

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

W. Lucet<sup>1,2</sup>, J.-B. Sirven<sup>1</sup>, and R. Finotello<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Université Paris-Saclay, CEA, Service de Physico-Chimie, Gif-sur-Yvette 91191, France

<sup>2</sup>Université Paris-Saclay, CEA, Service de Génie Logiciel et de Simulation, Gif-sur-Yvette 91191, France

## Résumé

Lors du retraitement du combustible nucléaire, le combustible utilisé est cisailé puis dissous avant d’être valorisé. Au cours de ce procédé, il est indispensable de pouvoir surveiller et mesurer les concentrations en matières nucléaires (uranium, plutonium) et d’autres éléments en plusieurs points, avec une incertitude globale visée inférieure à 10 %.

Pour effectuer ces mesures, la LIBS (*Laser-Induced Breakdown Spectroscopy*) constitue une méthode particulièrement adaptée dont la mise en ligne permettrait un gain d’exploitation notable. Cependant, cette technique est sujette à d’importantes variations de signal. Afin d’atteindre l’objectif de précision requis, il est essentiel d’optimiser ses paramètres pour minimiser l’incertitude de la mesure [1]. Nos travaux portent ainsi sur l’analyse de simulants d’actinides (néodyme et cérium) et de gadolinium en solution, par LIBS sur jet liquide.

Traditionnellement, l’optimisation des nombreux paramètres instrumentaux (puissance laser, gain, délai, largeur de porte, nombre de tirs, etc.) repose sur de longs processus itératifs ou sur l’utilisation de plans d’expériences classiques [1]. Cependant, lorsque l’espace paramétrique est de grande dimension et que les phénomènes physiques sous-jacents sont fortement non-linéaires, ces approches atteignent leurs limites, nécessitant un nombre prohibitif de mesures pour cartographier correctement les réponses. L’objectif de ces travaux est de surmonter cet obstacle en minimisant le coût expérimental grâce à des méthodes d’apprentissage capables de guider l’optimisation.

Nous nous inspirons de la méthode SBOA (*Surrogate Based Optimization and Analysis*) [2], appliquée à la LIBS. Notre méthode emploie un échantillonnage par hypercube latin (LHS), garantissant une couverture homogène des conditions opératoires possibles [3], afin d’explorer efficacement l’espace des paramètres. À partir de ces données, un modèle de substitution est entraîné sur les paires associant les paramètres expérimentaux à la réponse sélectionnée (hauteur d’une raie, variance interspectres, rapport signal/bruit, etc.). Une boucle d’optimisation sélectionne ensuite itérativement les combinaisons paramétriques les plus avantageuses. Celles-ci font alors l’objet de nouvelles mesures expérimentales permettant d’entraîner le modèle, et ce jusqu’à sa convergence.

La capacité du modèle à prédire la réponse de nouvelles combinaisons montre qu’il modélise correctement la physique liant les réglages expérimentaux au signal LIBS. Par le biais de cette approche, nous avons pu balayer rapidement un large espace paramétrique afin d’isoler et de valider expérimentalement une configuration permettant de réduire significativement l’incertitude de mesure.

La méthodologie présentée ici intervient en amont, afin de réduire l’incertitude intrinsèque à la mesure. À terme, ces conditions optimisées nous permettront de développer des méthodes pour la quantification des concentrations élémentaires au sein du mélange.

Mots clefs : Plan d’expériences, méthode quasi-aléatoire, répétabilité, optimisation, intelligence artificielle

## Références

- [1] D. SYVILAY et al. “Guideline for Increasing the Analysis Quality in Laser-Induced Breakdown Spectroscopy”. In : *Spectrochimica Acta Part B : Atomic Spectroscopy* 161 (2019), p. 105696. DOI : 10.1016/j.sab.2019.105696.
- [2] N. V. QUEIPO et al. “Surrogate-Based Analysis and Optimization”. In : *Progress in Aerospace Sciences* 41.1 (2005), p. 1-28. DOI : 10.1016/j.paerosci.2005.02.001.
- [3] M. D. SHIELDS et al. “The Generalization of Latin Hypercube Sampling”. In : *Reliability Engineering & System Safety* 148 (2016), p. 96-108. DOI : 10.1016/j.ress.2015.12.002.