

Le couplage des mesures nucléaires

Exemple d'application à la caractérisation de colis de déchets radioactifs bitumineux

bertrand.perot@cea.fr

Laboratoire de Mesures Nucléaires, CEA Cadarache



Plan de l'exposé



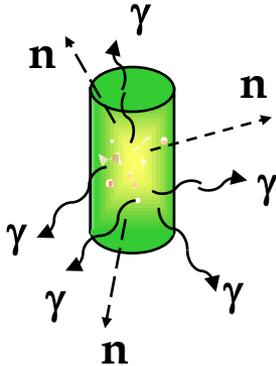
- **La caractérisation des déchets radioactifs**
- **L'approche « boîte noire »
ou pourquoi combiner des mesures ?**
- **Application aux colis d'enrobés bitumineux**
 - ✓ **Poste d'imagerie gamma**
 - ✓ **Poste de spectrométrie gamma**
 - ✓ **Poste de mesures neutroniques**
- **Combinaison des résultats**
- **Perspectives autres applications et méthodes de mesure**

- **Objectif** ⇒ **gestion optimale des déchets radioactifs**
 - ✓ Contrôle de procédé, qualité des déchets produits
 - ✓ Orientation vers la filière de gestion appropriée
 - ✓ Optimisation des entreposages et stockages

- Mesures destructives Vs. **mesures non destructives**
 - ✓ Analyses radiochimiques sur des prélèvements
 - ☺ Sensibilité : faible atténuation des rayonnements
 - ☹ Représentativité de l'échantillonnage (déchets hétérogènes)

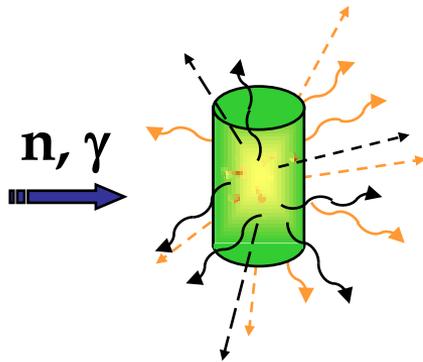
 - ✓ **Spectrométrie gamma, imagerie, mesures neutroniques**
 - ☺ Rapidité, faible coût, absence de déchets secondaires, représentativité (mesure colis entier + grand nombre de colis)
 - ☹ Sensibilité et effets de matrice (atténuation des rayonnements)

Les mesures nucléaires non destructives



- **Les mesures passives**

- **photoniques** \Rightarrow débit de dose, spectrométrie gamma, tomographie d'émission gamma
- **neutroniques** \Rightarrow comptage total, comptage des coïncidences et des multiplicités neutroniques



- **Les mesures actives**

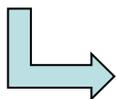
- **imagerie** par transmission photonique ou neutronique
- **interrogation neutronique** \Rightarrow neutrons prompts et retardés de fission, rayonnements gamma par réactions $(n, n'\gamma)$, (n, γ) et activation neutronique (n, p) , (n, α) ...
- **interrogation photonique** \Rightarrow neutrons et rayonnements gamma retardés de photofission, rayonnements gamma d'activation photonique

- **Caractéristiques très variées**

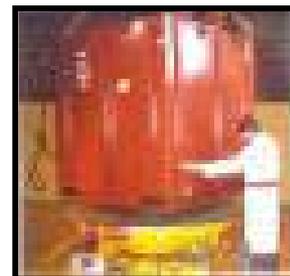
- Conteneurs et protections biologiques
- Nature physico-chimique
- Volume
- Densité
- Niveau d'activité
- Spectre isotopique
- Localisation des radioéléments

- **Connaissance souvent incomplète**

- Perte d'information pour les colis anciens
- Fluctuations et maîtrise des procédés
- Mélanges (déchets technologiques en vrac)



Approche « boîte noire » = tirer un maximum d'informations des mesures



Historique du programme CODEM

- 1959 : production de plutonium militaire
- 1976 : retraitement de combustible civil
- 1993 : arrêt de la production militaire
- 1997 : arrêt du retraitement



Démantèlement d'UP1
et des ateliers associés



GIE CODEM : assainissement et démantèlement

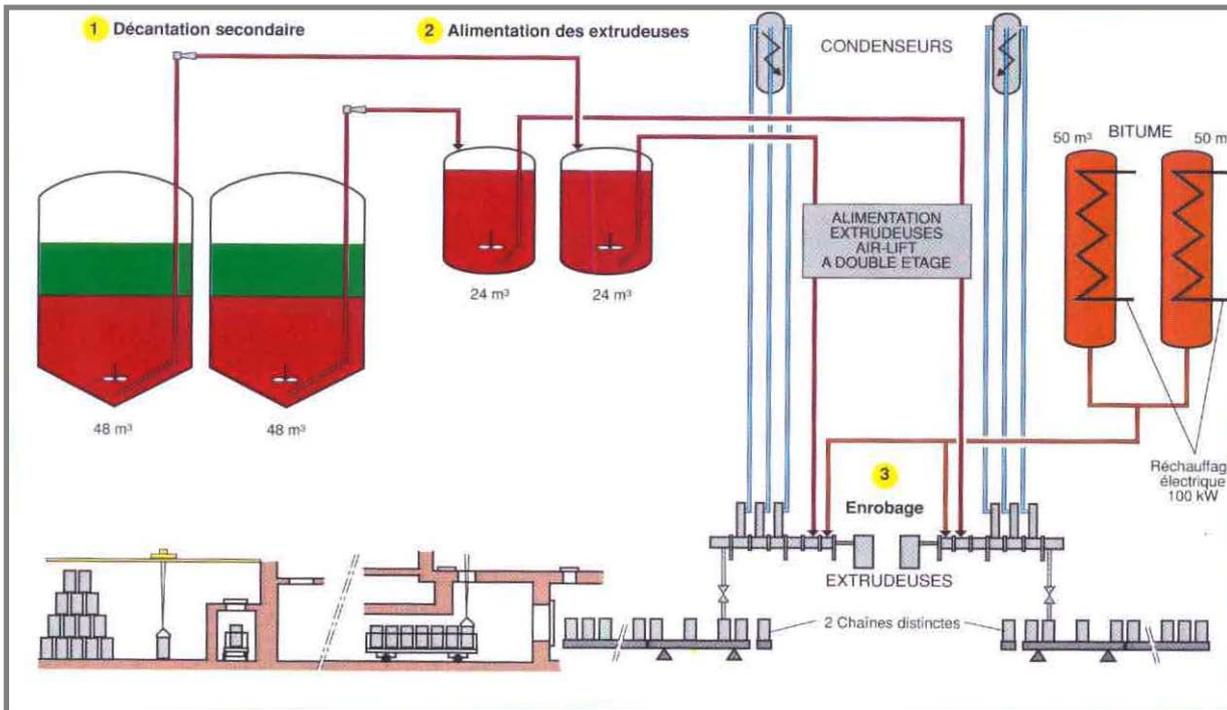
Programmes

- MAD : mise à l'arrêt définitif
- DEM : démantèlement
- RCD : reprise et conditionnement des déchets (magnésium, graphite, bitume)



Le traitement des effluents liquides et l'enrobage

Procédé d'enrobage des sels radioactifs dans du bitume



(source COGEMA)

Station de traitement des effluents liquides (STEL)



(source CODEM)

Hypothèse liée au procédé en coulées successives : **homogénéité radiale** mais **hétérogénéité axiale** (couches superposées)

Le tri sélectif des colis de déchets



Reprise de 60 000 fûts d'enrobé bitumineux



FÛT



Unité de Tri - Mesure



COLIS FINAL

$\beta, \gamma < LMA$

$\alpha < 3,7 \text{ GBq/t}$
soit 10 GBq/fût

NON



Entreposage
intermédiaire (EIP)
à Marcoule



OUI

Possibilité de stockage au
centre de l'Aube (ANDRA)
Coût <<< stockage profond



(source CODEM)



(source ANDRA)

- 1996 : Lancement du programme de R&D
- 1996-1997 : Inventaires, expertises non-destructives et destructives sur une vingtaine de fûts, études de R&D sur les postes de mesure
- 2000 : Réalisation de la maquette échelle 1 SYMETRIC dans CHICADE (CEA Cadarache) + APS de la future installation
- 2001 - 2002 : Validations expérimentales des études de R&D sur la maquette SYMETRIC - Livre de procédé des postes de mesure
- 2003 - 2004 : solution de référence pour l'industrialisation, étude de faisabilité industrielle des postes de mesure, validation expérimentale des derniers développements techniques
- 2004 - 2005 : Etudes détaillées (APD) des postes de mesure
- 2006 : Refus de l'ANDRA d'accepter les fûts d'enrobés bitumineux au centre de stockage en surface de l'Aube et arrêt du projet, mais...

... un bel exemple de combinaison des mesures nucléaires

Conditionnement des colis de déchets

Reprise des
fûts acier de 220 L



Sur-fût EIP
inox de 380 L



Entreposage à Marcoule (EIP)

Conditionnement prévu en
CBFK si stockage en surface :
Colis bétonnés de 5 m³
contenant 4 colis de 400 L

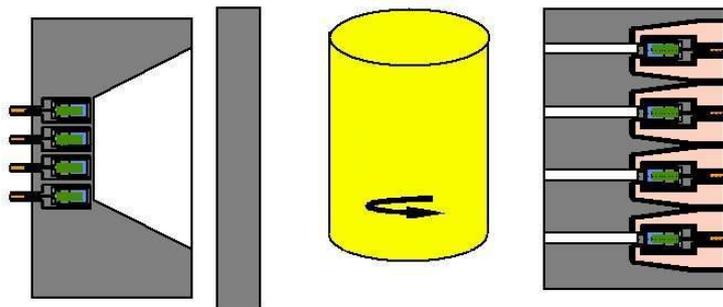


Caractéristiques des colis et objectifs des mesures

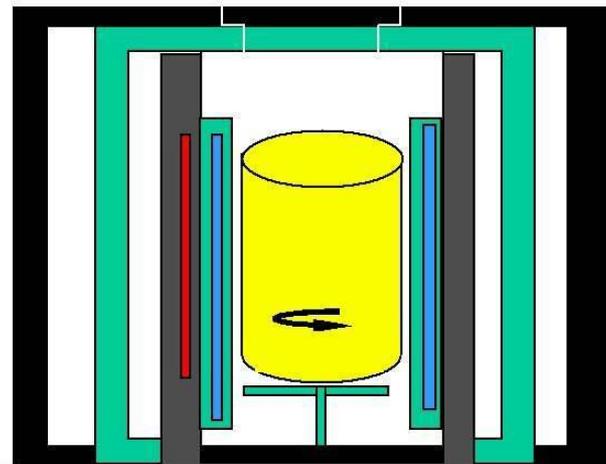
- **Densité** de l'enrobé bitumineux ~ 1 à 1.6, typiquement 1.3
- **Hauteur et forme remplissage** variables
- **Débit de dose** de ~ 0 à 0.3 Gy/h (850 GBq ^{137}Cs)
- **Hétérogénéité axiale** physique et radiologique
- **Homogénéité radiale** (couches d'enrobé superposées)
- Fûts anciens \Rightarrow connaissance peu précise
 - **Ratios d'activité** entre radioéléments (« spectre type »)
 - **Composition chimique** de la matrice (variations de procédé)
- **20 minutes de mesure** maximum (60 000 fûts à caractériser)
- **Inventaire radiologique à établir**
 - Contributions à déterminer pour l'activité alpha à 300 ans, principal critère pour le stockage en surface
 - ✓ ^{239}Pu = jusqu'à 80 %
 - ✓ ^{240}Pu = jusqu'à 20 %
 - ✓ ^{241}Pu = jusqu'à 50 %
 - ✓ ^{241}Am = jusqu'à 80 %
 - Stockage surface : 3,7 GBq/tonne maximum
 - CBFK de 5 m³ et d > 2 \Rightarrow plus de 10 t et 4 fûts / CBFK
 - 10 GBq α / fût maximum**
- Radioéléments émetteurs bêta-gamma mesurables (^{137}Cs , ^{134}Cs , ^{60}Co , ^{106}Ru , ^{144}Ce , ^{154}Eu , ^{125}Sb ...) et les autres (émetteurs bêta purs, RNVL... \Rightarrow ratios)



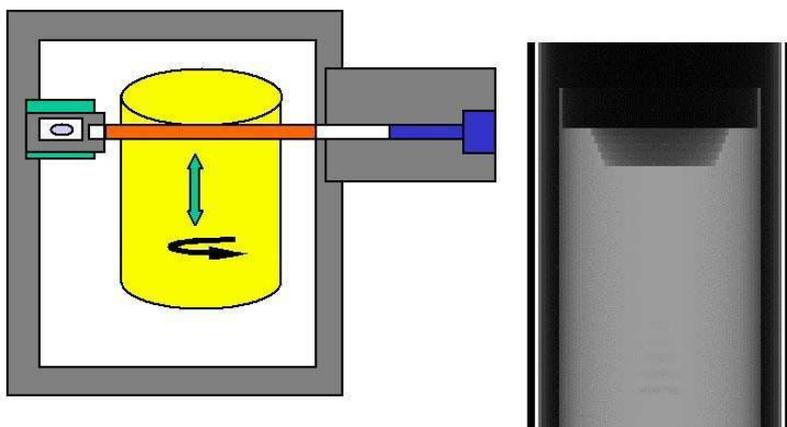
CELLULE DE SPECTROMÉTRIE GAMMA



CELLULE DE MESURES NEUTRONIQUES



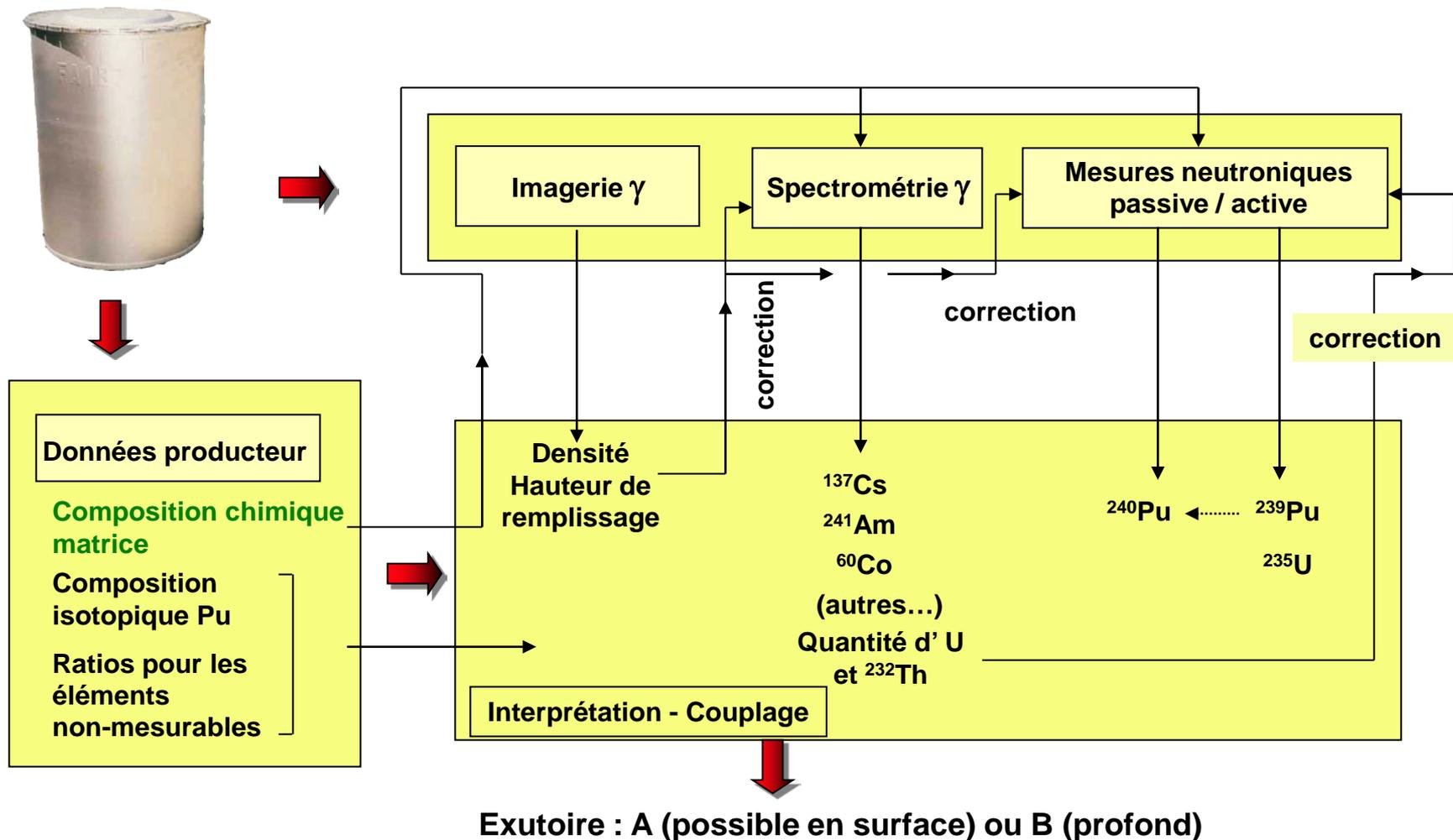
IMAGERIE ACTIVE BASSE RÉOLUTION

Couplage des données
LICORNES

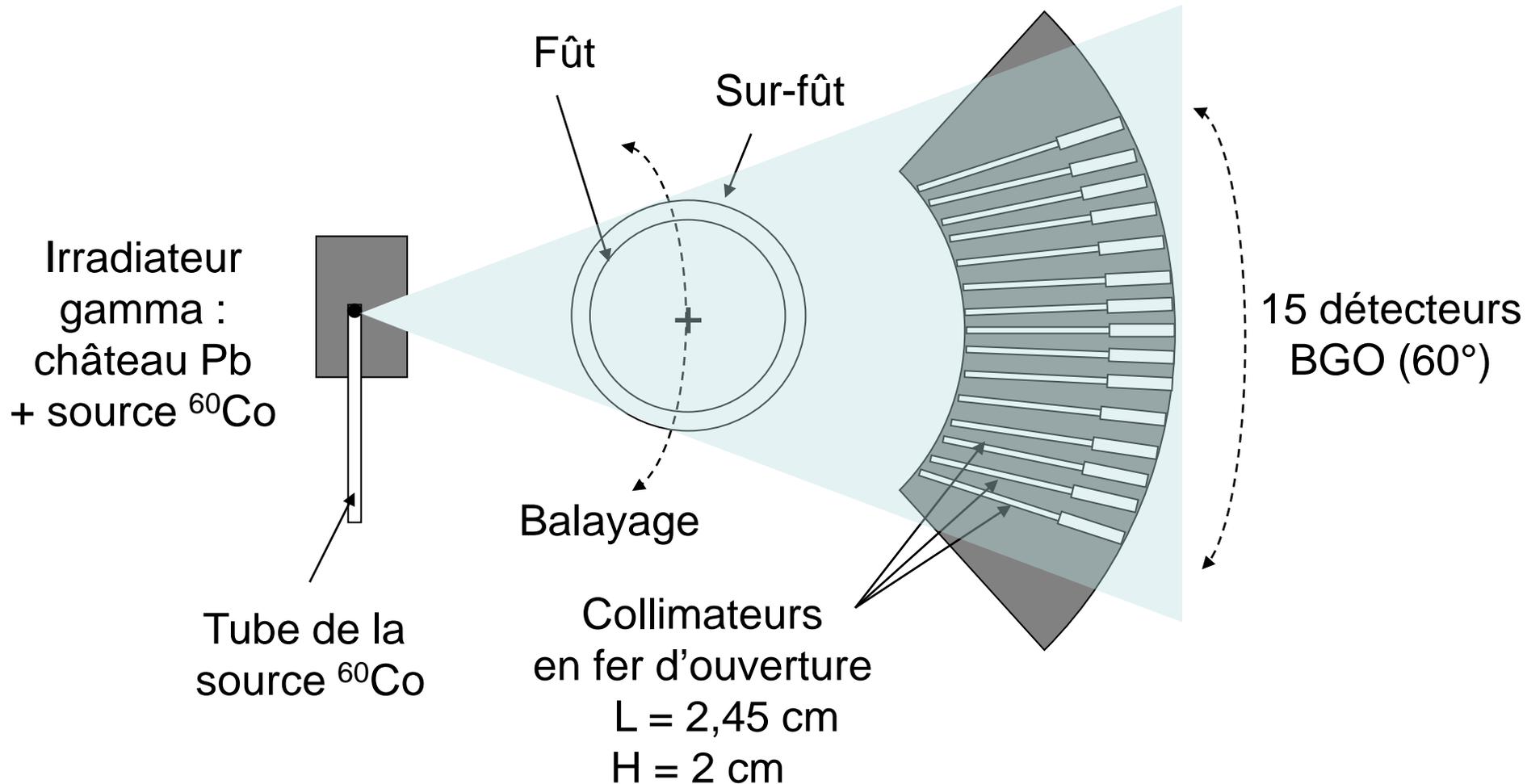
DONNÉES PRODUCTEURS

Ratios RN non mesurables / mesurables
Composition isotopique PuActivité α, β Stockage
Surface
C.AEntreposage
E.I.P

Combinaison des informations *a priori* et mesurées



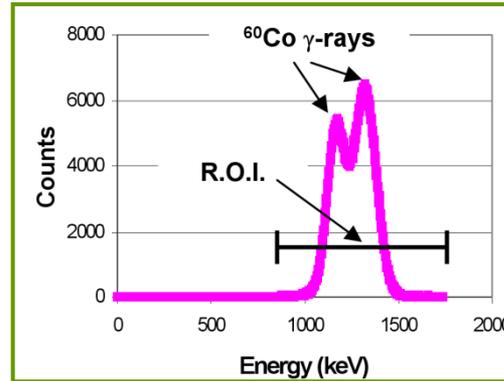
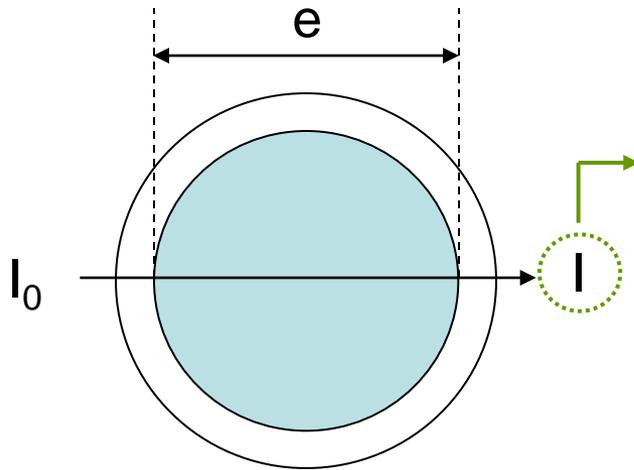
Poste d'imagerie gamma au ^{60}Co



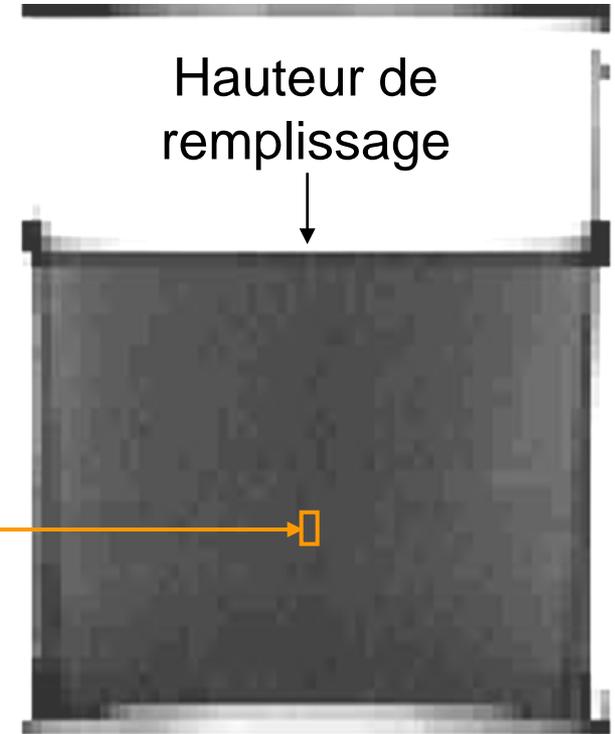
Le poste d'imagerie de la maquette SYMETRIC



Construction de l'image radiographique d'un colis



$$\rho = \frac{\ln\left(\frac{I_0}{I/(k_1 \times k_2)}\right)}{\frac{\mu}{\rho} \times e}$$



k_1 & k_2 = facteurs d'atténuation du fût et du sur-fût

μ/ρ = facteur d'atténuation massique de l'enrobé bitumineux (en cm^2/g)

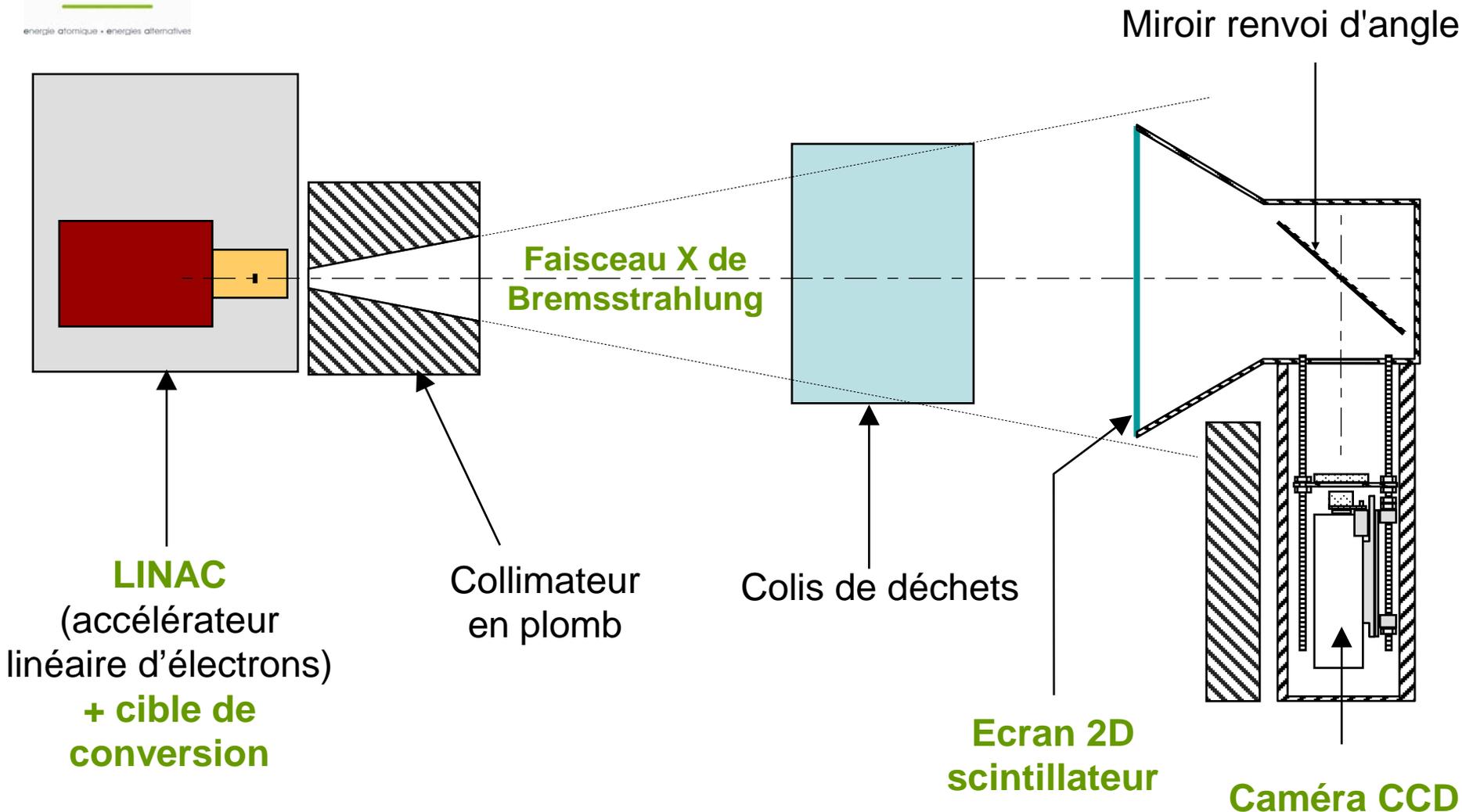
Pixels = densité

L = 1 cm × H = 2 cm

10 minutes de mesure

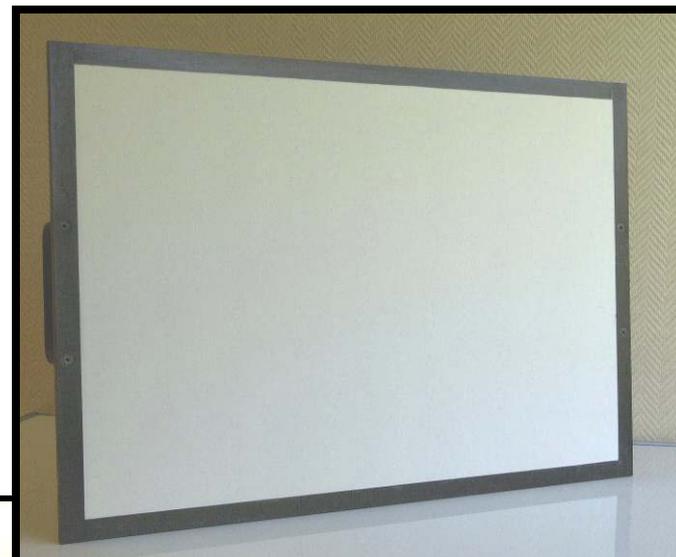
(+ mesure 10 min sans ^{60}Co)

Si c'était à refaire : l'imagerie haute énergie





LINAC (8 MeV)

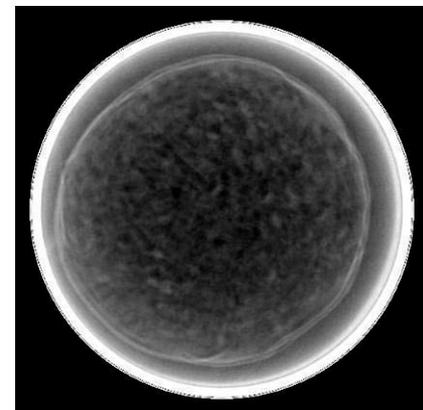
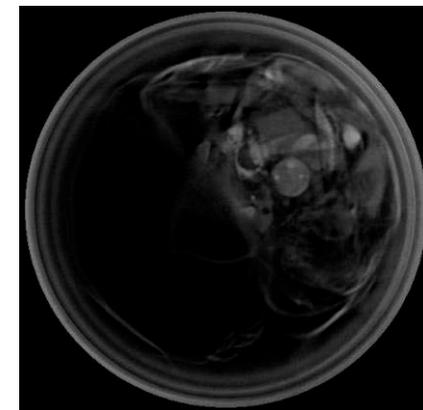
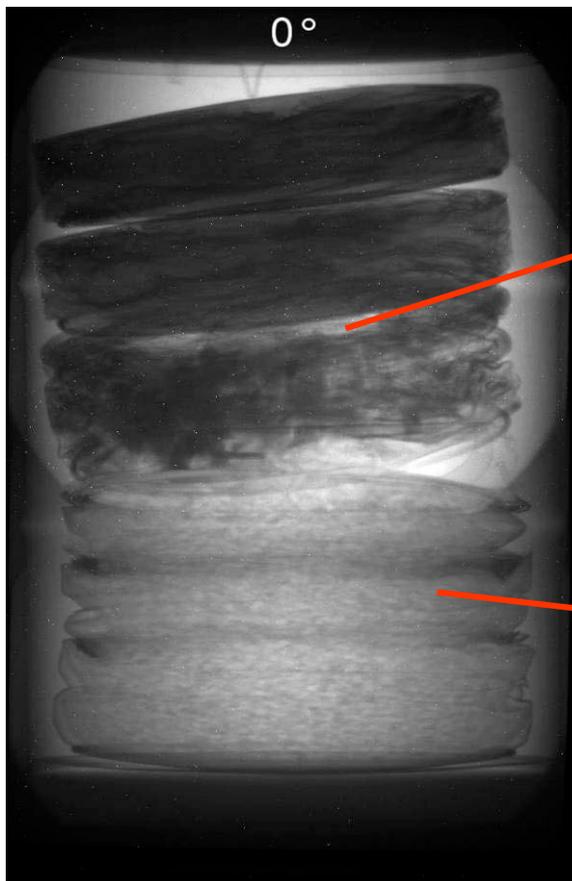
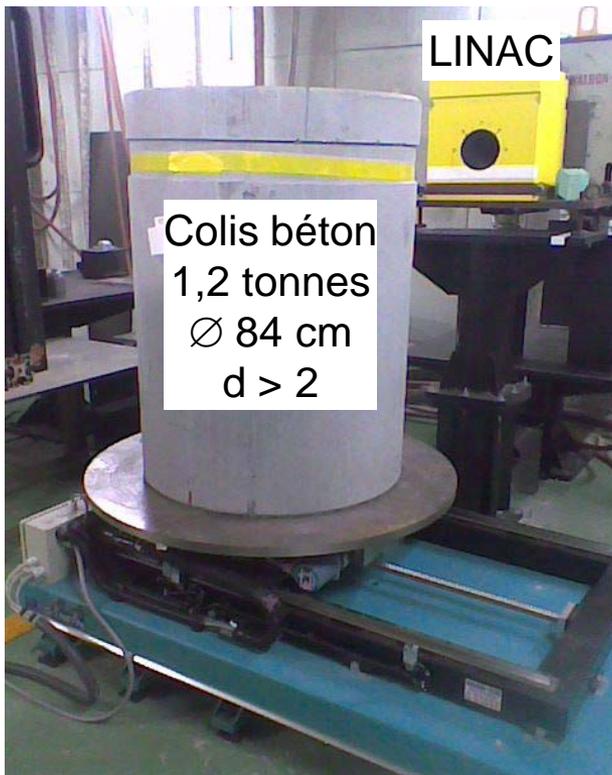


Écran scintillateur
800 x 600 mm

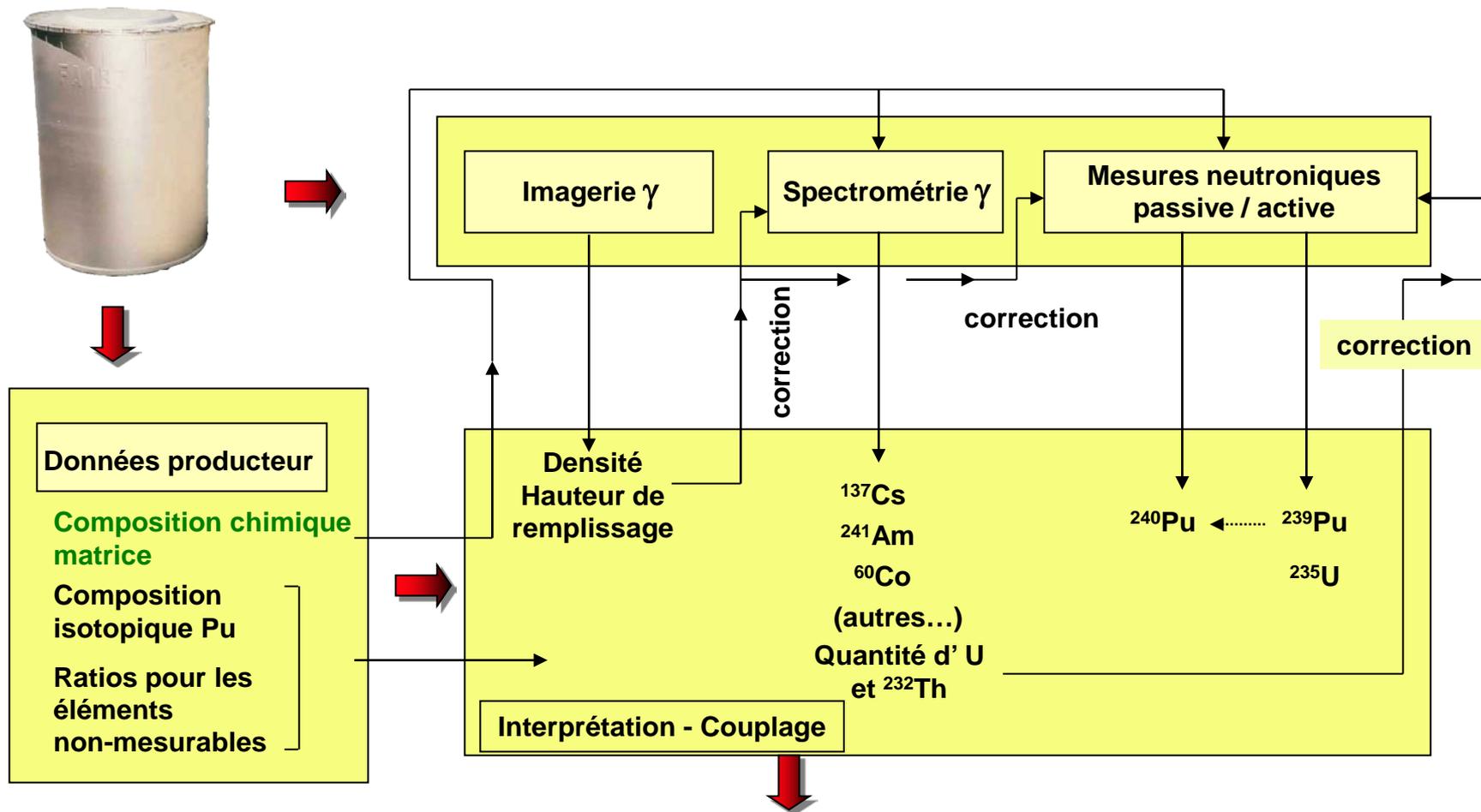
Ensemble de
détection
grand champ



- **Contraintes fortes** d'atténuation et irradiation des colis (≠ médical et CND)
- **Temps d'exposition < 1 seconde** par radiographie



Synoptique d'interprétation des mesures



Exutoire : A (possible en surface) ou B (profond)

La spectrométrie gamma : des objectifs multiples

- ^{241}Am : raie gamma à 59,5 keV
- ^{137}Cs : majeure partie de l'activité, raie gamma à 661,7 keV
- ^{134}Cs , ^{60}Co , ^{106}Ru , ^{144}Ce , ^{154}Eu , ^{125}Sb ... la plupart $E_\gamma > 661,7 \text{ keV}$
- Uranium et thorium par auto-fluorescence X (~ 100 keV)



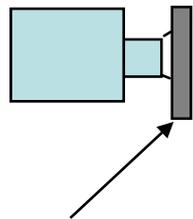
Deux ensembles de mesure



Poste « haute énergie »

⇒ ^{137}Cs , ^{134}Cs , ^{60}Co , ^{106}Ru ,
 ^{144}Ce , ^{154}Eu , ^{125}Sb ...

1 Ge HP
d'efficacité
relative
100%

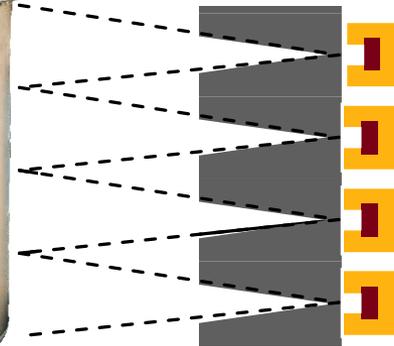


Ecran en plomb d'épaisseur adaptée au niveau d'irradiation

Poste « basse énergie »

⇒ ^{241}Am , U et Th (raies X)

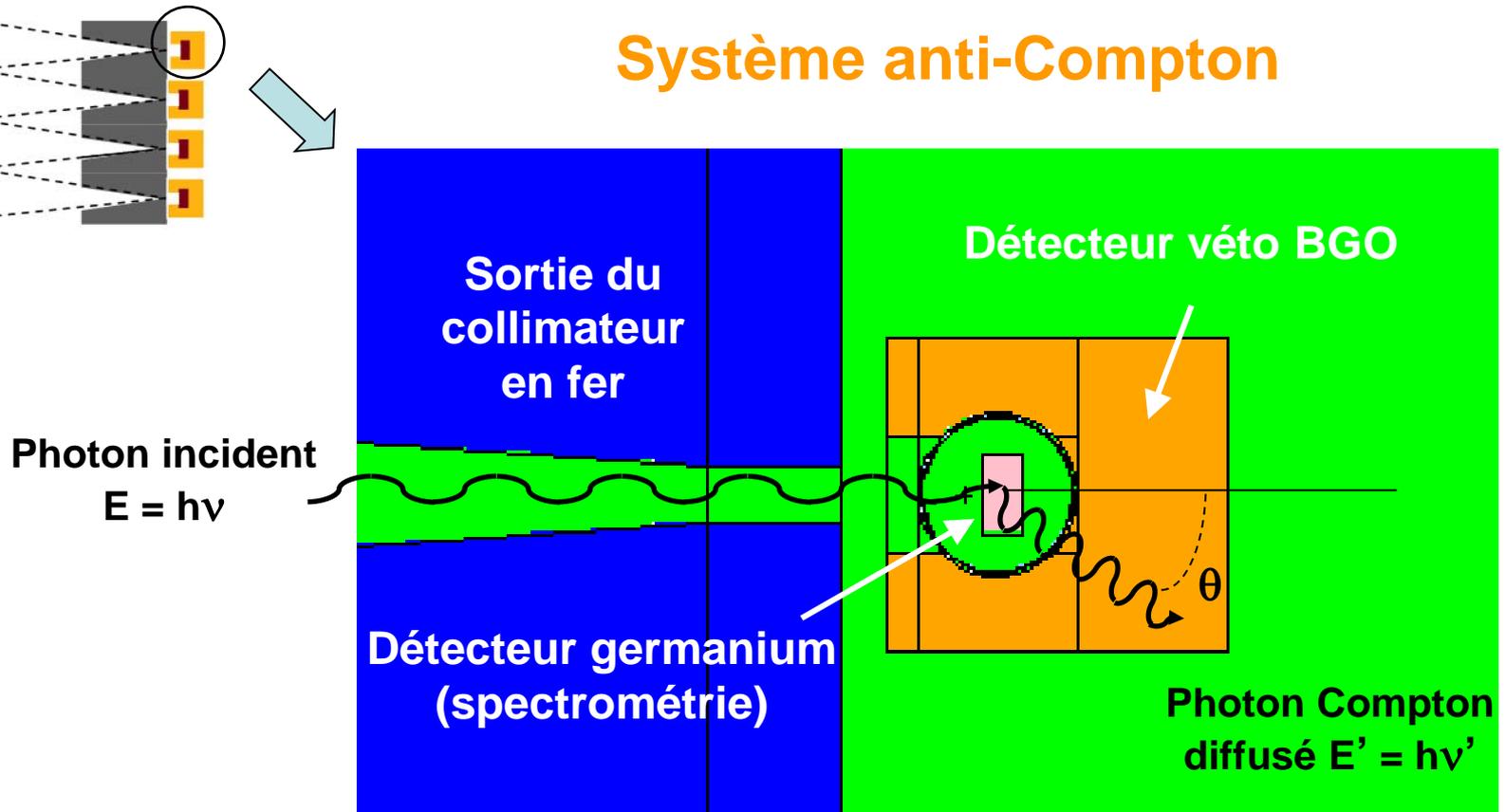
4 systèmes
anti-Compton



Collimateurs en fer d'ouverture adaptée au niveau d'irradiation



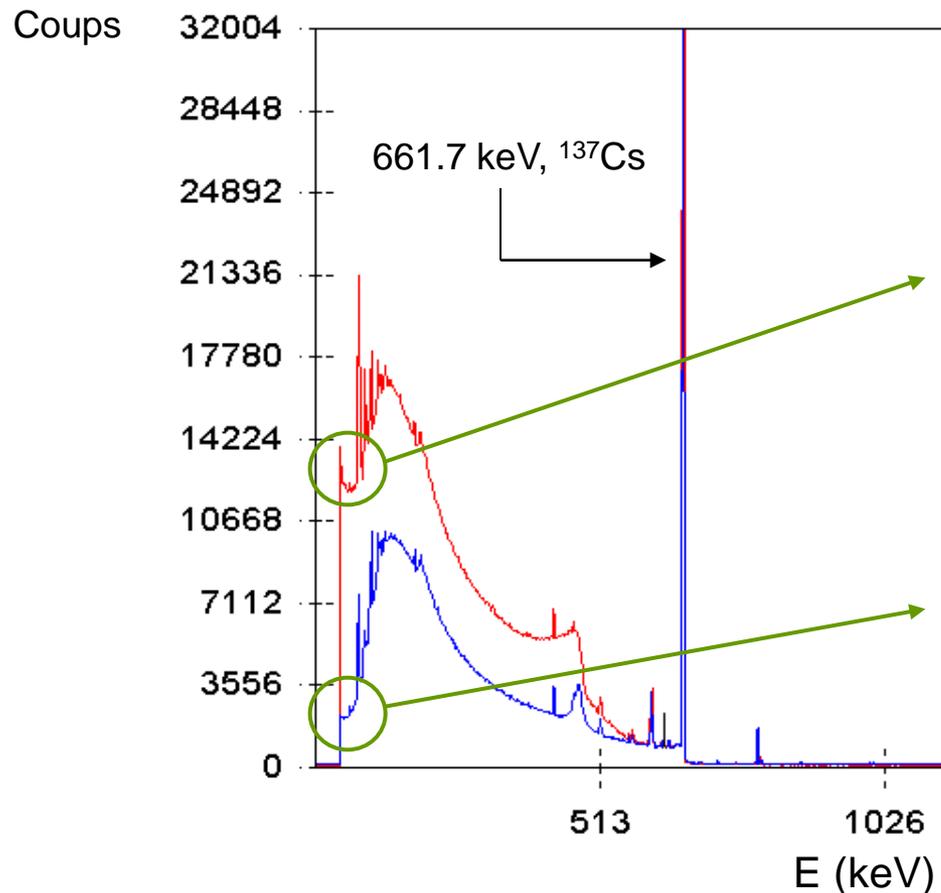
Système anti-Compton



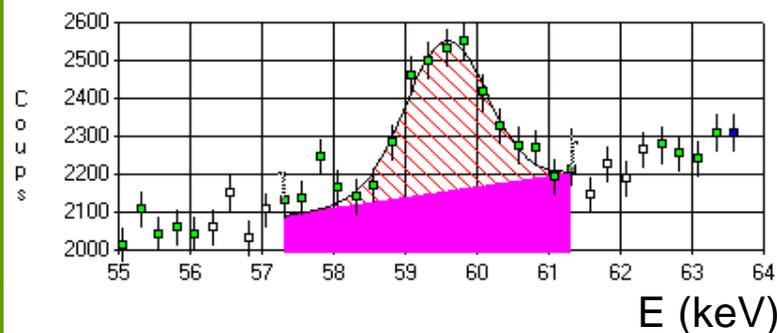
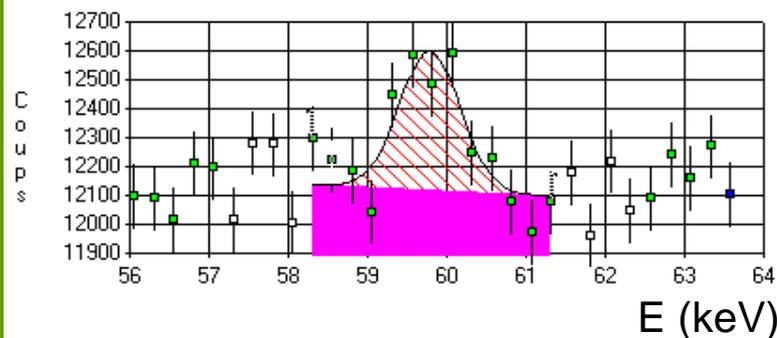
$$hv' = \frac{hv}{1 + \frac{hv}{m_0 c^2} (1 - \cos \theta)}$$

Apport de l'anti-Compton

- Spectre **sans** suppression
- Spectre **avec** suppression



Détection de la raie 59.5 keV de ^{241}Am en 20 minutes
⇒ Limite de détection ~ 1 GBq



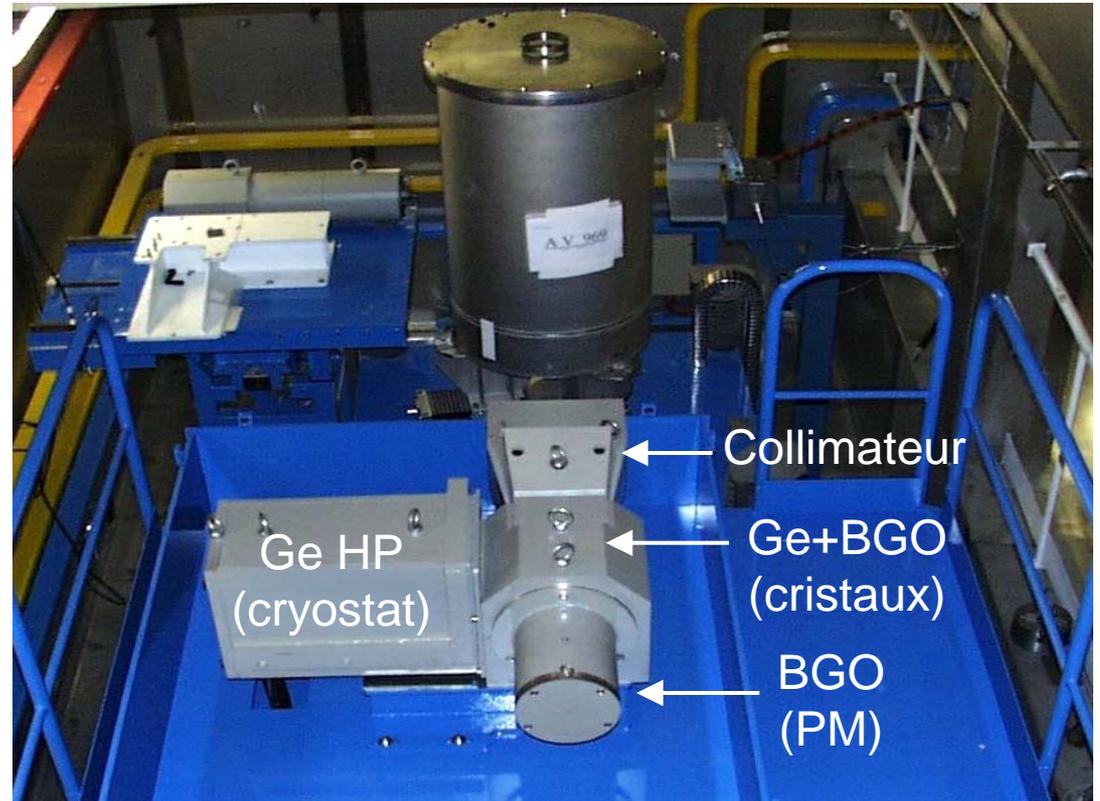
Maquette SYMETRIC : poste anti-Compton



- Détecteur Ge HP
- Détecteur BGO
- Fenêtre d'entrée des photons

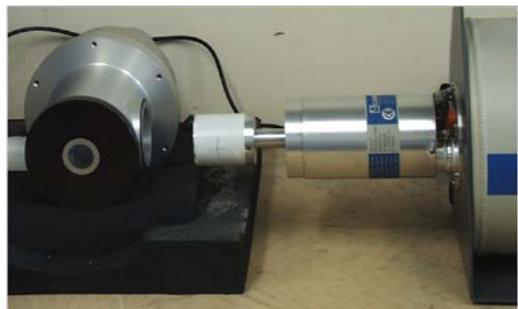


Intégration
dans le blindage
et collimateur



- Collimateur
- Ge+ BGO (cristaux)
- BGO (PM)
- Ge HP (cryostat)

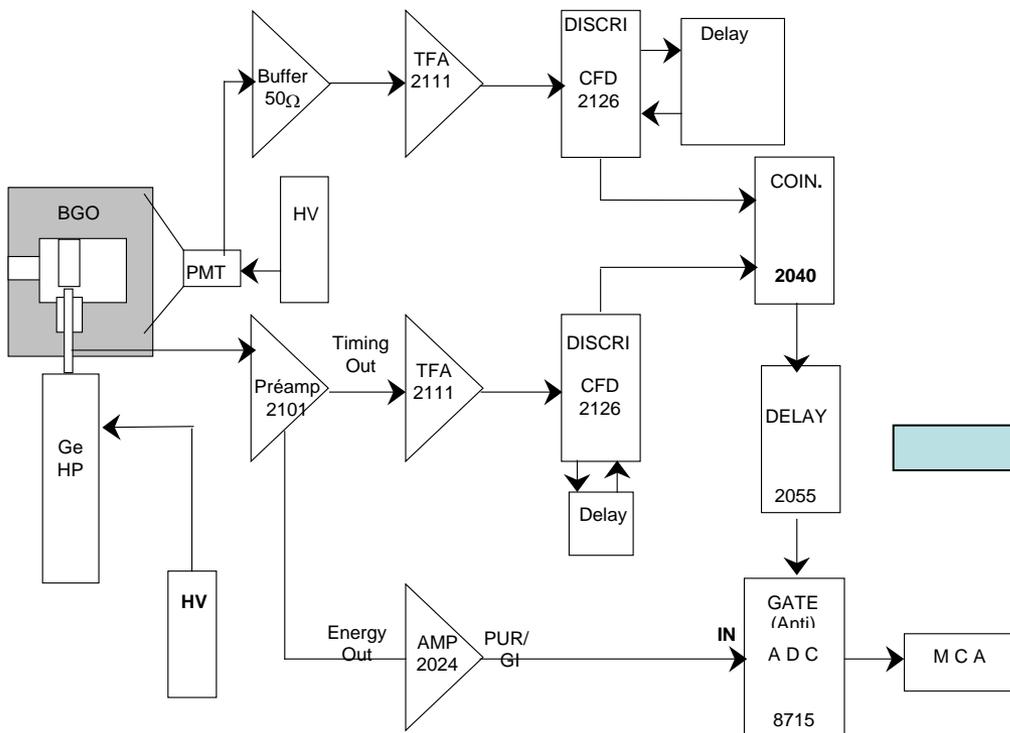
Si c'était à refaire : électronique numérique sans AC



Ge HP sans anti-Compton
(exploitation industrielle complexe)

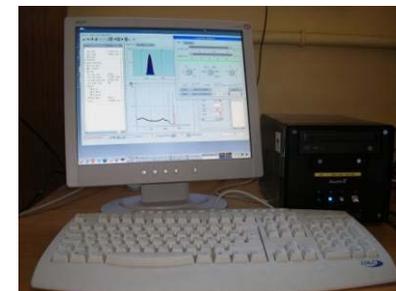


Ge HP



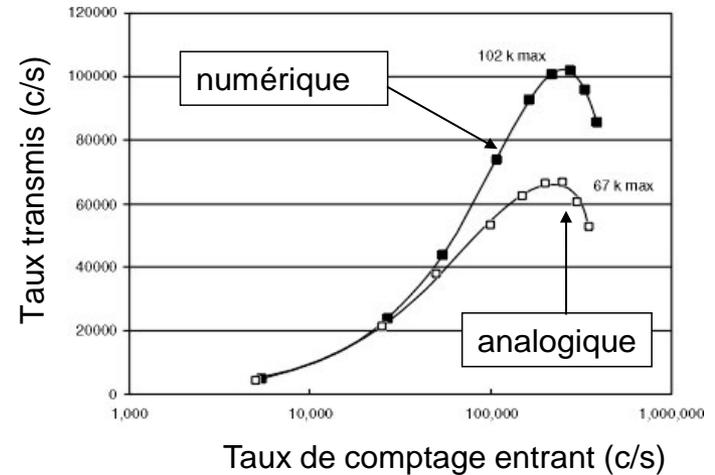
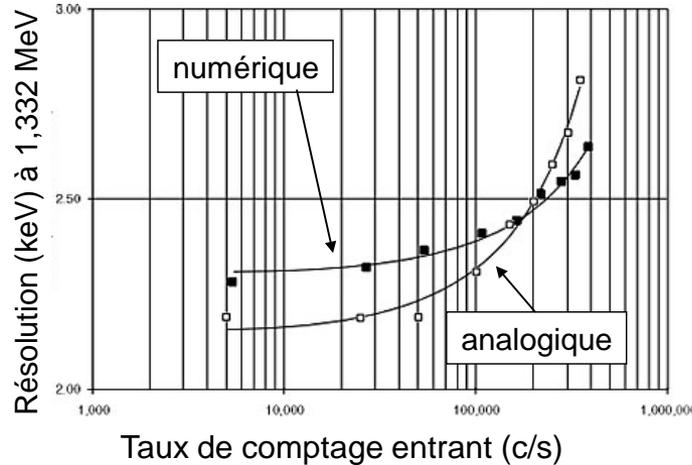
Electronique numérique

Du commerce... ou ADONIS (CEA)

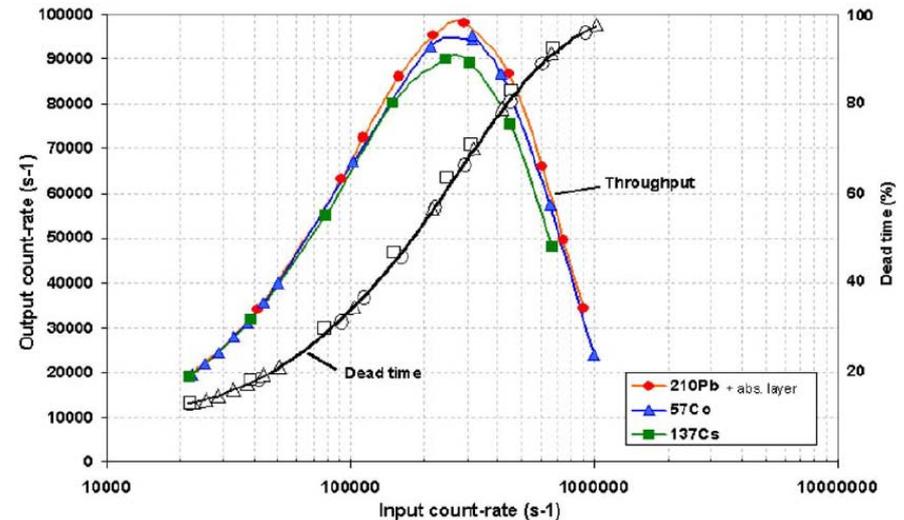
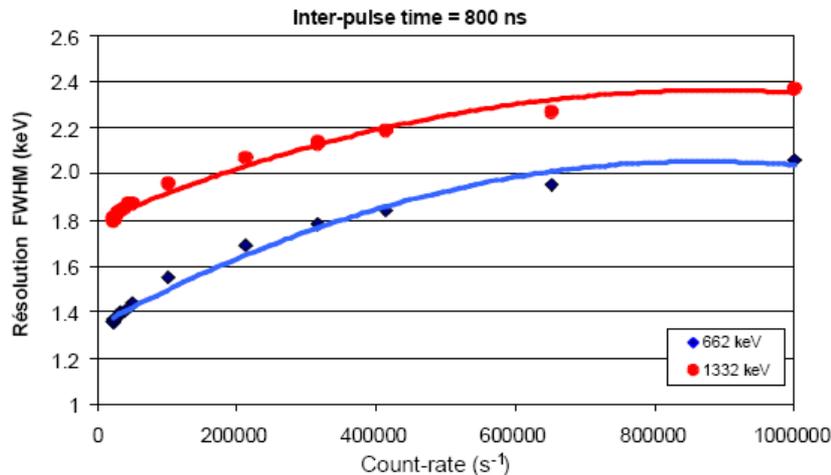


Apport de l'électronique numérique

• Electroniques analogique vs. numérique du commerce

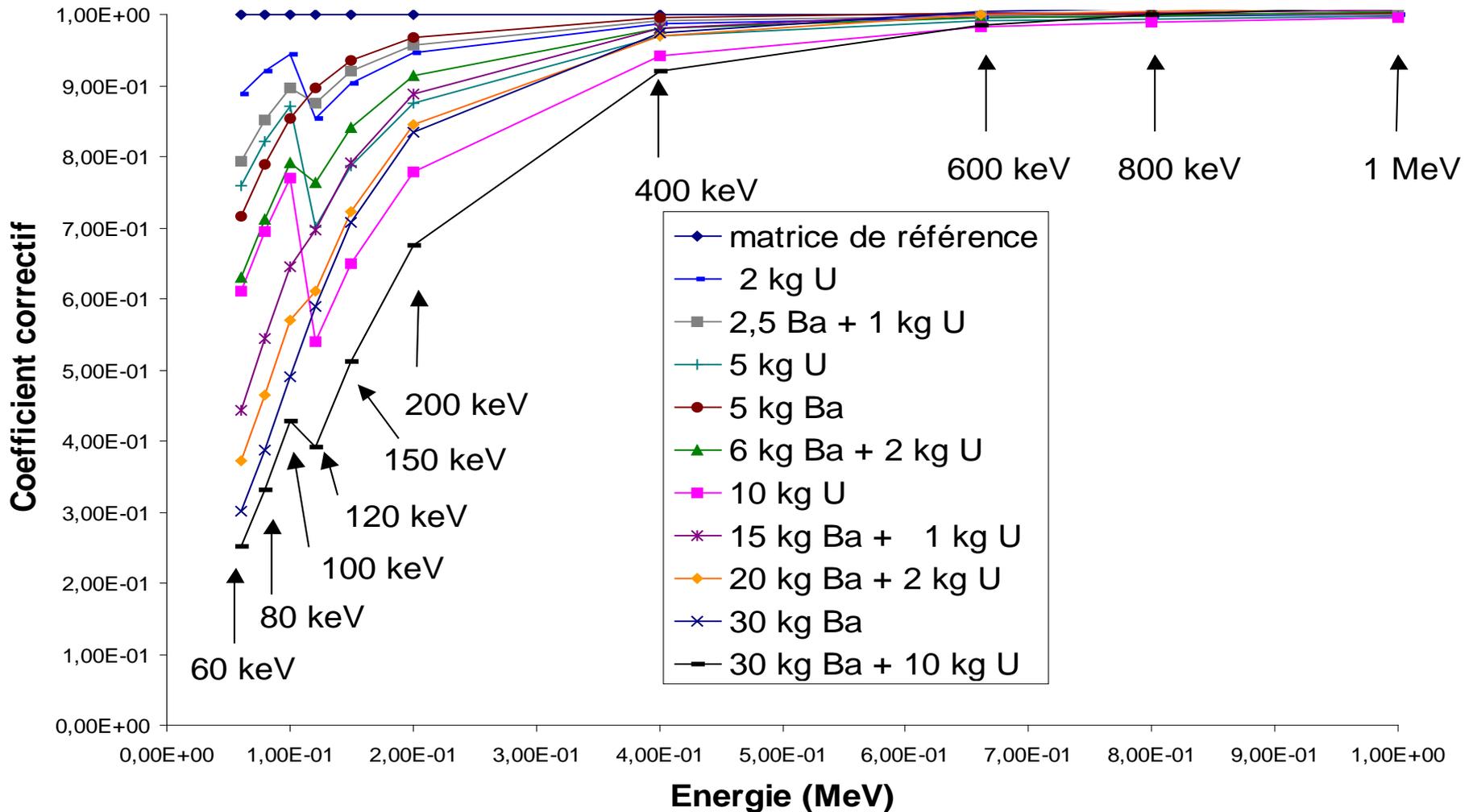


• Système ADONIS (CEA)

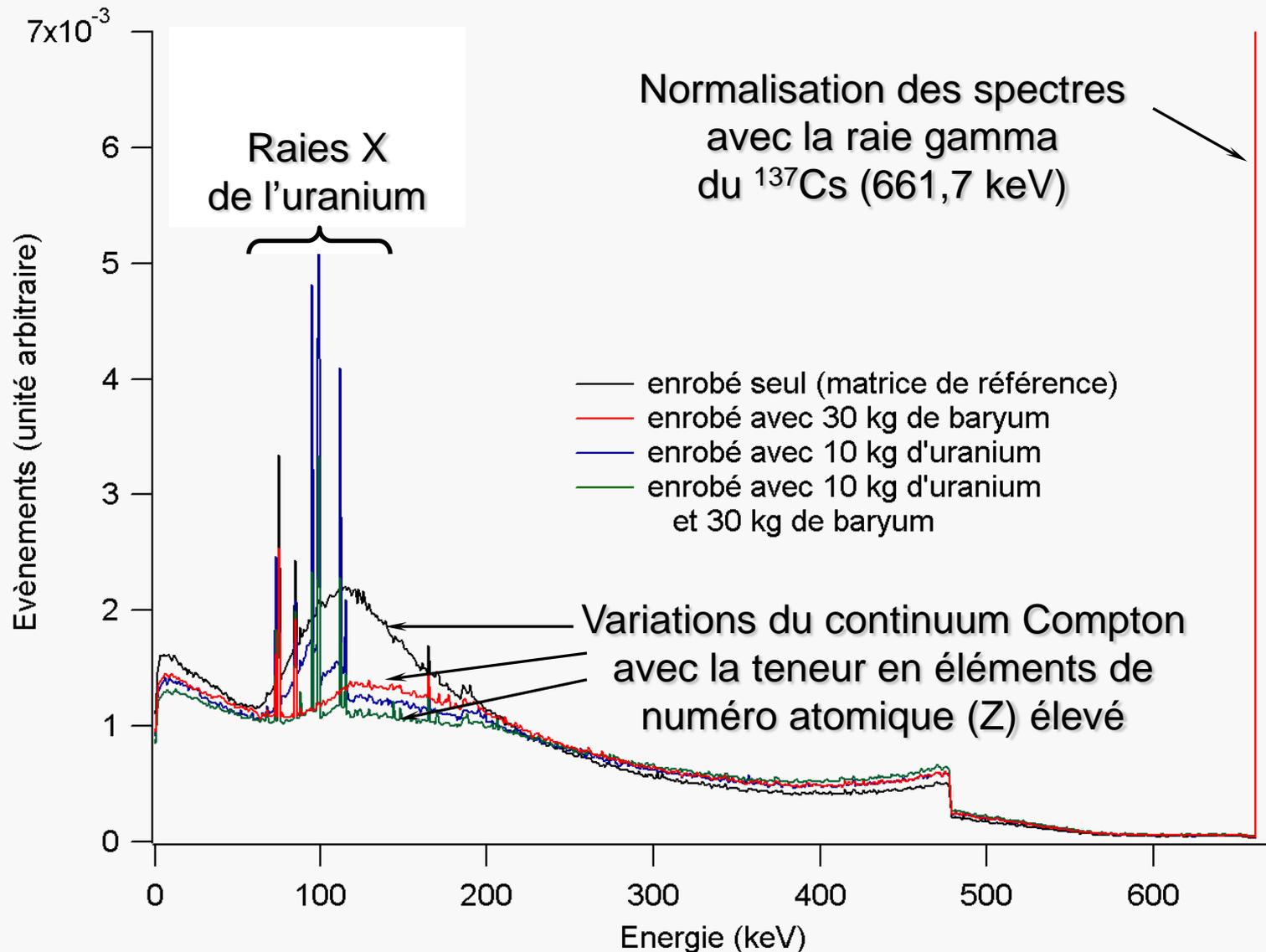


Mesure ^{241}Am : nécessité d'une correction d'atténuation

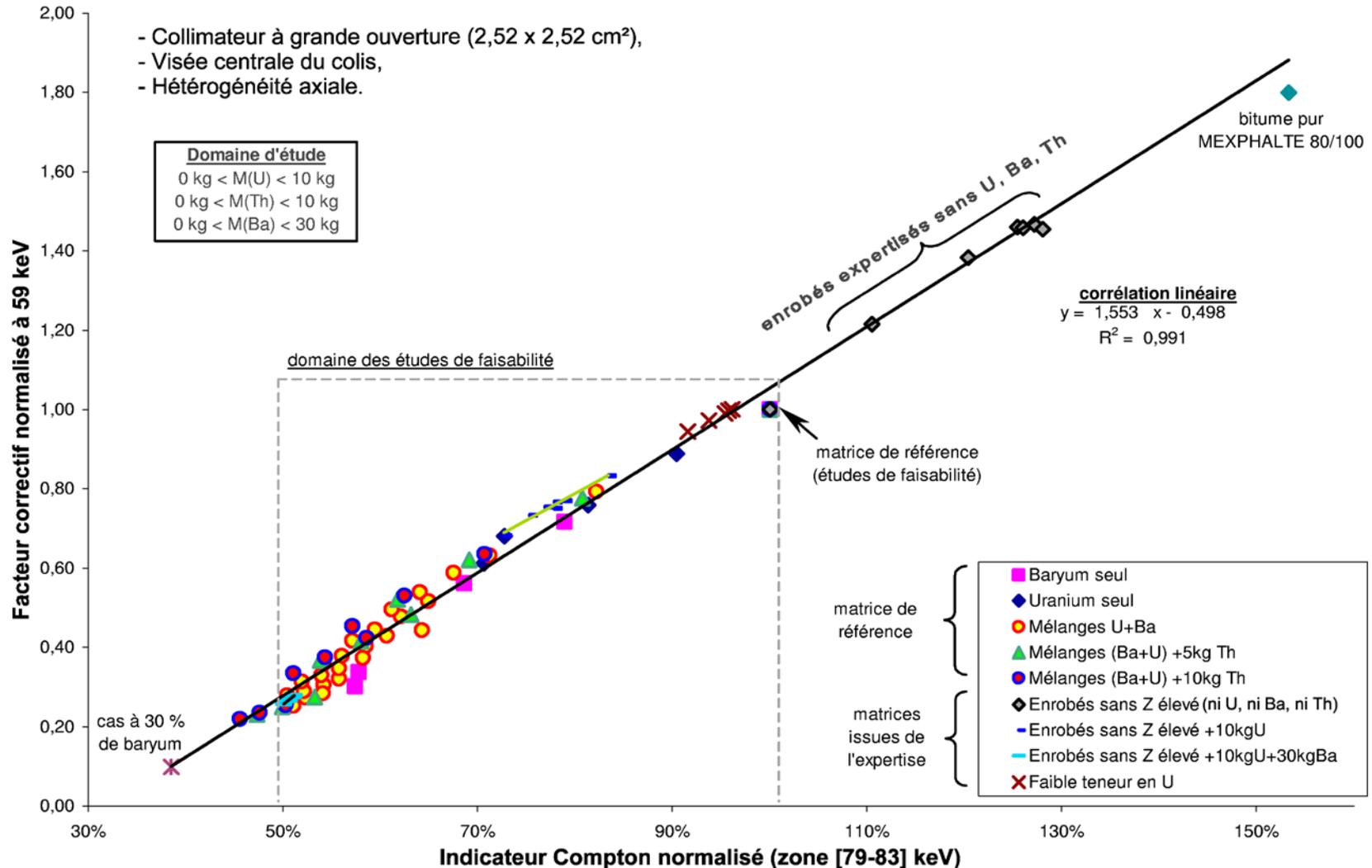
Atténuation en fonction de la masse d'éléments lourds dans l'enrobé bitumineux \Rightarrow effet très important à 59,5 keV (raie ^{241}Am)



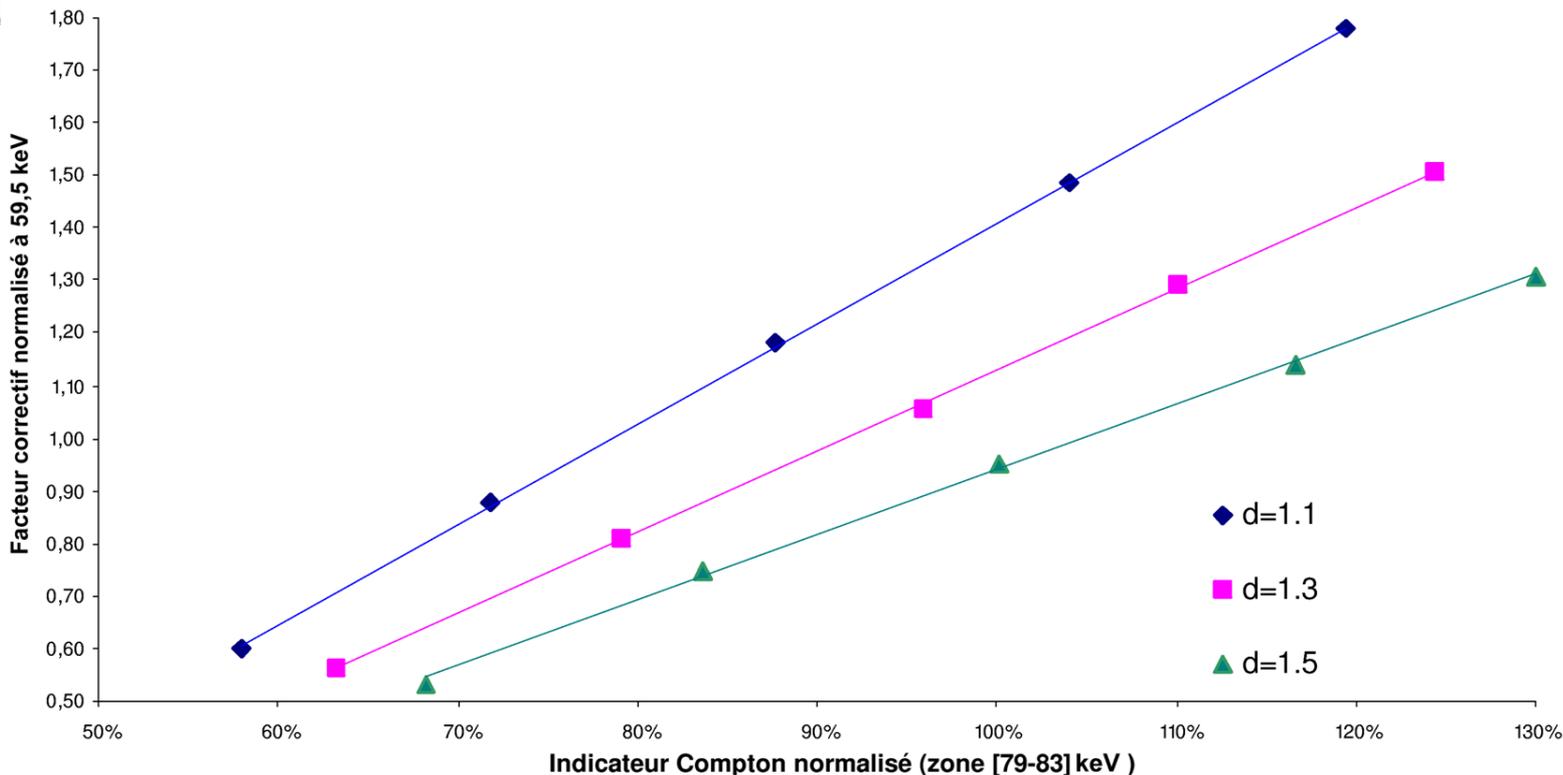
Correction basée sur le continuum Compton à basse énergie



Atténuation 59,5 keV Vs. Compton (80keV) / pic (661,7 keV)



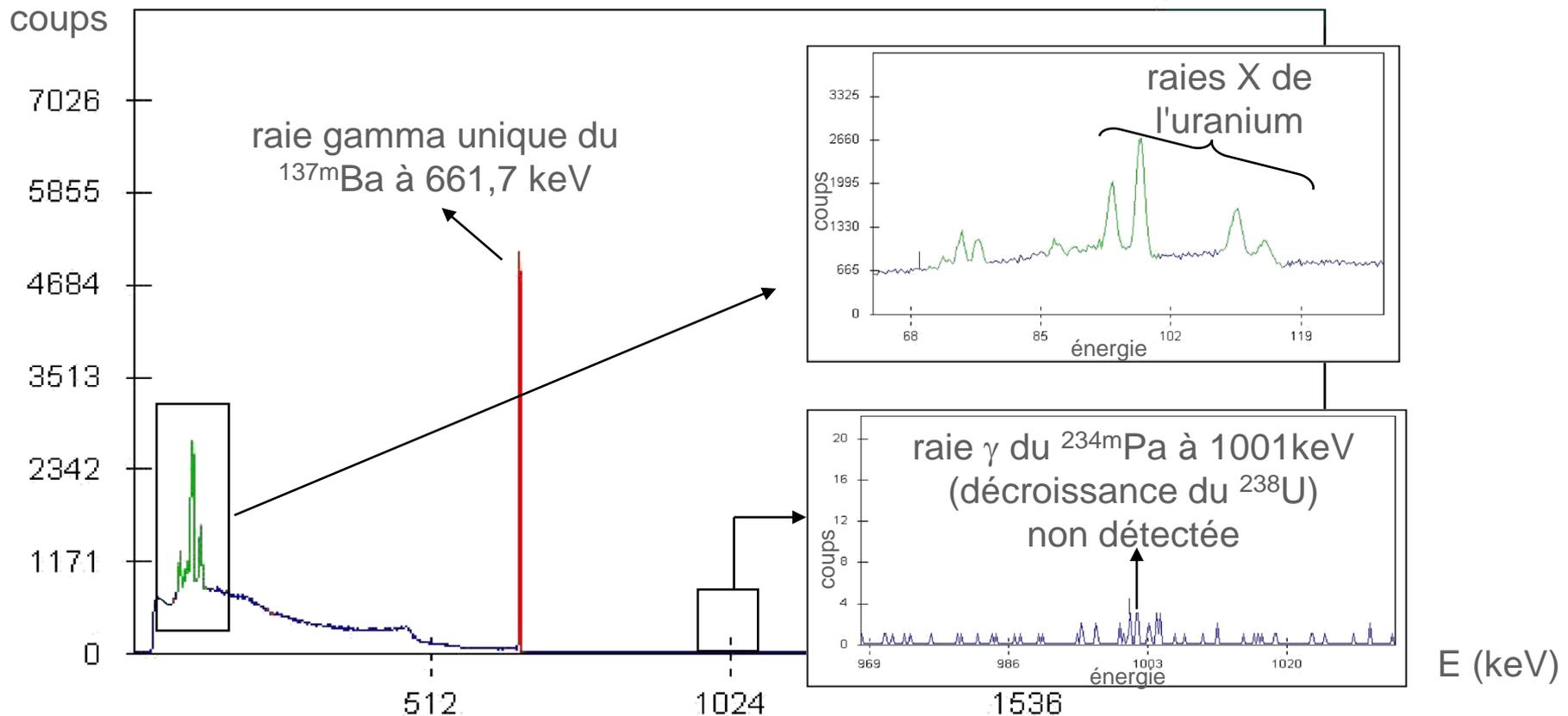
Effet de la densité + application à des colis réels



Fûts réels	N° 1	N° 2	N° 3
Écart relatif entre l'atténuation photonique à 60 keV - mesurée grâce à l'indicateur Compton sur pic - calculée en connaissant la composition chimique	+ 24 %	+ 26 %	- 14 %

Mesure de l'U et du Th par auto-fluorescence X

Sensibilité par rapport à la spectrométrie gamma

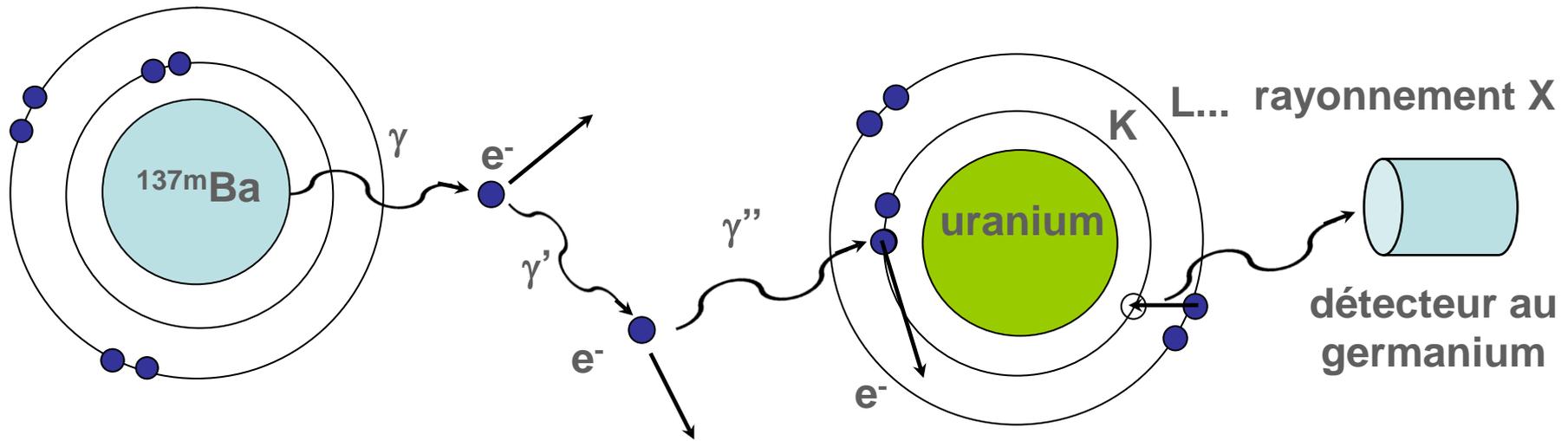


Limite de détection en 20 min de mesure :
 raie γ (1001 keV) \Rightarrow ~ 10 kg
 raie X (98 keV) \Rightarrow < 1 kg

Principe de l'auto-fluorescence X

^{137}Cs β^-
 $^{137\text{m}}\text{Ba}$ 661,7 keV
 émission γ

Absorption photoélectrique -
 Émission de rayonnements X



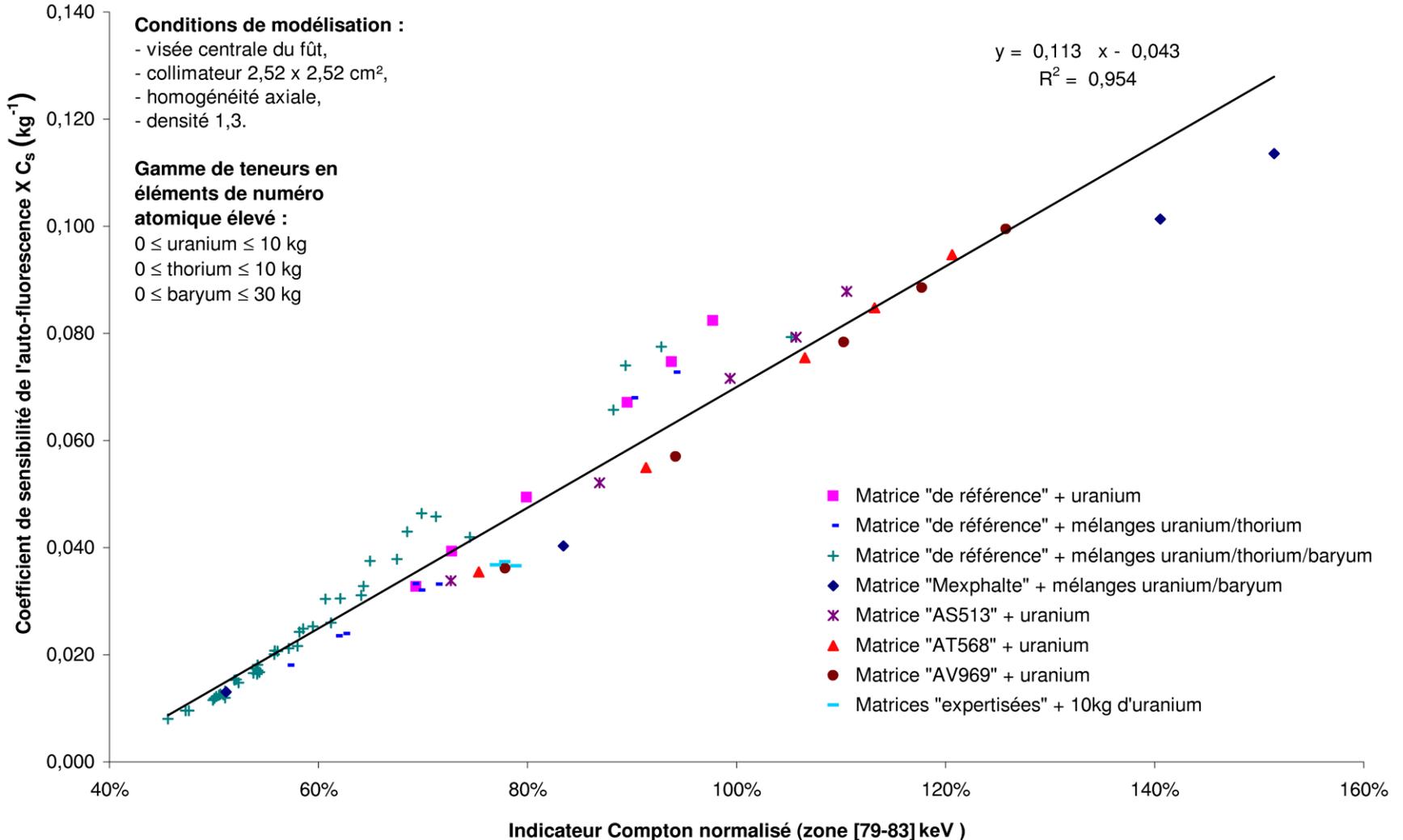
Diffusions Compton dans
 l'enrobé bitumineux

IRRADIATION

FLUORESCENCE

DETECTION DES X

Correction de sensibilité fluo X avec le ratio Compton / pic



Application à des colis réels

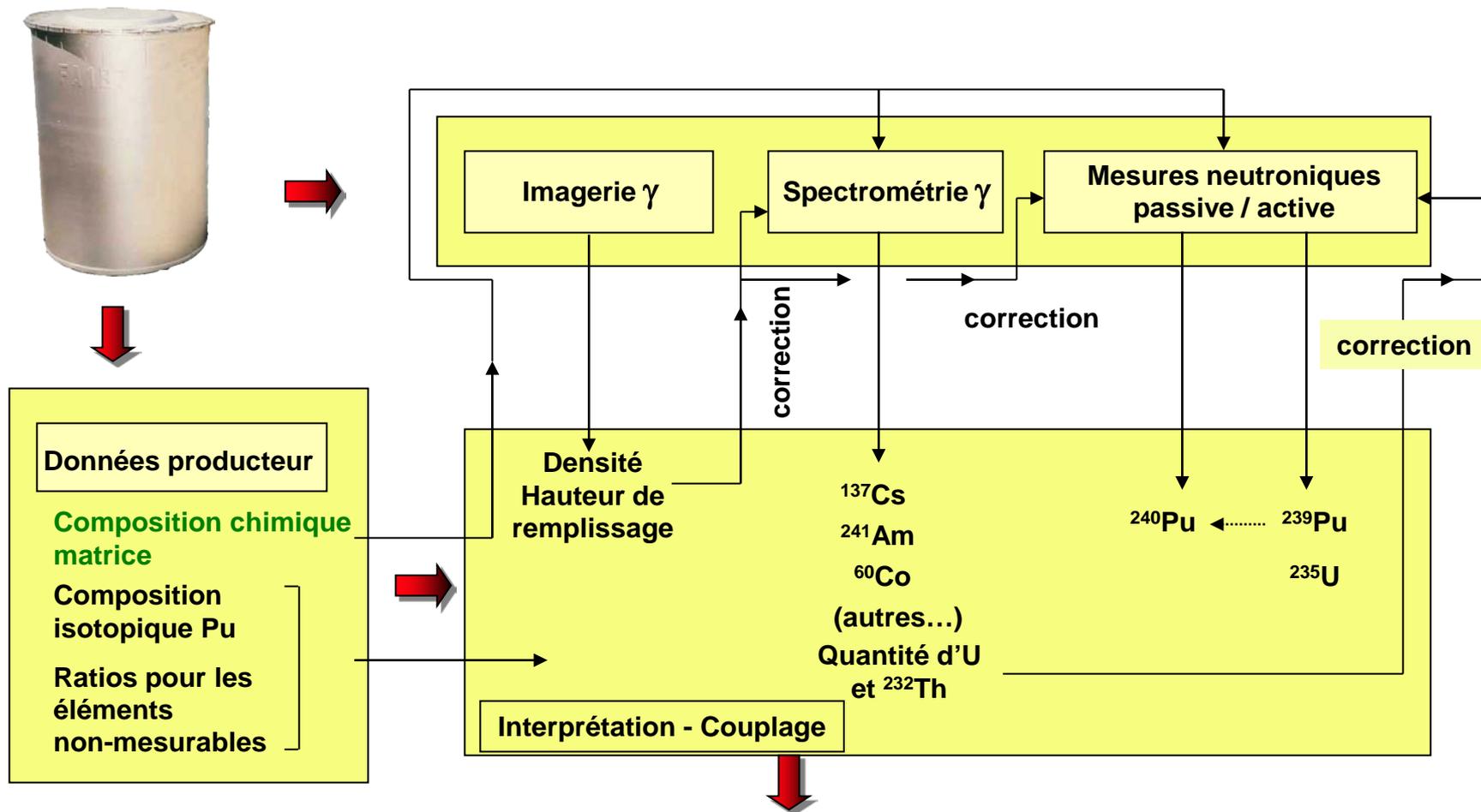
Limites de détection expérimentales en 20 minutes

	N° 1	N° 2	N° 3	N° 4	N° 5
LD (kg)	3,50	7,56	0,84	0,94	0,85
Tranche 4	0,147	0,178	-	-	-
Tranche 3	0,117	0,107	0,064	0,040	0,068
Tranche 2	0,121	0,096	0,070	0,034	0,043
Tranche 1	0,124	0,104	0,082	0,042	0,049
LD fût	<u>0,508</u>	<u>0,484</u>	<u>0,216</u>	<u>0,116</u>	<u>0,161</u>

Masses issues de l'auto-fluorescence X vs. masses de référence

Fût		N° 1	N° 2	N° 3	N° 4	N° 5	
Masse d'uranium de référence (kg) (spectrométrie gamma, analyses radiochimiques)		0,84	3,50	7,56	0,94	0,85	} 20 %
Masse d'uranium en utilisant l'auto-fluorescence X (kg)	Mesure axiale, par tranche	0,77	2,53	5,68	1,04	1,02	
	Mesure globale, fût entier	0,73	2,59	5,54	1,22	1,04	} 50 %

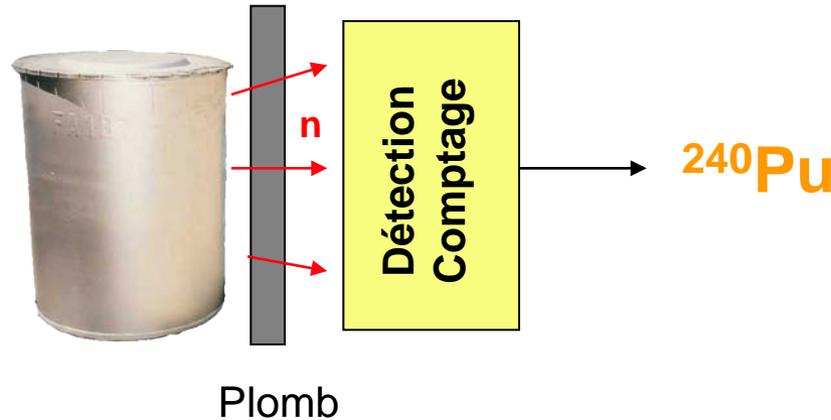
Synoptique d'interprétation des mesures



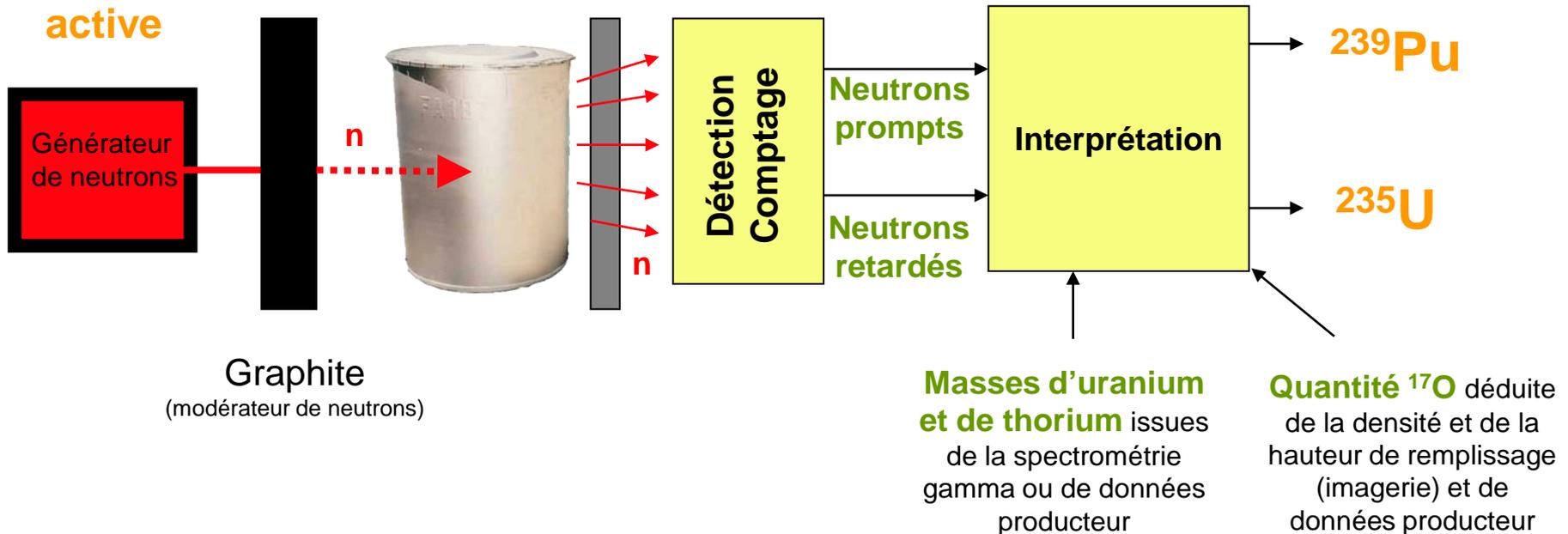
Exutoire : A (possible en surface) ou B (profond)

Les mesures neutroniques « passive » et « active »

Mesure passive



Mesure active

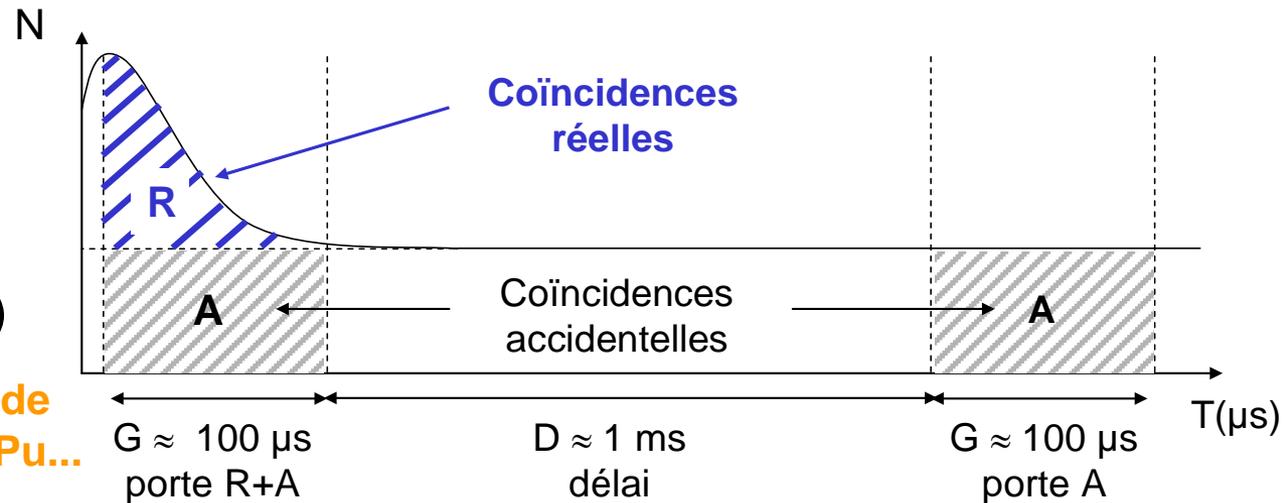


Les mesures neutroniques passive et active

Le comptage passif des **coïncidences neutroniques***

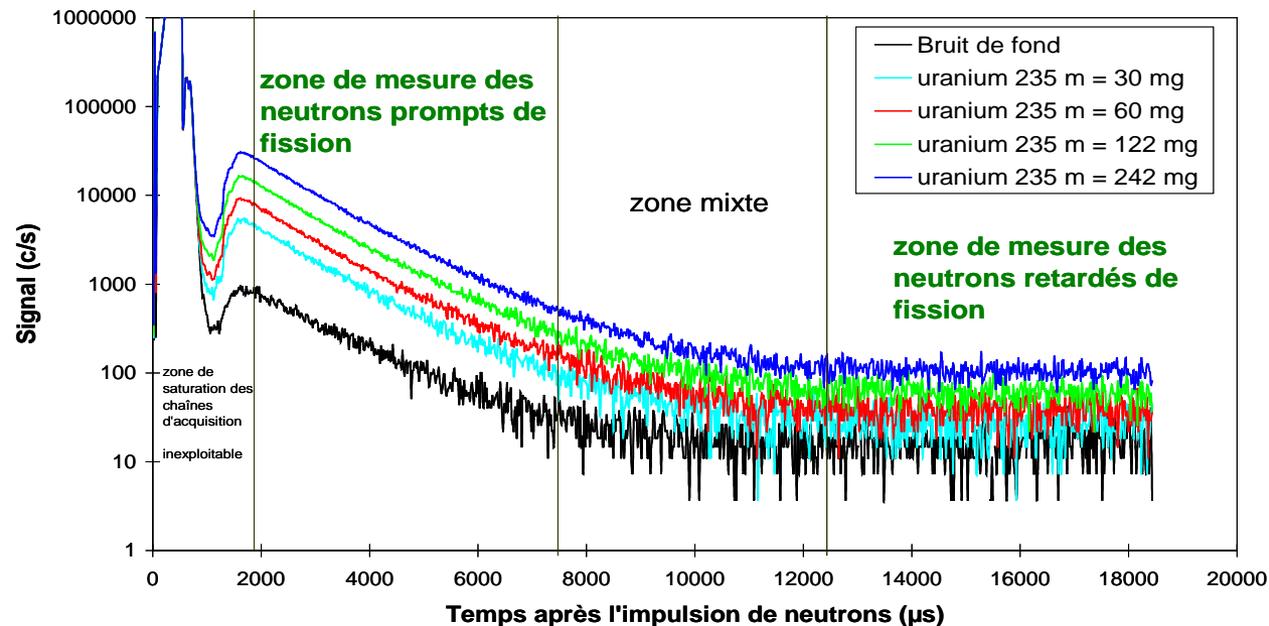
⇒ ^{240}Pu (+ ^{244}Cm , ^{238}U)

* pour éliminer les neutrons de réactions (α, n) avec ^{241}Am , ^{238}Pu ...

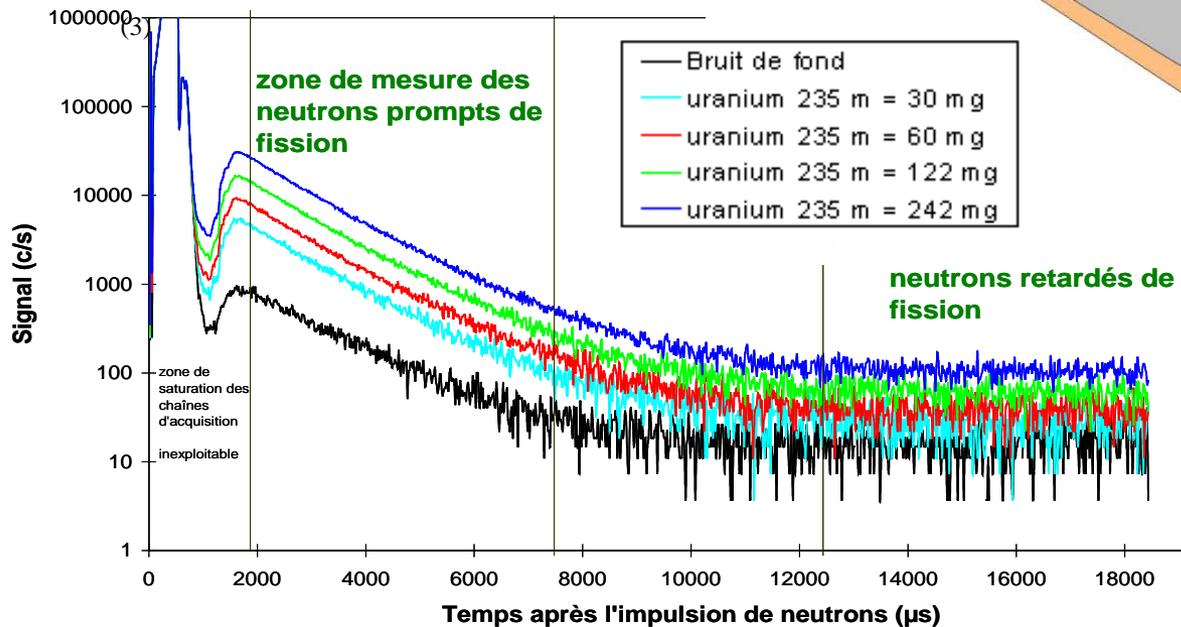
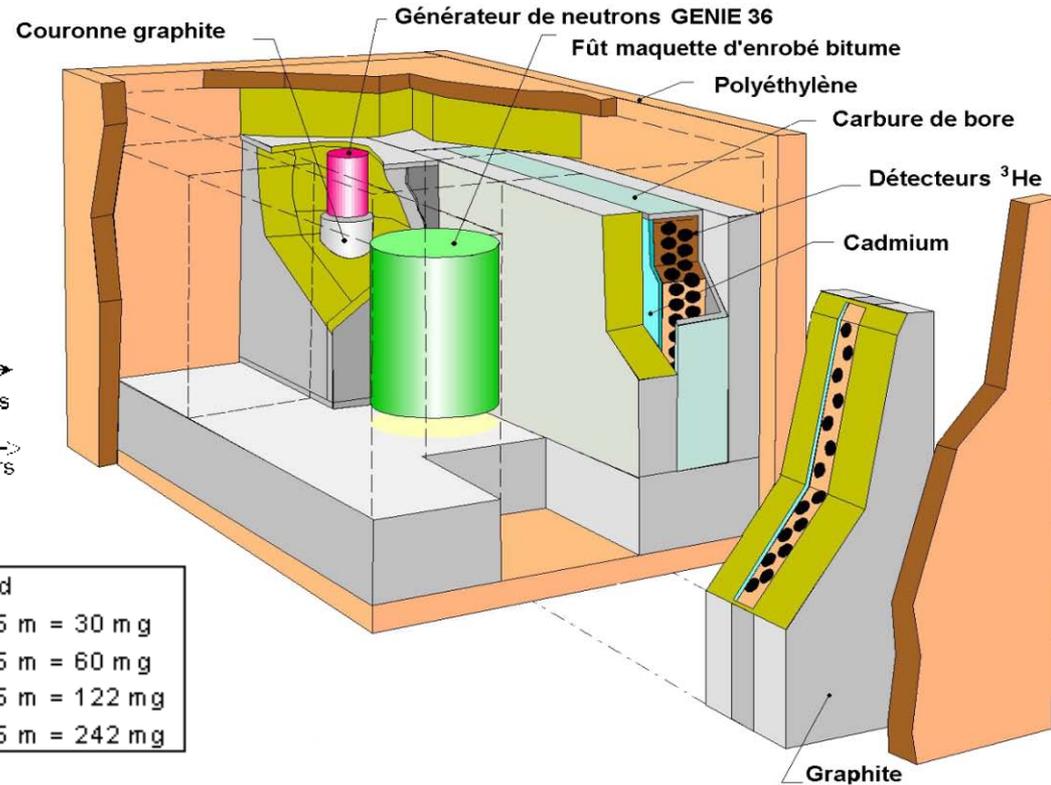
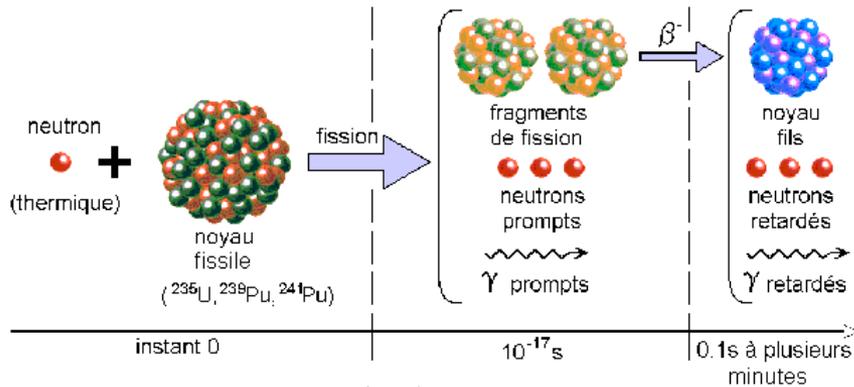


Détection des **neutrons prompts et retardés de fissions** induites par interrogation neutronique

⇒ ^{239}Pu , ^{235}U
(+ ^{17}O , ^{238}U , ^{232}Th)



Principe de la mesure neutronique active

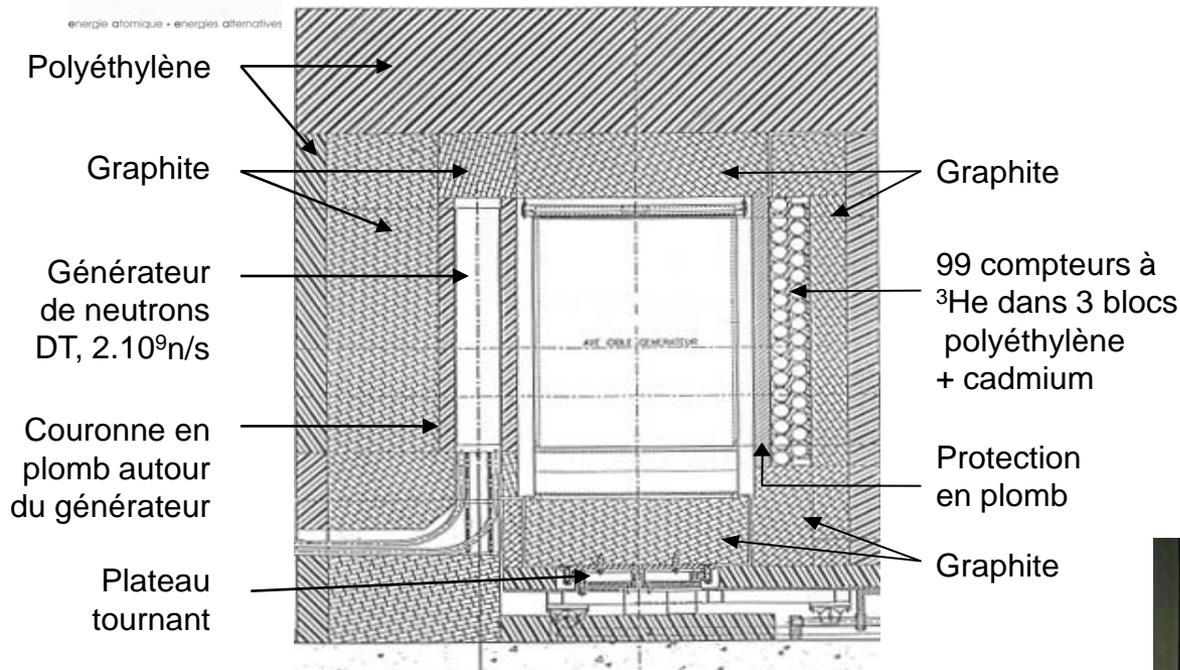


- Signal des neutrons prompts

$$SP = a \times m(^{239}\text{Pu}) + b \times m(^{235}\text{U})$$

- Signal des neutrons retardés

$$SR = c \times m(^{239}\text{Pu}) + d \times m(^{235}\text{U}) + e \times m(^{17}\text{O}) + f \times m(^{238}\text{U}) + f \times m(^{232}\text{Th})$$



• **Mesure passive (5 min)**

- Rendement de détection cellule vide \Rightarrow 23% en comptage total mais 5% avec l'enrobé bitumineux
- Comptage total + coïncidences
- Limite de détection sans curium $\sim 0.1 \text{ g } ^{240}\text{Pu}_{\text{eq}}$ (0,85 GBq)
- Indicateur de présence Cm (signal coïncident / signal total)

• **Mesure active (10 min)**

- Détection simultanée des neutrons prompts et retardés de fission \Rightarrow discrimination $^{235}\text{U} / ^{239}\text{Pu}$
- Limite de détection sans uranium
 - $\sim 0.01 \text{ g } ^{239}\text{Pu}_{\text{eq}}$ pour les neutrons prompts
 - $\sim 0.07 \text{ g } ^{239}\text{Pu}_{\text{eq}}$ pour les neutrons retardés
- LD avec uranium $\sim 1 \text{ g } ^{239}\text{Pu}$ (2,3 GBq) jusqu'à une masse maximale de $15 \text{ g } ^{235}\text{U}$

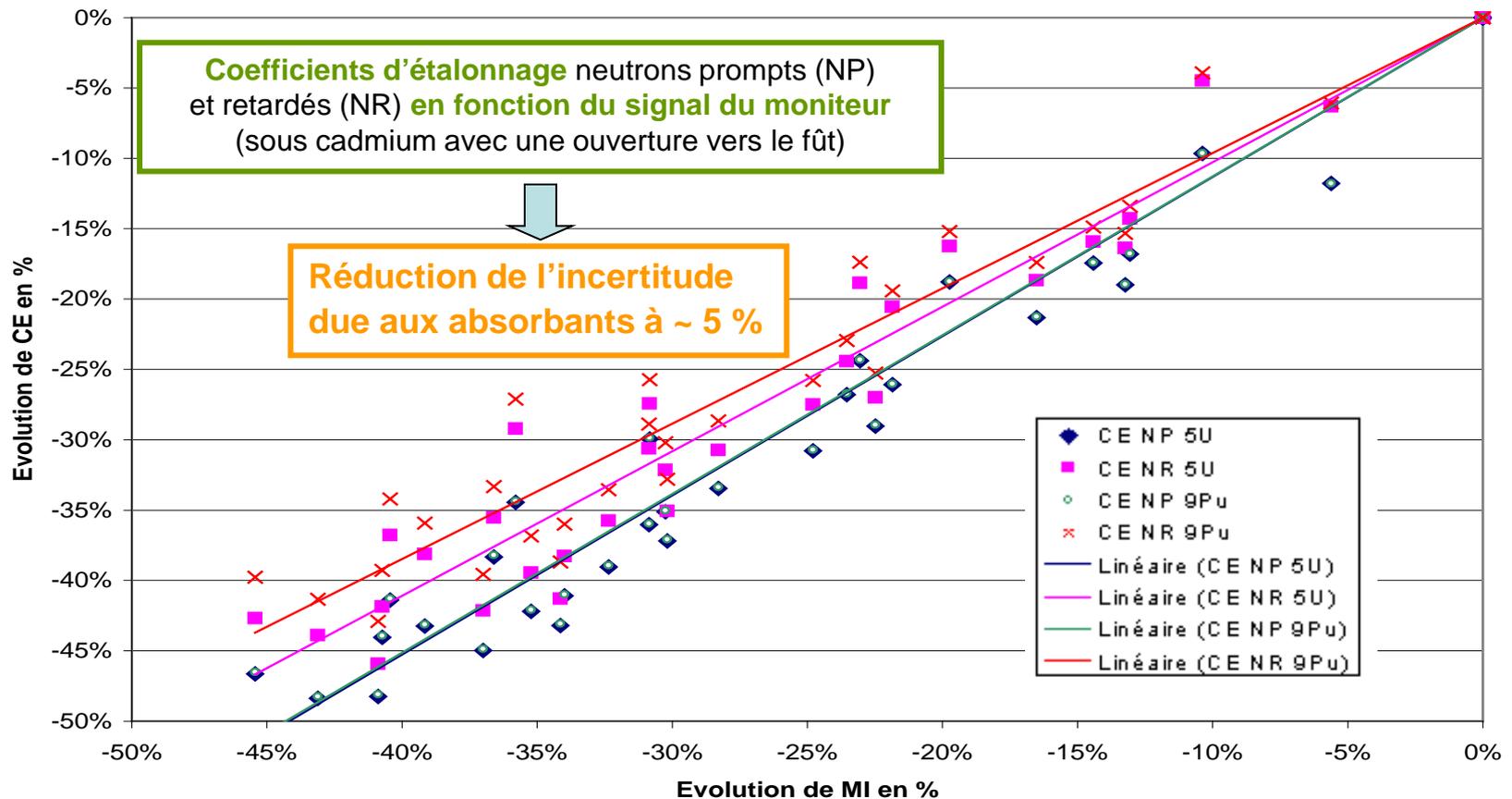


Mesure active : effets des absorbants neutroniques

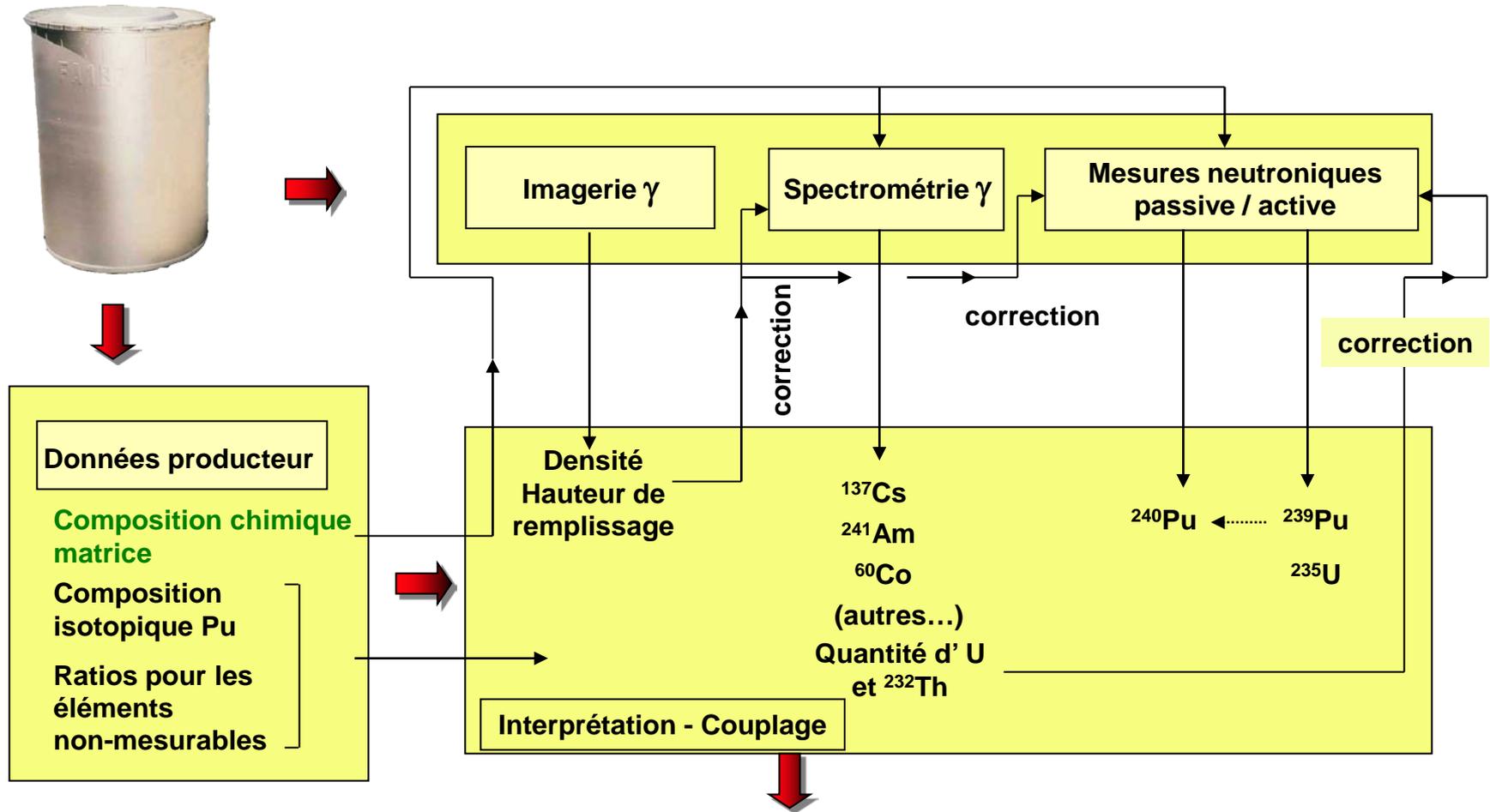
- **Présence de bore dans la matrice d'enrobés bitumineux**
 ⇒ variation des coefficients d'étalonnage ~ 30 à 40 %
- **Effet différent sur les signaux des neutrons prompts et retardés**
 ⇒ impact sur la discrimination ^{235}U / ^{239}Pu



Compteur à ^3He dans la cavité de mesure sensible à l'absorption



Synoptique d'interprétation des mesures



Exutoire : A (possible en surface) ou B (profond)

Résumé des performances



energie atomique • energies alternatives

Imagerie gamma

- **Pixels de L = 1 cm H = 2 cm en 10 min (+ 5 min BDF passif)**
- **Densité à +/- 10 % à 2 σ (niveau de confiance 95 %) selon la déformation des fûts**
- **Forme et de la hauteur de remplissage à +/- 2 cm**
- **Détection d'hétérogénéités (air, fer, eau) de quelques centimètres de diamètre**

Neutron passif

- **Incertitude sur la masse de ^{240}Pu équivalent inférieure à 30 % à 2 σ (selon ^{244}Cm , ^{238}U)**
- **Limite de détection (intervalle de confiance 95 %) en 5 min ~ 0,1 g ^{240}Pu (0,85 GBq)**
- **Indicateur de présence de ^{244}Cm pour éviter un risque de forte surestimation**

Neutron actif

- **Incertitude sur la masse de ^{239}Pu inférieure à 60 % à 2 σ selon masse ^{235}U (environ 40 % à 2 σ pour un fût contenant 1 kg d'U soit 6 g d' ^{235}U)**
- **Limite de détection (intervalle de confiance 95 %) en 10 min < 1 g ^{239}Pu (2,3 GBq) jusqu'à 15 g d' ^{235}U (dépendant de la quantité de radioéléments perturbateurs ^{235}U , ^{238}U , ^{17}O)**

Spectrométrie gamma

- **Incertitude sur l'activité ~ 30 % à 2 σ si $E_\gamma > 200$ keV et ~ 50 % à 2 σ si $E_\gamma < 200$ keV (e.g. ^{241}Am à 59,5 keV : correction des effets de matrice par analyse pic/Compton)**
- **Limite de détection (intervalle de confiance 95 %) en 20 min**
 - ✓ Compatible avec les critères d'acceptation en surface pour $E_\gamma > 200$ keV
 - ✓ ^{241}Am : entre 0,1 et 8 GBq / fût selon l'atténuation de la matrice et la quantité de ^{137}Cs (rappel : critère d'acceptation en surface ~ 10 GBq activité alpha totale à 300 ans)

- **Caractérisations physique**
 - ⇒ **Imagerie gamma**
- **Caractérisation radiologique**
 - ⇒ **Spectrométrie gamma et X**
 - ⇒ **Mesure neutronique passive et active**
- **Autres exemples de combinaison de mesures nucléaires**
 - ⇒ **Le contrôle nucléaire de procédé dans les usines de retraitement** ▶
- **Recherche et développement technologique + besoins nouveaux**
(stockage en couches géologiques profondes, usines du futur, sécurité...)
 - ⇒ Générateurs de rayonnements, détecteurs, électroniques plus performants
 - ⇒ Nouvelles techniques de caractérisation
 - **Imagerie photonique haute énergie** ⇒ colis plus denses et volumineux, imagerie double énergie pour accéder au numéro atomique ▶
 - **Spectrométrie des rayonnements gamma induits par interrogation neutronique** ⇒ caractérisation élémentaire ▶

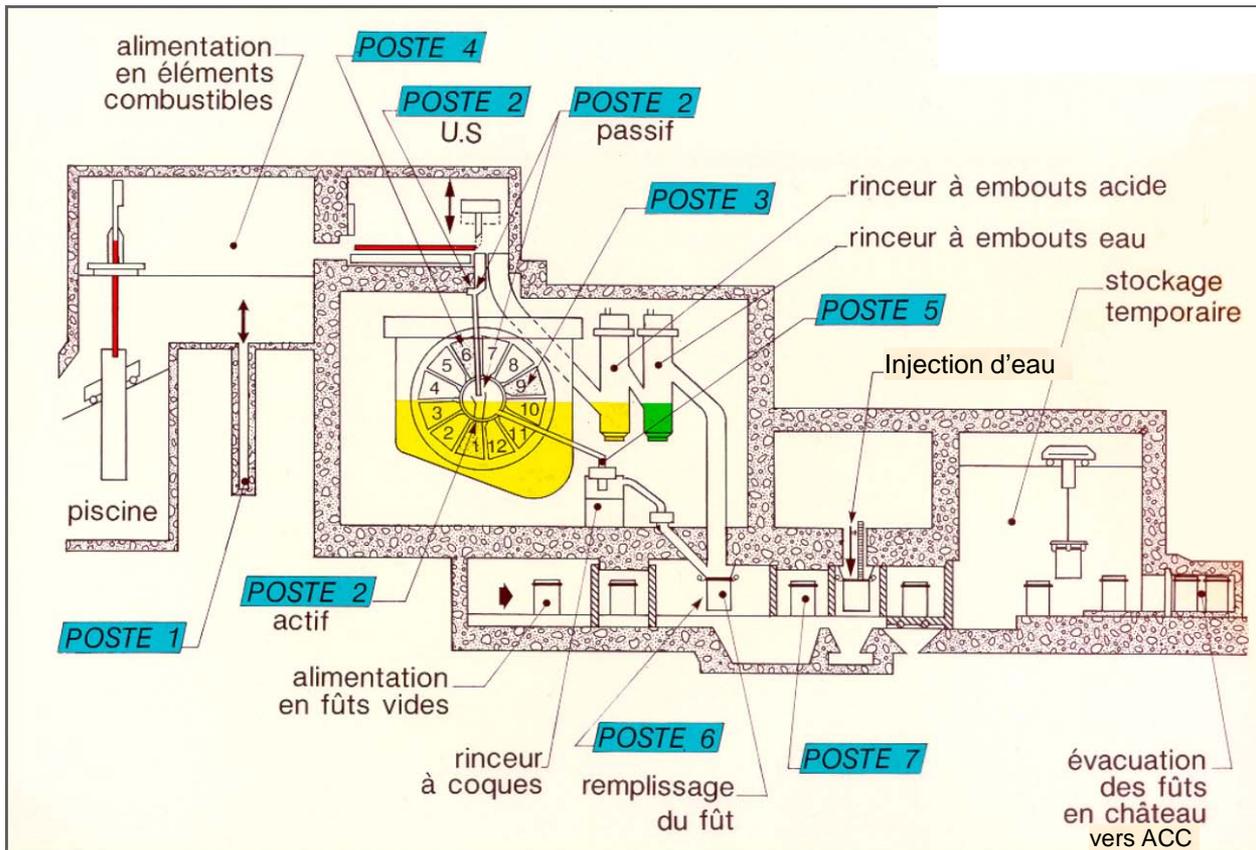
- **Radiation Detection and Measurement**
Glenn Frederick Knoll, John Wiley & Sons, 3rd edition, 2000
- **Passive Non Destructive Assay of Nuclear Materials**
D. Reilly, N. Ensslin, Hastings Smith Jr. Los Alamos National Laboratory, NUREG/CR-5550, 1991
- **Active Nondestructive Assay of Nuclear Materials, Principles and Applications**
Tsahi Gozani, NUREG/CR-0602 SAI-MLM-2585, January 1981
- **Practical Gamma-Ray Spectrometry**
Gordon Gilmore & John Hemingway, John Wiley & Sons, 1995
- **Les Rayonnements ionisants: détection, dosimétrie, spectrométrie**
Daniel Blanc, Masson, 2^{ème} édition, 1997
- **Modélisation et estimation des erreurs de mesure**
Michèle Neuilly, Tec & Doc, 1993
- **Dossier de recommandations pour l'optimisation des mesures en spectrométrie gamma appliquée aux déchets**
CETAMA, GT27, 2001
- **Dossier de recommandations pour l'optimisation des mesures neutroniques**
CETAMA, GT27, à paraître

The end, merci pour votre attention !

Le contrôle nucléaire de procédé (CNP)

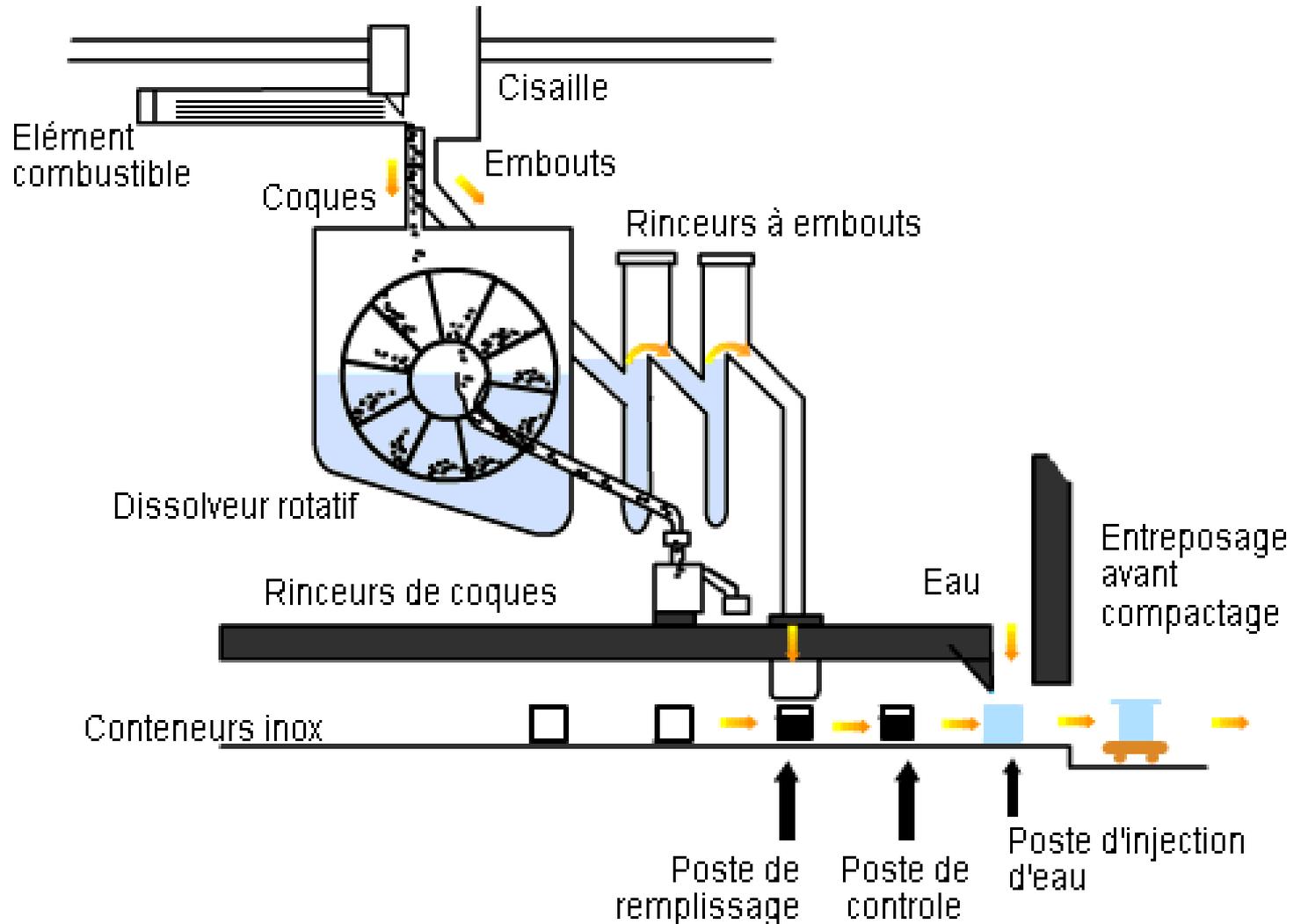
Usines de retraitement de combustible nucléaire usé (AREVA La Hague, Rokkasho Mura)

Atelier de cisailage – dissolution

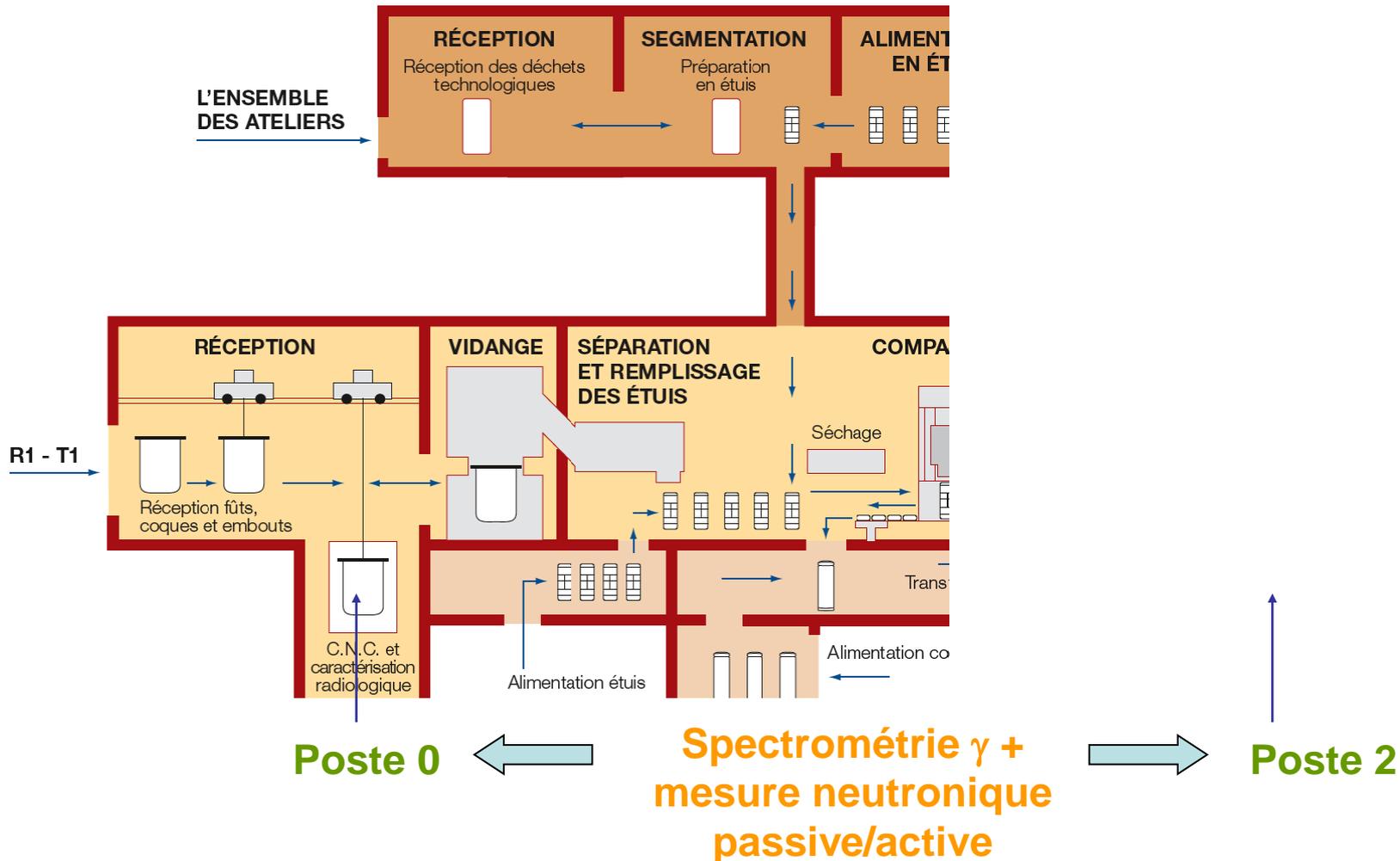


1. Mesure du taux de combustion
2. Contrôle de non engorgement trémies / goulotte du dissolvant
3. Contrôle de dissolution
4. Contrôle de vidange
5. Non engorgement du rinçage des coques
6. Contrôle de remplissage des fûts de coques et embouts
7. Détermination de la quantité de matière fissile résiduelle dans les fûts et vérification des paramètres garantis
8. Mesures fond de cuve (non représentées ici)

Le procédé de cisailage dissolution



Atelier de Compactage des Coques et embouts (ACC)



Compactage des coques et embouts \Rightarrow fût CSD-C



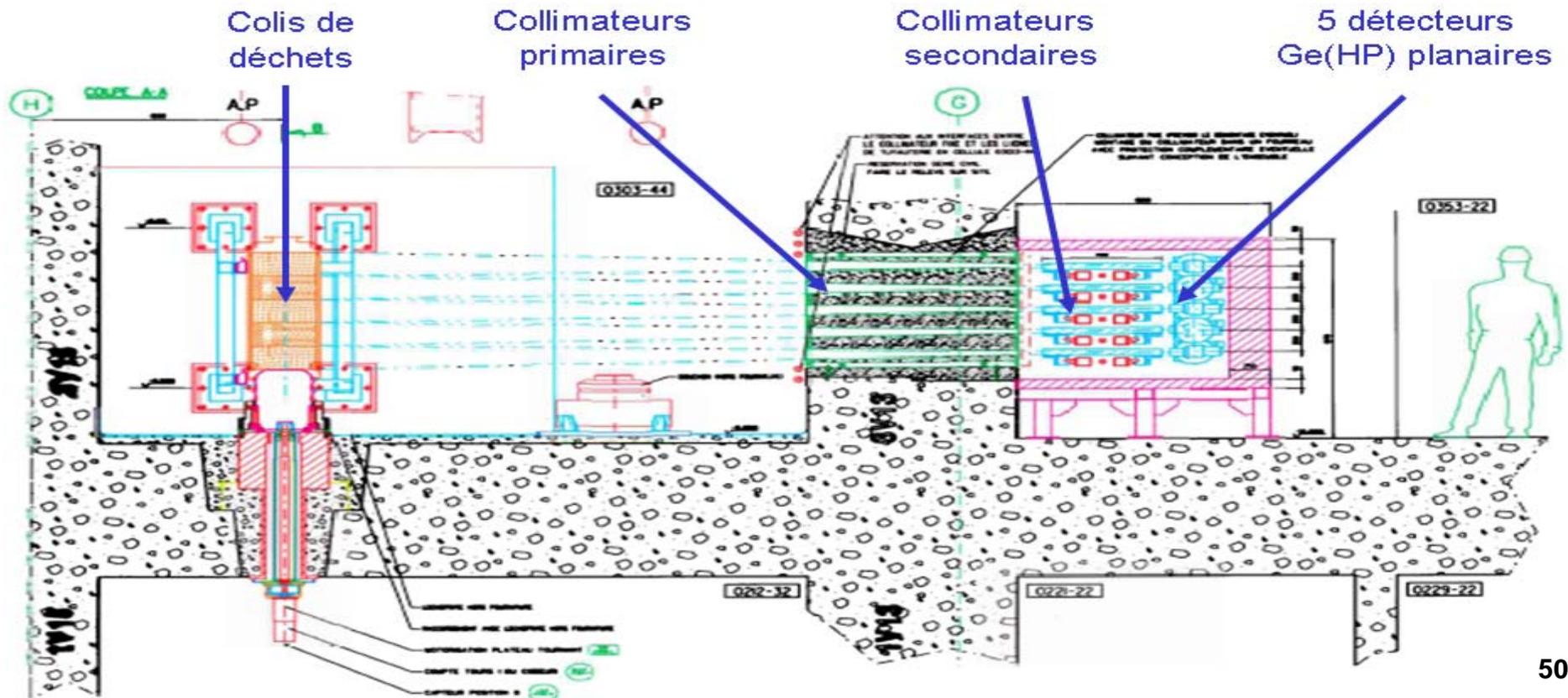
Spectrométrie γ sur les CSD-C

• Objectifs

- ✓ Quantifier les émetteurs γ mesurables (^{137}Cs , ^{60}Co , ^{154}Eu , ^{134}Cs ...)
- ✓ Evaluer les TC ($^{154}\text{Eu}/^{137}\text{Cs}$) et TR ($^{154}\text{Eu}/^{134}\text{Cs}$)
- ✓ Evaluer les ratio $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ et $^{241}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ (via $^{154}\text{Eu}/^{137}\text{Cs}$)

• Poste de mesure

- ✓ 5 détecteurs Ge HP (semi plan)
- ✓ Écrans + collimateur à fente mobile visant 1/5 de CSD-C



Mesure neutronique sur les CSD-C

- **Objectifs**

- ✓ **Quantifier la matière fissile résiduelle**

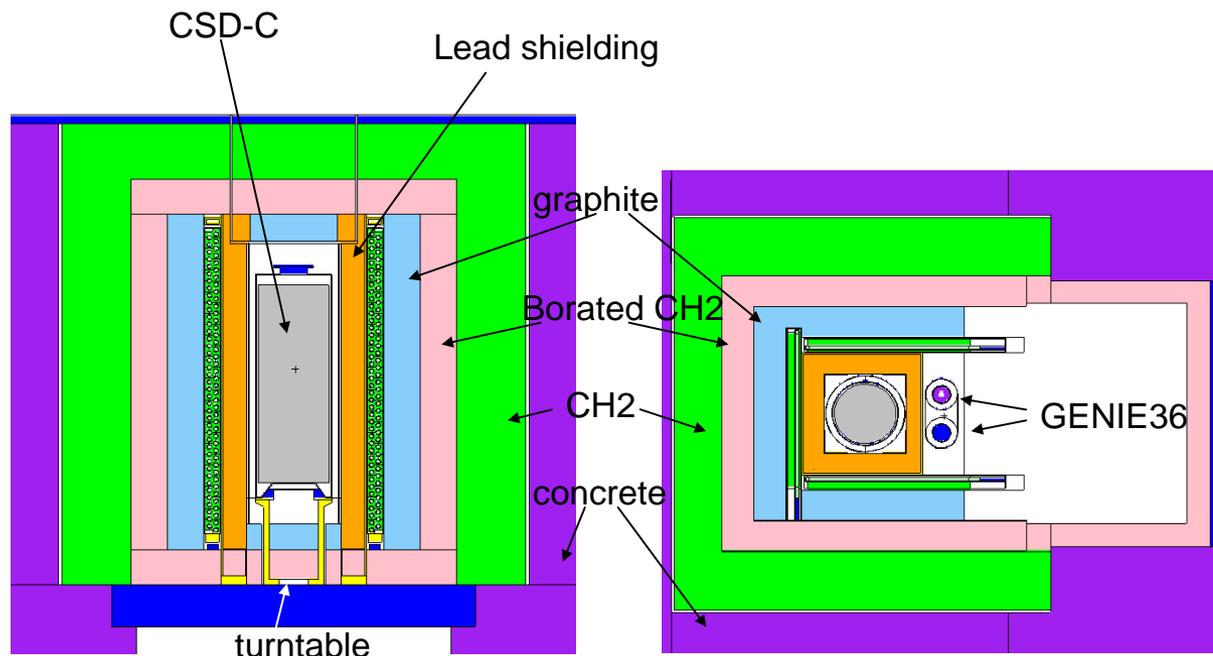
- ✓ Evaluer les quantités de ^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu , ^{241}Pu et ^{244}Cm

- **Poste de mesure**

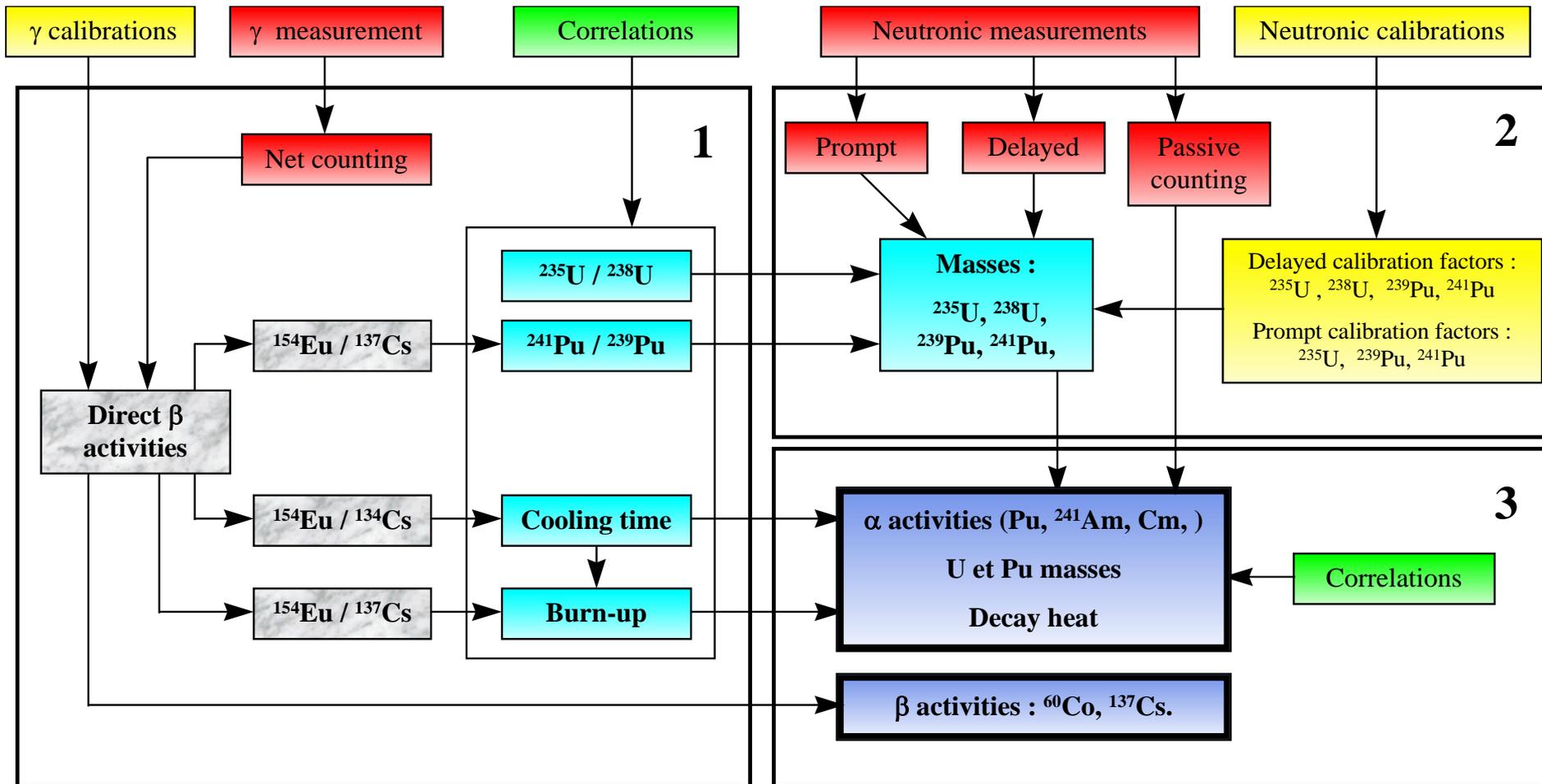
- ✓ 2 générateurs de neutrons ($\Rightarrow 4 \cdot 10^9$ n/s) et 249 détecteurs ^3He

- ✓ Mesure simultanée des neutrons prompts et retardés de fission induite

- ✓ Mesure neutronique passive



Combinaison des résultats des mesures des CSD-C



Imagerie double énergie (15 MeV / 9 MeV) sur colis MAVL

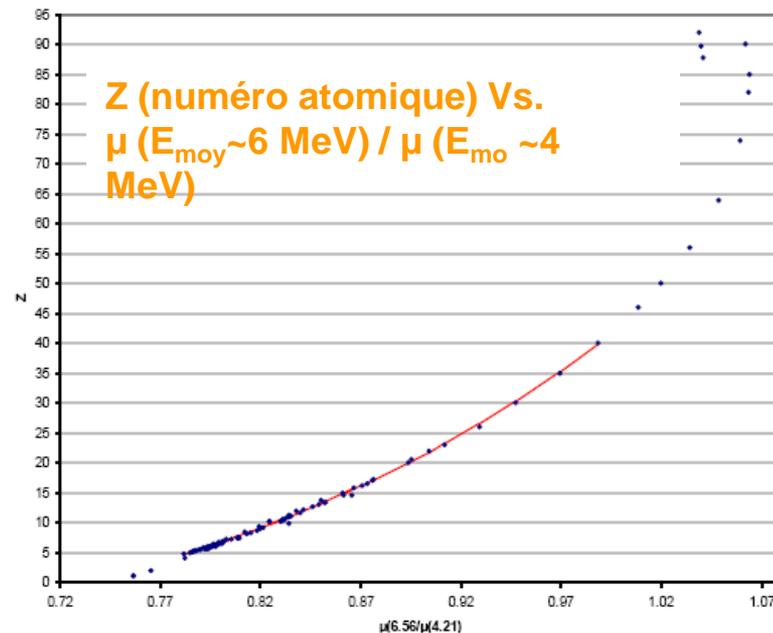
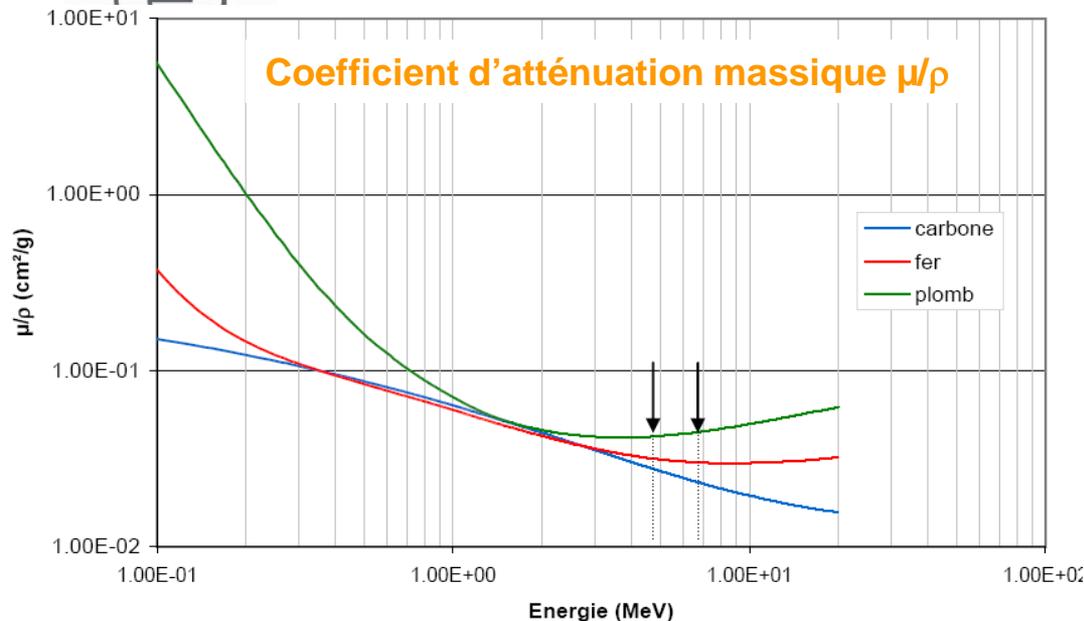
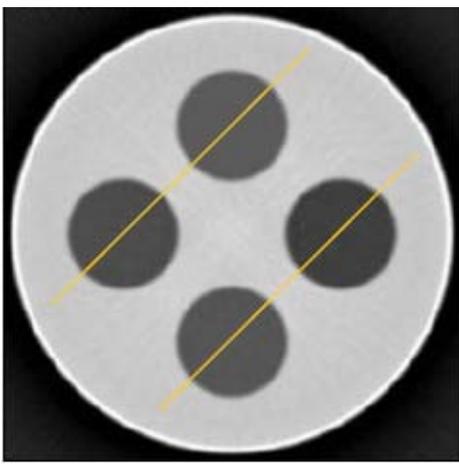


Image de densité



Profils de densité

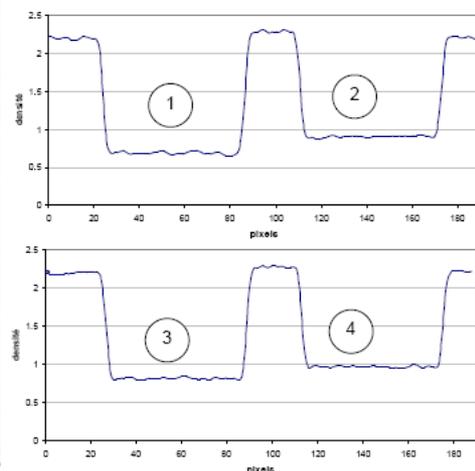
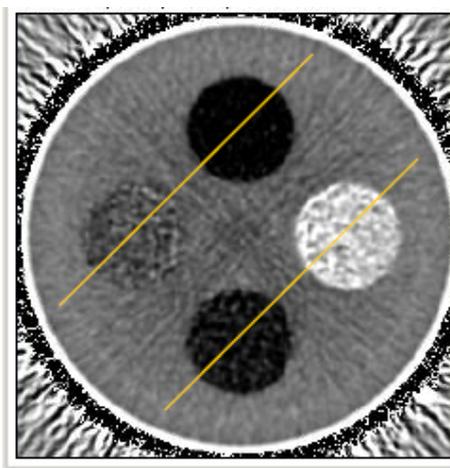
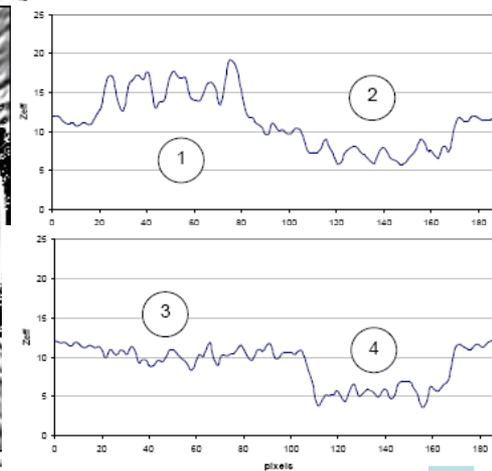
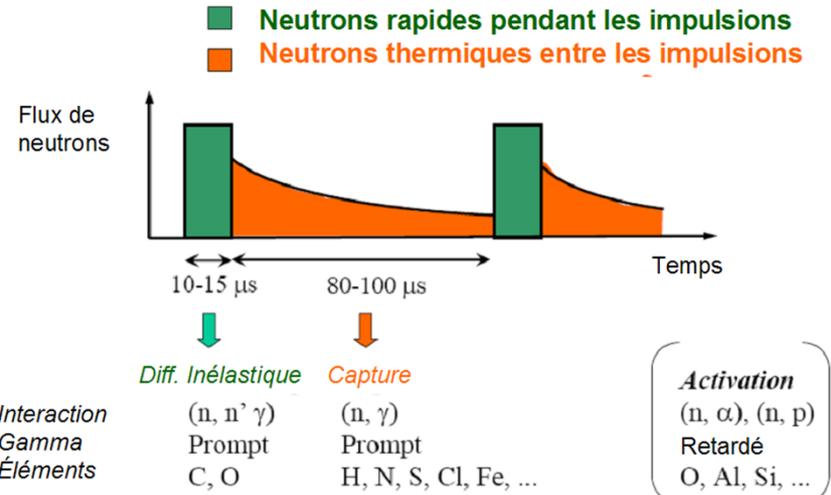
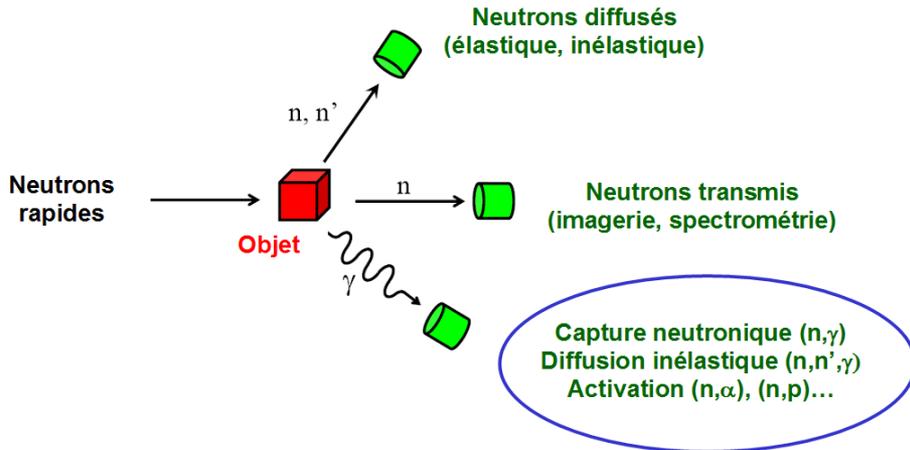


Image de Z

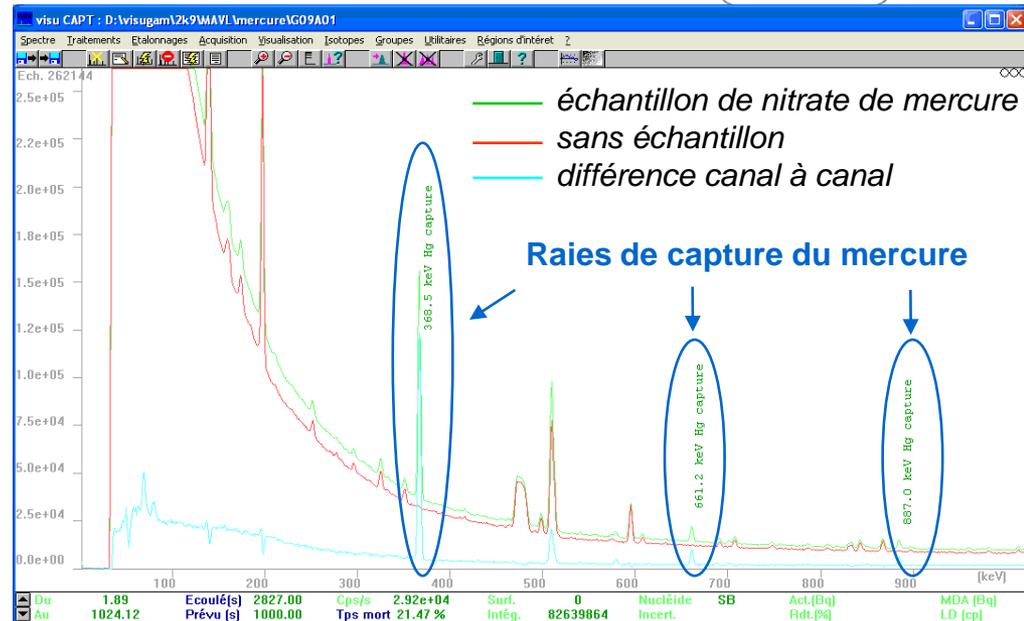
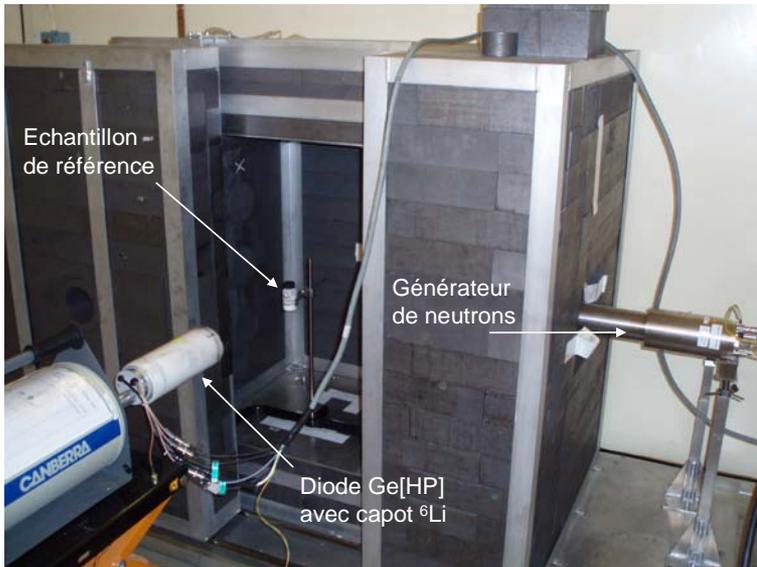


Profils en Z



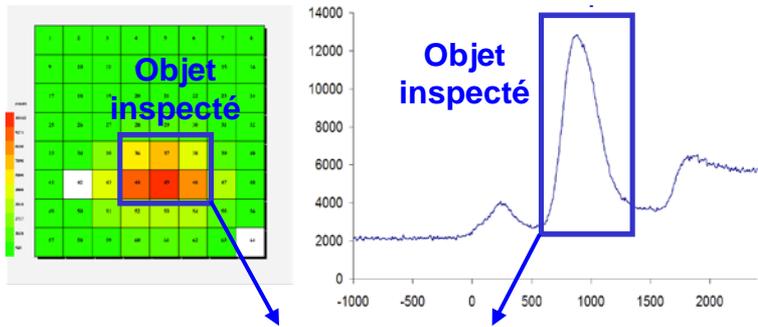


Mesure d'un échantillon Hg - Cellule REGAIN

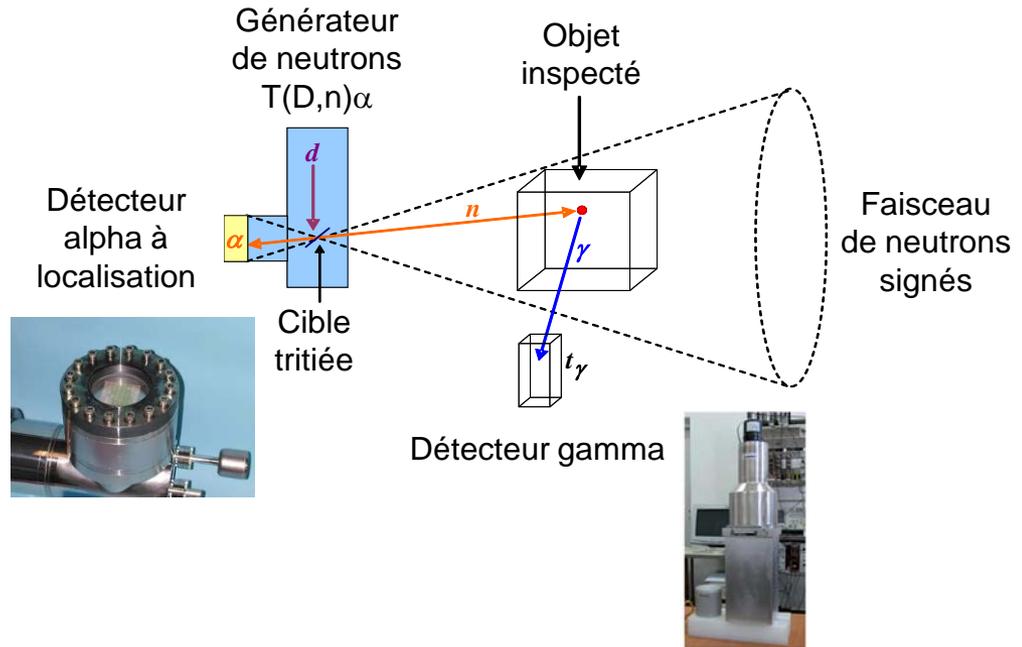
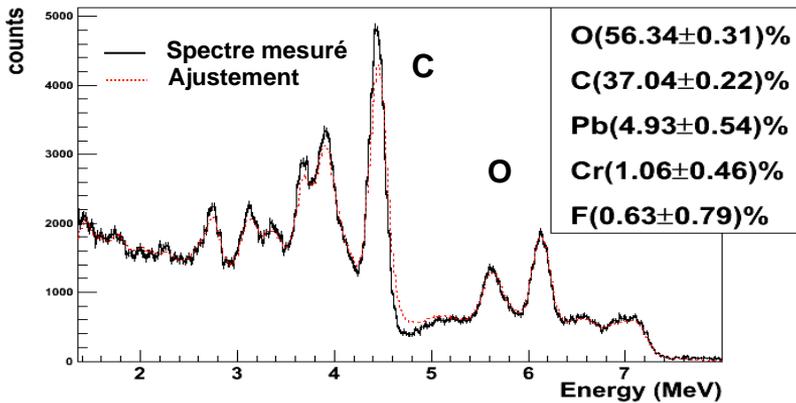


La technique de la particule associée (TPA)

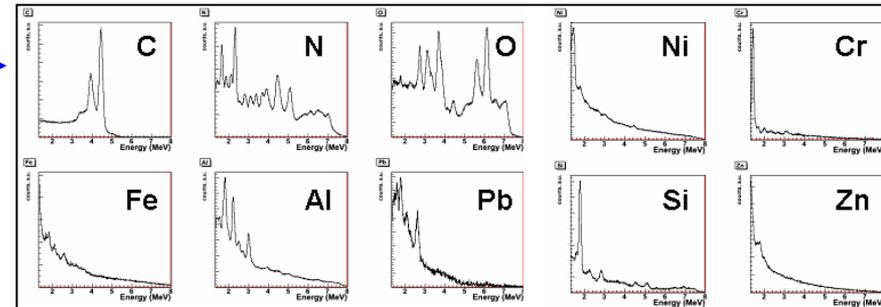
Localisation α + Temps de vol neutronique (coïncidence alpha-gamma)



Spectre γ de l'objet inspecté

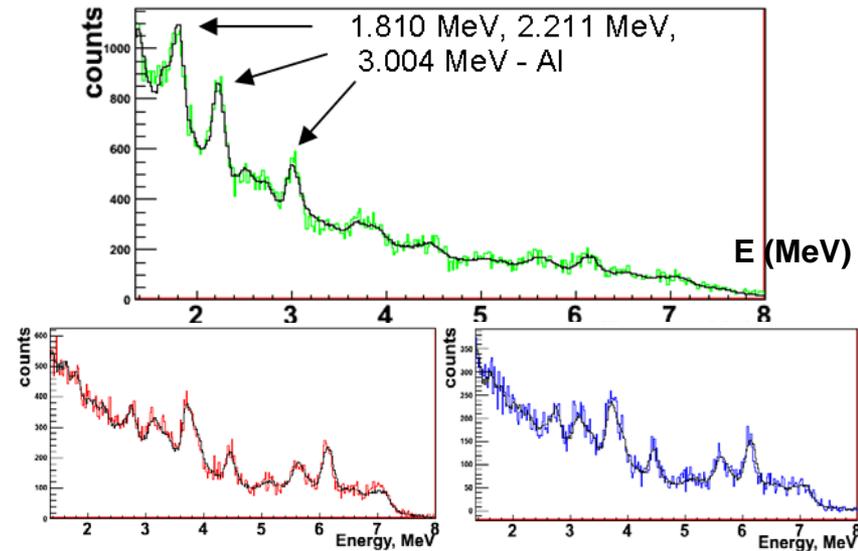
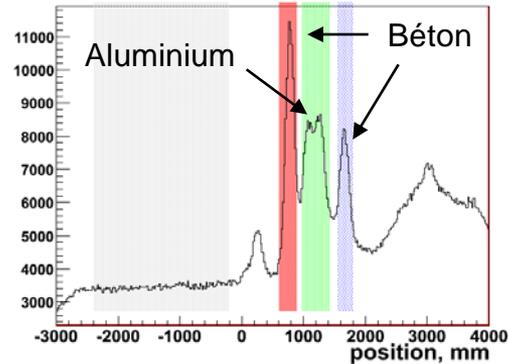
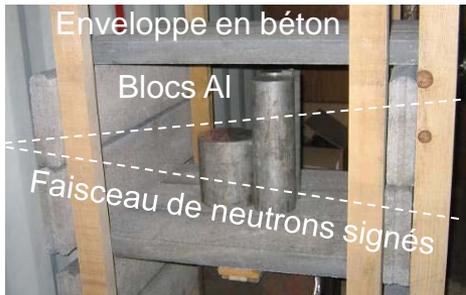


Déconvolution (base de spectres d'éléments purs)

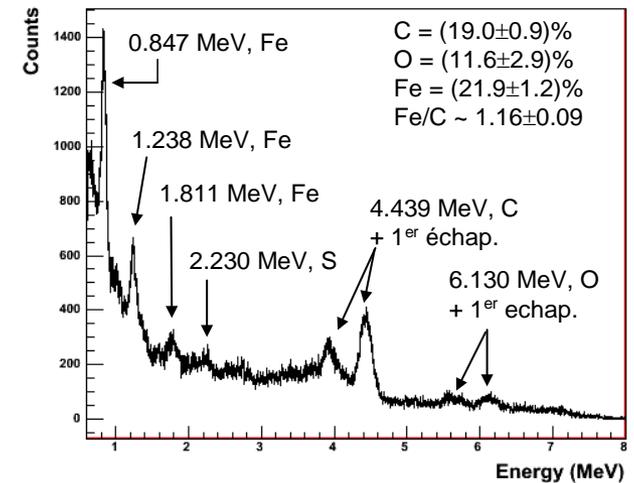
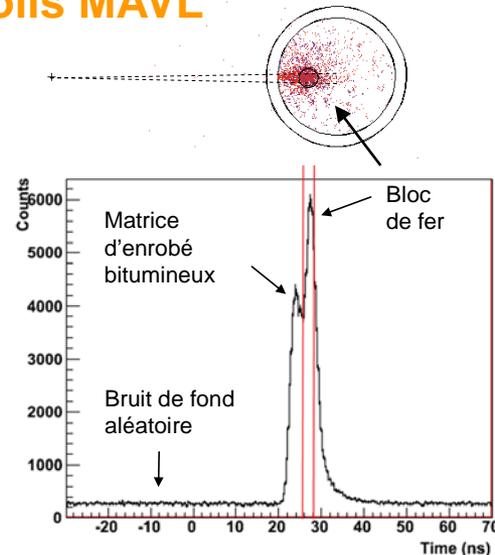
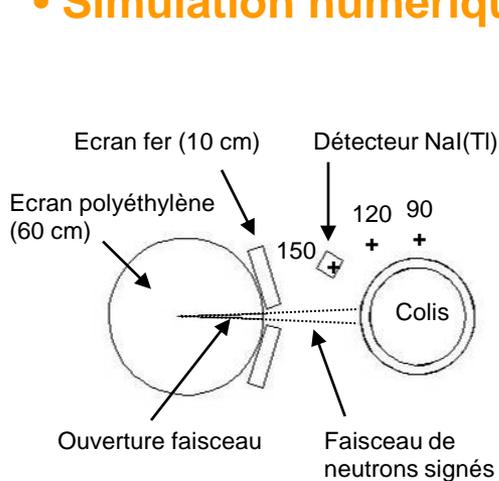


Caractérisation élémentaire avec la TPA

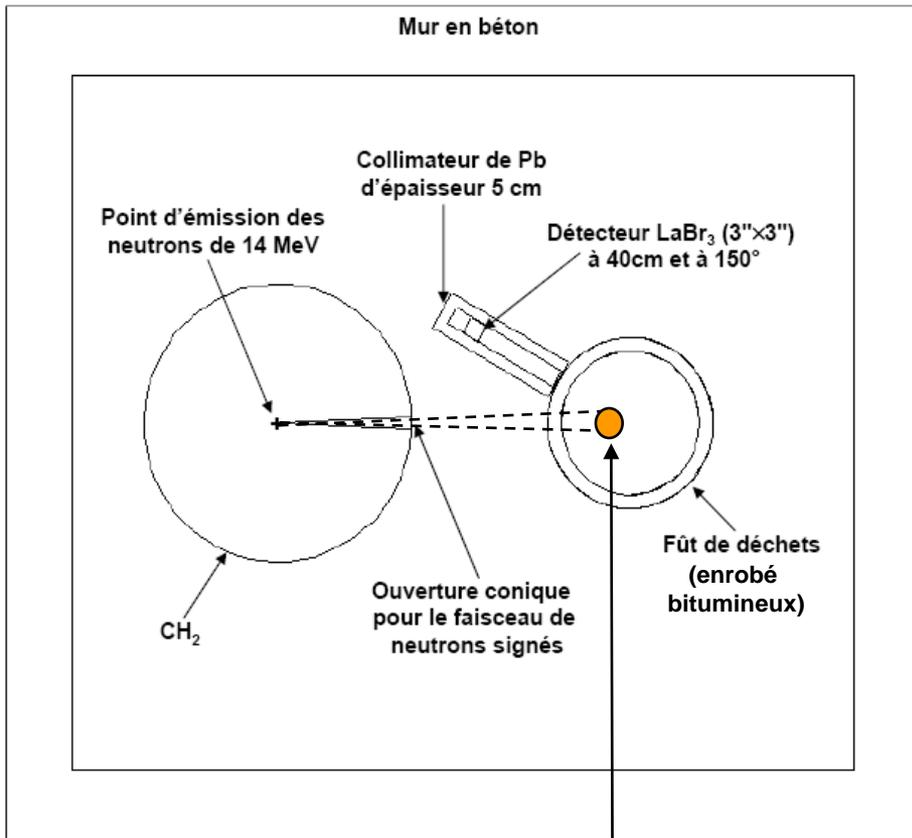
• Essais de faisabilité



• Simulation numérique colis MAVL



Poste de mesure TPA pour colis de déchets MAVL



Élément de volume à caractériser

