

Étude de la faisabilité industrielle de la technique d'analyse par transmission des résonances Neutroniques (NRTA)

Directeur de thèse

Fabrice PIQUEMAL, Chercheur, directeur de LP2i Bordeaux

Melissa AZZOUNE

Superviseurs

Ludovic MATHIEU, Chercheur, LP2I - BORDEAUX

Mourad AICHE, Enseignant Chercheur, LP2I - BORDEAUX

Ngoc Duy TRINH, Ingénieur R&D, Orano CORP

Laurence VILLATTE, Responsable R&D , Orano Recyclage

Lionel TONDUT, Expert mesures nucléaires , Orano Recyclage

Sylvain PELLETIER, Chef de projet , Orano Recyclage

Dans l'aval du cycle du combustible nucléaire en France, il est crucial de déterminer la composition **élémentaire** et **isotopique** des matières nucléaires afin **d'optimiser** leur utilisation et **d'assurer leur bonne gestion**.

Méthodes Actuelles	Limites
ICP-MS (Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry)	Opérations chimiques longues et complexes
Détection passive (spectrométrie gamma)	Détection de matières radioactives, sensible aux produits de fission, sensible au bruit de fond
Détection active (fission induite par les neutrons)	Incapacité à distinguer les isotopes

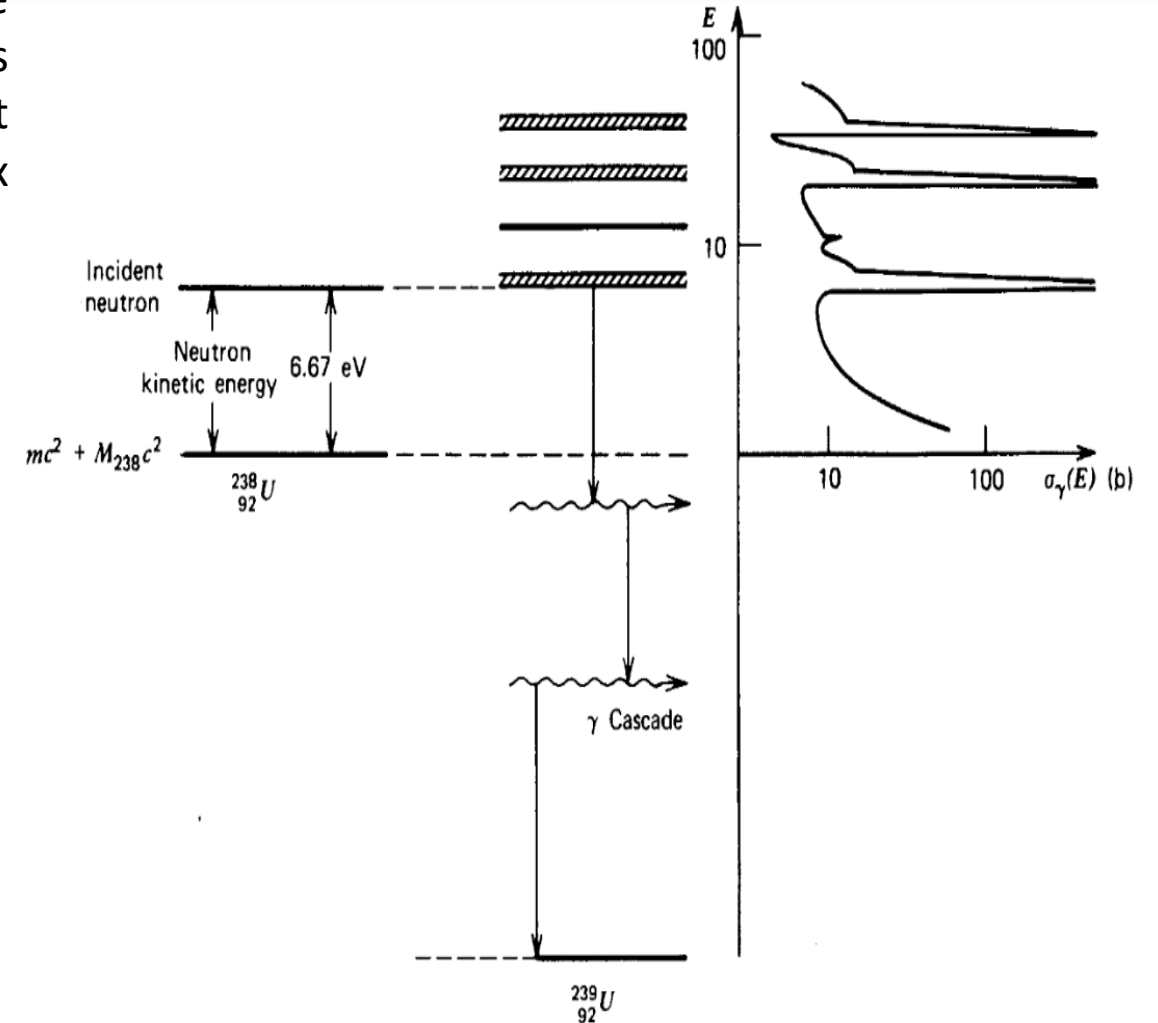
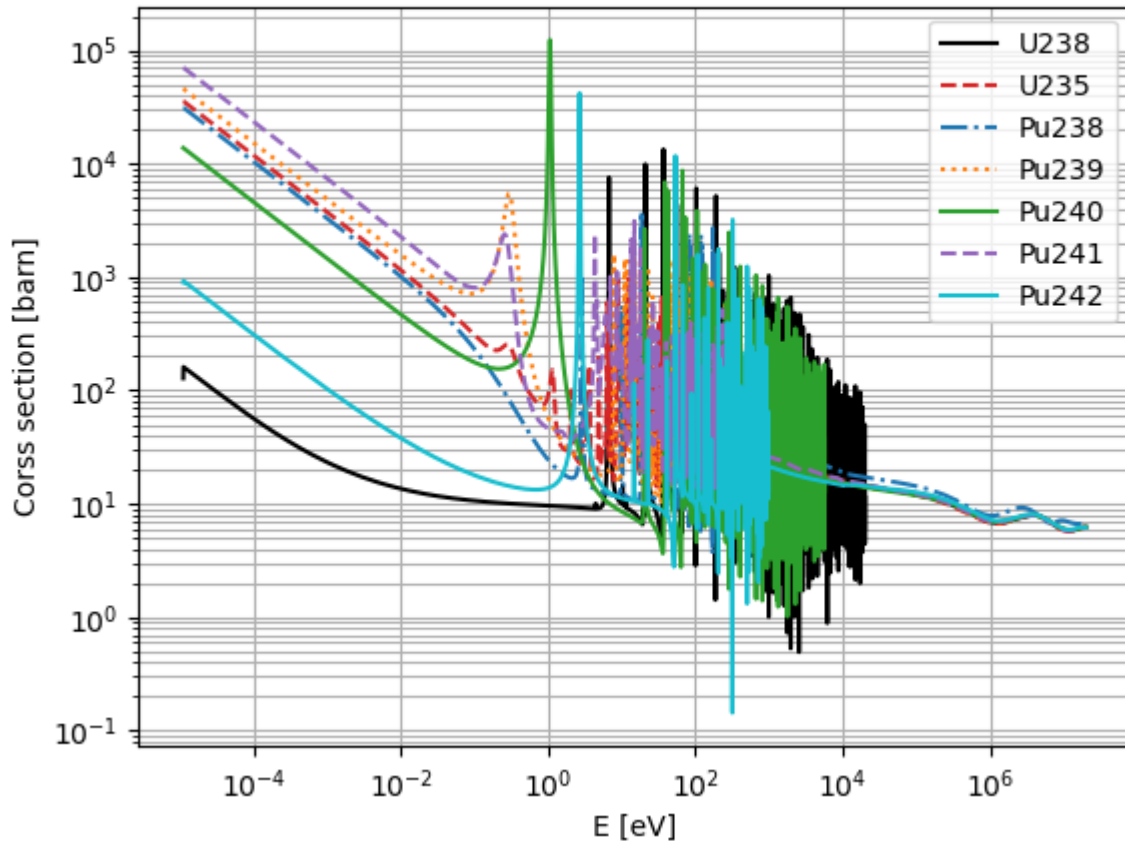
Nécessité d'explorer une nouvelle méthode pouvant être utilisée en conjonction avec les techniques existantes.
↳ Collaboration entre ORANO et LP2IB → Début de la thèse : **Janvier 2024**

Objectifs

- 1- Acquérir des compétences dans la technique NRTA
- 2- Etudier la faisabilité industrielle
- 3- Réaliser une campagne expérimentale pour valider la méthodologie de calcul
- 4- Définir une première conception du système compact complet

Neutron Resonance Transmission Analysis

La Neutron Resonance Transmission Analysis (NRTA): est une technique d'analyse non destructive qui utilise les propriétés uniques de résonance des isotopes pour pouvoir distinguer et identifier précisément la composition de différents matériaux et substances.



Utilisée depuis les années **1970** pour mesurer les section efficaces par les laboratoire de recherche.

Type	Recherche	Industriel
Source	Très bonne résolution (1 ns GELINA)	Moins bonne résolution ($\sim \mu\text{s}$)
Longueur de vol	Grande (10-400m GELINA)	Courte (< 10 m)
Echantillons	Minces et homogènes	Epais et complexes
Outils d'analyses	REFIT, SAMMY et CONRAD	A développer

Distance de vol \rightarrow $\left\{ \begin{array}{l} \text{Résolution : } \frac{\Delta E}{E} = \frac{2}{L} \sqrt{v^2 \Delta t^2 + \Delta L^2} \rightarrow \\ \text{Flux de neutron } \propto \frac{1}{L^2} \rightarrow \end{array} \right.$



Principe de la NRTA



1

Source de neutrons

Des neutrons de 14 MeV sont produits par une source de neutrons pulsée.



2

Neutron Modération

Les neutrons sont ralentis par un modérateur pour atteindre l'énergie de la cible isotopes (<100 eV)



3

Interaction avec échantillon

Les neutrons thermalisés interagissent avec les noyaux de l'échantillon, produisant des signatures d'absorption caractéristiques de chaque isotope.

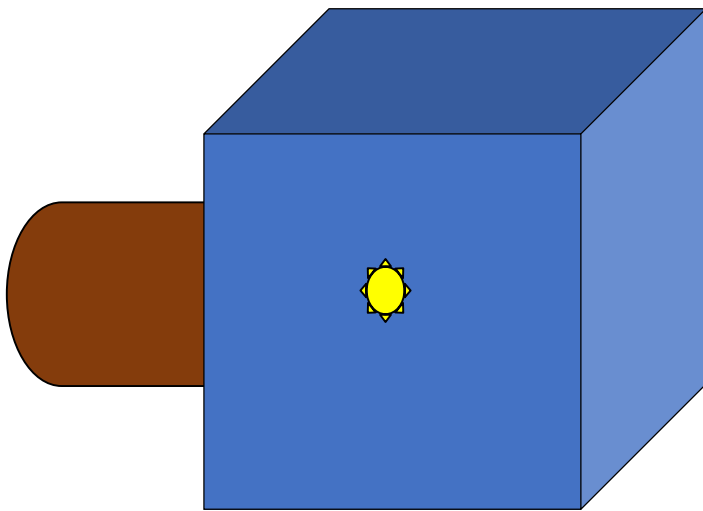


4

Time-of-Flight Détection

Détection de l'énergie des neutrons par la méthode du temps de vol

$$E_n = \frac{1}{2} m_n \left(\frac{D_{TOF}}{t_{TOF}} \right)^2$$



krapouz

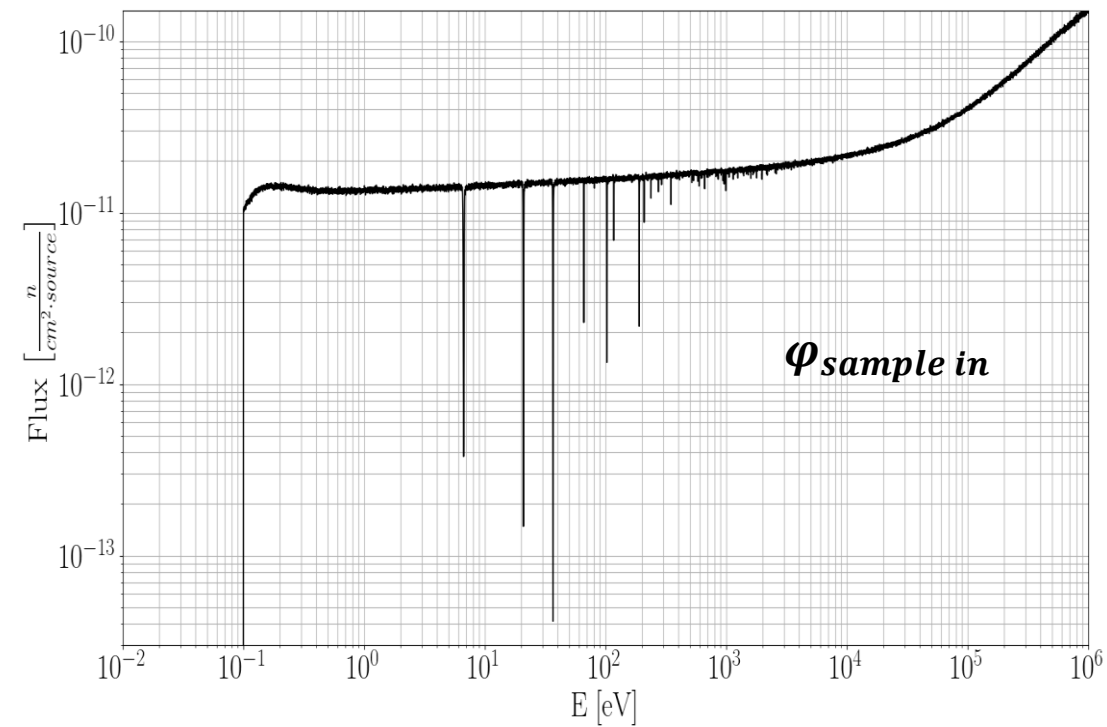
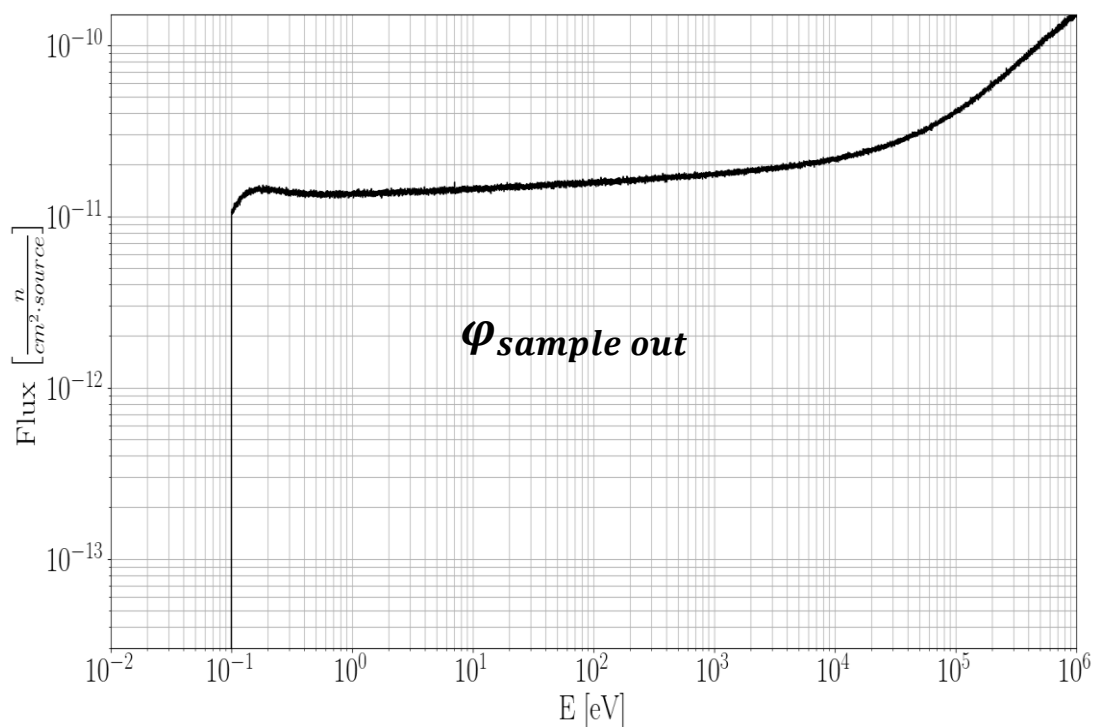


D_{TOF}

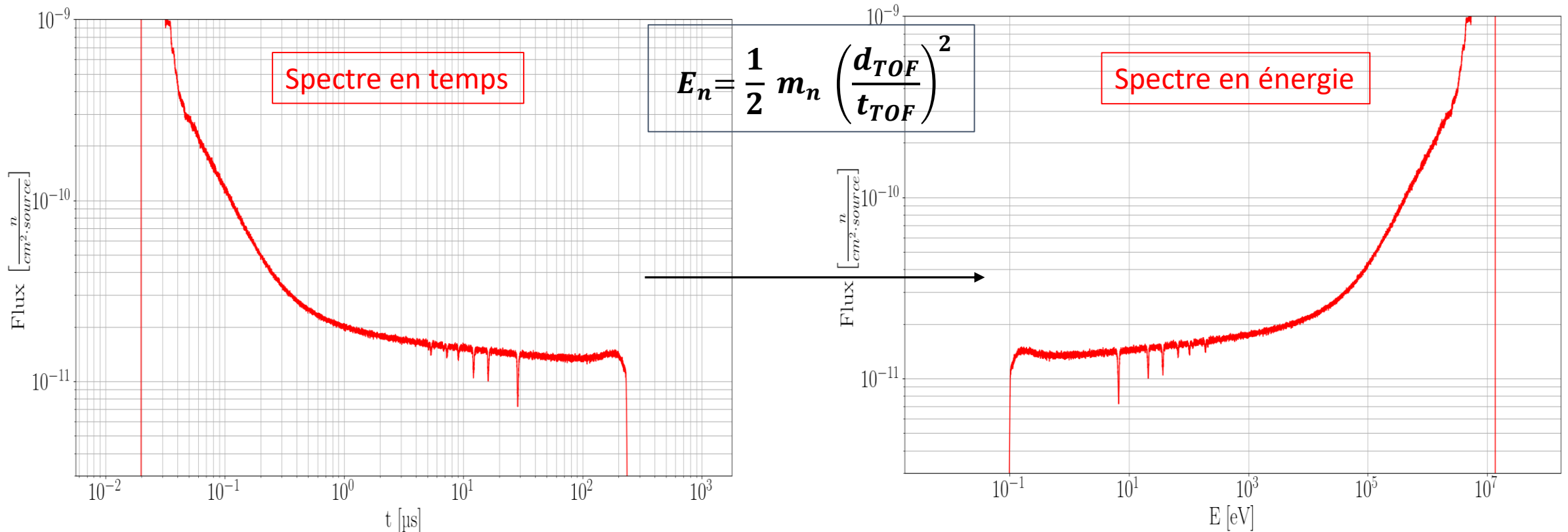
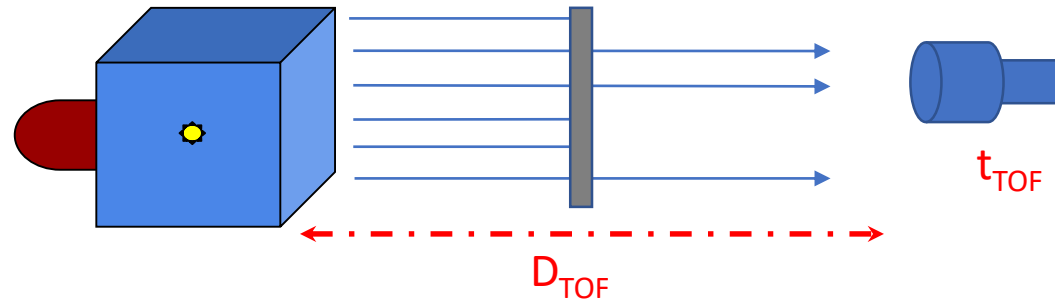




$$T = \frac{\Phi_{\text{sample in}}}{\Phi_{\text{sample out}}} = \exp(-n \sigma_{\text{tot}})$$



Rappel: Expérimentalement on aura accès aux spectres de transmission en temps uniquement (pas au spectre en énergie)



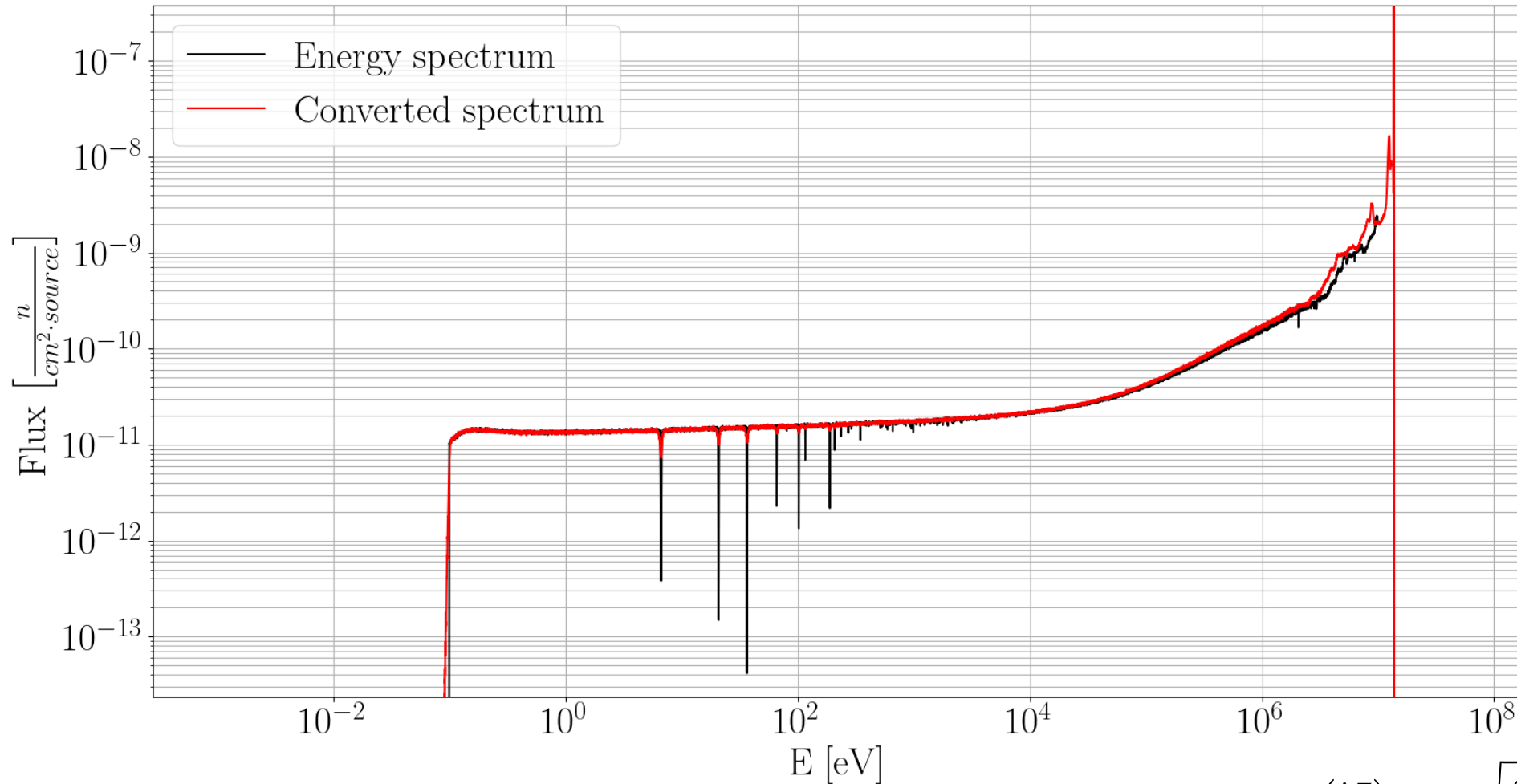
La NRTA comporte deux aspects essentiels :

1- Résolution: $\left(\frac{\Delta E}{E}\right)_{\text{rec}} = 2\sqrt{\left(\frac{\Delta t}{t}\right)^2 + \left(\frac{\Delta L}{L}\right)^2}$

Cela dépend de deux paramètres : la **distance de vol** et la **largeur de l'impulsion**.

Plus la distance de vol est grande et plus la largeur d'impulsion est faible, meilleure est la résolution.

Mesure obtenue pour une trajectoire de vol **d'un mètre** et une source idéale ($\Delta t = 0 \mu s$) avec un échantillon d'U-238 de $r = 15$ cm, $e = 0,1$ mm (20 g/cm^3).



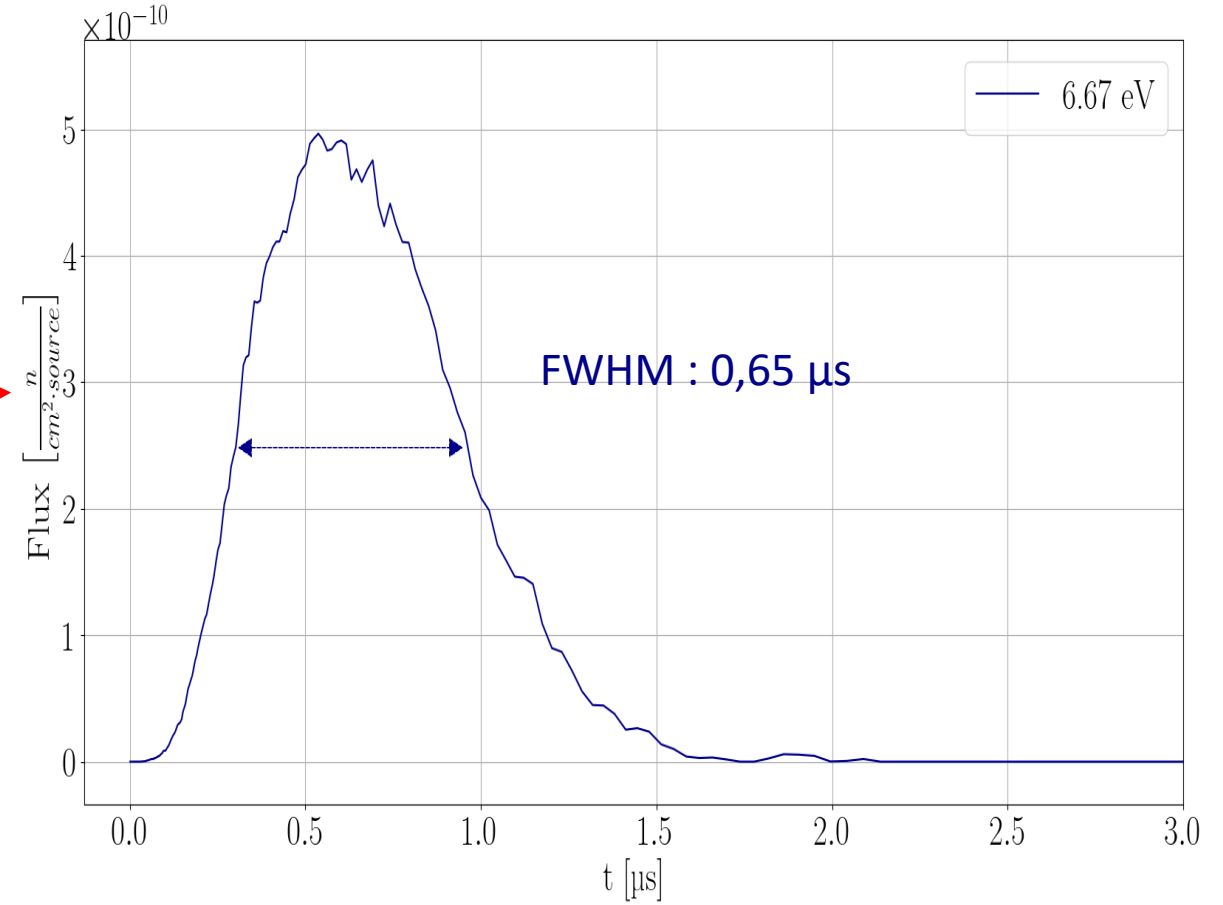
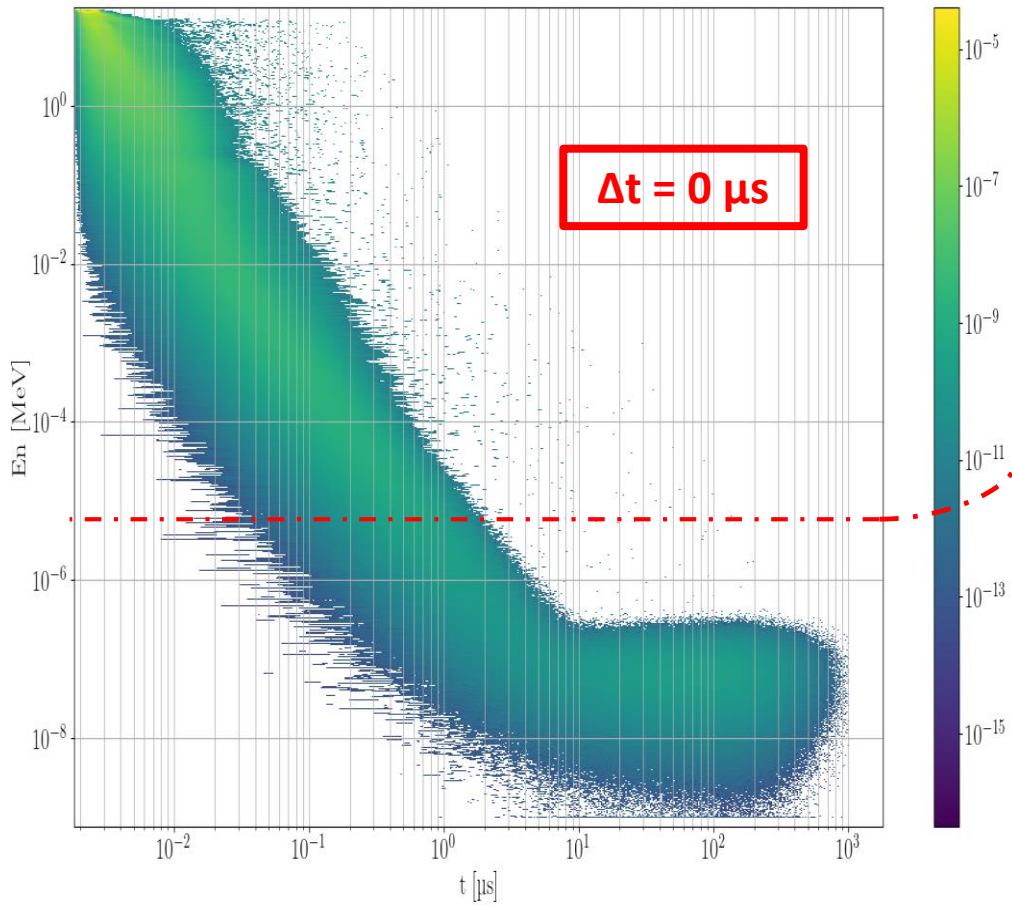
Dégradation du spectre temporel en raison d'une mauvaise résolution

$$\left(\frac{\Delta E}{E} \right)_{\text{rec}} = 2 \sqrt{\left(\frac{\Delta t}{t} \right)^2 + \left(\frac{\Delta L}{L} \right)^2}$$

Largeur de l'impulsion

Résolution du spectre converti :

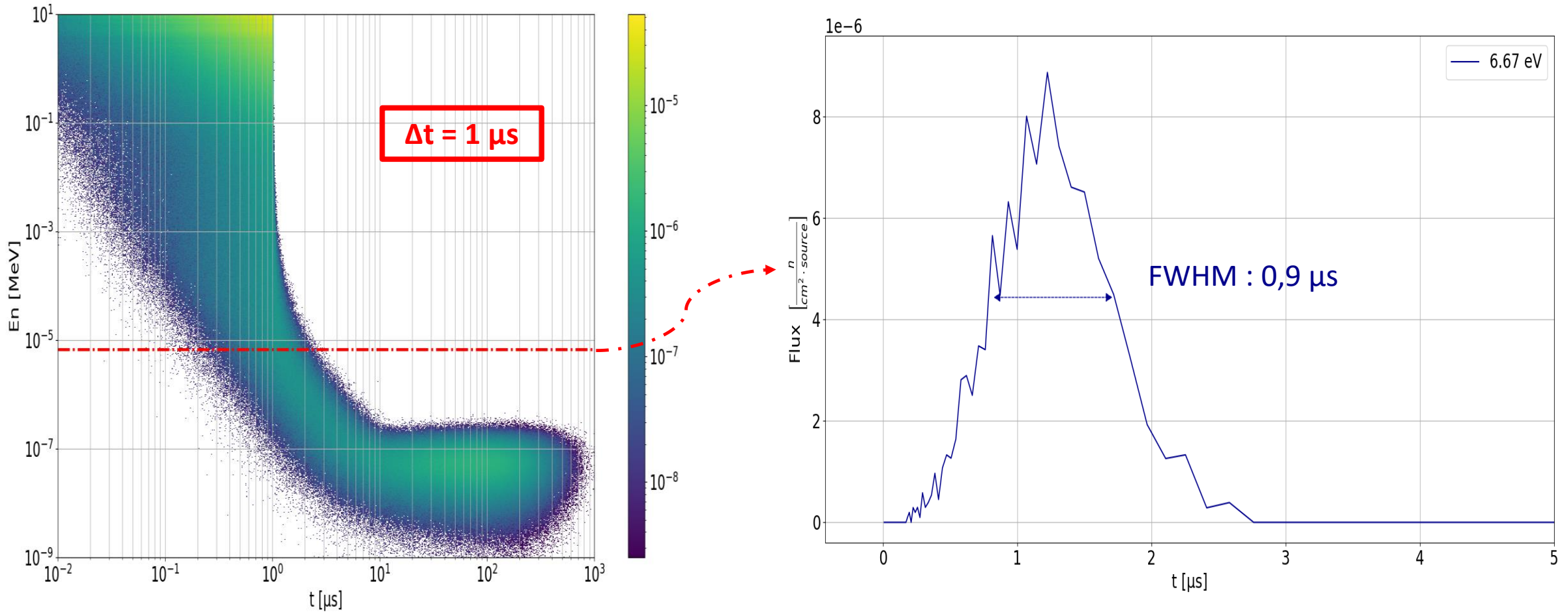
$$\left(\frac{\Delta E}{E}\right)_{\text{rec}} = 2 \sqrt{\left(\frac{\Delta t}{t}\right)^2 + \left(\frac{\Delta L}{L}\right)^2}$$



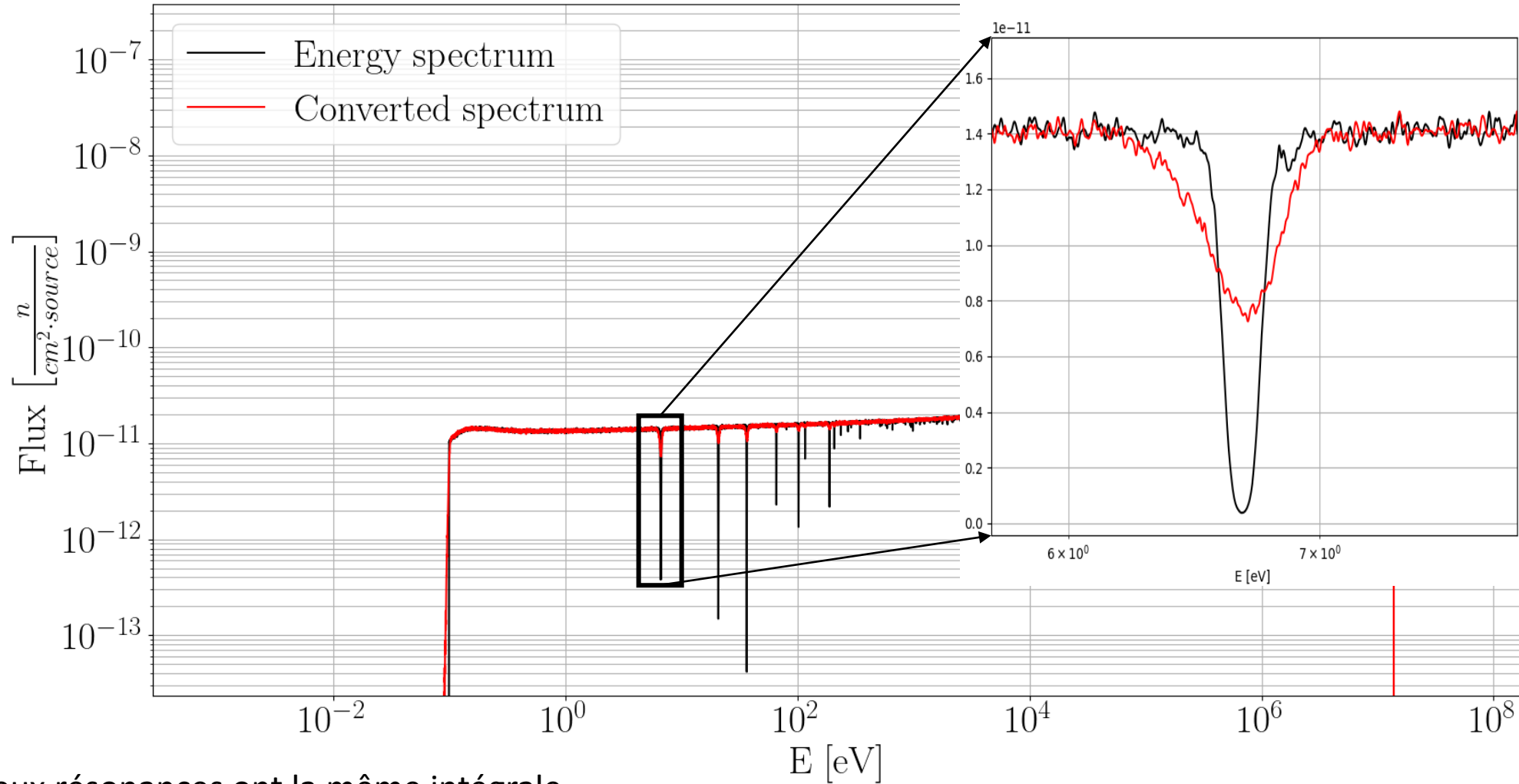
source idéale ($\Delta t = 0 \mu\text{s}$) \rightarrow FWHM: 0,7 μs

Résolution du spectre converti :

$$\left(\frac{\Delta E}{E}\right)_{\text{rec}} = 2 \sqrt{\left(\frac{\Delta t}{t}\right)^2 + \left(\frac{\Delta L}{L}\right)^2}$$



Augmentation du FWHM → Perte de résolution

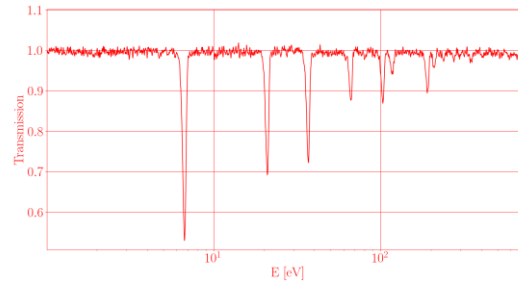
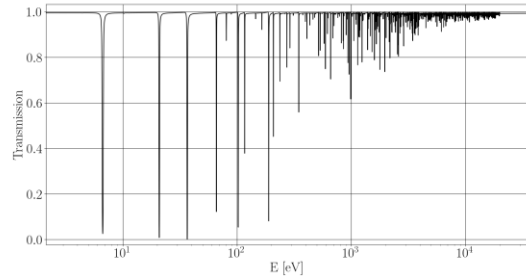


Les deux résonances ont la même intégrale

Perte de l'information sur la profondeur de résonance pour le spectre temporel (la correction de l'auto-absorption n'est pas possible)

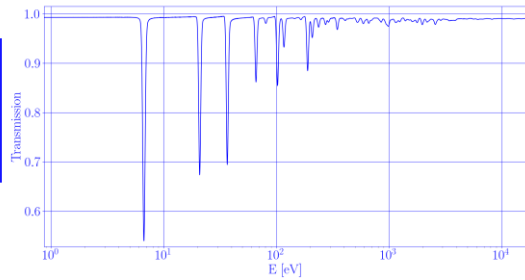
→ **Besoin d'une méthode de quantification des échantillons à l'aide du spectre de transmission temporelle**

$$T_{\text{Theo}} = \exp(-n\sigma)$$



$$T_{\text{Simu}} = \frac{\Phi_{\text{in}}}{\Phi_{\text{out}}}$$

$$T_{\text{Conv}} = T_{\text{theo}} * G(E)$$



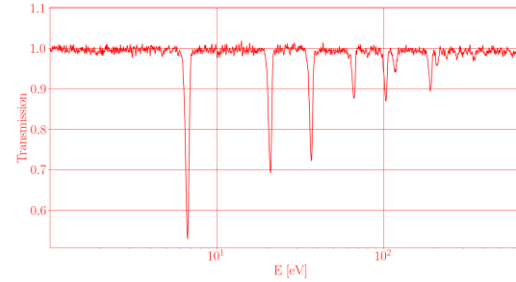
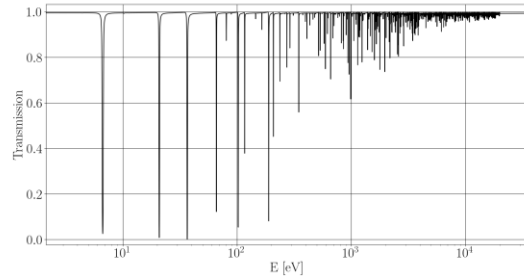
Comparaison

$$\chi^2 = \sum (T_{\text{conv}} - T_{\text{simu}})^2$$

Processus itératif

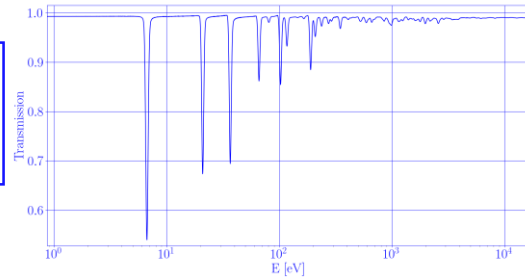
Ajustement n

$$T_{\text{Theo}} = \exp(-n\sigma)$$



$$T_{\text{Simu}} = \frac{\Phi_{\text{in}}}{\Phi_{\text{out}}}$$

$$T_{\text{Conv}} = T_{\text{théo}} * G(E)$$



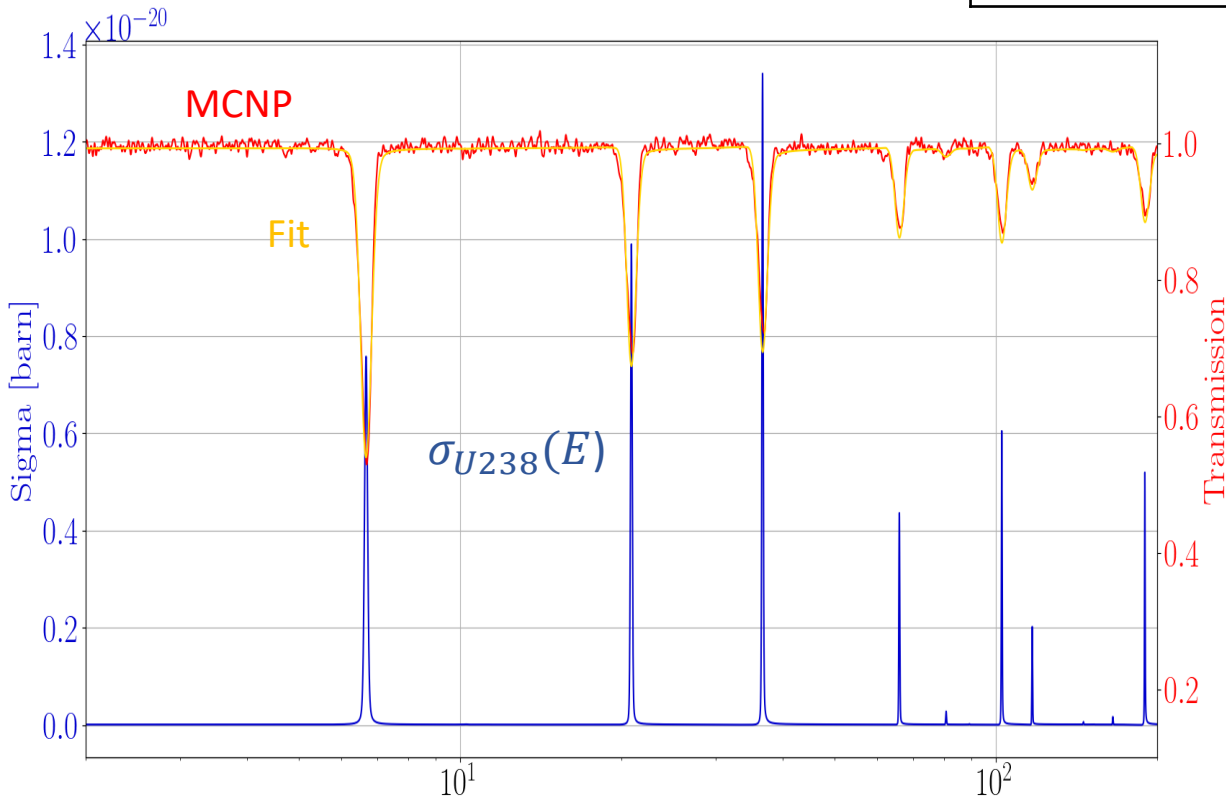
$$\chi^2 = \sum (T_{\text{conv}} - T_{\text{simu}})^2$$

Exemples

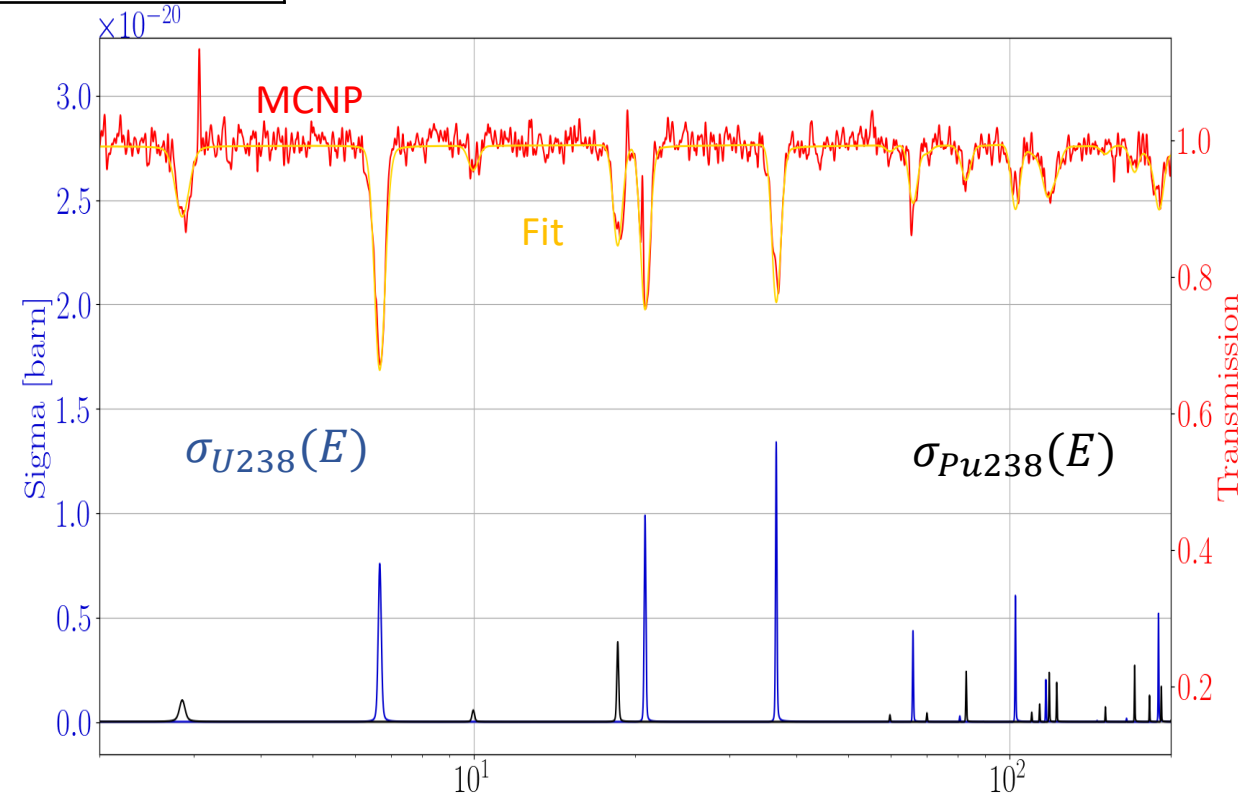
U-238 échantillon

Flight path	1 m
Beam width	0 μ s
Resolution	Gaussian
Samples	0,1 mm

U-238 /Pu-238
mixture (50/50)



Ecart_relatif \approx 4% pour U-238

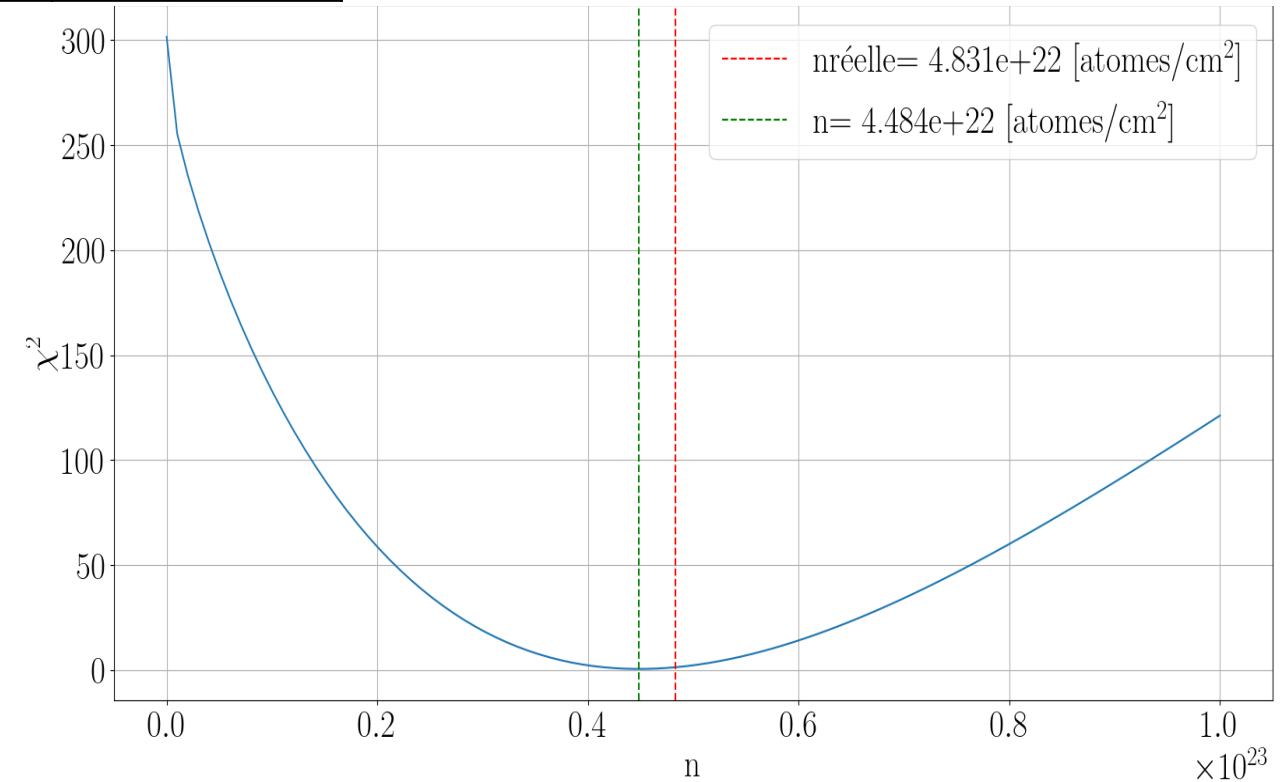
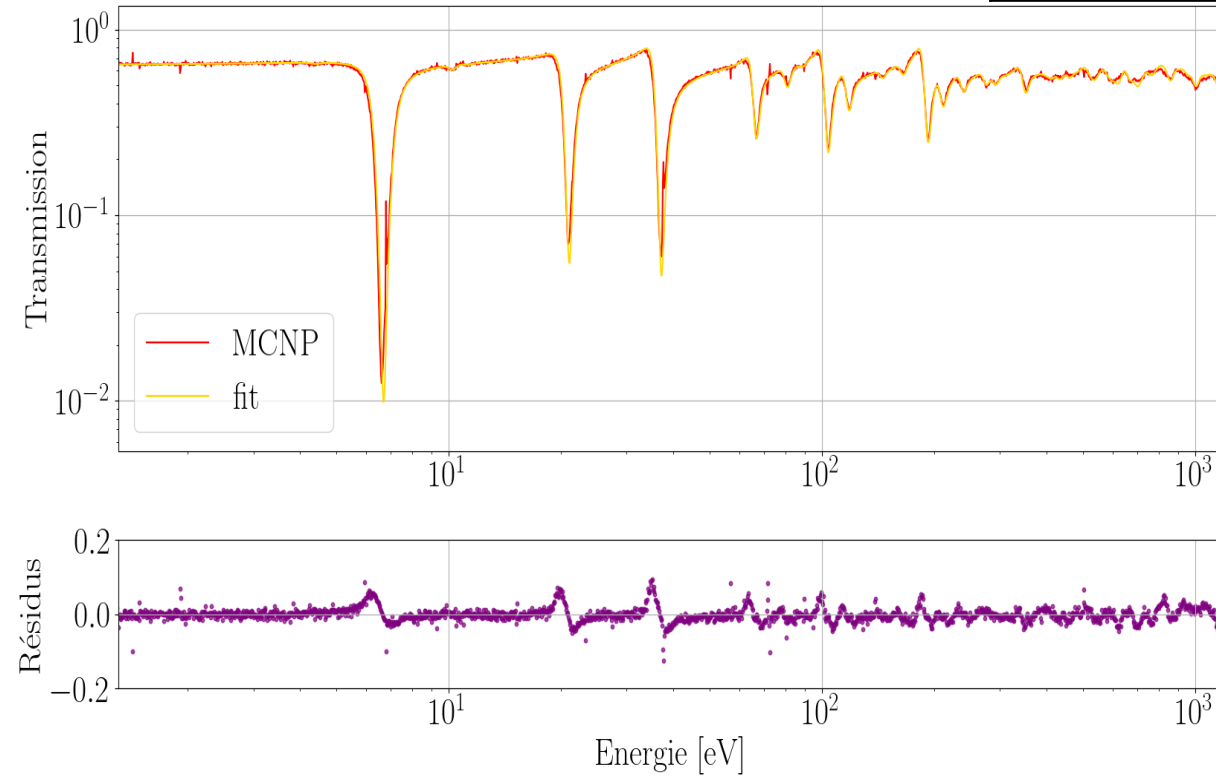


Ecart_relatif \approx 8% pour U-238 et Ecart_relatif \approx 8% pour Pu-238

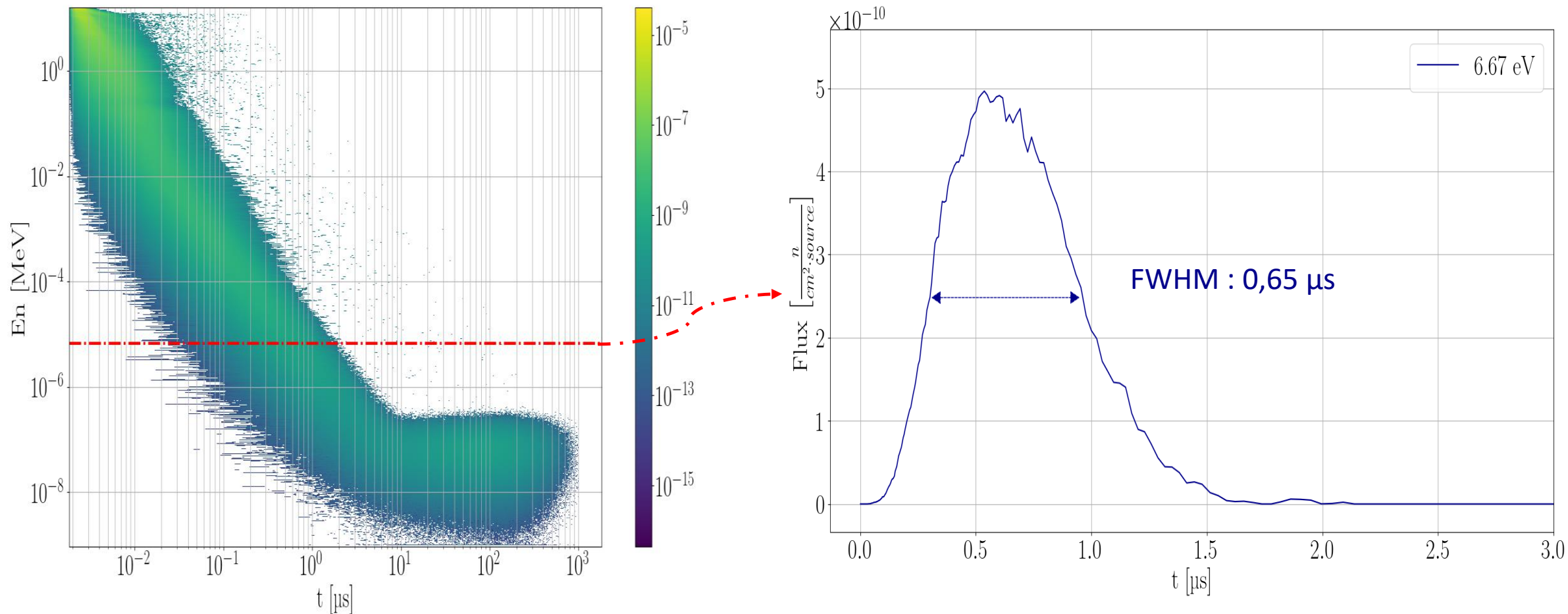
U-238 sample)

Flight path	1 m
Beam width	0 μ s
Resolution	Gaussian
Samples	1 cm

$$\frac{\Delta n}{n} \approx 7\%$$



Une méthode et une approche prometteuses



La forme de la fonction de résolution observée est une sorte de gaussienne avec une queue à droite.
→ **Nécessité d'améliorer la fonction de résolution utilisée dans le calcul**

La NRTA comporte deux aspects essentiels :

1- Résolution:
$$\left(\frac{\Delta E}{E}\right)_{\text{rec}} = 2\sqrt{\left(\frac{\Delta t}{t}\right)^2 + \left(\frac{\Delta L}{L}\right)^2}$$

Cela dépend de deux paramètres : la **distance de vol** et la **largeur de l'impulsion**.

Plus la distance de vol est grande et plus la largeur d'impulsion est faible, meilleure est la résolution.

2- Bruit de fond :

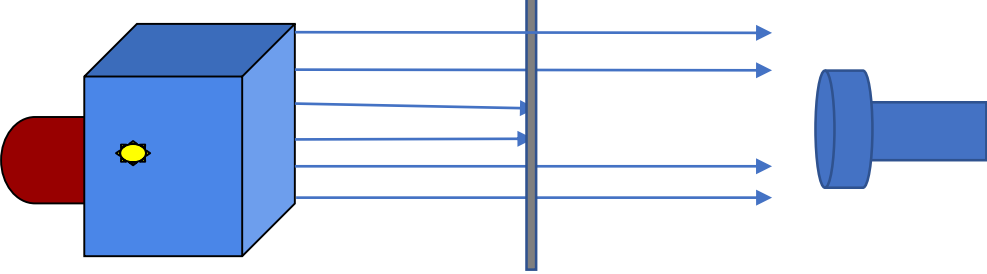
Neutrons directs : Neutrons qui atteignent le détecteur sans avoir traversé l'échantillon.

Neutrons diffusés : Neutrons qui ont été diffusés soit par l'échantillon, soit par l'environnement, et qui atteignent le détecteur sans fournir d'information utile sur la transmission directe à travers l'échantillon.

Rayons gamma : provenant de l'équipement (la principale contribution est l'interaction $1\text{H}(n,\gamma)2\text{H}$ dans le modérateur, qui produit un gamma de 2,2 MeV).

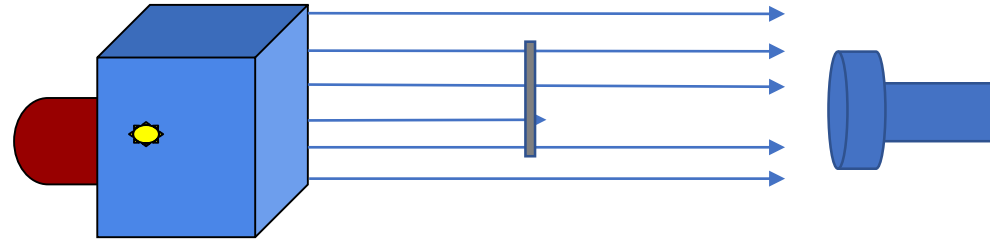
Neutrons overlap: Neutrons d'un cycle précédent ($t > 1/f$)

Background (neutrons directs)

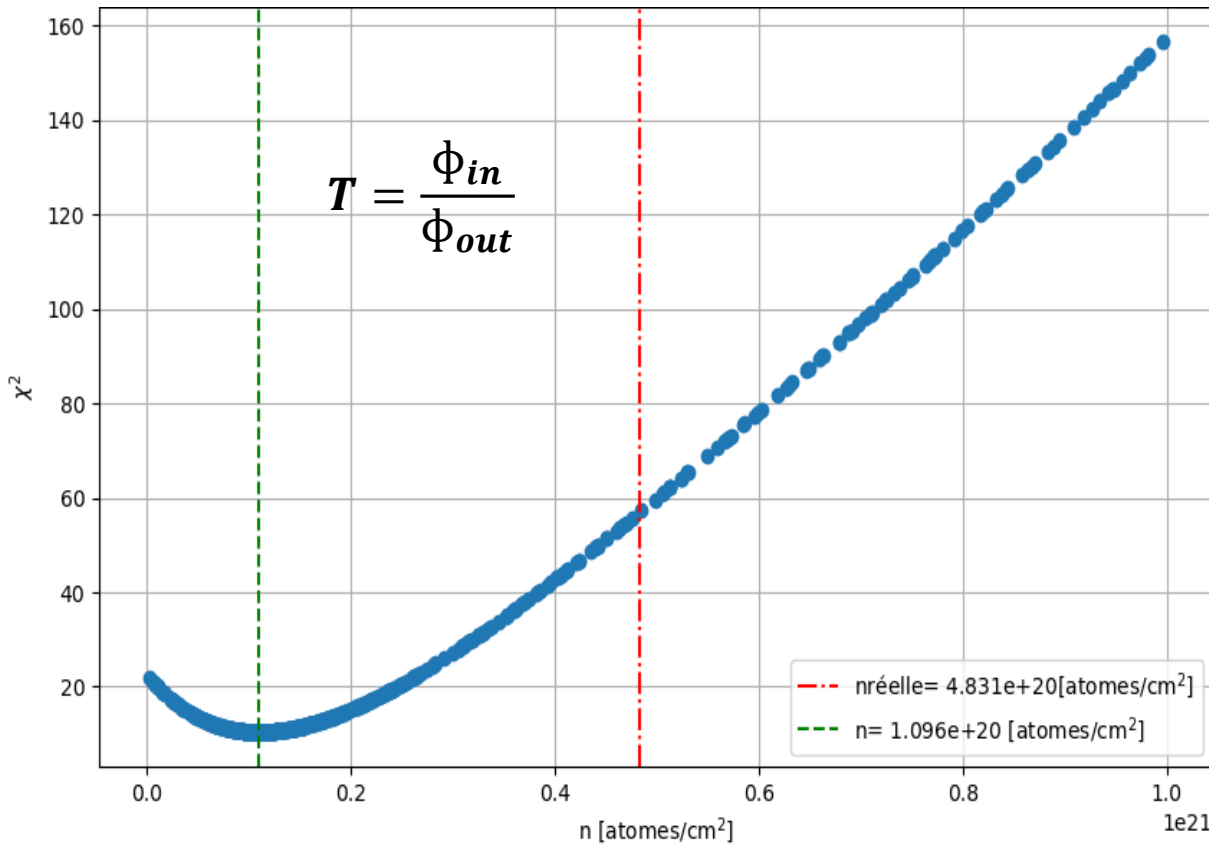


U238 r= 4cm,
e=0,1mm

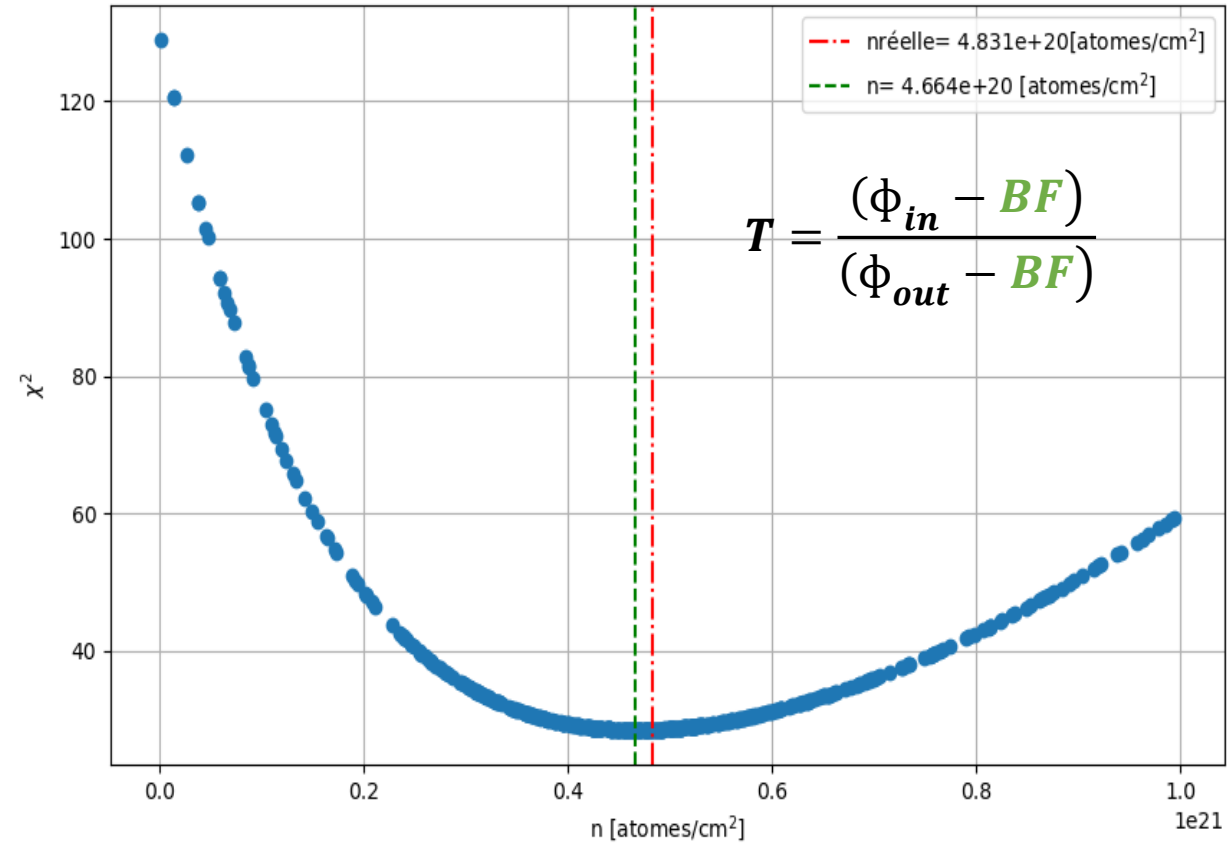
Background (neutrons directs)



U238 r= 4cm,
e=0,1mm



$$\frac{\Delta n}{n} \approx 77\%$$



$$\frac{\Delta n}{n} \approx 3\%$$


Conclusion et perspectives futures

Pour conclure, mon travail de thèse se résume donc à étudier la faisabilité industrielle de la technique NRTA. Pour cela, il va d'abord falloir développer un système de mesure industriel qui prendra en compte les contraintes imposées par ORANO, puis mettre en œuvre une méthode d'analyse indépendante des logiciels actuellement utilisés. Enfin, il sera nécessaire d'identifier et d'évaluer les différentes contraintes et limitations associées à ce système d'analyse.

Notre travail actuel a abouti à la mise en place d'une méthode efficace permettant de retrouver la quantité d'échantillons utilisée dans nos simulations. Bien que cette méthode soit fonctionnelle, elle nécessite encore des améliorations en termes de temps de calcul et d'optimisation pour mieux ajuster nos résonances.

Pour nos projets futurs, nous envisageons d'appliquer cette méthode à d'autres mélanges d'isotopes et d'étudier d'autres configurations expérimentales, tout en prenant en compte la résolution de la source ainsi que les contributions du bruit de fond.

Concernant la partie expérimentale de notre projet, nous envisageons de la faire à GELINA, étant donné l'expertise du JRC en ce qui concerne la technique et surtout leurs études sur des échantillons complexes et épais.



Merci pour votre
attention