

Le Laboratoire de mesure des faibles radioactivités (LAFARA) : améliorations et nouvelles possibilités analytiques

Thomas Zambardi, Pieter van Beek et Marc Souhaut

Laboratoire de mesure des faibles radioactivités (LAFARA) – Université Toulouse III
Observatoire Midi Pyrénées – LEGOS – CNRS

thomas.zambardi@legos.obs-mip.fr

Le Laboratoire de mesure des faibles radioactivités (LAFARA) est une plateforme d'analyse de la radioactivité par spectrométrie gamma de l'Observatoire Midi Pyrénées (Université Toulouse III), développée en 2007 en vue de réaliser des mesures bas bruit de fond dans tous types de matériaux. Le LAFARA est un laboratoire souterrain, placé sous 85 m de couverture rocheuse dans les Pyrénées Ariégeoises, offrant un bouclier de protection contre le rayonnement cosmique équivalent à une colonne d'eau de 250 m. Depuis 2018, avec un soutien financier de l'Union européenne et de la région Occitanie, le LAFARA a été profondément transformé et amélioré, notamment via la refonte complète de son infrastructure (matériaux sélectionnés TFA, environnement de travail de type salle blanche, système de filtration du radon) ainsi que le développement et l'acquisition de nouveaux spectromètres gamma à cristal de germanium ultra haute pureté (HPGe) de dernière génération. Le niveau de bruit de fond analytique obtenu est 60 à 70 fois plus faible que celui d'un laboratoire non-souterrain, et 4 fois plus faible que celui du LAFARA avant 2018 [1]. La plateforme est agréée par l'Autorité de Sûreté Nucléaire (ASN) depuis janvier 2020 pour les mesures de radioactivité environnementale et satisfait aux exigences de la norme ISO/CEI-17025.

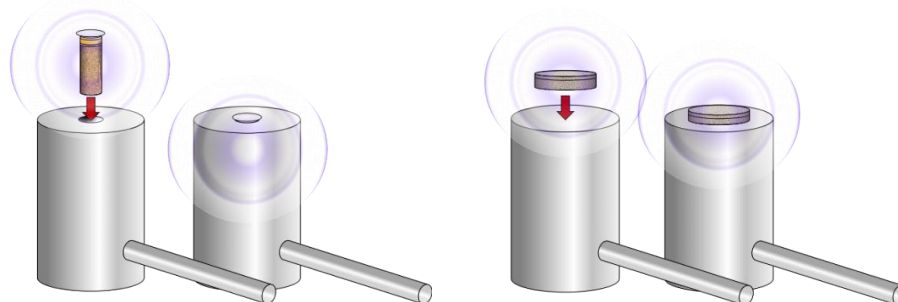


Figure 1 : Deux types de spectromètres gamma HPGe bas bruit de fond en fonctionnement au LAFARA. 1) à gauche : spectromètre de type puits - l'échantillon est inséré dans le détecteur (détection sur 4π). 2) à droite : spectromètre gamma de type plan – l'échantillon est posé sur le détecteur (détection sur 2π).

Le couplage de l'environnement bas bruit et des capacités techniques des spectromètres HPGe bas bruit de fond nous a permis de réaliser de nouveaux types de mesures (identification et quantification de radionucléides), notamment pour des échantillons à la fois peu actifs et/ou disponibles en faibles quantités. Nous présentons ci-dessous deux nouveaux cas d'applications :

1) Analyse des radionucléides dans l'eau

Les eaux environnementales ainsi que celles destinées à la consommation humaine sont régulièrement soumises à des contrôles relatifs à différents critères de potabilité, incluant les teneurs en radioéléments (artificiels comme naturels). La spectrométrie gamma est un moyen fiable permettant de quantifier la majeure partie des radio-isotopes présents dans un échantillon. Cependant, les activités mesurées dans les eaux étant le plus souvent – très – faibles, ce type de mesure nécessite généralement la manipulation de grands volumes d'eau ainsi que la mise en œuvre de méthodes de pré-concentration (e.g., filtration, évaporation) aussi coûteuses que chronophages en vue d'obtenir un signal détectable.

Une méthode d'analyse directe de l'eau, sans pré-concentration ni chimie préparatoire a été développée et rendue possible grâce aux spécificités techniques d'un spectromètre HPGe de type « puits » (cf. figure 1) installé au LAFARA, et disposant d'un très grand volume d'échantillon admissible (jusqu'à 35 cc contre 5 à 10 cc en moyenne). La sensibilité de ce détecteur couplée à l'environnement de mesure bas bruit a permis d'analyser des échantillons d'eau douce de 25 ml, sans intervention préalable sur l'échantillon. La validation de la méthode a été réalisée en analysant des eaux contenant de très faibles activités de radionucléides naturels issus des chaînes de désintégration de ^{238}U et ^{232}Th distribuées par l'Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire (IRSN) dans le cadre d'exercices de comparaison inter-laboratoires (EIL). Nous présentons ici les résultats obtenus (figure 2) par mesure directe vs. méthode de pré-concentration au moyen de fibres imprégnées de KMnO_4 (e.g., [2, 3, 4]).

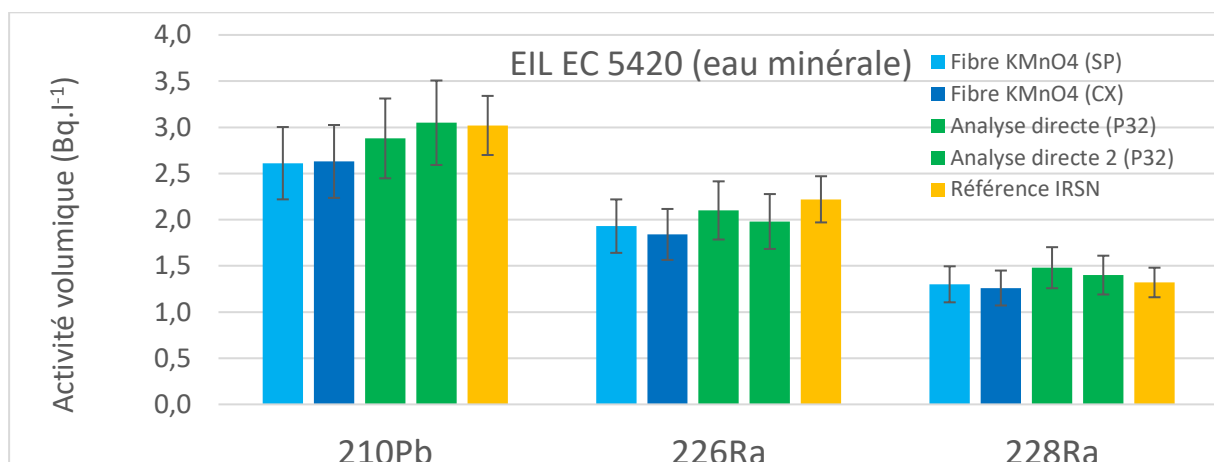


Figure 2 : Comparaison des résultats obtenus pour l'EIL IRSN EC 54-20 (mesure de radionucléides naturels dans une eau de consommation).

Les résultats obtenus dans le cadre de l'EIL IRSN EC 54-20 en mesure directe (diagrammes verts) sont comparables, aux incertitudes de mesures près, avec ceux obtenus via la méthode de pré-concentration sur fibre imprégnée de KMnO_4 (diagrammes bleus) et sont conformes aux valeurs certifiées par l'IRSN selon les critères de validation des EIL (écart relatif, écart normalisé et z-score). Les échantillons étant analysés sans traitement préalable, cette méthode d'analyse directe permet de réduire le risque de biais de mesures dus aux manipulations. Cette méthode représente également une avancée significative en spectrométrie gamma en permettant une simplification notable de la logistique d'échantillonnage et une accélération de la réalisation des campagnes de mesures des radionucléides des eaux dans l'environnement, sans compromis sur la qualité des mesures. Ces résultats particulièrement encourageants préfigurent des capacités des équipements en fonctionnement au LAFARA et peuvent être étendus à d'autres types d'applications, comme la caractérisation radiologique des effluents hospitaliers.

2) Mesure de radionucléides dans des pièces métalliques activées faiblement émettrices (cyclotron)

Le recours aux cyclotrons a pour conséquence la genèse de déchets radioactifs d'activation issus des composants du cyclotron lui-même, lorsqu'ils sont soumis aux flux de particules accélérées (protons ou deutons). Les matériaux activés sont pour la plupart des solides métalliques (alliages et super alliages d'aciers, alliages spéciaux type HAVAR), des additifs techniques (huiles et graisses), et des matériaux composites (polymères). Ces matériaux recensent une grande diversité d'éléments chimiques (e.g., Fe, Ti, Ni, Al, Cr, W, etc...), pouvant conduire à l'apparition d'autant de radionucléides d'activation différents (e.g., ^{22}Na , ^{46}Sc , ^{48}V , ^{57}Co , ^{60}Co , etc...e.g.,[5]), et vraisemblablement de manière hétérogène, compte tenu de l'architecture et de l'exposition différentielle de chaque matériau aux flux de particules. La caractérisation de ces pièces est cependant nécessaire car elle fait partie du processus de gestion et de prise en charge des déchets radioactifs par l'ANDRA.

Une difficulté à laquelle la méthode par spectrométrie gamma se heurte est la diversité de tailles et de formes des objets à caractériser. Une manière de contourner cette difficulté consiste à analyser des échantillons de très petites tailles via des spectromètres gamma de type « puits », ce qui permet au germanium d'interagir avec la quasi-totalité de la sphère de rayonnement de l'échantillon, peu importe sa forme,

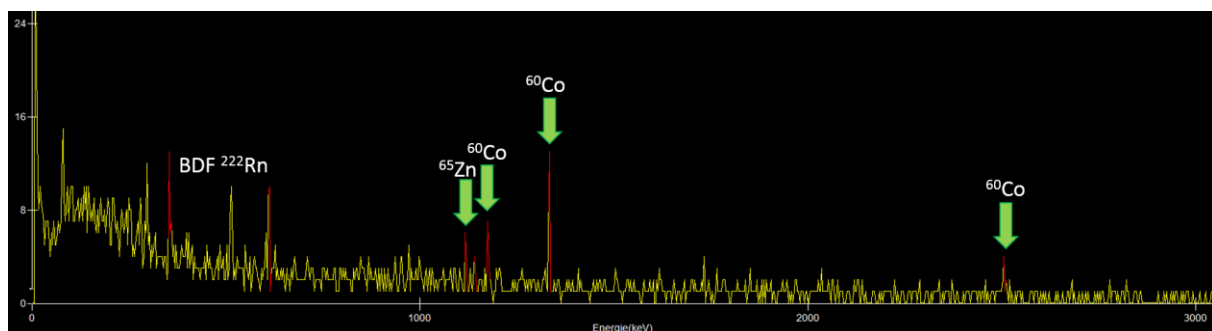


Figure 3 : Spectre d'acquisition gamma d'un échantillon de cible de cyclotron (23 mg) après 48h de comptage. Le bruit de fond analytique particulièrement bas laisse clairement ressortir les pics de ^{60}Co et ^{65}Zn .

et de réduire la différence d'auto-absorption potentielle entre échantillon et standard d'étalonnage. La réduction de la quantité d'échantillon induit en retour un signal – très – faible, qui peut être délicat à mesurer. Nous avons réalisé une mesure gamma sur une ancienne cible de cyclotron, gérée en décroissance depuis plusieurs années et de très faible activité (débit de dose au contact mesuré via un tube Geiger Müller de 0,1 à 0,15 $\mu\text{Sv/h}$). Un prélèvement de poudre de métal a été réalisé par fraisage sur 8 points répartis de manière aléatoire sur l'ensemble de la surface de la pièce. L'échantillon a ensuite été mesuré pendant 48 h, révélant la présence de ^{60}Co (1173, 1332 et pic somme à 2505 keV) et de ^{65}Zn (1115 keV, cf. figure 3). Les conditions bas bruit offertes par le LAFARA ont permis d'analyser les pics de ^{60}Co et ^{65}Zn de l'échantillon, ce malgré un taux de comptage très faible. L'activité intrinsèque de l'échantillon a été quantifiée à environ 7 mBq, traduisant une activité massique de ^{60}Co de 168 Bq/ kg \pm 47 (2s) et de ^{65}Zn de 122 Bq/ kg \pm 55 (2s).

Le prélèvement de faibles quantités d'échantillons présente de nombreux avantages, notamment dans le cas de matériaux très durs et difficiles à échantillonner pour lesquels le prélèvement de grandes quantités serait difficile, voire impossible. L'utilisation de spectromètres gamma de type puits ultra-sensibles au LAFARA permet ainsi de réduire les quantités d'échantillons à prélever, diminuant de fait les risques d'exposition, tout en permettant une acquisition du signal fiable.

[1] P. van Beek et al. (2013) *Journal of environmental radioactivity* vol. 116 pp. 152-158.

[2] W. S. Moore (1969) *Earth and Planetary Science Letters* vol. 6, pp. 437-446.

[3] W. S. Moore and D. F. Reid (1973) *Journal of Geophysical Research* vol. 78, issue 38, pp. 8880-8885.

[4] M. A. Charette et al. (2012) *Limnology and Oceanography: Methods* vol. 10, pp. 451-463.

[5] N. Brassart et al. (1995) *Radioprotection* vol.30, n°3, pp.411-422.