement d'identifier la présence d'un élément, mais également d'en calculer l'activité, en déterminant la surface nette du pic, c'est-à-dire la surface totale du pic déduite du bruit de fond continu (figure 1).



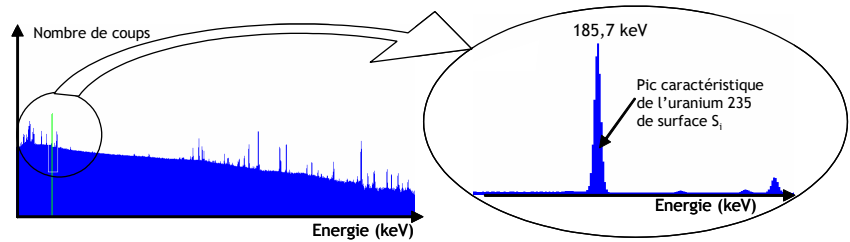


Figure 1 : chaîne de mesure de spectrométrie  $\gamma$  et exemple de spectre  $\gamma$  d'un échantillon d'uranium

Considérons un élément radioactif « i », d'activité  $a_i$ , émettant un photon  $\gamma$  d'énergie  $E_i$ . La surface nette du pic est reliée à l'activité de l'élément relation suivante :

$$S_i = a_i \times \varepsilon_i \times P_i \times t \quad \text{avec} \quad a_i = \lambda_i \times N_i \quad [\text{Eq. 1}]$$

- $S_i$  : surface nette du pic d'absorption totale à l'énergie  $E_i$  ;
- $a_i$  : activité de la source au début de la mesure ;
- $\lambda_i$  : constante de décroissance de l'élément « i » ;
- $N_i$  : nombre d'atome radioactif initial de l'élément « i » ;
- $\varepsilon_i$  : efficacité absolue de détection, à l'énergie  $E_i$ , de l'élément « i » ;
- $P_i$  : rapport d'embranchement de la raie mesurée, à l'énergie  $E_i$ , de l'élément « i » ;
- $t$  : durée de l'acquisition du spectre.

Pour deux photons  $\gamma$  d'énergies  $E_1$  et  $E_2$  de deux éléments radioactifs, on peut calculer le ratio  $e = N_1/N_2$  :

$$e = \frac{N_1}{N_2} = \frac{S_1}{S_2} \times \frac{\varepsilon_2}{\varepsilon_1} \times \frac{P_2 \lambda_2}{P_1 \lambda_1} \quad [\text{Eq. 2}]$$

Dans le cas de l'uranium, en considérant comme élément radioactif les deux isotopes 235 et 238, « e » est directement proportionnel à l'enrichissement, et indépendant de la forme physico-chimique et des dimensions de l'échantillon d'uranium à caractériser.

Toute la difficulté consiste à choisir les énergies  $E_1$  et  $E_2$  pour déterminer correctement les facteurs  $S_1/S_2$  et  $\varepsilon_2/\varepsilon_1$  sachant que le terme  $P_2 \lambda_2 / P_1 \lambda_1$  est obtenu à partir des tables de données nucléaires.

Une stratégie possible d'analyse du spectre consiste à calculer e suivant l'équation 2 pour des énergies  $E_1$  et  $E_2$  voisines. Dans ce cas, les différences d'efficacité sont faibles et négligeables au premier ordre :  $\varepsilon_2/\varepsilon_1$  est proche de 1. Le facteur  $S_1/S_2$  est obtenu expérimentalement par l'analyse du spectre  $\gamma$ . Pour l'uranium, la région d'énergie de 89 à 100 keV est particulièrement intéressante, car elle présente de nombreuses raies des différents isotopes de l'uranium. Son analyse nécessite cependant l'utilisation d'algorithmes performants de déconvolution de pic du fait de la superposition des nombreuses raies de cette région (figure 2).

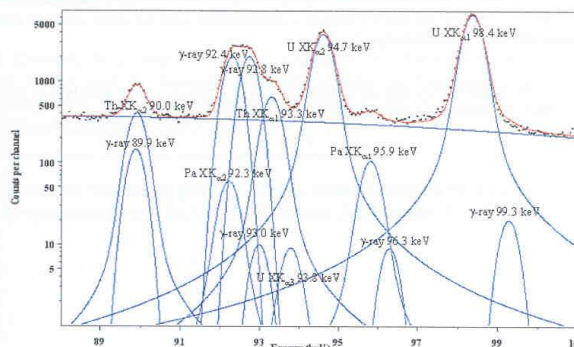


Figure 2 : analyse de la région 89-100 keV d'un spectre  $\gamma$  d'uranium

Une autre stratégie consiste à choisir des raies isolées, dans une région du spectre moins complexe à analyser. Mais il faut alors évaluer correctement le terme  $\varepsilon_2/\varepsilon_1$ , ce qui est fait en général sur la base de modèle physique ou empirique d'évolution de l'efficacité de détection en fonction de l'énergie.

## 4.2 LES CHAINES D'ACQUISITION ET LES LOGICIELS

Depuis le début des années 1990, plusieurs logiciels ont été développés spécifiquement pour déterminer l'enrichissement d'un échantillon d'uranium, chacun présentant des avantages et inconvénients. Quel que soit le logiciel utilisé, il n'est pas nécessaire d'utiliser une source radioactive externe pour étalonner le système. Le spectre de rayonnements  $\gamma$  de l'échantillon d'uranium contient en effet toute l'information nécessaire au calcul de l'enrichissement.

L'IRSN a choisi d'utiliser trois outils distincts, MGA [6] (deux versions différentes existent l'une commercialisée par la société ORTEC, l'autre par la société CANBERRA), FRAM [7] et IGA [8] [2], développé respectivement par Lawrence Livermore National Laboratory, Los Alamos National Laboratory et le CEA. Chacun de ces systèmes offre des performances différentes suivant les configurations expérimentales. Par exemple, FRAM qui analyse les photons  $\gamma$  des hautes énergies sera moins sensible aux effets d'écrans que MGA. IGA offre l'avantage d'avoir directement été conçu pour ne pas travailler à gain fixe (la plage d'énergie analysée est libre et ne pas imposer de critères sur la résolution du spectre. Tous les spectres acquis pour une analyse avec MGA ou FRAM peuvent être analysés par IGA.

## 4.3 SIMPLICITE ET COMPLEXITE DE LA MESURE

L'intérêt principal des techniques de spectrométrie  $\gamma$  réside dans leur souplesse de mise en œuvre comparée aux techniques de radiochimies qui sont longues à réaliser, contraignantes vis-à-vis de la radioprotection et par nature génératrices de déchets. Elles permettent en effet une mesure directe de l'émission de rayonnements  $\gamma$  - mesure non destructive - des isotopes 235 et 238 de l'uranium. La première étape consiste à acquérir un spectre de rayonnements  $\gamma$ . L'opérateur utilise pour cela une chaîne d'acquisition constituée d'un détecteur germanium et d'un analyseur multicanal piloté depuis un ordinateur. Il positionne le détecteur à une cinquantaine de centimètres du produit à caractériser et démarre l'acquisition du spectre. Une fois la statistique de comptage suffisante (une acquisition peut durer typiquement une demi-heure), il arrête l'acquisition et réalise une sauvegarde du spectre. La deuxième étape consiste alors en l'analyse du spectre par l'outil d'analyse qui donne le résultat de mesure d'enrichissement, après un temps de calcul de quelques secondes, voire instantané suivant les cas.

La procédure à mettre en œuvre est donc simple mais la complexité du problème à résoudre vient justement de cette simplicité ! Les utilisateurs disposent d'outils permettant d'obtenir des résultats indépendamment de la forme physico-chimique de l'uranium, indépendamment du conditionnement des matières. Il n'y a aucun étalonnage préalable utilisant des produits de référence. Seule l'information disponible dans le spectre est utilisée pour l'obtention du résultat. Mais quelle confiance peut-on avoir sur la valeur obtenue ? Le logiciel de calcul présente un résultat associé à une incertitude mais celle-ci, de par la méthode d'analyse, ne prend pas en compte les conditions expérimentales liées à la nature du produit à caractériser et aux choix de l'opérateur (réglage du détecteur, distance et temps d'acquisition...). Et l'on constate en pratique que les résultats ne sont pas toujours facilement interprétables.

## 5 EVALUATION EMPIRIQUE DES INCERTITUDES

L'IRSN a décidé de mettre en œuvre une démarche expérimentale pour maîtriser les incertitudes des mesures d'enrichissement. Cette démarche consiste à faire varier, dans le cadre d'un plan d'expérience, les paramètres qui ont une influence sur le résultat d'une mesure d'enrichissement.

### 5.1 FABRICATION DE SOURCES D'URANIUM DE REFERENCE

Afin de mener à bien ce plan d'expérience, l'IRSN s'est doté de différentes sources d'uranium d'enrichissement certifié. Il a été décidé de faire fabriquer des sources scellées conformes aux normes AFNOR (mécanique et étanchéité), cette solution étant la moins pénalisante en termes de manipulations et de contraintes réglementaires. Au final, une année a été nécessaire à leur obtention depuis l'élaboration du cahier des charges, le choix du fournisseur (CERCA LEA), l'approvisionnement de la matière, la qualification de l'emballage, la réalisation des sources, la validation du protocole de transport par les autorités, jusqu'à la recette et la livraison. Vingt sources d'uranium ont été fabriquées. La matière se présente sous la forme de poudre tassée d' $U_3O_8$ , dont deux sources mélangées à de la fluorine. La gamme d'enrichissement est comprise entre 0,3 % et 89 %.

## 5.2 DEFINITION DU PLAN D'EXPERIENCE

L'objet du plan d'expérience est de démontrer l'influence ou l'absence d'influence de certains paramètres sur le résultat de mesure de l'enrichissement. Cinq paramètres ont été retenus afin de reproduire la plupart des configurations de mesures rencontrées effectivement sur le terrain :

- l'**enrichissement** de l'uranium, sur la base des sources d' $U_3O_8$  qui présentent des teneurs en  $^{235}U$  sur toute la gamme depuis l'uranium appauvri jusqu'à l'uranium très enrichi.
- la **distance** entre la source et le détecteur. Les mesures sont effectuées à deux distances différentes : 10 cm (distance minimale recommandée pour ne pas subir le phénomène de sommation de pics) et 45 cm (distance de mesure des fûts de déchets).
- l'**épaisseur d'écran** interposé entre la source et le détecteur, afin d'évaluer l'influence du conditionnement. Les mesures sont effectuées sans écran et avec deux écrans d'acier inoxydable de 2 mm et 6 mm.
- la **matrice**<sup>1</sup> dans laquelle peut être conditionné l'uranium afin de reproduire un conditionnement caractéristique de fût de déchets. Les mesures sont réalisées avec une maquette de fût de déchet de 200 litres (figure 3) contenant des matrices vinyliques de masse volumique  $0,2 \text{ g/cm}^3$  (cas moyen généralement rencontré) et  $0,4 \text{ g/cm}^3$  (cas pénalisant, également rencontré sur le terrain), au milieu desquelles est déposée la source d'uranium.

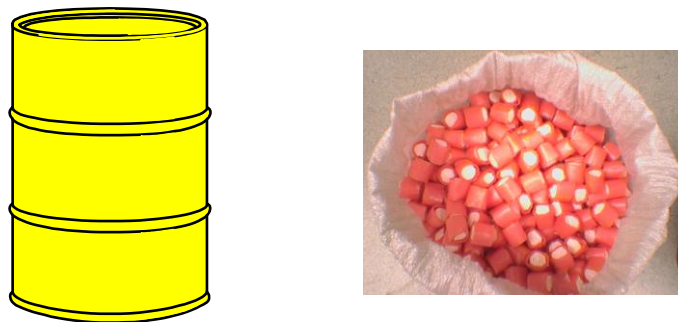


Figure 3: fût de déchet avec un contenu simulant une matrice vinylique

- l'opérateur, dont l'influence est simulée en déréglant légèrement le **gain** de la chaîne de mesure de spectrométrie.

Les paramètres de sortie du plan d'expérience sont :

- la **différence** entre le résultat attendu (valeur certifiée du matériau de référence) et le résultat donné par le logiciel d'analyse ;
- l'**incertitude** donnée par le logiciel d'analyse.

Le plan d'expérience représente un total de 224 mesures : 16 sources et 14 mesures par source. La configuration dite de base correspond à la source sans écran autre que son conditionnement placée à 10 cm du détecteur avec un réglage optimal de la chaîne de mesure. Des mesures de répétabilité ont également été réalisées dans cette configuration. Ce plan d'expérience est répété pour chaque dispositif MGA, FRAM et IGA.

## 6 PREMIER RESULTAT DU PLAN D'EXPERIENCE

Nous présentons dans ce qui suit les premiers résultats de l'analyse du plan d'expérience pour le logiciel MGA (MGAU version 2.2), pour la version commercialisée par CANBERRA.

Les mesures du plan d'expérience ont été regroupées de la manière suivante :

- 3 classes d'enrichissements :  $E < 1\%$ ,  $1\% < E < 20\%$  et  $E > 20\%$
- 7 conditions de mesures, tenant compte des paramètres que sont la distance, la présence d'écran et de matrice. Ces conditions sont numérotées de 1 à 7 du cas n°1 le plus simple (distance de 10 cm sans d'écran) au cas n°7 le plus complexe (matrice de  $0,4 \text{ g/cm}^3$ ).

---

<sup>1</sup> La matrice peut être considérée comme un écran mais les corrections apportées étant différentes, son influence est traitée indépendamment.

Les principaux enseignements de l'exploitation du plan d'expérience aux mesures avec MGA sont les suivants :

- Une imprécision du réglage du gain de la chaîne de mesure, qui entend simuler l'influence de l'opérateur, n'a pas d'influence sur les résultats.
- Le paramètre « matrice » a la plus forte influence sur les écarts relatifs constatés entre les valeurs mesurées et les valeurs certifiées.
- Lorsque l'enrichissement est compris entre 1% et 20%, les incertitudes relatives sont correctement déterminées.
- Lorsque l'enrichissement est supérieur à 20%, les incertitudes relatives sont correctement déterminées sauf lorsqu'il y a une matrice ou un écran de 6 mm d'acier. Dans ce cas, les incertitudes relatives calculées par le logiciel sont le plus souvent sous-estimées, et le facteur correctif à appliquer sur l'incertitude est compris entre 2,1 et 2,4.
- Lorsque l'enrichissement est inférieur à 1%, les incertitudes relatives calculées par le logiciel sont d'une manière générale supérieures à celles constatées expérimentalement dans les deux autres gammes : de l'ordre de 10% pour les conditions de mesures *simples* et de l'ordre de 20% à 25% pour les conditions de mesures *complexes* (présence de matrice).

## **7 CONCLUSION**

Depuis le début des années 1990, plusieurs outils ont été développés pour déterminer l'enrichissement d'un échantillon d'uranium par l'analyse du spectre de rayonnements  $\gamma$  de l'uranium. Ces outils utilisent des outils mathématiques complexes mais sont très simples d'utilisation : après l'acquisition du spectre  $\gamma$ , le logiciel analyse les raies contenues dans le spectre pour calculer le résultat recherché. Il n'est pas nécessaire d'utiliser une source radioactive externe pour étalonner le système : le spectre de rayonnements  $\gamma$  de l'uranium contient en effet toute l'information nécessaire au calcul de l'enrichissement.

Dans des conditions de mesures optimales, les performances de ces logiciels sont connues et les incertitudes de mesures semblent correctement évaluées. Mais ce n'est pas toujours le cas des mesures réalisées dans le cadre des inspections du contrôle national. Il s'agit de mesures réalisées sur le terrain, sur l'ensemble des produits qu'il est possible de rencontrer dans les différentes étapes du cycle du combustible. C'est pourquoi l'IRSN a décidé de mettre en œuvre une démarche expérimentale, dans le cadre d'un plan d'expérience, pour maîtriser les incertitudes des mesures d'enrichissement. L'étude en cours permettra ainsi de réévaluer les incertitudes en tenant compte des conditions expérimentales réellement constatées.

## **8 REFERENCES**

- [1] J. Jalouneix, D. Winter, « Protection et contrôle des matières nucléaires », Technique de l'Ingénieur BN 3940 », Juillet 2007
- [2] Proceeding of the international workshop on Gamma Evaluation Codes for Plutonium and Uranium Isotope Abundance Measurements by High -Resolution gamma Spectroscopy: Current Status and Future Challenges, ITU Karlsruhe, November 14-16, 2005
- [3] S. Abousahl et al., « Applicability and limits of the MGAU code for the determination of the enrichment of uranium samples », Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 368 (1996) 443-448
- [4] AN. Berlizov et al., « Performance testing of the upgraded uranium isotopics multi-group analysis code MGAU », NIM Section A, 575 (2007) 498-506
- [5] D. Reilly et al., « Passive Nondestructive Assay of Nuclear Materials », NUREG/CR-5550, LA-UR-90-732, March 1991.
- [6] R. Gunnink et al., « MGAU: a new analysis code for measuring U-235 enrichments in arbitrary samples », URCL-JC-114713, IAEA Symposium on International Safeguards, Vienna, March 8-14, 1994
- [7] AC. Simon et al., « A new computer code for the automatic determination of the isotopic composition of actinides by X- and gamma-ray spectrometry », European Nuclear Conference, Versailles 2005
- [8] TE. Sampson, TA. Kelley, « PC/FRAM user manual version 4.2 », LA-UR-99-998, 1999