



Mesure de traces de radioactivité dans l'environnement par spectrométrie γ en coïncidence

H.-D. Lenouvel¹, P. Gross¹, A. De-Vismes Ott¹, M. Morin¹, S. Topin^{1,2}, J. Aupiais¹, H. Paradis¹

¹ CEA, DAM, DIF, F-91297 Arpajon, France

² CNAM, Analyse Chimique et Bioanalyse, EPN-7, 292 rue Saint Martin, 75003 Paris, France

Auteur correspondant : hugues.paradis@cea.fr

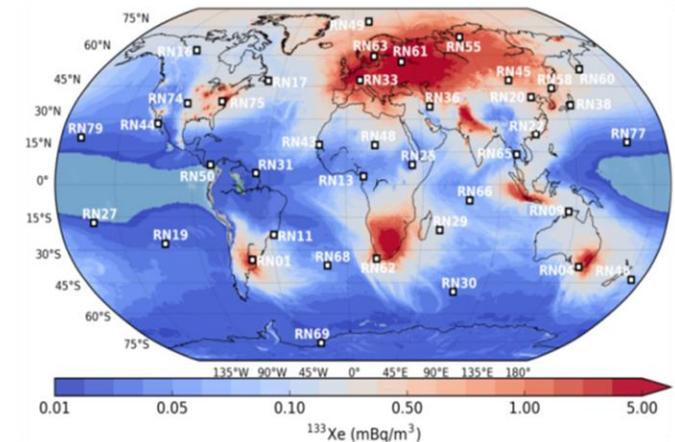




1 ■ **Mesure de traces dans l'environnement**

Les missions du service de surveillance de l'environnement du CEA/DAM

- ❑ Étude 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

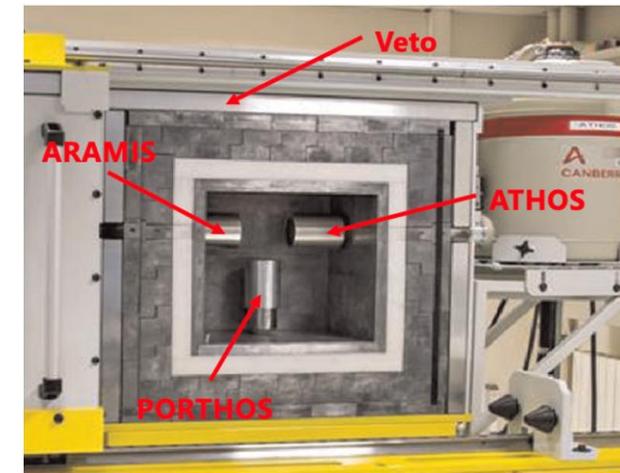
- ❑ Analyses COFRAC selon la norme ISO EN NF 17025 (v2017) :
 - 27 lignes sur la portée d'accréditation
 - Spectrométrie γ et α , compteur proportionnel, scintillation liquide, spectrométrie de masse



- ❑ Analyses certifiées pour l'OTICE (Organisation du Traité pour l'Interdiction Complète des Essais)
 - Spectrométrie γ et β
 - Procédés spécifiques gaz

- ❑ Niveau d'exigence élevé :
 - Incertitudes : $1 < U < 20\%$ ($k=2$)
 - Sensibilité (LD) :
 - 10^{-5} Bq/kg (spectrométrie α et spectrométrie de masse)
 - 1 Bq/kg (^3H)
 - 10^{-2} Bq/kg (spectrométrie γ)...

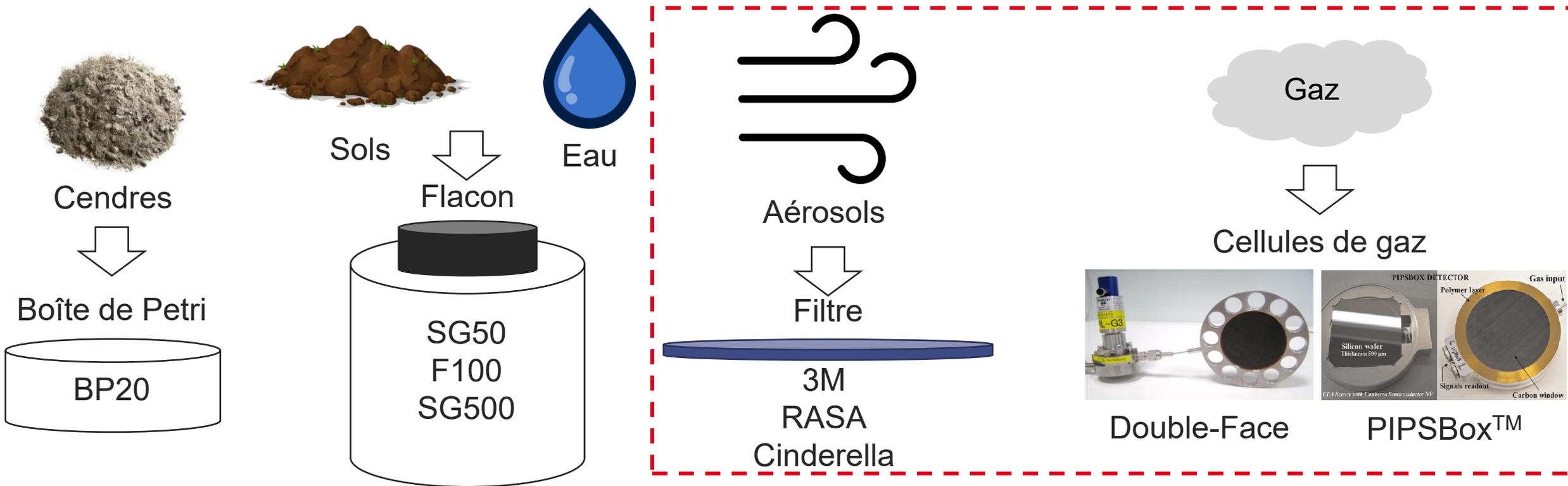
- ❑ Audits fréquents (2 par an)



➔ Mesure de faibles niveaux de radioactivité

Les échantillons

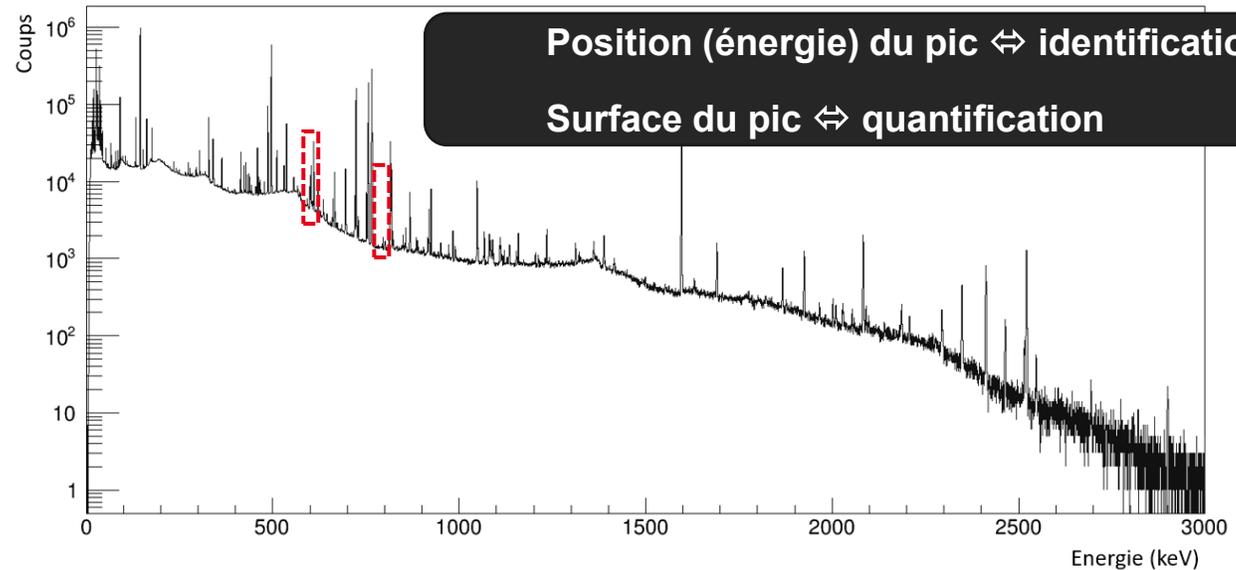
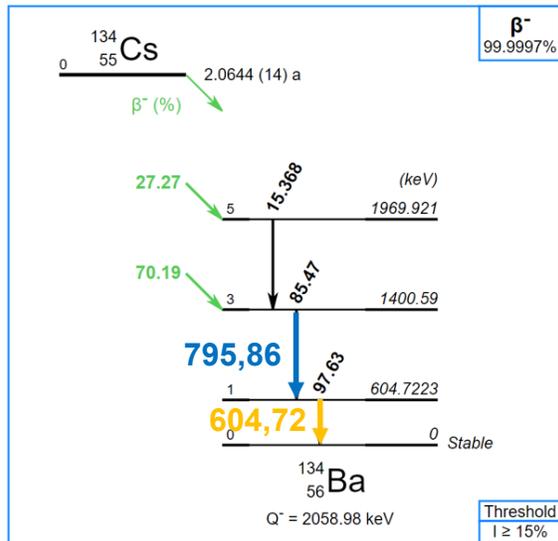
- ❑ Préparation au sein du service (séchage, broyage, calcination, purification, chimie et radiochimie)
- ❑ Conditionnement dans des géométries spécifiques (solides, liquides, biologiques)
- ❑ Transfert dans des cellules de comptage (gaz)



→ Spectrométrie γ et β

La spectrométrie γ

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



$$A = \frac{N_{brut} - B}{I(E_i) \cdot \epsilon(E_i) [1] \cdot t} \cdot \frac{1}{K_C \cdot K_W \cdot \prod_i C_i} \quad [Bq] \text{ Selon la norme ISO NF EN 18589-3}$$

[1] A. Berlizov, A correlated particle source extension of a general purpose Monte Carlo N-Particle transport code, MCNP-CP Upgrade Patch Version 3.2, Institute for Nuclear Research National Academy of Sciences of Ukraine, 2012

➔ Utilisation de la simulation pour le calcul de rendements de détection

Le Gamma³ : dispositif de détection de radionucléides présents à l'échelle de traces dans l'environnement

❑ Gamma³ au sein du laboratoire certifié [2] :

- 3 spectromètres Gamma (HPGe)
- Blindage optimisé

❑ Mesure en coïncidence :

- Plusieurs détecteurs
- Synchronisation temporelle
- ➔ Signatures caractéristiques des radionucléides
- ➔ Bruit de fond très faible

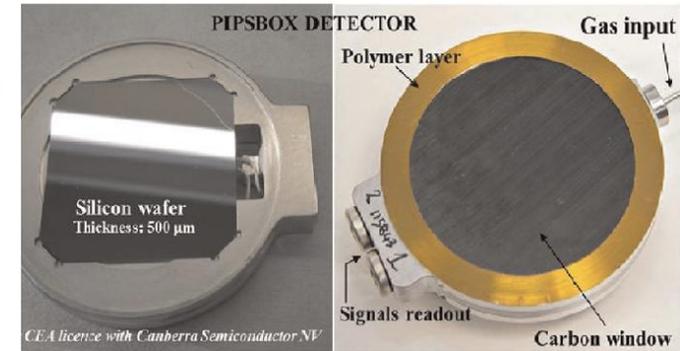
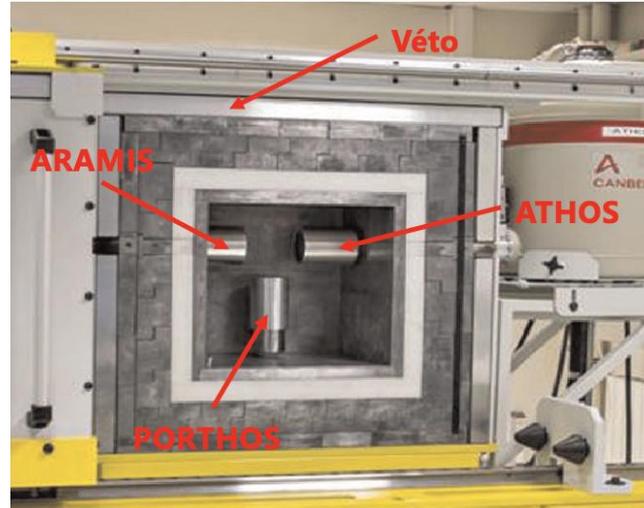


Fig 1. Gamma³ (gauche) & PIPSBox (droite)

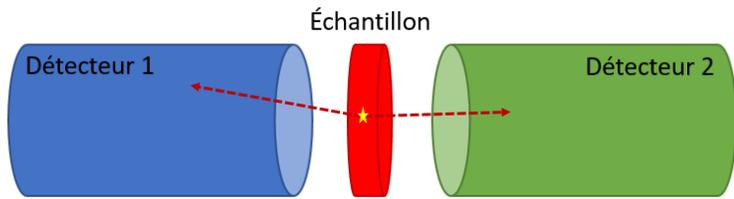


Fig 2. Schéma d'un dispositif pour la mesure en coïncidence

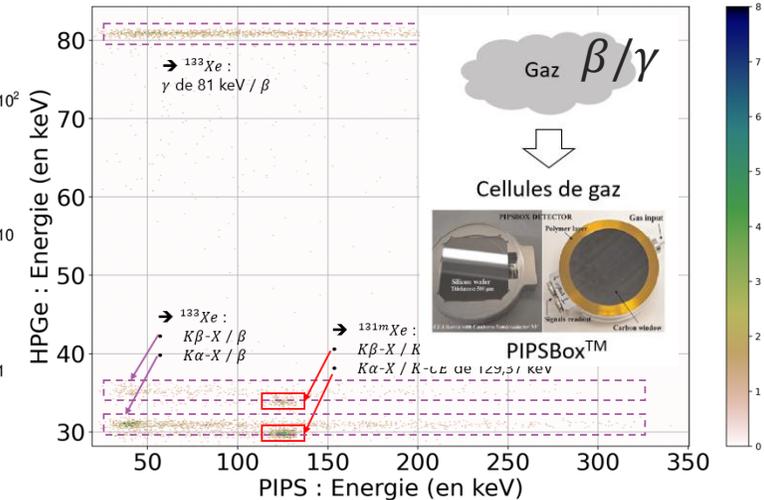
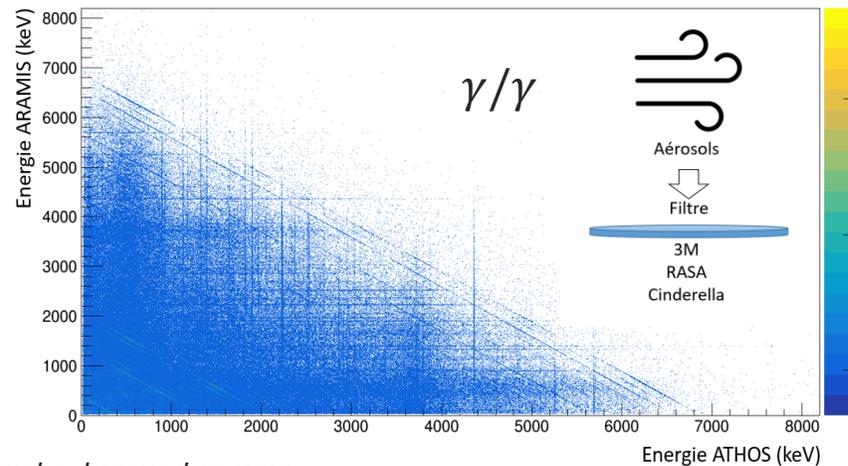


Fig 3. Matrices de coïncidence γ/γ et β/γ

[2] A. Cagniant, et al., *An introduction to γ^3 a new versatile ultralow background gamma spectrometer. Background description and analysis*, Applied Radiation and Isotopes 98 (2015)



2 ■ Construction du modèle numérique des détecteurs

Simulation MCNP

Création d'un modèle avec MCNP

□ Modélisation à partir :

- Plans techniques fournis par le fabricant
- Radiographies des détecteurs

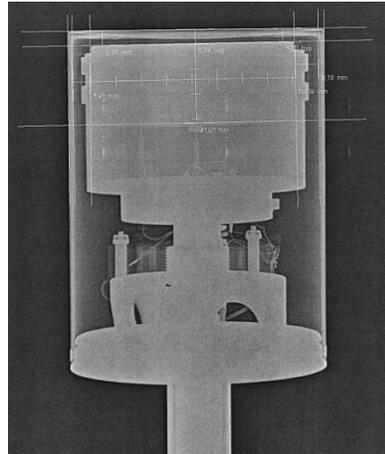


Fig 4. Radiographie d'un détecteur HPGe (BEGe5030P)

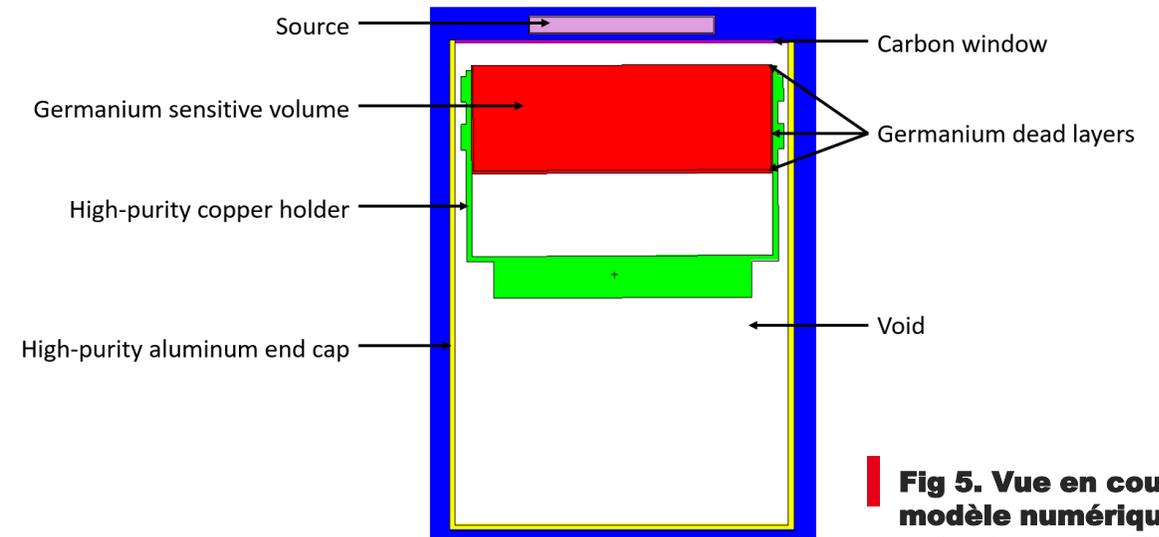


Fig 5. Vue en coupe d'un modèle numérique de détecteur sur MCNP

□ Sources étalons:

- Plage en énergie : [22 - 2505 keV]
- Géométries :
 - Filtres aérosols (diamètre de 110 mm)
 - Géométries volumiques (de 20 mL à 500 mL)

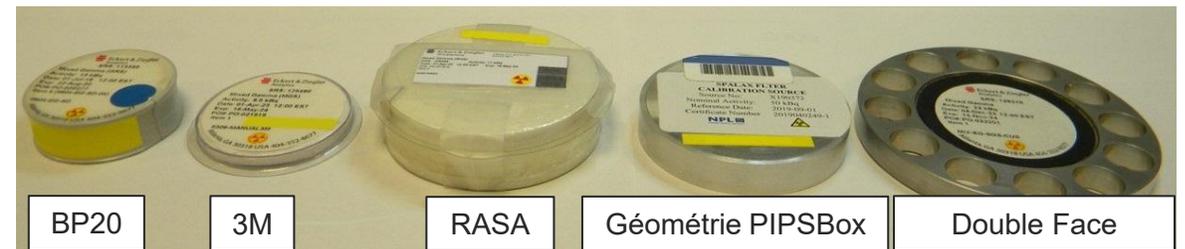


Fig 6. Les différentes géométries utilisées sur le Gamma³

➔ Utilisation de géométries très différentes pour un étalonnage général

Optimisation des modèles de détecteurs

❑ Rendement d'absorption totale:

$$\varepsilon = \frac{\text{nombre de particules détectées}}{\text{nombre de particules émises}}$$

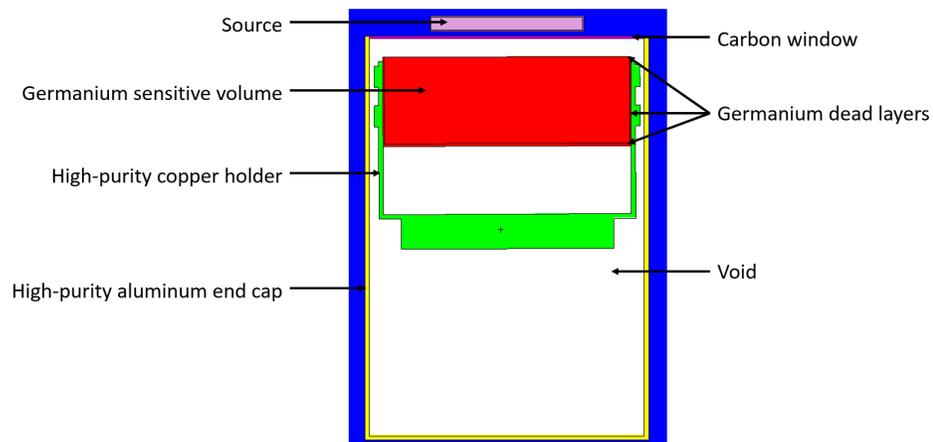
❑ Validation du modèle numérique :

Optimisation :

$$\text{Rapport moyen} = \left(\frac{\varepsilon_{EXP}}{\varepsilon_{MCNP}} \right) \approx 1$$

Paramètres à optimiser :

- Épaisseur des matériaux (zones mortes, fenêtre en carbone...)
- Position source-cristal
- Taille du cristal



Validation des modèles

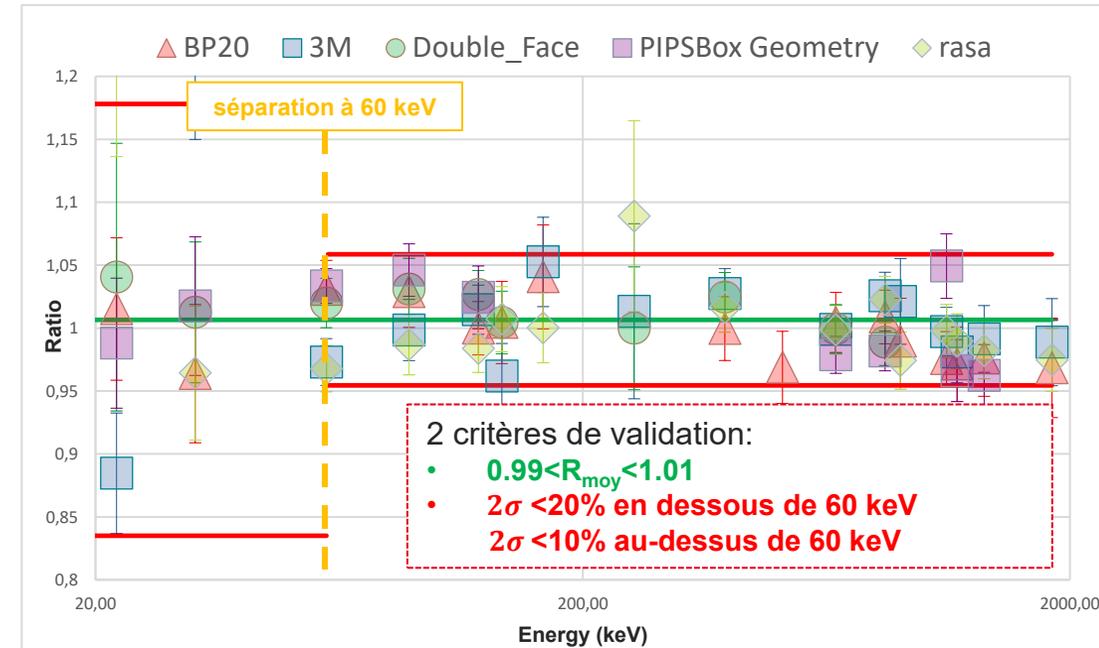


Fig 7. Rapport des rendements de détection (Exp./MCNP) en fonction de l'énergie

➔ Les modèles validés sont utilisés pour le calcul de rendements de détection



3 ■ Validation sur des échantillons de référence

coïncidences γ/γ

coïncidences β/γ

Apports de la coïncidence γ/γ (exemple du ^{134}Cs)

❑ Mesure d'un échantillon de produits de fission frais de l'OTICE:

- ~ 300 pics
- ~45 radionucléides
- Nombreuses interférences
- Fond continu élevé
- Activités allant de $7\text{E}-02$ Bq à $5,5\text{E}+01$ Bq
- 2 opérateurs à temps plein sur 2 semaines

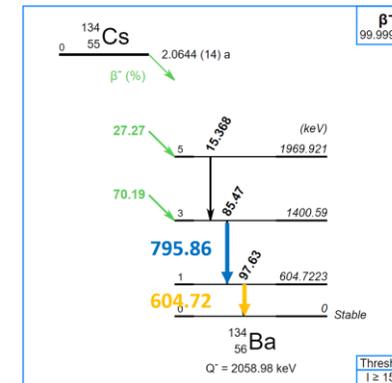


Fig 8. Schéma de désintégration du ^{134}Cs

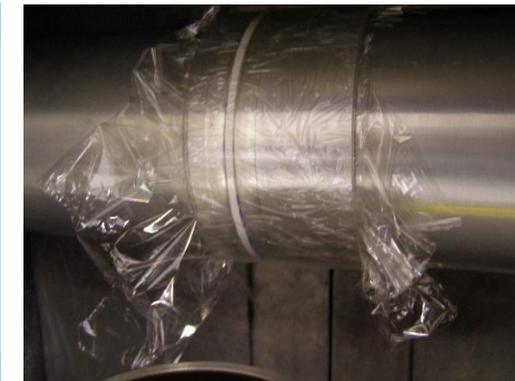


Fig 9. Filtre aérosol placé entre deux HPGe

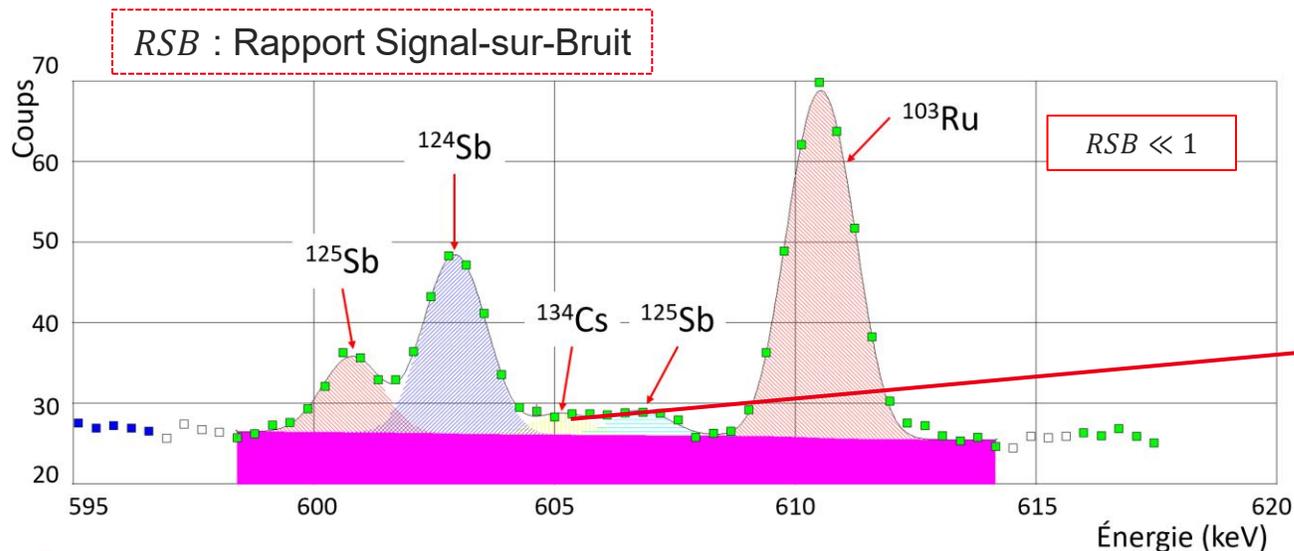


Fig 10. Spectre γ avec un zoom vers de 605 keV

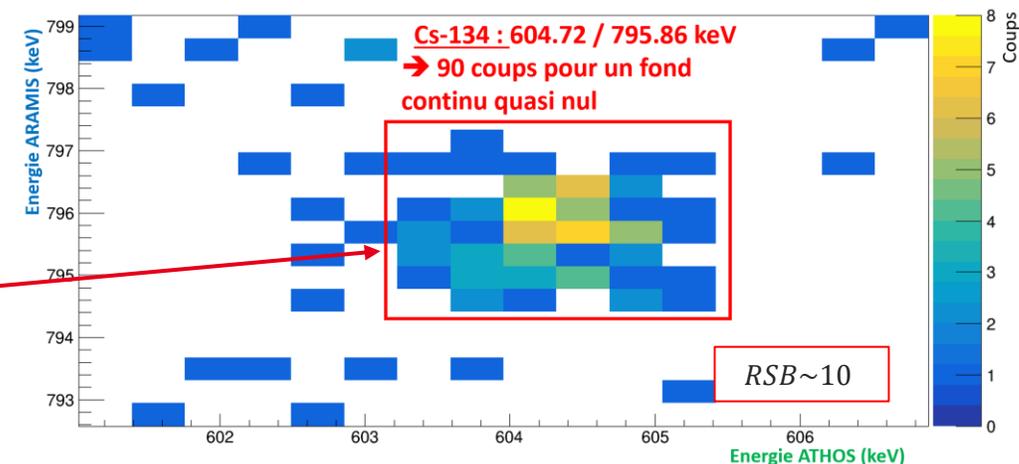


Fig 11. Matrice de coïncidence avec un zoom sur l'empreinte du ^{134}Cs

➔ Important RSB permettant une qualification et une quantification plus facile pour certains radionucléides

Validation de la méthode sur un échantillon de l'AIEA

- ❑ Frottis de référence de l'AIEA
- ❑ Mesure :
 - ATHOS&ARAMIS
 - Durée : 316800 s
- ❑ Rendements d'absorption totale:
 - Calculés avec MCNP-CP

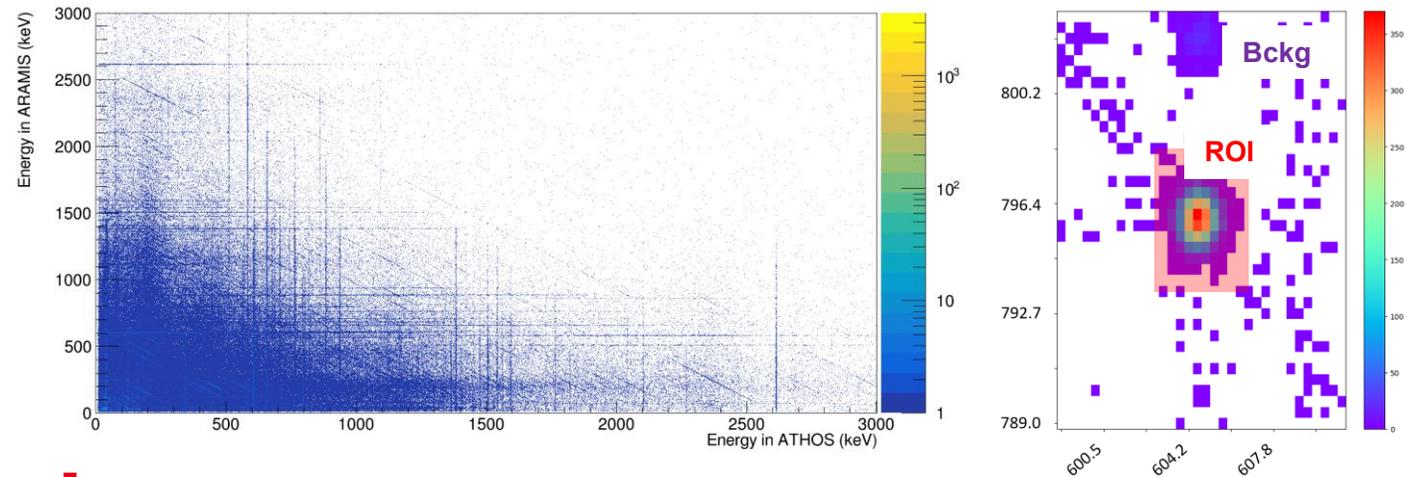


Fig 12. Matrice γ/γ obtenue avec un zoom sur l'empreinte du ^{134}Cs

- ❑ Analyse :

Radionucléides	A_{ref} (Bq)	$U(A_{ref})$ $k=2$ (Bq)	A_{mes} (Bq)	$U(A_{mes})$ $k=2$ (Bq)	Écarts (%)	E_n score
^{110m}Ag	7.51	0.09	7.36	0.70	-2.0	-0.21
^{139}Ce	7.51	0.09	6.7	1.1	-11.0	-0.78
^{134}Cs	7.56	0.07	7.75	0.79	2.5	0.24
^{152}Eu	7.55	0.07	8.0	0.8	5.7	0.55
^{235}U	0.0747	0.0009	0.062	0.027	-16.2	-0.46

- ➔ Détection de radionucléides (^{134}Cs) avec une signature en spectrométrie γ classique difficilement détectable
- ➔ Validation de la méthode utilisant la simulation en spectrométrie γ classique et en coïncidence γ/γ

Tab 1. Comparaison entre les activités de référence et mesurées

Validation de la méthode sur un échantillon gazeux

- ❑ Échantillon gazeux de référence composé de 4 radioxénons
- ❑ Mesure :
 - (ATHOS+ARAMIS)&PIPSBox
 - Durée : 57600 s
- ❑ Rendements d'absorption totale:
 - Calculés avec MCNP-CP

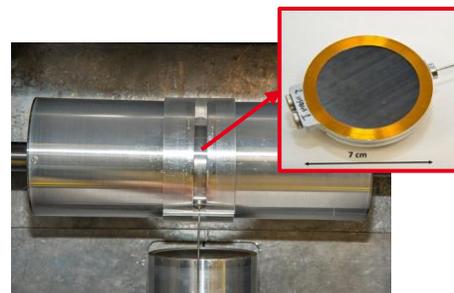


Fig 13. (ATHOS+ARAMIS)&PIPSBox

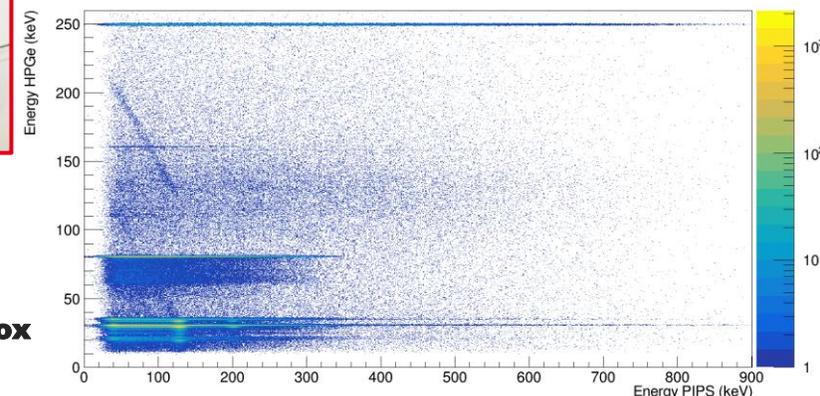


Fig 14. Matrice de coïncidence β/γ obtenue

Radioxénons	Coïncidence β/γ
^{131m}Xe	0.16 ± 0.02
^{133}Xe	0.20 ± 0.02
^{133m}Xe	0.147 ± 0.023
^{135}Xe	0.176 ± 0.016

Tab 2. Rendements de détection β/γ des 4 radioxénons

- ❑ Analyse :

RXe	A_{ref} (Bq)	$U(A_{ref})$ $k=2$ (Bq)	A_{mes} (Bq)	$U(A_{mes})$ $k=2$ (Bq)	Écart (%)	E_n score
^{131m}Xe	94	10	84	13	-10.6	-0.60
^{133}Xe	204	23	205	19	0.8	0.06
^{133m}Xe	10.2	1.1	9.1	1.4	-11.3	-0.63
^{135}Xe	217	22	226	21	4.0	0.29

Tab 3. Comparaison entre les activités de référence et mesurées

- ➔ Validation de la méthode utilisant la simulation en spectrométrie γ classique et en coïncidence β/γ
- ➔ H.-D. Lenouvel, et al., *Measurement of radioxenon isotopes for nuclear explosion detection using coincident β/γ detector calibrated by simulation*, Applied Radiation and Isotopes. DOI : ARI 111886

Limites de détection

☐ Calcul des seuils de décision (SD) et de limites de détection (LD) sur un mouvement propre :

- Norme ISO 11929
- Comparaison entre la spectrométrie classique et en coïncidence

☐ Échantillons d'aérosols :

Radionucléides	Spectrométrie γ : SD / LD (mBq)	Spectrométrie en γ/γ : SD / LD (mBq)
^{108m}Ag	2.03 / 4.2	0.39 / 2.9
^{110m}Ag	2.44 / 5.0	3.67 / 26.4
^{60}Co	1.81 / 3.8	0.60 / 4.3
^{125}Sb	5.31 / 10.9	5.39 / 19.0
^{134}Cs	1.75 / 3.6	0.71 / 3.2

Tab 4. Comparaison des SD et LD entre la spectrométrie γ et γ/γ pour les mesures d'aérosols

➔ Pour certains radionucléides :
 $P * \epsilon$ très faible $\rightarrow LD_{\gamma\gamma} > LD_{\gamma}$
 ➔ $SD_{\gamma\gamma}$ souvent très avantageux \rightarrow
 qualification d'échantillon plus sensible

☐ Échantillons de gaz nobles :

Radionucléides	Spectrométrie γ : LD (mBq)	Spectrométrie β/γ : LD (mBq)
^{131m}Xe	73	0.3
^{133}Xe	3.3	1.0
^{133m}Xe	33	0.2
^{135}Xe	18.3	4.3

Tab 5. Comparaison des SD et LD entre la spectrométrie γ et β/γ pour les mesures de gaz nobles

➔ Spectrométrie β/γ très avantageuse pour les radionucléides métastables

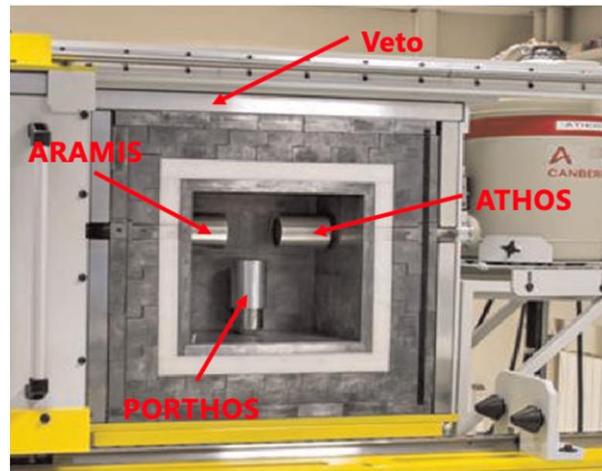


4. Conclusions

Conclusions

- ❑ Raccordement métrologique par la simulation à partir de sources étalons
 - Détermination des rendements d'absorption totale par la simulation
- ❑ Validation de cette méthode :
 - Gaz nobles : H.-D. Lenouvel, et al., *Measurement of radioxenon isotopes for nuclear explosion detection using coincident β/γ detector calibrated by simulation*, Applied Radiation and Isotopes. DOI : ARI 111886
 - Aérosols : Mesures dans le cadre d'exercices d'intercomparaison pour l'OTICE et l'AIEA

RXe	A_{ref} (Bq)	$U(A_{ref})$ k=2 (Bq)	A_{mes} (Bq)	$U(A_{mes})$ k=2 (Bq)	E_n score
^{131m}Xe	94	10	84	13	-0.60
^{133}Xe	204	23	205	19	0.06
^{133m}Xe	10.2	1.1	9.1	1.4	-0.63
^{135}Xe	217	22	226	21	0.29



Radionucléides	A_{ref} (Bq)	$U(A_{ref})$ k=2 (Bq)	A_{mes} (Bq)	$U(A_{mes})$ k=2 (Bq)	E_n score
^{110m}Ag	7.51	0.09	7.36	0.70	-0.21
^{139}Ce	7.51	0.09	6.7	1.1	-0.78
^{134}Cs	7.56	0.07	7.75	0.79	0.24
^{152}Eu	7.55	0.07	8.0	0.8	0.55
^{235}U	0.0747	0.0009	0.062	0.027	-0.46

Perspectives : outil IA

- ❑ Objectif : Classification sur des échantillons aérosols (coïncidence γ/γ) dans le cadre du TICE
 - ~90 radionucléides d'intérêt (produits de fission et d'activation)
- ❑ Base de données (~1M):
 - Matrices volumineuses (8k*8k canaux) → (2k*2k canaux)
 - Produits de fission :
 - Site internet Nucleonica [6] : distribution à partir de la fission d' ^{235}U (Uranium Hautement Enrichi) avec des neutrons rapides de 14 MeV
 - Évolution dans le temps des mélanges de t_0 à 1 an (équation de Bateman) : 100 itérations
- ❑ Convolutional Neural Network (CNN) :
 - Entrée : Matrices (=images)
 - Identification d'empreintes caractéristiques dans le spectre
 - Toute l'information du spectre est utilisée



Fig 15. Topaze High-Performance Computing (HPC) system (CEA)

[3] Nucleonica website, www.nucleonica.com



5 ■ Annexes

Traité d'Interdiction Complète des Essais nucléaires

❑ Nombreuses campagnes d'essais nucléaires → TICE ouvert en 1996 [4]

➤ États :

- Signature : 187
- Ratification : 178

▪ IMS status (Déc. 2023)

(○ : non-op. station)

- SPALAX
- SAUNA
- ARIX

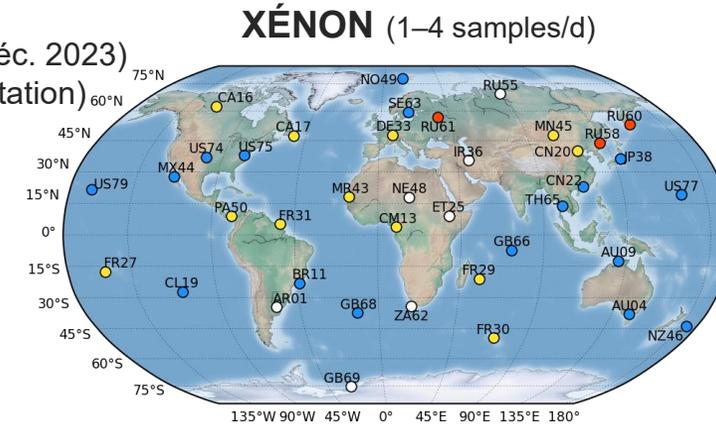


Fig 16. Carte des stations Xénon du SSI

321 stations et 16

laboratoires:

4 types:

- Sismique
- Radionucléide
 - 80 aérosols
 - 40 gaz nobles
- Hydroacoustique
- Infrason

➤ Forte dilution

→ faible niveau de radioactivité

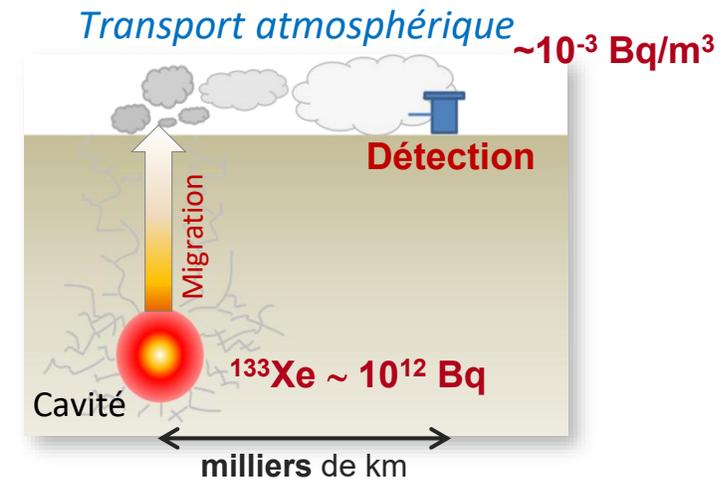


Fig 17. Exemple d'un essai souterrain de 1kt éq. TNT [5]

➔ La composante radionucléide permet de valider le caractère nucléaire d'une explosion

[4] United Nations, *The Comprehensive Nuclear-Test-Ban Treaty*, Resolution CTBT/MSS/RES/1, 1996.

[5] Boxue Liu et al., *Characterization of CTBT-Relevant Radionuclides at IMS Stations Using Isotopic Activity Ratio Analysis*, Pure Appl. Geophys. 180 (2023), 1521-1540

Gamma³ : configuration pour une mesure d'un échantillon de gaz nobles

□ Configuration :

- 2 HPGe : détection de photons
- 2 PIPS : détection d'électrons

- La PIPSBox™ est placée entre ATHOS et ARAMIS

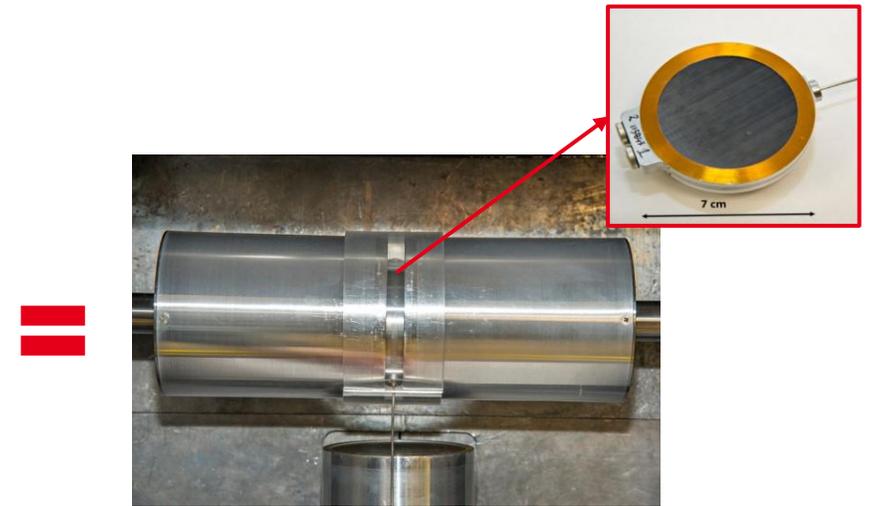


Fig 18. (ATHOS+ARAMIS)&PIPSBox

□ Coïncidences β/γ :

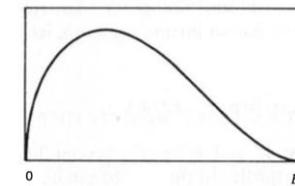
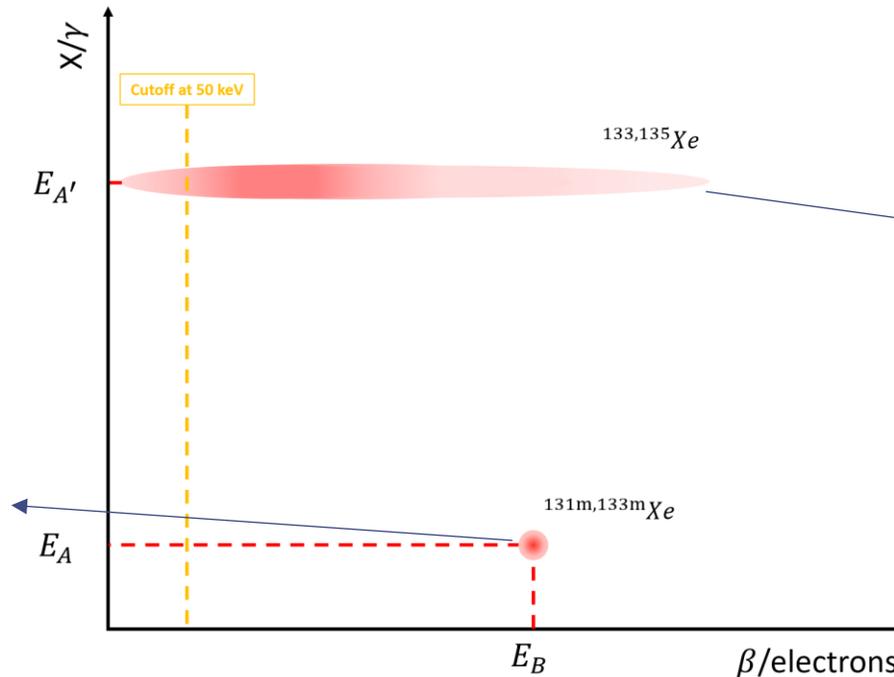
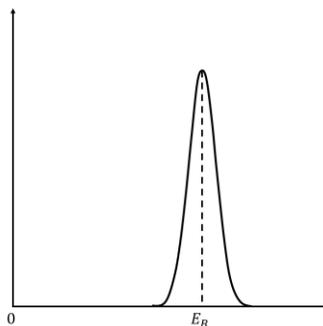
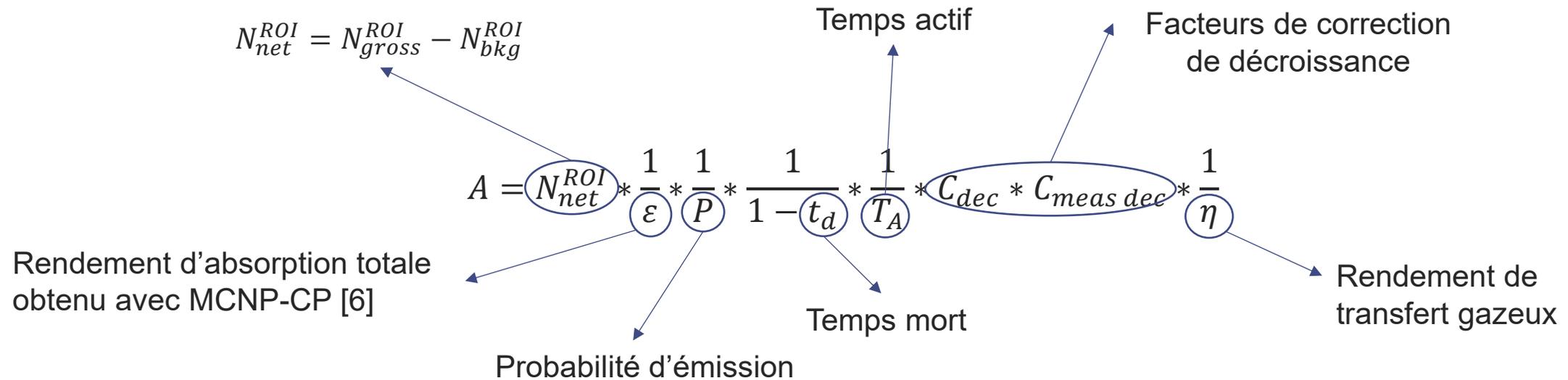


Fig 20. Distribution en énergie de la particule β émise

Fig 21. Forme des empreintes attendues

Fig 19. Spectre en énergie de l'électron émis par conversion interne

Calcul d'activité et incertitudes



❑ Incertitude sur l'activité = propagation des Incertitudes :

- L'incertitude sur le modèle est appliquée aux incertitudes sur les rendements d'absorption totale :

$U_{model} \sim 15\%$ en dessous de 60 keV

$U_{model} \sim 9\%$ au-dessus de 60 keV

[6] A. Berlizov, *A correlated particle source extension of a general purpose Monte Carlo N-Particle transport code*, MCNP-CP Upgrade Patch Version 3.2, Institute for Nuclear Research National Academy of Sciences of Ukraine, 2012

E_N score

Validation avec le **score** E_n décrit dans la norme ISO 13528 :

$$E_N = \frac{A_i - A_{ref}}{\sqrt{U^2(A_i) + U^2(A_{ref})}}$$

Si $-1 < E_N < 1 \rightarrow$ Validation du résultat

Quantifier la sensibilité d'une méthode d'analyse

Sensibilité \Leftrightarrow capacité à détecter une source radioactive de faible activité

La sensibilité est quantifiée avec deux grandeurs :

- **Le seuil de décision (SD)** : seuil à partir duquel une fluctuation statistique est considérée comme significative.
- **La limite de détection (LD)** : activité maximale qui pourrait être présente dans l'échantillon si l'activité trouvée est inférieure au SD.

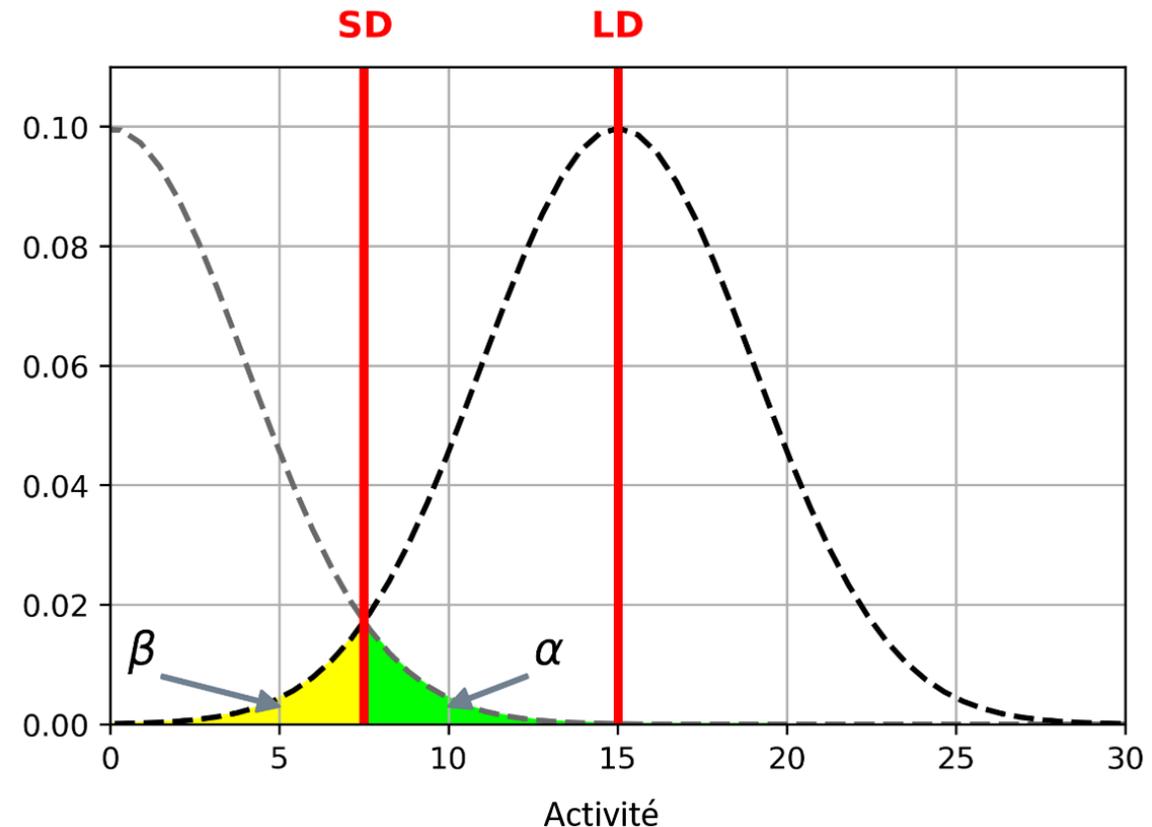


Fig 22. Exemple de la détermination du SD et du LD dans le cas d'une distribution gaussienne.