

JUIN 2025

DÉVELOPPEMENT D'UN SYSTÈME DE MESURES RADIOLOGIQUES RAPIDES DE TERRAIN TOUS PUBLICS AVEC UN TRAITEMENT ASSISTÉ INTÉGRANT LE DÉMÉLANGE SPECTRAL

TRILATAC

PSE-ENV/SAME/LMN, Le Vésinet

CONTEXTE INITIAL ET OBJECTIFS

■ **Point de départ** : accident de Fukushima

→ **Besoin** : Détecteur dédié à l'analyse de denrées alimentaires en situation post-accidentelle (environ 2 mois après rejet)

■ **Deux utilisations différentes**

- **Publique** : aide à la décision pour la consommation d'aliments
- **Experte** : analyse sur le terrain

■ **Limites d'activités** : définies par la norme européenne Euratom 2016/52

■ **Radionucléides d'intérêt émetteurs gamma** :

- ^{131}I
- ^{134}Cs
- ^{137}Cs

Groupe des isotopes/groupes des denrées alimentaires	Denrée alimentaire (Bq/kg)		
	Liquides alimentaires	Aliments pour nourrissons	Autres denrées alimentaires
Somme des isotopes de l'iode, notamment ^{131}I	500	150	2000
Somme de tous autres nucléides à période radioactive supérieur à 10 jours, notamment ^{134}Cs et ^{137}Cs	1000	400	1250

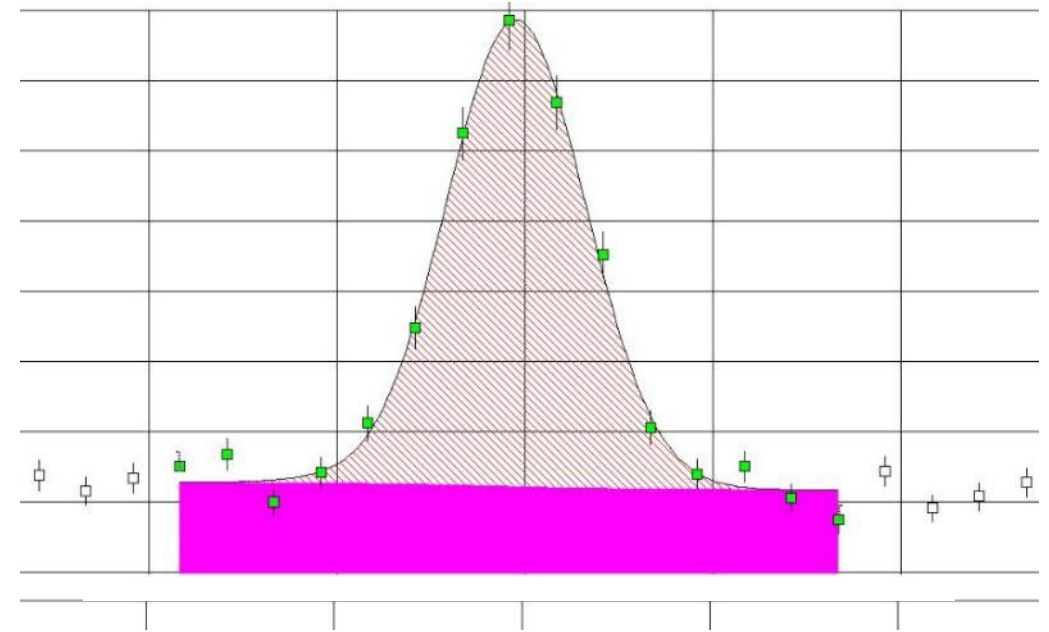
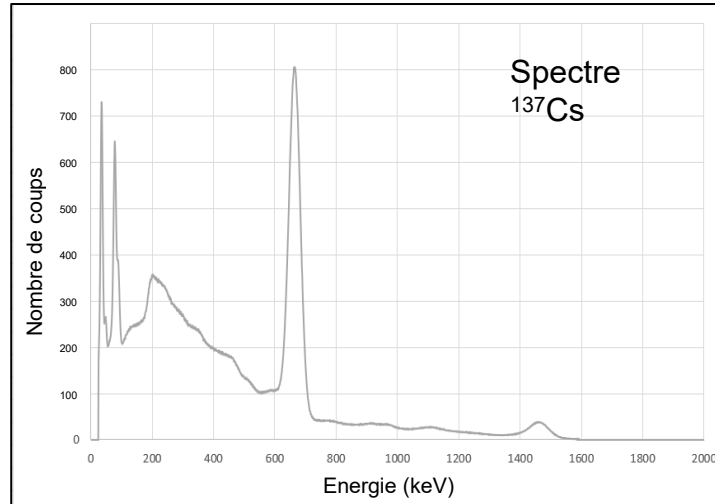
Niveaux maximaux admissibles de contamination radioactive des denrées alimentaires (règlement [Euratom 2016/52](#)) – Extrait

PROJET INITIAL

Basé sur la méthode d'analyse classique de spectre gamma des laboratoires



NaI 3x3 pouces
Blindage acier + Plomb



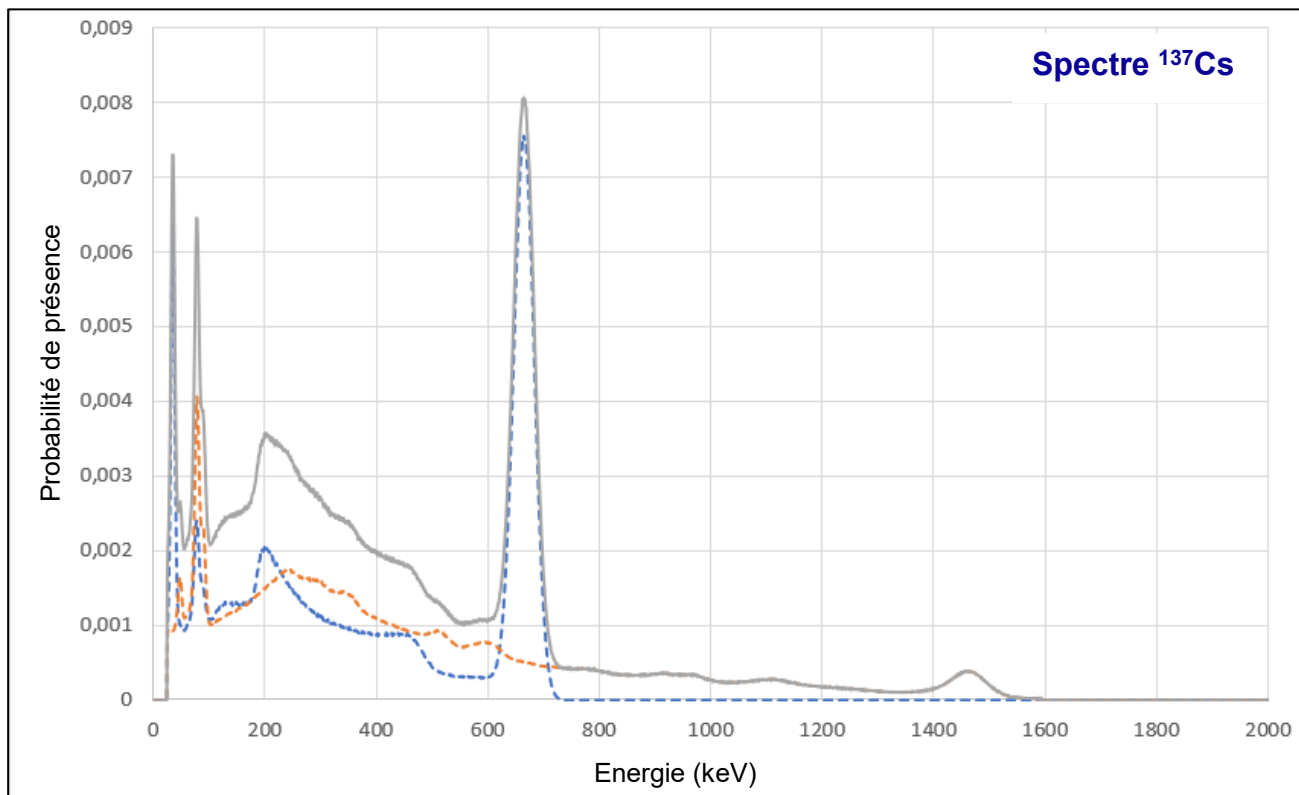
→ Aire sous le pic d'intérêt

$$A = \frac{N_{NET}}{R \times I \times Ta} \times Fc$$

→ Nécessite l'intervention d'un technicien

INTÉGRATION DU DÉMÉLANGE SPECTRAL

■ Algorithme développé au CEA/Laboratoire National Henri Becquerel (LNHB) dans le cadre du projet ANR NANTISTA [1]



Principe

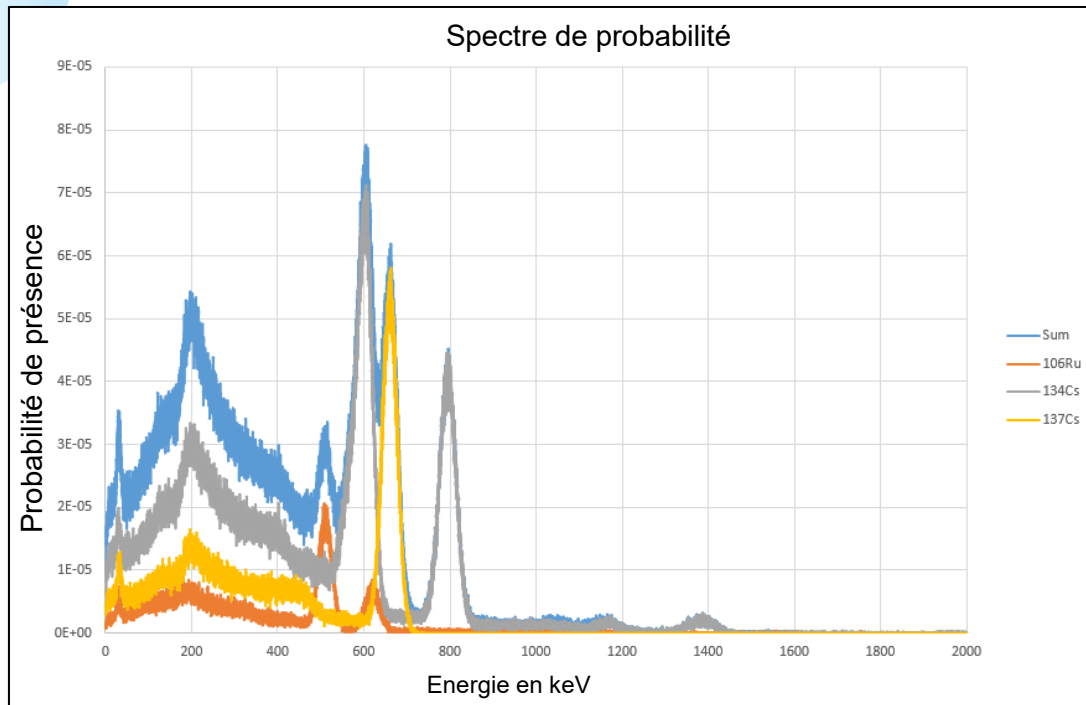
- Spectre = somme des spectres de chaque radionucléide et du bruit de fond
- Signatures spectrales = spectre de référence d'un radionucléide, bruit de fond
- Algorithme itératif utilisant le **spectre entier** pour déterminer la proportion de chaque radionucléide présent dans la bibliothèque

Analyse différente :

- Pas de surfaçage de pics
- Utilisation de l'ensemble du spectre

[1] Bobin, C., Bichler, O., Lourenço, V., Thiam, C., Thévenin, M., 2016. Real-time radionuclide identification in γ -emitter mixtures based on spiking neural network. App. Radiat. Isot. 109, 405-409

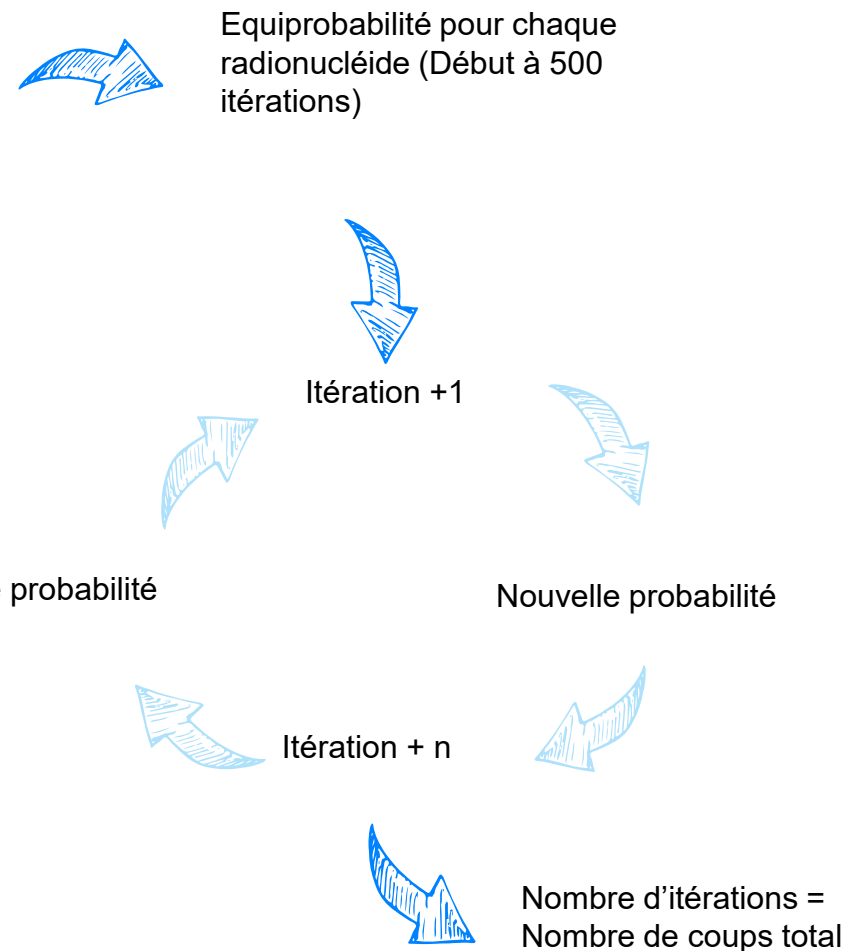
DÉMÉLANGE SPECTRAL : MÉTHODE



L'algorithme détermine les proportions de chaque radionucléide dans le spectre pour correspondre au spectre analysé

$$\rightarrow A(RN_j) = \frac{N_{TOT} \times P(RN_j)}{R(RN_j) \times t_{acq}}$$

Analyse post-acquisition une bibliothèque



PREMIERS TESTS

Algorithme recodé en C++

Comparaisons avec deux appareils présents sur le marché

Source	$^{54}\text{Mn} + ^{134}\text{Cs} + ^{137}\text{Cs}$					
	Démélange spectral			Appareil commercial		
Radionucléides	Activité de référence (Bq/L)	Activité mesurée (Bq/L)	Écart (%)	Activité de référence (Bq/L)	Activité mesurée (Bq/L)	Écart (%)
^{54}Mn	429	416	-3	390	519	32,8
^{134}Cs	217	226	4,1	208	Non vu	-
^{137}Cs	604	611	1,1	603	651	8

Source avec interférent : ^{54}Mn

Temps de comptage : 5 minutes

■ Démélange spectral efficace même en présence de plusieurs radionucléides

■ Appareil commercial : n'arrive pas à mesurer tous les radionucléides

DÉVELOPPEMENT D'UN LOGICIEL INTÉGRANT LE DÉMÉLANGE SPECTRAL

Mode expert

Tri-Latac

Analyse Conversion

Actions

Bibliothèque	Échantillon
Analyser	Résultats
Import / Export	Nettoyer

Informations

Seuils (?)

23	bas
2000	haut

Coefficients (?)

0.000000	a
0.000000	b
0.000000	c

Etape(s) nécessaire(s) (?)

- ☐ choisir une bibliothèque de ssp
 - ☐ charger des ssp
- ☐ choisir un échantillon
- ☐ remplir infos échantillon
- ☐ modifier les coefficients

2 utilisations :

- Mode expert
- Utilisateur simple

Prérequis via mode expert :

- Signatures spectrales
- Bruit de fond
- Etalonnage du détecteur

➔ Analyse automatique

AMÉLIORATION DU SYSTÈME DE DÉTECTION

PERSPECTIVE D'AVOIR UN APPAREIL MOBILE

DÉTECTEUR ET
PRÉAMPLIFICATEUR



Cristal $\text{LaBr}_3(\text{Ce}+\text{Sr})$ co-dopé
1,5x1,5 pouces

HAUTE TENSION



10 x 8 x 4 cm
260 g

ANALYSEUR
MULTICANAL
(MCA)



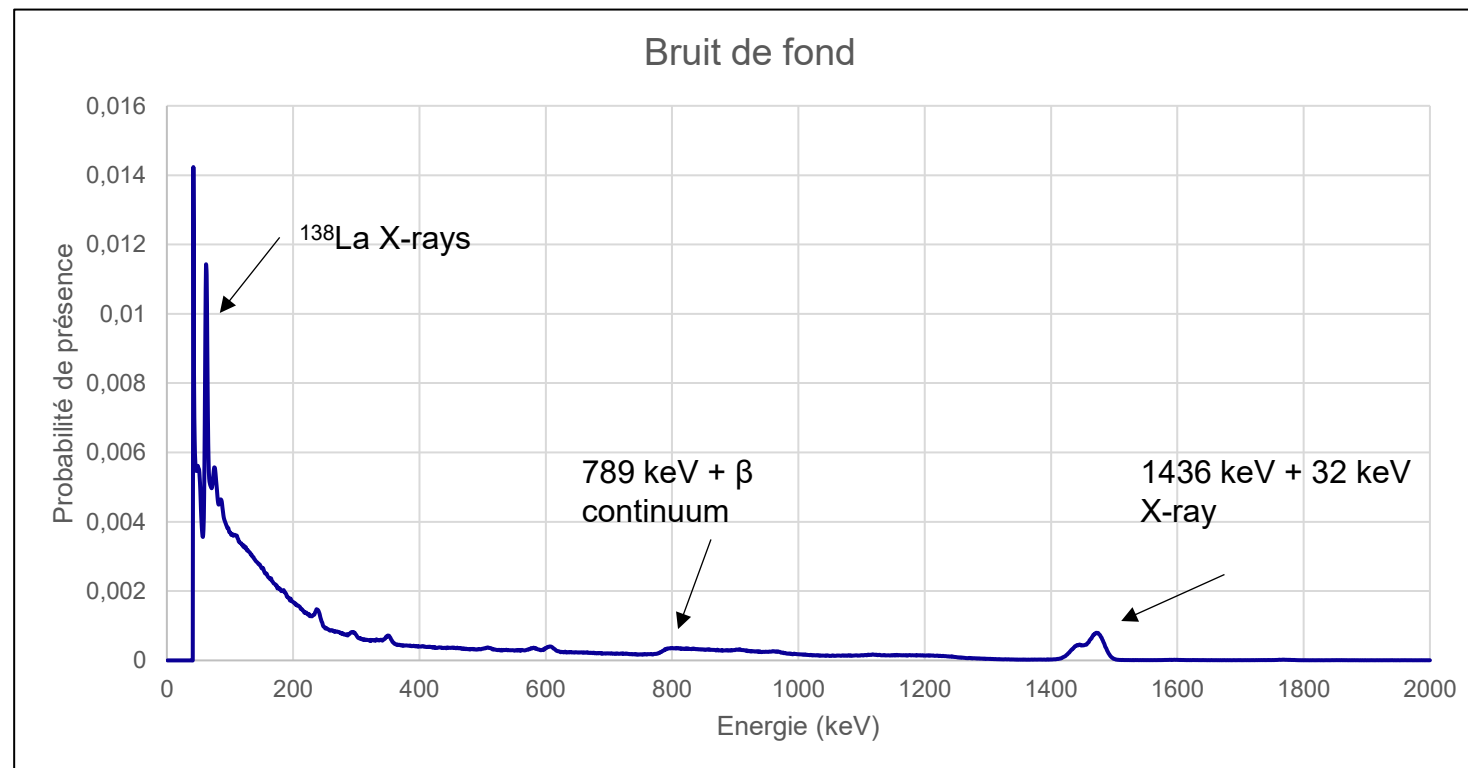
9,2 x 3,8 x 2,5 cm
135 g

~~Nal 3x3
pouces~~

Résolution :
46 à 14 keV
Pour ^{137}Cs

BRUIT DE FOND

- Raies caractéristiques du ^{138}La présent dans le cristal
- Pas d'interférences sur les radionucléides d'intérêt



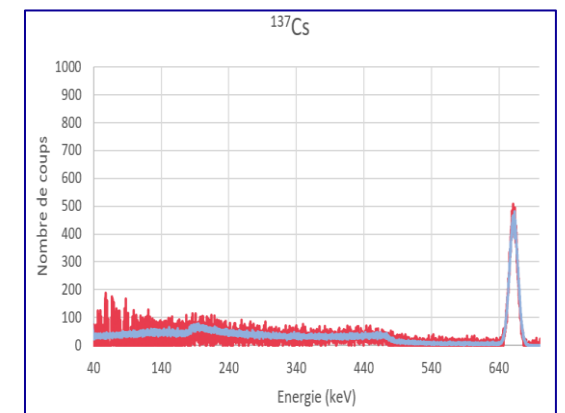
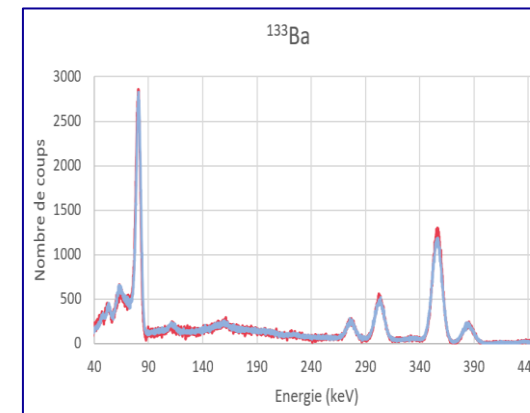
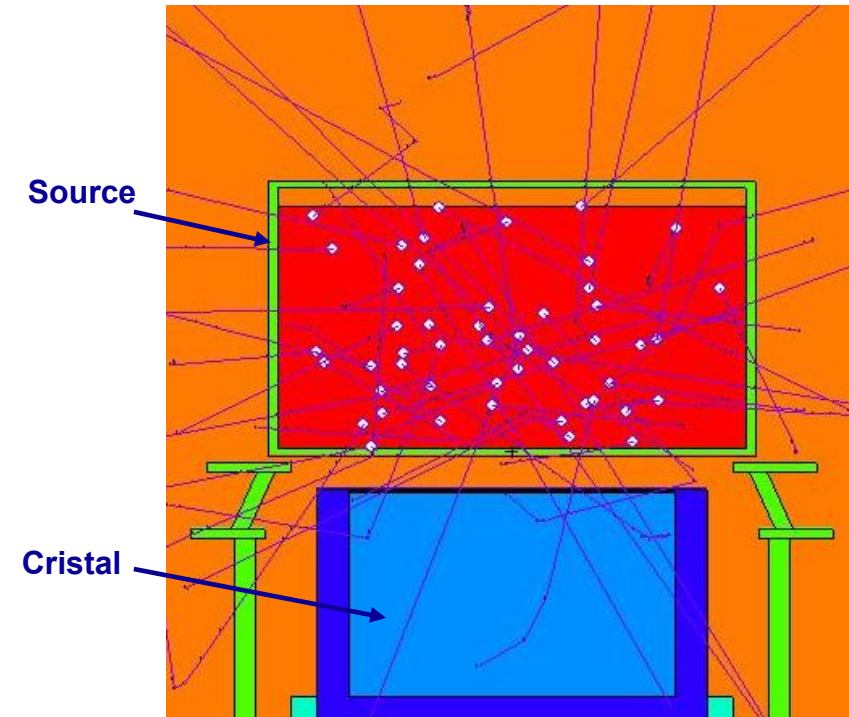
TESTS → Blindage non nécessaire

Seuil de l'algorithme à 40 keV pour éviter les raies X du ^{138}La

SIGNATURES SPECTRALES

Les différentes étapes :

- Mesure d'une source étalon pour chaque RN que l'on souhaite avoir dans la bibliothèque (soustraction du bruit de fond) :
 - ➔ Deux utilisations de ces acquisitions :
 - Réalisation d'une signature spectrale (bibliothèque)
 - Utilisation des spectres pour caractériser le détecteur
- Comparaison acquisitions/simulations pour valider le modèle du détecteur pour créer de nouvelles signatures
- Simulation de spectres avec MCNP-CP pour compléter la bibliothèque

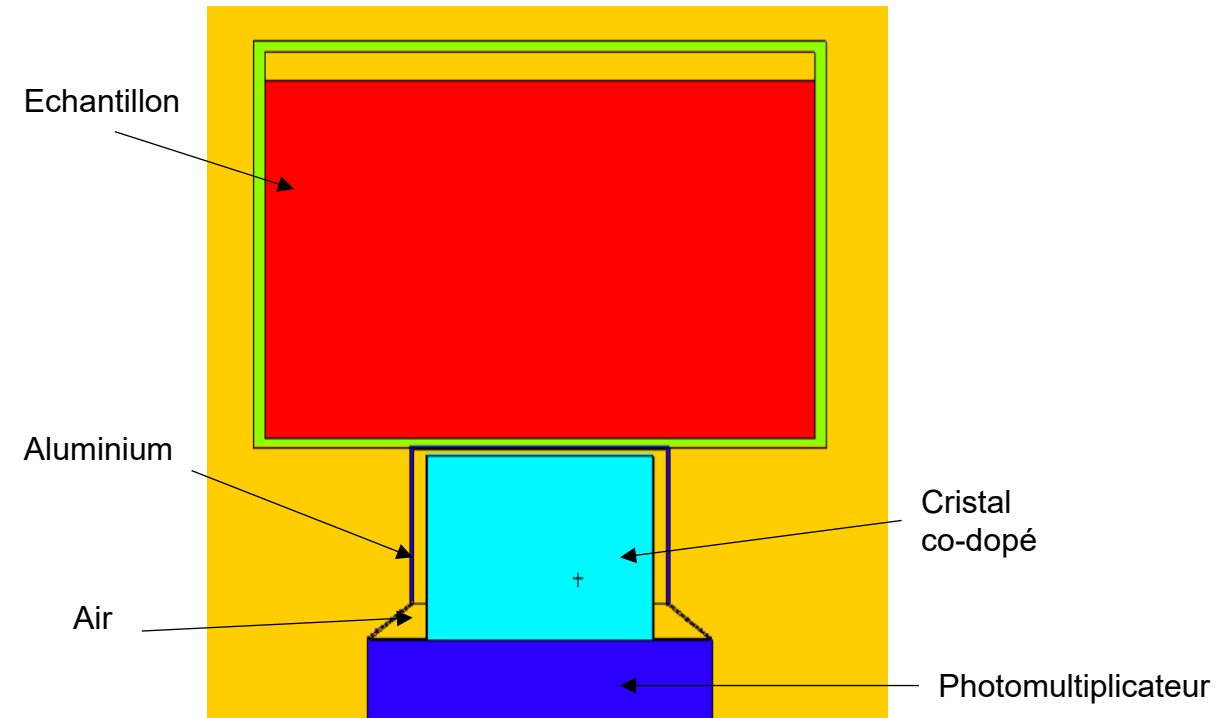


CARACTÉRISATION DU LaBr_3

Ajustements avec sources étalons

	Rendement acquisition	Rendement simulation	Ecart (%)
^{133}Ba	4,52E-02	4,32E-02	4,7
^{134}Cs	5,00E-02	5,10E-02	-2,0
^{137}Cs	2,01E-02	2,03E-02	-1,0
^{60}Co	5,03E-02	4,87E-02	3,2

MODÈLE DE SIMULATION



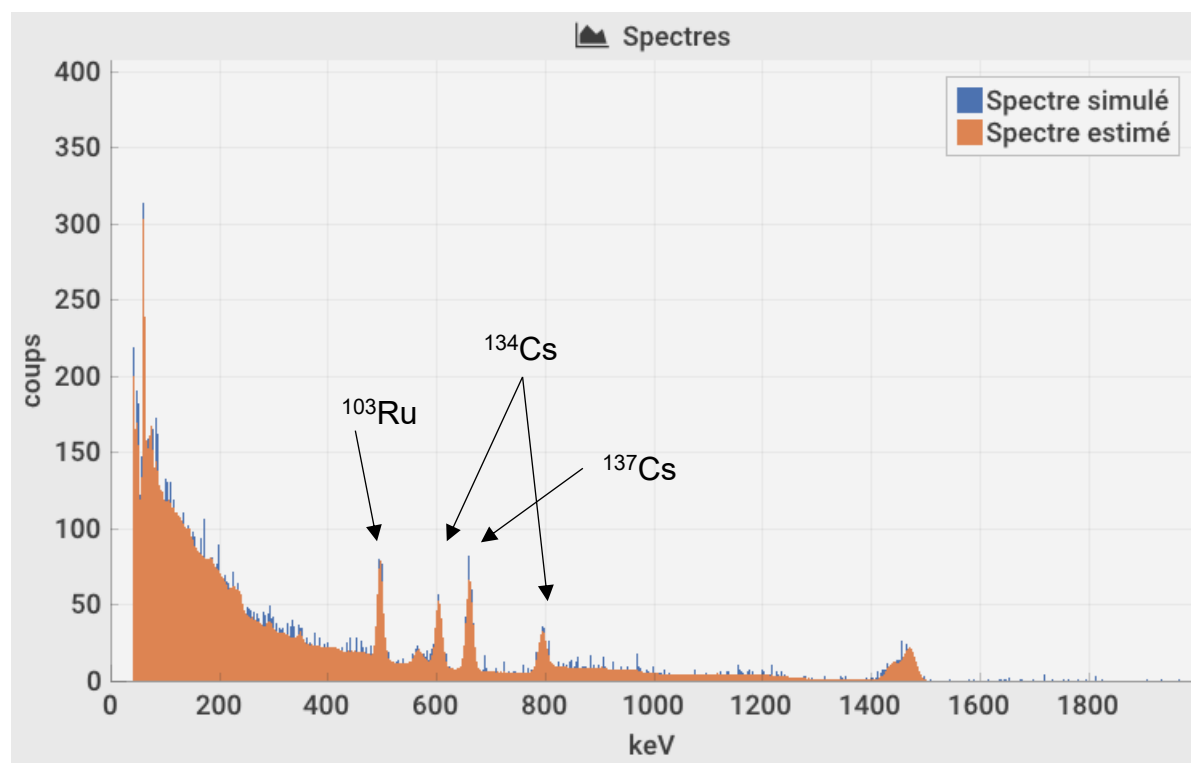
Modèle validé
(écarts inférieurs à 5 %)

RÉSULTATS

Création d'un spectre avec MCNP-CP à partir des résultats issus de Tchernobyl

→ Spectre typique de situation post-accidentelle (> 2 mois après l'accident)

RN	NMA (Bq/kg)
^{131}I	150
^{134}Cs	400
^{137}Cs	400



- J + 60 jours
- Plantes
- 5 min de comptage

	Activité référence (Bq/kg)	Activité mesurée (Bq/kg)	Ecart (%)
^{103}Ru	690	685	-0,7
^{134}Cs	580	610	5,1
^{137}Cs	1100	1116	1,4

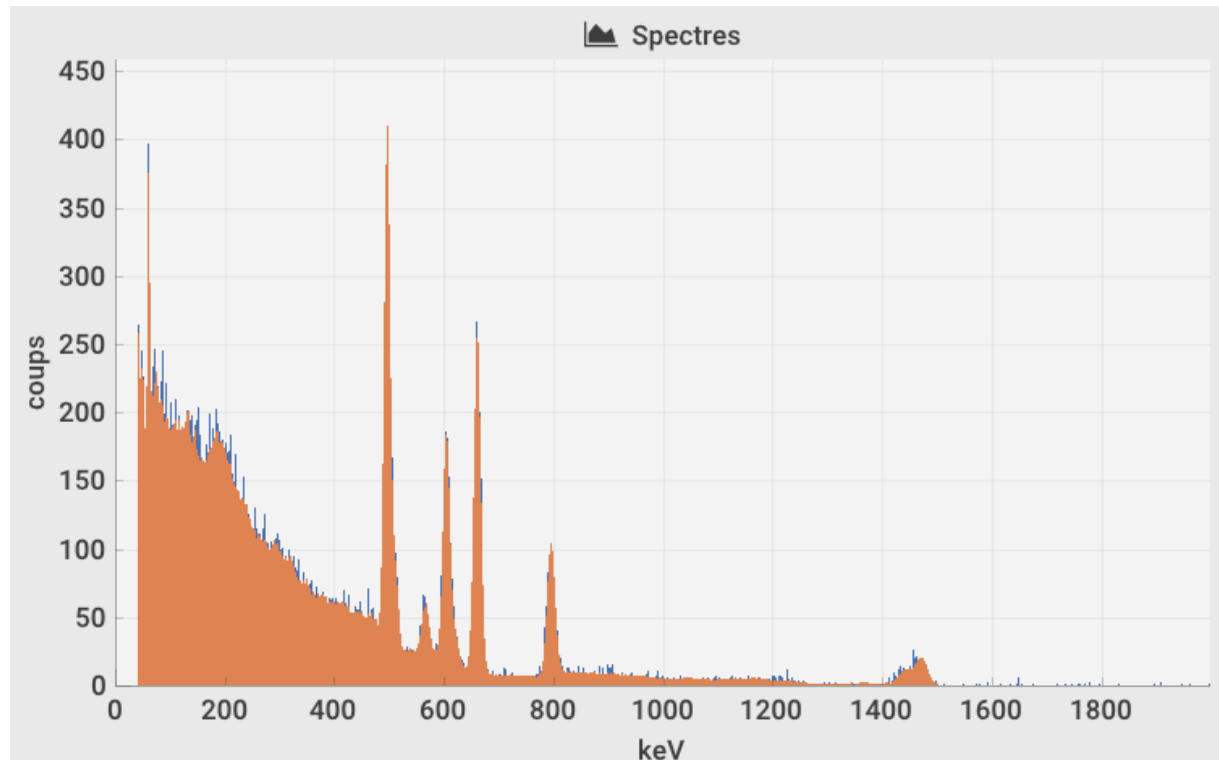




RÉSULTATS

→ Spectres typiques en situation post-accidentelle (> 2 mois après l'accident)

RN	NMA (Bq/kg)
^{131}I	150
^{134}Cs	400
^{137}Cs	400



- J + 81 jours
- Plantes
- 5 min de comptage

	Activité référence (Bq/kg)	Activité mesurée (Bq/kg)	Ecart (%)
^{103}Ru	4200	4367	4,0
^{106}Ru	3000	3044	1,5
^{134}Cs	2300	2380	3,5
^{137}Cs	4500	4628	2,8
^{144}Ce	300	386	28,6

- Faible rendement pour le ^{144}Ce et activité en dessous des NMA
- Faible intensité d'émission 10,83% à 133 keV

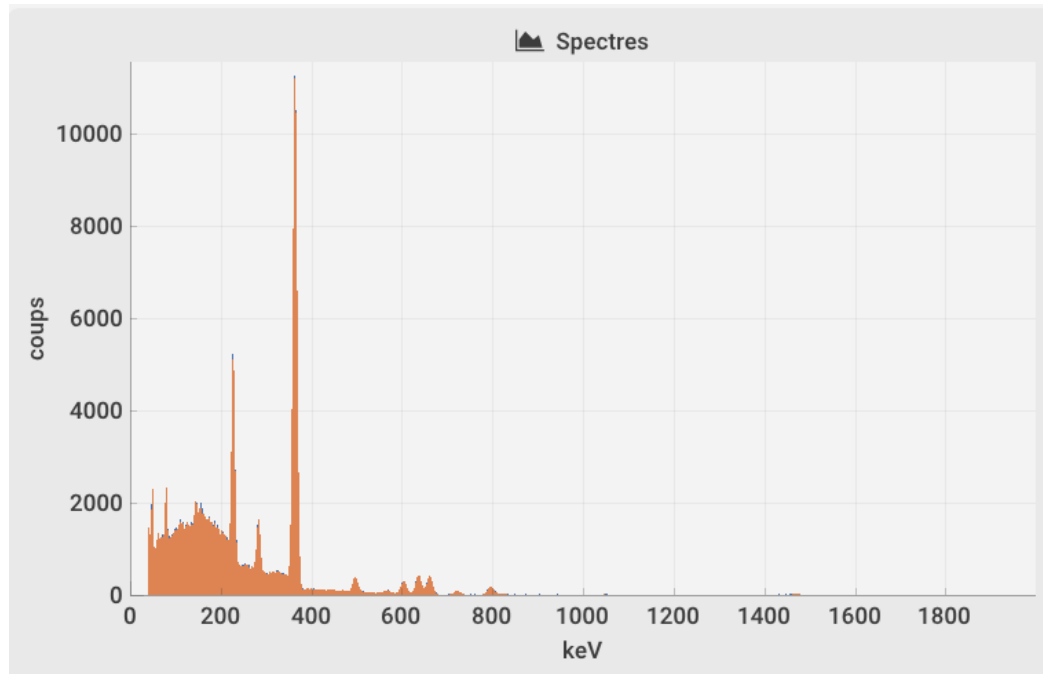


RÉSULTATS

■ Spectre plus complexe (hautes activités et nombreux radionucléides)
hors scope

- J + 5 jours
- Plantes
- 5 min de comptage

RN	NMA (Bq/kg)
^{131}I	150
^{134}Cs	400
^{137}Cs	400



	Activité référence (Bq/kg)	Activité mesurée (Bq/kg)	Ecart (%)
^{103}Ru	3600	3506	-2,6
^{106}Ru	1100	1282	16,5
^{131}I	88000	88917	1,0
^{132}Te	18000	18035	0,2
^{134}Cs	3900	4119	5,6
^{136}Cs	460	509	10,6
^{137}Cs	7100	7174	1,0
^{141}Ce	2700	2630	-2,6

➔ ^{106}Ru (621 keV) proche du ^{134}Cs (604 keV) et activité plus faible

Ecart faible
(hors cas les plus complexes)

RN	NMA (Bq/kg)
¹³¹ I	150
¹³⁴ Cs	400
¹³⁷ Cs	400

ESTIMATION DES INCERTITUDES^[2]

→ Objectif : environ 20 %

$$u_{TOT} = \sqrt{u_1^2 + u_2^2 + u_3^2 + u_4^2 + u_5^2}$$

PARAMÈTRES

u_1 : démélange spectral

u_2 : calibration des signatures spectrales (5 %)

u_3 : source utilisée pour la caractérisation du détecteur (2 %)

u_4 : variation de la position de l'échantillon (2 %)

u_5 : fidélité intermédiaire (1 %)

Incetitudes inférieures à 40 % même pour les cas complexes

Simulation Tchernobyl

	Activité mesurée (Bq/kg)	Incetitude k=2	Ecart (%)
¹⁰³ Ru	3506	13 %	-2,6
¹⁰⁶ Ru	1282	35 %	16,5
¹³¹ I	88917	11 %	1,0
¹³² Te	18035	11 %	0,2
¹³⁴ Cs	4119	11 %	5,6
¹³⁶ Cs	509	17 %	10,6
¹³⁷ Cs	7174	11 %	1,0
¹⁴¹ Ce	2630	13 %	-2,6

[2] Jiaxin Xu. Development of analysis tools for gamma-ray spectrometry. Nuclear Experiment. Université Paris-Saclay, 2020.

LIMITES DE DÉTECTION (LD)^[3]



Définition : La *limite de détection* correspond au minimum d'activité d'un radionucléide pouvant être détectée

RN	NMA (Bq/kg)
¹³¹ I	150
¹³⁴ Cs	400
¹³⁷ Cs	400

VALEURS DE LD POUR LES 3 RADIONUCLÉIDES D'INTÉRÊT

SG500 D'EAU

RN	LD (Bq/kg) 15 s	LD (Bq/kg) 30 s	LD (Bq/kg) 60 s	LD (Bq/kg) 300 s
¹³¹ I	206	145	105	45
¹³⁴ Cs	211	146	102	45
¹³⁷ Cs	346	238	170	75

→ VALEURS DES NMA RAPIDEMENT ATTEINTES (60 s)



Définit temps de comptage à 5 min

Pour atteindre les NMA même en cas de variations de bruit de fond

[3] Paradis, H., Bobin, C. 2017. Note Technique, Mesures environnementales en cas de crise, application du démélange spectral séquentiel et de la prise de décision automatique



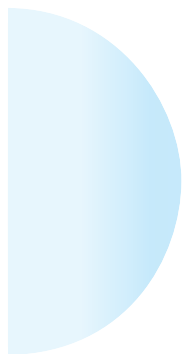
CONCLUSION

- | Résultats plus que satisfaisants
- | Travail sur les différences de matrices (eau, sol, herbe...)
- | Travail sur des remplissages inhomogènes (aspect public)
- | Travail sur des Bibliothèques différentes et niveaux d'activité différents

PERSPECTIVES

- | Travail sur les résidus pour la détection de radionucléides absents de la bibliothèque
- | Stabilité en énergie du spectre
- | À long terme : limites de détections sur chaque analyse pour optimiser les temps de comptage avec traitement en cours d'acquisition

Rédaction d'un cahier des charges pour la réalisation d'un prototype



Travaux :

- Tristan Brazy
- Mattéo Linzi
- Emeline Vincent

MERCI DE VOTRE ATTENTION