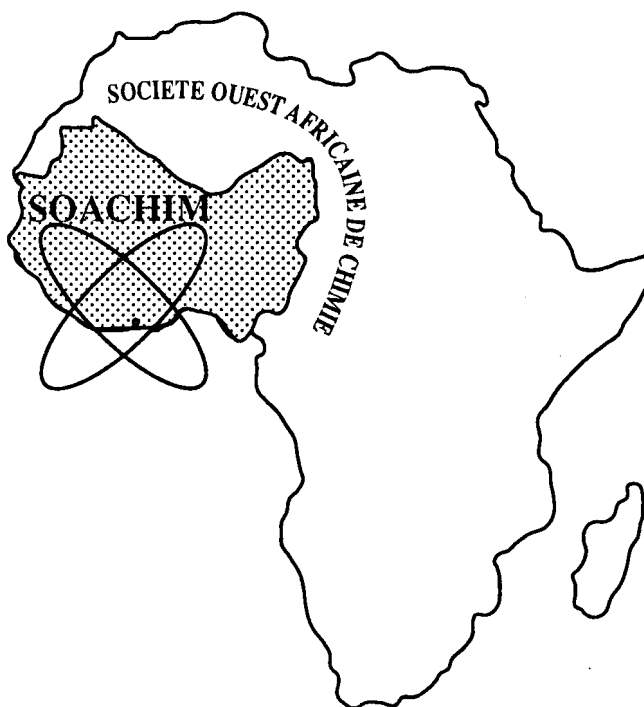


Bruit de fond des radionucléides La-140 et Ba-140 des stations de particules du SSI de l'OTICE sur la période 2010-2016

Kassoum Yamba, Oumar Sanogo, Issaka Ouedraogo

Journal de la Société Ouest-Africaine de Chimie
J. Soc. Ouest-Afr. Chim. (2023), 052 : 9 - 13
28^{ème} Année, 2023



ISSN 0796-6687

Code Chemical Abstracts : JSOCF2

Cote INIST (CNRS France) : <27680>

Site Web: <http://www.soachim.org>

<https://www.soachim.info>

Bruit de fond des radionucléides La-140 et Ba-140 des stations de particules du SSI de l'OTICE sur la période 2010-2016

Kassoum Yamba^{1*}, Oumar Sanogo¹, Issaka Ouedraogo¹

¹Centre National de Recherche Scientifique et Technologique (IRSAT/CNRST), Ouagadougou, Burkina Faso
BP 7047 Ouagadougou – Burkina Faso

(Reçu le 11/10/2022 – Accepté après corrections le 25/06/2023)

Abstract : The background characterization of the CTBT's relevant radionuclides is an important scientific tool for the verification regime of the Comprehensive Nuclear Test Ban Treaty (CTBT). Among these indicators, the particles La-140 and Ba-140 are two parent-daughter radionuclides that can be used for nuclear events timing. These two radionuclides were already detected in May 2010 with abnormally high concentrations and had been the subject of several studies. The analysis of the distribution of these particles makes it possible to understand the statistics of detections of these two radionuclides in the IMS measurement network, and also to know whether the detections of these two parent-daughter radionuclides in the measurement system of the IMS in May 2010 were special. The temporal analysis over the period 2010-2017 taking into account all the network measurement stations shows that the detections are concentrated in 2010 and 2011. If the detections of 2011 can be associated with the debris from Fukushima nuclear accident, those of 2010 remain clearly unexplained to this day.

Keywords : La-140, Ba-140, radionuclides, CTBT, Nuclear

La-140 and Ba-140 Background from IMS particles stations during 2010-2016

Résumé : La caractérisation du bruit de fond des radionucléides considérés comme étant des indicateurs d'une explosion nucléaire constitue un outil scientifique important pour le régime de vérification du Traité d'interdiction complète des essais nucléaires (TICE). Parmi ces indicateurs, les particules La-140 et Ba-140 sont deux radionucléides parent-fils pouvant être utilisés pour la datation des événements nucléaires. Ces deux éléments ont déjà été détectés en mai 2010 avec des concentrations anormalement élevées et avaient fait l'objet de plusieurs études. Une analyse de la distribution de ces particules permet non seulement de comprendre les statistiques de détections de ces deux radionucléides dans le réseau de mesure du SSI, mais aussi de savoir si les détections de ces deux radionucléides parent-fils dans le système de mesure du SSI en mai 2010 étaient particulières. L'analyse spatio-temporelle sur la période 2010-2016 en prenant en compte toutes les stations de mesures du réseau montre que les détections se concentrent en 2010 et 2011. Si les détections de 2011 peuvent être associées aux débris de l'accident nucléaire de Fukushima, celles de 2010 restent clairement inexplicables à ce jour.

Mots clés : La-140, Ba-140, radionucléides, TICE, Nucléaire

* **Auteur Correspondant :** Kassoum Yamba, Phone: +22670032683 E-mail: fairlir@yahoo.fr

1. Introduction

Le Traité d'interdiction complète des essais nucléaires (TICE) est un instrument juridique international qui interdit tout essai nucléaire dans tous les compartiments de l'environnement terrestre (souterrain, sur terre, dans l'eau et dans l'atmosphère). Ouvert à la signature en septembre 1996, le TICE est signé à la date de juillet 2022 par plus de 186 États. Chaque État partie au traité collabore avec l'Organisation du Traité d'interdiction complète des essais nucléaires (OTICE) dans le cadre du régime de vérification du traité, qui est un ensemble d'éléments scientifiques permettant de s'assurer du respect des termes du traité par les États parties. Le régime de vérification comprend le système de surveillance international (SSI), le centre international de données (CID) et l'inspection sur place (ISP).

La communauté scientifique travaille depuis l'avènement du TICE à mettre en place des outils scientifiques et techniques permettant de distinguer la signature d'une explosion nucléaire des autres événements nucléaires tels que les rejets des centrales nucléaires et les libérations des industries pharmaceutiques de production d'isotopes médicaux.

Le présent travail porte sur l'évaluation du bruit de fond atmosphérique du Lanthane 140 (La-140) et le Baryum 140 (Ba-140) des stations de mesure des particules radioactives du SSI. Les deux éléments La-140 et Ba-140 sont considérés comme étant des éléments pertinents [1] pour la vérification du TICE et sont parfois détectés lors des mesures avec de quantité anormalement supérieure au bruit de fond atmosphérique. La cartographie temporelle de ce bruit de fond atmosphérique et l'analyse de son niveau sont des outils utiles pouvant être utilisés dans la caractérisation des événements nucléaires en soutien à la vérification du TICE [2]. Ainsi, les questions suivantes sont investiguées : quelles sont les statistiques de détections de ces deux radionucléides dans le réseau de mesure du SSI ? Les détections de ces deux radionucléides parent-fils dans le système de mesure du SSI en mai 2010 sont-elles particulières ?

Pour mener à bien cette investigation, les données d'observations réelles de ces deux radionucléides provenant de toutes les stations de particules du système de surveillance international de l'Organisation du traité d'interdiction complète des essais nucléaires ont été utilisées. La période de mesure considérée dans ce travail va du 01 janvier 2010 au 01 janvier 2017, soit une durée de sept (07) ans d'opération.

2. Méthodologie

Le système international de surveillance de l'OTICE, composant essentiel du régime de vérification du TICE, est composé de quatre technologies de surveillance, à savoir l'hydroacoustique pour la surveillance des essais nucléaires sous l'eau, la sismique pour explosions nucléaires souterraines, l'infrason pour les essais nucléaires atmosphériques, et les radionucléides pour la surveillance des essais nucléaires dans tous les compartiments de l'environnement. Parmi les 337 stations de surveillance du réseau de mesure SSI, 80 sont habilités à mesurer et analyser les radionucléides, les particules et les gaz nobles notamment [3]. Les spécifications des stations de mesure des radionucléides du système de surveillance international de l'OTICE indiquent que les trois phases de mesure, à savoir l'échantillonnage, le temps de repos et le temps de mesure durent chacune environ 24 heures. Pour faciliter l'interprétation des données, les résultats des mesures sont directement convertis en concentration d'activité avec comme unité de mesure le Becquerel par mètre cube (Bq/m^3).

Une fois les mesures validées, les résultats sont automatiquement transmis au Centre international de données (CID) basé à Vienne en Autriche, ou chaque État membre, partie au traité TICE, peut y avoir accès.

Les rapports de mesures automatiques des stations donnent toujours, après prélèvement, traitement et acquisition, la valeur de la concentration d'activité volumique en Bq/m^3 . On peut en extraire les valeurs d'activités afin de faire une évaluation de l'âge. Globalement, la valeur de la concentration d'activité est donnée par l'expression suivante [4] :

$$C = \frac{n \cdot \lambda}{\varepsilon \cdot (1 - e^{-\lambda t_A})} \cdot \frac{\lambda}{e^{-\lambda t_p}(1 - e^{-\lambda t_c})} \cdot \frac{1}{S} \quad [1]$$

Où :

- C : la concentration d'activité en Bq/m^3 ;
- ε : l'efficacité du détecteur ;
- λ : la constante de décroissance ;
- n : la surface nette du pic ;
- S : le taux d'échantillonnage ;
- t_A : le temps d'acquisition de la mesure ;
- t_p est le temps de traitement de l'échantillon ;
- t_c : est le temps de prélèvement de l'échantillon.

Les activités isotopiques des deux particules La-140 et Ba-140 sont alors calculées par l'utilisation de ces deux équations suivantes, obtenues à partir de l'équation 1 :

$$A_{Ba} = \frac{C_{Ba} \cdot S}{\lambda_{Ba}} \cdot e^{-\lambda_{Ba} t_p} (1 - e^{-\lambda_{Ba} t_c}) \quad [2]$$

et

$$A_{La} = \frac{C_{La} \cdot S}{\lambda_{La}} \cdot e^{-\lambda_{La} t_p} (1 - e^{-\lambda_{La} t_c}) - A_{Ba} \frac{\lambda_{La}}{\lambda_{La} - \lambda_{Ba}} \left(\frac{\lambda_{La}}{\lambda_{Ba}} \frac{1 - e^{-\lambda_{Ba} t_A}}{1 - e^{-\lambda_{La} t_A}} - 1 \right) \quad [3]$$

L'évolution dans le temps des rapports d'activité et de concentration isotopique de La-140 et Ba-140 est donnée par la **figure 1**. On peut remarquer sur cette **figure** que le ratio d'activité La-140/Ba-140 augmente et atteint un niveau d'équilibre à 1,1516. Pour le ratio de concentration, il augmente et un niveau d'équilibre est atteint à 2,3265.

Cette étude effectuée au centre national de données (CND) du Burkina Faso basé au Centre National de la Recherche scientifique et technologique (CNRST) a nécessité l'utilisation des données radioactives issues des bases de données nucléaires LARA [5] et ENDF [6]. L'expression de l'aperçu des résultats de ce travail est faite par l'utilisation du tableur Office EXCEL et du logiciel de calcul MATLAB.

3. Résultats et Discussion

L'analyse statistique de l'ensemble des données de mesures étudiées montre que les principales détections se situent en 2010 et en 2011, comme on peut le voir dans le **tableau I**. On peut également remarquer que les nombres de détections dans le réseau de mesure du SSI entre 01/01/2010 et 01/01/2017 sont respectivement de 127 et 45 pour La-140 et Ba-140. Ces chiffres représentent, par rapport à l'ensemble des détections, 97,7% et 34,6% respectivement pour La-140 et Ba-140.

Tableau I: Elément statistique sur les détections des radionucléides La-140 et Ba-140.

Statistique sur les détections				
Total	130			
	La-140	%	Ba-140	%
2010	8	6%	9	7%
2011	119	92%	34	26%
2012	0	0	0	0
2013	0	0	0	0
2014	0	0	0	0
2015	0	0	0	0
2016	0	0	2	2%

Durant la période 2010-2016, environ 22 stations de mesure à travers le monde ont identifié et mesuré une quantité supérieure à la limite de détection. La distribution des détections des radionucléides Ba-

140 et Ba-140 par station de mesure du réseau SSI est donnée par la **figure 2**. On remarque sur cette **figure** que les plus grandes quantités de ces deux radionucléides ont été détectées principalement à la station de mesure de particules RN38. RN38 est une des 80 stations de mesure des radionucléides du système de surveillance international de l'OTICE basée à OKINAWA au Japon.

Les valeurs les plus élevées de concentration d'activité mesurées durant cette période ont été enregistrées le 21 mars 2011 à la station radionucléides RN34 localisée au Japon. La concentration d'activité maximale mesurée est de 52444,80(9948) pour le La-140 et de 36954,79(83257) pour le Ba-140. RN37, RN38, RN71 et RN72 sont les seules stations où les particules La-140 et Ba-140 ont été identifiés, mesurés et enregistrés avec des concentrations d'activité supérieure à L_c . **La figure 3** donne un aperçu des détections des particules La-140 et Ba-140 dans l'ensemble du réseau sur la période 2010-2016. Courant l'année 2010, on dénombre plusieurs doubles détections utilisables pouvant être utilisées pour la détermination de la nature d'une explosion nucléaire.

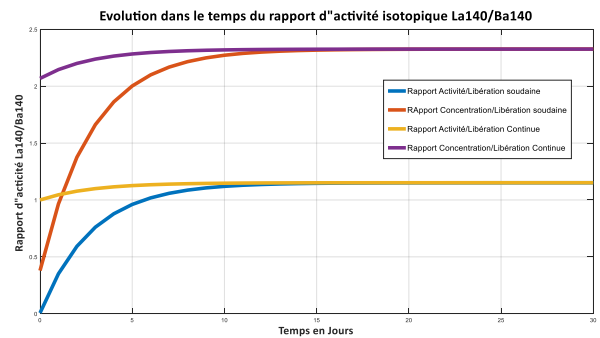


Figure 1 : l'évolution dans le temps du ratio d'activité et de concentration La140/Ba140.

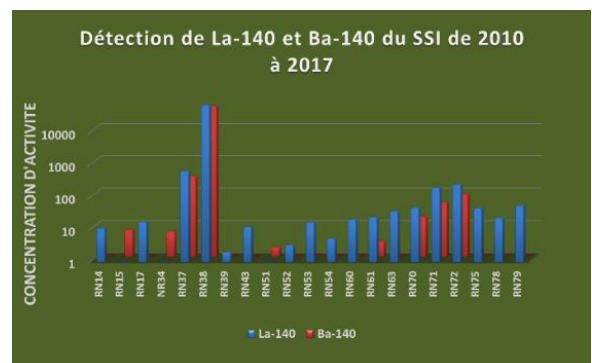


Figure 2: Distribution des détections des radionucléides Ba-140 et Ba-140 entre 2010 et 2017 selon la station de mesure

L'identification et la datation des explosions nucléaires nécessitent l'utilisation des rapports d'activités isotopiques de La-140 et de Ba-140. Les résultats des mesures des stations sont alors convertis de concentration d'activité en activité isotopique. Dans le cadre de cette étude, toutes les mesures ne sont pas utilisables dans l'évaluation des rapports d'activité, car certaines mesures n'ont enregistré qu'un seul des deux radionucléides, le La-140 ou le Ba-140. Cela conduit à obtenir une valeur de rapport d'activité soit nulle ou infinie inutilisable. Les seules mesures utiles sont celles ayant une double détection à la fois des deux particules avec des valeurs d'activité bien définies accompagnée d'une incertitude de mesure. L'incertitude de mesure joue un rôle important dans le processus de datation des événements nucléaires comme montré dans certaines études [7]. La **figure 4** donne un aperçu de la distribution des rapports d'activité isotopique valides pour l'étude des événements nucléaires.

Entre le 01 Janvier 2010 et le 01 janvier 2017, parmi les 130 détections de La-140 et B-140, on dénombre

42 doubles détections de ces deux particules pouvant être utilisées pour évaluer le rapport d'activité isotopique et appliquées pour la datation des événements nucléaires. Ces 42 doubles détections représentent 32,3% de l'ensemble des détections dans le réseau de mesure SSI de l'OTICE. Dans cette période de 07 ans de mesure, on remarque que 33 (27,4%) cas de double détection sont utilisables dans une situation de libération soudaine tandis que 07 (05,4%) cas de double détection sont utilisables dans un scenario de libération continue.

Plusieurs contributeurs au renforcement du régime de vérification du traité TICE tels que [7–10] ont déjà mené depuis 2012 des investigations sur certaines de ces doubles détections de La-140 et Ba-140. Les détections de ces particules dans la période du 15 au 22 mai 2010 à la station radionucléides RN37 située à OKINAWA au Japon ont été étudiées par ces auteurs et leurs résultats dans l'ensemble estiment une date de libération entre le 10 et le 13 mai 2010.

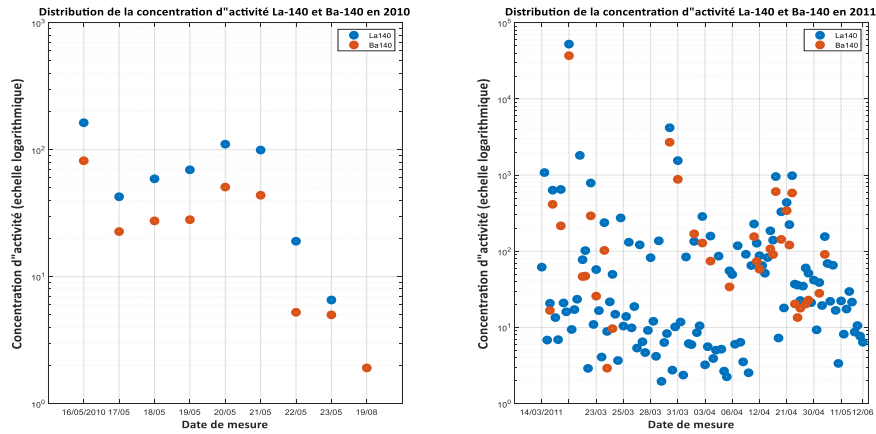


Figure 3: Distribution des détections La-140 et Ba-140 dans le réseau SSI en 2010

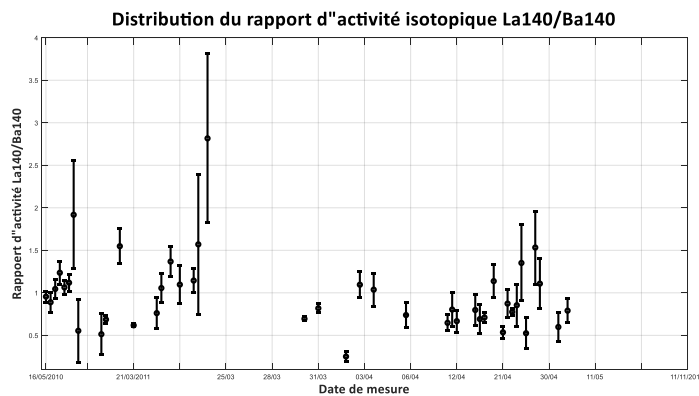


Figure 4: Distribution des rapports d'activité isotopiques La-140/Ba-140 selon la date de mesure dans le réseau de mesure SSI de l'OTICE

4. Conclusion

Ce travail portant sur la caractérisation du bruit de fond des radionucléides La-140 et Ba-140 des stations de particules du SSI de la période 2010-2016 a été mené dans le cadre du renforcement du régime de vérification de traité TICE qui est un instrument juridique international ouvert à la signature en 1996 et avec pour objectif l'abolition de toute forme d'essai nucléaire dans l'environnement. Les deux radionucléides parent-fils La-140 et Ba-140 sont considérés comme étant des indicateurs pertinents pour l'identification et la datation des explosions nucléaires dans l'environnement [11].

L'analyse de la distribution spatio-temporelle des détections montre une concentration des détections en 2010 et en 2011 particulièrement avec des niveaux d'activités isotopiques élevés principalement aux stations de mesure RN37 et RN38 en opération au Japon.

Ce travail montre que les détections de 2011 peuvent être associées aux débris de Fukushima, mais les détections de 2010 restent clairement inexplicées. Des travaux complémentaires sont à faire sur ces détections de La140 et Ba140 principalement celles de RN38 et RN37.

5. Références

- [1] Bin L. « Analysis of fission products— a method for verification of a CTBT during on-site inspections ». *Sci. Glob. Secur.* [En ligne]. 1 janvier 1998. Vol. 7, n°2, p. 195-207. Disponible sur : < <https://doi.org/10.1080/08929889808426454> >
- [2] Nir-El Y. « Dating the age of a nuclear event by gamma spectrometry ». *Proc. 14th Int. Conf. Radionucl. Metrol. Its Appl. ICRM 2003* [En ligne]. février 2004. Vol. 60, n°2-4, p. 197-201. Disponible sur : < <https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2003.11.016> >
- [3] Schulze J., Auer M., Werzi R. « Low level radioactivity measurement in support of the CTBTO ». *Appl. Radiat. Isot.* [En ligne]. 15 juillet 2000. Vol. 53, n°1-2, p. 23-30. Disponible sur : < [https://doi.org/10.1016/S0969-8043\(00\)00182-2](https://doi.org/10.1016/S0969-8043(00)00182-2) >
- [4] Axelsson A., Ringbom A. « On the calculation of activity concentrations and nuclide ratios from measurements of atmospheric radioactivity ». *Appl. Radiat. Isot.* [En ligne]. septembre 2014. Vol. 92, p. 12-17. Disponible sur : < <https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2014.05.020> >
- [5] LNHB C. « Library for gamma and alpha emissions ». In : *Nucléide - Lara* [En ligne]. [s.l.] : [s.n.], 2017. Disponible sur : <<http://www.nucleide.org/Laraweb/>> (consulté le 1 mai 2017)
- [6] NDS - IAEA. « Evaluated Nuclear Data File (ENDF/B.VII.I) ». [s.l.] : [s.n.], 2011. Disponible sur : < <https://www-nds.iaea.org/exfor/endl.htm> >
- [7] Yamba K. et al. « Fast and accurate dating of nuclear events using La-140/Ba-140 isotopic activity ratio ». *Appl. Radiat. Isot.* [En ligne]. juin 2016. Vol. 112, p. 141-146. Disponible sur : < <https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2016.03.013> >
- [8] De Geer L.-E. « Radionuclide Evidence for Low-Yield Nuclear Testing in North Korea in April/May 2010 ». *Sci. Glob. Secur.* [En ligne]. 1 janvier 2012. Vol. 20, n°1, p. 1-29. Disponible sur : < <https://doi.org/10.1080/08929882.2012.652558> >
- [9] De Geer L.-E. « Reinforced evidence of a low-yield nuclear test in North Korea on 11 May 2010 ». *J. Radioanal. Nucl. Chem.* [En ligne]. 1 décembre 2013. Vol. 298, n°3, p. 2075-2083. Disponible sur : < <https://doi.org/10.1007/s10967-013-2678-5> >
- [10] Ihantola S., Toivonen H., Moring M. « 140La/140Ba ratio dating of a nuclear release ». *J. Radioanal. Nucl. Chem.* [En ligne]. 1 novembre 2013. Vol. 298, n°2, p. 1283-1291. Disponible sur : < <https://doi.org/10.1007/s10967-013-2504-0> >
- [11] Yamba K. et al. « Dating a nuclear event based on isotopic ratios ». In : *SCIENCE AND TECHNOLOGY CONFERENCE (SnT2015)*. Vienna, Austria : [s.n.], 2015. Disponible sur : < <https://doi.org/10.13140/RG.2.2.20470.09284> >