

# **La simulation Monte-Carlo en appui à la spectrométrie gamma**

10 mars 2023

*Hugues Paradis, Philippe Gross, Valérie Greiner, Sylvain Topin*

# Sommaire

- 1. La spectrométrie gamma au SRCE**
- 2. La modélisation d'un spectromètre HPGe**
- 3. Correction de sommation**
- 4. Etalonnage numérique**
- 5. La mesure en coïncidence beta/gamma**
- 6. Conclusion**



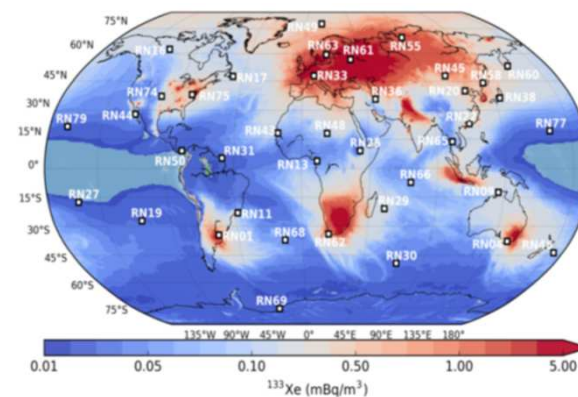


# 1 ■ La spectrométrie gamma au SRCE



# Les missions du SRCE

- Etude et expertise de l'impact environnemental des installations de la DAM.
- Contrôle des traités internationaux : Traité d'Interdiction Complète des Essais nucléaires (TICE-1996), Traité de Non Prolifération (TNP-1968).
- Anti-terrorisme NRBC (Nucléaire, Radiologique, Biologique, Chimique).



# Des analyses sous assurance qualité

- Analyses COFRAC selon la norme ISO EN NF 17025 (v2017) :
  - 27 lignes sur la portée d'accréditation
  - Spectrométrie gamma et alpha, compteur proportionnel, scintillation liquide, spectrométrie de masse
  
- Analyses certifiées pour l'OTICE (Organisation du Traité pour l'Interdiction Complète des Essais)
  - Spectrométrie gamma
  - Procédé spécifiques gaz
  
- Niveau d'exigence élevé :
  - Incertitudes :  $1 < U < 10\%$  ( $k=2$ )
  - Sensibilité (LD) :
    - $10^{-5}$  Bq/kg (spetro alpha et spectro de masse)
    - 1 Bq/kg (3H)
    - $10^{-2}$  Bq/kg (spetro gamma)...
  
- Audits fréquents (2 par an)





# La spectrométrie gamma

- La plupart des radionucléides émettent un ou plusieurs photons  $\gamma$  à des énergies caractéristiques
- Méthode de mesure rapide, non destructive, **qualitative** et **quantitative**.

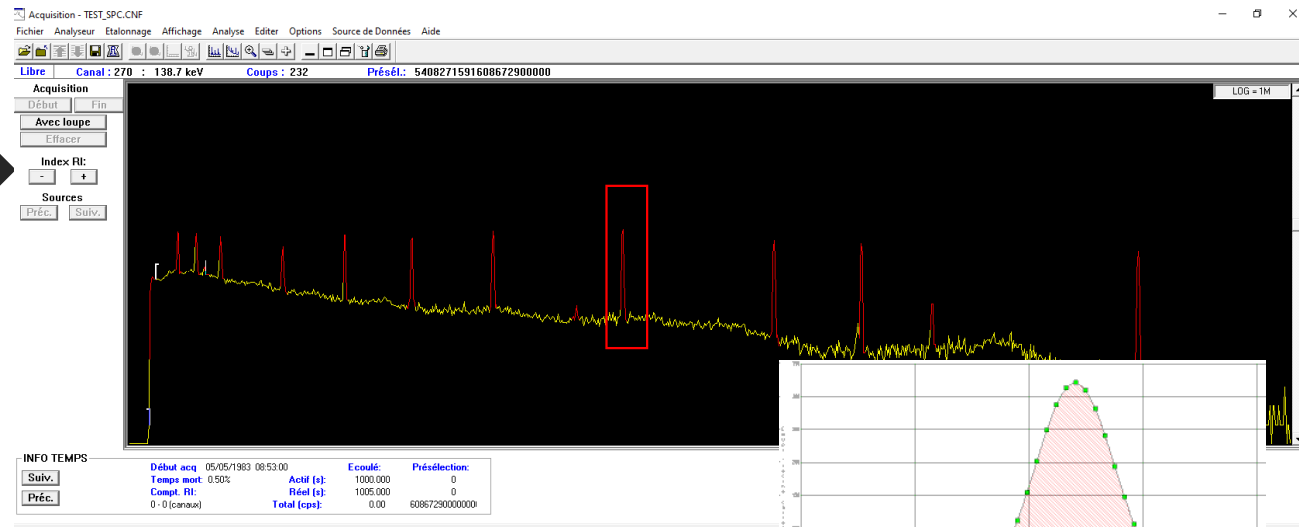
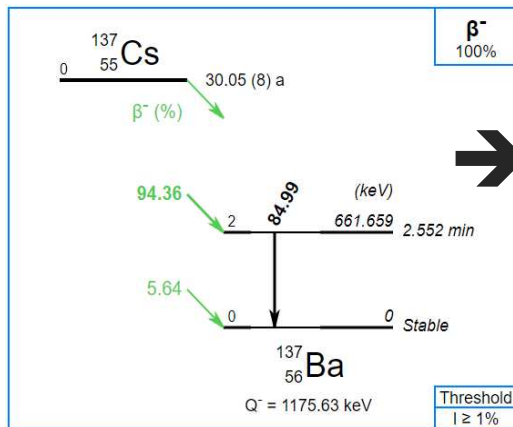


Schéma de désintégration du Cs-137

Position (énergie) du pic  $\Leftrightarrow$  identification

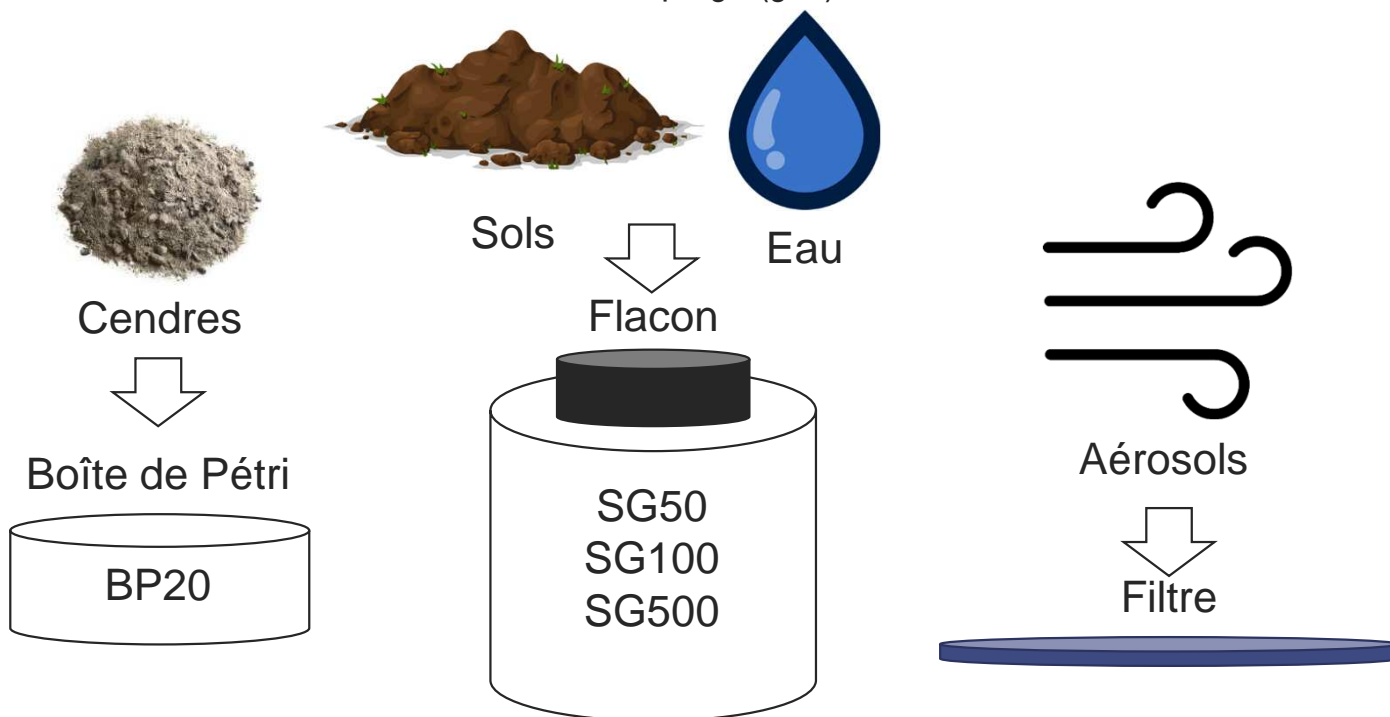
Surface du pic  $\Leftrightarrow$  quantification

➔ **Activité en Bq (Bq/kg, Bq/m<sup>3</sup>)**



# Les échantillons

- Préparation au sein du service (séchage, broyage, calcination, purification, chimie et radiochimie)
- Conditionnement dans des géométries spécifiques (solides, liquides, biologiques)
- Transfert dans des cellules de comptage (gaz)





# L'activité massique

➤ Selon la norme ISO NF EN 18589-3 :

$$A = \frac{N - B}{I(E_i) \cdot \varepsilon(E_i) \cdot t} \cdot \frac{1}{m} \cdot \frac{1}{K_c \cdot K_w \cdot \prod_i C_i} \quad [Bq \cdot kg^{-1}]$$

- $N$  : surface brute du pic
- $B$  : bruit sous le pic
- $\varepsilon(E_i)$  : rendement à l'énergie  $E_i$
- $I(E_i)$  : intensité d'émission
- $t$  : durée d'acquisition (en s)
- $m$  : masse de l'échantillon (en kg)
- $K_w$  et  $K_c$  : correction des décroissances radioactives (date de référence et pendant la mesure)
- $C_i$  : facteurs de corrections dont ceux :
  - De sommation pour les radionucléides émetteurs  $\gamma$  en cascade
  - D'auto-absorption pour les échantillons conditionnés en géométries volumiques

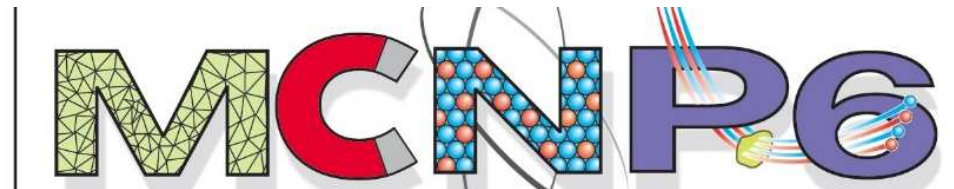


Photographie d'un détecteur germanium du laboratoire.



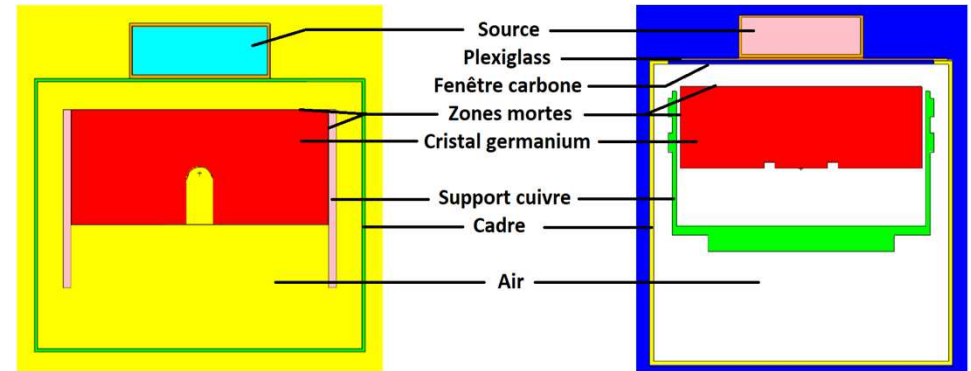


# 2 ■ La modélisation d'un spectromètre HPGe

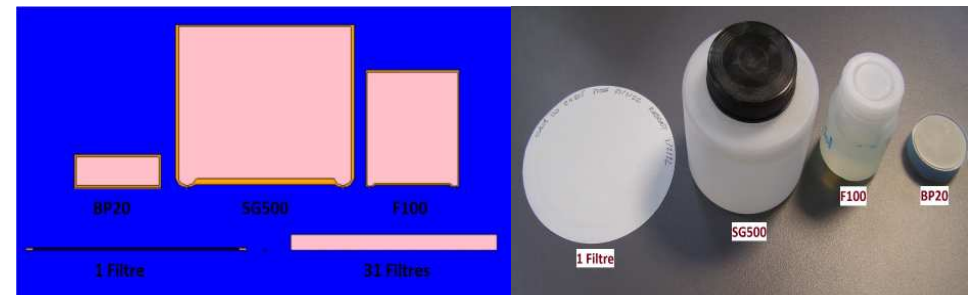


# Premier modèle : cotes physiques

- 12 détecteurs : semi-planaires, planaires et coaxiaux
- 9 géométries :
  - Boîte de pétri BP20
  - Flacons SG500, SG50 et F100
  - Filtres : 110, paquet de 31 filtres, 3M, RASA, Cinderella
- Plusieurs types d'échantillons:
  - Aqueux
  - Sols
  - Biologiques
  - Aérosols
- MCNP6 et MCNP\_CP



Visualisation en coupe d'une modélisation sous MCNP d'un détecteur semi-planaire à gauche et planaire à droite



Photographie et vues en coupe des modèles des géométries usuelles utilisées par la laboratoire

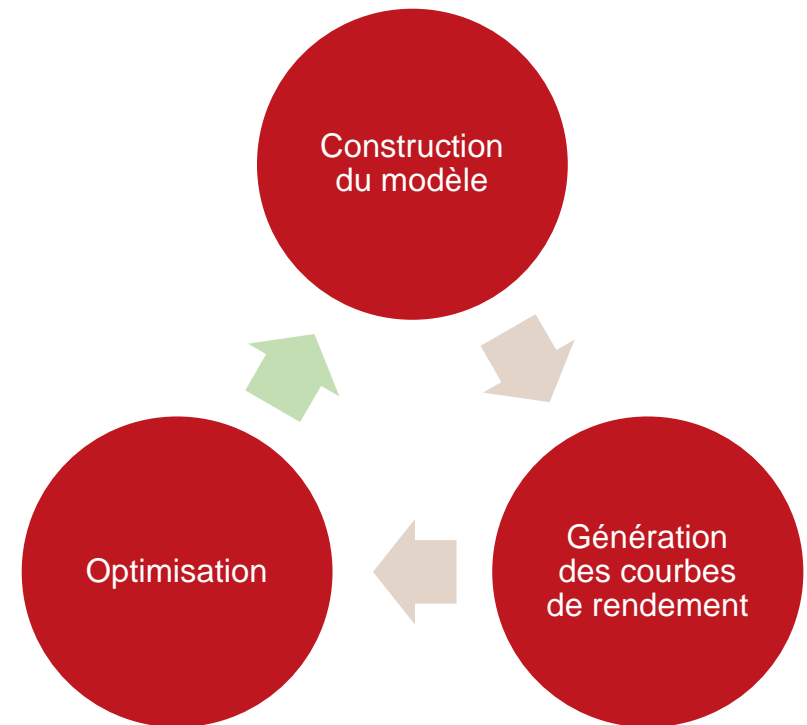
## ➔ Premier modèle numérique

# Optimisation à partir des données expérimentales

- Génération de courbes de rendements
- Utilisation des courbes de rendements expérimentales obtenues à l'aide d'étalon
- Critères :
  - $NPS > 10^7 \Leftrightarrow$  incertitude statistique négligeable
  - Comparaison des rendements simulés et expérimentaux :

$$\left( \frac{\varepsilon_{MCNP}}{\varepsilon_{exp}} \right)_{moyen} \approx 1$$

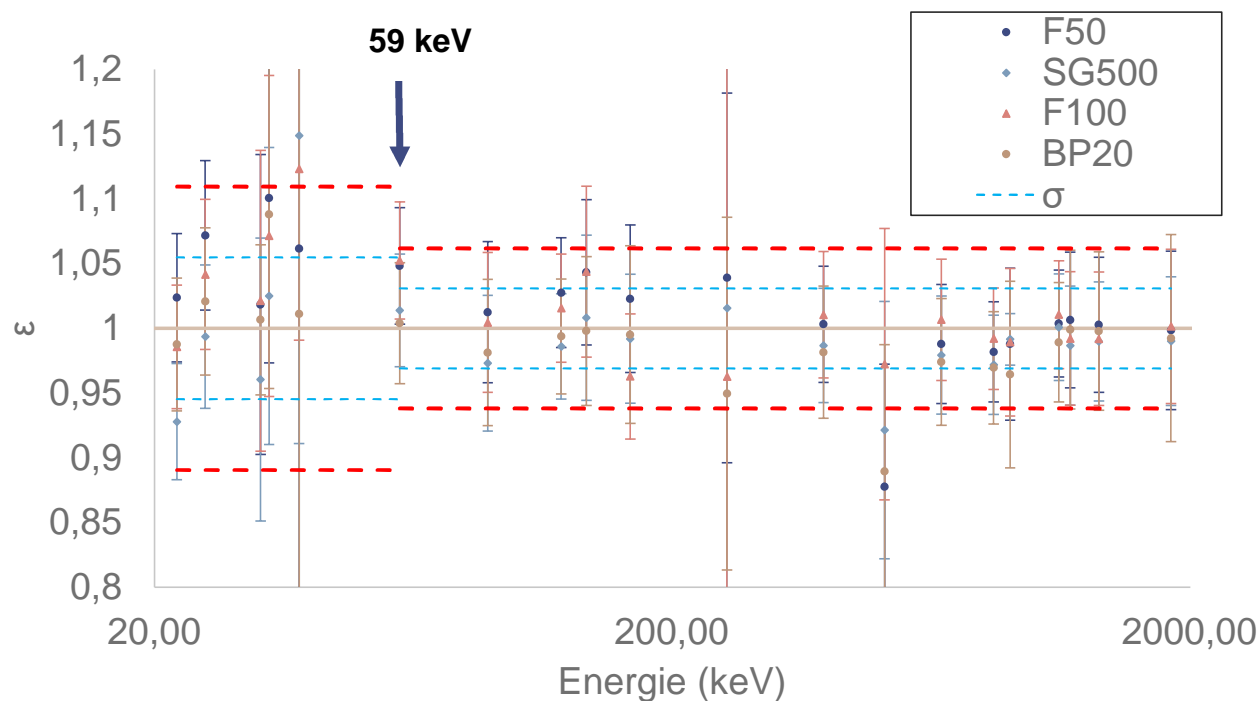
→ Cotes optimisées (zones mortes, distances...)





# Validation d'un modèle

- Modèle validé si les ratios sont proches de 1
- Incertitude directement liée à la dispersion des rapports de rendements
- La dispersion est plus prononcée aux basses énergies → difficulté d'obtention de  $\varepsilon_{exp}$



→ Incertitude du modèle à  $k=2$  →  $2\sigma$  + séparation B.E et H.E

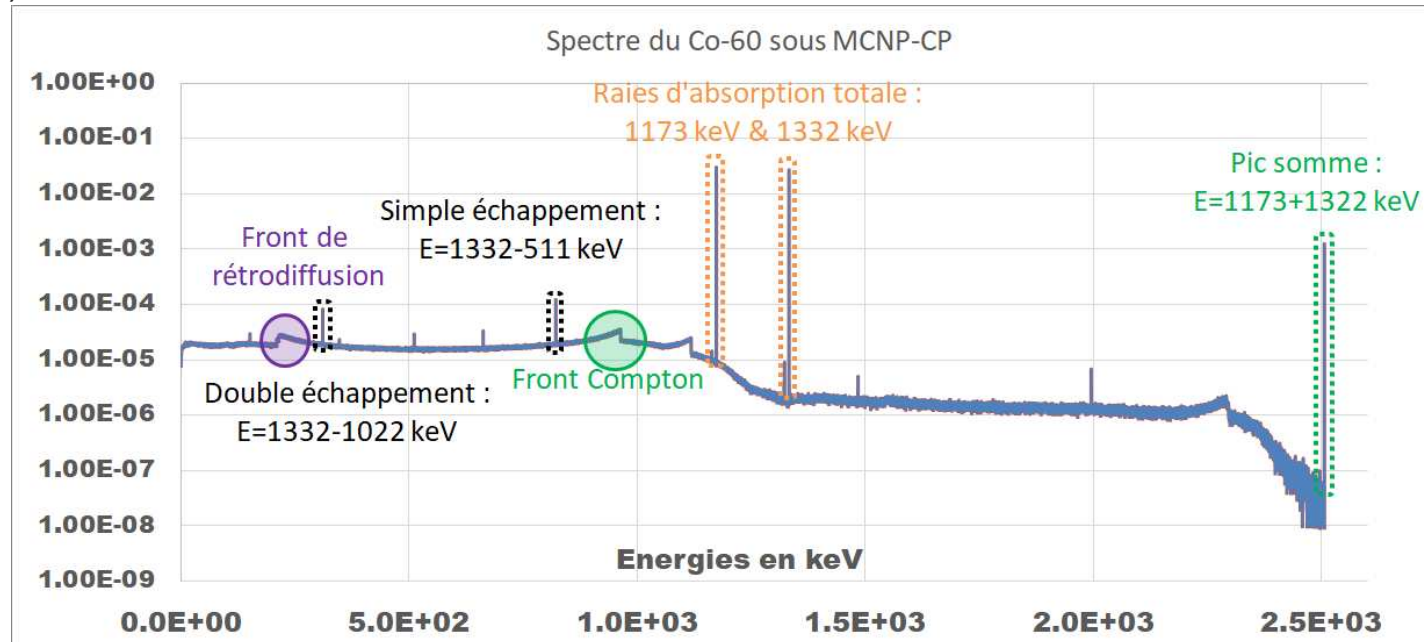
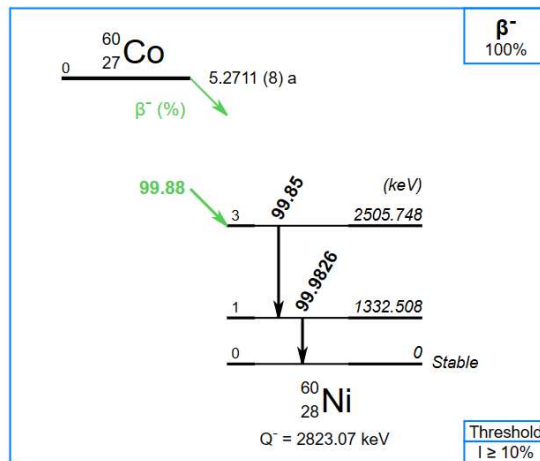


# 3 ■ Corrections de sommation



# Phénomène de sommation

- Principe : deux photons sont émis et détectés simultanément → perte de comptage
- Radionucléide (nombre de niveaux)
- Géométrie
- Détecteur



- Nécessité de corriger à l'étalonnage et lors de la mesure



# Corrections de sommation

- Calcul des facteurs de correction :
  - MCNP6 : rendement à une énergie
  - MCNP\_CP : rendement pour un radionucléide (dépend du schéma de désintégration)

$$F_c = \frac{\epsilon_{MCNP\_CP}}{\epsilon_{MCNP6}}$$

- Corrections appliquées au calcul d'activité pour chaque radionucléide affecté
  - Large gamme de correction
  - Raies moins sensibles au phénomène (dépend du mode de désintégration)

RN	Ba-133	Ba-133	Ba-133	Ba-133	Eu-152	Eu-152	Eu-152	Eu-152	Eu-152	Eu-152
E (keV)	81.00	276.40	302.85	356.01	45.70	121.78	344.28	778.90	964.08	1408.01
Fc	1,677	2,101	1,847	1,589	1,493	1,66	1,18	1,308	1,756	1,684
RN	Cs-134	Cs-134	Cs-134	Cs-134	Cs-134	Cs-134	Co-57	Co-57	Co-60	Co-60
E (keV)	569.32	604.69	795.84	801.93	1167.92	1365.16	122.06	136.47	1173.23	1332.49
Fc	1,581	1,316	1,325	1,529	0,787	0,689	1,007	0,972	1,207	1,214
RN	Pb-212	Pb-212	Pb-212	Pb-214	Pb-214	Pb-214	Pb-214	Pb-214	Pa-234m	Pa-234m
E (keV)	115.18	238.63	300.09	53.23	242.00	295.22	351.93	785.91	766.36	1001.03
Fc	1,329	1	1,374	1,354	1,024	0,991	1,002	1,02	1,024	0,99

Exemples de quelques facteurs utilisés pour la géométrie BP20 sur un HPGe de 180 cm<sup>3</sup>



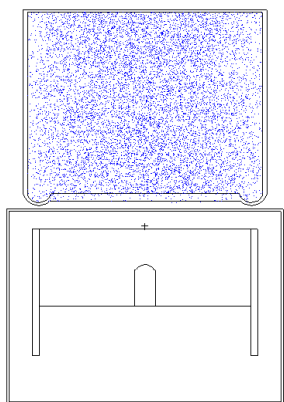
# **4 ■ Génération d'une courbe de rendements**



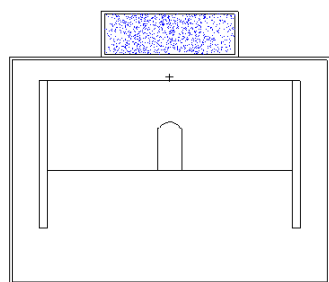


# Substitution nécessaire

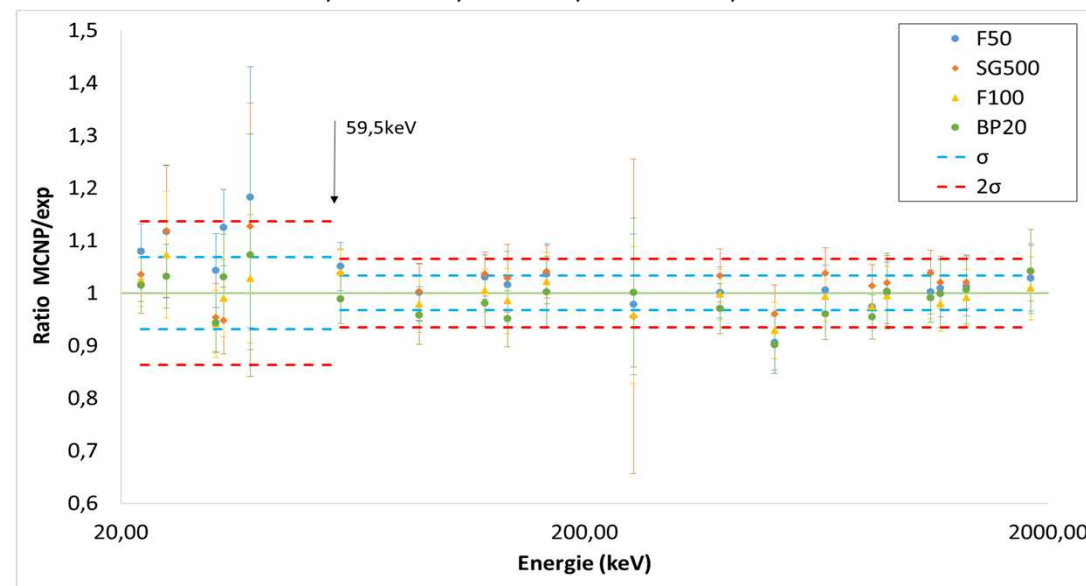
- Etalon non disponible (géométrie complexe, radionucléide à durée de vie courte...)
  - Echantillon : paquet de 30/31 filtres (diamètre 110, épaisseur 8 mm)
  - Gamme d'énergie : 40 keV à 1836 keV
- Optimisation du modèle à partir de 5 géométries standards : BP20, SG50, F100, SG500, filtre 110 mm



modèle avec géométrie SG500.  
Diamètre actif de 93,6 mm,  
hauteur active de 73 mm.



modèle avec géométrie BP20. Diamètre actif de 45 mm,  
hauteur active de 13,8 mm.

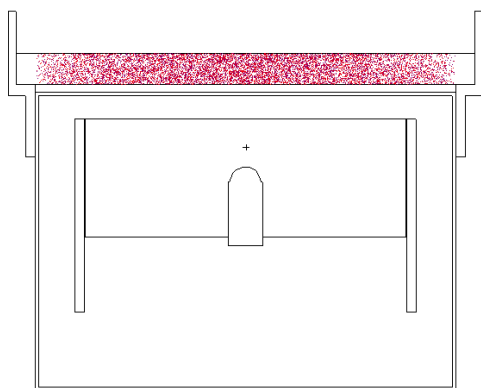


→ Raccordement métrologique démontré

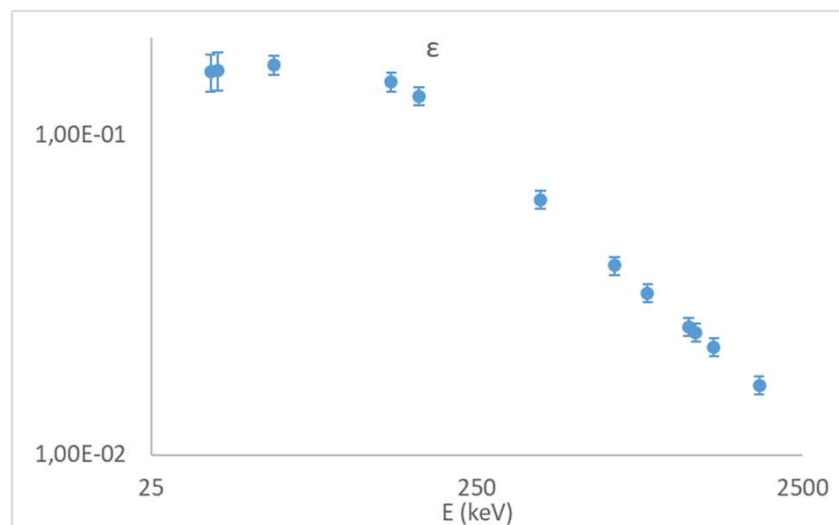


# Génération de la courbe de rendements

- Génération d'une courbe de rendement avec des incertitudes associées



modèle M-C avec géométrie « 31 filtres ». Hauteur de la zone active de  $7,5 \pm 2$  mm et diamètre de  $110 \pm 2$  mm



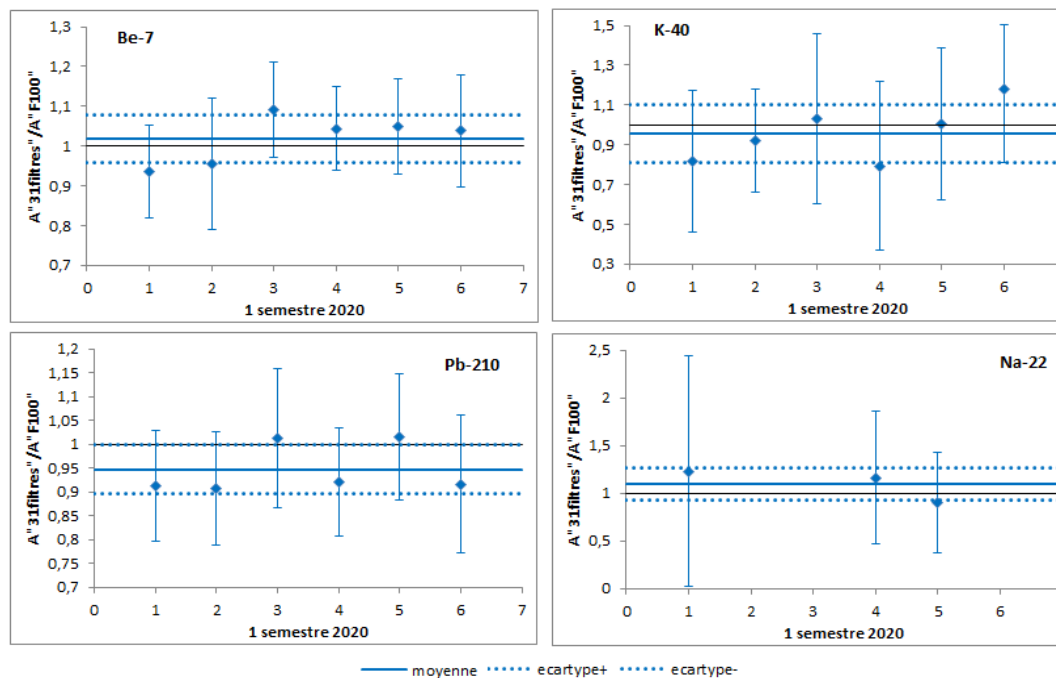
E (keV)	$\epsilon$	$U(\epsilon)/\epsilon$
38,06	1,57E-01	13,6 %
40,00	1,59E-01	13,6 %
59,54	1,65E-01	6,6 %
136,47	1,46E-01	6,6 %
165,86	1,32E-01	6,6 %
391,70	6,27E-02	6,6 %
661,66	3,90E-02	6,6 %
834,85	3,20E-02	6,6 %
1115,55	2,51E-02	6,6 %
1173,23	2,41E-02	6,6 %
1332,49	2,17E-02	6,6 %
1836,07	1,65E-02	6,6 %
2734,09	1,14E-02	6,6 %
3000,00	1,01E-02	6,6 %

➔ Courbe de rendements pour la géométrie d'intérêt



# Validation de la méthode

- Une année d'échantillons : 12 paquets
  1. Mesure avec la courbe de rendements simulée
  2. Mise en solution et mesure en géométrie F100 (raccordement métrologique différent)
  3. Comparaison des activités



→ Mesures accréditées par la COFRAC

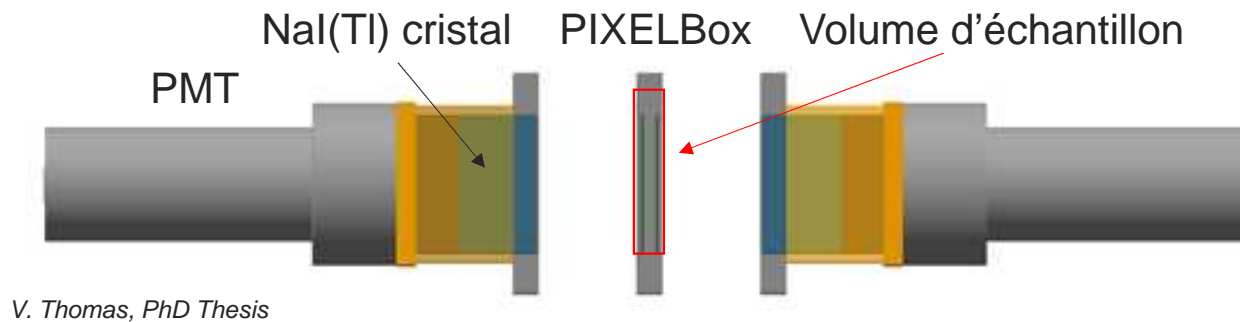


# **5** ■ **La mesure en coïncidence beta/gamma**



# Le système MARGOT

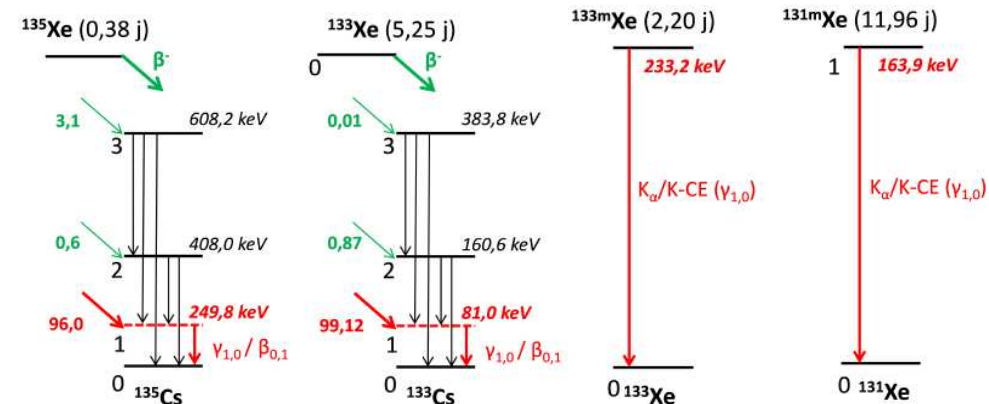
- Système de mesure mobile pour des échantillons gazeux (radioxénons)



- Etalonnage en rendement complexe car les étalons de radioxénons décroissent rapidement

- Modèle validé à partir de sources solides
- Simulation des rendements pour les radioxénons
- Validation avec une source gazeuse

➔ Etalonnage par simulation Monte-Carlo



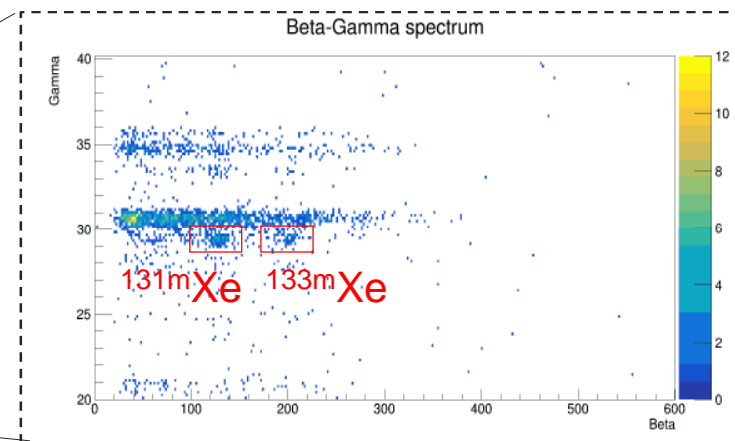
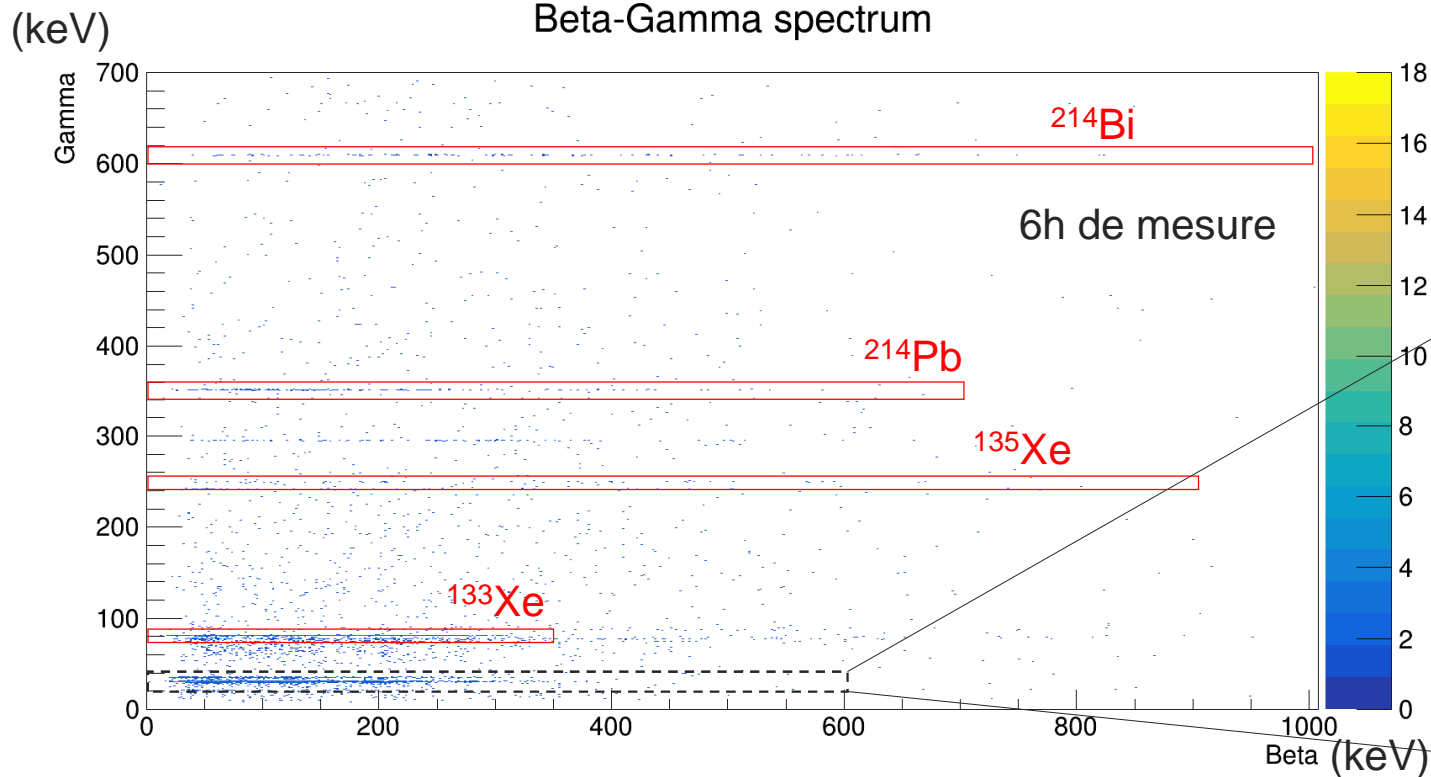


# Mesures à deux dimensions

Echantillon d'air collecté à Bruyères-le-châtel

Bkgd rate (c/s)	SPALAX-NG
$^{135}\text{Xe}$	1.57E-05
$^{133}\text{Xe}$	2.15E-05
$^{133\text{m}}\text{Xe}$	4.03E-06
$^{131\text{m}}\text{Xe}$	8.06E-06

Beta-Gamma spectrum



→ Limites de détection ++



# 6 ■ Conclusion

# Conclusion

- Multiples utilisations de la simulation Monte-Carlo :
  - Corrections de l'activité (sommations)
  - Génération de courbes de rendements (mesures accréditées par le COFRAC)
  - Mesures en coïncidences beta/gamma (étalonnage, développement de systèmes)
- Perspectives : thèse 2023
  - Certification de la mesure en coïncidence  $\beta/\gamma$
  - Développement de l'étalonnage en coïncidence  $\gamma/\gamma$





# Conclusion

- Multiples utilisations de la simulation Monte-Carlo :
  - Corrections de l'activité (sommations)
  - Génération de courbes de rendements (mesures accréditées par le COFRAC)
  - Mesures en coïncidences beta/gamma (étalonnage, développement de systèmes)
- Perspectives : thèse 2023
  - Certification de la mesure en coïncidence  $\beta/\gamma$
  - Développement de l'étalonnage en coïncidence  $\gamma/\gamma$



**Merci pour votre attention**