

## Analyse d'ultra-traces de xénon dans le cadre du traité d'interdiction complet des essais nucléaires

**Sylvain TOPIN, Gilbert LE PETIT, Pascal ACHIM, Olivier DELAUNE, Guilhem DOUYSET, Antoine CAGNIANT, Jean-Pierre FONTAINE, Sylvia GENEROSO, Philippe GROSS, Mireille MORIN, Christophe MOULIN**

CEA/DAM  
CEA/DAM Ile de France 91297 Arpajon Cedex  
[sylvain.topin@cea.fr](mailto:sylvain.topin@cea.fr)

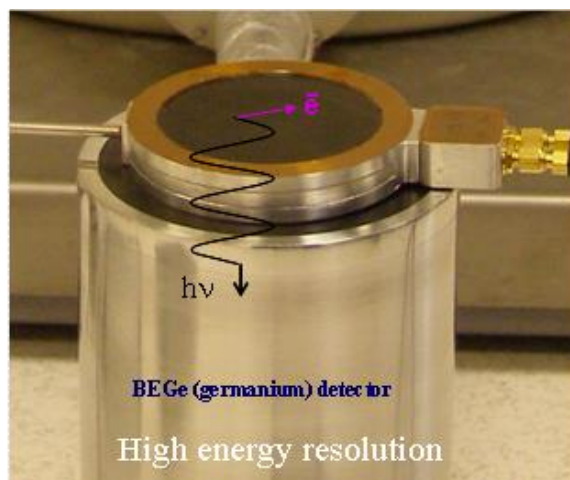
Les isotopes du xénon (124 à 136) sont parmi les produits de fission de l'uranium et du plutonium les plus abondants, avec des rendements qui peuvent être proches de 10 %. Le xénon est par ailleurs un gaz inerte, susceptible de migrer dans la géosphère sans interaction avec le milieu. Enfin, certains isotopes radioactifs du xénon présentent des périodes de demi-vies de quelques heures à plusieurs jours, qui permettent de les détecter sans qu'il y ait un bruit de fond permanent trop important. Pour ces raisons, certains isotopes radioactifs du xénon (Xe-133, Xe-135, Xe-131m et Xe-133m) sont des marqueurs de choix des activités nucléaires basées sur la fission de l'uranium et du plutonium [1]. En particulier, lors d'essais nucléaires souterrains, ces isotopes sont quasiment les seuls susceptibles d'être émis à l'atmosphère et détectés à distance. Leur détection est ainsi prévue dans le cadre du Traité d'Interdiction Complète des Essais nucléaires (TICE) au travers d'un réseau de 40 stations réparties à la surface du globe. Leur suivi présente également un fort intérêt lors d'accident/incident d'installation nucléaire civile comme cela a pu être illustré avec l'accident de Fukushima Daï-chi [2].

Le CEA a développé et breveté un système français de mesure des isotopes radioactifs du xénon, désigné sous le nom de station SPALAX (acronyme de Système de Prélèvement Automatique en Ligne avec l'Analyse des radio-Xénons atmosphériques). Ce système est constitué d'un procédé qui prélève l'air et isole le xénon et d'un spectromètre permettant la mesure de la radioactivité à très bas niveau. Le procédé SPALAX est constitué de 3 étapes : 1/ le prélèvement au travers de compresseurs d'air et la pré-purification au travers de membranes de perméation ; 2/ la purification par chromatographie sur des colonnes d'adsorbant ; 3/ la concentration suivant le procédé TSA (Thermal Swing Adsorption) sur des colonnes d'adsorbant. En définitive, l'échantillon issu d'environ 400 m<sup>3</sup> d'air est concentré dans une cellule de comptage de 15 à 25 cm<sup>3</sup> contenant environ 6 cm<sup>3</sup> de xénon.



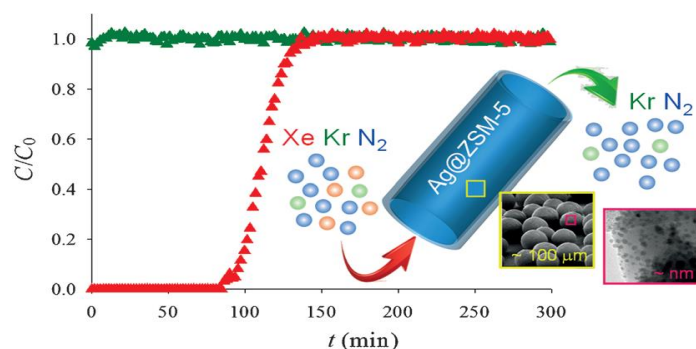
**Photographie d'un système SPALAX – Station d'accueil du SPALAX des Iles Kerguelen**

Un projet de développement d'un SPALAX de Nouvelle Génération (SPALAX-NG) a été lancé en 2012, il s'appuie notamment sur les travaux de R&D menés au sein du laboratoire sur le procédé et les spectromètres depuis 2009 [3, 4]. Concernant les spectromètres, les développements ont pour objet de mettre en place un ensemble de spectromètres ultrasensible à coïncidence électron-photon capable de restreindre le signal quasiment à la stricte émission des isotopes d'intérêt (bruit de fond quasiment nul). Ce spectromètre couple un détecteur germanium  $\gamma$  haute résolution et un détecteur d'électrons à base de silicium.



**Photographie du système de détection du SPALAX-NG**

Les enjeux liés au procédé du SPALAX-NG sont essentiellement la miniaturisation, la fiabilité et la consommation d'énergie. Les axes de R&D principaux pour atteindre cet objectif sont la mise au point de matériaux adsorbants très efficaces pour l'adsorption et la désorption du xénon ainsi que la séparation des différentes espèces. Les zéolithes dopées à l'argent sont particulièrement étudiées [5, 6].



**Représentation des capacités de séparation sur une zéolithe Ag@ZSM5 – Clichés MET des zéolithes Ag@ZSM5**

- [1] Kalinowski, M.B., et al. Discrimination of nuclear explosions against civilian sources based on atmospheric xenon isotopic activity ratios. Pure Appl. Geophys. 167, 517-539.]
- [2] Achim, P., et al, 2014. Analysis of radionuclide releases from the fukushima Dai-ichi nuclear power plant accidentePart II. Pure Appl. Geophys. 171, 645-667
- [3] Topin, S., et al, 2015. SPALAX new generation: New process design for a more efficient xenon production system for the CTBT noble gas network. J. Env. Rad. 149, 43-50.
- [4] Le Petit, G., et al, 2015. Spalax™ new generation: a sensitive and selective noble gas system for nuclear explosion monitoring. Appl. Radiat. Isotopes 103, 102-114.
- [5] Deliere, L., et al, 2014. Role of silver nanoparticles in enhanced xenon adsorption using silver exchanged zeolites. J. Phys. Chem. C 118, 25032-25040.
- [6] Deliere, L., et al, 2016. Breakthrough in Xenon Capture and Purification Using Adsorbent-Supported Silver Nanoparticles. Chem. Eur. J. 22, 1-8.