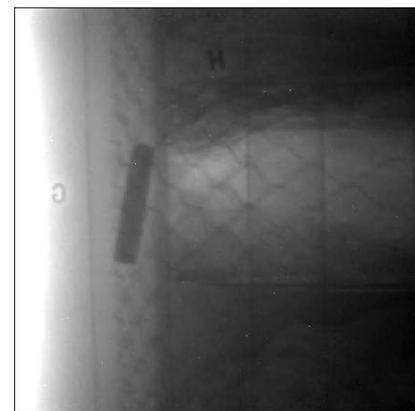
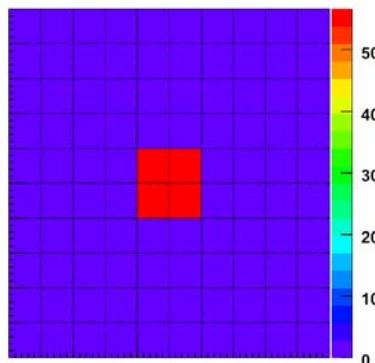
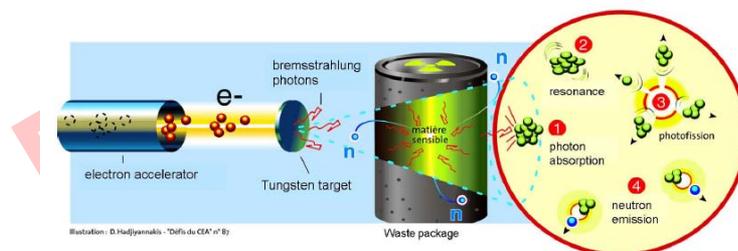


# L'Interrogation Photonique Active (IPA) appliquée à la caractérisation des colis de déchets radioactifs

F. CARREL, M. AGELOU, M. GMAR,  
F. LAINE, A. SARI

frederick.carrel@cea.fr



- ❑ Contexte et enjeux
- ❑ Bases de l'interrogation photonique active (IPA)
- ❑ Techniques IPA applicables à la caractérisation d'un colis de déchets
- ❑ L'IPA et le couplage des méthodes non destructives
- ❑ Conclusions et perspectives

## □ Contexte et enjeux

- Bases de l'interrogation photonique active (IPA)
- Techniques IPA applicables à la caractérisation d'un colis de déchets
- L'IPA et le couplage des méthodes non destructives
- Conclusions et perspectives

## □ Gestion et stockage des colis de déchets radioactifs

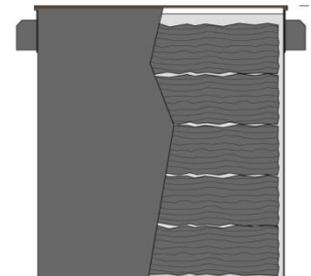
- Un **enjeu éthique et économique** pour le monde du nucléaire
- Un **enjeu scientifique et technique** pour le monde de la recherche



**Caractérisation nécessaire d'un colis de déchets**

## □ L'étape de caractérisation: un enjeu majeur

- Vérification du contenu du colis
- **Contrôle/Garantie** de plusieurs paramètres : **activité  $\alpha$ , activité  $\beta$ , masse d'actinides, masse fissile, débit de dose...**



## Les actinides en quelques phrases

CLASSIFICATION DES ELEMENTS CHIMIQUES

Chaque case du tableau correspond à un élément, dont on trouve le nom, le symbole, le numéro atomique (nombre d'électrons de l'atome) en haut à gauche, la masse atomique en haut à droite.

Les éléments de l'atome sont disposés en couches successives; les éléments qui figurent sur une même ligne, ou période, comportent le même nombre de couches, une seule pour l'hydrogène et l'hélium, 2 pour la période suivante, qui va du lithium au néon, et ainsi de suite.

Les éléments placés dans une même colonne verticale contiennent le même nombre d'électrons pour la couche externe, depuis 1 pour la colonne de l'hydrogène jusqu'à 8 pour celle de l'hélium; ils présentent de grandes analogies.

Une seule case a été réservée aux métaux des terres rares (lanthanides), éléments très voisins dont le détail est donné plus bas; il en est de même pour les éléments qui suivent le radium (actinides).

1,008 H HYDROGÈNE	4,0026 He HÉLIUM																
6,941 Li LITHIUM	9,01218 Be BÉRYLLIUM	10,81 B BORE	12,011 C CARBONE	14,0067 N AZOTE	15,9994 O OXYGÈNE	18,9984 F FLUORE	20,179 Ne NÉON										
22,9898 Na SODIUM	24,305 Mg MAGNÉSIE	26,9815 Al ALUMINIUM	28,086 Si SILICIUM	30,9738 P PHOSPHORE	32,06 S SOUFRE	35,453 Cl CHLORE	39,948 Ar ARGON										
39,102 K POTASSIUM	40,08 Ca CALCAIRE	44,9559 Sc SCANDIUM	47,88 Ti TITANE	50,9414 V VANADIUM	51,996 Cr CHROME	54,938 Mn MANGANESE	55,847 Fe FER	58,9332 Co COBALT	58,71 Ni NICKEL	63,546 Cu CUIVRE	65,37 Zn ZINC	68,72 Ga GALLIUM	72,64 Ge GERMANIUM	74,9216 As ARSENIC	78,96 Se SÉLIUM	79,904 Br BROME	83,80 Kr KRYPTON
85,4678 Rb RUBIDIUM	87,62 Sr STRONTIUM	88,9058 Y YTTRIUM	91,22 Zr ZIRCONIUM	92,9064 Nb NIOBIUM	95,94 Mo MOLYBDÈNE	98,9062 Tc TECHNÉTIUM	101,07 Ru RUTHÉNIUM	102,9055 Rh RHODIUM	106,4 Pd PALLADIUM	107,868 Ag ARGENT	112,40 Cd CADMIUM	114,82 In INDIUM	118,86 Sn ÉTAIN	121,75 Sb ANTIMOINE	127,60 Te TELLURE	126,9045 I IODE	131,30 Xe XÉNON
132,9055 Cs CÉSURIUM	137,34 Ba BARYUM	178,48 Hf HAFNIUM	178,48 Ta TANTALE	180,9478 W WOLFRÈME	183,85 Re RHÉNIUM	186,2 Os OSMIUM	188,907 Ir IRIDIUM	192,22 Pt PLATINE	195,08 Au OR	198,906 Hg MERCURE	200,59 Tl THALLIUM	204,37 Pb PLOMB	207,2 Bi BISMUTH	208,9804 Po POLONIUM	210 At ASTATE	210 Rn RADON	
87 Fr FRANCIUM	88 Ra RADIUM	LANTHANIDES															
ACTINIDES		89 La LANTHANE	90 Ce CÉRIUM	91 Pr PRASEODYME	92 Nd NÉODYME	93 Pm PRŔMETHIUM	94 Sm SAMARIUM	95 Eu EUROPÉIUM	96 Gd GADOLINIUM	97 Tb TERBIUM	98 Dy DYSPROSIUM	99 Ho HOLMIUM	100 Er ERBIUM	101 Tm THULIUM	102 Yb YTTÉRIUM	103 Lu LUTÉCIUM	
		89 Ac ACTINIUM	90 Th THORIUM	91 Pa PROTACTINIUM	92 U URANIUM	93 Np NEPTUNIUM	94 Pu PLUTONIUM	95 Am AMÉRICIUM	96 Cm CURIUM	97 Bk BERKÉLIUM	98 Cf CALIFORNIUM	99 E EINSTEINIUM	100 Fm FERMIUM	101 Mv MÉNDELÉVIUM	102 No NOBELIUM	103 Lw LAWRENCIUM	

- **Éléments chimiques** compris entre l'**actinium (Z=89)** et le **lawrencium (Z=103)** dans la **classification de Mendeleiev**.
- **Actinides majeurs** : uranium, plutonium
- **Actinides mineurs** : américium, curium, neptunium ....



**Activité  $\alpha$ , masse fissile contenue dans le colis**

## ☐ Méthodes de caractérisation

- **Méthodes destructives** : prélèvement et analyse / **Limitation** : non respect de l'intégrité du colis, analyse localisée
- **Méthodes non destructives** : intégrité du colis préservée / Analyse de l'ensemble du colis

## ☐ Méthodes non destructives passives

- **Détection** des rayonnements spontanément émis par les noyaux d'intérêt (**une étape**)
- **«Facilité»** de mise en oeuvre
- **Inapplicables** dans certains cas de figure (**bdf neutron/gamma** trop important)

## ☐ Méthodes non destructives actives

- **Irradiation** du colis puis **détection** des particules émises (**deux étapes**)



Méthodes reposant sur le **phénomène de fission**

- Contexte et enjeux
- **Bases de l'interrogation photonique active (IPA)**
- Techniques IPA applicables à la caractérisation d'un colis de déchets
- L'IPA et le couplage des méthodes non destructives
- Conclusions et perspectives

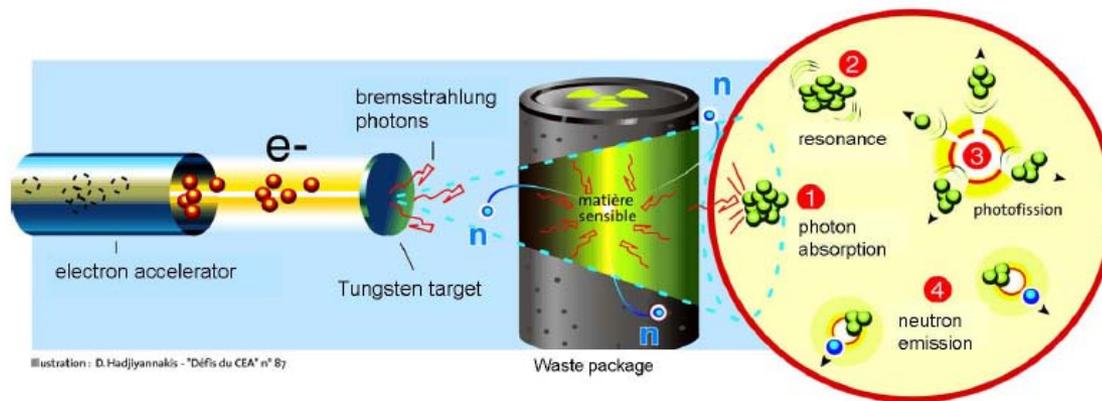
## □ La fission induite par...

- Un faisceau de **neutrons** : **Interrogation Neutronique Active (INA)** (cf. *talk C. Passard*)
- Un faisceau de **photons** : **Interrogation Photonique Active (IPA)**

## □ Des particules à détecter...

- **Particules promptes** : neutrons prompts
- **Particules retardées** (mais intéressantes !) : neutrons retardés / gamma retardés

## □ Comment faire de l'IPA ?



Au coeur de l'IPA :  
**la photofission**

## ☐ Réaction de fission induite par des photons de haute énergie

- Seuil de réaction **autour de 6 MeV** pour tous les actinides



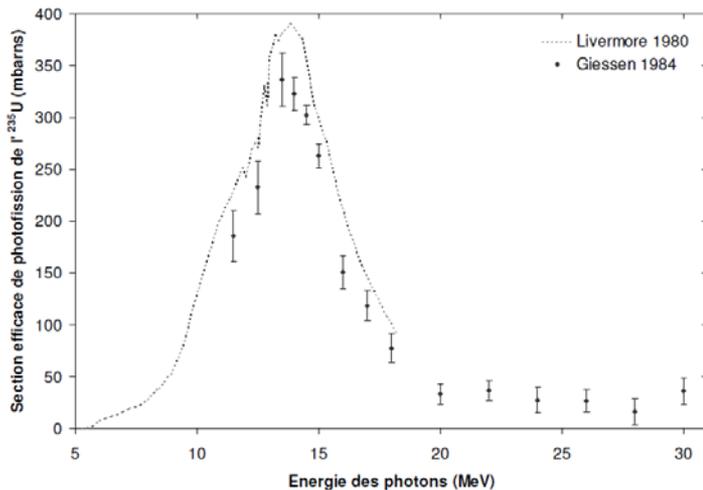
**Tous les actinides** sont **photofissiles (fissiles et fertiles) !**

## ☐ Sections efficaces de photofission

- Interrogation dans la gamme d'énergie **10 MeV – 30 MeV**



**Zone de la résonance géante dipolaire**



## ☐ Ordre de grandeur

- **Photofission (à 15 MeV)** : centaines de mbarns
- **Fission (thermique)** : centaines de barns

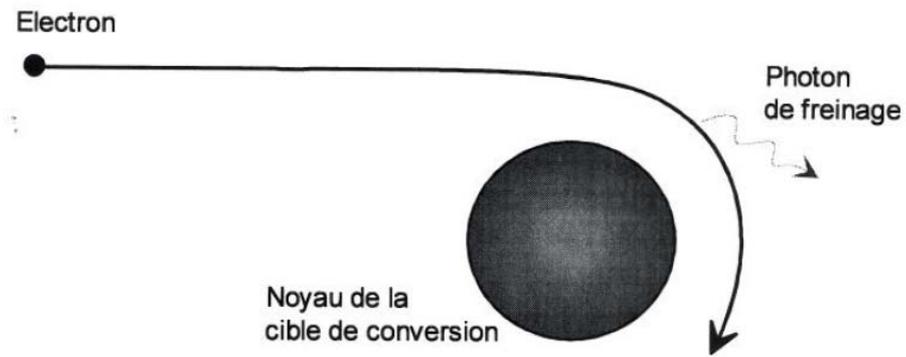


Interrogation à l'aide d'un **flux intense** de photons haute énergie

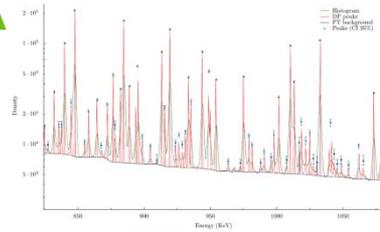
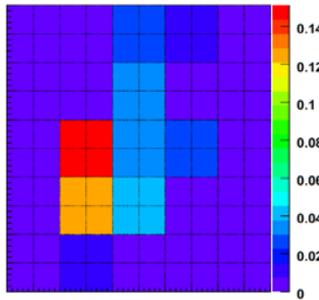
## □ L'accélérateur linéaire d'électrons (LINAC)



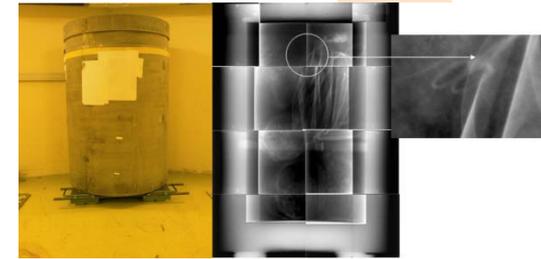
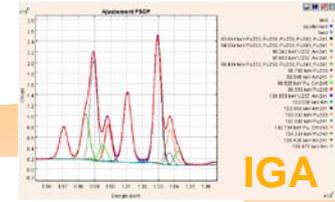
- Création de **photons de haute énergie** par *Bremsstrahlung* sur une cible en tungstène
- Caractéristiques du LINAC : irradiation pulsée (**25 Hz**, impulsions de **2,5  $\mu$ s**), énergie moyenne des électrons comprise **entre 15 MeV et 20 MeV**



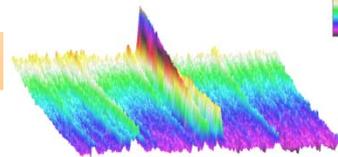
## Développement des méthodes IPA



**SAPHIR**



## Couplage des méthodes non-destructives passives et actives



Tout juste **10 ans**

Plate-forme de test pour codes et systèmes nouvelle génération : SINBAD, PING, ADONIS...

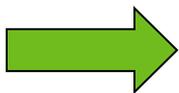
## ☐ Méthodes de mesure

- **Neutrons retardés** : pas d'information sur l'énergie des neutrons



**Comptage**

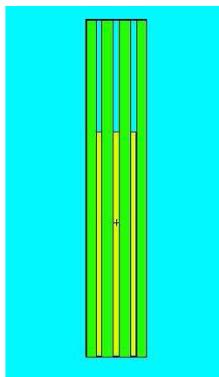
- **Gamma retardés** : information sur l'énergie des gamma



**Comptage et / ou spectrométrie**

## ☐ Moyens de détection

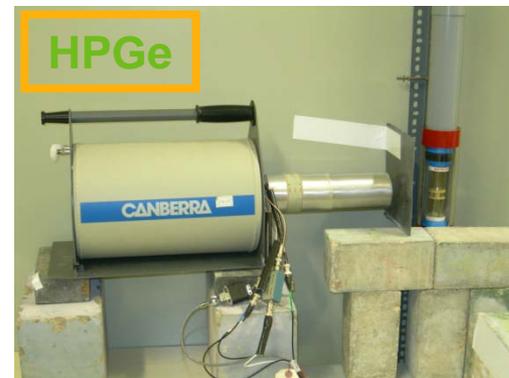
- **Neutrons retardés** : utilisation de détecteurs gazeux (**compteurs  $^3\text{He}$  ou  $\text{BF}_3$** )
- **Gamma retardés** : **scintillateur BGO** pour comptage, **semi-conducteur HPGe** pour spectrométrie



**$^3\text{He}$**



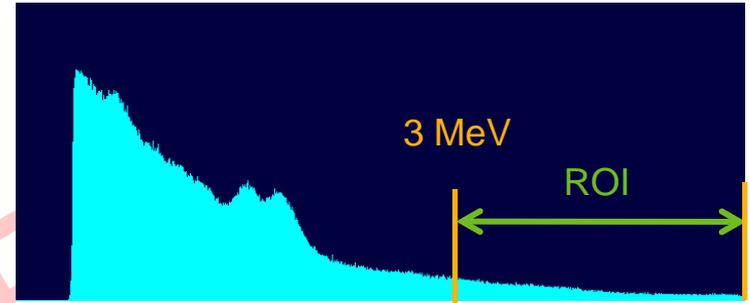
**BGO**



**HPGe**

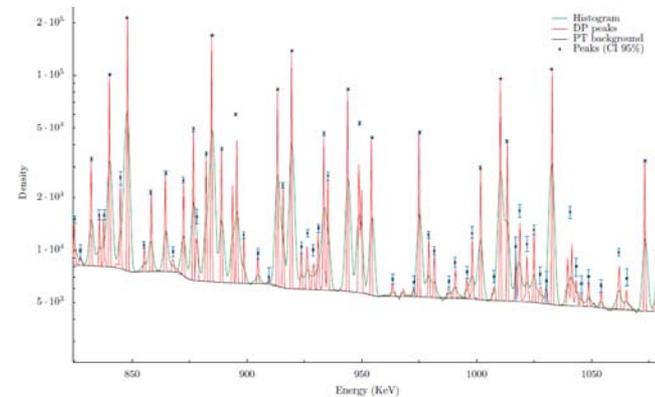
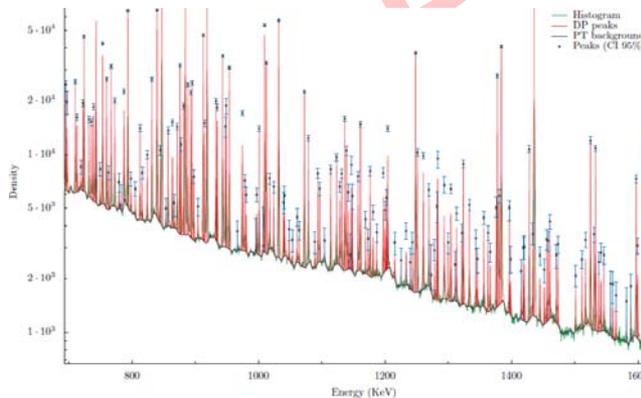
## Comptage des gamma retardés haute énergie (GRHE)

- Comptage des gamma retardés à partir d'un seuil donné



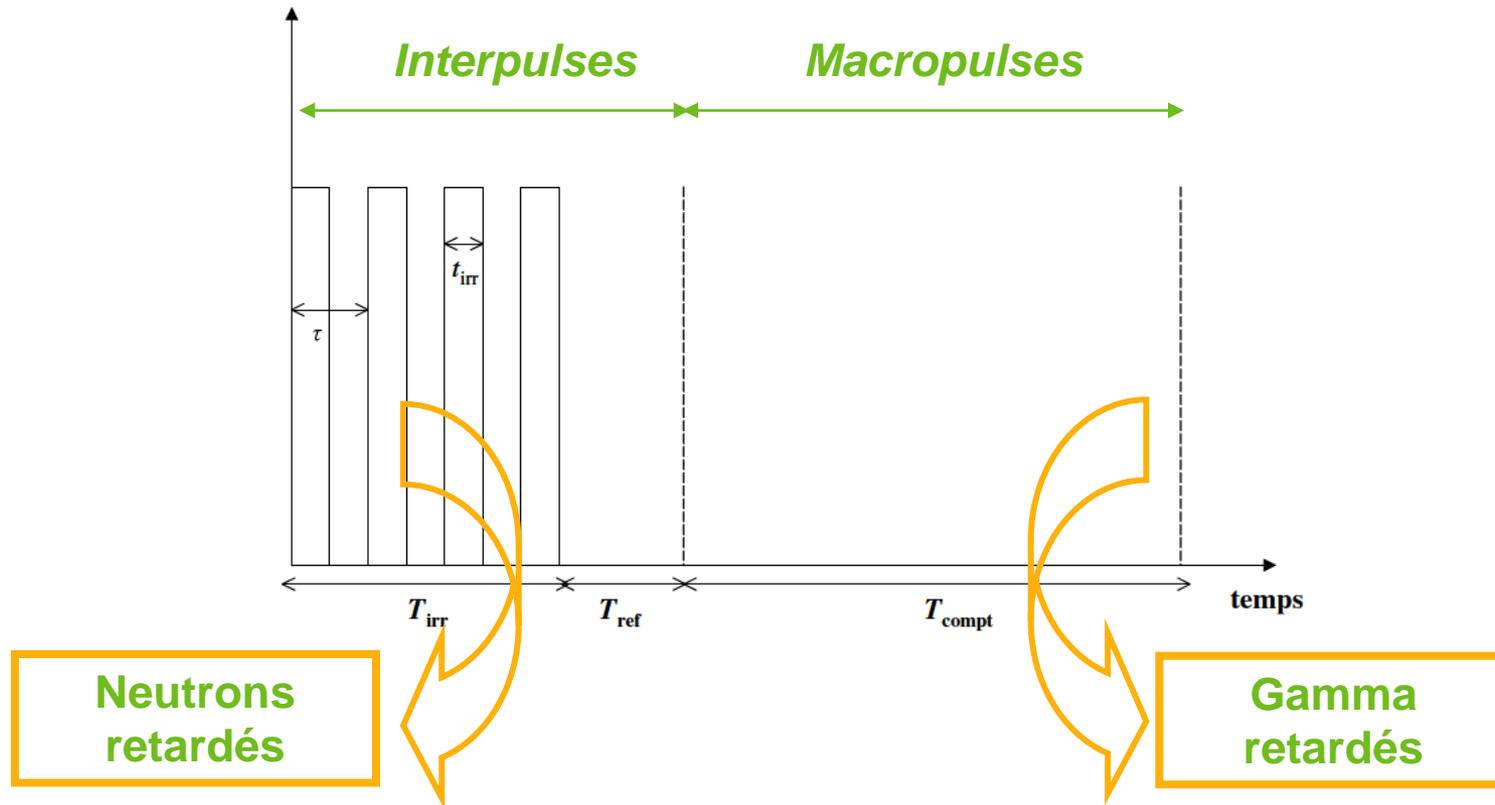
## Spectrométrie des gamma retardés

- Analyse des pics dans le spectre de gamma retardés



Copyright SINBAD

## □ Deux modes de comptage...



## □ ...et un protocole en 3 étapes

➔ Période d'**irradiation** / Période de **refroidissement** / Période de **comptage**

## □ Données photonucléaires ?

- **Sections efficaces** pour les principaux actinides, nombre de particules retardées émises par photofission ...
- Indispensables pour **l'interprétation** des résultats expérimentaux
- Indispensables pour **la partie simulation**

## □ Développements récents

- Travaux du **CEA IRFU** pour classifier les émetteurs de neutrons retardés et de gamma retardés haute énergie
- Travaux du **CEA LIST** pour classifier les émetteurs de gamma retardés
- Intégration des données photonucléaires à la **base de données ENDFB 7.0** (et disponibilité sous format **MCNPX .70u**)

Noyau	$E_\gamma$	$^{235}\text{U} - Y_c$ (%)	$^{238}\text{U} - Y_c$ (%)	$^{239}\text{Pu} - Y_c$ (%)
$^{89}\text{Rb}$	1031,9	4,76	3,42	2,62
$^{91}\text{Sr}$	1024,3	5,48	4,61	3,39
$^{92}\text{Sr}$	1383,9	5,59	4,77	3,74
$^{94}\text{Sr}$	1427,6	4,96	4,97	3,65
$^{131}\text{Sb}$	943,4	2,75	3,94	2,11
$^{135}\text{I}$	1260,4	5,06	6,71	4,47

- ❑ Contexte et enjeux
- ❑ Bases de l'interrogation photonique active (IPA)
- ❑ **Techniques IPA applicables à la caractérisation d'un colis de déchets**
- ❑ L'IPA et le couplage des méthodes non destructives
- ❑ Conclusions et perspectives

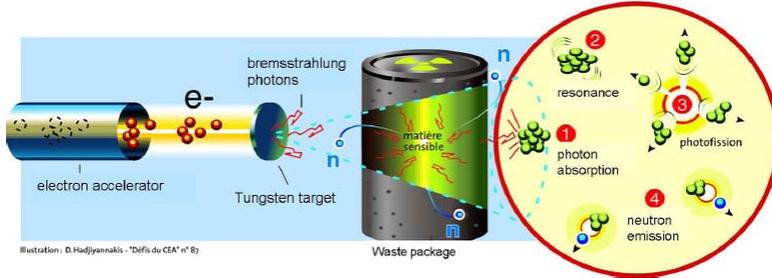
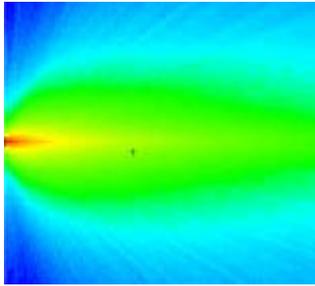


Illustration: D. Hadjyannakis - "Défis du CEA" n° 87



## L'Interrogation Photonique Active

**A. Sari : Photoneutrons LINAC (2013)**

**V. Macary : Mesure fondamentale neutrons retardés (2008)**

**F. Carrel : Spectrométrie des gamma retardés (2007)**

**M.L. Giacri : Mesure fondamentale neutrons retardés (2005)**

**N. Saurel : Tomographie de photofission neutrons retardés (2002)**

**M. Gmar : Spectrométrie des gamma retardés (2000)**

**F. Jallu : Double interrogation neutrons photons – SIMPHONIE (1999)**

**F. Huynh : Tomographie de photofission neutrons retardés (1999)**

**A. Lyoussi : Photofission globale et neutrons retardés (1994)**

## □ Un colis, des actinides ... et trois questions

Où sont-ils ?

**Localisation**



Qui sont-ils ?

**Identification**

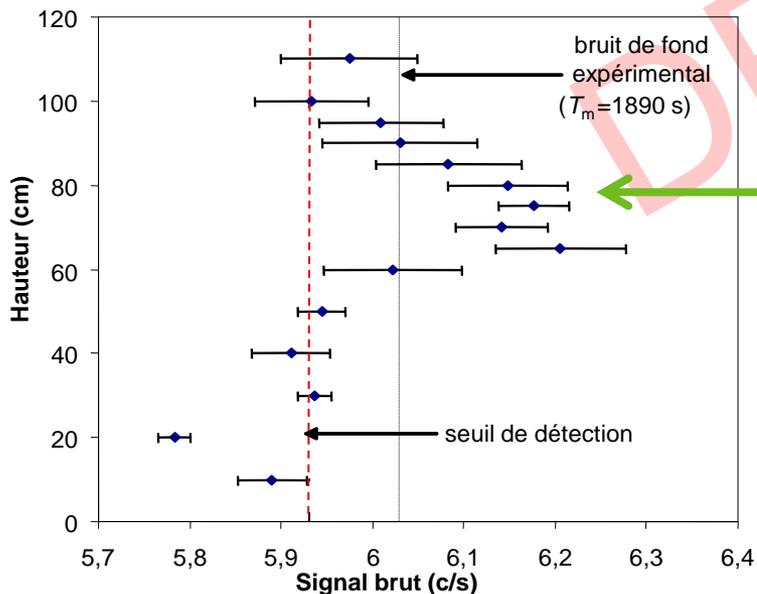
Combien  
sont-ils ?

**Quantification**

## Objectifs / Principe de la mesure

- Objectif : **localisation des actinides** dans le colis
- Irradiation du colis suivant **différentes altitudes** et **détection des particules retardées**
- **Excès de signal = présence d'actinides**

## Exemple sur colis de déchets réel

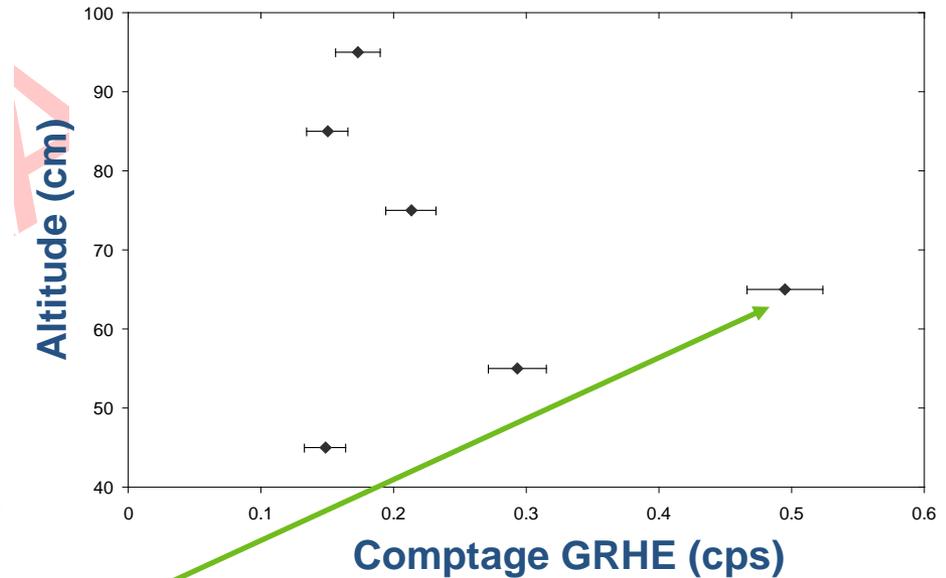
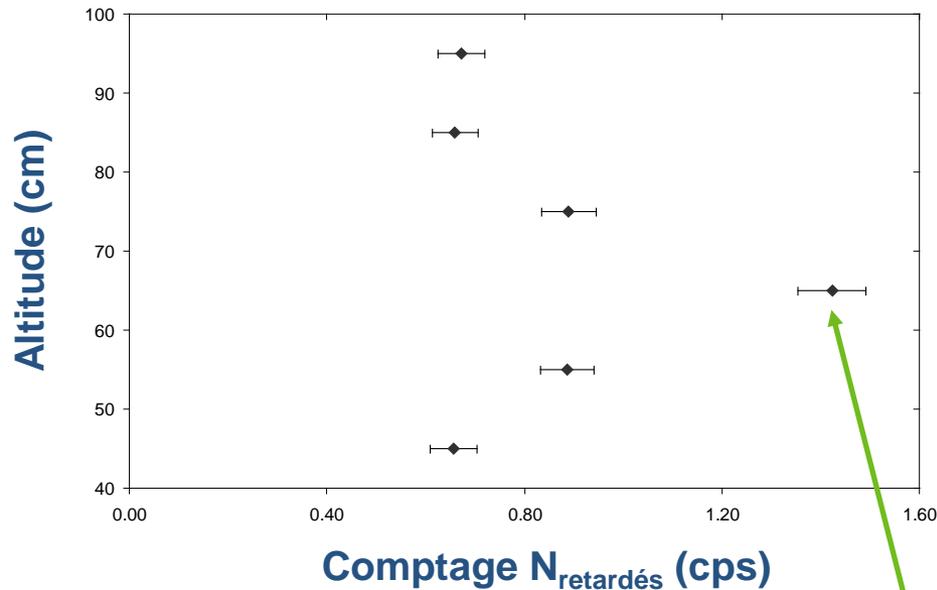
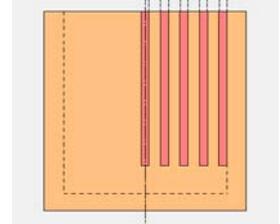


Confirmation par  
analyse destructive  
(Mesure ADEC)



## □ Détection combinée neutrons retardés / Gamma retardés haute énergie

- Exemple d'application sur **colis maquette 870 litres**
- Caractéristiques : diamètre (**106 cm**), hauteur (**117 cm**), masse (**1,8 t**)



**Point chaud = localisation des actinides**

## ❑ Objectifs / Principe de la mesure

- **Localisation et quantification** des actinides à une **altitude donnée**
- Utilisation de la **directivité du faisceau de photons**
- Reconstruction d'une **masse d'actinides** par **volume élémentaire (voxel)**

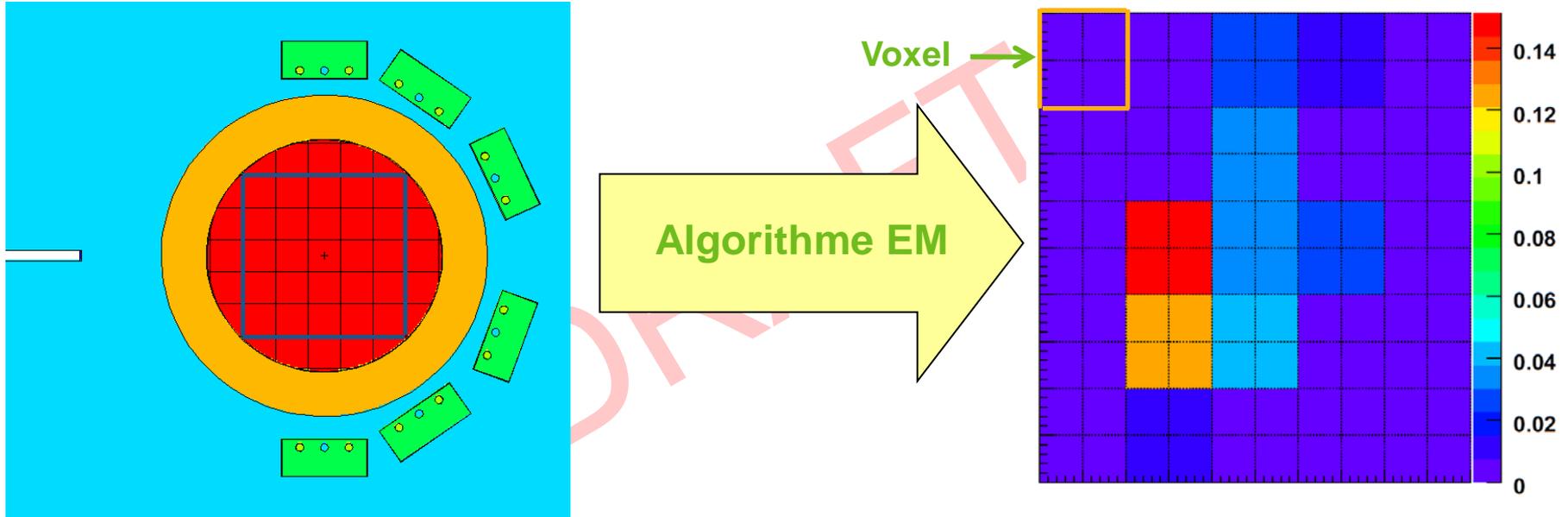
## ❑ Simulation et expérience

- La tomographie de photofission combine des :
  - ✓ **Résultats expérimentaux** : mesures suivant différentes positions de rotation et translation
  - ✓ **Résultats simulés** : calcul d'une **matrice de projection** par simulation MCNPX



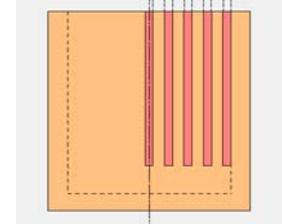
Utilisation d'**algorithmes tomographiques (par exemple EM)** pour reconstruire la **masse d'actinides par voxel**

□ Application sur un colis de déchets réel

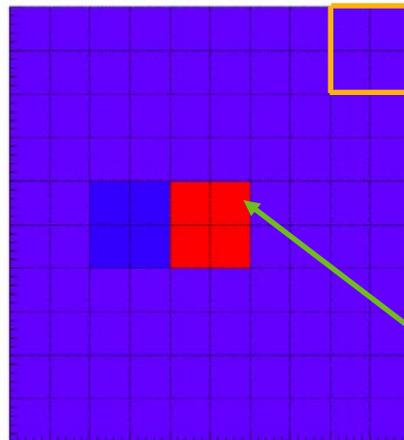


## ☐ Détection combinée neutrons retardés / Gamma retardés haute énergie

- Exemple d'application sur **colis maquette 870 litres**
- Caractéristiques : diamètre (**106 cm**), hauteur (**117 cm**), masse (**1,8 t**)

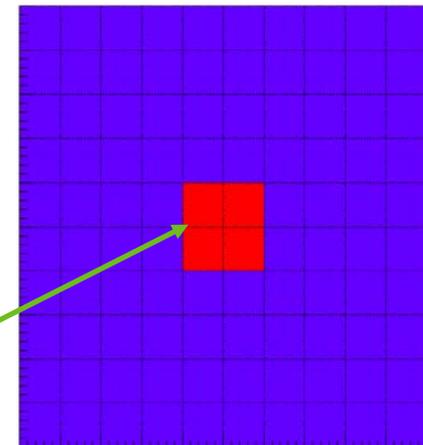


Neutrons retardés



Voxel

GRHE

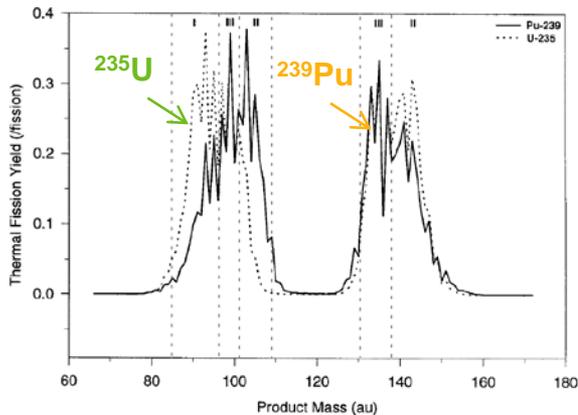


Masse d'actinides  
reconstruite à une altitude  
donnée

Trois compteurs  $^3\text{He}$ ,  
un détecteur BGO...

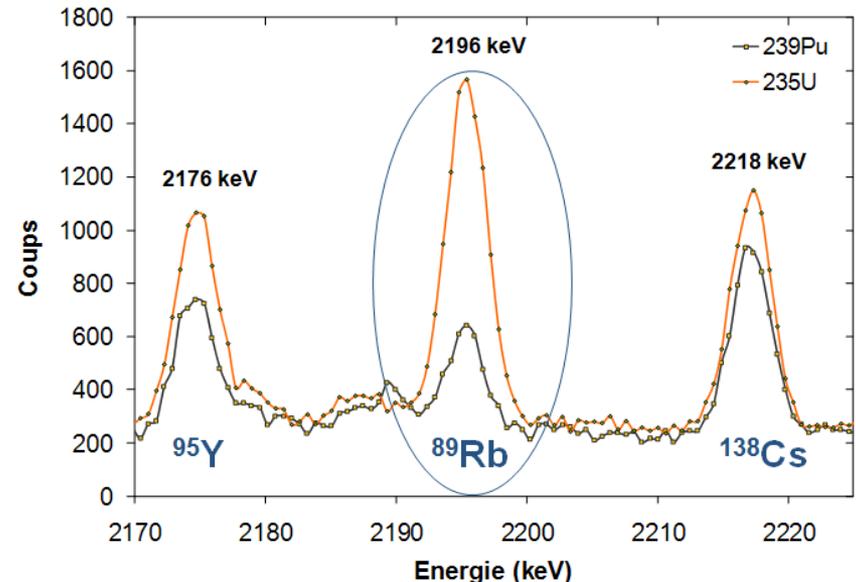
## Objectifs / Principe de la mesure

- Objectif : **identifier / Différencier** les actinides (fissile, fertile, mix fissile/fertile)
- Base de la méthode : variation des **taux de production** des produits de fission, en fonction de la **nature** de l'actinide irradié
- **Rapport entre des raies proches en énergie** (minimisation des contraintes expérimentales)
- Perte d'information sur la **masse globale** d'actinide et raisonnement en termes de **fraction massique** d'un actinide d'intérêt

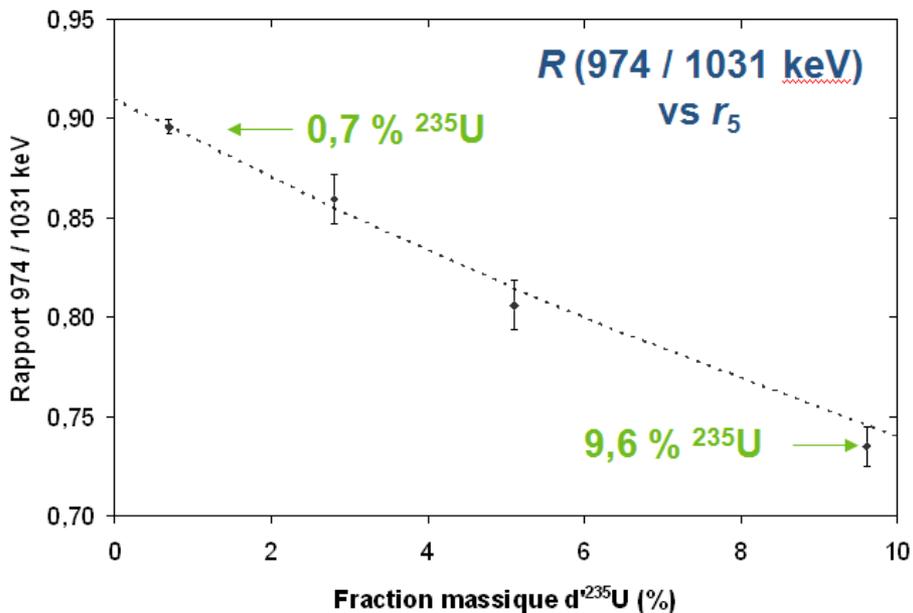


Distribution des PFs

Exemple  
d'application  
... en INA



## Exemple d'applications sur échantillons $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$



Faibles variations de fractions massiques détectables

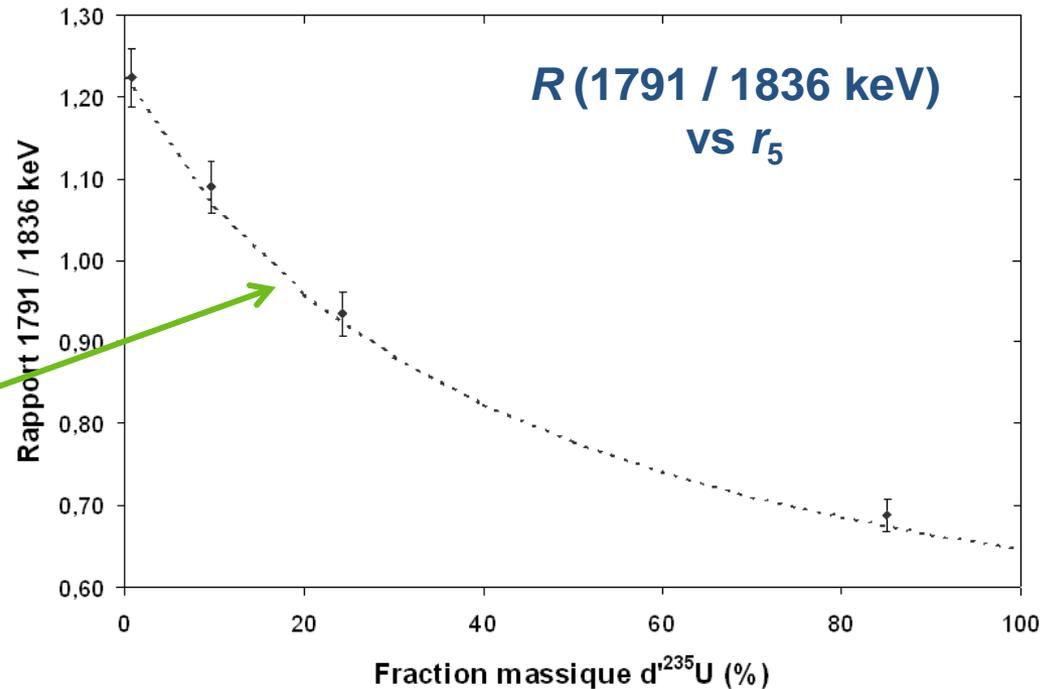
Combinaison de plusieurs rapports de raies

Mélange	$r_5$ , réelle (%)	$r_5$ , gr (%)	IC – 2 $\sigma$
1	0,7	1,4	[0,5 ; 2,2]
2	5,1	5,6	[4,5 ; 6,6]
3	9,6	9,9	[8,8 ; 11,0]
4	24,3	24,8	[23,7 ; 25,9]
5	51,9	52,3	[50,2 ; 54,5]
6	85,0	86,0	[81,4 ; 90,6]

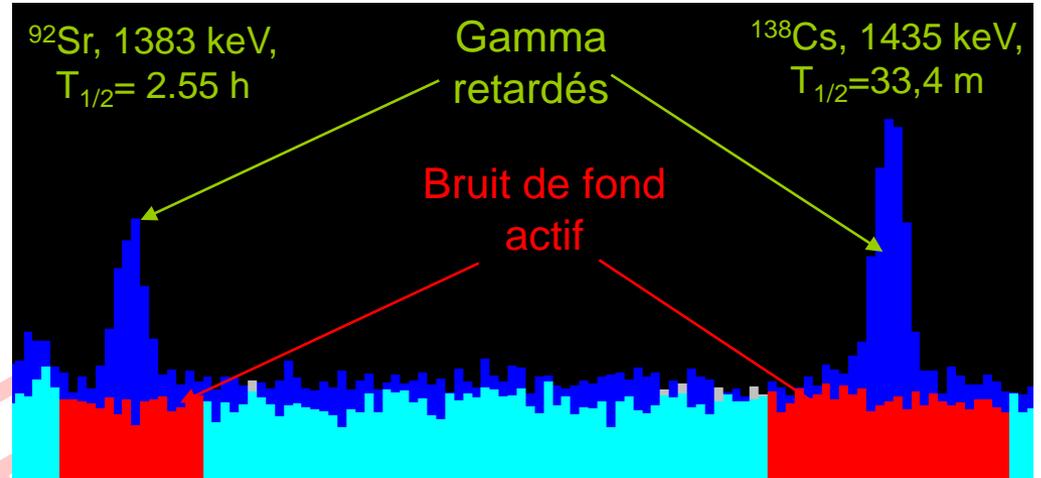
## □ Application de la méthode sur colis maquette 220 litres



Evolution calculée par utilisation des données photonucléaires



## □ Application de la méthode sur colis maquette 870 litres



Ratio	$r_5 = 0 \%$	$r_5 = 100 \%$	250 g $\text{U}_3\text{O}_8$
1383 / 1435	1,546 0,150	2,083 0,203	1,541 0,175

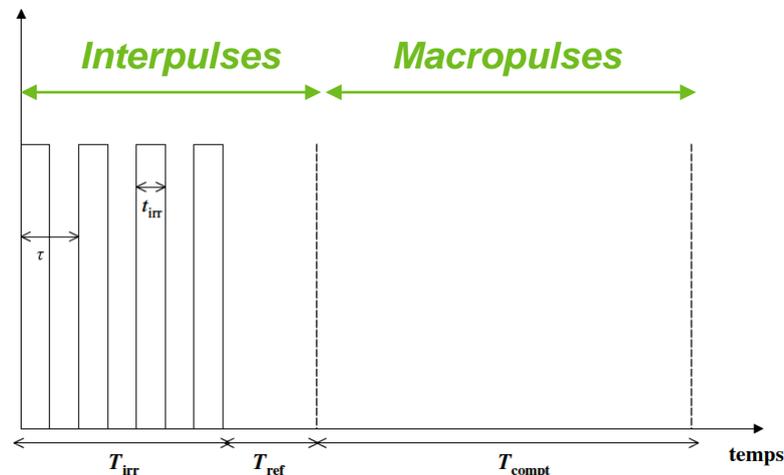
- **Identification** de 250 g d' $^{238}\text{U}$  ( $r_5 = 0.7 \%$ )

## □ Méthode alternative pour différencier les actinides

- Méthode permettant de **différencier actinides fissiles** ( $^{235}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ) et **fertiles** ( $^{238}\text{U}$ )
- Méthode utilisable pour les **colis fortement irradiants** (spectrométrie des gamma retardés inapplicable)
- **Minimisation des contraintes expérimentales** (taux de photofission, efficacité de détection)



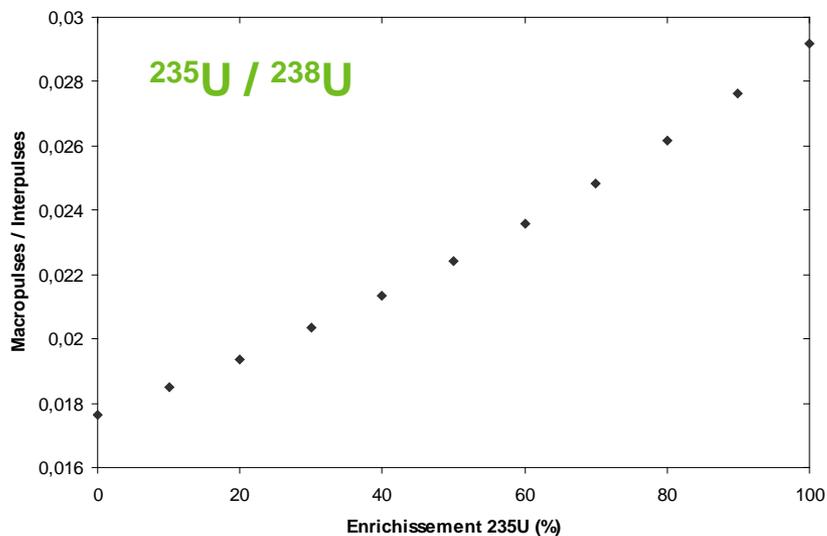
### Comptage des neutrons retardés *interpulses* et *macropulses*



## □ Exemple pour un protocole expérimental donné

➔ 300 s irradiation / 20 s refroidissement / 300 s comptage

Paramètres	$^{235}\text{U}$	$^{238}\text{U}$	$^{239}\text{Pu}$
Macropulses / Interpulses ( $\times 10^{-2}$ )	2,919	1,763	3,207



## □ Résultats expérimentaux sur $^{238}\text{U}$



Protocole expérimental : **300 s irradiation / 20 s refroidissement / 300 s comptage**

Actinide	Nature	Masse (g)	Macro. / Inter.	Exp. / Th.
$^{238}\text{U}$	$\text{U}_3\text{O}_8$	50	$1,70 \cdot 10^{-2}$ (3,9%)	0,96
$^{238}\text{U}$	$\text{UO}_2$	25	$1,68 \cdot 10^{-2}$ (3,2%)	0,95
$^{238}\text{U}$	Métal	115	$1,69 \cdot 10^{-2}$ (0,2%)	0,96
$^{238}\text{U}$ - CEDRA	$\text{U}_3\text{O}_8$	250	$1,61 \cdot 10^{-2}$ (0,1%)	0,91



**Aucun impact de:**

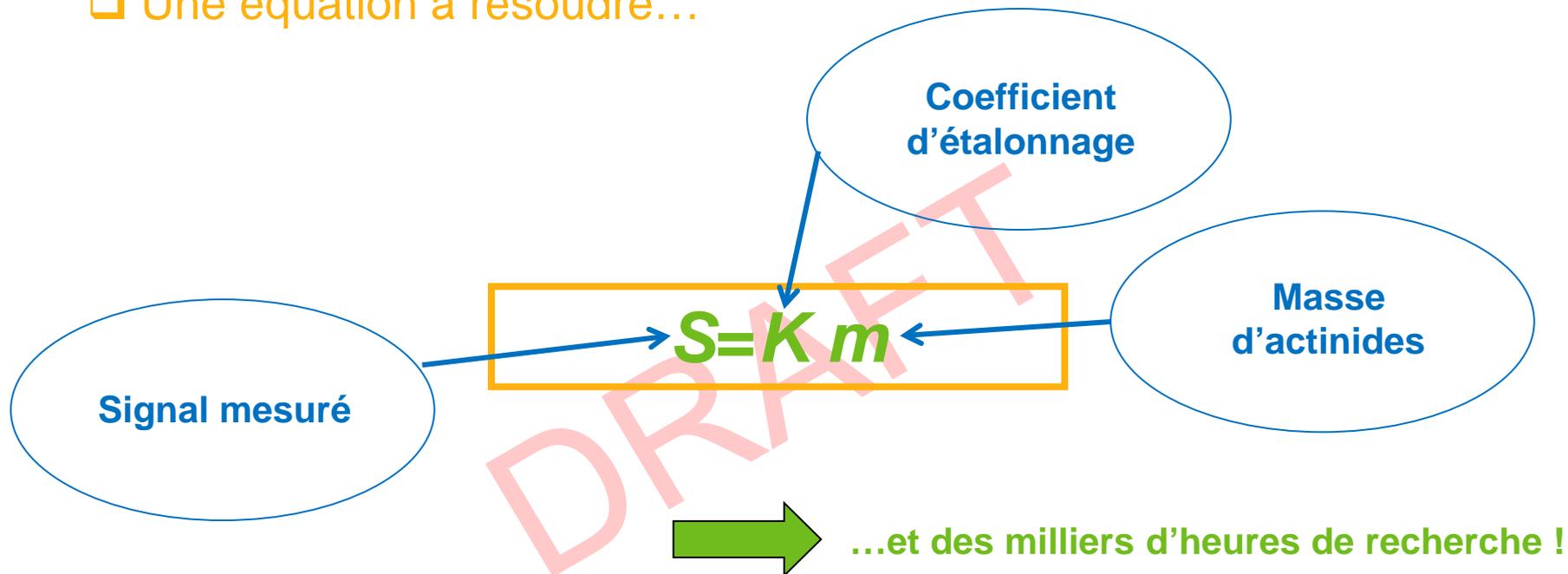
- **la configuration expérimentale** (variation de l'efficacité de détection)
- **la nature de l'échantillon** (variation de densité)

## □ Résultats expérimentaux sur $^{235}\text{U}$

Actinide	$E_{e^-}$ (MeV)	Nature	Masse (g)	Macro. / Inter.	Exp. / Th.
$^{235}\text{U}$	14	$\text{UO}_2$	1,8	$3,03 \cdot 10^{-2}$ (2,2%)	1,13
$^{235}\text{U}$	16	$\text{UO}_2$	1,8	$3,07 \cdot 10^{-2}$ (3,2%)	1,14
$^{235}\text{U}$	14	Métal	10	$3,15 \cdot 10^{-2}$ (0,2%)	1,12
$^{235}\text{U}$	16	Métal	10	$3,02 \cdot 10^{-2}$ (0,1%)	1,08

- **Contraste expérimental** de l'ordre d'un **facteur 1,83** entre  $^{238}\text{U}$  et  $^{235}\text{U}$
- **Augmentation du contraste** de différenciation si  $T_{\text{ref}}$  **augmente** (au détriment de la statistique de comptage)

□ Une équation à résoudre...



## □ Paramètres ayant une influence sur $K$

- **Paramètres de l'accélérateur** (paramètres temporels, énergie, courant cible)
- **Données photonucléaires** (exemple : nombre de neutrons retardés émis par photofission)
- **Efficacité de détection** du dispositif (impact des effets de matrice)
- **Répartition des actinides** dans le colis (matière centrée, matière diluée)

## □ Minimisation des incertitudes sur $K$

- **Combinaison des méthodes IPA**
- **Couplage de l'IPA avec d'autres méthodes actives non destructives**

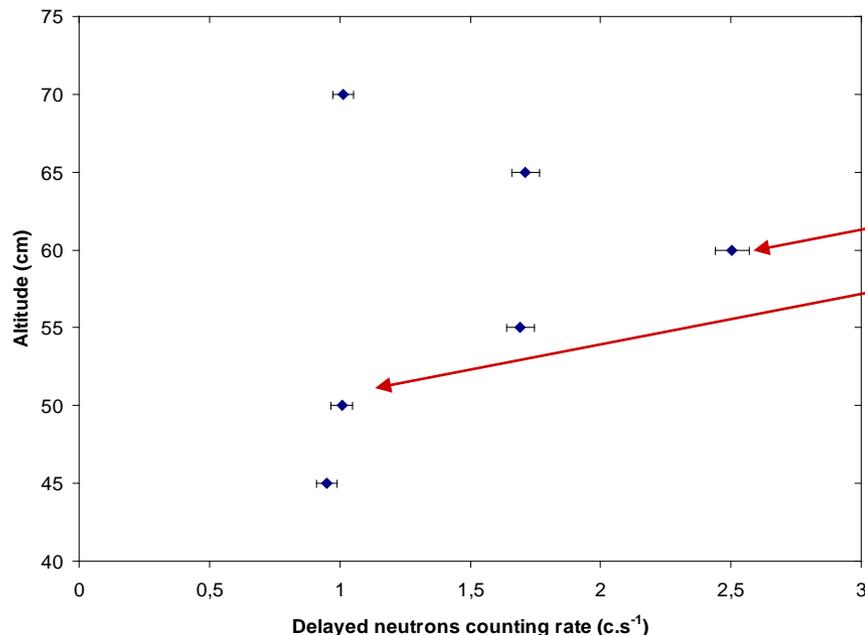
- ❑ Contexte et enjeux
- ❑ Bases de l'interrogation photonique active (IPA)
- ❑ Techniques IPA applicables à la caractérisation d'un colis de déchets
- ❑ **L'IPA et le couplage des méthodes non destructives**
- ❑ Conclusions et perspectives

## □ Les effets de matrice

- **Une problématique récurrente** pour les méthodes non destructives
- **Fort impact** des caractéristiques et de la répartition du déchet
- **Toutes les méthodes non-destructives** sont affectées

## □ Illustration sur colis maquette 870 litres

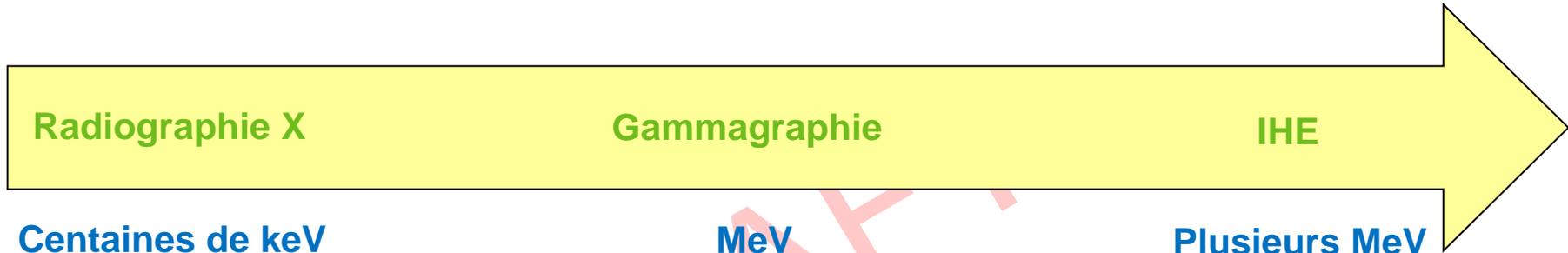
- Irradiation de la **même masse d'actinides** à **différentes altitudes**



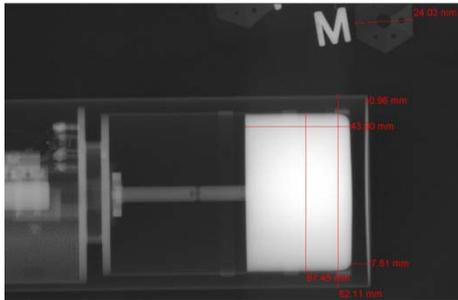
**Fortes variations du signal**  
en fonction de l'altitude de  
mesure

## Utilisation d'un LINAC comme outil d'imagerie

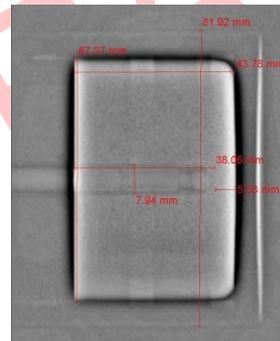
- Visualisation de l'intérieur d'un colis



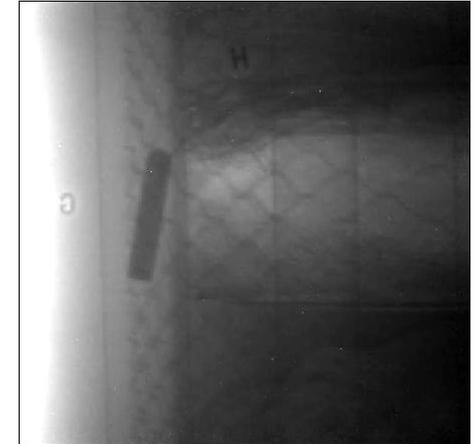
**Centaines de keV**



**MeV**



**Plusieurs MeV**



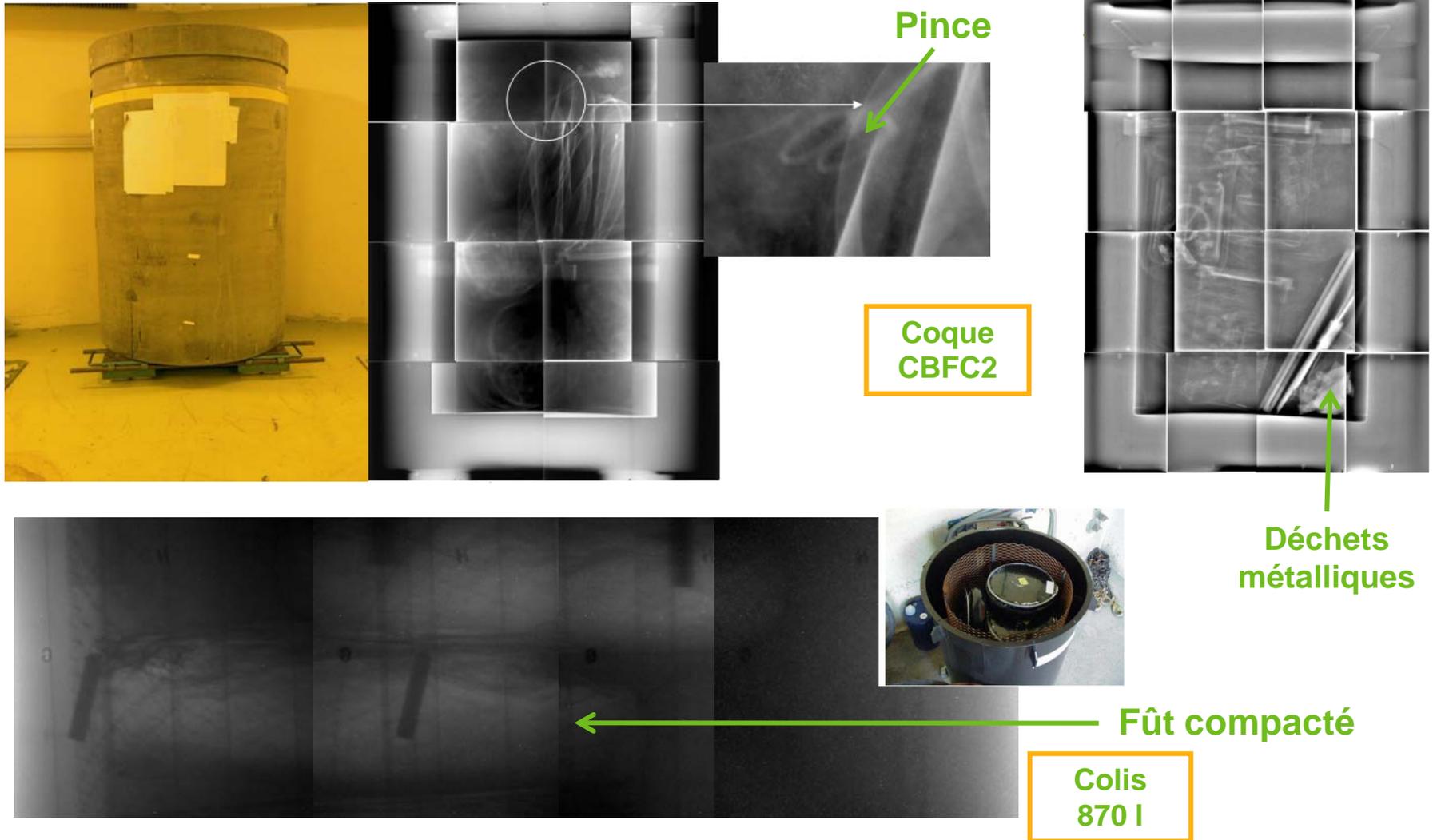
## Deux types d'approches

- Contrôle **qualitatif** : radiographie
- Contrôle **quantitatif** : tomodensitométrie

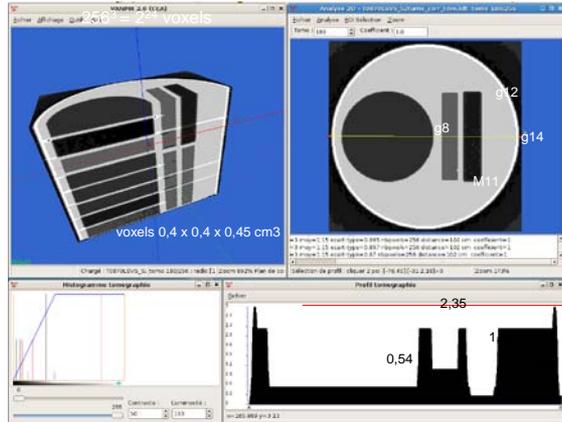


Une compétence forte au CEA LMN (cf. *talk* J.L. Pettier)

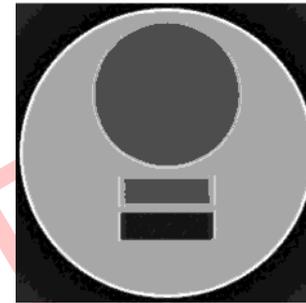
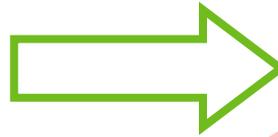
## Imagerie haute énergie à SAPHIR : une faisabilité démontrée



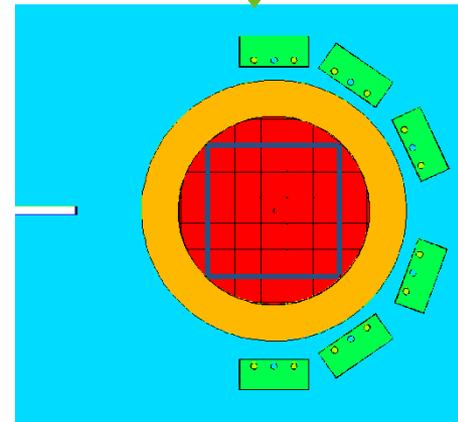
## □ Une finalité quantitative (collaboration CEA LIST / CEA DEN)



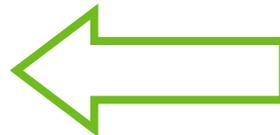
Tomodensitométrie sur colis de déchets



Colis voxellisé en densité



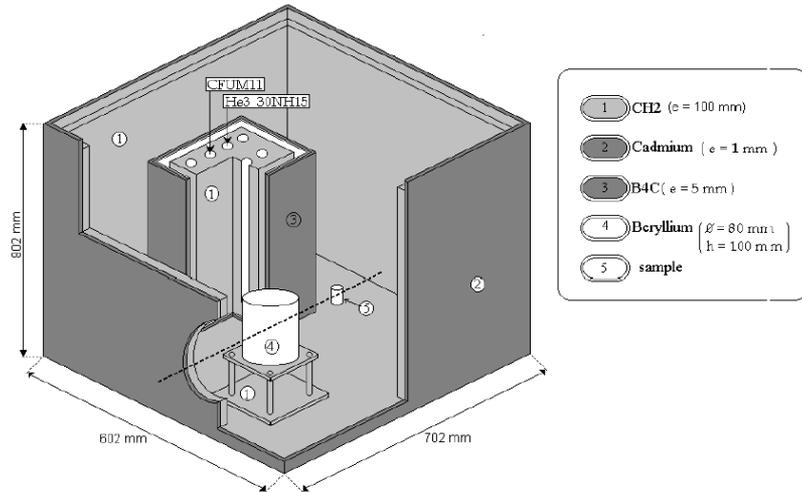
Injection des données TDM dans la modélisation IPA



Réduction des incertitudes

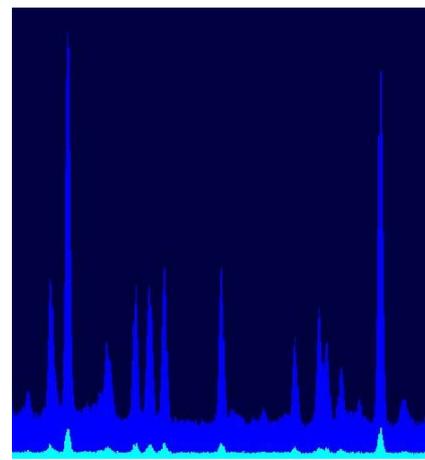
- Réactions au sein de la cible de conversion
  - Photons haute énergie créés par *Bremsstrahlung*
  - Photoneutrons créés par réaction ( $\gamma$ , Xn) dans la cible de conversion
  
- Une question de point de vue
  - Pour l'IPA : photoneutrons sont des **particules parasites**
  - Pour l'INA : photoneutrons comme **particules interrogatrices**
  
- Pourquoi utiliser un LINAC comme générateur de neutrons ?
  - Augmentation de l'émission neutronique (une à deux décades)
  - Mutualisation des techniques reposant sur un LINAC (IPA/INA/IHE)

## □ Double interrogation simultanée neutrons/photons



Travaux de thèse  
de F. Jallu

## □ INA sans contribution photonique



- Thèse A. Sari (2010-2013)
- Faisabilité expérimentale démontrée

- ❑ Contexte et enjeux
- ❑ Bases de l'interrogation photonique active (IPA)
- ❑ Techniques IPA applicables à la caractérisation d'un colis de déchets
- ❑ L'IPA et le couplage des méthodes non destructives
- ❑ **Conclusions et perspectives**

## □ L'Interrogation Photonique Active (IPA)

- Une technique de mesure basée sur la **photofission** et l'utilisation d'un **LINAC**
- Détection des particules retardées (**neutrons retardés/gamma retardés**)
- **Localisation / Identification / Quantification** des actinides via **différentes techniques** de mesure
- **Couplage de l'IPA** avec d'autres techniques de mesure (**imagerie haute énergie**)
- Applicable pour des **colis volumineux et bétonnés** (870 litres, CBFC1, CBFC2)
- Une technique **testée et validée** sur plusieurs **colis de déchets réel**
- Une **technique performante** même avec des **systèmes de détection limités**

## □ Le LINAC à travers les âges



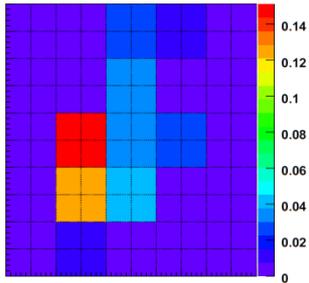
- Born in the 1970's
- Old but beautiful !

- VARIAN CLINAC
- ELEKTA
- ...

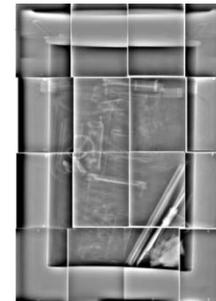
- Le LINAC : un rôle essentiel dans les traitements de **radiothérapie**
- Gain en **compacité, fiabilité et robustesse** : une solution **techniquement et industriellement viable**

IPA

INA



IHE



- **Couplage des méthodes non destructives** au sein d'une **plateforme dédiée à la mesure nucléaire** et construite autour d'un **LINAC**
- **Optimisation de la caractérisation du colis / réduction des coûts**

**MERCI DE VOTRE ATTENTION**