

①9 RÉPUBLIQUE FRANÇAISE
INSTITUT NATIONAL
DE LA PROPRIÉTÉ INDUSTRIELLE
COURBEVOIE

①1 N° de publication :
(à n'utiliser que pour les
commandes de reproduction)

3 144 671

②1 N° d'enregistrement national : **22 14720**

⑤1 Int Cl⁸ : **G 01 T 1/36 (2023.01), G 01 J 3/02, G 21 G /**

⑫

DEMANDE DE BREVET D'INVENTION

A1

②2 Date de dépôt : 30.12.22.

③0 Priorité :

④3 Date de mise à la disposition du public de la demande : 05.07.24 Bulletin 24/27.

⑤6 Liste des documents cités dans le rapport de recherche préliminaire : *Se reporter à la fin du présent fascicule*

⑥0 Références à d'autres documents nationaux apparentés :

Demande(s) d'extension :

⑦1 Demandeur(s) : COMMISSARIAT A L'ENERGIE ATOMIQUE ET AUX ENERGIES ALTERNATIVES Etablissement public à caractère industriel et commercial — FR.

⑦2 Inventeur(s) : VENARA Julien.

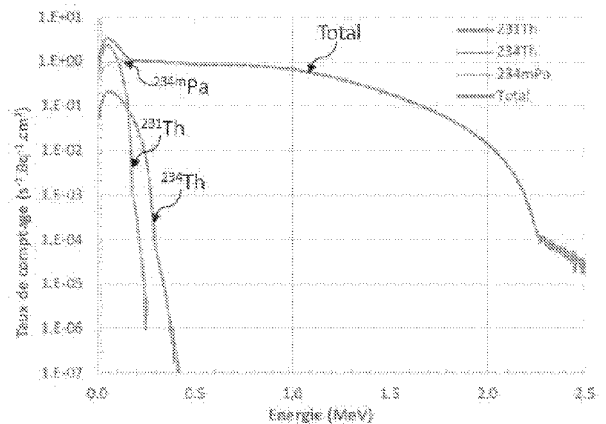
⑦3 Titulaire(s) : COMMISSARIAT A L'ENERGIE ATOMIQUE ET AUX ENERGIES ALTERNATIVES Etablissement public à caractère industriel et commercial.

⑦4 Mandataire(s) : INNOV-GROUP.

⑤4 procédé de mesure non destructive de l'activité de ²³⁸U ou de U.

⑤7 Procédé d'estimation de l'activité en uranium, ou en uranium 238, d'un objet, à l'aide d'un détecteur spectrométrique, configuré pour établir un spectre, correspondant à un histogramme de l'amplitude d'impulsions détectées durant une période de mesure :

a) disposition du détecteur face à l'objet et acquisition d'un spectre de mesure, le spectre étant représentatif d'une distribution en énergie de particules B émises par des descendants de ²³⁸U ; b) à partir du spectre de mesure, formation éventuelle d'un spectre corrigé ; c) à partir du spectre de mesure ou du spectre corrigé, détermination d'une première valeur spectrale dans une première bande d'énergie s'étendant à partir d'une énergie minimale, l'énergie minimale étant supérieure ou égale à 300 keV ; d) application d'une fonction de transfert à la valeur spectrale déterminée lors de l'étape c), de façon à estimer une activité en uranium ou en ²³⁸U de l'objet.



FR 3 144 671 - A1



Description

Titre de l'invention : procédé de mesure non destructive de l'activité de ^{238}U ou de U

Domaine technique

[0001] Le domaine technique de l'invention concerne une technique de mesure non destructive de l'activité en ^{238}U ou de U.

ART ANTERIEUR

[0002] La connaissance de l'état radiologique des procédés et équipements d'une installation nucléaire est essentielle pour établir des scénarios de démantèlement robustes et définir la gestion des déchets, en particulier leurs catégorisations et leurs exutoires. Les mesures nucléaires non destructives *in situ* couplées à des techniques de modélisation, permettent d'établir un inventaire radiologique des équipements sur pieds, de procédés et des structures de génie civil.

[0003] La spectrométrie gamma est une des techniques de mesures nucléaires non destructives passives la plus couramment employée pour obtenir des informations qualitatives et quantitatives sur les radionucléides émetteurs gamma. Quant aux émetteurs β purs, leur caractérisation radiologique *in situ* est rendue difficile par le très faible parcours des électrons dans les milieux denses et est habituellement effectuée en laboratoire par le biais d'analyses destructives d'échantillons prélevés sur le terrain. Ces mesures destructives en laboratoire s'accompagnent toutefois de certains inconvénients : questions sur la représentativité des échantillons prélevés, coût et délai d'analyse.

[0004] Afin d'adresser la quantification de l'activité d'émetteurs β purs, de nombreuses méthodes de caractérisation radiologique non destructives, s'appuyant sur des techniques de comptage bêta ou de spectrométrie bêta, ont ainsi été développées par différents laboratoires dans le monde pour caractériser en particulier ^{90}Sr dans les sols contaminés. Voir par exemple A.V. Chesnokov, S.M. Ignatov, V.I. Liksonov, V.N. Potapov, S.B. Shcherbak, L.I. Urutskoev, M.V. Ivanitskaya, A method for measuring *in situ* a specific soil activity of ^{90}Sr , Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A 443 (2000) 197–200.

[0005] Dans de nombreuses installations de l'amont du cycle, il est nécessaire de caractériser l'activité en Uranium, voire de déterminer son isotopie. L'Uranium 235 et l'Uranium 238 peuvent être mesurés par spectrométrie gamma. Cependant, la spectrométrie gamma est assez complexe à mettre en œuvre, et suppose certaines hypothèses quant à la profondeur et au gradient de contamination, en particulier dans des objets poreux tels des parois de béton. Ces hypothèses ne sont pas forcément valides.

De plus, lorsque l'enrichissement en ^{235}U est élevé, le temps d'acquisition peut être long, du fait de la faible intensité des émissions gamma des radioéléments descendants de ^{238}U .

[0006] L'inventeur propose une méthode alternative d'estimation de l'activité en Uranium sur des structures de type génie civil, des équipements ou des échantillons prélevés, par exemple des carottes de béton. Il s'agit d'une méthode basée sur un dispositif peu cher et simple à mettre en œuvre.

Exposé de l'invention

[0007] Un premier objet de l'invention est un procédé d'estimation de l'activité en uranium, ou en uranium 238, d'un objet, à l'aide d'un détecteur configuré pour former des impulsions sous l'effet d'une exposition à des particules β , le détecteur étant relié à un circuit de mesure spectrométrique, configuré pour établir un spectre, le spectre correspondant à un histogramme de l'amplitude des impulsions formées durant une période de mesure, le procédé comportant les étapes suivantes :

- a) disposition du détecteur face à l'objet et acquisition d'un spectre de mesure, le spectre de mesure étant représentatif d'une distribution en énergie de particules β émises par des descendants de ^{238}U ;
- b) à partir du spectre de mesure, formation éventuelle d'un spectre corrigé ;
- c) à partir du spectre de mesure ou du spectre corrigé, détermination d'une première valeur spectrale dans une première bande d'énergie s'étendant à partir d'une première énergie minimale, la première énergie minimale étant supérieure ou égale à 300 keV ;
- d) application d'une fonction de transfert à la première valeur spectrale déterminée lors de l'étape c), de façon à estimer une activité en uranium ou en ^{238}U de l'objet.

[0008] L'étape b) peut comporter les sous-étapes :

- b1) interposition d'un écran entre le détecteur et l'objet et acquisition d'un spectre de fond, l'écran étant configuré pour absorber les particules β émises par l'objet ;
- b2) correction du spectre de mesure, en utilisant le spectre de fond, pour obtenir un spectre corrigé.

[0009] L'écran utilisé lors de la sous-étape b1) peut être un écran d'aluminium dont l'épaisseur est supérieure ou égale à 3 mm ou à 4 mm.

[0010] Lors de l'étape c), la première bande d'énergie peut s'étendre jusqu'à une première énergie maximale, la première énergie maximale étant supérieure ou égale à 1000 keV ou 1500 keV ou 2000 keV.

[0011] Le procédé peut comporter les étapes :

- f) détermination d'une deuxième valeur spectrale, dans une deuxième bande d'énergie, s'étendant entre une deuxième énergie minimale et une deuxième énergie maximale, la deuxième énergie maximale étant inférieure à 300 keV ;
 - g) estimation d'un enrichissement en ^{235}U de l'Uranium, en comparant la première valeur spectrale résultant de l'étape c) et la deuxième valeur spectrale résultant de l'étape f).
- [0012] Lors de l'étape a), la distance entre le détecteur et l'objet peut être :
- supérieure à 1 mm ou à 5 mm ;
 - et/ou inférieure à 20 mm ou à 10 mm.
- [0013] Selon un mode de réalisation, dans lequel l'objet est un objet naturellement radioactif, le procédé comporte :
- (i) prise en compte d'une activité naturelle de l'objet ;
 - (ii) modélisation d'un spectre β de l'activité naturelle de l'objet détecté par le détecteur ;
 - l'étape b) comporte une correction du spectre mesuré en utilisant le spectre β de l'activité naturelle de l'objet résultant de (ii), pour obtenir le spectre corrigé.
- [0014] L'étape (i) peut résulter d'une mesure par spectrométrie gamma réalisée sur l'objet.
- [0015] Le détecteur comporte un matériau scintillateur organique. Le détecteur peut comporter un matériau semi-conducteur.
- [0016] Un deuxième objet de l'invention est un dispositif de mesure, configuré pour déterminer une activité en Uranium d'un objet, le dispositif comportant :
- un détecteur comportant un matériau détecteur configuré pour former des impulsions sous l'effet d'une exposition à des particules β ;
 - un circuit de spectrométrie, relié au détecteur, et configuré pour former un histogramme de l'amplitude des impulsions détectées par le détecteur durant une période d'acquisition ;
 - une unité de traitement, reliée au circuit de spectrométrie, et configurée pour mettre en œuvre les étapes b) à d) d'un procédé selon le premier objet de l'invention.
- [0017] Selon une possibilité, le détecteur comporte un matériau scintillateur organique, l'épaisseur du matériau scintillateur organique est comprise étant de préférence comprise entre 3 mm et 10 mm.
- [0018] Le détecteur scintillateur organique peut s'étendre selon une surface d'au moins 20 cm de côté.
- [0019] Le détecteur peut être recouvert d'une enveloppe configurée pour absorber des particules α d'énergie supérieure ou égale à 4.5 MeV ou à 5 MeV.
- [0020] Le détecteur peut comporter un matériau semi-conducteur.

[0021] Le dispositif peut comporter un écran mobile, configuré pour passer d'une configuration fermée, dans laquelle l'écran est interposé entre le matériau détecteur et l'objet, à une configuration ouverte dans laquelle l'écran laisse libre un espace entre le matériau détecteur et l'objet

[0022] L'invention sera mieux comprise à la lecture de l'exposé des exemples de réalisation présentés, dans la suite de la description, en lien avec les figures listées ci-dessous.

FIGURES

[0023] La [Fig.1] schématise un dispositif de mesure.

[0024] La [Fig.2] montre une évolution de l'énergie déposée dans le matériau détecteur du dispositif par des particules β en fonction de l'épaisseur de ce dernier.

[0025] La [Fig.3] montre une évolution de l'énergie déposée dans le matériau détecteur par des particules β en fonction de l'épaisseur d'un écran d'aluminium interposé entre le matériau détecteur et l'objet

[0026] La [Fig.4A] montre un spectre de l'énergie de particules β détectées par le matériau détecteur en fonction de différentes distances entre le matériau détecteur et l'objet, la contamination en uranium étant supposée surfacique.

[0027] La [Fig.4B] montre un spectre de l'énergie de particules β détectées par le matériau détecteur en fonction de différentes distances entre le matériau détecteur et l'objet, la contamination en uranium étant supposée volumique, selon une épaisseur de 2 mm.

[0028] La [Fig.5] montre des spectres de l'énergie de particules β détectées par le matériau détecteur en présence d'un écran d'aluminium, sans l'écran d'aluminium. On a également représenté un spectre corrigé résultant de la soustraction des spectres modélisés avec et sans écran.

[0029] La [Fig.6] montre un spectre de l'énergie de particules β détectées par le matériau détecteur dues à la radioactivité naturelle de l'objet, ainsi que des spectres de l'énergie de particules β détectées par le matériau détecteur avec et sans soustraction du spectre de l'activité naturelle.

[0030] La [Fig.7] montre des simulations de spectres de l'énergie de particules β détectées par le matériau détecteur dans différentes configurations.

[0031] La [Fig.8A] montre des simulations spectres de l'énergie de particules β détectées par le matériau détecteur résultant de différents radioéléments, pour un faible enrichissement de ^{235}U .

[0032] La [Fig.8B] montre des simulations de spectres de l'énergie de particules β détectées par le matériau détecteur résultant de différents radioéléments, pour un fort enrichissement de ^{235}U .

[0033] La [Fig.9] montre un spectre de l'énergie de particules α détectées par le matériau détecteur.

- [0034] La [Fig.10] montre un spectre de l'énergie de particules β détectées par le matériau détecteur.
- [0035] La [Fig.11] montre l'évolution d'une fonction de transfert, permettant de convertir une valeur spectrale en niveau d'activité, et cela pour différentes profondeurs de contamination.
- [0036] Les figures 12A, 12B et 12C montrent des cartographies expérimentales effectuées avec un dispositif selon l'invention.
- [0037] La [Fig.13A] montre l'évolution d'un ratio entre une première valeur spectrale et une deuxième valeur spectrale en fonction de l'enrichissement en ^{235}U , en prenant en compte une contamination surfacique.
- [0038] La [Fig.13B] montre l'évolution d'un ratio entre une première valeur spectrale et une deuxième valeur spectrale en fonction de l'enrichissement en ^{235}U , en prenant en compte une contamination volumique.
- [0039] La [Fig.14] montre les principales étapes d'un procédé de détermination de l'activité en U en mettant en œuvre l'invention.

EXPOSE DE MODES DE REALISATION PARTICULIERS

- [0040] La [Fig.1] représente un dispositif de mesure permettant une mesure de l'activité en uranium d'un objet 2. Le dispositif comporte un détecteur scintillateur 10, comportant un matériau scintillateur 11 de préférence organique, de préférence à base de Polyvinyltoluène (PVT). Sous l'effet d'interactions entre un rayonnement ionisant et le matériau scintillateur, des impulsions lumineuses sont formées. Ces impulsions lumineuses sont converties en impulsions électriques par un ou plusieurs photodétecteurs 12. Les impulsions électriques sont ensuite traitées par un circuit de spectrométrie. Le circuit de spectrométrie 13 est configuré pour former un histogramme en amplitude des impulsions détectées par le scintillateur organique durant une période d'acquisition.
- [0041] En mettant en œuvre une fonction de calibration en énergie, résultant d'un étalonnage en énergie, il est usuel d'effectuer une correspondance entre l'amplitude des impulsions et des valeurs d'énergie. Lorsqu'une particule ionisante dépose toute son énergie dans le scintillateur, l'amplitude de l'impulsion qu'elle génère correspond à l'énergie de la particule avant l'interaction dans le matériau détecteur.
- [0042] Le recours à un détecteur scintillateur organique est approprié pour effectuer une spectrométrie de particules chargées, de type β . Un scintillateur organique est également sensible à des photons ionisants de type X ou γ . Cependant, les matériaux formant un scintillateur organique ont un faible numéro atomique, ce qui les rend peu propices à la formation d'interactions photoélectriques. Ainsi, un scintillateur organique est considéré comme non approprié pour des applications de type spectrométrie X ou γ .
- [0043] Le détecteur scintillateur est recouvert d'une enveloppe optiquement étanche 14, de

faible épaisseur, par exemple un film de PET (Polyéthylène Téréphtalate) aluminisé, d'épaisseur 18 μm pour assurer une étanchéité à la lumière ambiante. La faible épaisseur permet de minimiser l'atténuation des rayonnements β . Dans la suite du texte, le terme particule β désigne une particule β . L'épaisseur de l'enveloppe peut atteindre 30 μm pour arrêter les particules alpha d'énergie 4.5 MeV ou 5 MeV.

- [0044] L'épaisseur ^e du détecteur scintillateur est de 4 mm. Des détails quant à l'épaisseur du scintillateur seront donnés en lien avec la [Fig.2]. Un matériau scintillateur organique présente l'avantage d'être peu sensible au rayonnement gamma, du fait d'un faible numéro atomique. De plus, ce type de scintillateur limite le phénomène de rétro-diffusion des particules β . Un autre avantage est une certaine stabilité de la réponse du matériau scintillateur vis-à-vis de variations thermiques. La réponse, en terme d'intensité lumineuse produite, en étant exposé à un même rayonnement, est stable de 0° à 50°C, ce qui est approprié à des conditions d'utilisation sur le terrain.
- [0045] Le dispositif de mesure comporte une unité de traitement 20, configurée pour mettre en œuvre des étapes de traitement de spectres décrites par la suite. L'unité de traitement 20 est programmée pour exécuter des instructions codées dans une mémoire, reliée à l'unité de traitement par liaison filaire ou sans fil. L'unité de traitement 20 peut notamment comporter un microprocesseur.
- [0046] Selon une variante, le détecteur peut comporter un matériau semi-conducteur, adapté à la spectrométrie β . Il peut par exemple s'agir d'un semi-conducteur de type Silicium, par exemple un silicium planar.
- [0047] L'avantage d'un matériau scintillateur organique est la capacité à être fabriqué selon différentes dimensions et différentes formes. Lorsque l'objet est un échantillon prélevé, la forme peut être adaptée à la forme de l'échantillon.
- [0048] Le détecteur 10 comporte un écran mobile 15, faisant office d'obturateur, configuré pour être disposé :
- dans une position fermée, entre le détecteur 10 et l'objet à mesurer 2 ;
 - ou dans une position ouverte, libérant l'espace entre le détecteur 10 et l'objet 2, comme représenté sur la [Fig.1].
- [0049] Dans cet exemple, le dispositif est principalement dédié au contrôle radiologique de parois. Afin de pouvoir être déployé le long de grandes surfaces, la surface du matériau détecteur, dans un plan perpendiculaire à son épaisseur, est de 50 cm x 50 cm. Cela permet d'adresser une surface importante lors de chaque mesure, tout en étant suffisamment compact et léger pour être aisément manipulé.
- [0050] Dans cet exemple, l'écran 15 est mobile en translation dans un plan parallèle au matériau détecteur 11. L'écran est par exemple formé d'aluminium, l'épaisseur étant de préférence égale à 4 mm. Des détails relatifs à l'épaisseur de l'écran 15 sont donnés en lien avec la [Fig.3]. L'écran 15 peut être relié au matériau détecteur par un système

de glissière, autorisant une translation de l'écran par rapport au matériau détecteur.

- [0051] L'objet 2 est un objet à contrôler, susceptible de présenter une activité massique ou surfacique d'Uranium, l'isotopie étant connue ou inconnue. Dans les exemples décrits par la suite, l'objet est une paroi de béton.
- [0052] L'invention est basée sur une détection, par le détecteur 10, de particules β émises par des isotopes descendants d'isotopes d'Uranium. Il s'agit notamment de ^{234m}Pa , qui est en équilibre radioactif avec ^{238}U , et émet des particules β jusqu'à une énergie maximale $E_{\beta\text{max}}$ égale à 2269 keV. On peut également exploiter la détection de particules β émises par ^{231}Th (descendant de ^{235}U), dont $E_{\beta\text{max}} = 308$ keV ou ^{234}Th (descendant de ^{238}U), avec $E_{\beta\text{max}} = 198$ keV.
- [0053] La [Fig.2] représente une quantité d'énergie (axe des ordonnées – unité $\text{MeV}\cdot\text{Bq}^{-1}\cdot\text{g}$), déposées par des particules β émises par une répartition homogène de ^{234m}Pa dans une profondeur de béton de 2 mm. L'axe des abscisses correspond à l'épaisseur (unité mm) du matériau scintillateur 10. La profondeur de 2 mm correspond au parcours maximal des particules β d'énergie 2269 keV (énergie d'émission maximale de ^{234m}Pa) dans le béton. La [Fig.2] a été obtenue par simulation, en considérant une distance $d=7.5$ mm entre le matériau détecteur et le béton. On observe qu'en utilisant une épaisseur e de 4 mm, le matériau scintillateur permet d'absorber 97% de l'énergie d'émission β de ^{234m}Pa . La simulation a été effectuée par le code de calcul MCNP6 (Monte Carlo N Particles), qui est un code de référence dans le domaine de la modélisation des interactions entre les rayonnements ionisants (β , γ , neutrons) et la matière.
- [0054] La [Fig.3] représente une quantité d'énergie (axe des ordonnées – unité $\text{MeV}\cdot\text{Bq}^{-1}\cdot\text{g}$), déposées par des particules β émises par une répartition homogène de ^{234m}Pa dans une profondeur de béton de 2 mm. L'axe des abscisses correspond à l'épaisseur (unité mm) de l'écran d'aluminium 15. La [Fig.3] a été obtenue par simulation, en considérant une distance $d=7.5$ mm entre le matériau détecteur et le béton. On observe qu'au-delà d'une épaisseur ϵ de 4 mm d'aluminium, le gain en terme d'absorption des particules β est négligeable. Une épaisseur de 4 mm est donc suffisante pour obtenir efficacement le matériau détecteur vis-à-vis des particules β émises par ^{234m}Pa .
- [0055] Les figures 4A et 4B adressent la question de la distance entre le détecteur et l'objet à contrôler. L'objet contrôlé étant potentiellement contaminant, il est préférable d'éviter que le détecteur 10 soit en contact direct avec l'objet. Un léger recul est utile, de façon à permettre à l'écran 15 de passer de la position ouverte à la position fermée. La [Fig.4A] montre des simulations de spectres de l'énergie déposée par des particules β dans le matériau scintillateur, tel que décrit en lien avec la [Fig.1]. On a considéré une répartition surfacique homogène de ^{234m}Pa sur une paroi et on a pris en compte plusieurs distances d du détecteur par rapport à la paroi : $d = 2$ mm ; $d = 7$ mm et $d = 10$ mm. Sur la [Fig.4A], l'axe des abscisses correspond l'énergie (MeV) et l'axe des

ordonnées correspond au taux de comptage ($s^{-1} \cdot Bq^{-1} \cdot cm^2$). On observe qu'entre 2 mm et 10 mm, le spectre n'est pas significativement modifié. L'écart entre les spectres acquis en considérant des distances de 7 mm et de 10 mm est négligeable.

[0056] La [Fig.4B] montre des simulations du même type que celles décrites en lien avec la [Fig.4A]. Sur la [Fig.4B], on a considéré une répartition volumique homogène de ^{234m}Pa sur une épaisseur de 2 mm de béton. On a pris en compte les mêmes distances d du détecteur par rapport à la paroi que sur la [Fig.4A]. L'écart entre les spectres acquis en considérant des distances de 2.5 mm et de 10 mm est négligeable.

[0057] L'inventeur considère que la distance optimale entre l'objet et le détecteur est comprise entre 5 mm et 10 mm. Au-delà de 10 mm, on risque une perte d'efficacité, c'est-à-dire une diminution du nombre de particules β détectées. En deçà de 5 mm, la manipulation de l'écran devient complexe, ce dernier étant trop près de l'objet, avec des risques de contact entre l'écran et l'objet. Par la suite, la distance entre le détecteur et l'objet est égale à 7.5 mm.

[0058] La [Fig.5] montre l'effet de l'obturation du détecteur par l'écran 15 sur le spectre mesuré par le détecteur. La [Fig.5] représente des spectres mesurés expérimentalement face à une paroi contaminée en uranium. On a mesuré respectivement un spectre sans écran (écran dans la position ouverte, telle que représenté sur la [Fig.1]), un spectre avec écran (écran dans la position fermée). Les spectres ont été mesurés selon une même durée d'acquisition de 120 secondes. L'écran était une plaque d'aluminium d'épaisseur 4 mm. Le spectre avec écran, noté Sp_{bdf} est considéré comme représentatif du bruit de fond γ . Le bruit de fond γ est dû aux radioéléments émetteurs γ présents dans l'objet (par exemple des radioéléments naturels) ou dans l'environnement du détecteur. La soustraction du spectre avec écran Sp_{bdf} du spectre sans écran permet d'obtenir un spectre corrigé du bruit de fond γ . Le spectre corrigé $Sp\beta$, ou spectre β brut, est considéré comme uniquement représentatif des particules β émises par l'objet.

[0059] Parmi les radioéléments naturels potentiellement présents dans l'objet, citons par exemple ^{40}K , ainsi que des descendants du ^{232}Th et de ^{238}U . De tels radioéléments sont par exemple présents dans des objets en béton. Le bruit de fond γ peut également résulter de radioactivité artificielle présente dans l'environnement du détecteur.

[0060] Lorsque l'objet comporte une radioactivité naturelle, le spectre β brut $Sp\beta$ comporte une composante naturelle due aux particules β émises par les radioéléments naturels. Cette composante naturelle peut, dans une première approche, être négligée car elle est généralement assez faible. Le tableau 1 montre les différents radionucléides émetteurs β d'origine naturelle et artificielle susceptible d'être rencontrés dans une paroi en béton potentiellement contaminée en uranium.

[0061] [Tableaux1]

Emetteurs bêta	Énergie max (keV)	Intensité (%)	Origine
^{40}K	1311.07	89.25	Naturel
Chaîne de désintégration de l' ^{235}U			
^{231}Th	307.85	29	Naturel & Artificiel
^{227}Ac	44.8	93	Naturel
^{223}Fr	1149.2	1	Naturel
^{211}Pb	1367	91.28	Naturel
^{207}Tl	1418	99.73	Naturel
Chaîne de désintégration de l' ^{238}U			
^{234}Th	198	77.8	Naturel & Artificiel
$^{234\text{m}}\text{Pa}$	2204	97.509	Naturel & Artificiel
^{214}Pb	1019	9.2	Naturel
^{214}Bi	3270	19.67	Naturel
^{210}Pb	63.5	19.8	Naturel
^{210}Bi	1182	100	Naturel
Chaîne de désintégration du ^{232}Th			
^{228}Ra	39.5	12	Naturel
^{228}Ac	2066	6	Naturel
^{212}Pb	569.9	13.3	Naturel
^{212}Bi	2204.1	55.31	Naturel
^{208}Tl	1801.3	49.2	Naturel

[0062] Tableau 1

[0063] La [Fig.6] montre le spectre β corrigé $Sp\beta$, tel que décrit en lien avec la [Fig.5] (spectre β brut), ainsi qu'un spectre β , également corrigé du bruit de fond γ , mesuré face à une paroi de béton non contaminée (spectre de bruit de fond naturel ou spectre de bruit de fond RN, noté $SpRN$). La paroi de béton non contaminée était située dans la même installation que la paroi contaminée, sur laquelle le spectre β corrigé a été formée. Ainsi, le spectre β de bruit de fond RN, noté $SpRN$, peut être considéré comme représentatif d'une contribution naturelle β dans le spectre β corrigé. La [Fig.6] montre un spectre β net, noté $Sp\beta'$, obtenu en soustrayant le spectre β de bruit de fond naturel $SpRN$ du spectre β brut. Le spectre β net $Sp\beta'$ est ainsi représentatif de l'activité β artificielle dans la paroi mesurée.

[0064] La [Fig.7] représente des spectres β simulés avec le code de calcul MCNP6, dans un matériau détecteur tel que précédemment décrit (50 cm x 50 cm x 4 mm), en prenant en compte des activités massiques de ^{232}Th , ^{238}U et ^{40}K mesurées par spectrométrie gamma sur une paroi considérée comme non contaminée. La mesure par spectrométrie gamma a permis d'estimer des niveaux d'activités de 15 Bq/Kg pour ^{232}Th , 22 Bq/Kg pour ^{238}U , et 485 Bq/Kg pour ^{40}K . Ces activités massiques permettent de simuler la composante naturelle dans le spectre β mesuré par le détecteur. Sur la [Fig.7], on a re-

présenté :

- la composante due à ^{232}Th dans le spectre β ;
- la composante due à ^{238}U dans le spectre β ;
- la composante due à ^{40}K dans le spectre β ;
- la composante due à ^{235}U dans le spectre β , en supposant un enrichissement naturel de l'uranium : la masse de ^{235}U correspond à 0.72% de la masse d'uranium ;

[0065] Sur la [Fig.7], on a également représenté une simulation de spectre β résultant de $^{234\text{m}}\text{Pa}$ en prenant en compte une activité surfacique homogène de 0.4 Bq.cm^{-2} et un enrichissement de 1% en masse en ^{235}U (spectre UB), et en prenant en compte un enrichissement de 8.16% en masse en ^{235}U (spectre UH).

[0066] Dans ces simulations, la distance entre la paroi et le détecteur était considérée égale à 7.5 mm, et la densité du béton était considérée égale à 2.3 g.cm^{-3} .

[0067] On observe que :

- la composante naturelle du spectre β est dominée par ^{40}K , jusqu'à l'énergie 1311 keV, qui correspond à l'énergie maximale des particules β émises par ^{40}K ;
- la mesure du spectre β résultant de $^{234\text{m}}\text{Pa}$ est largement supérieure à la contribution naturelle à faible enrichissement ainsi qu'à enrichissement élevé, au-delà de 1 MeV.
- Il est possible de modéliser la composante naturelle dans un spectre β mesuré par le détecteur, en prenant en compte des activités massiques, établies a priori ou mesurées, des principaux radioéléments émetteurs β naturels.

[0068] Par ailleurs, des simulations ont montré que la composante γ de l'activité naturelle n'est pas absorbée de façon significative par l'écran d'aluminium. Aussi, la soustraction du spectre de bruit de fond, mesuré en présence de l'écran d'aluminium, permet de s'affranchir de la composante γ de l'activité naturelle.

[0069] Les figures 8A et 8B montrent des simulations de spectres β mesurés par un détecteur tel que décrit sur la [Fig.1], en prenant en compte une activité surfacique homogène d'uranium, sur un élément de paroi de 50 cm de côté, en prenant en compte respectivement un enrichissement en ^{235}U de 1% et de 82.55% en masse. Par activité surfacique, on entend une activité répartie sur une profondeur de 10 μm . Sur chacune de ces figures, on a représenté les contributions de $^{234\text{m}}\text{Pa}$, ^{234}Th et ^{231}Th . $^{234\text{m}}\text{Pa}$ et ^{234}Th sont des descendants de ^{238}U , tandis que ^{231}Th est un descendant de ^{235}U . La distance entre le détecteur et la paroi était considérée égale à 7.5 mm. Sur chacune de ces figures, l'axe des ordonnées correspond à un taux de comptage ($\text{s}^{-1}.\text{Bq}^{-1}.\text{cm}^2$) et l'axe des abscisses correspond à un niveau d'énergie (MeV).

[0070] Les figures 8A et 8B montrent que quel que soit le niveau d'enrichissement, le

spectre est dominé par la contribution de ^{234m}Pa , cette dernière étant plus faible à fort enrichissement ([Fig.8B]) qu'à faible enrichissement ([Fig.8A]). On observe qu'en considérant une première plage d'énergie $\Delta E1$ délimitée par une première énergie minimale $E1_{\min}$, supérieure ou égale à 300 keV, et qu'en sommant le spectre sur cette première plage d'énergie $\Delta E1$, la valeur spectrale obtenue ne dépend que de l'activité de ^{234m}Pa . Par valeur spectrale, on entend une valeur mesurée à partir du spectre. Il peut notamment s'agir d'un taux de comptage ou d'un comptage dans la plage d'énergie. La valeur spectrale obtenue sur la première plage d'énergie $\Delta E1$ est une première valeur spectrale notée $N1$.

[0071] De préférence, la première plage d'énergie $\Delta E1$ s'étend jusqu'à une première énergie maximale $E1_{\max}$ supérieure ou égale à 2269 keV, cette dernière correspondant à l'énergie d'émission maximale d'une particule β par ^{234m}Pa . Par exemple, la première plage d'énergie $\Delta E1$ est [300 keV ; 2500 keV]. Une telle plage d'énergie permet de collecter la totalité du contenu spectral utile de l'activité β de ^{234m}Pa . La première énergie maximale $E1_{\max}$ peut être égale à 2300 keV, ou être inférieure 2000 keV ou 1500 keV ou 1000 keV. On retient que la première énergie maximale $E1_{\max}$ est de préférence inférieure ou égale à 2500 keV, voire à 2300 keV. Ainsi, bien que la première plage d'énergie optimale soit [300 keV ; 2500 keV], une plage d'énergie plus restreinte, dans cet intervalle, peut convenir. Une plage d'énergie s'étendant à partir de 300 keV, ou à partir d'une première valeur minimale $E1_{\min}$ supérieure ou égale à 300 keV, et inférieure ou égale à 1000 keV, ou 1500 keV peut convenir. On note qu'au-delà de 1000 keV, la valeur des canaux spectraux diminue. Il est donc préférable que la première énergie minimale $E1_{\min}$ soit comprise entre 300 keV et 1000 keV. Il est envisageable de ne pas prendre en compte une première énergie maximale : $E1_{\max} = +\infty$: la plage considérée est alors $[E1_{\min}, +\infty]$, avec $300 \text{ keV} \leq E1_{\min} \leq 1000 \text{ keV}$.

[0072] La première valeur spectrale $N1$, dans la première plage d'énergie $\Delta E1 = [E1_{\min}, E1_{\max}]$ précédemment définie, est ensuite destinée à être traitée par une fonction de transfert, de façon à pouvoir estimer un niveau d'activité en ^{238}U . L'établissement de la fonction de transfert est décrit par la suite, en lien avec la [Fig.11]. La prise en compte de l'enrichissement η permet ensuite de convertir l'activité en ^{238}U en activité en U.

[0073] Les figures 8A et 8B montrent un autre aspect intéressant de l'invention : on peut définir une deuxième plage d'énergie $\Delta E2$, comprise entre 0 keV et 300 keV, dans laquelle le spectre β est influencé par ^{231}Th , ce radioélément descendant de ^{235}U . Ainsi, on peut définir une deuxième plage d'énergie $\Delta E2 = [E2_{\min}, E2_{\max}]$, comprise entre une deuxième énergie minimale $E2_{\min} \geq 0$ et une deuxième énergie maximale $E2_{\max} \leq 300 \text{ keV}$, dans lequel la valeur spectrale $N2$, dite deuxième valeur spectrale, dépend de ^{235}U , en particulier à fort enrichissement.

[0074] Un ratio $N1/N2$ des première et deuxième valeur spectrale dépend de

l'enrichissement η . Ainsi, la mesure expérimentale de ce ratio peut être utilisée pour estimer l'enrichissement η de l'uranium.

- [0075] Lorsque l'enrichissement η de l'uranium en ^{235}U est inconnu, la première valeur spectrale N1 permet d'estimer ^{238}U , en utilisant la fonction de transfert FT . En effet, le contenu spectral, dans la première plage d'énergie, ne dépend pas de l'enrichissement. Le ratio des première et deuxième valeurs spectrales permet d'estimer l'enrichissement η . L'activité en ^{238}U peut alors être utilisée pour estimer l'activité en U. L'enrichissement en ^{235}U peut également être déterminé expérimentalement par spectrométrie gamma.
- [0076] L'uranium comporte des isotopes émetteurs α , en premier lieu desquels ^{234}U ou ^{238}U . Afin d'estimer la contribution de particules α dans le spectre β mesuré, on a disposé une source de ^{244}Cm , d'activité 2800 Bq, à 3 mm du matériau détecteur. ^{244}Cm émet des particules α d'énergie supérieure à 5700 keV, ce qui est bien supérieur aux énergies des particules α émises par les isotopes de U, par exemple 4775 keV pour ^{234}U . La [Fig.9] montre le spectre mesuré selon une période d'acquisition de 900s. On observe que la contribution des particules α se limite aux faibles énergies, inférieures à 270 keV. Ainsi, la valeur spectrale, dans la première plage d'énergie, peut être considérée comme non affectée par les particules α émises par les isotopes d'uranium.
- [0077] Les particules α détectées par le détecteur peuvent être susceptibles d'influencer la valeur spectrale N2 dans la deuxième bande d'énergie $\Delta E2$. C'est notamment le cas lorsque le détecteur comporte un matériau semi-conducteur, par exemple Si. Afin d'éviter une influence des particules α , l'enveloppe 14 est avantageusement dimensionnée pour stopper les particules α d'énergie 4.5 MeV ou 5 MeV. Lorsque l'enveloppe est réalisée en PET (Polyéthylène Téréphtalate) aluminisé, une épaisseur de 30 μm permet de stopper les particules α , tout en absorbant, de façon considérée comme négligeable, les particules β .
- [0078] Sur la [Fig.9], les quelques coups observés à une énergie supérieure à 270 keV correspondent à des photons γ après soustraction du bruit de fond, résultant de fluctuations statistiques.
- [0079] La [Fig.10] montre un spectre β mesuré expérimentalement sur une paroi de béton contaminée en uranium d'enrichissement 1%. Sur ce spectre, on a matérialisé la première plage d'énergie, comprise entre 300 keV et 2700 keV. Le détecteur était un détecteur EJ200 (Eljen Technology), de surface sensible 2430 cm^2 (493 mm de côté). L'étalonnage en énergie du spectre, c'est-à-dire la correspondance entre la valeur des amplitudes des impulsions et l'énergie, a été effectué en utilisant une source de ^{207}Bi , qui émet des électrons, à des valeurs d'énergie discrètes, par conversion interne.
- [0080] Afin de convertir la valeur spectrale, dans la première plage d'énergie, en valeur d'activité de ^{238}U , il est nécessaire de prendre en compte une fonction de transfert. La

fonction de transfert peut être obtenue en modélisant des spectres β correspondant à des activités connues en ^{238}U , et donc en $^{234\text{m}}\text{Pa}$. On peut déterminer différentes fonctions de transfert, correspondant respectivement à différentes hypothèses de répartition de la contamination dans l'objet analysé. La contamination en uranium peut être considérée comme surfacique (par exemple sur des objets métalliques), ou ayant diffusé dans l'objet, par exemple en cas de contamination liquide d'objets poreux, tels un sol ou une paroi en béton.

[0081] La [Fig.11] montre le résultat de modélisations numériques d'un détecteur tel que précédemment décrit, disposé à une distance de 7.5 mm d'une paroi béton, de densité 2.3, dont l'activité en uranium ^{238}U était répartie selon différentes profondeurs. On a considéré une activité unitaire de ^{238}U (1 Bq/g ou 1 Bq/cm² dans l'hypothèse d'une contamination surfacique). Le modèle du détecteur a été validé en laboratoire en comparant des spectres β respectivement mesurés et modélisés en exposant le détecteur à une source étalon de ^{207}Bi .

[0082] Dans le cas d'une contamination surfacique, on a modélisé une activité répartie sur les 10 premiers μm de la paroi. La fonction de transfert est de $1050\text{s}^{-1}\cdot\text{Bq}^{-1}\cdot\text{cm}^2 \pm 15\%$.

[0083] Dans le cas d'une contamination volumique, on a pris en compte le parcours maximal, dans le béton, des particules β émises par $^{234\text{m}}\text{Pa}$, pouvant être estimé à 2 mm. Compte tenu de cette faible épaisseur, le gradient de contamination a été considéré comme homogène.

[0084] Sur la figure 11, l'axe des ordonnées correspond à la valeur de la fonction de transfert FT (unité $\text{s}^{-1}\cdot\text{Bq}^{-1}\cdot\text{cm}^2$) et l'axe des abscisses correspond à la profondeur de contamination considérée. Sur la figure 11, la fonction de transfert correspond à première valeur spectrale $N1$, dans une plage d'énergie de [300 keV – 2500 keV], pour une activité unitaire de $1\text{Bq}\cdot\text{g}^{-1}$.

[0085] Si $N1$ correspond au taux de comptage dans la première bande d'énergie $\Delta E1$, l'activité $A[238\text{U}]$, en $\text{Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ ou en $\text{Bq}\cdot\text{cm}^{-2}$, est obtenue selon l'expression :

$$[0086] \quad A[238\text{U}] = \frac{N1}{FT} \quad (1)$$

[0087] On a mis en œuvre le détecteur précédemment décrit sur une installation d'enrichissement d'uranium par diffusion gazeuse. La limite de détection était telle que :

$$[0088] \quad LD = \frac{k_{1-\beta}^2 + 2 \times SD}{FT \times T_s} \quad (2)$$

[0089] Avec

[0090] $k_{1-\beta} = 1.96$: niveau de risque de type β pour un intervalle de confiance à 95% ;

[0091] T_s : durée d'acquisition, en secondes ;

[0092] FT = fonction de transfert, exprimée en $\text{Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ ou en $\text{Bq}\cdot\text{cm}^{-2}$

[0093] SD est le seuil de détection, tel que

[0094]
$$SD = k_{1-\alpha} \times \sqrt{\left(1 + \frac{1}{n}\right) \times (r_{bdf} \times T_s)} \quad (3)$$

[0095] $k_{1-\alpha} = 1.96$: niveau de risque de type α pour un intervalle de confiance à 95% ;

[0096] n : rapport des durées d'acquisition respectives du bruit de fond et de la mesure

[0097] r_{bdf} : taux de comptage mesuré dans la première bande d'énergie $\Delta E1$, dans une mesure de bruit de fond, sur une paroi considérée comme non contaminée. Unité coups par seconde.

[0098] En fonction de l'unité de la fonction de transfert, la limite de détection est exprimée en Bq.g⁻¹ ou en Bq.cm⁻².

[0099] Les tableaux 2 et 3 représentent des valeurs de limites de détection respectivement exprimées en activité surfacique et en activité massique. Les valeurs sont calculées à partir des expressions (2) et (3), en considérant une durée de la mesure égale à la durée de la mesure du bruit de fond. On a également pris en compte une contribution de l'activité naturelle dans le spectre, décrite en lien avec la [Fig.7]. Les activités des isotopes naturelles prises en compte étaient 15 Bq/Kg pour ²³²Th, 22 Bq/Kg pour ²³⁸U, et 485 Bq/Kg pour ⁴⁰K. Chaque mesure comporte une mesure avec l'écran d'aluminium et une mesure sans écran d'aluminium, de mêmes durées.

[0100] [Tableaux2]

Radionucléide	ROI	r_{bdf} (s ⁻¹)	FT (s ⁻¹ .Bq ⁻¹ .cm ²)	LD en Bq.cm ⁻²				
				60	180	300	600	1800
²³⁸ U (^{234m} Pa)	[300 – 2500] keV	48 ± 8 %	1050 ± 15 %	4,8.10 ⁻³	3,4.10 ⁻³	2,2.10 ⁻³	1,5.10 ⁻³	8,7.10 ⁻⁴

[0101] Tableau 2

[0102] [Tableaux3]

Radionucléide	ROI	r_{bdf} (s ⁻¹)	FT (s ⁻¹ .Bq ⁻¹ .g)	LD en Bq.g ⁻¹				
				60	180	300	600	1800
²³⁸ U (^{234m} Pa)	[300 – 2500] keV	48 ± 8 %	149 ± 15 %	3,4.10 ⁻²	2,4.10 ⁻²	1,5.10 ⁻²	1,1.10 ⁻²	6,1.10 ⁻³

[0103] Tableau 3

[0104] On observe que la méthode permet d'obtenir des limites de détection faibles, dans des durées d'acquisition raisonnables. Les limites de détection présentées dans les tableaux 2 et 3 concernent ²³⁸U via la détection du spectre β de ^{234m}Pa. Plus l'enrichissement augmente, plus la quantité de ²³⁸U diminue relativement à la quantité

totale d'uranium. Aussi, si l'on souhaite conserver une limite de détection faible en uranium, il faut augmenter la durée d'acquisition.

- [0105] Des cartographies ont été effectuées sur des parois de l'installation d'enrichissement d'uranium par diffusion gazeuse. La [Fig.12A] montre des taux de comptage mesurés (cps = coups par seconde) sur des éléments de surface de dimensions 50 cm x 50 cm. La [Fig.12B] montre les niveaux d'activité ^{238}U correspondants. L'enrichissement en ^{235}U étant connu, on a estimé des niveaux d'activité en U, ces derniers étant représentés sur la [Fig.12C]. Lorsque l'enrichissement n'est pas connu, il peut être déterminé par des méthodes usuelles, par exemple par spectrométrie gamma.
- [0106] Comme précédemment décrit, en lien avec les figures 8A et 8B, l'enrichissement η en ^{235}U peut être évalué à partir d'un ratio entre la première valeur spectrale N1 et la deuxième valeur spectrale N2. La deuxième bande d'énergie $\Delta E2$ est comprise entre 0 keV et 250 keV. On peut par exemple prendre en compte une deuxième bande d'énergie $\Delta E2$ s'étendant de $E2_{\min}=150$ keV jusqu'à $E2_{\max}=300$ keV. La deuxième borne minimale $E2_{\min}$ de 150 keV a été déterminée de façon à limiter l'influence du rayonnement gamma : entre 150 keV et 300 keV, on a constaté que la contribution du rayonnement gamma dans le spectre β est stable, et peut être aisément soustraite en prenant en compte la mesure avec l'écran d'aluminium. En prenant en compte une deuxième énergie minimale $E2_{\min}$ inférieure à 150 keV, la contribution du rayonnement gamma dans le spectre β peut davantage fluctuer, du fait de la sensibilité plus élevée du matériau scintillateur plastique à l'égard des photons de faible énergie.
- [0107] La [Fig.13A] montre l'évolution d'un ratio entre les première et deuxième valeurs spectrales. La première bande d'énergie est [300 keV – 2500 keV] et la deuxième bande d'énergie est [150 keV – 300 keV]. La contamination est supposée surfacique, i.e. considérée comme répartie sur une épaisseur de 10 μm .
- [0108] La [Fig.13B] montre l'évolution d'un ratio entre les valeurs spectrales (taux de comptage) dans la première bande d'énergie [300 keV – 2500 keV] et dans la deuxième bande d'énergie [150 keV – 300 keV] dans le cas d'une contamination massique, répartie sur une épaisseur de 2 mm.
- [0109] Sur les figures 13A et 13B, l'axe des ordonnées correspond au ratio N1/N2 et l'axe des abscisses correspond à l'enrichissement en ^{235}U , exprimé en %. Les figures 13A et 13B ont été établies sur la base de modélisations avec le code de calcul MCNP6.
- [0110] On observe une corrélation entre l'enrichissement et le ratio N1/N2. Ainsi, en appliquant une fonction de calibration d'enrichissement, telle que décrite en lien avec les figures 13A ou 13B, on peut estimer l'enrichissement à partir du ratio N1/N2. Les figures 13A et 13B montrent l'établissement de fonctions de calibration d'enrichissement, respectivement pour une activité surfacique et une activité volumique.

- [0111] Il est précisé que le recours à la spectrométrie β pour estimer un taux d'enrichissement η peut constituer un aspect indépendant de l'invention.
- [0112] En pratique, le recours à un spectre de bruit de fond, obtenu selon la configuration fermée, avec l'écran 15, n'est pas nécessaire. En effet, si l'on souhaite effectuer un contrôle grossier, des mesures effectuées uniquement selon la configuration ouverte, i.e sans écran, peuvent s'avérer suffisantes pour effectuer un contrôle de premier niveau. Le couplage entre la configuration ouverte et la configuration fermée permet de soustraire le bruit de fond, essentiellement dû aux photons γ , ce qui permet d'obtenir des mesures plus précises : quantification de l'activité ^{238}U plus précise ou valeur de l'enrichissement plus exacte.
- [0113] En outre, l'expérience a montré que dans la première bande d'énergie ΔE_1 , s'étendant entre 300 keV jusqu'à 2500 keV, la contribution du bruit de fond gamma dû à la radioactivité naturelle est stable, dans une même installation. Or, la réalisation de mesures avec et sans écran augmente la durée totale de la mesure. Compte tenu de la faible dispersion de la contribution, il est envisageable de ne pas effectuer une mesure systématique dans la configuration fermée. Il est possible de soustraire, à un spectre mesuré en configuration ouverte, un spectre mémorisé, effectué dans la configuration fermée.
- [0114] La [Fig.14] résume les principales étapes d'un procédé selon l'invention.
- [0115] Etape 100 : disposition d'un détecteur face à l'objet à caractériser
- [0116] Etape 110 : acquisition d'un spectre, dans la configuration ouverte : il s'agit du spectre mesuré S_p .
- [0117] Etape 120 : acquisition d'un spectre de bruit de fond $S_{p_{\text{bdf}}}$, dans la configuration fermée, ou prise en compte d'un spectre acquis dans la configuration fermée.
- [0118] Etape 130 : soustraction du spectre résultant de l'étape 120 du spectre résultant de l'étape 110. Le spectre résultant de cette étape est un spectre β brut $S_{p\beta}$.
- [0119] Etape 140 : prise en compte de l'activité naturelle β de l'objet. Cette étape comporte les sous-étapes suivantes :
- Sous-étape 141 : prise en compte d'un niveau d'activité naturelle de l'objet : le niveau d'activité naturelle peut avoir été estimé par une mesure sur un objet comparable, considéré comme non contaminé.
 - Sous-étape 142 : estimation d'un spectre β naturel $S_{p\text{RN}}$ (ou spectre β RN) résultant de l'étape 141.
- [0120] Alternativement, l'étape 140 comporte une sous-étape 143 de mesure d'un spectre β brut effectué sur un objet considéré comme représentatif de l'objet mesuré, et non contaminé. Il s'agit de mettre en œuvre les étapes 110 et 120 sur l'objet considéré comme représentatif, ce qui permet d'obtenir le spectre β naturel
- [0121] L'étape 140 est préférable, mais optionnelle.

- [0122] Etape 150 : correction du spectre β brut, résultant de l'étape 130, en prenant en compte le spectre β naturel résultant de l'étape 140. Cette étape est optionnelle. L'étape 150 permet d'obtenir un spectre β net (ou spectre β corrigé) noté $Sp\beta'$
- [0123] Etape 160 : détermination d'une première valeur spectrale $N1$ dans la première bande d'énergie $\Delta E1$ à partir du spectre β net $Sp\beta'$ résultant de l'étape 150 ou du spectre β brut résultant de l'étape 130.
- [0124] Etape 170 : application de la fonction de transfert FT à la première valeur spectrale de façon à estimer une activité de l'objet en ^{238}U notée $A[^{238}\text{U}]$
- [0125] Etape 180 : prise en compte d'un taux d'enrichissement η en masse de ^{235}U . L'enrichissement est soit connu, car dépendant de l'installation, soit inconnu, auquel cas il peut résulter d'une mesure non destructive de type spectrométrie gamma. L'enrichissement peut également être déterminé à partir du spectre à partir du spectre β corrigé résultant de l'étape 150 ou du spectre β net résultant de l'étape 130. Pour cela, on met en œuvre l'étape 190.
- [0126] Etape 190 : L'étape 190 comporte les sous-étapes suivantes :
- Sous-étape 191 : détermination d'une deuxième valeur spectrale $N2$ dans la deuxième bande d'énergie $\Delta E2$ à partir du spectre β net résultant de l'étape 150 ou du spectre β brut résultant de l'étape 130.
 - Sous-étape 192 : application de la fonction de calibration d'enrichissement au ratio $N1/N2$ pour estimer un enrichissement η . La fonction de calibration d'enrichissement dépend d'hypothèses quant à la nature de l'activité : activité surfacique (cf. [Fig.13A]) ou activité volumique (cf. [Fig.13B]).
- [0127] Etape 200 : à partir de l'enrichissement η , résultant de l'étape 180, et de l'activité de ^{238}U résultant de l'étape 170, détermination de l'activité en uranium $A[\text{U}]$.
- [0128] Dans certaines applications, l'activité en ^{238}U résultant de l'étape 170 est suffisante: les étapes 180 à 200 ne sont pas mises en œuvre.
- [0129] Les étapes 130 à 200 peuvent être mises en œuvre par l'unité de traitement.
- [0130] L'invention pourra être mise en œuvre sur des installations d'enrichissement ou de fabrication du combustible.

Revendications

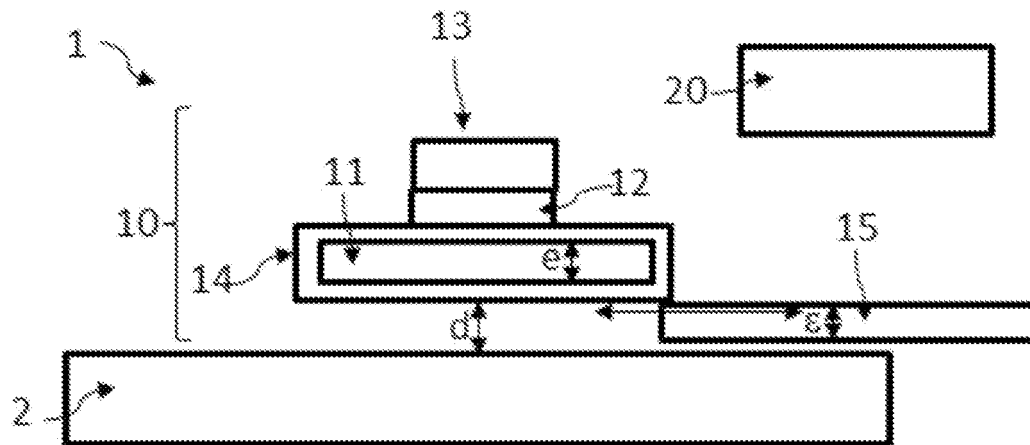
- [Revendication 1] Procédé d'estimation de l'activité en uranium, ou en uranium 238, d'un objet (2), à l'aide d'un détecteur (10) configuré pour former des impulsions sous l'effet d'une exposition à des particules β , le détecteur étant relié à un circuit de mesure spectrométrique (13), configuré pour établir un spectre, le spectre correspondant à un histogramme de l'amplitude des impulsions formées durant une période de mesure, le procédé comportant les étapes suivantes :
- a) disposition du détecteur face à l'objet et acquisition d'un spectre de mesure (Sp), le spectre de mesure étant représentatif d'une distribution en énergie de particules β émises par des descendants de ^{238}U ;
 - b) à partir du spectre de mesure, formation éventuelle d'un spectre corrigé ($\text{Sp}\beta$; $\text{Sp}\beta'$) ;
 - c) à partir du spectre de mesure ou du spectre corrigé, détermination d'une première valeur spectrale (N1) dans une première bande d'énergie ($\Delta E1$) s'étendant à partir d'une première énergie minimale ($E1_{\text{min}}$), la première énergie minimale étant supérieure ou égale à 300 keV ;
 - d) application d'une fonction de transfert (FT) à la première valeur spectrale déterminée lors de l'étape c), de façon à estimer une activité en uranium ou en ^{238}U de l'objet.
- [Revendication 2] Procédé selon la revendication 1, dans lequel l'étape b) comporte les sous-étapes :
- b1) interposition d'un écran (15) entre le détecteur et l'objet et acquisition d'un spectre de fond, l'écran étant configuré pour absorber les particules β émises par l'objet ;
 - b2) correction du spectre de mesure, en utilisant le spectre de fond, pour obtenir un spectre corrigé .
- [Revendication 3] Procédé selon la revendication 2, dans lequel l'écran (15) utilisé lors de la sous-étape b1) est un écran d'aluminium dont l'épaisseur est supérieure ou égale à 3 mm ou à 4 mm.
- [Revendication 4] Procédé selon la revendication l'une quelconque des revendications précédentes, dans lequel lors de l'étape c), la première bande d'énergie

- s'étend jusqu'à une énergie maximale (E_{1max}), l'énergie maximale étant supérieure ou égale à 1000 keV ou 1500 keV ou 2000 keV.
- [Revendication 5] Procédé selon l'une quelconque des revendications précédentes, comportant les étapes :
- f) détermination d'une deuxième valeur spectrale (N_2), dans une deuxième bande d'énergie (ΔE_1), s'étendant entre une deuxième énergie minimale (E_{2min}) et une deuxième énergie maximale (E_{2max}), la deuxième énergie maximale étant inférieure à 300 keV ;
 - g) estimation d'un enrichissement en ^{235}U de l'Uranium, en comparant la première valeur spectrale résultant de l'étape c) et la deuxième valeur spectrale résultant de l'étape f).
- [Revendication 6] Procédé selon l'une quelconque des revendications précédentes, dans lequel lors de l'étape a), la distance entre le détecteur et l'objet est :
- supérieure à 1 mm ou à 5 mm ;
 - et/ou inférieure à 20 mm ou à 10 mm.
- [Revendication 7] Procédé selon l'une quelconque des revendications précédentes, dans lequel l'objet est un objet naturellement radioactif, le procédé comportant :
- (i) prise en compte d'une activité naturelle de l'objet ;
 - (ii) modélisation d'un spectre β de l'activité naturelle (Sp_{RN}) de l'objet détecté par le détecteur ;
 - l'étape b) comporte une correction du spectre mesuré en utilisant le spectre β de l'activité naturelle de l'objet résultant de (ii), pour obtenir le spectre corrigé.
- [Revendication 8] Procédé selon la revendication 7, dans lequel l'étape (i) résulte d'une mesure par spectrométrie gamma réalisée sur l'objet.
- [Revendication 9] Procédé selon l'une quelconque des revendications précédentes, dans lequel le détecteur comporte un matériau scintillateur organique.
- [Revendication 10] Procédé selon l'une quelconque des revendications 1 à 9, dans lequel le détecteur comporte un matériau semi-conducteur.
- [Revendication 11] Dispositif de mesure, configuré pour déterminer une activité en uranium d'un objet (2), le dispositif comportant :

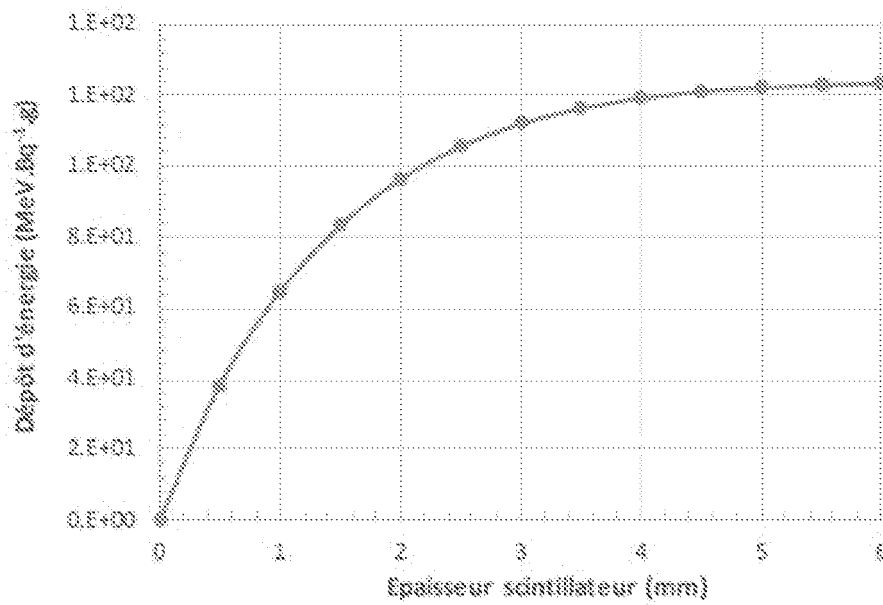
- un détecteur (10), comportant un matériau détecteur (11) configuré pour former des impulsions sous l'effet d'une exposition à des particules β ;
- un circuit de spectrométrie (13), relié au détecteur, et configuré pour former un histogramme de l'amplitude des impulsions détectées par le détecteur durant une période d'acquisition ;
- une unité de traitement (20), reliée au circuit de spectrométrie, et configurée pour mettre en œuvre les étapes b) à d) d'un procédé selon l'une quelconque des revendications précédentes.

- [Revendication 12] Dispositif selon la revendication 10, dans lequel le détecteur comporte un matériau scintillateur organique (11), l'épaisseur du matériau scintillateur organique est comprise étant comprise entre 3 mm et 10 mm.
- [Revendication 13] Dispositif selon la revendication 11, dans lequel le détecteur comporte un matériau semi-conducteur (11).
- [Revendication 14] Dispositif selon l'une quelconque des revendications 11 à 13, dans lequel le détecteur est recouvert d'une enveloppe (14) configurée pour absorber des particules α d'énergie supérieure ou égale à 4.5 MeV ou à 5 MeV.
- [Revendication 15] Dispositif selon l'une quelconque des revendications 10 à 14, dans lequel le dispositif comporte un écran mobile (15), configuré pour passer d'une configuration fermée, dans laquelle l'écran est interposé entre le matériau détecteur et l'objet, à une configuration ouverte dans laquelle l'écran laisse libre un espace entre le matériau détecteur et l'objet

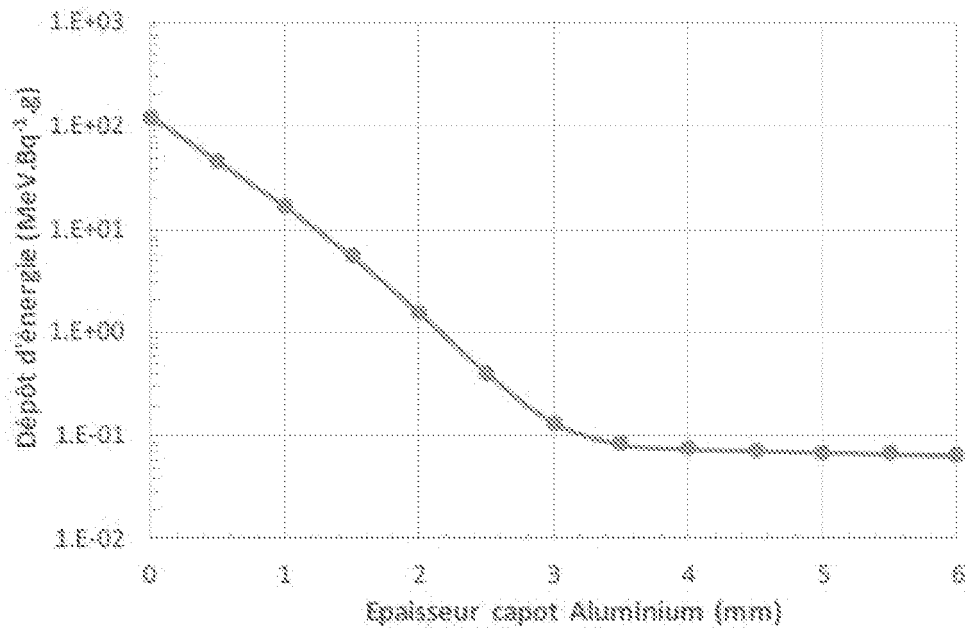
[Fig. 1]

**Fig. 1**

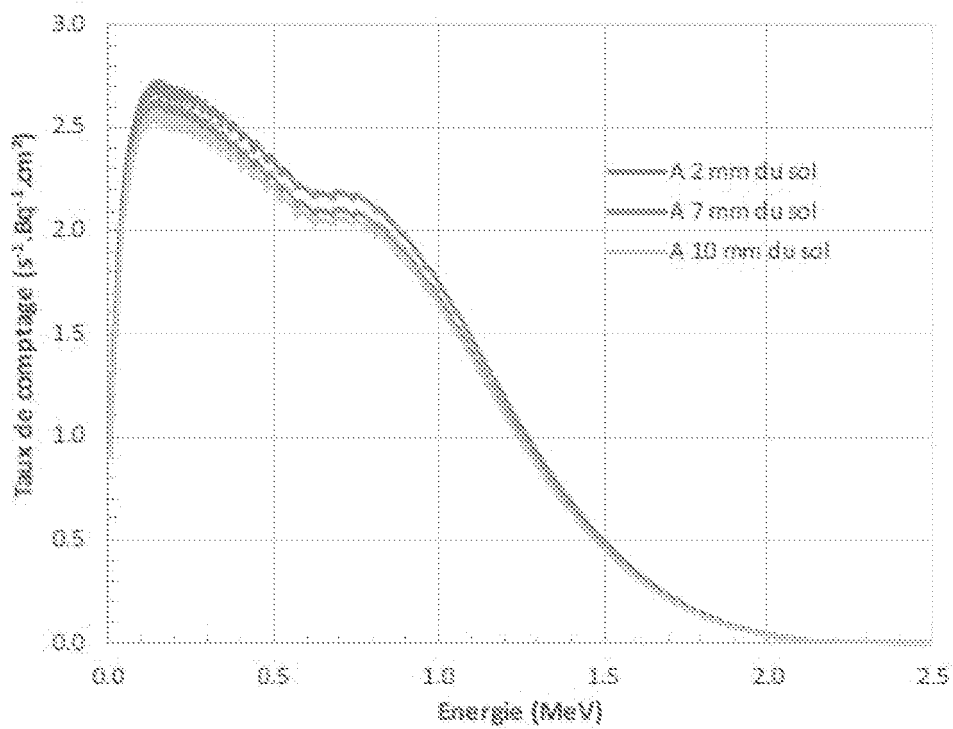
[Fig. 2]

**Fig. 2**

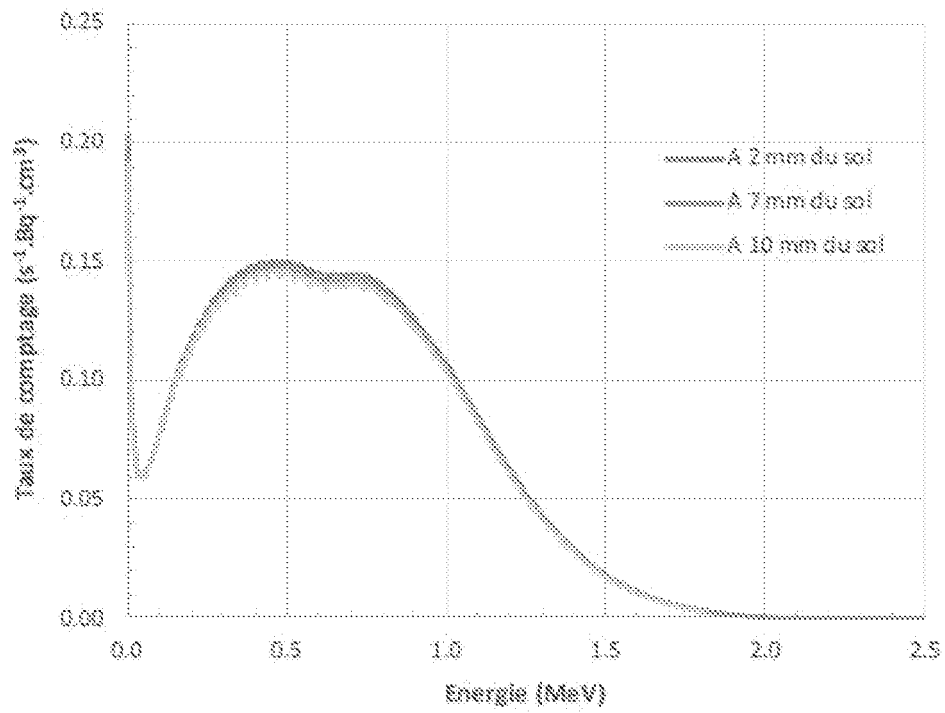
[Fig. 3]

**Fig. 3**

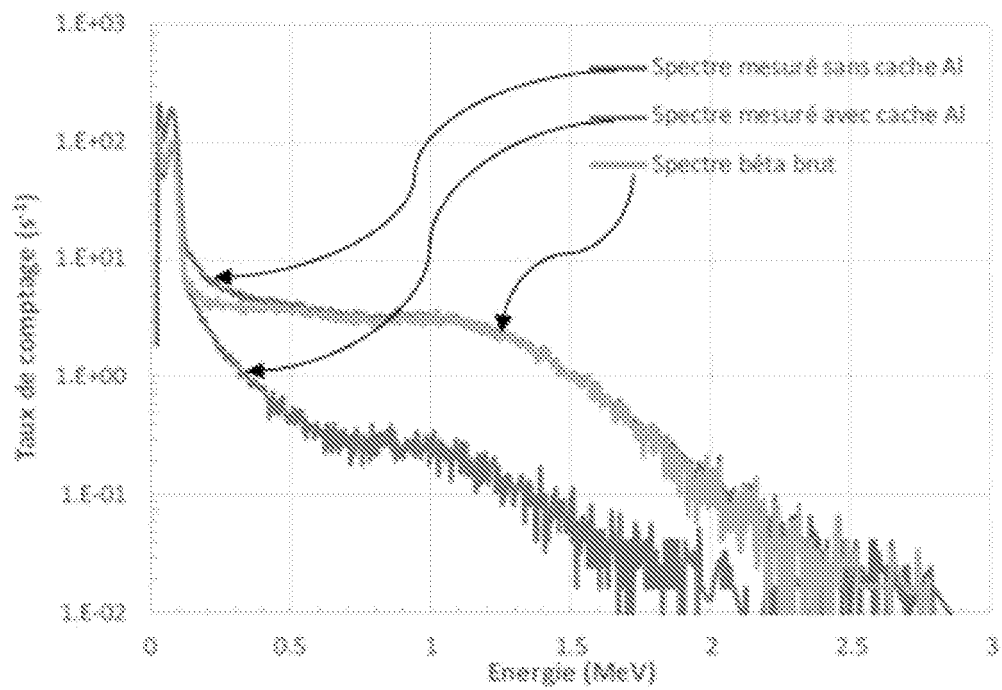
[Fig. 4A]

**Fig. 4A**

[Fig. 4B]

**Fig. 4B**

[Fig. 5]

**Fig. 5**

[Fig. 6]

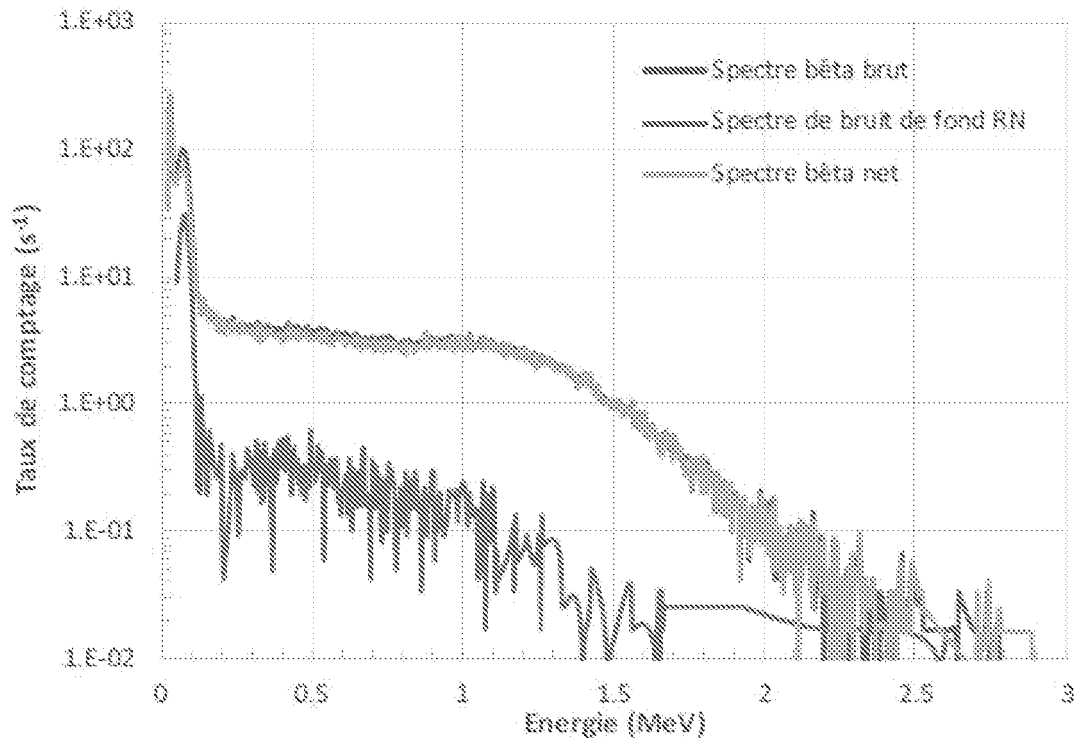


Fig. 6

[Fig. 7]

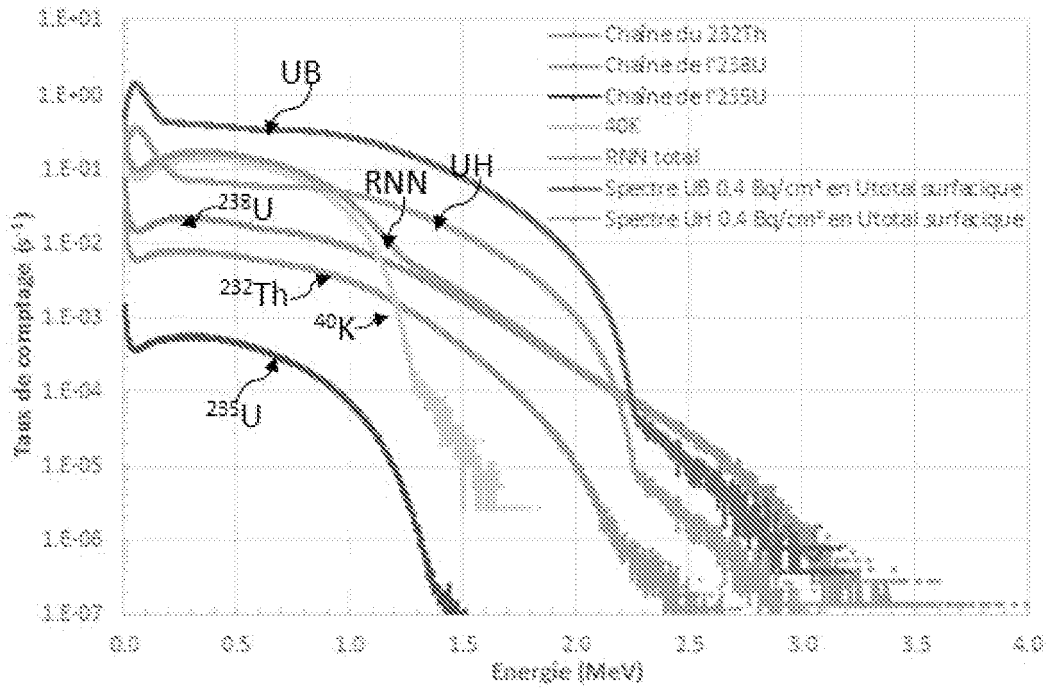
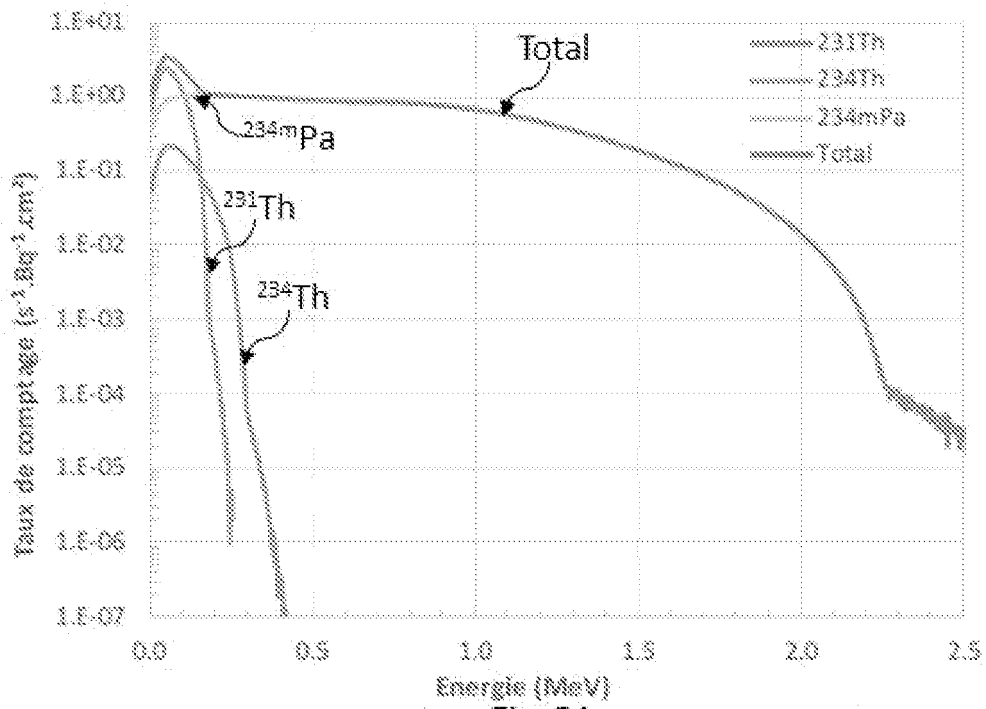
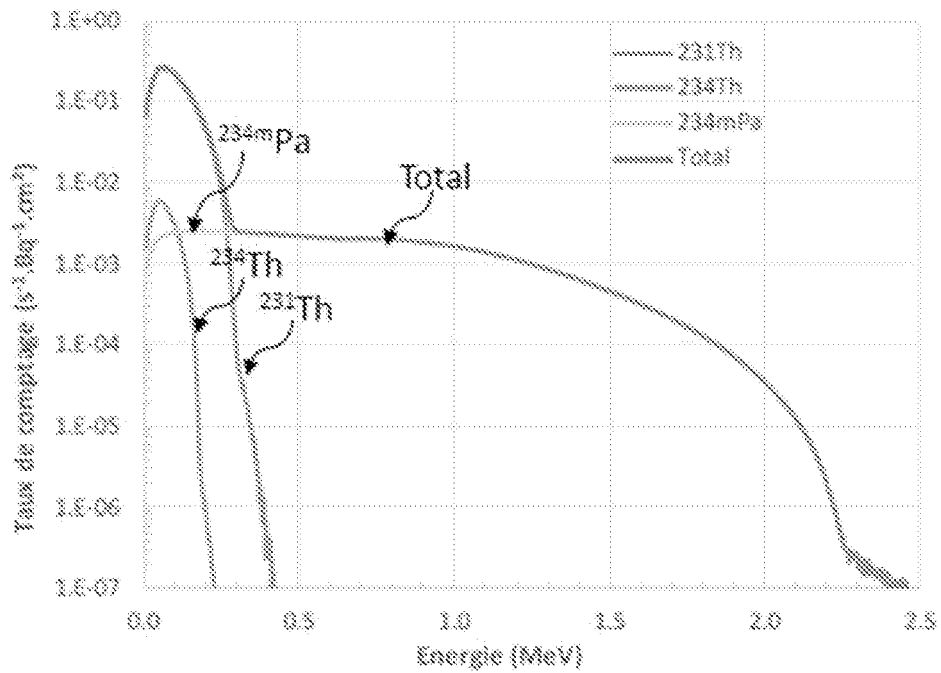


Fig. 7

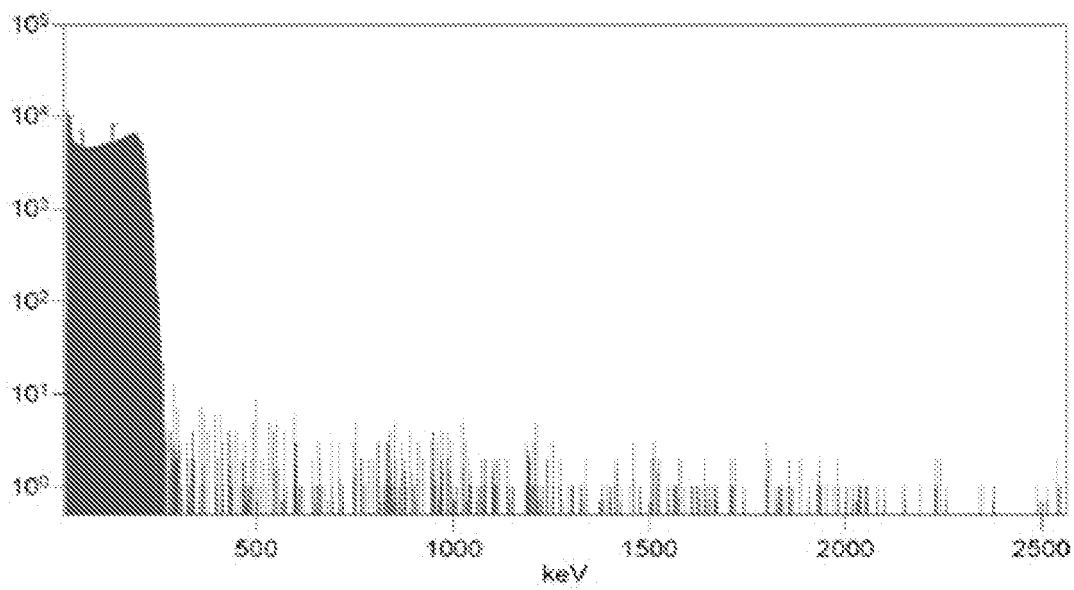
[Fig. 8A]

**Fig. 8A**

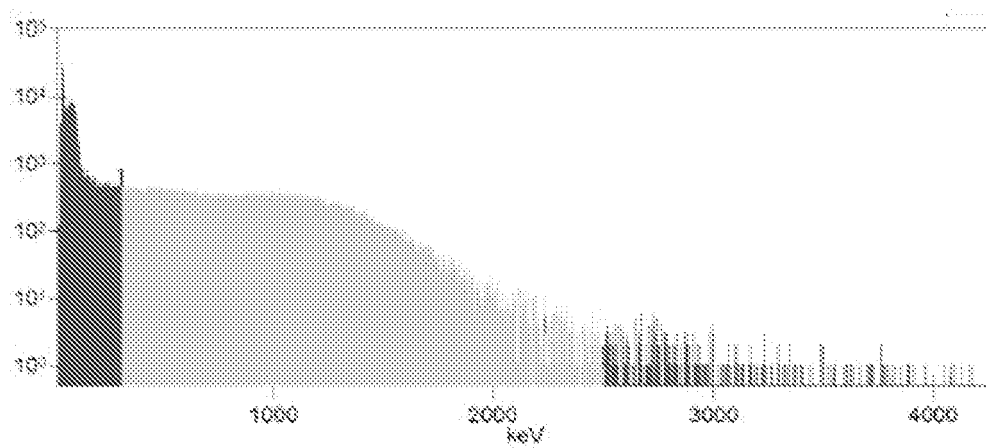
[Fig. 8B]

**Fig. 8B**

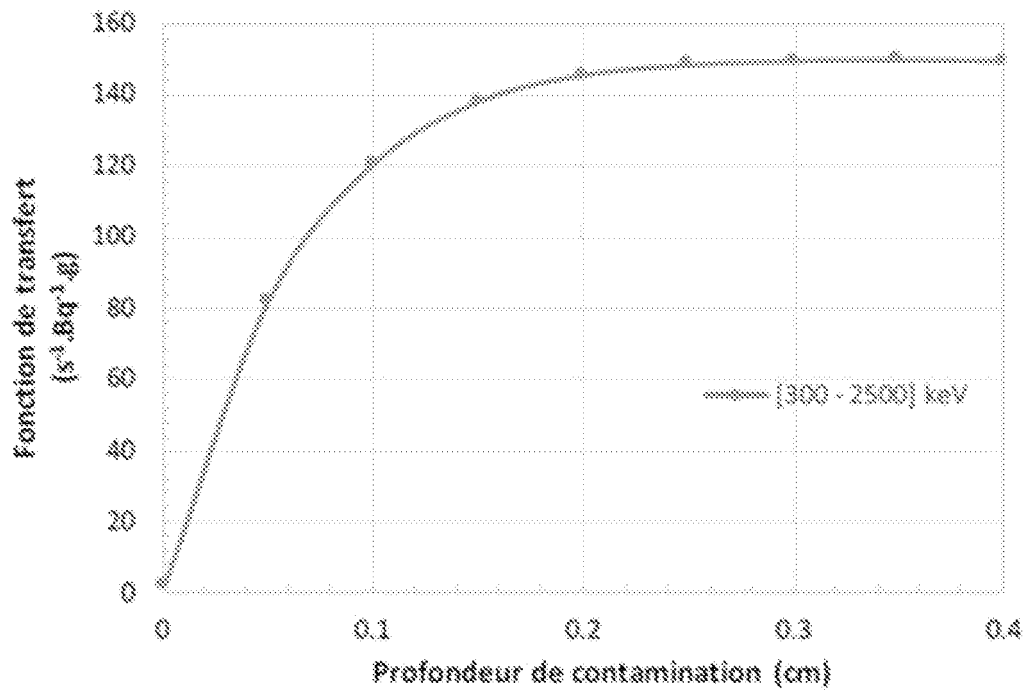
[Fig. 9]

**Fig. 9**

[Fig. 10]

**Fig. 10**

[Fig. 11]

**Fig. 11**

[Fig. 12A]

	12.1 cps	2 cps	2.8 cps
	6.7 cps	4.3 cps	3 cps
636.8 cps	244.1 cps	9.3 cps	8.3 cps
	17.9 cps	17.9 cps	11.9 cps
	10.4 cps	9.7 cps	3.8 cps

Fig. 12A

[Fig. 12B]

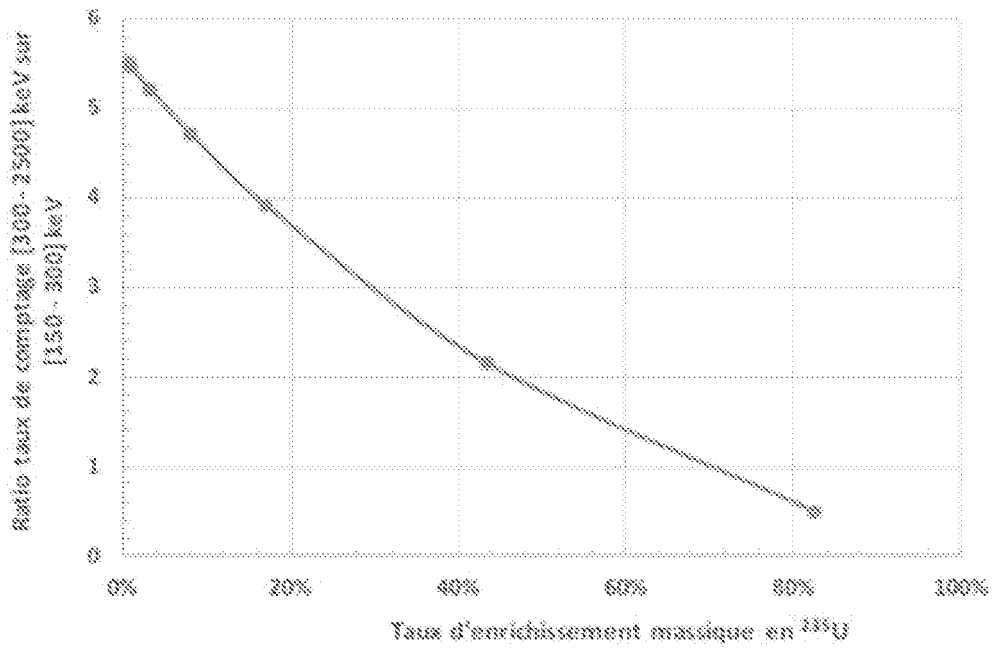
	115 Bq/m ²	19 Bq/m ²	26.5 Bq/m ²
	63.5 Bq/m ²	40.6 Bq/m ²	28.9 Bq/m ²
6060 Bq/m ²	2330 Bq/m ²	68.3 Bq/m ²	78.7 Bq/m ²
	171 Bq/m ²	170 Bq/m ²	113 Bq/m ²
	99.4 Bq/m ²	92.1 Bq/m ²	36 Bq/m ²

[Fig. 12C]

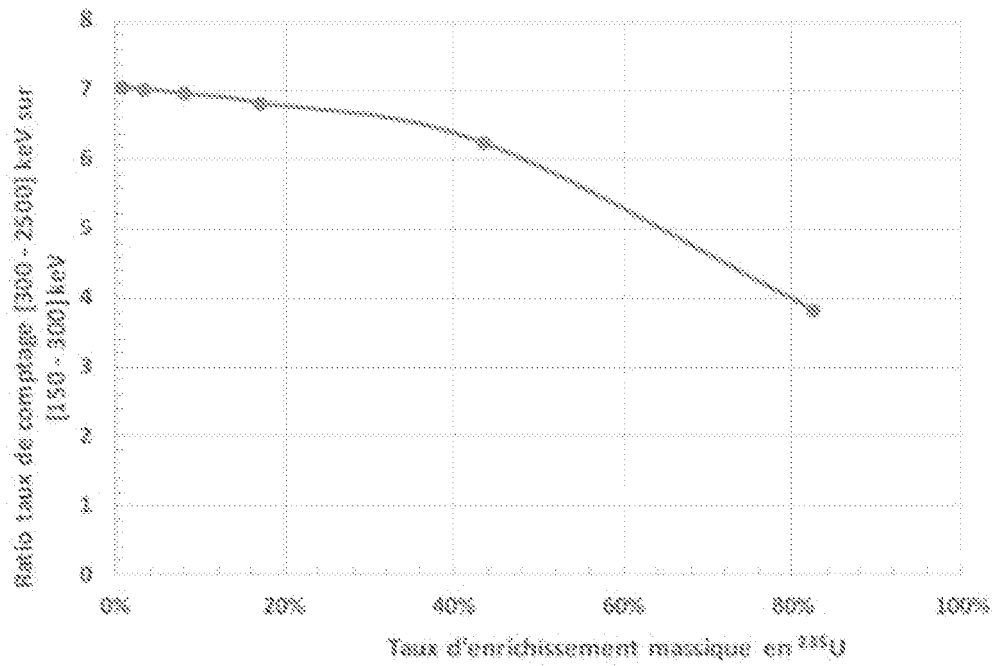
	288 Bq/m ²	47.6 Bq/m ²	66.3 Bq/m ²
	159 Bq/m ²	102 Bq/m ²	72.2 Bq/m ²
15200 Bq/m ²	5810 Bq/m ²	221 Bq/m ²	197 Bq/m ²
	427 Bq/m ²	425 Bq/m ²	283 Bq/m ²
	248 Bq/m ²	230 Bq/m ²	89.9 Bq/m ²

Fig. 12C

[Fig. 13A]

**Fig. 13A**

[Fig. 13B]

**Fig. 13B**

[Fig. 14]

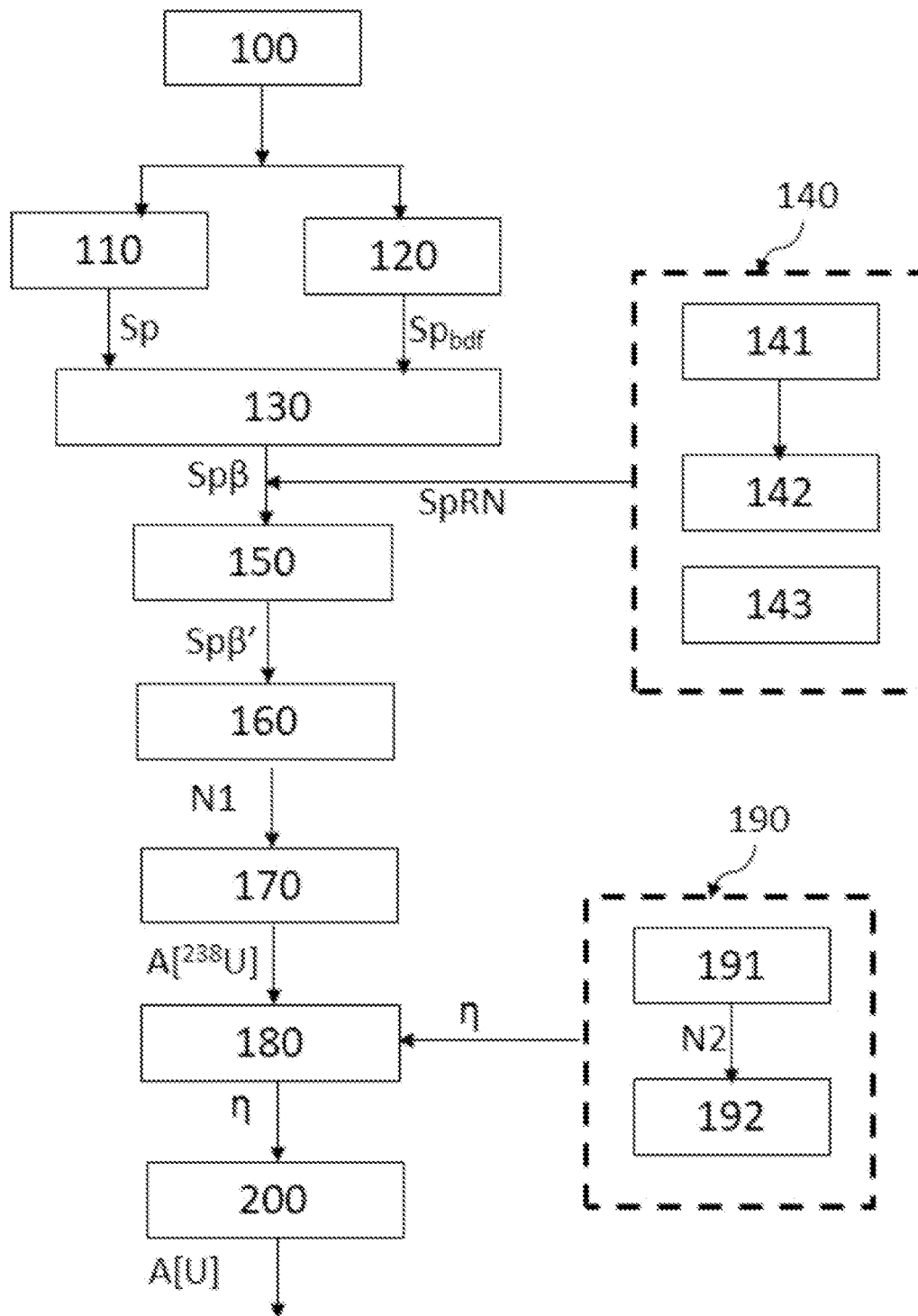


Fig. 14

**RAPPORT DE RECHERCHE
PRÉLIMINAIRE**

N° d'enregistrement
national

établi sur la base des dernières revendications
déposées avant le commencement de la recherche

**FA 915513
FR 2214720**

DOCUMENTS CONSIDÉRÉS COMME PERTINENTS		Revendication(s) concernée(s)	Classement attribué à l'invention par l'INPI
Catégorie	Citation du document avec indication, en cas de besoin, des parties pertinentes		
X Y A Y A A	<p>ASHRAFI SALEH ET AL: "Measurement of natural radioactivity of Iranian granite samples using beta-gamma coincidence spectrometer and maximum likelihood method", ENVIRONMENTAL EARTH SCIENCES, SPRINGER BERLIN HEIDELBERG, BERLIN/HEIDELBERG, vol. 78, no. 15, 18 juillet 2019 (2019-07-18), pages 1-8, XP036857973, ISSN: 1866-6280, DOI: 10.1007/S12665-019-8434-6 [extrait le 2019-07-18]</p> <p>* le document en entier *</p> <p>-----</p>	1, 4, 6-13, 15	G01T1/36 G01J3/02 G21G
	<p>HUNT ET AL: "Measurement by spectrometry of hard β-emitters in environmental samples", INTERNATIONAL JOURNAL OF APPLIED RADIATION AND ISOTOPS, PERGAMON PRESS, NEW YORK, NY, US, vol. 31, no. 4, 1 avril 1980 (1980-04-01), pages 203-215, XP024717705, ISSN: 0020-708X, DOI: 10.1016/0020-708X(80)90110-6 [extrait le 1980-04-01]</p> <p>* pages 203-204 * * figure 1 *</p> <p>-----</p>	2, 3, 14 5	DOMAINES TECHNIQUES RECHERCHÉS (IPC) G01T G21J G21D
	<p>US 2022/365226 A1 (MAERTEN GOTTFRIED HORST [DE] ET AL) 17 novembre 2022 (2022-11-17) * alinéas [0107] - [0110] * * figure 2 *</p> <p>-----</p>	2, 3, 14	
	<p>US 2022/365226 A1 (MAERTEN GOTTFRIED HORST [DE] ET AL) 17 novembre 2022 (2022-11-17) * alinéas [0107] - [0110] * * figure 2 *</p> <p>-----</p> <p style="text-align: center;">-/--</p>	1, 4-13, 15	
Date d'achèvement de la recherche		Examineur	
7 juillet 2023		Wulveryck, J	
<p>CATÉGORIE DES DOCUMENTS CITÉS</p> <p>X : particulièrement pertinent à lui seul Y : particulièrement pertinent en combinaison avec un autre document de la même catégorie A : arrière-plan technologique O : divulgation non-écrite P : document intercalaire</p> <p>T : théorie ou principe à la base de l'invention E : document de brevet bénéficiant d'une date antérieure à la date de dépôt et qui n'a été publié qu'à cette date de dépôt ou qu'à une date postérieure. D : cité dans la demande L : cité pour d'autres raisons & : membre de la même famille, document correspondant</p>			

1
EPO FORM 1503 12.99 (P04C14)

**RAPPORT DE RECHERCHE
PRÉLIMINAIRE**

N° d'enregistrement
national

établi sur la base des dernières revendications
déposées avant le commencement de la recherche

FA 915513
FR 2214720

DOCUMENTS CONSIDÉRÉS COMME PERTINENTS		Revendication(s) concernée(s)	Classement attribué à l'invention par l'INPI
Catégorie	Citation du document avec indication, en cas de besoin, des parties pertinentes		
A	<p>HOU ET AL: "Critical comparison of radiometric and mass spectrometric methods for the determination of radionuclides in environmental, biological and nuclear waste samples", ANALYTICA CHIMICA ACTA, ELSEVIER, AMSTERDAM, NL, vol. 608, no. 2, 23 décembre 2007 (2007-12-23), pages 105-139, XP022428138, ISSN: 0003-2670, DOI: 10.1016/J.ACA.2007.12.012 * le document en entier *</p> <p style="text-align: center;">-----</p>	1-15	
A	<p>CN 210 038 176 U (NO 290 RES INSTITUTE OF NUCLEAR INDUSTRY) 7 février 2020 (2020-02-07) * abrégé * * figures 1,2 *</p> <p style="text-align: center;">-----</p>	1-15	
			DOMAINES TECHNIQUES RECHERCHÉS (IPC)
		Date d'achèvement de la recherche	Examineur
		7 juillet 2023	Wulveryck, J
<p>CATÉGORIE DES DOCUMENTS CITÉS</p> <p>X : particulièrement pertinent à lui seul Y : particulièrement pertinent en combinaison avec un autre document de la même catégorie A : arrière-plan technologique O : divulgation non-écrite P : document intercalaire</p> <p>T : théorie ou principe à la base de l'invention E : document de brevet bénéficiant d'une date antérieure à la date de dépôt et qui n'a été publié qu'à cette date de dépôt ou qu'à une date postérieure. D : cité dans la demande L : cité pour d'autres raisons & : membre de la même famille, document correspondant</p>			

1
EPO FORM 1503 12.99 (P04C14)

**ANNEXE AU RAPPORT DE RECHERCHE PRÉLIMINAIRE
RELATIF A LA DEMANDE DE BREVET FRANÇAIS NO. FR 2214720 FA 915513**

La présente annexe indique les membres de la famille de brevets relatifs aux documents brevets cités dans le rapport de recherche préliminaire visé ci-dessus.
Les dits membres sont contenus au fichier informatique de l'Office européen des brevets à la date du **07-07-2023**
Les renseignements fournis sont donnés à titre indicatif et n'engagent pas la responsabilité de l'Office européen des brevets, ni de l'Administration française

Document brevet cité au rapport de recherche	Date de publication	Membre(s) de la famille de brevet(s)	Date de publication
US 2022365226 A1	17-11-2022	AU 2020362332 A1	03-02-2022
		CA 3157271 A1	15-04-2021
		CN 114402229 A	26-04-2022
		EP 3805808 A1	14-04-2021
		US 2022365226 A1	17-11-2022
		WO 2021069548 A1	15-04-2021
		ZA 202200288 B	28-09-2022

CN 210038176 U	07-02-2020	AUCUN	
