

Effet des hétérogénéités de masse et d'activité sur l'évaluation de l'activité dans les gros colis de déchets radioactifs

B. ROTTNER¹

(Manuscrit reçu le 3 mars 2006, accepté le 10 mai 2006)

RÉSUMÉ L'activité d'un colis de déchets radioactifs est généralement évaluée à partir de mesures externes des rayonnements gamma émis, mesures associées à des fonctions de transfert. Ces fonctions de transfert sont calculées à partir d'une hypothèse de répartition homogène de la masse et de l'activité dans le colis. Mais cette hypothèse est rarement vérifiée : cet article évalue l'effet des hétérogénéités sur la mesure d'activité dans des familles de colis semblables : une erreur en résulte, avec une part systématique, conduisant à surestimer ou sous-estimer l'activité totale de la famille, et une part aléatoire, à moyenne nulle. Afin d'évaluer les effets des hétérogénéités, des familles de colis virtuels ont été générées par simulation numérique, avec prise en compte des caractéristiques connues de la famille réelle que doit représenter la famille virtuelle, et variation aléatoire, d'un colis de la famille à l'autre, des distributions exactes de masse et d'activité. Une méthode d'ajustement et de justification de la représentativité de la famille virtuelle est proposée, autorisant son utilisation comme modèle afin, d'une part, de correctement évaluer l'incertitude lors de la mesure d'activité et, d'autre part, de réduire cette incertitude. Les incertitudes ainsi estimées sont meilleures que $\pm 50\%$ sur des colis de 2 à 3 tonnes.

ABSTRACT Effect of mass and activity heterogeneities on the activity measurement of large packages of radioactive waste.

The activity of a radwaste package is usually evaluated from external gamma measurements associated with transfer functions. These transfer functions are calculated assuming that both activity and mass distributions are homogeneous. But generally, this is not the case: this paper evaluates the effect of heterogeneities on the activity measurements on families of similar waste packages: an error arises, with a systematic part, leading to an over or under-estimation of the overall activity in the family, and a stochastic part, whose mean effect is null. In order to evaluate the effect of heterogeneities, virtual families of radwastes packages have been generated, using numerical simulation, taking into account the known characteristics of the real family which the virtual family should describe, and random variation, from one package to another, of the exact distributions of mass and activity. A way to fit and demonstrate the representativeness of the virtual family is described, in order to firstly evaluate the uncertainty of the activity measurement, and secondly to reduce this uncertainty. The obtained uncertainties are in the range of $\pm 50\%$ for 2 to 3 tons packages.

keyword: radioactive waste / activity measurement / heterogeneity / uncertainty

¹ Division technologies en milieux extrêmes du Groupe ONET, Société ONECTRA, 36 boulevard des Océans, 13009 Marseille, France.

1. Introduction

L'évaluation de l'activité de déchets radioactifs est d'autant plus précise que la mesure unitaire concerne de petites quantités de déchets, mais il n'est pas toujours raisonnable, d'un point de vue pratique ou économique de réaliser cette évaluation sur de petits colis. Cet article étudie les effets des hétérogénéités dans les distributions de masse et d'activité lorsque la mesure concerne des colis de déchets volumineux et est réalisée à partir de mesures gamma externes (débits de dose, spectrométrie).

Dans ce cas, la fonction de transfert est habituellement calculée à partir d'une hypothèse de répartition homogène. Les incertitudes résultant des écarts par rapport à cette hypothèse sont difficiles à évaluer ; une approche sommaire peut consister à considérer un point chaud concentrant toute l'activité du colis, placé soit à la position la plus défavorable à la mesure, soit à la position la plus favorable. Cette approche conduit à des valeurs d'incertitudes rapidement rédhibitoires, par exemple, pour le colis cubique de 1 tonne décrit au paragraphe 2, le facteur de surestimation maximal est de 6,4 et le facteur de sous-estimation maximal est de $3,2 \times 10^{13}$!

De plus, cette approche ne donne aucune information sur les deux composantes de l'incertitude, l'une due à une erreur systématique, erreur responsable d'une éventuelle sur ou sous estimation de l'activité cumulée d'un lot de colis (ou de l'activité totale dans un centre de stockage), l'autre étant la composante aléatoire, de moyenne nulle.

Une approche théorique permet d'identifier les tendances principales ; la quantification de l'incertitude et de ses composantes se base sur la génération de familles virtuelles par simulation numérique.

Les familles virtuelles sont intégralement connues : les incertitudes correspondantes peuvent donc être calculées, mais ces résultats ne sont utiles que si ces familles sont effectivement représentatives des familles réelles qu'elles sont censées représenter.

La méthode OPROF_STAT (brevet Onectra n° INPI 0407013, « Procédé d'évaluation de l'activité radioactive d'un lot de colis radioactifs »), permet non seulement d'ajuster et de justifier cette représentativité, mais permet également de réduire l'incertitude due aux hétérogénéités.

EFFET DES HÉTÉROGÉNÉITÉS DE MASSE ET D'ACTIVITÉ

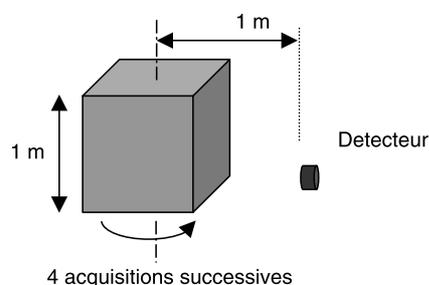


Figure 1 – Configuration de mesure typique.
Typical measuring configuration.

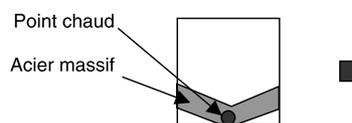


Figure 2 – Situation la moins favorable.
Less favourable configuration.

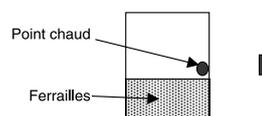


Figure 3 – Situation la plus favorable.
Most favourable configuration.

2. Exemple de référence

Afin d'illustrer la démarche, nous nous référerons au cas d'un colis cubique de 1 m^3 , contenant 1 tonne de ferrailles contaminées avec du ^{137}Cs (énergie d'émission gamma : 662 keV). La densité nominale de l'acier étant de $7\,900 \text{ kg/m}^3$, ce chargement, de densité apparente $1\,000 \text{ kg/m}^3$, correspond à des éléments en acier d'un volume total égal à 130 litres répartis de manière aléatoire dans le volume de 1 m^3 .

L'activité est mesurée par spectrométrie gamma, en 4 acquisitions, une acquisition par face verticale ; le détecteur est une diode en germanium hyper pur, située à 1 m de l'axe du colis (voir Fig. 1).

On suppose que le spectre somme issu des résultats d'acquisition est exploité à l'aide d'une fonction de transfert calculée selon l'hypothèse de répartition homogène de la masse et de l'activité dans le colis.

Une des situations les moins favorables est un point chaud, concentrant la totalité de l'activité, situé au milieu du fond de la boîte cubique, avec l'acier du chargement s'interposant sur tout le trajet dans le colis, depuis le point chaud, dans la direction du détecteur (voir Fig. 2) ; dans ce cas la mesure sous-estime l'activité d'un facteur $3,2 \times 10^{13}$.

Une des situations les plus favorables est un point chaud, concentrant la totalité de l'activité, situé au milieu d'une face verticale du colis, la masse du chargement étant concentrée dans la moitié inférieure du colis (voir Fig. 3) ; dans ce cas la mesure surestime l'activité d'un facteur 6,5.

Il faut toutefois noter que ces situations sont très improbables, d'une part parce que celui qui remplit le colis de déchets utilise au mieux le volume, et ne laisse pas de grands vides comme dans les situations favorables et défavorables, et d'autre part parce que l'éventuel point chaud est en principe éliminé avant le remplissage, comme déchet de catégorie supérieure (par exemple FA, faiblement actif, plutôt que TFA, très faiblement actif). Les facteurs 6,5 et $3,2 \times 10^{13}$ délimitent donc un intervalle d'incertitude extrêmement enveloppe. La méthode proposée ci-après vise à cerner l'incertitude de manière plus réaliste.

3. Définition d'une famille

La famille est caractérisée par le fait que les colis répondent tous à la même description « macroscopique » (dimension, masse, nature du chargement, radioéléments présents, par exemple ceux décrits au paragraphe 2), sont tous mesurés selon la même configuration (par exemple celle décrite au paragraphe 2), mais diffèrent l'un de l'autre par leurs caractéristiques « microscopiques » (distributions de masse et d'activité dans le colis).

Au-delà des caractéristiques « macroscopiques » ci-dessus, on peut faire entrer dans la définition de la famille toutes les caractéristiques connues d'une famille réelle : forme générale des objets constituant le chargement (tuyaux, IPN, ...), nature (contamination ou activation) de l'activité, distributions favorisées telles que concentration de l'activité au centre du colis, ou autre paramètre d'influence identifiable sur le lot de colis à caractériser.

4. Approche théorique

Considérons une famille quelconque de colis mesurés par spectrométrie gamma, et contenant un radioélément théorique émettant un photon d'énergie E par désintégration. La spectrométrie gamma permet d'évaluer une activité à partir de l'aire nette sous le pic d'absorption totale caractéristique de l'énergie d'émission E . Les diffusions du rayonnement gamma en-dehors du détecteur, notamment par effet Compton ne produisent aucun comptage dans cette aire nette.

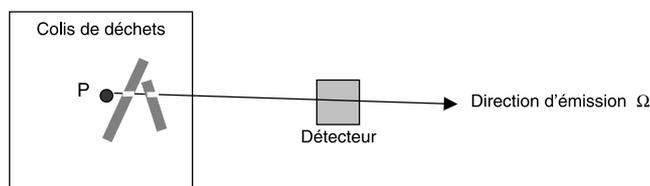


Figure 4 – Parcours dans le colis, pour un remplissage hétérogène.
Path from inside an heterogeneous package, to the detector.

Pour chaque point P d'un colis, l'efficacité de détection (nombre d'interactions dans le pic d'absorption totale divisé par le nombre de photons émis) s'écrit alors :

$$Eff(P) = \frac{1}{4\pi} \int \exp\left[-\left(\frac{\mu}{\rho}\right)_s \rho_0 x_n\right] Det(P, \Omega, E) d\Omega$$

- Ω est une direction quelconque au départ du point d'émission P , et $d\Omega$ est un élément d'angle solide autour de cette direction. Cette direction est définie dans un repère associé au colis ;
- $(\mu/\rho)_s$, en m^2/kg , est le coefficient d'atténuation massique de la matière constituant le déchet (par exemple : acier) ; il dépend de E ;
- ρ_0 , en kg/m^3 , est la densité nominale du déchet (typiquement $7\,900\,kg/m^3$ pour l'acier) ;
- x_n , en m, est le cumul du parcours dans l'acier, entre P et la sortie du colis (représenté dans la Fig. 4 par la somme des 2 segments jaunes), pour le colis numéro n de la famille ; il dépend de n , P et Ω ;
- $Det(P, \Omega, E)$, sans unité, est la probabilité qu'un photon d'énergie E émis du point P dans la direction Ω , et n'ayant subi aucune interaction ailleurs que dans le détecteur, produise une impulsion dans le pic d'absorption totale. Lorsque, comme dans l'exemple du paragraphe 2, la mesure est réalisée à partir du spectre somme de 4 acquisitions, $Det(P, \Omega, E)$ prend des valeurs non nulles dans les 4 directions des emplacements successifs du détecteur, avec des valeurs maximales de $1/4$ si le détecteur est suffisamment massif.

L'efficacité moyenne pour l'ensemble du colis numéro n s'écrit comme suit :

$$Eff_n = \frac{1}{4\pi V} \int_V \frac{A(n, P)}{A_n} \int \exp\left[-\left(\frac{\mu}{\rho}\right)_s \rho_0 x_n\right] Det(P, \Omega, E) d\Omega dV \quad (1)$$

- V , en m^3 , est le volume utile du colis ;
- dV , en m^3 , est un élément de volume dans V , centré sur le point P ;
- $A(n, P)$, en Bq/m^3 , est l'activité volumique au point P , dans le colis numéro n ;

- A_n , en Bq/m³, est l'activité volumique moyenne dans le colis numéro n :

$$A_n = \frac{1}{V} \int A(n, P) dV.$$

L'efficacité moyenne pour la famille des N colis s'écrit :

$$\overline{Eff} = \frac{1}{4\pi V N} \sum_{n=1}^N \int \frac{A(n, P)}{A_n} \int_{4\pi} \exp\left[-\left(\frac{\mu}{\rho}\right)_s \rho_0 x_n\right] \text{Det}(P, \Omega, E) d\Omega dV. \quad (2)$$

Si la répartition d'activité n'est pas corrélée à la répartition de masse (hypothèse 1), l'équation (2) peut s'écrire comme suit :

$$\overline{Eff} = \frac{1}{4\pi V} \int \frac{1}{N} \sum_{n=1}^N \frac{A(n, P)}{A_n} \int \frac{1}{N} \sum_{n=1}^N \exp\left[-\left(\frac{\mu}{\rho}\right)_s \rho_0 x_n\right] \text{Det}(P, \Omega, E) d\Omega dV. \quad (2.1)$$

Si la distribution de probabilité d'activité est homogène pour la famille de colis (hypothèse 2), alors :

$$\frac{1}{N} \sum_{n=1}^N \frac{A(n, P)}{A_n} = 1. \quad (3)$$

L'équation (2.1) peut alors être ré-écrite comme suit :

$$\overline{Eff} = \frac{1}{4\pi V} \int \int_{4\pi} \frac{1}{N} \sum_{n=1}^N \exp\left[-\left(\frac{\mu}{\rho}\right)_s \rho_0 x_n\right] \text{Det}(P, \Omega, E) d\Omega dV. \quad (2.2)$$

Comme la dérivée seconde de la fonction exponentielle est positive, l'inégalité suivante est toujours vraie :

$$\frac{1}{N} \sum_{n=1}^N \exp\left[-\left(\frac{\mu}{\rho}\right)_s \rho_0 x_n\right] > \exp\left[-\left(\frac{\mu}{\rho}\right)_s \frac{\rho_0}{N} \sum_{n=1}^N x_n\right]. \quad (4)$$

Cette inégalité peut être illustrée graphiquement par la figure 5.

Pour un colis homogène, $\bar{\rho}$ représente la densité apparente de chargement, et x_0 est le parcours dans le colis entre le point d'émission P et la sortie du colis (voir Fig. 6).

L'efficacité pour le colis homogène (en masse et activité) s'écrit :

$$Eff_0 = \frac{1}{4\pi V} \int \int_{4\pi} \exp\left[-\left(\frac{\mu}{\rho}\right)_s \bar{\rho} x_0\right] \text{Det}(P, \Omega, E) d\Omega dV. \quad (5)$$

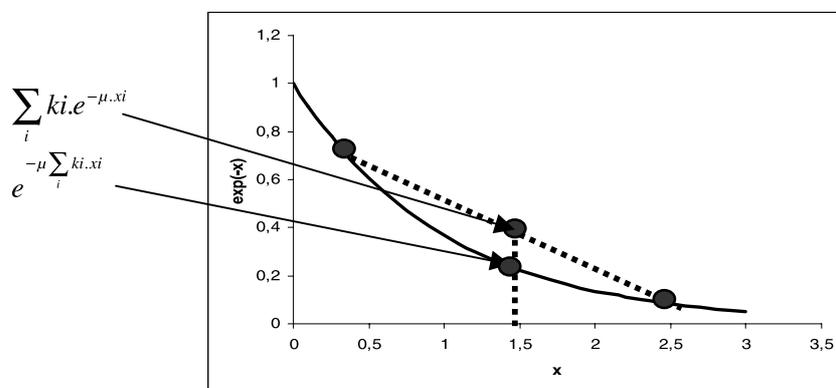


Figure 5 – Convexité de la fonction exponentielle.
Convexity of exponential curve.

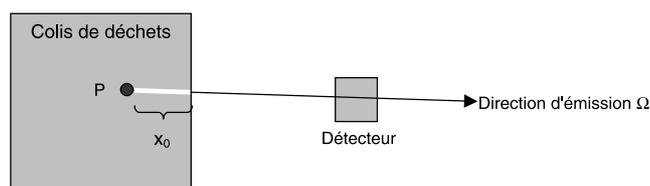


Figure 6 – Parcours dans le colis, pour un remplissage homogène.
Path from inside an homogeneous, to the detector.

Si la distribution de probabilité de masse est homogène pour la famille de colis (hypothèse 3), alors :

$$\frac{\rho_0}{N} \sum_{n=1}^N x_n = \bar{\rho} x_0 \quad (6)$$

En utilisant les équations (6), (5), et (2.2), on peut ré-écrire l'inégalité (4) de la manière suivante : $\overline{Eff} > Eff_0$.

Cela signifie que, dans le cas où les 3 hypothèses sont vérifiées, l'utilisation d'une fonction de transfert calculée à partir d'un colis homogène conduit à une surestimation de l'activité (en moyenne sur un lot de colis semblables). Cette surestimation provient de l'hétérogénéité de la distribution de la matière dans chacun des colis, hétérogénéité qui se traduit, pour l'exemple du paragraphe 2, par le fait que le déchet n'occupe que 130 litres du volume utile de 1 m³.

Le raisonnement ci-dessus a permis d'identifier tous les paramètres d'influence susceptibles d'affecter l'efficacité moyenne. Un premier paramètre d'influence est l'hétérogénéité de la distribution de masse, il provoque systématiquement une augmentation de l'efficacité moyenne par rapport au cas homogène ; trois autres paramètres d'influence sont associés aux trois hypothèses et peuvent amplifier ou réduire, voire même inverser, l'augmentation de l'efficacité moyenne due à l'hétérogénéité de la distribution de masse.

- *Hypothèse 1* : non corrélation entre la masse et l'activité. En fait, la corrélation existe dans le cas général, et sa nature est différente selon le déchet : dans le cas de la contamination, l'activité est sur la surface des objets, dans le cas de l'activation, elle est répartie dans la masse des objets. Le paragraphe suivant étudie l'influence des différents types de corrélation possibles.
- *Hypothèse 2* : homogénéité de la distribution de probabilité d'activité (l'homogénéité de cette distribution de probabilité correspond à une situation où chaque colis peut être hétérogène, mais où, en moyenne sur la famille, chaque élément de volume doit contenir la même proportion de l'activité). Cette homogénéité peut ne pas être vérifiée lorsque par exemple l'activité a tendance à être plus concentrée au centre du colis.
- *Hypothèse 3* : homogénéité de la distribution de probabilité de masse. Cette homogénéité peut ne pas être vérifiée lorsque par exemple un tronçon d'échangeur ou de grosse tuyauterie est placé dans chacun des colis, puis éventuellement rempli d'autres déchets.

La démonstration de la surestimation due à l'hétérogénéité de la distribution de masse est basée sur la convexité de la fonction exponentielle (convexité définie par le signe de la dérivée seconde et utilisée pour l'établissement de l'équation (4)). Or, si l'exponentielle est bien la fonction à utiliser lorsque l'on effectue une spectrométrie gamma dont le principe consiste à exploiter le pic d'absorption totale, il faut la multiplier par un coefficient rendant compte des comptages dus aux rayonnements diffusés (coefficient « build-up »), essentiellement par effet Compton, lorsque l'on fait du comptage gamma global ou de la mesure débit de dose. Il faudra, pour étendre la démonstration à ces cas, vérifier la convexité de la fonction résultante (exponentielle multipliée par build-up).

5. Génération et caractérisation d'une famille virtuelle type « cube »

La manière de générer une famille de colis virtuelle est décrite dans le présent chapitre en utilisant l'exemple simple de la famille type « cube ». Cet exemple permet également d'illustrer les effets prévus au paragraphe 4.

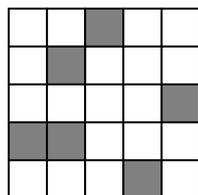


Figure 7 – Exemple d'un remplissage « cube » à 2 dimensions avec 5² éléments de volume et $Pc1 = 0,75$.
Example of a “cube” filling for a 2 dimensions 5² mesh ($Pc1 = 0.75$).

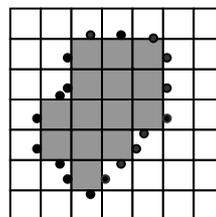


Figure 8 – Sites éligibles pour une contamination surfacique.
Eligible sites representing surface contamination.

Algorithme de remplissage en masse : le volume du colis est divisé en éléments de volume cubiques ; le nombre d'éléments de volume est uniquement limité par le temps de calcul : nous utilisons habituellement entre 25³ et 100³ éléments de volume.

L'algorithme de remplissage en masse génère pour chaque élément de volume un nombre aléatoire équiprobable dans l'intervalle]0,1[. Si ce nombre aléatoire est supérieur à un paramètre $Pc1$, l'élément de volume correspondant est considéré comme plein (densité nominale, par exemple 7 900 kg/m³ pour un déchet constitué de ferrailles), sinon il est considéré comme vide (densité nulle). Voir un exemple en figure 7.

Algorithme de remplissage en activité : la première étape consiste à définir des « sites éligibles », sur lesquels l'activité sera distribuée lors de la deuxième étape. Dans le cas correspondant à l'hypothèse 2 du paragraphe 4, chaque maille contient un site, au centre. Dans le cas d'une contamination, ces sites sont répartis à la surface des objets constituant le chargement, c'est-à-dire au milieu des faces d'éléments de volume qui séparent un élément de volume plein d'un élément vide (voir Fig. 8). Dans le cas de déchets activés, les sites éligibles sont plutôt au centre des éléments de volume pleins. On peut également imaginer un cas « anti-corrélé », où les sites éligibles sont au centre des éléments de volume vides. Ce dernier cas, moins réaliste, peut néanmoins représenter celui d'un mélange de ferrailles relativement peu actives avec des vinyles fortement contaminés.

En deuxième étape, pour chaque site éligible, un nombre aléatoire r est généré de manière équiprobable dans l'intervalle]0,1[, et l'activité attribuée au site éligible est :

$$A = \frac{r^{-P3}}{\sum_{Tous_sites} r^{-P3}}$$

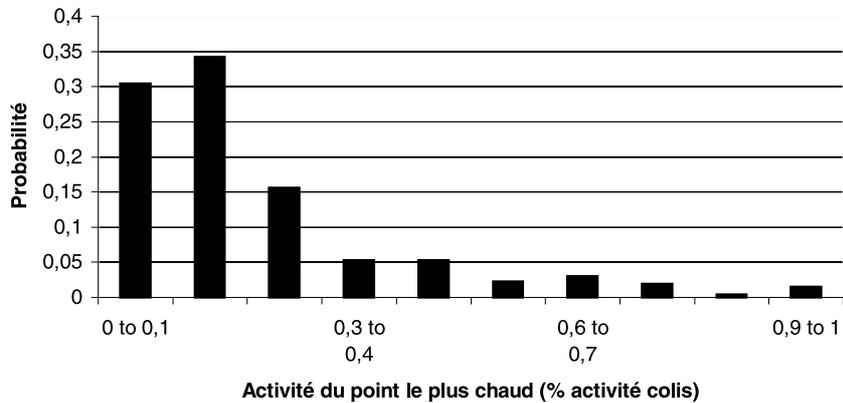


Figure 9 – Histogramme de probabilité : activité du point le plus chaud pour $P3 = 1$.
Biggest hot spot histogram for $P3 = 1$.

$P3$ est un paramètre de l'algorithme. L'activité totale est normalisée à 1 : sa valeur n'a pas d'influence sur le calcul d'une efficacité, seule la proportion de l'activité par site est importante.

Plus $P3$ est élevé, plus il est probable que la proportion d'activité emportée par le site éligible le plus actif soit importante ; pour $P3$ infini, l'activité est systématiquement concentrée en un seul point chaud.

L'histogramme de probabilité de cette proportion d'activité emportée par le site éligible le plus actif est représenté en figure 9, pour $P3 = 1$. Cet histogramme indique que 80 % des colis ne contiennent pas de point chaud rassemblant plus de 30 % de l'activité, ce qui constitue une hypothèse de travail raisonnable ; le paragraphe 7 présente une méthode permettant d'ajuster et justifier cette hypothèse.

Génération de la famille : les algorithmes de remplissage des colis virtuels utilisent des nombres aléatoires, ce qui a pour effet de produire une série de colis virtuels (une famille virtuelle), chacun répondant à un ensemble de critères macroscopiques (dimensions, masse, etc. voir paragraphe 3) et à des règles générales de remplissage (les algorithmes), mais tous différents en termes de distributions de masse et d'activité.

Résultats : chaque membre de la famille étant connu précisément, nous avons pu calculer pour chacun l'efficacité (formule (1), paragraphe 4) d'une mesure de spectrométrie gamma, c'est-à-dire, pour la géométrie de mesure décrite au

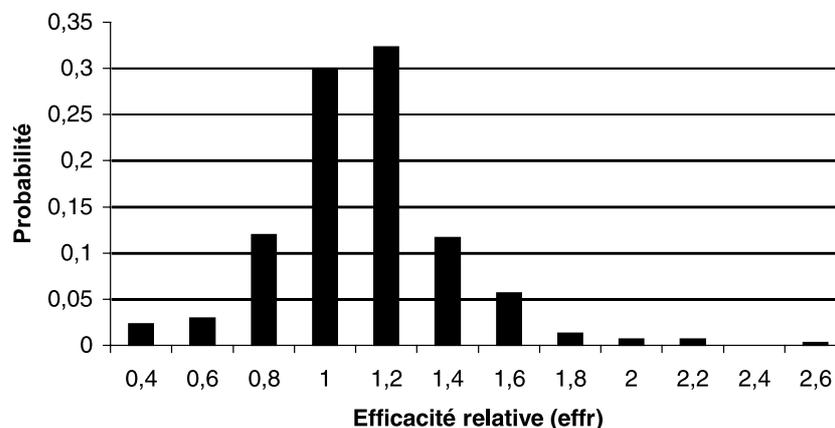


Figure 10 – Histogramme de l'efficacité relative, famille « cube », cubes de 4 cm de côté, densité apparente 1 000 kg/m³.

Relative efficiency histogram for a “cube” family, 4 cm cubes, apparent density 1 000 kg/m³.

paragraphe 2, le nombre R d'évènements détectés (par exemple dans le pic 662 keV du ¹³⁷Cs) lors des 4 acquisitions sur les 4 faces (R est la somme des 4 acquisitions), divisé par le temps d'acquisition total T (somme des 4 temps d'acquisition) et par l'activité du colis n :

$$Eff_n = \frac{R}{TA_n}.$$

L'efficacité relative, $Eff_{r,n}$, est le rapport de l'efficacité pour le colis n , Eff_n , à l'efficacité Eff_0 calculée pour une distribution homogène (formule (5), paragraphe 4) :

$$Eff_{r,n} = \frac{Eff_n}{Eff_0}.$$

Nous avons calculé Eff_n sur chacun des 300 membres d'une famille type « cube » ($Pc1 = 0,8734$ pour une densité apparente de 1 000 kg/m³), avec 25³ éléments de volume, sites éligibles à la surface des objets (cas d'une contamination : l'hypothèse 1 du paragraphe 2 n'est pas vérifiée), $P3 = 1$ (80 % des colis ne contiennent pas de point chaud rassemblant plus de 30 % de l'activité). L'histogramme de distribution des efficacités relatives est représenté en figure 10. L'efficacité relative moyenne est de 1,22, ce qui signifie qu'une fonction de transfert homogène surestime l'activité d'un lot de colis de ce facteur.

L'écart type sur l'efficacité relative est de 24 %, ce qui signifie que, une fois la surestimation corrigée, l'incertitude résiduelle sur la mesure de l'activité de chaque colis est de 48 % (2 écarts type pour un niveau de confiance de 95 %) : ce résultat est bien loin du facteur d'incertitude estimé au paragraphe 2 ($3,2 \times 10^{13}$).

5.1. Influence de la corrélation masse-activité

Nous avons modélisé des familles semblables, avec les types de corrélation masse-activité cités plus haut :

Type de corrélation	anti-corrélation	non corrélé	contamination	activation
Facteur de sur ou sous-estimation	1,95	1,74	1,22	0,76

Le cas non corrélé vérifie les 3 hypothèses du paragraphe 4 : la surestimation constatée, d'un facteur 1,74, confirme et quantifie l'effet de surestimation prévu dans ce chapitre.

L'influence du type de corrélation est forte, et, dans le cas de l'activation, l'emporte sur l'effet de l'hétérogénéité de la distribution de la matière, pour provoquer une sous-estimation.

Dans ce dernier cas, nous avons utilisé un modèle produisant 64 sites éligibles distribués dans le volume de chaque cube plein, plutôt qu'un seul site par cube plein, afin d'éviter de ne modéliser que le simple enfouissement des sites éligibles au milieu de cubes d'acier massif de 4 cm de côté.

5.2. Influence de l'hétérogénéité de la distribution de la matière

Dans le cadre de la famille « cube », le degré d'hétérogénéité de distribution de masse est quantifiable par la taille du cube : l'élément de volume infiniment petit correspond à une distribution de masse homogène.

Nous avons vérifié que la surestimation prévue au chapitre 4 varie bien avec la taille de l'élément de volume : plus les éléments de volume sont petits, plus le facteur de surestimation se rapproche de 1 (Fig. 11).

5.3. Influence du degré d'hétérogénéité de la distribution d'activité

Ce degré d'hétérogénéité est réglé dans notre modèle par le paramètre $P3$, et peut être quantifié par la probabilité pour qu'un point chaud contienne une part significative de l'activité (80 % des colis ne contiennent pas de point chaud rassemblant plus de 30 % de l'activité, pour $P3 = 1$). L'approche théorique du paragraphe 4 n'identifie pas le degré d'hétérogénéité de la distribution d'activité

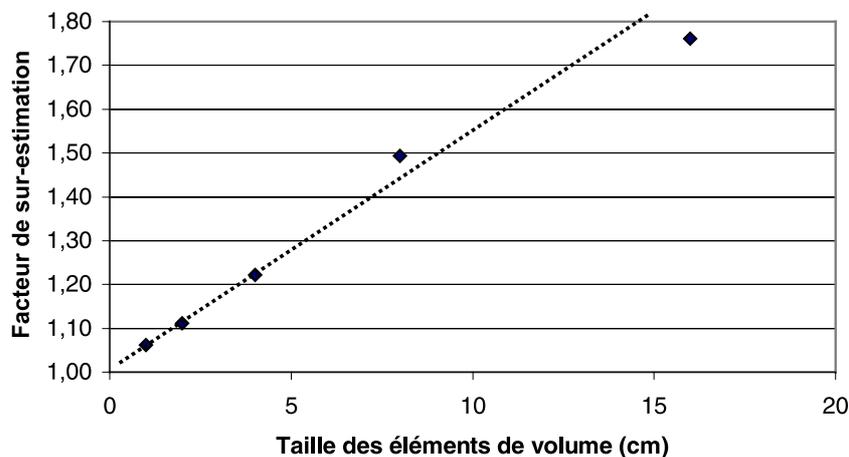


Figure 11 – *Facteur de surestimation en fonction de la taille des éléments de volume.*
Over-estimation factor with respect to the side of the cubes.

comme paramètre d'influence sur l'efficacité moyenne, et prévoit donc l'absence de variation du facteur de surestimation en fonction de ce degré d'hétérogénéité.

Effectivement, lorsque l'on fait varier $P3$, dans le cas de cubes de 4 cm contaminés, les histogrammes s'élargissent (l'écart type augmente), sans que la valeur moyenne ne soit significativement affectée :

$P3$	1	1,5	∞
Proportion de colis avec un point chaud rassemblant plus de 30 % de l'activité	20 %	70 %	100 %
Facteur de surestimation (= efficacité relative moyenne)	1,22	1,19	1,20
Ecart type (%)	24	46	79

6. Autres algorithmes de remplissage

Les familles type « cube » ne sont pas très représentatives d'un déchet constitué de ferrailles ; la distribution de masse représentée en figure 7, que l'on pourrait décrire comme une émulsion d'acier dans l'air, est très peu probable. On trouve plutôt un enchevêtrement de pièces métalliques relativement fines.

Nous avons donc essayé de construire une famille plus proche de la réalité, avec un algorithme appelé « plaquettes ». Le volume utile est également maillé selon des éléments de volume parallélépipédiques : l'algorithme de remplissage en masse génère pour chaque face de chaque élément de volume un nombre aléatoire

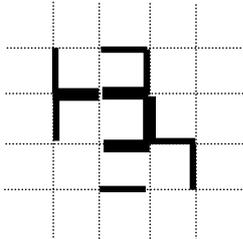


Figure 12 – Résultat typique d'un algorithme « plaquettes ».
Typical result of a "platelets" algorithm.

équiprobable dans l'intervalle $]0,1[$. Si ce nombre aléatoire est supérieur à un paramètre $Pp1$, la face d'élément de volume correspondante est considérée comme couverte d'une plaquette (voir Fig. 12) d'une épaisseur définie comme paramètre de l'algorithme et de densité égale à celle de l'acier massif. Le reste du volume est considéré comme vide. Nous avons constaté, pour un colis de type caisson 5 m^3 (volume utile $1,45 \times 1,45 \times 1,3\text{ m}^3$), rempli de ferrailles avec une densité apparente de $1\,000\text{ kg/m}^3$, radioélément ^{60}Co , maillage $25 \times 25 \times 25$, et des plaquettes de 5 mm d'épaisseur :

- qu'il n'y a ni surestimation ni sous-estimation quand les sites éligibles sont sur les faces externes des plaquettes existantes : la surestimation du cas général est compensée par un effet de corrélation masse-activité lié à l'enfouissement de certains sites éligibles entre 2 plaquettes adjacentes ;
- 6 % de surestimation quand les sites éligibles sont sur les faces internes des plaquettes existantes : ce cas représente celui de la contamination. L'effet de surestimation est plus faible que dans le cas de la famille « cube » à cause de l'épaisseur moindre des plaquettes, et est partiellement compensé par la corrélation masse activité associée au cas de la contamination ;
- 33 % de surestimation quand les sites éligibles sont au milieu des éléments de volumes (avec ou sans plaquettes). La surestimation due à l'hétérogénéité de la distribution de masse n'est plus compensée par la corrélation masse activité.

Des résultats expérimentaux relatifs à cette famille plaquette sont décrits au paragraphe 9.

D'autres algorithmes ont été construits, pour la représentation de cas spécifiques :

- rangement de tuyaux, périodique et parallèle : nous avons constaté que pour des tuyaux minces (5 mm), la surestimation due à l'hétérogénéité de la distribution de masse l'emporte sur la sous-estimation due à l'enfouissement de l'activité à l'intérieur des tuyaux ;
- objets massifs et creux, tels que gros robinets, présents dans le chargement : le principal paramètre d'influence est la proportion de l'activité piégée à

l'intérieur de l'objet ; dans le cas où l'intérieur de l'objet n'est pas actif, un net effet de surestimation apparaît. Cette surestimation se transforme rapidement en sous-estimation si l'objet est contaminé en interne.

D'une manière générale, tous les paramètres connus d'une famille réelle sont pris en compte pour la construction de la famille virtuelle, seuls varient les paramètres inconnus (répartition de l'activité à l'intérieur des tuyaux, par exemple).

7. Représentativité

Les calculs sur les familles virtuelles permettent d'obtenir des données très utiles (facteur de surestimation ou sous-estimation systématique, écarts type), à condition que la famille virtuelle soit effectivement représentative de la famille réelle, et que cette représentativité puisse être justifiée. Pour ce qui concerne la distribution de masse, il est envisageable de baser cette justification sur des observations et mesures simples sur les remplissages de colis, mais il est beaucoup plus difficile de justifier un modèle de distribution d'activité de cette manière. La méthode présentée dans ce chapitre vise à surmonter cette difficulté.

Dans ce but, nous définissons un « indicateur d'atténuation » : l'atténuation du rayonnement gamma à l'intérieur du colis est le principal phénomène physique responsable des écarts par rapport au cas homogène. L'indicateur d'atténuation doit, comme son nom l'indique, être défini de manière à être corrélé à l'atténuation elle-même.

Selon le spectre de radioéléments, la taille du colis, sa densité apparente et l'épaisseur des parois, on peut utiliser l'un des 2 indicateurs suivants :

- un rapport de 2 pics gamma, si un des émetteurs gamma présents (ou deux émetteurs corrélés) émettent à deux énergies suffisamment différentes (^{110m}Ag ou ^{152}Eu , dans certains cas ^{60}Co , mais les énergies des deux pics de ce dernier radioélément sont très proches). Plus l'atténuation est forte, plus le rapport des signaux du pic d'énergie élevée à celui de plus faible énergie augmente ;
- un rapport dégradé sur pic ; le dégradé est défini ici comme le comptage supplémentaire dû à la présence du pic dans une bande d'énergies inférieures à celle du pic (voir Fig. 13). La bande d'énergie est choisie au cas par cas en fonction de l'énergie du pic, des taux de comptage attendus (plus ils sont élevés, plus on peut se permettre le choix d'une bande étroite) et de la configuration de mesure ; d'une manière générale, on cherchera à utiliser uniquement la bande comprise en entre le front d'échappement des photons Compton et le pic lui-même, parce que le comptage dans cette zone dépend essentiellement de l'atténuation dans le colis.

Plus l'atténuation est forte, plus le rapport du dégradé au pic est important.

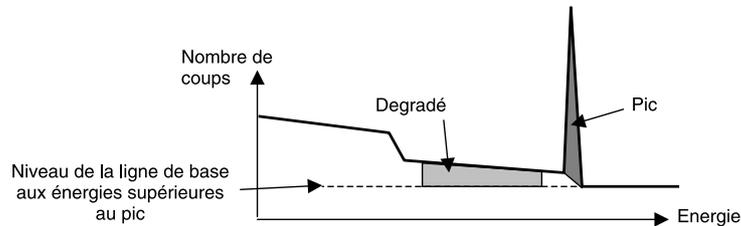


Figure 13 – Surface du pic et du dégradé.
Peak and degraded areas, in a gamma spectrum.

L'indicateur d'atténuation, contrairement à l'efficacité, est directement accessible à la mesure, pour chaque colis, à partir des spectres gamma obtenus.

L'indicateur d'atténuation est également calculé à partir de la modélisation du spectre somme associé à chacun des colis virtuels. Dans le cas de l'indicateur basé sur un rapport pic/dégradé, le calcul doit modéliser les diffusions par effet Compton ; nous employons la méthode de Monte-Carlo pour simuler la diffusion du rayonnement gamma dans la matière par effet Compton et effet photoélectrique, et obtenir le détail du spectre comme résultat du calcul.

Pour l'exemple du paragraphe 2, où l'activité provient du ^{137}Cs , le signal produit par les raies X du descendant radioactif direct, le $^{137\text{m}}\text{Ba}$ (32 à 36 keV) n'est pas exploitable, le seul pic utile est la raie gamma du $^{137\text{m}}\text{Ba}$ à 662 keV : on utilise donc un rapport dégradé sur pic comme indice d'atténuation. L'histogramme de sensibilité de la figure 10 correspond alors à un histogramme des indicateurs d'atténuation, voir figure 14. La valeur moyenne de cet indicateur, 0,51 (en relatif par rapport à la valeur pour le cas homogène), est cohérente avec une efficacité moyenne supérieure à celle du cas homogène.

La représentativité de la famille virtuelle est ajustée par variation des algorithmes de remplissage et de leurs paramètres, jusqu'à obtenir un accord satisfaisant entre les histogrammes d'indicateur d'atténuation mesuré et calculé (voir Fig. 15).

L'ajustement des histogrammes d'indice d'atténuation se base essentiellement sur la valeur moyenne de l'indice et sur l'écart type. La valeur moyenne de l'indice, comme celle de l'efficacité, dépend des paramètres identifiés au paragraphe 4 : hétérogénéité de distribution de masse, corrélation masse activité, hétérogénéité des distributions de probabilité.

EFFET DES HÉTÉROGÉNÉITÉS DE MASSE ET D'ACTIVITÉ

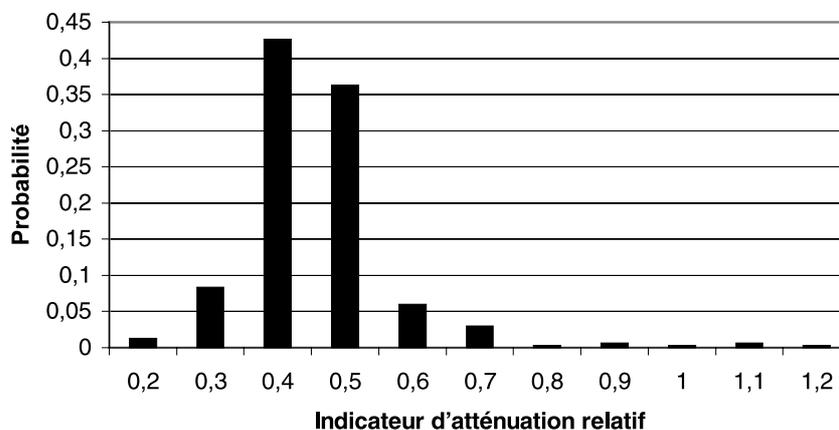


Figure 14 – Histogramme d'indicateur d'atténuation d'une famille cube 4 cm de côté, densité apparente 1 000 kg/m³.

Attenuation indicator histogram for a cube family, 4 cm cubes, apparent density 1 000 kg/m³.

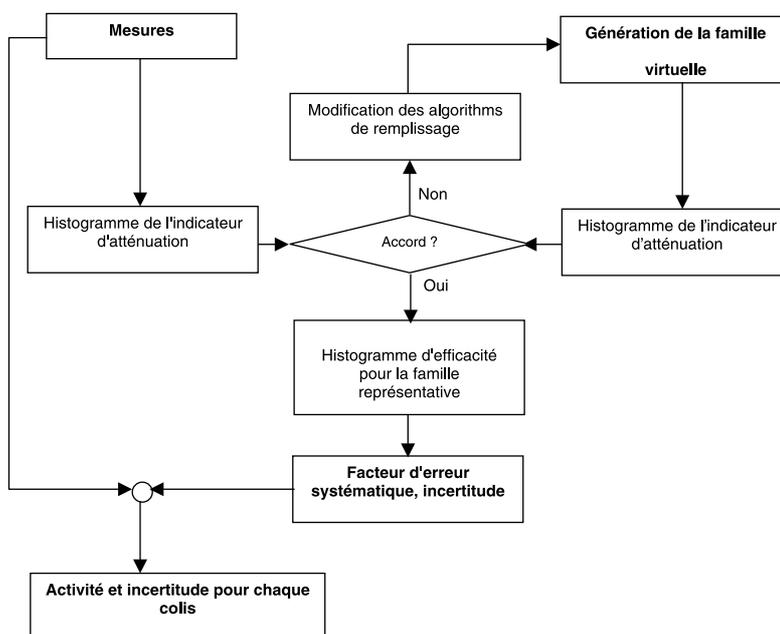


Figure 15 – Adaptation de la famille virtuelle et vérification de sa représentativité.

Adaptation of the virtual family, and check of it's representativeness.

Nous avons vérifié cette corrélation, par exemple sous l'influence de la corrélation masse activité dans le cas de la famille cube étudiée au paragraphe 5 (cubes de 4 cm) :

Type de corrélation masse/activité	anti-corrélation	non corrélé	contamination	activation
Facteur de sur ou sous-estimation (= efficacité relative moyenne)	1,95	1,74	1,22	0,76
Indicateur d'atténuation moyen relatif (par rapport au cas homogène)	0,38	0,42	0,68	1,20

Cette corrélation existe également lorsque la taille du cube de la famille étudiée au paragraphe 5 varie (cas de la contamination) :

Taille du cube (cm)	1	2	4	8	16
Facteur de surestimation (voir Fig. 11)	1,06	1,11	1,22	1,49	1,76
Indicateur d'atténuation moyen relatif (par rapport au cas homogène)	0,94	0,85	0,68	0,43	0,31

L'indicateur d'atténuation moyen varie de manière corrélée à l'efficacité moyenne, quelque soit le paramètre d'influence étudié. Néanmoins, ces paramètres d'influence étant multiples, il faut que le modèle prenne en compte le maximum d'informations disponibles : nature de l'activité (contamination ou activation), épaisseur et taille des objets, arrangements particuliers, ...

Une fois le modèle de distribution de masse ajusté, sur la base de la valeur moyenne de l'indicateur d'atténuation, le modèle de distribution d'activité doit être ajusté, en agissant sur le paramètre $P3$ (décrit au paragraphe 5), de manière à ce le modèle produise un histogramme d'indice d'atténuation avec un écart type conforme aux résultats de mesure.

Nous avons vérifié la corrélation entre écart type sur l'indice d'atténuation et celui sur l'efficacité sous l'influence du paramètre $P3$, par exemple dans le cas de la famille cube étudiée au paragraphe 5 (cubes de 4 cm, cas de la contamination) :

$P3$	1	1,5	∞
Facteur de surestimation	1,22	1,19	1,20
Ecart-type sur l'efficacité (%)	24	46	79
Ecart-type sur l'indice d'atténuation (%)	25	48	73

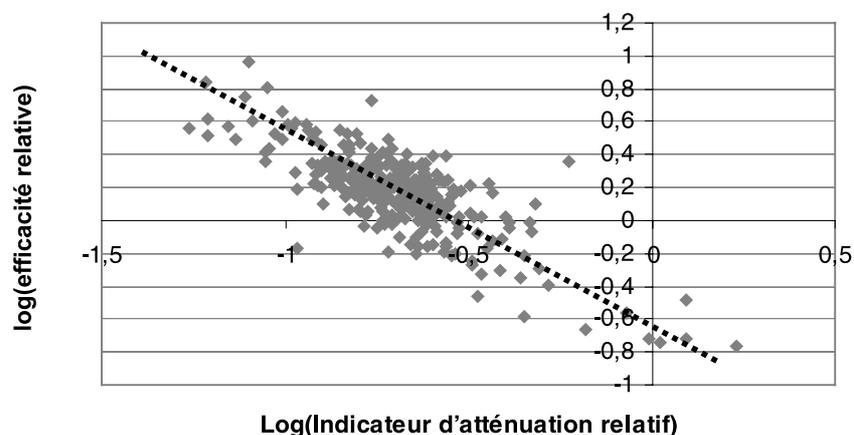


Figure 16 – Corrélation entre l'efficacité et l'indicateur d'atténuation (logarithmes népériens). Cubes de 8 cm de côté. Chaque point correspond à un colis.

Correlation between the efficiency and the attenuation indicator (Neperian logarithms). 8 cm sided cubes. Each point correspond to one package.

8. Réduction de l'incertitude grâce à l'indicateur d'atténuation

L'incertitude associée à la famille « cube » du paragraphe 5, avec des cubes de 8 cm de côté, dans cas de la contamination, est de 36 % (2 écarts type). La figure 16 montre la corrélation entre l'indicateur d'atténuation (qui peut être mesuré pour chaque colis réel) et l'efficacité (qui n'est à priori pas connue).

La famille se présente comme un nuage de points, nuage de forme approximativement linéaire (en échelle log/log) dont on peut représenter la valeur moyenne par l'équation (6) :

$$Eff = \alpha I_a^\beta. \quad (6)$$

- I_a est l'indicateur d'atténuation,
- α et β sont des coefficients déduits de la figure 16.

Cette équation (6) n'est pas rigoureusement exacte, parce que les points de la figure 16 ne sont pas sur la même droite ; la différence entre l'équation (6) et la position d'un point représentant un membre de la famille est l'erreur résiduelle. L'incertitude sur l'évaluation de l'activité de chaque colis, après correction par l'équation (6), est donc définie par l'épaisseur du nuage de points selon un axe vertical. Cette épaisseur est égale à la longueur du segment vertical qui englobe

95 % des points (pour un intervalle de confiance d'autant), vaut 0,4 points de logarithme au plus épais du nuage, et correspond donc à un rapport du maximum au minimum de 1,5, soit une incertitude d'environ ± 20 % autour de la moyenne des extrêmes, au lieu des ± 36 % sans correction.

Considérons comme autre exemple un caisson ANDRA 5 m³ (volume utile 1,45 × 1,45 × 1,3 m³) rempli de ferrailles avec une densité apparente de 1 000 kg/m³, contaminées avec du ⁶⁰Co. Lors du remplissage d'un tel colis, surtout si les ferrailles sont irradiantes, les intervenants auront tendance à placer au centre du colis les pièces les plus irradiantes, de manière à limiter leur dosimétrie et à respecter les règles de transport. De ce fait, l'hypothèse 3 du paragraphe 4 n'est pas respectée, et l'on s'attend donc à une sous-estimation.

Nous avons utilisé un remplissage en masse homogène, avec un maillage approximativement cubique de 13 × 15 × 15 mailles (1 000 kg/m³ dans chaque maille), et nous avons placé un nombre paramétrable de sites éligibles au centre du colis, de manière à simuler une concentration probable d'activité.

Comme prévu, les résultats montrent que plus la probabilité de concentrer l'activité au centre est importante, plus grande est la sous-estimation :

Proportion de sites éligibles au milieu (%)	0	50	90
Facteur de sous-estimation	0,98	0,55	0,18

Ces résultats montrent que si l'on ne connaît pas la proportion moyenne d'activité au centre, l'erreur potentielle est supérieure à un facteur 5.

La figure 17 montre la corrélation entre l'indicateur d'atténuation et l'efficacité. La corrélation, presque linéaire (en échelle log/log) suit approximativement la même droite quelle que soit la proportion de sites éligibles au centre. On peut donc corriger le résultat à l'aide de l'équation (6), et obtenir ainsi une incertitude résiduelle de l'ordre de ± 25 % (épaisseur verticale du nuage de points figure 18, toutes couleurs confondues), même en l'absence de toute information sur la proportion de sites éligibles au centre. Si l'on connaît cette proportion, l'incertitude peut encore être réduite.

Et si la proportion est inconnue, l'histogramme de l'indicateur d'atténuation permet de la mesurer.

9. Famille plaquette, résultats d'essais physiques

Nous avons constitué un colis cubique, de côté 1 m, en acier de 3 mm d'épaisseur. Ce caisson a été équipé de tubes en acier verticaux de section rectangulaires

EFFET DES HÉTÉROGÉNÉITÉS DE MASSE ET D'ACTIVITÉ

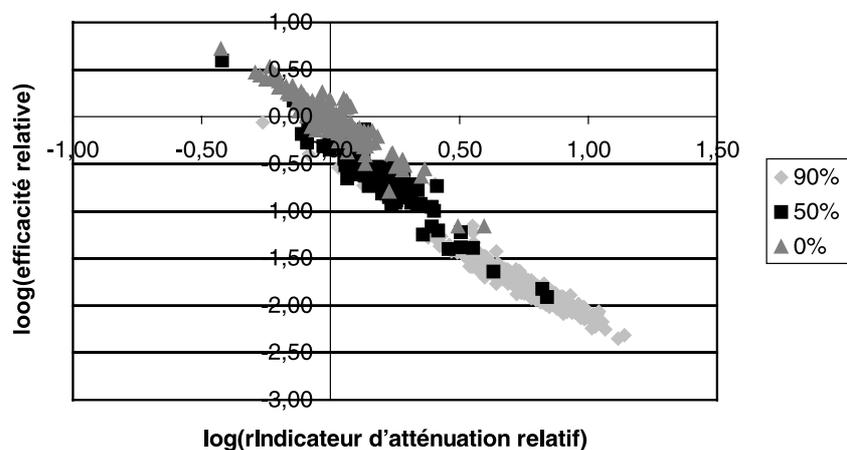


Figure 17 – Corrélation entre l'efficacité et l'indicateur d'atténuation (logarithmes népériens). Chaque point correspond à un colis. Chaque nuance de gris correspond à une concentration de points éligibles au centre.

Correlation between the efficiency and the attenuation (Neperian logarithms). Each grey correspond to a proportion of eligible points at the middle of the package. Each point corresponds to one package.

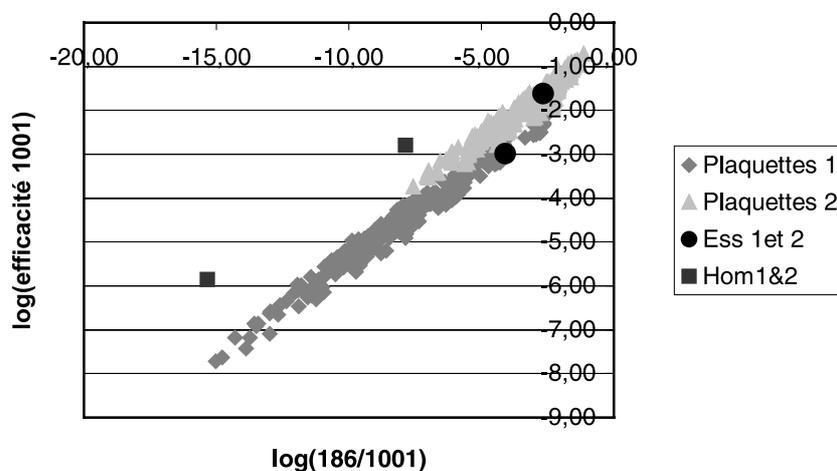


Figure 18 – Comparaison aux résultats expérimentaux : calculs sur les familles plaquettes (plaquettes 1 et plaquettes 2), calculs pour une distribution de masse homogène (Hom 1 et 2), résultats expérimentaux (Ess 1 et 2). Le point 1, d'efficacité la plus faible, est au milieu du colis.

Comparison with measurement results: computation results for platelets families (platelets 1 and 2), computation for an homogeneous mass distribution (Hom 1 and 2), and measurement results (Ess 1 and 2). Point 1, with the lowest efficiency, is at the middle of the package.

destinés à accueillir une source connue d'uranium. Un des tubes était sur l'axe du caisson, l'autre était au quart d'une diagonale. Le caisson ainsi équipé a été chargé de 1 840 kg de ferrailles non radioactives.

Ce colis a été mesuré par spectrométrie gamma (sur une seule face dans le cadre de ces essais), avec une diode germanium située à 1,5 m de l'axe du colis. Des acquisitions ont également été réalisées avec la source nue, sans le caisson, de manière à mesurer et prendre en compte son auto-atténuation.

Nous avons modélisé ce remplissage par des « plaquettes » de 3 cm d'épaisseur, divisant le colis en 1 000 mailles cubiques de 10 cm de côté chacune : le choix de ces paramètres a été guidé par l'aspect général des ferrailles. Leur forte épaisseur explique d'ailleurs la forte densité apparente observée.

Le paramètre $Pp1$ (définition paragraphe 6) est ajusté de manière à obtenir la densité apparente de remplissage de 1 840 kg/m³ : $Pp1 = 0,8524$ (ce qui signifie qu'environ 15 % des faces sont effectivement couvertes d'une plaquette).

Nous avons modélisé 2 familles, chacune avec une distribution d'activité fixe, et chacune correspondant à une position de la source. Nous avons également modélisé le cas d'un remplissage homogène en masse, toujours avec la source en position fixe. L'indicateur d'atténuation choisi était le rapport de pics 186/1 001 (en keV). Les résultats de modélisation, ainsi que ceux des acquisitions, sont représentés en figure 18.

On constate que la modélisation par une famille telle que décrite rend bien compte des observations, alors que la modélisation par un chargement homogène produit un résultat très différent de celui qui est issu des mesures.

Nous avons également exploité, sur cette même configuration, l'indicateur dégradé sur pic relatif au pic à 186 keV, et obtenu des résultats semblables.

10. Conclusion

Dans le cadre de l'évaluation d'activité à partir de la mesure du rayonnement gamma émergeant de colis de gros volume contenant des déchets radioactifs, l'utilisation d'une fonction de transfert basée sur l'hypothèse de répartition homogène de la masse et de l'activité conduit généralement à sous-estimer l'activité dans le cas où il s'agit d'activation (ainsi que dans les cas similaires où une contamination est enfouie), et à surestimer l'activité s'il s'agit d'une contamination de la surface extérieure des objets constituant le déchet. Dans tous les cas, une modélisation par une famille représentative, un ajustement de la famille et une étude de sensibilité sont nécessaires pour valider et quantifier ces tendances générales.

EFFET DES HÉTÉROGÉNÉITÉS DE MASSE ET D'ACTIVITÉ

La méthode proposée permet de donner une évaluation de l'incertitude due aux hétérogénéités de distribution de masse et d'activité beaucoup plus réaliste que celle basée sur l'étude des cas les plus extrêmes : l'incertitude après correction des effets systématiques est de l'ordre de 20 à 70 % (2 écarts type) pour un colis d'une tonne, une activité ^{137}Cs , avec une hypothèse de distribution d'activité raisonnablement enveloppe.

La méthode permet également de réduire l'incertitude grâce à une exploitation poussée des spectres gamma obtenus par acquisition sur les colis de déchets radioactifs.

Pour le producteur de déchets, cette méthode permet d'optimiser le tri radiologique (entre FA et TFA par exemple), de manière à classer un maximum de déchets dans la catégorie de déchets dont le stockage est le moins onéreux (TFA). Cette optimisation résulte d'une part d'une meilleure estimation de l'incertitude et d'autre part, dans le cas courant de déchets contaminés sur leur surface extérieure, de la correction d'un facteur de surestimation auquel conduirait l'utilisation de fonctions de transfert basées sur l'hypothèse de distributions de masse et d'activité homogènes.

Pour en savoir plus

- Hubbell J.H. (1982) Photon Mass Attenuation and Energy-absorption Coefficients from 1 keV to 20 MeV, *Int. J. Appl. Radiat. Isot.* **33**, 1269-1290.
- Rottner B. (2005) "Method for activity measurements in large packages of radioactive wastes", *Proceedings M&C 2005*, Avignon, September 12-15, 2005.