

DE LA RECHERCHE À L'INDUSTRIE



Laboratoire National

LnHB

Henri Becquerel

www.cea.fr

ÉTALONNAGE DES INSTRUMENTS DE MESURE DE L'ACTIVITÉ VOLUMIQUE DU THORON (^{220}Rn) DANS L'AIR

LARD – Besançon | Benoît Sabot, Nathalie Michielsens, Sylvie
Pierre, Philippe Cassette, Sylvain Bondiguel

IRSN

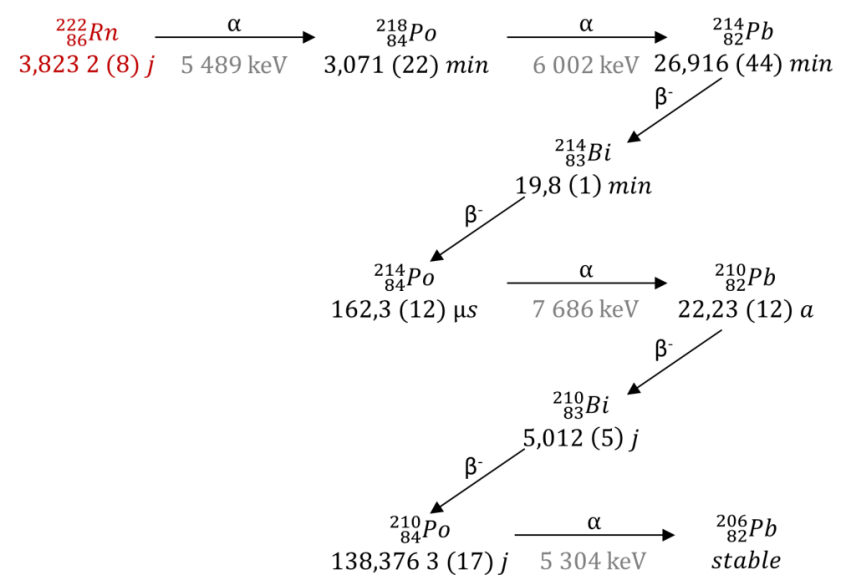
INSTITUT
DE RADIOPROTECTION
ET DE SÛRETÉ NUCLÉAIRE



- **Problématique radon et thoron**
- La chaîne métrologique du radon
- Création d'une chaîne métrologique pour le thoron
- Validation de la méthode de mesure
- Application de la méthode de mesure au thoron
- Comparaisons
- Conclusion et perspectives
- Publications, présentations

LE RADON

- Gaz naturel inerte se désintégrant par émission alpha pour former des descendants solides isotopes du plomb, bismuth et polonium (aérosols)
 - ✓ Radon : ^{222}Rn (3,8 j) provenant de la chaîne de ^{238}U
 - ✓ Thoron : ^{220}Rn (55,8 s) provenant de la chaîne du ^{232}Th
 - ✓ Actinon : ^{219}Rn (3,98 s) provenant de la chaîne du ^{235}U
 - Deuxième facteur de risque du cancer du poumon
 - Réalisation de contrôles radon dans les zones à risque pour la radioprotection de la population et des travailleurs
 - Chaîne métrologique et potentiel radon bien établis en France
- ➔ Pas de chaîne métrologique pour le thoron en France



LE THORON

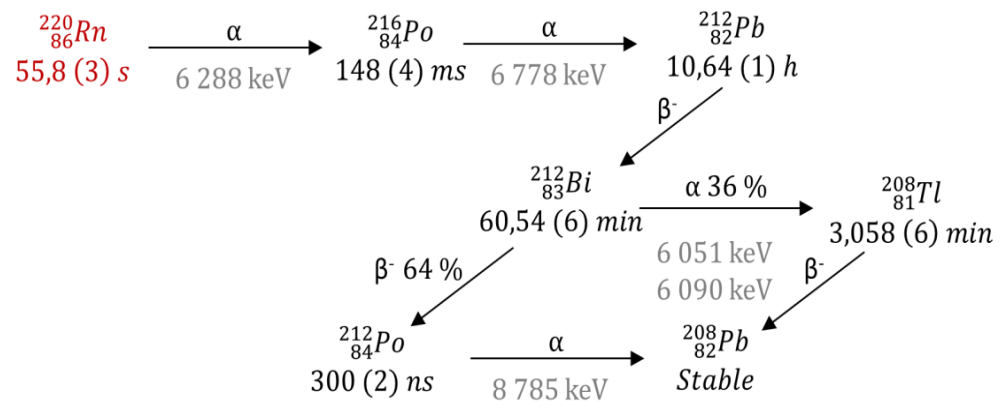
- Radioprotection du public :
 - ✓ En France, la dose liée au thoron est estimée comme représentant 10 % de la dose liée au radon
 - ✓ Plusieurs mesures dans différents pays (Roumanie, Inde, Japon, Corée,...) ont montré des concentrations en thoron parfois plus élevées que celles en radon

- Radioprotection dans l'industrie :

- ✓ Possibilité d'exploitation de ^{232}Th pour les prochaines générations de réacteurs
- ✓ Production de ^{212}Pb pour l'alphathérapie
- ✓ Traitement et stockage des déchets

- Impact sur la mesure du radon :

- ✓ Pas d'impact sur les détecteurs de traces s'ils sont correctement placés
- ✓ Influence la mesure sur certains dispositifs commerciaux (Michielsen, *et al.*, 2015)



➔ Besoin d'étalonner les appareils de mesure commerciaux du thoron

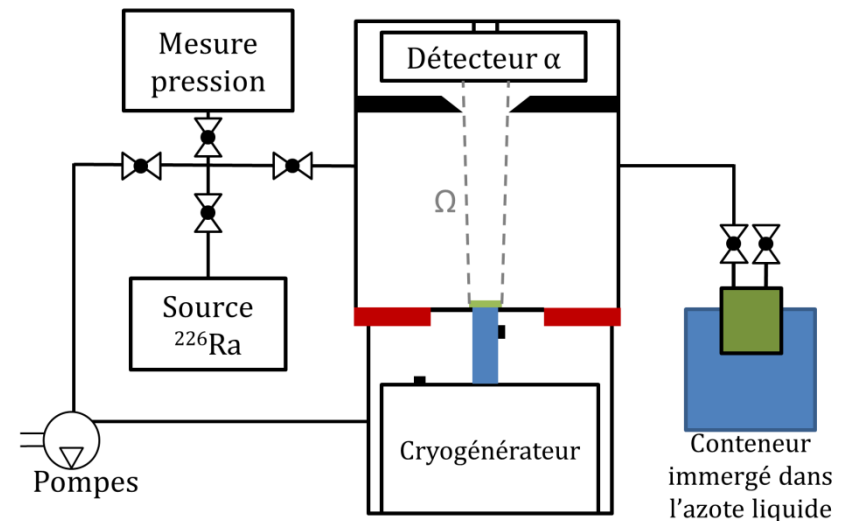
- Problématique radon et thoron
- **La chaîne métrologique du radon**
- Création d'une chaîne métrologique pour le thoron
- Validation de la méthode de mesure
- Application de la méthode de mesure au thoron
- Comparaisons
- Conclusion et perspectives
- Publications, présentations

PREMIÈRE ÉTAPE : L'ÉTALON DE RÉFÉRENCE DE RADON (^{222}Rn - 3,8 j)

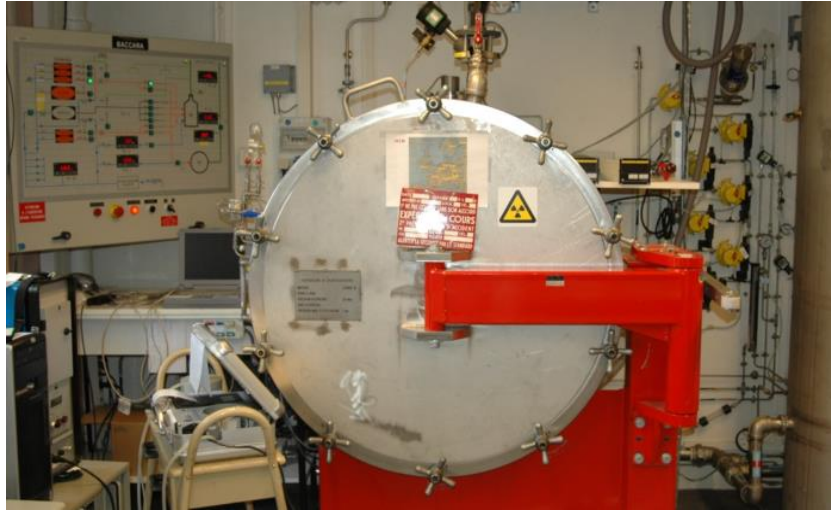


- Source étalon transférée dans un contenant transportable
 - Activité en radon mesurée : 100 Bq à 3 MBq avec une incertitude type-relative de 0,3 %
 - Comparaisons réalisées avec l'Institut de Radiophysique Suisse (IRA) et au BIPM
- ➔ Impossible d'utiliser cette méthode pour le thoron (55,8 s)

- Système sous vide secondaire
- Le radon produit par une source de ^{226}Ra est transféré et gelé à la surface d'un doigt froid à une température de 80 K
- Mesure par angle solide défini avec un détecteur silicium



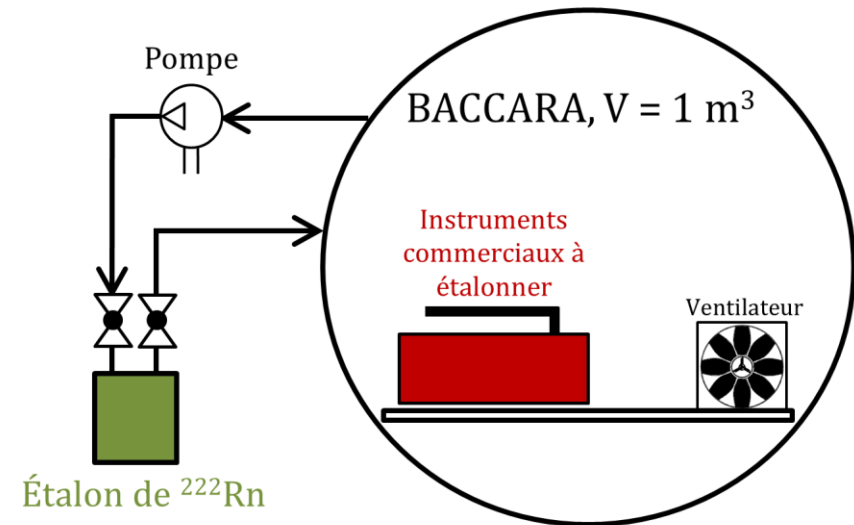
DEUXIÈME ÉTAPE : L'ÉTALONNAGE D'APPAREILS DE MESURE AVEC BACCARA



- Volume de 1 m^3 dans lequel sont placés les instruments à étalonner
- Étalon de radon mélangé à l'atmosphère de BACCARA à pression atmosphérique
- Activité volumique en radon de 40 Bq.m^{-3} à 40 kBq.m^{-3}

- Atmosphère produite traçable aux étalons internationaux avec une incertitude-type relative de 2 %
- Participation à des comparaisons internationales avec d'autres laboratoires sur l'étalonnage d'un instrument commercial

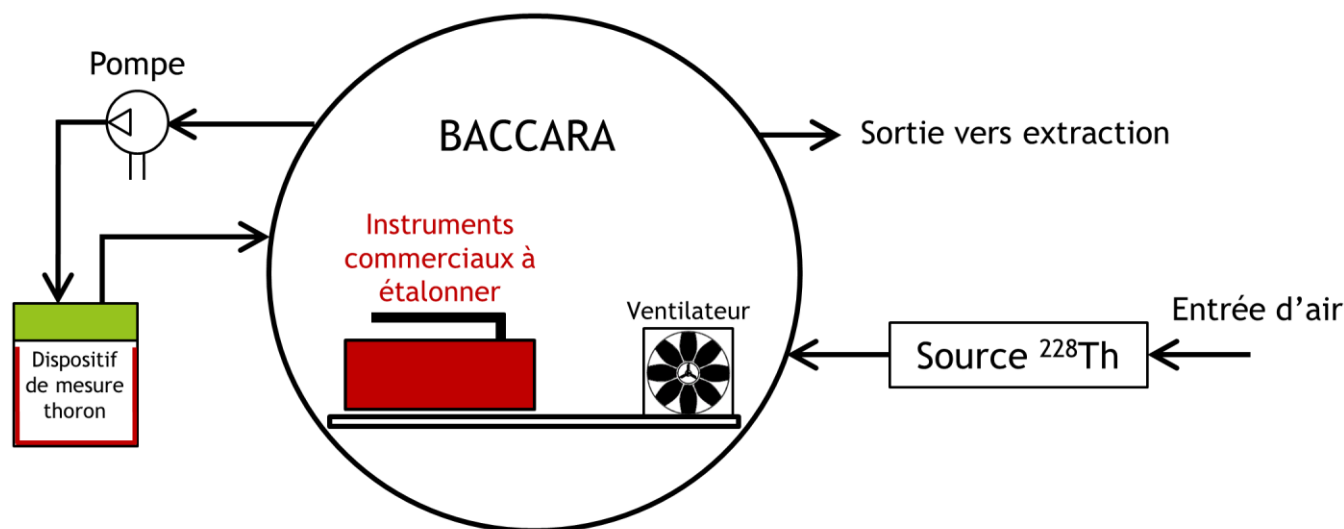
→ Chaîne métrologique complète pour le radon



- Problématique radon et thoron
- La chaîne métrologique du radon
- **Création d'une chaîne métrologique pour le thoron**
- Validation de la méthode de mesure
- Application de la méthode de mesure au thoron
- Comparaisons
- Conclusion et perspectives
- Publications, présentations

CRÉATION D'UNE CHAÎNE MÉTROLOGIQUE POUR LE THORON

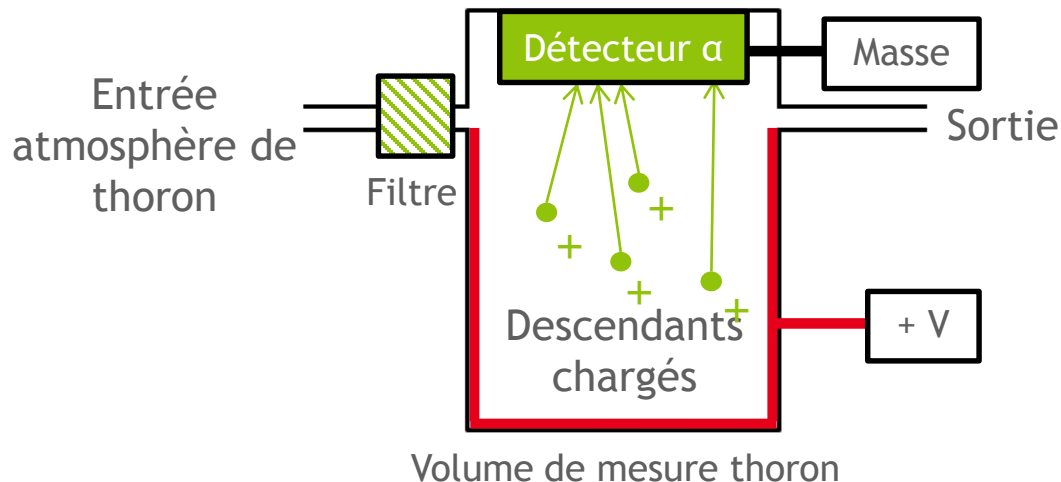
- Utiliser BACCARA et une source de ^{228}Th pour produire une atmosphère de ^{220}Rn



- Création d'un dispositif de mesure permettant d'assurer la traçabilité métrologique de l'atmosphère de ^{220}Rn :
 - ✓ Volume de mesure utilisant un détecteur alpha dont le rendement de détection est évalué par méthode Monte-Carlo
 - ✓ Permet la mesure du radon pour valider les calculs de rendement
 - ✓ Permet d'identifier la présence des deux isotopes du radon
 - ✓ Dispositif transportable pour le connecter à une chambre produisant une atmosphère de référence en thoron

PRINCIPE DU DISPOSITIF DE MESURE

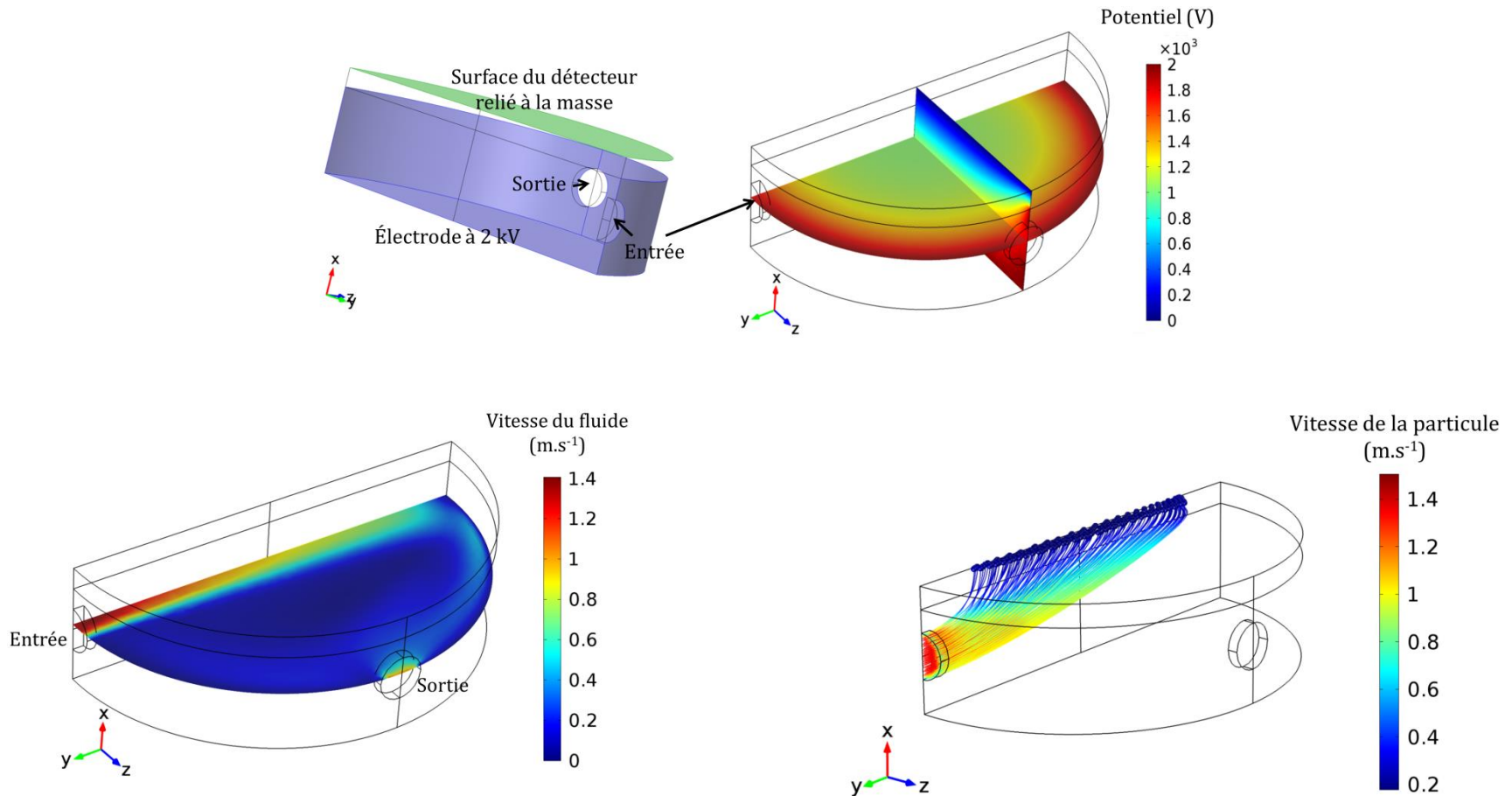
- Un filtre en entrée du volume : élimine tous les descendants produits en amont du dispositif
- Volume de mesure composé d'un détecteur alpha de grande surface, d'un petit volume et d'un débit de circulation important :
 - ✓ Limite la perte d'énergie des alphas dans l'air
 - ✓ Distribution et rendement de détection du radon et du thoron identiques



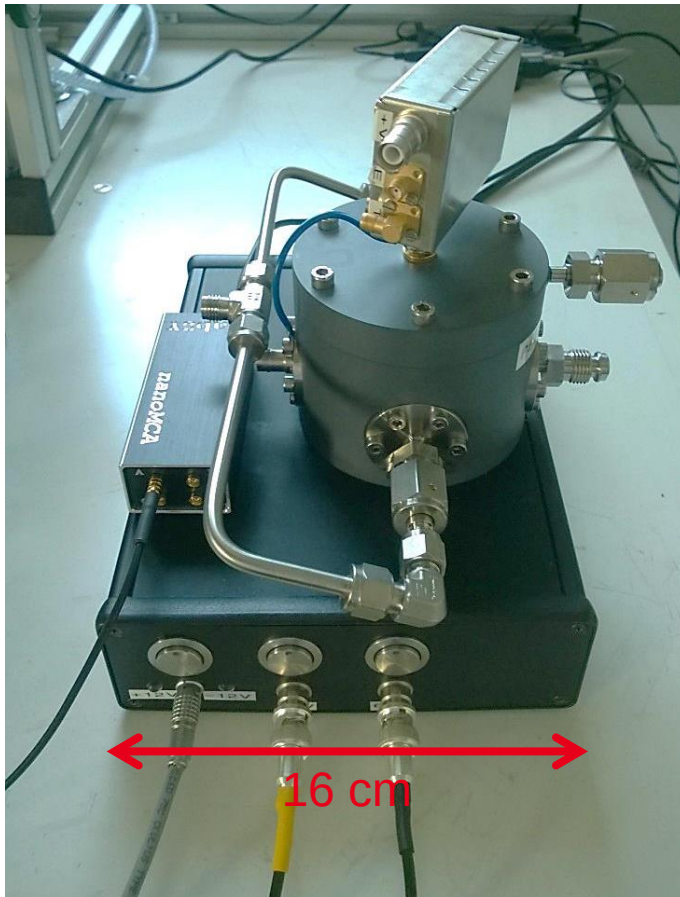
- Champ électrique assez intense pour capturer les descendants chargés produits dans le volume :
 - ✓ Vitesse de dérive des ions bien supérieure à la vitesse du fluide
 - ✓ Limiter au maximum le temps de séjour des descendants dans le volume pour éviter leur neutralisation

DÉVELOPPEMENT DU DISPOSITIF DE MESURE

- Monte-Carlo (MCNPX) : calcul de rendement et transport des particules alpha dans la matière
- Comsol Multiphysics : CFD, champ électrique et transport de particules chargée



DÉVELOPPEMENT DU DISPOSITIF RÉALISATION DU DISPOSITIF DE MESURE

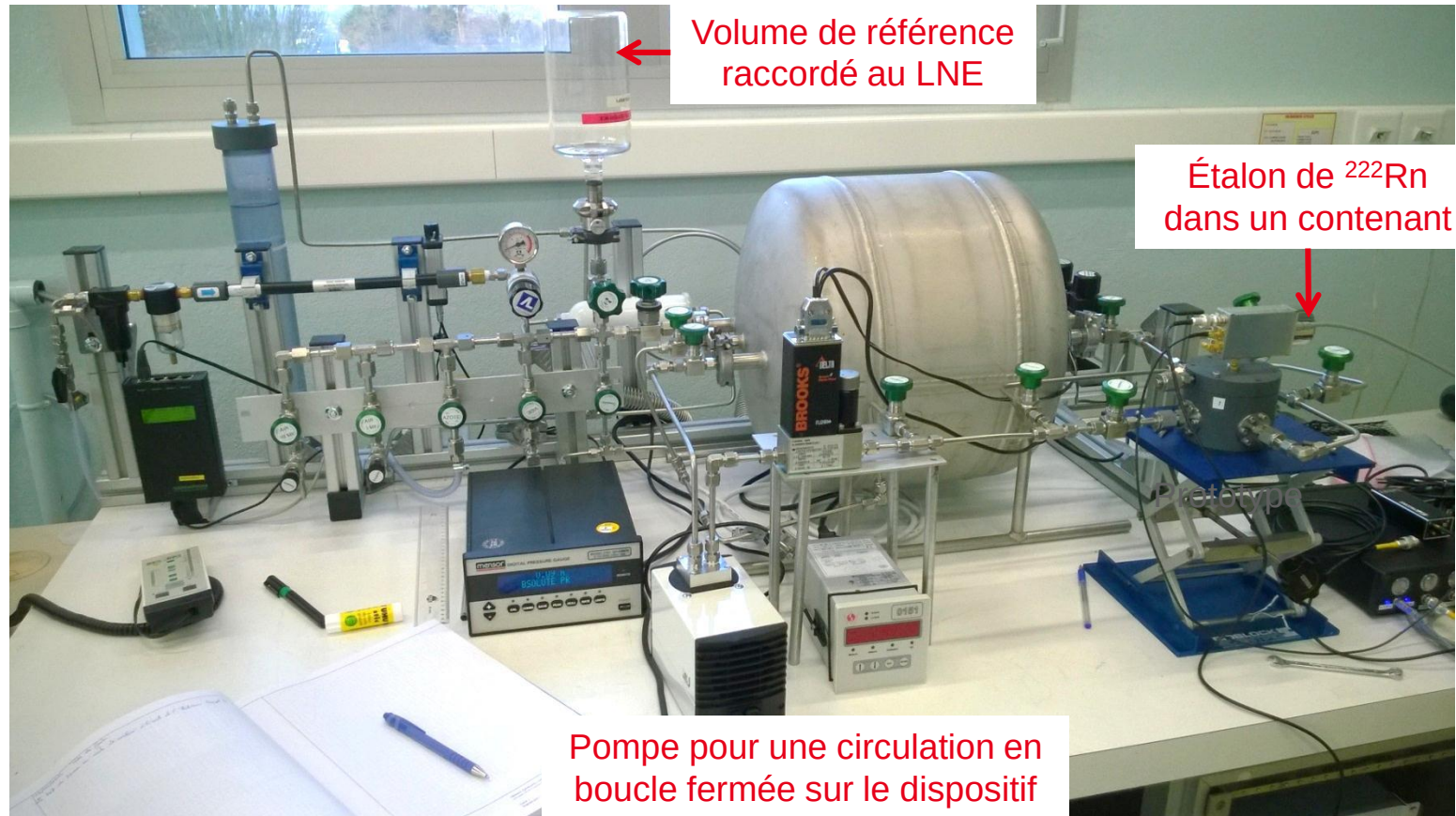


- Dispositif transportable dans un sac à dos (testé et approuvé)
- Préamplificateur adapté aux spécificités du détecteur silicium pour optimiser la résolution
- Alimentations filtrées pour limiter au maximum le bruit électronique
- LabZY nanoMCA : analyseur multicanal compact, très performant et avec un code source libre permettant son intégration dans un logiciel d'acquisition développé sous LabVIEW

- Problématique radon et thoron
- La chaîne métrologique du radon
- Création d'une chaîne métrologique pour le thoron
- **Validation de la méthode de mesure**
- Application de la méthode de mesure au thoron
- Comparaisons
- Conclusion et perspectives
- Publications, présentations

CRÉATION D'UN BANC DE DILUTION DU RADON

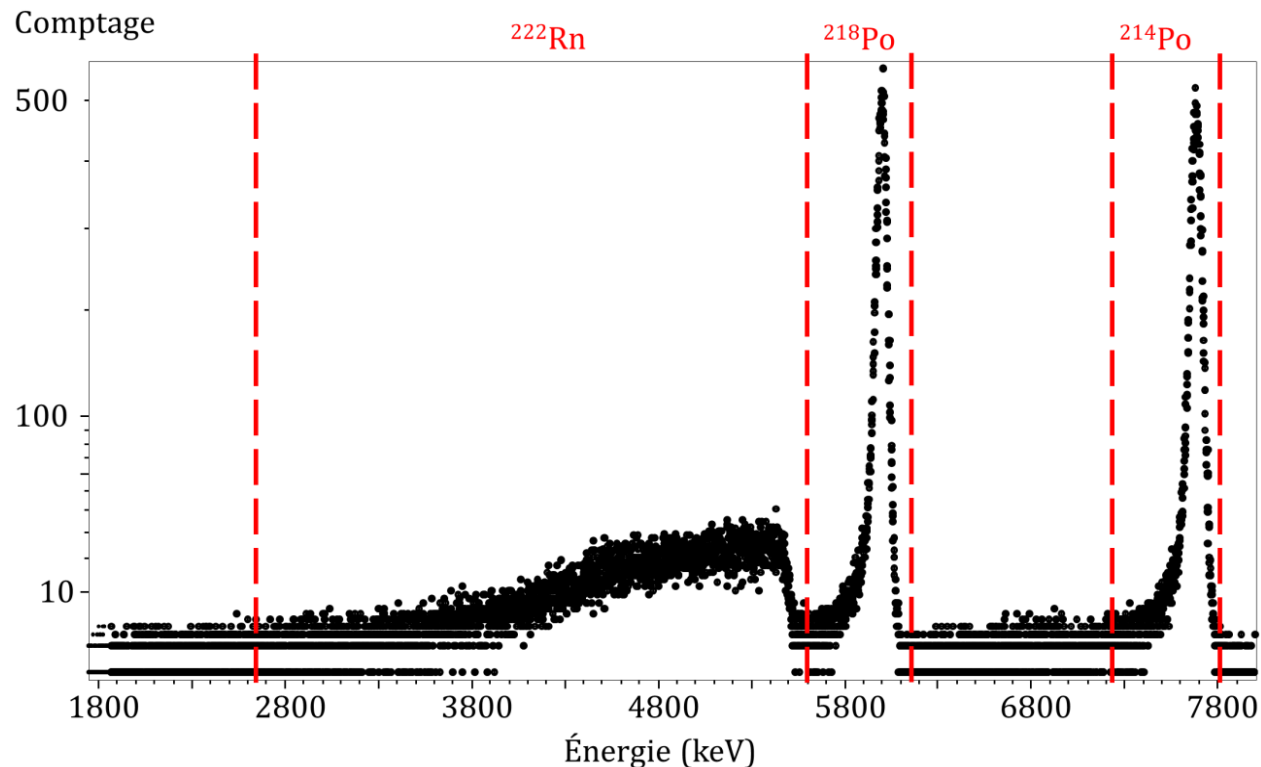
- Transfert d'étalon de radon dans le dispositif de mesure pour valider les calculs de rendement



- Activité volumique en ^{222}Rn avec une incertitude-type relative de 0,3 %
- Contrôle et mesure en continu de : la pression (10^{-6} à $2 \cdot 10^3$ hPa), l'humidité relative (0 à 95 % RH), la température (20 à 40 °C), le débit (0 à 2 L.min $^{-1}$)

RÉSULTATS : SPECTRES DE RADON ET FACTEURS D'INFLUENCES

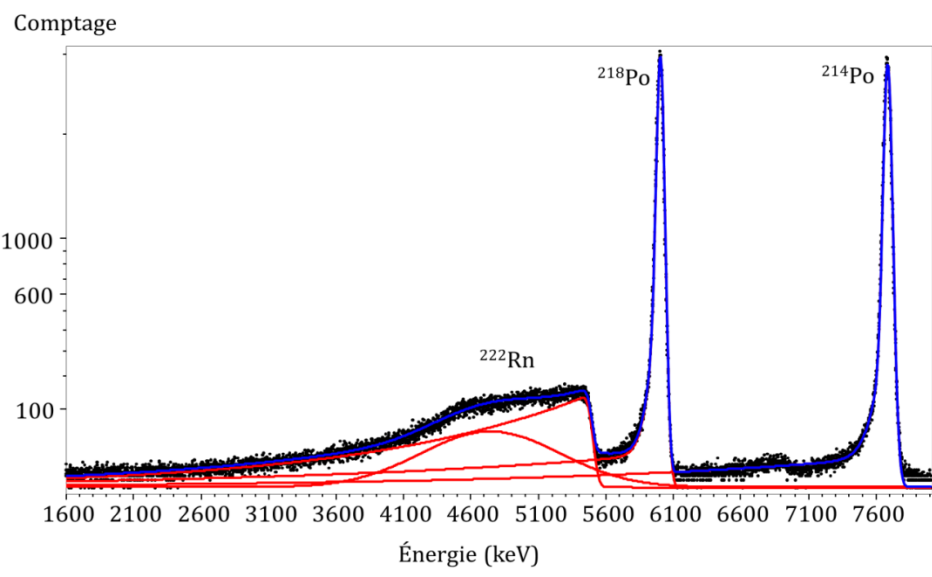
- Identification de chaque élément de la chaîne du radon



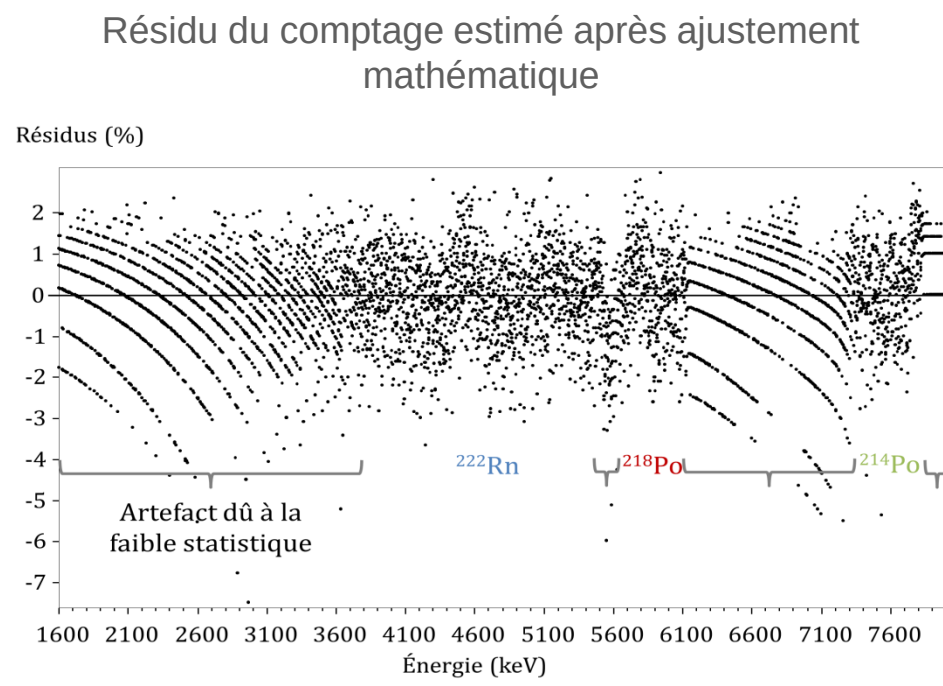
- Des régions d'intérêts (ROI) sont attribuées à chaque pic alpha pour les 3 isotopes mesurés
 - Ces ROI sont réutilisées pour chaque analyse de spectre dans des conditions différentes de pression, température, humidité,...
- ➔ Environ 200 mesures réalisées pour la validation de la méthode qui ont montré sa stabilité (900 à 1500 hPa, 0 à 2 L.min⁻¹, 18 à 37 °C, 0 à 93 %RH)

ÉVALUATION EXPÉRIMENTALE DU RENDEMENT DE DÉTECTION DU RADON (1)

- Estimation de la surface du pic du ^{218}Po et du ^{214}Po pour supprimer leurs contributions au pic du ^{222}Rn (Logiciel Colegram)



Caractéristiques de la traîne du pic de ^{218}Po obtenues avec le pic de ^{214}Po



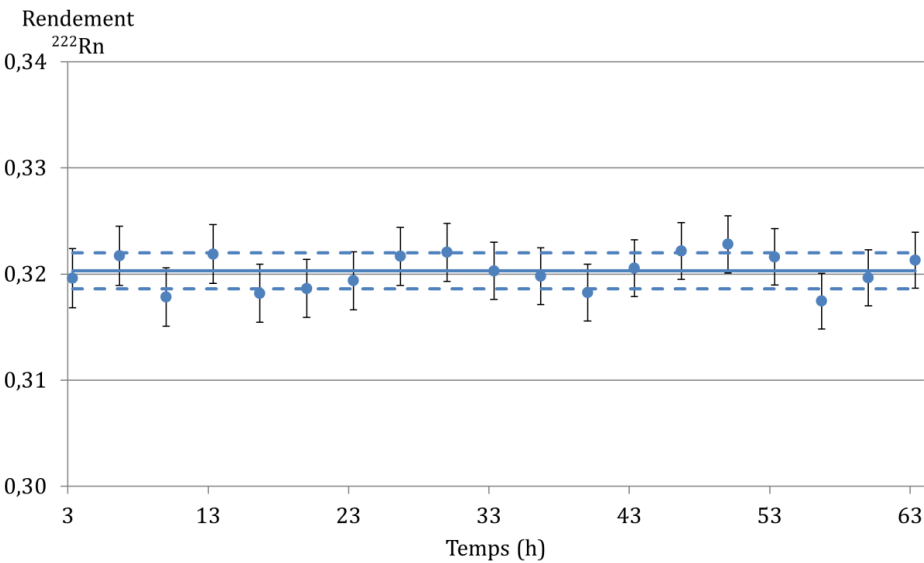
- Calcul du rendement de détection avec les données expérimentales
- Calcul de son incertitude associée par méthode classique et par méthode Monte Carlo en utilisant le *NIST Uncertainty Machine* (Lafarge, et al., 2015)

ÉVALUATION EXPÉRIMENTALE DU RENDEMENT DE DÉTECTION DU RADON (2)

- Évaluation du rendement de détection pour plusieurs points de mesure :

$$R_{d^{222}\text{Rn}} = \frac{N_{222\text{Rn}}(d_m) F_{ref} F_{dec}}{t_m A_v^{222\text{Rn}} V_{det}}$$

Grandeur	Valeur	Incertitude- type relative (%)	Contribution (%)
$N_{222\text{Rn}}(d_m)$	147 285 (384)	0,26	32,93
F_{ref}	1,060 54 (1)	$9 \cdot 10^{-4}$	0,00
F_{dec}	1,012 6 (4)	$4 \cdot 10^{-4}$	0,74
t_m	12 000,6 (10) s	$8 \cdot 10^{-4}$	0,03
$A_v^{222\text{Rn}}$	3,313 (6) MBq.m ⁻³	0,18	16,08
V_{det}	12,444 (40) cm ⁻³	0,32	50,21
$R_{d^{222}\text{Rn}}$ (méthode classique)	0,319 6 (14)	0,44	
$R_{d^{222}\text{Rn}}$ (méthode Monte-Carlo)	0,319 5 (14)	0,44	

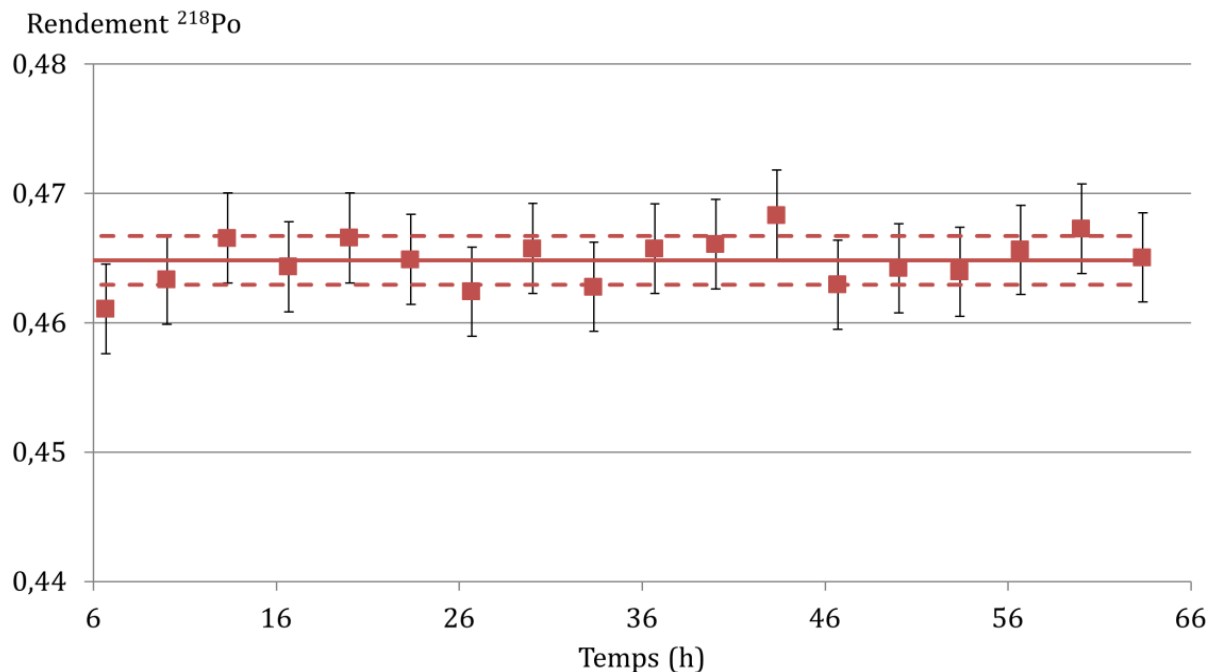


- Le rendement de détection du pic de ²²²Rn obtenu expérimentalement est de 32,0 (2) %, le rendement obtenu par calcul MCNPX est de 31,86 (3) %

➔ Résultats expérimentaux compatibles avec les simulations : ce rendement sera le même pour le pic du ²²⁰Rn

ÉVALUATION DU TAUX DE ^{218}Po CAPTURÉ

- Le ^{222}Rn et le ^{218}Po étaient à l'équilibre lors des mesures, le rendement de détection du pic de ^{218}Po est calculé de la même façon que pour le pic du ^{222}Rn :

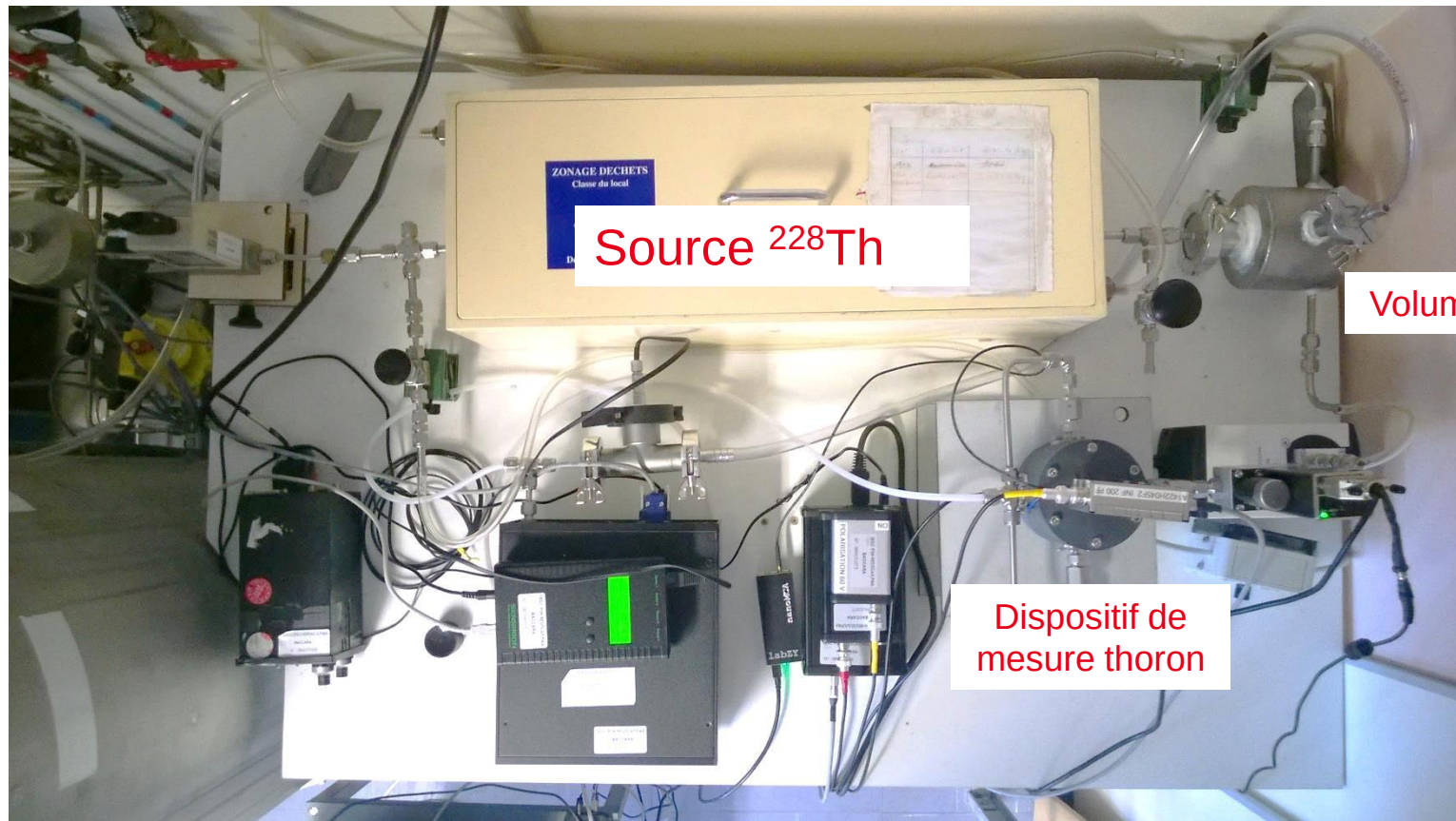


- Le rendement du pic de ^{218}Po évalué expérimentalement est de 46,5 (2) % ce qui est inférieur au rendement calculé par simulation MCNPX 49,5 (2) %

➔ Le taux de ^{218}Po capturé est de 93,9 (4) % ce qui est compatible avec les résultats de la littérature

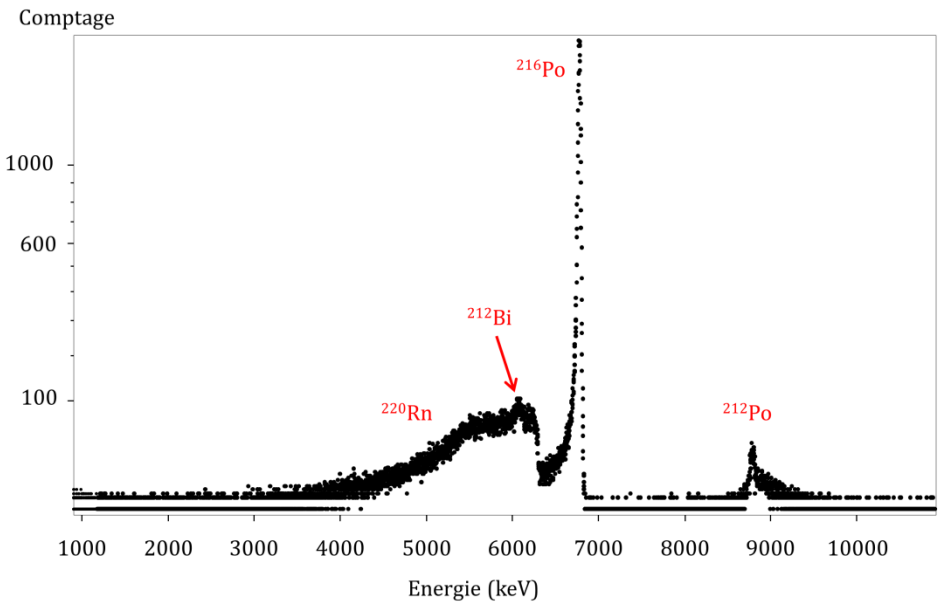
- Problématique radon et thoron
- La chaîne métrologique du radon
- Création d'une chaîne métrologique pour le thoron
- Validation de la méthode de mesure
- **Application de la méthode de mesure au thoron**
- Comparaisons
- Conclusion et perspectives
- Publications, présentations

CRÉATION D'UNE ATMOSPHÈRE DE THORON



- Production de ^{220}Rn à partir d'une source de ^{228}Th
- Circulation en continu d'air propre et sec
- Mesure en continu de l'atmosphère en thoron avec le prototype à l'aide d'une boucle fermée sur le volume de dilution

EXEMPLE DE SPECTRE DE THORON MESURÉ

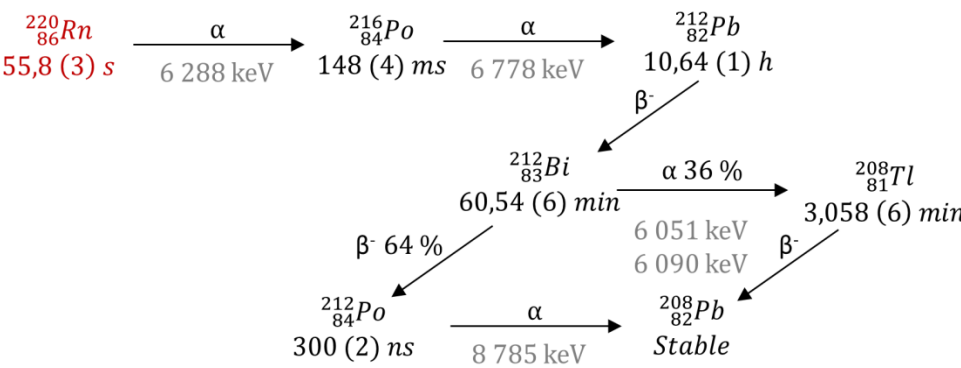


- Caractéristiques similaires au spectre du ^{222}Rn
- ➔ Tous les radionucléides sont identifiables
- Le pic alpha de ^{220}Rn est perturbé par la présence de ^{212}Bi

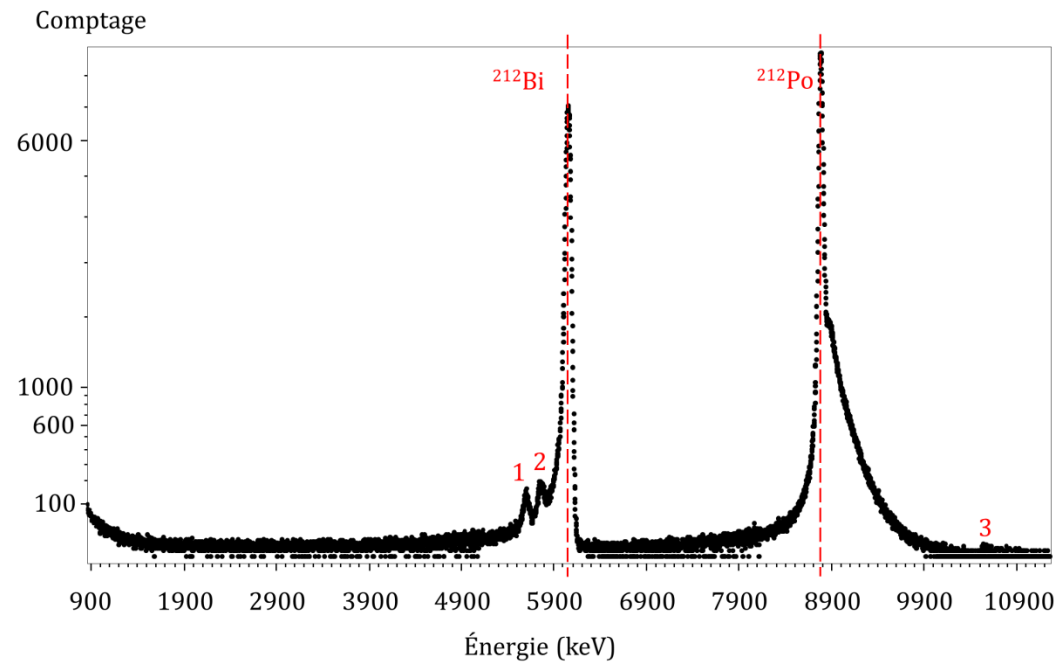
- Le ^{212}Po et le ^{212}Bi sont instantanément en équilibre séculaire

➔ Utilisation du pic de ^{212}Po pour déduire l'apport en ^{212}Bi dans la région d'intérêt du ^{220}Rn

- Il faut vérifier que l'équilibre est bien respecté sur le détecteur



VÉRIFICATION EXPÉRIMENTALE DU RAPPORT D'EMBRANCHEMENT



- Après une longue exposition à une atmosphère en thoron, le volume de mesure est rincé avec de l'air propre et sec
- Une mesure permet d'obtenir directement les deux descendants à l'équilibre

- Les résultats expérimentaux basés sur le rapport de comptage des deux pics donnent :

$$\frac{\alpha(^{212}\text{Bi})}{\alpha(^{212}\text{Po})} = 0,561 \text{ (7)}$$

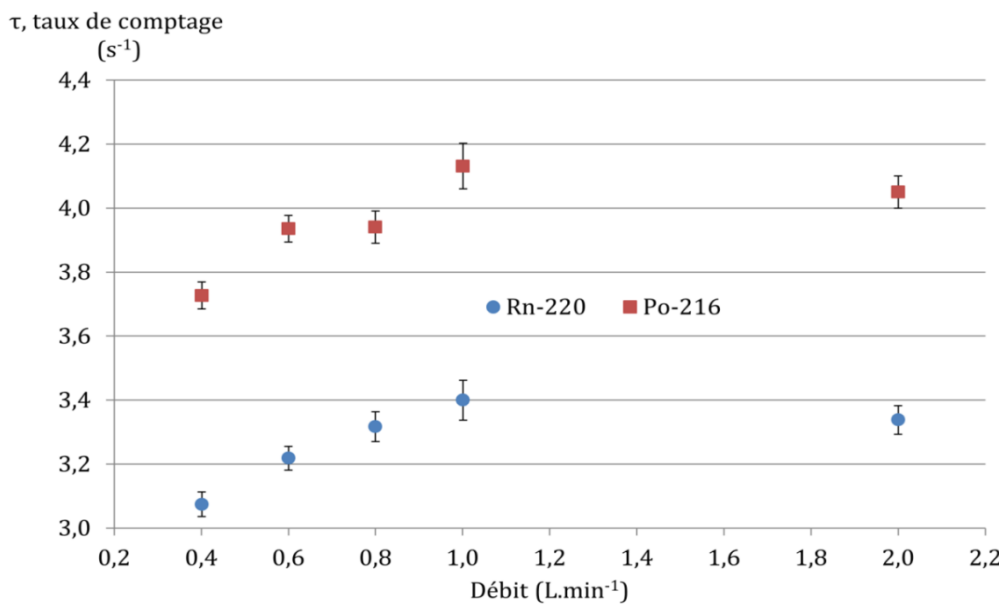
- En utilisant les données des radionucléides, le rapport d'embranchement est :

$$\frac{\alpha(^{212}\text{Bi})}{\alpha(^{212}\text{Po})} = \frac{\alpha(^{212}\text{Bi})}{\beta(^{212}\text{Bi})} = \frac{35,91}{64,09} = 0,560 \text{ (3)}$$

➔ Les résultats sont compatibles, il est possible d'utiliser le pic de ²¹²Po et le rapport d'embranchement pour en déduire le comptage lié au pic de ²¹²Bi

ÉTUDES DES PARAMÈTRES D'INFLUENCE SUR LA MESURE

- Comme pour le radon, l'humidité relative, la pression et la température n'ont pas d'impact sur la mesure
- Contrairement au radon, du fait de la période très courte du thoron, le débit de circulation peut avoir une influence sur la mesure :



- ✓ Le prélèvement de l'atmosphère est réalisé pour plusieurs débits de circulation
- ✓ Les résultats des taux de comptage pour le pic du ²¹⁶Po et de ²²⁰Rn sont corrigés en tenant compte de la décroissance du thoron :

$$N_{220Rn} = N_{220Rn}(0) e^{(-\lambda_{220Rn} \frac{V_t}{Q})}$$

➔ Le taux de renouvellement du volume est suffisamment important pour que la période du thoron n'influence pas la mesure au-dessus de 0,8 L.min⁻¹

ÉVALUATION DE L'ACTIVITÉ VOLUMIQUE EN THORON ET INCERTITUDES

- Calcul de l'activité volumique en thoron mesurée et incertitudes associées en utilisant le pic de ^{220}Rn et le pic de ^{216}Po :

$$A_{v\ 220\text{Rn}} = \frac{N_{220\text{Rn} + 212\text{Bi}} - N_{212\text{Po}} \frac{\alpha(^{212}\text{Bi})}{\beta(^{212}\text{Bi})}}{t_m V_{\text{det}} R_d\ 220\text{Rn} e^{\left(-\lambda_{220\text{Rn}} \frac{V_t}{Q}\right)}}$$

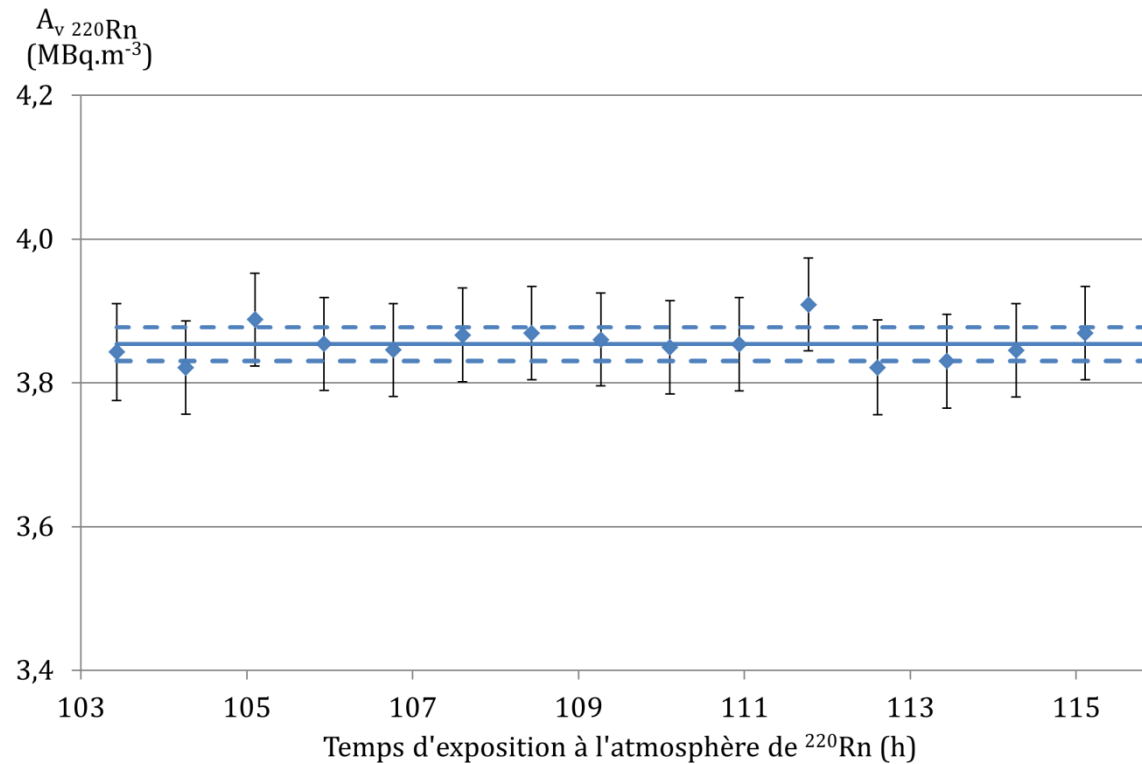
$$A_{v\ 220\text{Rn}} = \frac{N_{216\text{Po}}}{t_m V_{\text{det}} R_d\ 216\text{Po} e^{\left(-\lambda_{220\text{Rn}} \frac{V_t}{Q}\right)}}$$

Grandeur	Valeur et incertitude-type associée	Incertitude-type relative (%)	Contribution (%)
$N_{220\text{Rn} + 212\text{Bi}}$	68 783 (271)	0,4	27,6
$N_{212\text{Po}}$	42 289 (206)	0,5	5,1
$\frac{\alpha(^{212}\text{Bi})}{\beta(^{212}\text{Bi})}$	0,560 (6)	0,1	24,5
t_m	3 003 (1) s	0,03	0,1
V_{det}	$12,444\ (40) \cdot 10^{-6}\ \text{m}^3$	0,3	8,0
$R_d\ 220\text{Rn}$	0,320 (2)	0,6	30,4
$\lambda_{220\text{Rn}}$	$12,42\ (7) \cdot 10^{-3}\ \text{s}^{-1}$	0,5	0,0
V_t	$2,5\ (3) \cdot 10^{-5}\ \text{m}^3$	12	3,9
Q	$1,667\ (2) \cdot 10^{-5}\ \text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$	0,1	0,0
$A_{v\ 220\text{Rn}}$ (Méthode classique)	3,843 (40) MBq.m ⁻³	1	
$A_{v\ 220\text{Rn}}$ (Méthode Monte-Carlo)	3,843 (43) MBq.m ⁻³	1	

Grandeur	Valeur et incertitude-type associée	Incertitude-type relative (%)	Contribution (%)
$N_{216\text{Po}}$	65 978 (257)	0,4	3,0
t_m	3 003 (1) s	0,03	0,0
V_{det}	$12,444\ (40) \cdot 10^{-6}\ \text{m}^3$	0,3	2,1
$R_d\ 216\text{Po}$	0,465 (10)	2,1	93,7
$\lambda_{220\text{Rn}}$	$12,42\ (7) \cdot 10^{-3}\ \text{s}^{-1}$	0,5	0,0
V_t	$2,5\ (3) \cdot 10^{-5}\ \text{m}^3$	12	1,0
Q	$1,667\ (2) \cdot 10^{-5}\ \text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$	0,1	0,0
$A_{v\ 220\text{Rn}}$ (Méthode classique)	3,865 (86) MBq.m ⁻³	2,2	
$A_{v\ 220\text{Rn}}$ (Méthode Monte-Carlo)	3,871 (86) MBq.m ⁻³	2,2	

ANALYSE DES MESURES : ACTIVITÉ VOLUMIQUE EN THORON

- Le calcul est réalisé pour l'ensemble des points de mesure étudiés après l'équilibre atteint

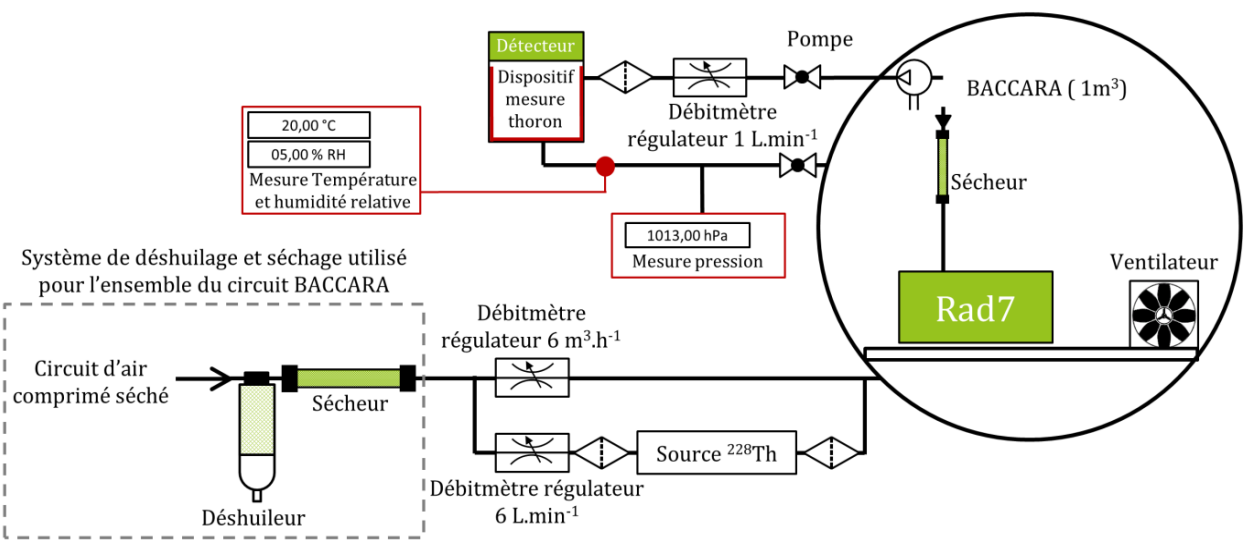


- Les résultats sont tous compatibles, l'activité volumique en thoron est bien constante au cours du temps

➔ Il est maintenant possible de raccorder l'activité volumique en thoron d'une atmosphère

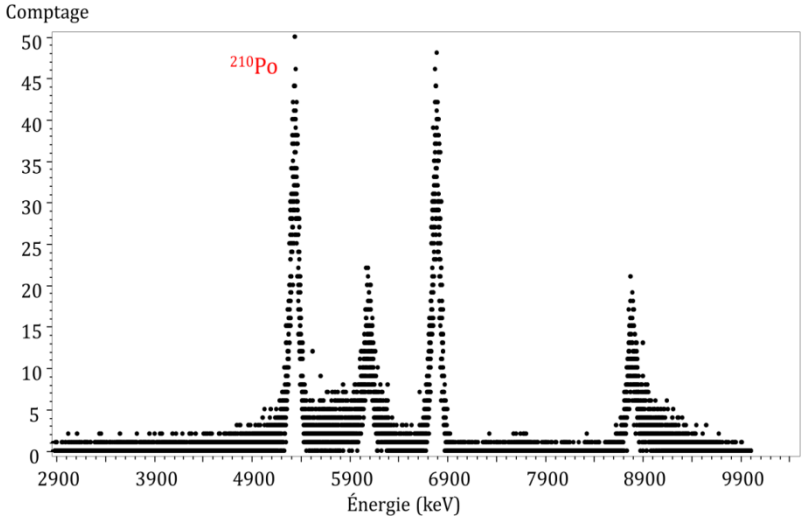
- Problématique radon et thoron
- La chaîne métrologique du radon
- Création d'une chaîne métrologique pour le thoron
- Validation de la méthode de mesure
- Application de la méthode de mesure au thoron
- **Comparaisons**
- Conclusion et perspectives
- Publications, présentations

COMPARAISON AVEC UN RAD7



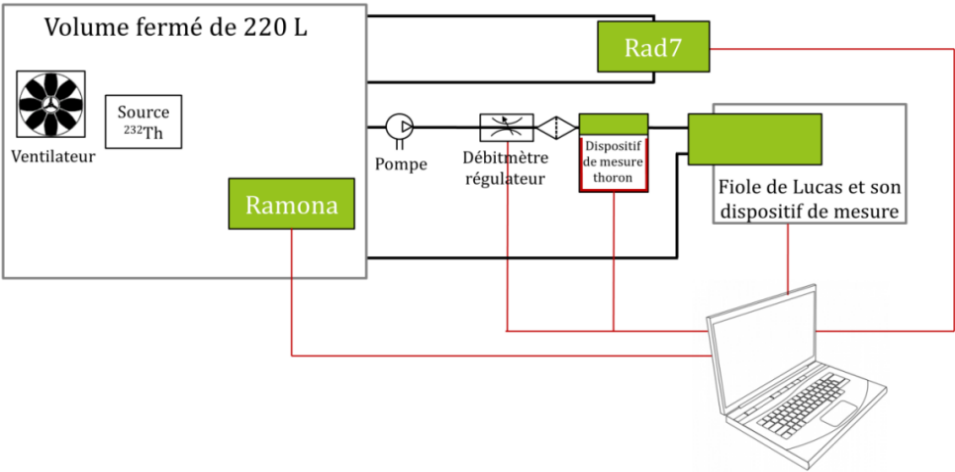
- Comparaison réalisée dans BACCARA
- RAD7 étalonné par le PTB
- Le premier prototype a été utilisé pour cette comparaison, il est contaminé en ²¹⁰Po

Appareil	Dispositif de mesure thoron	Rad7
Petite activité volumique	2,08 (6) kBq.m ⁻³	1,88 (14) kBq.m ⁻³
Grande activité volumique	163 (5) kBq.m ⁻³	160 (7) kBq.m ⁻³



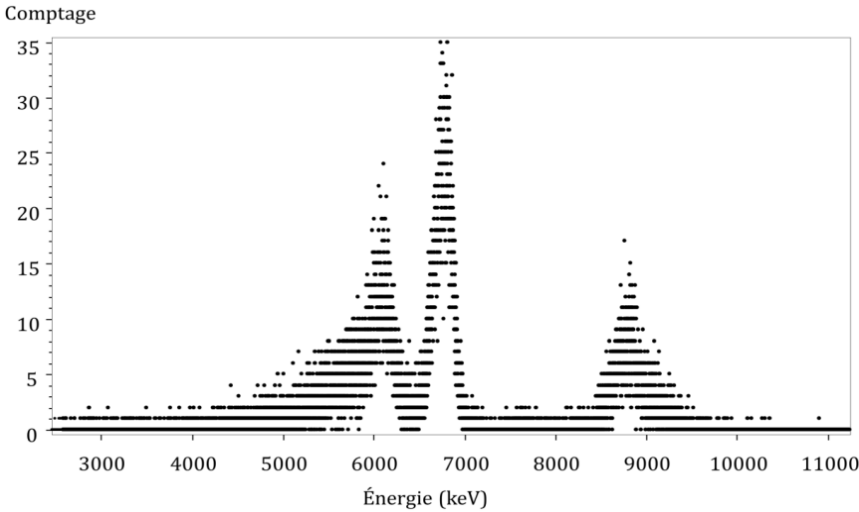
➔ Résultats compatibles

COMPARAISON AVEC LE DISPOSITIF DE MESURE DE RÉFÉRENCE DE L'ENEA



- Comparaison réalisée en Italie dans la chambre de l'ENEA
- Production de thoron à l'aide d'une source de ^{232}Th dans un volume fermé
- Comparaison de mesure de thoron avec la méthode de référence en développement à l'ENEA

Appareil	Mesure 1	Mesure 2
Dispositif de mesure thoron	22,2 (4) kBq.m ⁻³	22,0 (3) kBq.m ⁻³
Lucas - ENEA	22,1 (8) kBq.m ⁻³	21,7 (8) kBq.m ⁻³



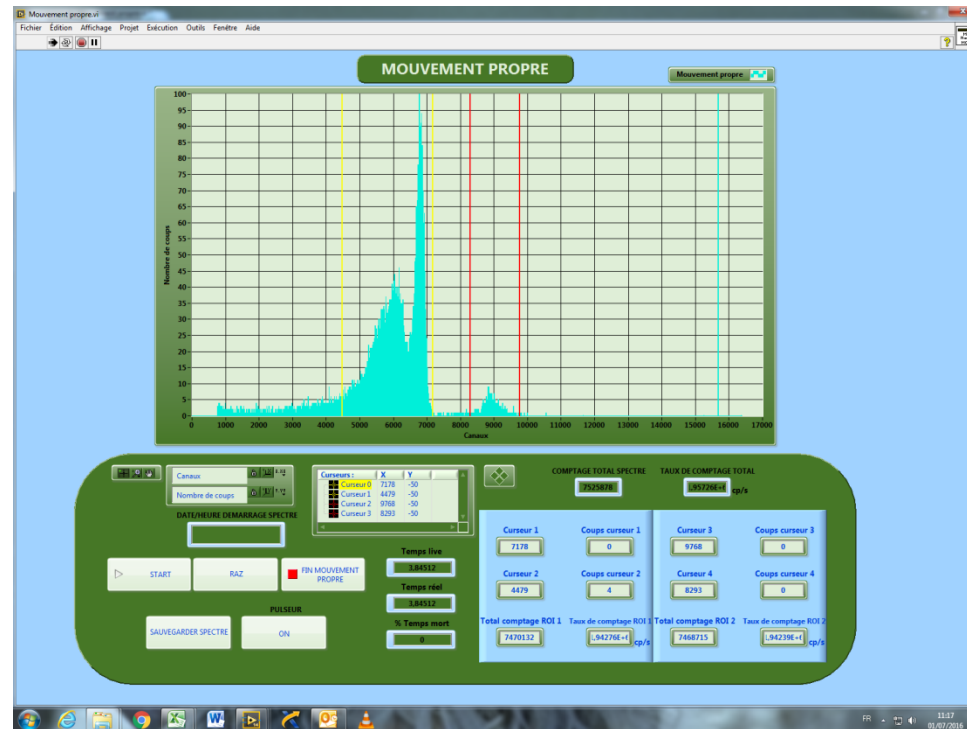
➔ Résultats compatibles !

CONCLUSION

- Le dimensionnement réalisé sous Comsol Multiphysics et MCNPX a permis de mettre en place un dispositif qui n'est pas influencé par les variations des paramètres de l'air (pression, humidité, ...)
- Le rendement géométrique expérimental du ^{222}Rn est de 32,0 (2) %, ces résultats sont compatibles avec les simulations MCNPX
- Pour des débits de circulation supérieurs à $0,8 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$, le rendement géométrique sera le même pour le pic du ^{220}Rn
- L'évaluation de l'activité volumique en thoron est réalisée avec une incertitude-type relative de 1 %
- Le dispositif créé est transportable, dispose de sa propre électronique et permet de raccorder une atmosphère de ^{220}Rn en activité volumique
- Des comparaisons ont été mises en place avec un RAD7 dans BACCARA (IRSN) et à l'ENEA avec leur étalon en développement : ces deux comparaisons ont donné des résultats compatibles

PERSPECTIVES

- Finalisation du développement du logiciel sous LabVIEW



- Mise en place du dispositif sur BACCARA
- Développement du mode opératoire pour l'étalonnage des instruments de mesure du thoron BACCARA

➔ Commencer à étalonner les appareils de mesure !

Merci de votre attention

Commissariat à l'énergie atomique et aux énergies alternatives
LNE-LNHB | CEA SACLAY | BAT. 602 – PC111
91191 Gif-sur-Yvette Cedex - FRANCE
www.nucleide.org

Établissement public à caractère industriel et commercial | RCS Paris B 775 685 019