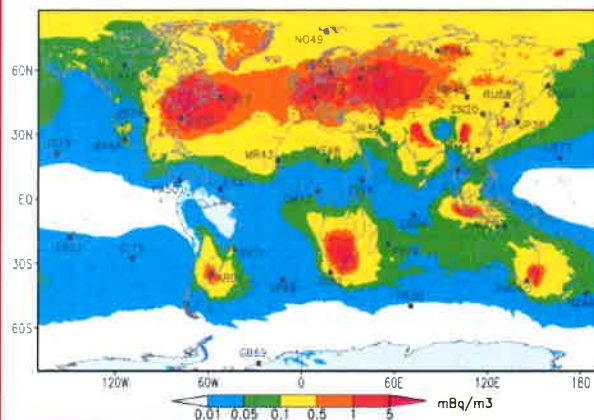


DE LA RECHERCHE À L'INDUSTRIE

cea

www.cea.fr

Analyse d'ultra-traces de xénon dans le cadre du traité d'interdiction complète des essais nucléaires (TICE)



CEA, DAM, DIF, F-91297 Arpajon, France

Sylvain TOPIN, Gilbert LE PETIT, Pascal ACHIM, Olivier DELAUNE, Guilhem DOUYSET, Antoine CAGNIANT, Jean-Pierre FONTAINE, Sylvia GENEROSO, Philippe GROSS, Mireille MORIN, Christophe MOULIN

Contact: sylvain.topin@cea.fr

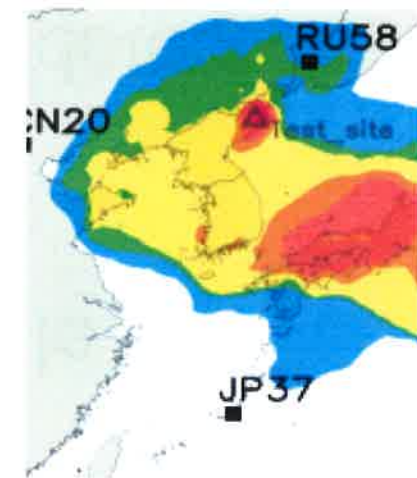
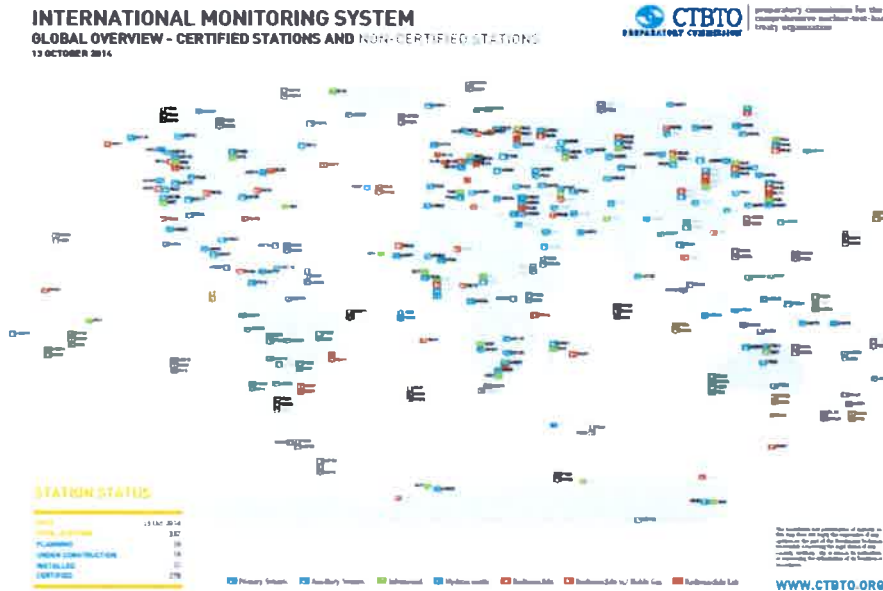
Journées Air & Radioactivité de la SFRP -1&2 Février 2017

- ❖ La détection des radionucléides dans le TICE
- ❖ Le système CEA (SPALAX) pour la détection des radionucléides
- ❖ Développement des nouvelles générations de système de détection

- ❖ La détection des radionucléides dans le TICE
- ❖ Le système CEA (SPALAX) pour la détection des radionucléides
- ❖ Développement des nouvelles générations de système de détection

Organisation du TICE – Dates clés

- 1945 :** 1er essai (Juil, New Mexico, USA) ; Hiroshima (6 Aout) et Nagasaki (9 Aout)
- 10 Oct 1963 :** Entrée en vigueur du Traité d'Interdiction Partielle des Essais (TIPE) qui n'autorise plus que les essais souterrains
- 24 Sept 1996 :** Ouverture à la signature du TICE. Le Traité entrera en vigueur après ratification par les 44 états référencés comme disposant d'installations nucléaires (Annexe 2). 8 états n'ont pas ratifié: Chine, Egypte, Inde, Iran, Israël, Corée du N., Pakistan, USA.
- Essais > 1996 :** Inde et Pakistan (1998) / Corée du Nord (2006, 2009, 2010, 2013, 2016)



Le TICE inclut déjà un Système de Surveillance International



Le CEA développe et opère les 4 technologies sur le sol français et en collaboration sur le sol étranger

Station particule:

Prélèvement sur un filtre : Cs-134, Cs-137, I-131,...

Détection par spectrométrie gamma

Les particules ne sont pas ou peu émises lors d'un essai en milieu confiné (sous-sol)



Gaz rares:

Inertes → Susceptibles d'être émis même lors d'un essai en milieu confiné

PFs principaux de Gaz rares: Kr, Xe

Xenon :

→ Rendement de fission important,

→ $T_{1/2}$ intéressantes pour quelques isotopes → Xe-131m (11,9 d), Xe-133m (2,19 d), Xe-133 (5,24 d), Xe-135 (9,14 h)

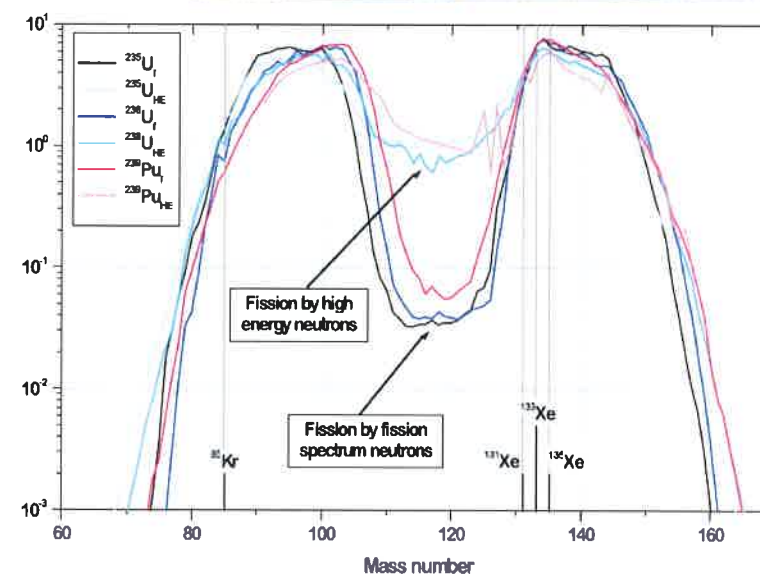
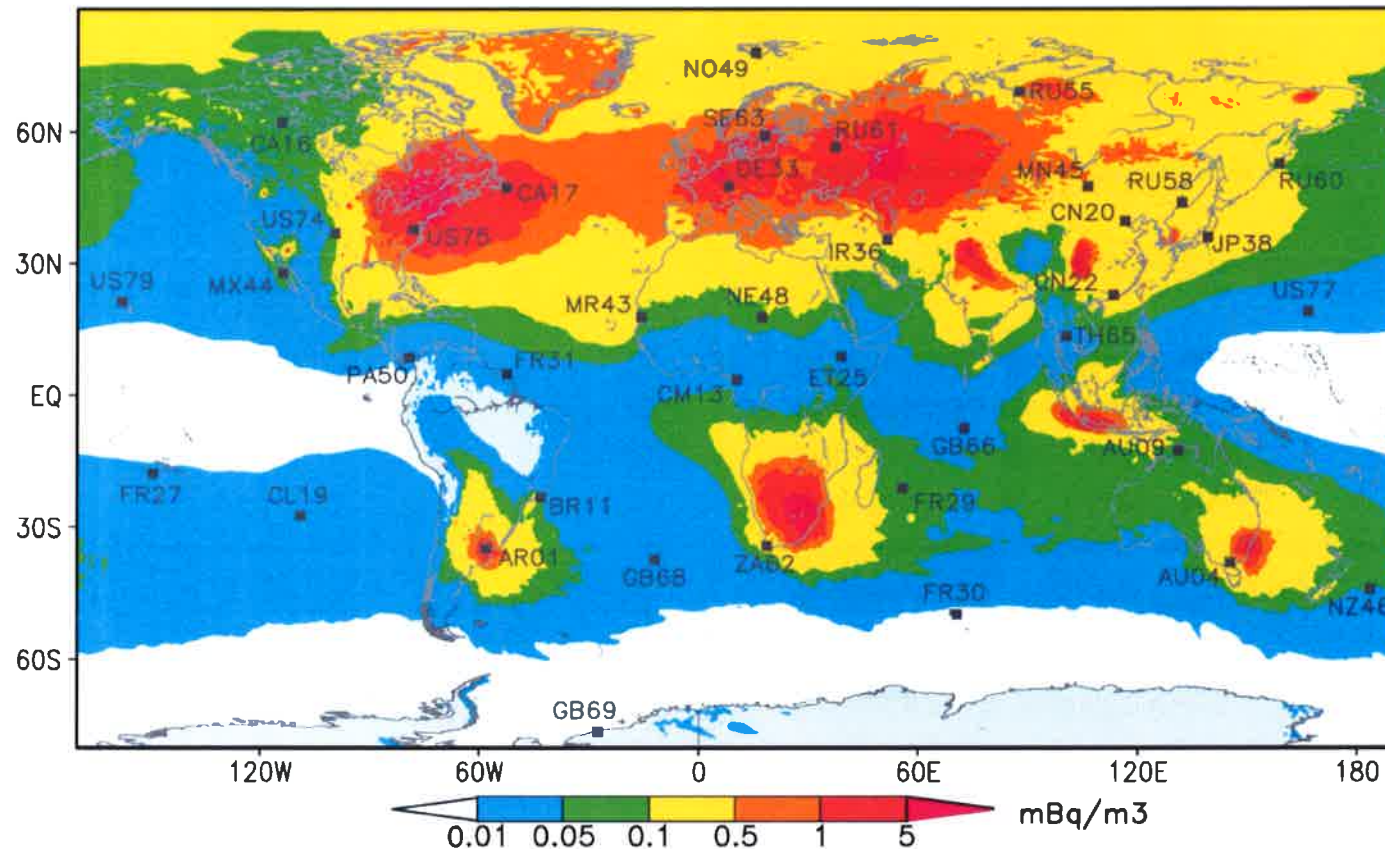


Figure 1: Fission yield in % for several nuclear explosion relevant nuclides: ^{235}U , ^{238}U and ^{239}Pu , for fission induced by fission spectrum neutrons (f) and high energy neutrons (14.7 MeV) (he) respectively [1].
From Saey, P. R. J., Esarda Bulletin, n°36

Difficultés: Autres sources de Rxe (UPR, NPP, ...)

❖ Modélisation du transport atmosphérique (ATM)

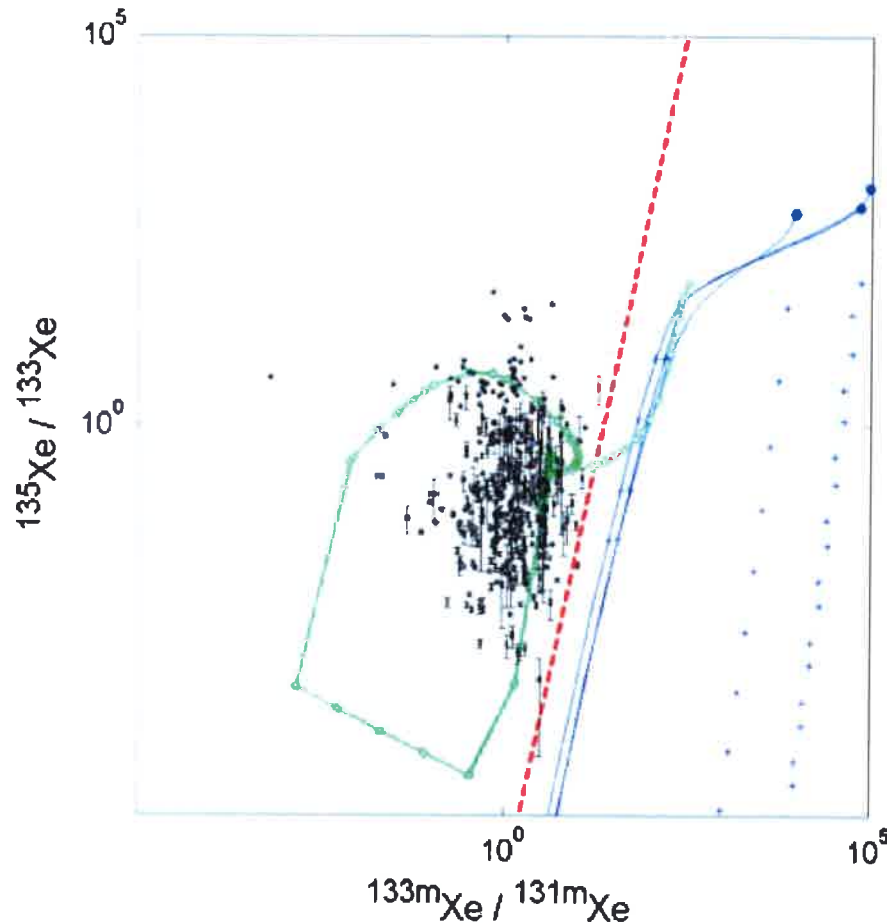
Cartographie des sources de Xe-133 et du BdF



Bruit de fond moyen au sol en Xe-133 simulé sur 2 années – Modèle de dispersion lagrangien FLEXPART

D'après: Achim, P. et al., *J. Geophys. Res. Atmos.* 2016, 121, 4951-4966

Discrimination d'un évènement nucléaire



Legend

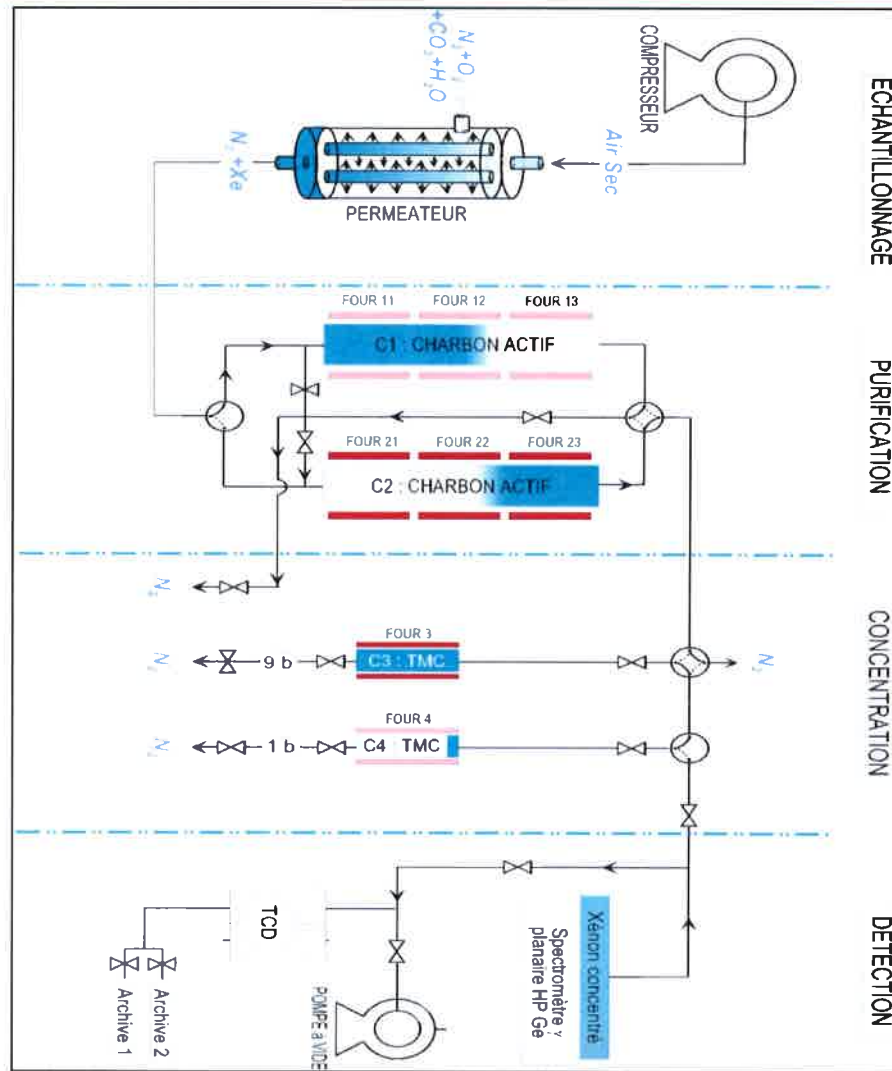
- Fission of ^{235}U , ^{239}Pu and ^{238}Pu at $t=0$
f = fission energy neutrons, he = high energy neutrons
- Evolution of fission products in time
with in-growth (+ at 1, 2, 3, 4 days)
- Evolution of fission products
for xenon separated at $t=0$ (+ at 24h steps)
- LWR burnup, 3.2% enrichment (evolution through 3 reactor cycles)
- + INGE measurement data (with error bars)
- - Separation line for screening

Discrimination indépendante du temps par la mesure des rapports isotopiques des 4 isotopes principaux issus de l'air atmosphérique

D'après Kalinowski, M. B., et al., Pure Appl. Geophys. 167 (2010), 517–539

- ❖ La détection des radionucléides dans le TICE
- ❖ Le système CEA (SPALAX) pour la détection des radionucléides
- ❖ Développement des nouvelles générations de système de détection

Système de détection - SPALAX



❖ Echantillonnage:

Compression 10 bar

Elimination O_2 , CO_2 , H_2O au travers de membranes de perméation

❖ Purification & Concentration:

Séparation Xe/Rn sur des charbons actifs

Concentration du Xe sur des colonnes de tamis moléculaires

❖ Mesure:

Analyse par spectrométrie

Mesure de $[Xe]$ par un TCD

❖ Critères de l'OTICE:

LD < 1 mBq m^{-3} de Xe-133

Fonctionnement 100% automatique

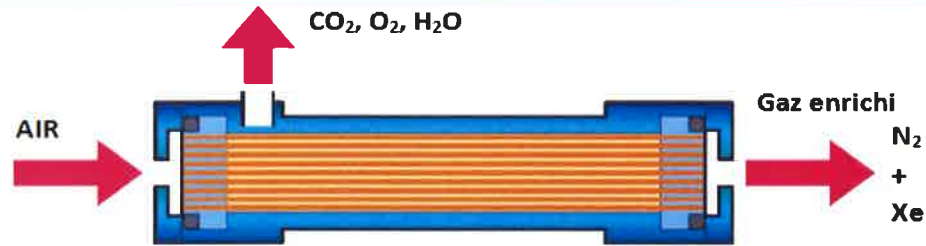
95% disponibilité des données



Système de détection – Prélèvement



~ 20 Nm³/h, 10 bar, Xe 87 ppb



Azote quasiment pur:
~ 0.3 Nm³/h, 10 bar,
Xe 1 ppm

Mise en solution / Diffusion



Inconvénients: Rdt Xe < 30%, Puissance électrique

Avantages: Traitement dynamique sans régénération

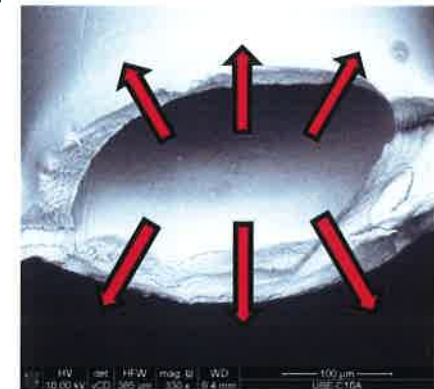
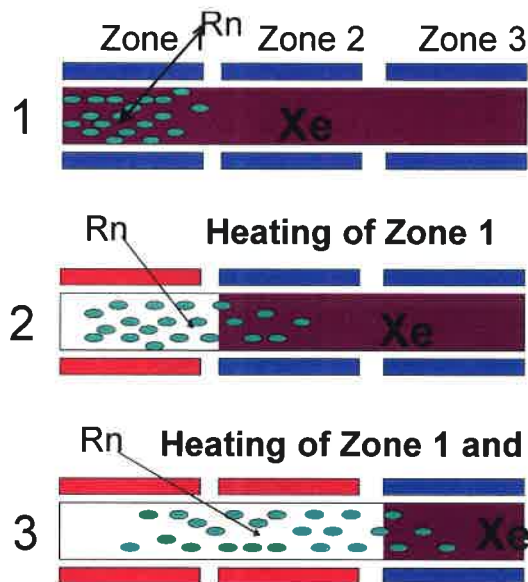


Image MEB (SRCE/LEXAN)



Purification : Colonnes de charbons actifs



❖ Purification :

Adsorption puis désorption haute T°C / cycle de 2H sur des colonnes de CA

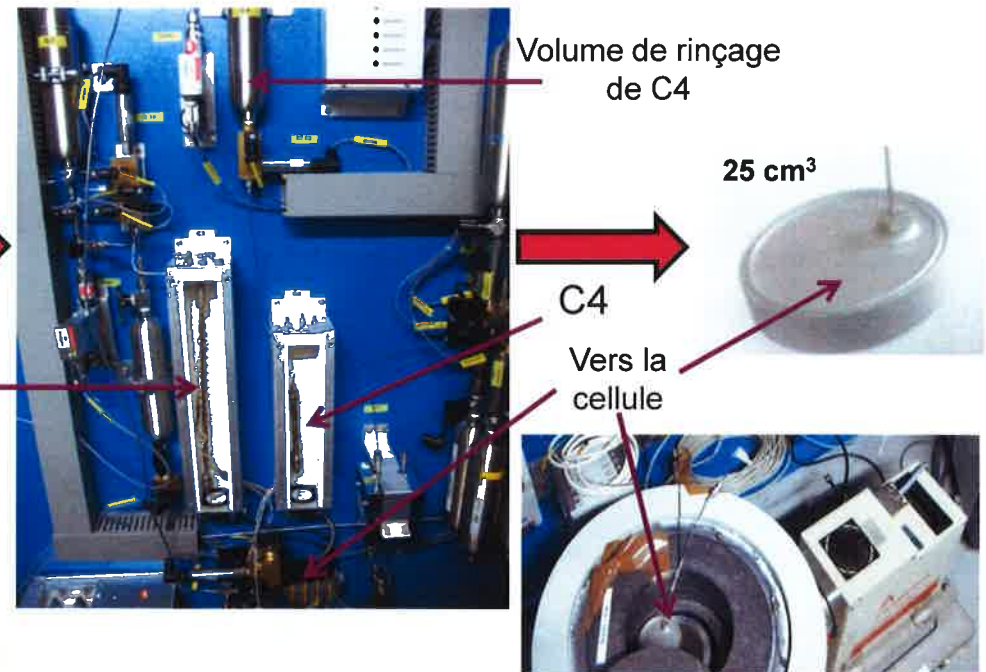
CA: Sélectivité +++, Surface spécifique / rétention ---

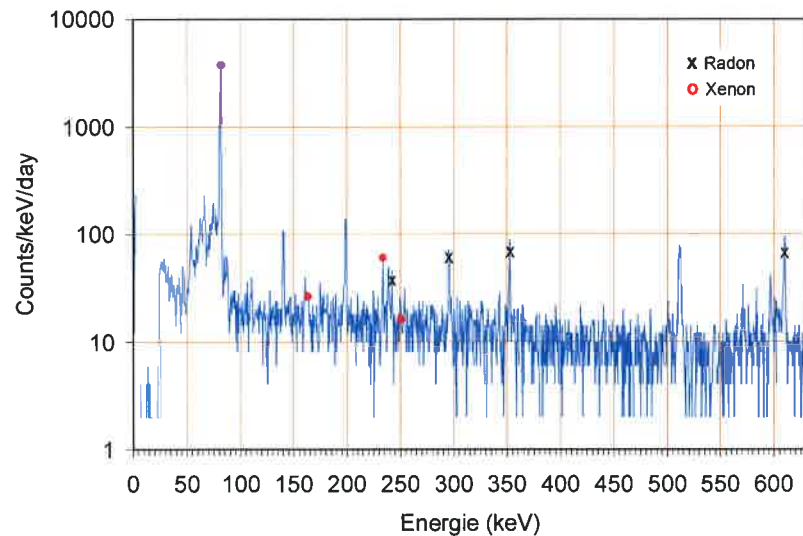
❖ Concentration :

Adsorption/désorption haute T°C sur des colonnes de tamis moléculaires carbonés

Augmentation de la concentration de Xe (jusqu'à 30%) dans N₂

Tamis moléculaires carbonés: Surface spécifique / rétention --





- ❖ **Transfert de l'échantillon depuis la colonne de concentration dans la cellule gamma (Al bas bruit)**
- ❖ **Echantillon est mesuré pendant la durée du cycle de prélèvement suivant**

SPALAX dans le SSI



❖ Historique du SPALAX:

Le DASE a développé le **S**ystème de **P**rélèvement **A**utomatique en **L**igne avec l'**A**nalyse du **X**énon

Brevet déposé en 1999

1ère version industrielle: 2001-2002

SPALAX Déploiement Rapide: 2009

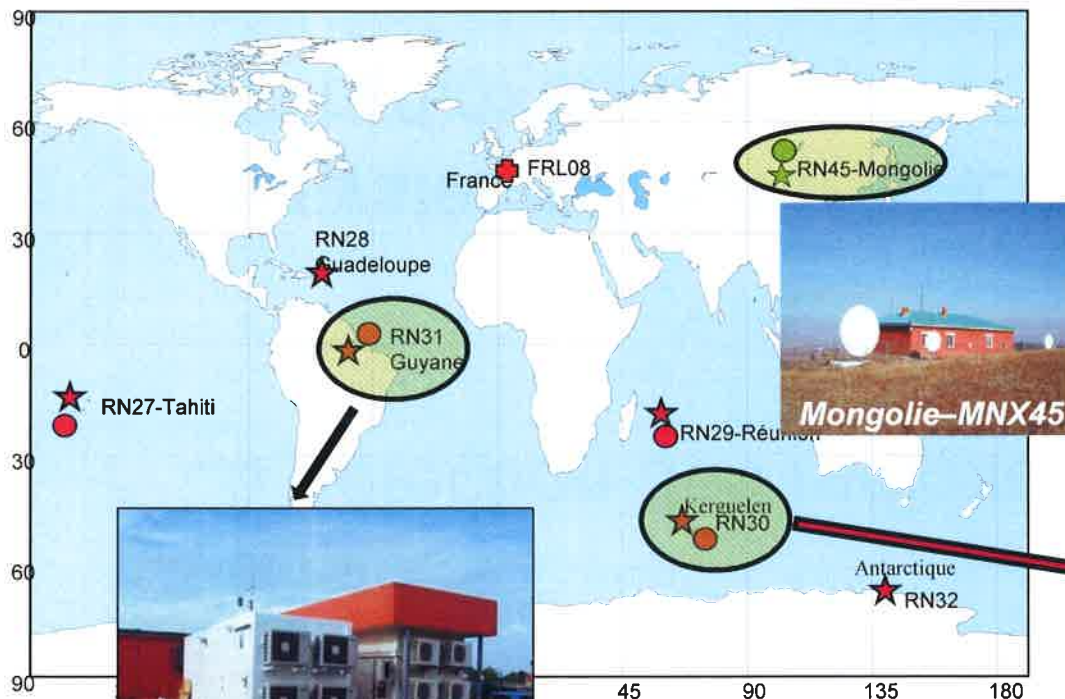
❖ Le SPALAX au cœur du SSI:

40 stations gaz rares prévues par le TICE

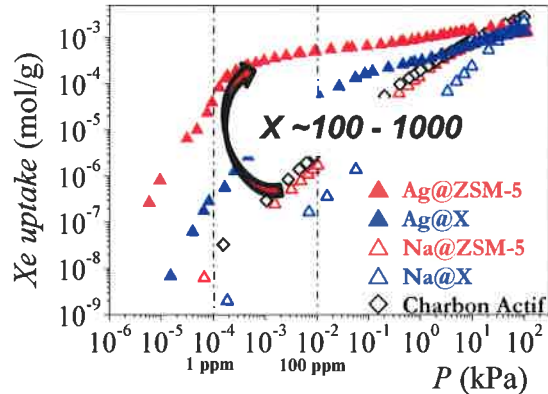
12 SPALAX installés dont 5 gérés par la France

16 SAUNA installés (système suédois)

4 ARIX installés (système russe)

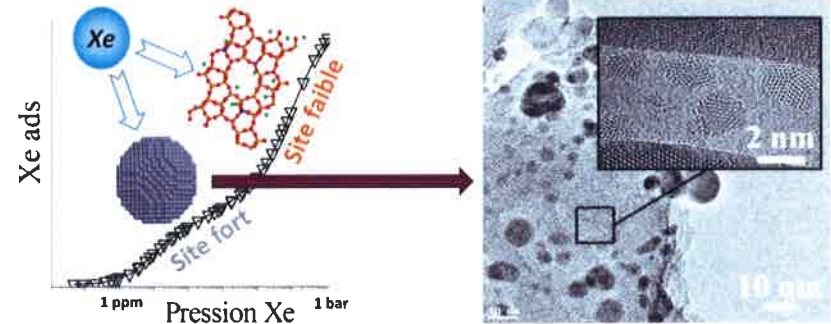


- ❖ La détection des radionucléides dans le TICE
- ❖ Le système CEA (SPALAX) pour la détection des radionucléides
- ❖ Développement des nouvelles générations de système



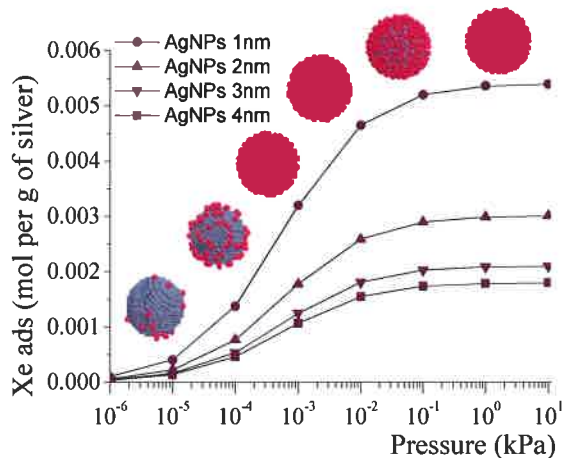
Sélection de Ag@ZSM5: zéolithe MFI dopée à l'argent

D'après: Daniel, C. et al., and Topin, S. et al. *J. Phys. Chem. C*, 2013, 117, 15122



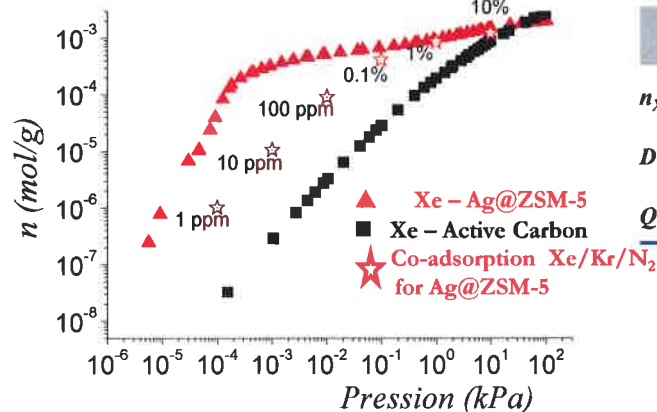
Caractérisation de 2 sites d'adsorption: le site fort est lié à la présence de nanoparticules qui adsorbent dès les basses concentrations

D'après: Deliere, L. et al *J. Phys. Chem. C*, 2014, 118, 25032



Simulation de l'adsorption du Xe sur les NPs d'Ag en fonction de leur taille

D'après: Deliere, L. et al *Microp. Mesop. Mat.*, 2016, 229, 145



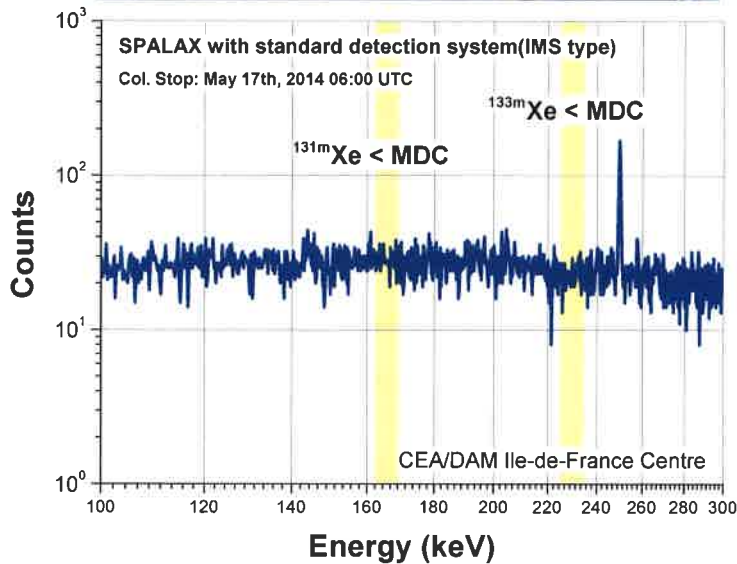
Simulation de l'adsorption du Xe en condition procédé et validation expérimentale

D'après: Deliere, Thèse 2015 & Deliere L. et al., *Chem. Eur. J.*, 2016, 22, 1-8

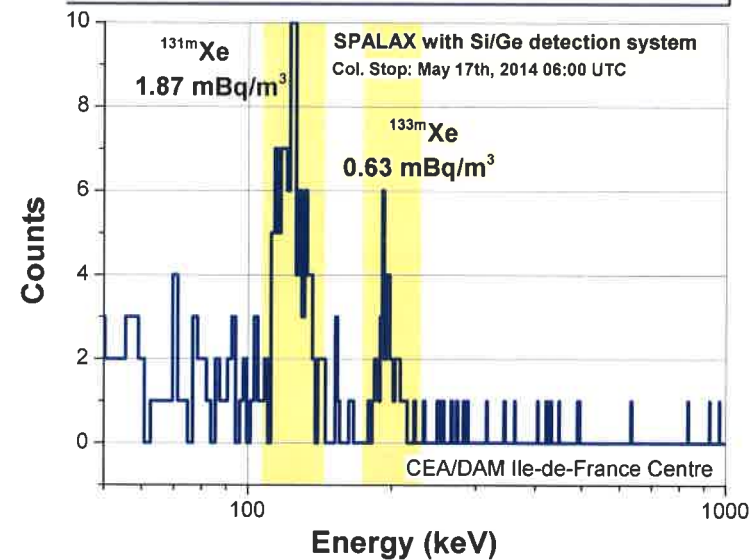
	Xe (2,8 ppm) / Kr (4 ppm) / N ₂	
	Ag@ZSM-5	Charbon Actif
n_{Xe} (mol/g)	$5,1 \pm 0,5 \times 10^{-6}$	$1,6 \pm 0,1 \times 10^{-7}$
Densité	0,6 g/cm ³	0,45 g/cm ³
$Q_{ads} / volume$	$\sim 30 \times 10^{-7} \text{ mol/cm}^3$	$\sim 0,8 \times 10^{-7} \text{ mol/cm}^3$



Spectro Gamma HPGe actuel



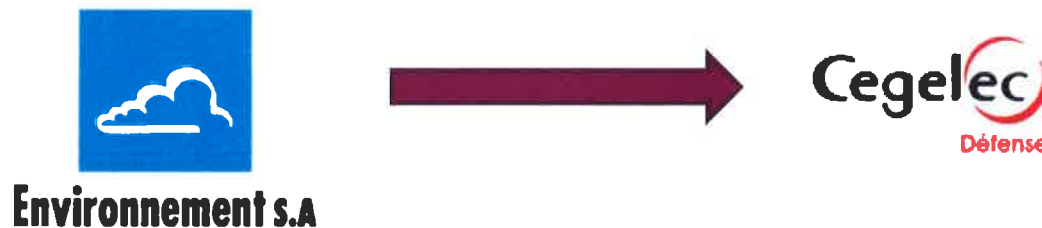
BEGe (germanium) coupled to PIPSBox



D'après: Le Petit, G. et al *Appl. Radiat. Isot.*, 2015, 103, 102 et Le Petit, G. et al *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 2013, 298, 1159

	Actuel	NG
■ Sampling time	= 24 h	= 8 h
■ Counting time	~ 22 h	~ 7 h
■ Sampling flow rate	~ 15 m ³ /h	~ 40 m ³ /h
■ Volume of sampled air equivalent	~ 40 m ³	~ 60 m ³
■ Volume of xenon sampled	~ 3,5 cm ³	~ 5,2 cm ³
■ Minimum detectable conc. ¹³³ Xe	< 0.5 mBq/m ³	< 0.3 mBq/m ³
■ Minimum detectable conc. ¹³⁵ Xe	< 0.5 mBq/m ³	< 0.3 mBq/m ³
■ Minimum detectable conc. ^{131m} Xe	> 5 mBq/m ³	< 0.3 mBq/m ³
■ Minimum detectable conc. ^{133m} Xe	> 5 mBq/m ³	< 0.3 mBq/m ³
■ Fully automatic operation		

Dans le cadre du developement de la nouvelle génération, changement de partenaire industriel:



❖ Conclusions :

Développement d'un système ultra-sensible pour la mesure du xénon radioactif : système qui devrait être le plus sensible/résolu du réseau de surveillance du TICE

Réalisation d'un prototype industriel – livraison juin 2017

Mise à niveau progressive du réseau

❖ Perspectives :

Vers la miniaturisation des systèmes → importances des développements de matériau adsorbant,

Applications

Production de gaz rares → extrêmement coûteux

Radioprotection → mitigation sur des installations nucléaires (projet Otice – AIEA), épuration des systèmes de ventilation des salles de contrôle de centrale

Retraitement du combustible irradié → très haut potentiel de Ag-ZSM5 pour la séparation Xe, Kr, Rn

Détection d'activités illicites (retraitement, essais)

Merci pour votre attention

Questions ?

