

Modélisation multivariée des réponses pour l'optimisation des paramètres expérimentaux d'analyse de solutions par LIBS

W. Lucet^{1,2} (Doctorant), J.-B. Sirven¹, R. Finotello²

¹ Université Paris-Saclay, CEA, Service de Physico-Chimie, Gif-sur-Yvette 91191

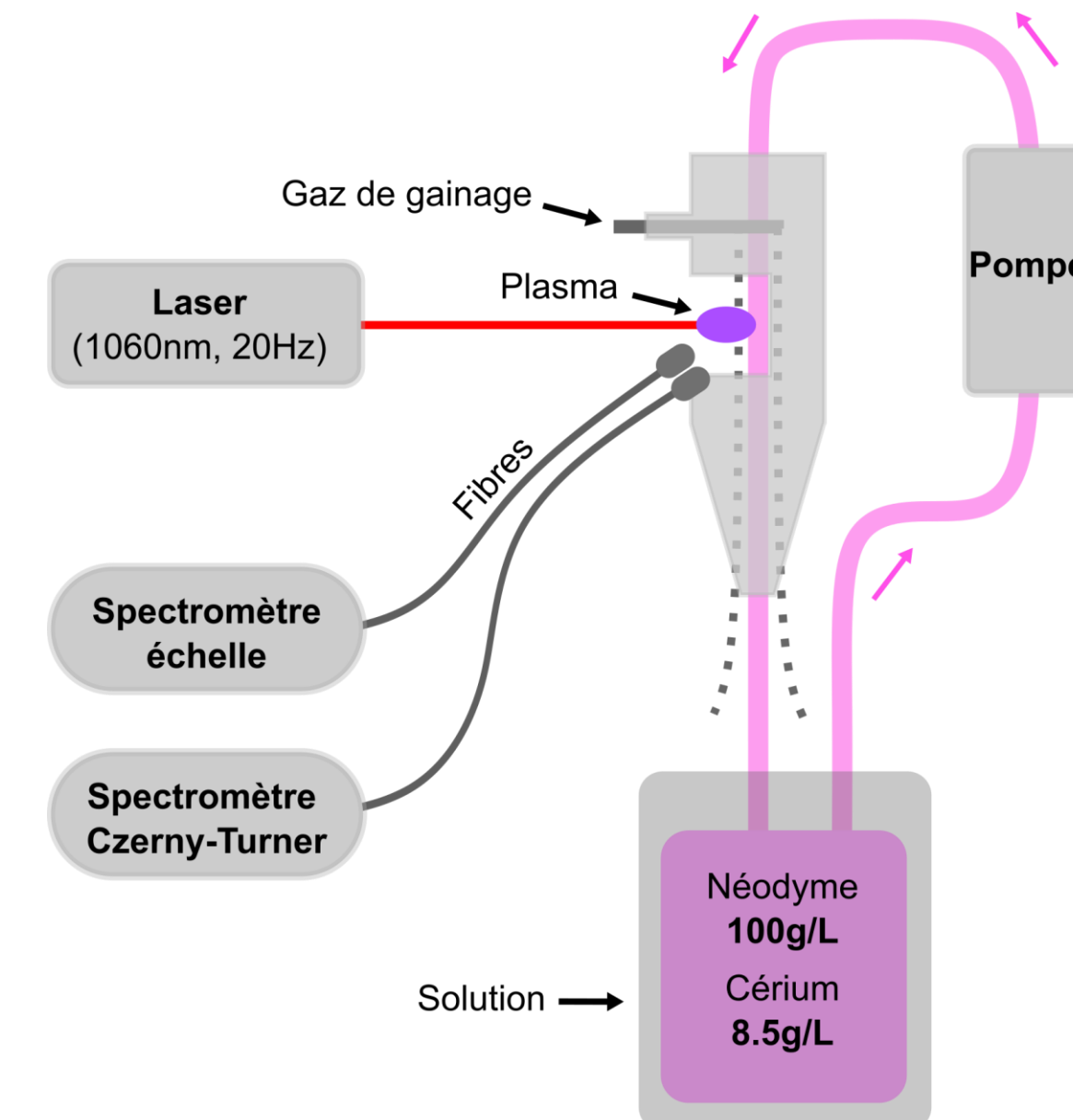
² Université Paris-Saclay, CEA, Service de Génie Logiciel et de Simulation, Gif-sur-Yvette 91191

LIBS pour le retraitement du combustible

Le procédé de retraitement du combustible nucléaire usé mis en œuvre par Orano à l'usine de La Hague consiste à le cisailier, le dissoudre puis le valoriser. Il nécessite notamment de **mesurer précisément les concentrations en matières nucléaires** (uranium et plutonium) et d'autres éléments en différents points. La LIBS (*Laser-Induced Breakdown Spectroscopy*) est particulièrement adaptée à ce type d'analyse en ligne et rapide. Cependant, elle reste sujette à d'**importantes variations de signal** selon les conditions environnementales et expérimentales.

Ce poster propose une **approche d'optimisation itérative des paramètres expérimentaux** assistée par la **modélisation de réponses du signal** (SNR, RSD, etc.). Cette méthode vise à réduire l'incertitude de mesure pour préparer de futurs travaux de quantification élémentaire, ayant l'objectif d'atteindre une incertitude globale (mesure et prédiction) **inférieure à 10 %**.

Montage expérimental d'analyse de jet liquide



Paramètres expérimentaux :

- Vitesse de pompe, débit du gaz de gainage
- Puissance laser, décalage du faisceau
- Délai et largeur de porte temporelle d'acquisition, gain, préamplificateur
- Nombre de tirs, nombre d'accumulations

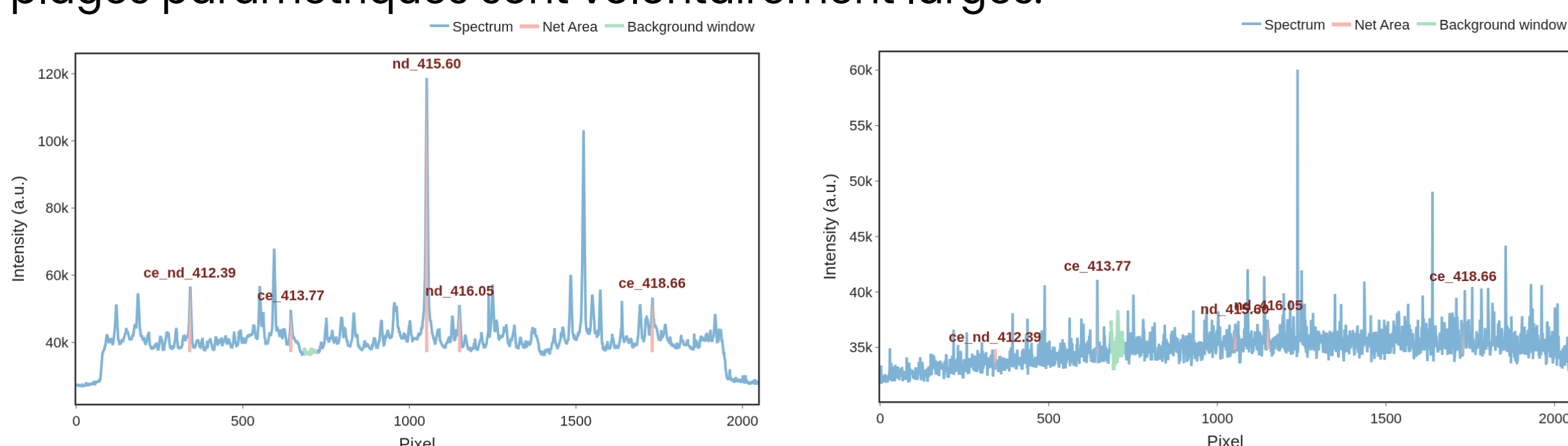
Raies analysées (simulants de U et Pu) :

- Cérium (418.66 nm & 413.77 nm)
- Néodyme (415.60 nm & 416.05 nm)
- Cérium + Néodyme (412.39 nm)

→ Obtenir un signal exploitable et répétable

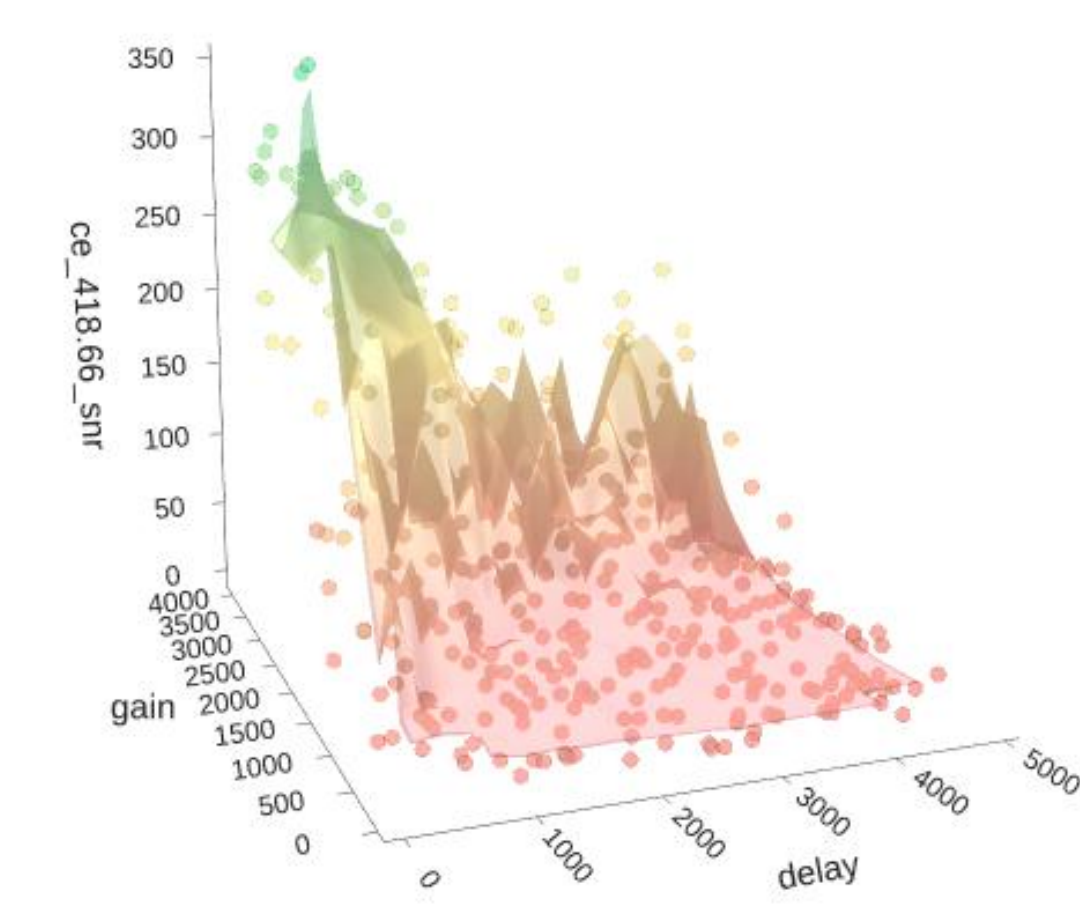
Optimisation Bayésienne sous contraintes

Pour constituer le jeu de données initial, une série de 400 expériences de 10 répliques chacune, **échantillonnées par hypercube latin (LHS)**, est réalisée automatiquement. Les plages paramétriques sont volontairement larges.



Les réponses suivantes sont calculées sur chaque raie pour tous les spectres :

$$\text{SNR} = \left(\frac{A_{\text{net}}}{\sigma(f_{\text{bg}})} \right) \quad \text{RSD} = \frac{\sigma(A_{\text{net}})}{A_{\text{net}}} \quad \text{avec} \quad A_{\text{net}} = \int_{\text{sig}} I(x) dx - \int_{\text{bg}} I(x) dx$$



Les spectres présentant un **SNR < 50**, un **RSD > 50%** ou une **saturation** sont inexploitable pour la quantification. Sur les 400 expériences initiales, **285** sont dans ce cas.

Un modèle de classification est entraîné sur ces données pour **cartographier les zones exploitables de l'espace paramétrique**. Ce classifieur guide l'optimisation en isolant uniquement les combinaisons de paramètres susceptibles de fournir un signal de qualité.

Processus Gaussiens

Faisabilité : Un GP approximé avec un postérieur de Bernoulli prédit si une combinaison de paramètres générera un spectre exploitable.

Régression : Un GP par métrique prédit la valeur des 5 raies simultanément. Entraînement uniquement sur les spectres exploitables.

Noyaux de covariance : Utilisation de noyaux Matérn.

Optimisation Bayésienne

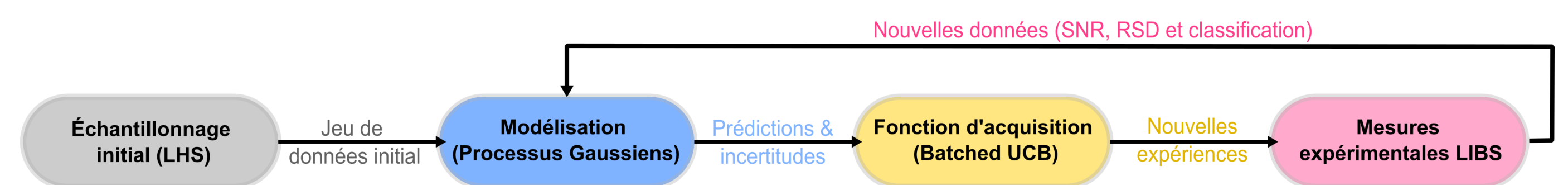
Objectif : Maximiser $(\overline{A_{\text{net}}}/\sigma(A_{\text{net}}))^x \times \text{SNR}^{1-x}$

Acquisition : Batched UCB pour équilibrer l'exploration des zones incertaines et l'exploitation des réglages performants [1].

Contraintes :

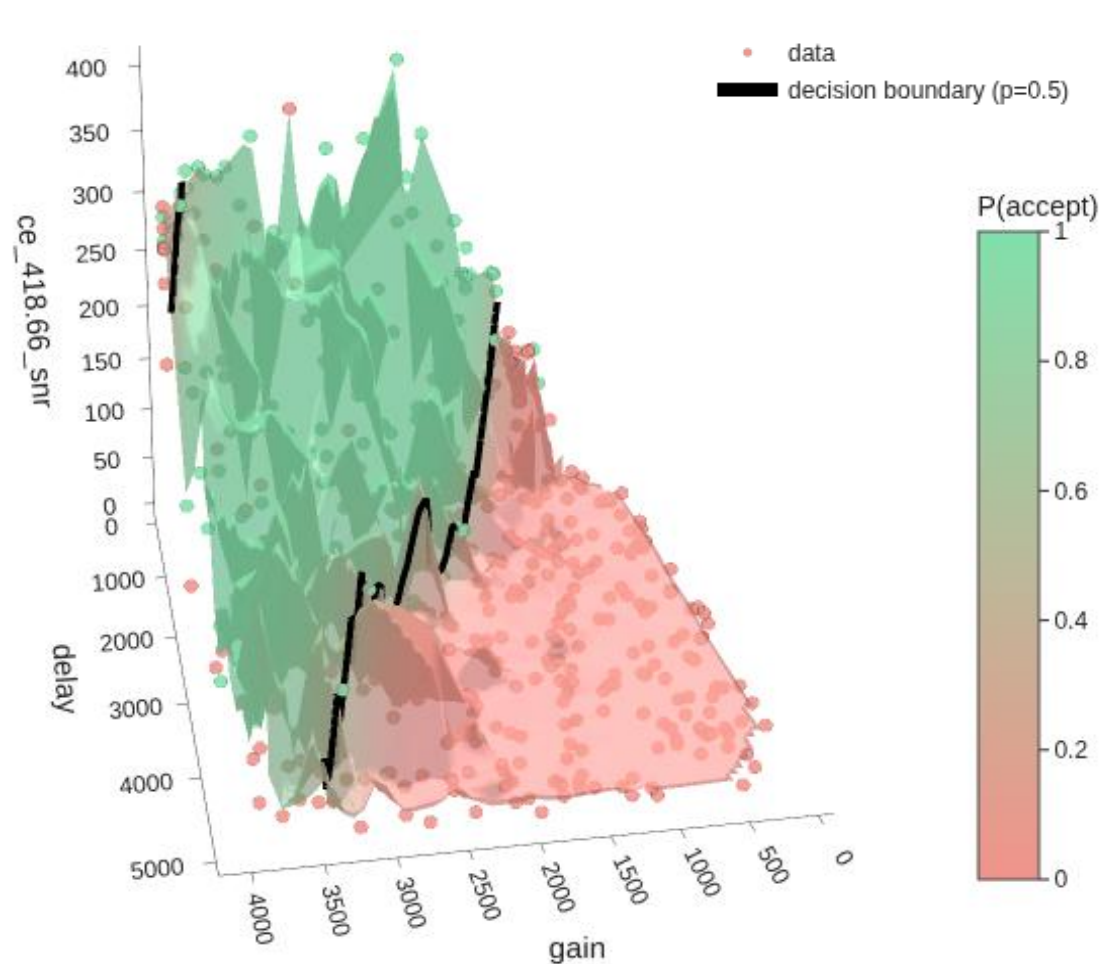
- Contraintes black-box (faisabilité)
- Contraintes matérielles : limites physiques du montage (valeurs entières, multiples entre les tirs et les accumulations, etc.)

Cycle : 4 itérations pour 65 nouvelles mesures.

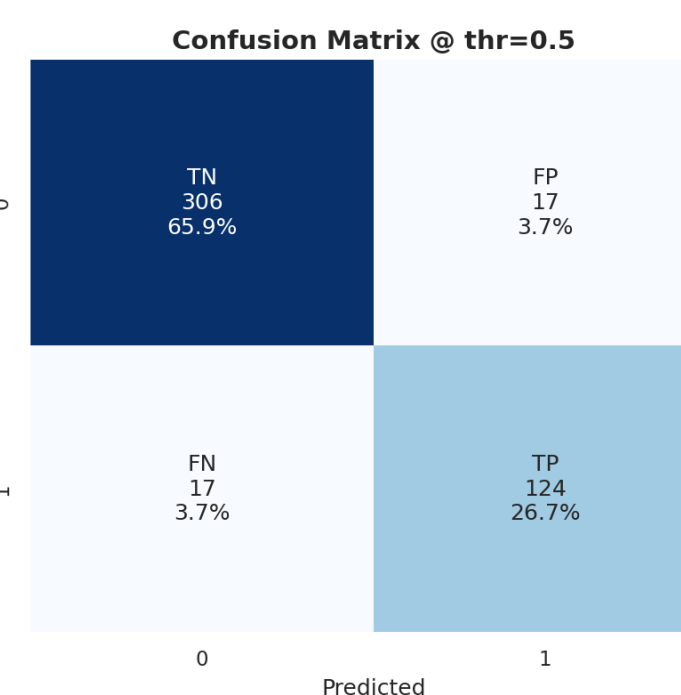
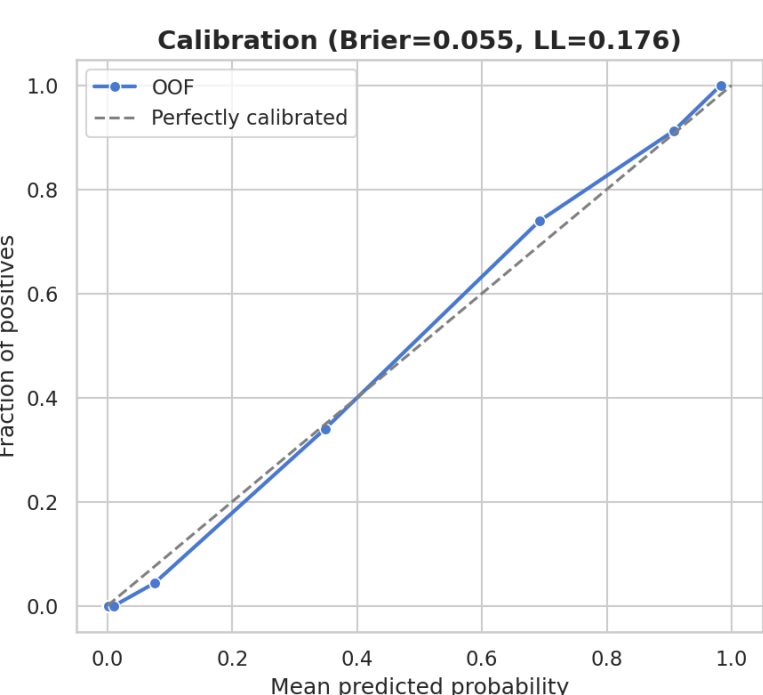


Résultats et perspectives

Espace de recherche



Frontière séparant les signaux exploitables des signaux trop faibles (ex. : délai long, faible gain) et saturés (ex. : délai court, gain élevé).



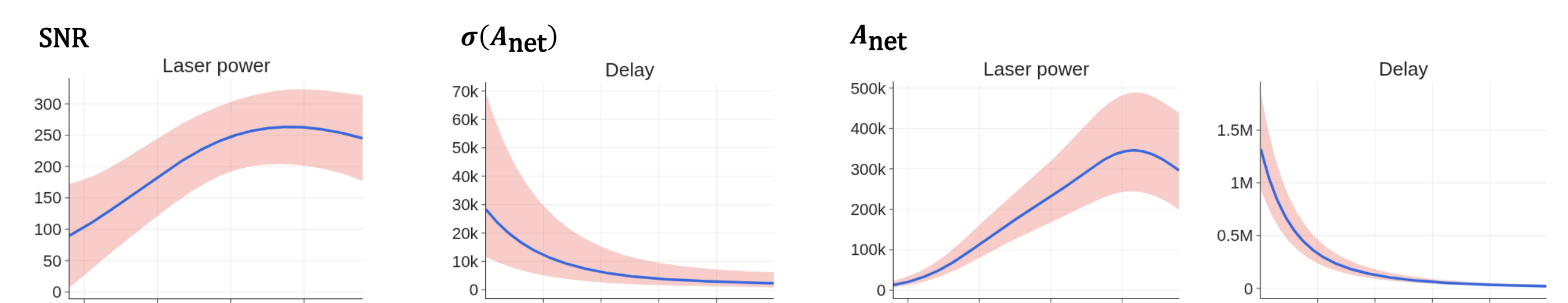
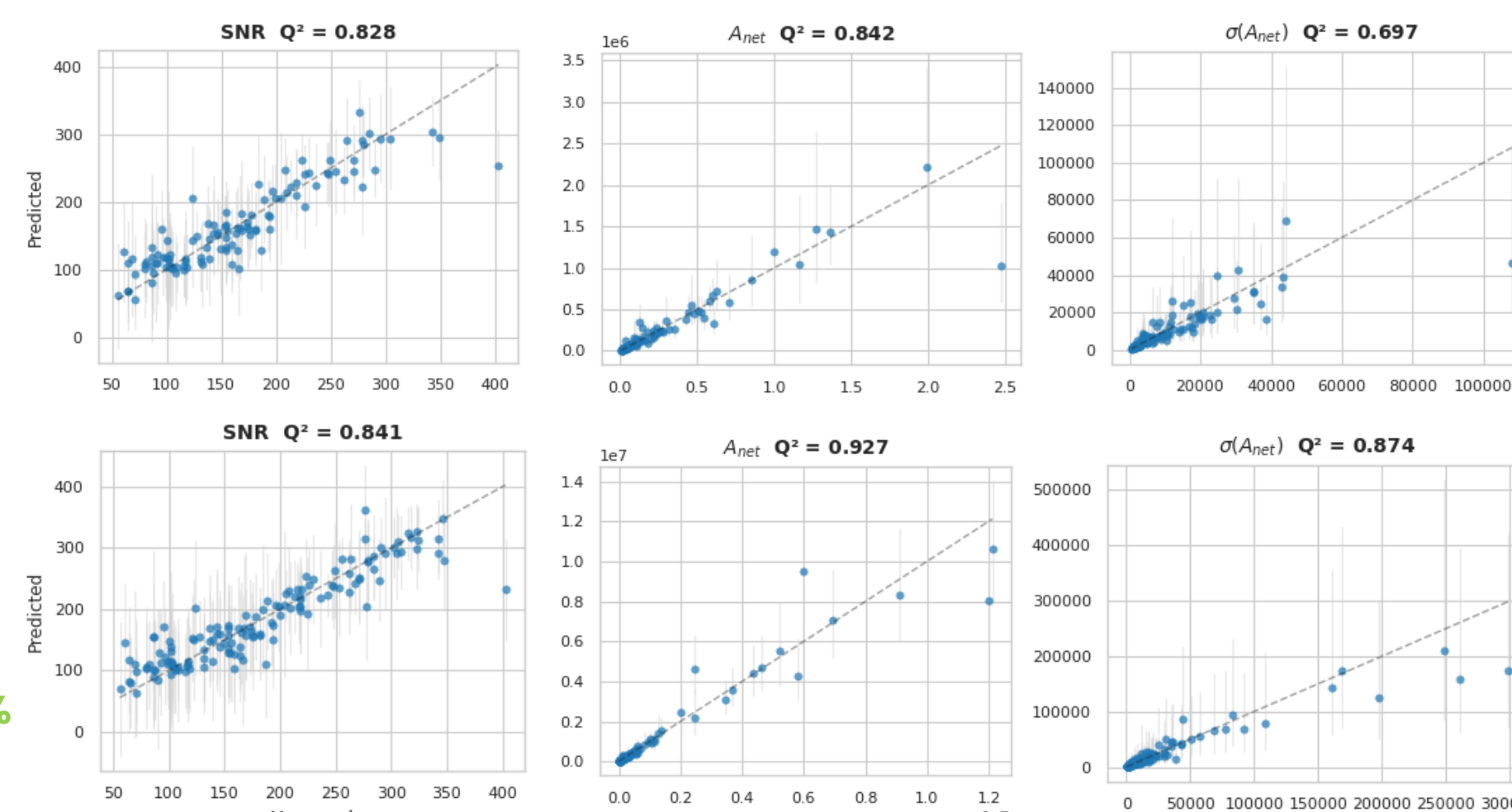
Classifieur fiable (**ROC-AUC = 0.98**)
→ L'optimisation est restreinte à l'espace viable

Modélisation des réponses

Ces résultats concernent l'émission de la raie de Ce à 418.66 nm. L'aire nette et son écart-type sont modélisés séparément.

Gain absolu de Q^2 par modèle suite aux 4 itérations d'optimisation bayésienne :

SNR **+1.3%** A_{net} **+8.5%** $\sigma(A_{\text{net}})$ **+17.7%**

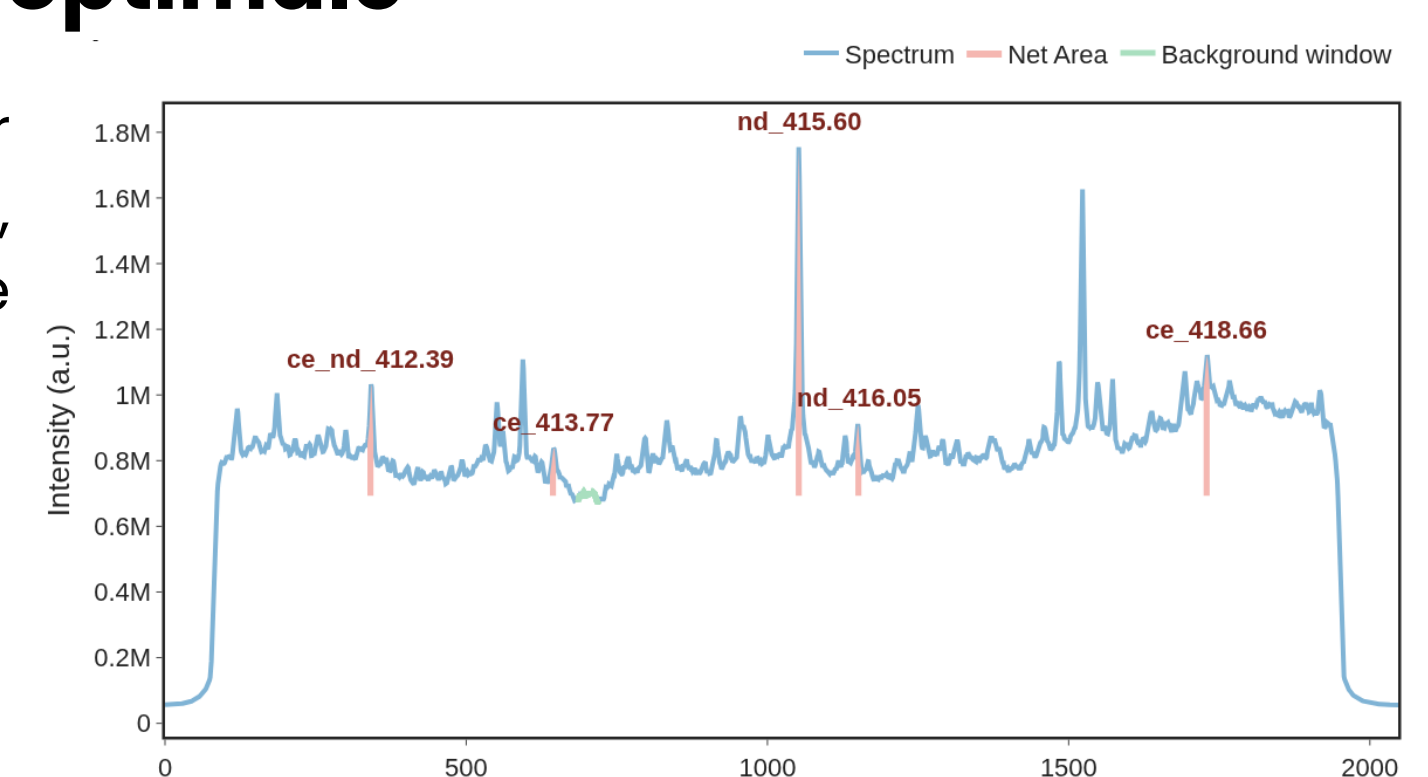


Cohérence physique des modèles de substitution [2] : l'intensité d'émission décroît avec le délai (refroidissement du plasma). **La vitesse de pompe et le débit du gaz de gainage n'ont pas d'impact** significatif sur les réponses.

Configuration expérimentale optimale

Le dernier jeu de paramètres obtenu par l'optimisation utilise un **délai court** (8 ns), une puissance **laser élevée** (21.6 mJ) et une porte d'**exposition très large** (20 µs).

Ce 418.66 nm
→ RSD : **1.49 %**
→ SNR : **323**



Discussion & Perspectives

Limites identifiées

- L'optimisation privilégie des délais courts (signal max) → en l'absence de correction de ligne de base, le fond est sous-estimé → RSD artificiellement optimiste
- Acquisition initiale ~20h → évaporation partielle due à l'ablation → dérive à la hausse des concentrations, facteur de fluctuation non modélisé

Prochaines étapes

- Quantifier l'effet de re-concentration par évaporation (par analyse ICP-OES des solutions)
- Appliquer la méthode en intégrant une correction de ligne de base
- Fixer un jeu de paramètres pour travailler sur la quantification élémentaire

References

- [1] Queipo, N. V., Haftka, R. T., Shyy, Wei, Goel, T., Vaidyanathan, R., & Kevin Tucker, P. (2005). Surrogate-based analysis and optimization. *Progress in Aerospace Sciences*, 41(1), 1–28.
- [2] Shahriari, B., Swersky, K., Wang, Z., Adams, R. P., & De Freitas, N. (2016). Taking the Human out of the Loop: A Review of Bayesian Optimization. *Proceedings of the IEEE*, 104(1), 148–175.