



Laboratoire indépendant d'analyse de la radioactivité

Association loi 1901 SIRET : 950 369 868 00027 APE : 7120B

Association pour le Contrôle de la Radioactivité dans l'Ouest

138 rue de l'Eglise – 14200 HEROUVILLE-SAINT-CLAIR

Tél. : (+33) 2.31.94.35.34 Fax : (+33) 2.31.94.85.31

Email : acro-laboratoire@wanadoo.fr

N°TVA : FR 62 950 369 868

Rapport

RAP110719-CYC-v1

Suivi radiologique de l'environnement des installations du GIP CYCERON de Caen

Année 2011

Résultats du Deuxième Trimestre

Période du 11 avril 2011 au 19 juillet 2011




Feuille Qualité :

DEMANDE	
Mission	Surveillance radiologique de l'environnement du GIP CYCERON – 2 ^{ième} trimestre 2011. 1 ^{er} volet : Suivi des émetteurs gamma dans les échantillons biologiques 2 ^{ème} volet : Mesures intégrées du rayonnement ambiant (débit de dose) 3 ^{ème} volet : Cartographie du rayonnement gamma ambiant 4 ^{ème} volet : Contrôle des niveaux de radioactivité des effluents liquides
Demandeur	GIP CYCERON Bd Henri Becquerel – BP 5229 14074 CAEN Cedex 5
Commande	N°11FC2026 du 08/02/11

REALISATION	
Association pour le Contrôle de la Radioactivité dans l'Ouest 138 rue de l'Eglise 14200 HEROUVILLE SAINT CLAIR tél. : 02.31.94.35.34 / fax : 02.31.94.85.31	
Responsable Scientifique	P. BARBEY, M.JOSSET
Auteur(s)	A.BERNOLLIN, A.MIGEON
Prélèvements	M.JOSSET, A.MIGEON, E.DUNAND
Mesures <i>in situ</i>	M.JOSSET, A.MIGEON
Traitement des échantillons	E.DUNAND
Analyses	de A. BERNOLLIN, E. DUNAND, A.MIGEON radioactivité :

DOCUMENT	
Date d'édition	4/11/11
Identification	RAP110719(T2)CYC_v1
Version n°	01
Pages (nombre)	23 (annexes comprises)
Objet	Matériels et Méthodes, Détails des résultats.
Mots-clés	radioactivité, rayonnement gamma ambiant, débit de dose, recherche médicale, cyclotron, Calvados
Paramètres	éléments radioactifs : ²⁴ Na, ⁴⁶ Sc, ⁵² Mn, ⁵⁴ Mn, ⁵⁵ Co, ⁵⁶ Co, ⁵⁷ Co, ⁵⁸ Co, ⁶⁰ Co, ⁵⁷ Ni, ⁶⁵ Zn, ⁸² Br, ¹²² Sb, ¹²⁴ Sb, ¹²³ I, ¹³¹ Ba, ¹³³ Ba, ¹³⁷ Cs, ¹⁵³ Sm, ¹⁵² Eu, ²³⁴ Th, ²¹² Pb, ⁴⁰ K, ⁷ Be. physico-chimiques : néant lieu(x) : Caen (14)

REMARQUE(S) PARTICULIERE(S)	
de l'A.C.R.O. :	La reproduction du document n'est autorisée que sous la forme de fac-similé photographique intégral.

	Auteur	Vérificateur	Responsable Scientifique
Date	4/11/2011	4/11/2011	4/11/2011
Visa			
NOM	Aurélie MIGEON	Antoine BERNOLLIN	Mylène JOSSET

Suivi radiologique de l'environnement des installations du GIP CYCERON – année 2011.

RESULTATS DE LA CAMPAGNE D'ANALYSES DU 2^{EME} TRIMESTRE 2011

Période du 11 avril 2011 au 19 juillet 2011

Depuis 2005, l'exploitant du GIP CYCERON a mis en place un plan de surveillance radiologique de l'environnement de ses installations.

L'ACRO a été sollicitée fin 2003 pour la réalisation d'un bilan radiologique de l'environnement terrestre des installations du GIP CYCERON dans le cadre d'un projet d'extension des installations. Elle s'est par la suite vue confier la mise en place de cette surveillance radiologique de 2005 à 2011.

Le but premier de cette surveillance est de fournir des éléments d'appréciation quant à l'impact de ces installations sur le milieu environnant et les personnes. Cette évaluation participe à la conduite opérationnelle de la radioprotection et permet de s'assurer du respect des seuils réglementaires imposés à l'exploitant du GIP.

L'organisation générale de la surveillance pour l'année 2011 est toujours basée sur un programme annuel, prenant en compte l'exposition externe et le marquage de l'environnement. Depuis le milieu de l'année 2010, une surveillance radiologique périodique des effluents issus des cuves de décroissance a également été mise en place.

Il a été établi le plan suivant, découpé en quatre volets distincts :

- 1^{er} volet : Mesures de radioactivité (émetteurs gamma) dans des échantillons biologiques,
- 2^{ième} volet : Mesure de dosimétrie ambiante intégrée (rayonnement gamma),
- 3^{ième} volet : Evaluation de l'exposition ambiante ponctuelle par cartographie du rayonnement gamma ambiant,
- 4^{ième} volet : Contrôle des effluents avant rejet dans le réseau collectif d'assainissement.

L'ensemble de ces volets sera traité dans chacune des communications trimestrielles. Chacun de ces rapports trimestriels rapportera à la fois les moyens d'études et les résultats des différentes analyses et mesures *in situ*.

Rappel du contexte :

Dans le cadre du fonctionnement normal de l'installation, des rejets d'effluents radioactifs gazeux sont effectués régulièrement, principalement par le biais d'émissaires constitués par deux cheminées d'une hauteur d'environ 10 m par rapport au sol. L'une concerne les manipulations opérées au sein du bâtiment B139 (chimie chaude) alors que l'autre s'intéresse à la production de radionucléides à l'aide d'un cyclotron. Si les radionucléides fabriqués, que sont l'Oxygène-15, le Carbone-11 et le Fluor-18, ont une période physique inférieure à 2h, d'autres produits d'activation

mais de période physique beaucoup plus longue sont également formés involontairement et peuvent coexister dans les rejets atmosphériques avec les radionucléides classiques de courtes périodes.

Au cours du bilan radioécologique 2003 ainsi que du suivi 2005 à 2010, les analyses faites par spectrométrie gamma sur des échantillons d'herbe n'ont révélé aucun marquage¹ durable de l'environnement (c'est à dire décelable sur une période égale ou supérieure à 8 jours) du site du GIP CYCERON en relation avec le fonctionnement normal des installations.

Toutefois, suite aux différentes cartographies du rayonnement gamma ambiant du site, réalisées au cours de ces six années, des variations ont été mises en évidence – de manière fluctuante - en plusieurs endroits des 3 hectares du GIP CYCERON. Le relâchement de radionucléides dans l'atmosphère avec les effluents gazeux et le rayonnement de sources radioactives situées à l'intérieur des bâtiments (dans la salle de synthèse notamment) sont les deux principales causes à considérer.

A cela s'ajoute la réorganisation interne du bâtiment du GIP CYCERON. Les abords immédiats de la casemate du cyclotron ont en effet été modifiés afin d'alimenter le site des Laboratoires CYCLOPHARMA (radio-pharmaceutiques). Cette évolution devrait avoir pour conséquence une augmentation de la production de radio-isotopes par le cyclotron (la nuit en ce qui concerne la production pour CYCLOPHARMA).

Ainsi, en regard de ces informations et dans le cadre d'une surveillance régulière, il convient de poursuivre l'évaluation de l'exposition ambiante ponctuelle et intégrée autour de l'installation du GIP CYCERON. Etant donné son rôle d'interface privilégiée entre le milieu atmosphérique et le milieu terrestre (sols), le couvert végétal sera utilisé comme bio-indicateur des dépôts de particules radioactives se réalisant à proximité des installations [figure 1].

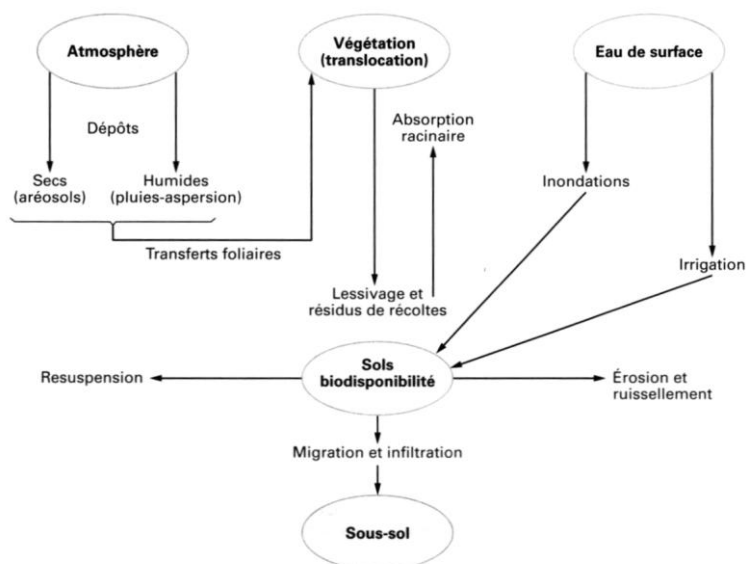


Figure 1 : processus d'échanges des radionucléides dans le milieu terrestre².

¹ à des niveaux significatifs et par des radionucléides émetteurs gamma

² FOURNIER (L.) – Radioécologie, origine des radioéléments. Collection Techniques de l'Ingénieur. Ed. 2002.

Définition des moyens

1. Mesures de radioactivité : émetteurs gamma sur échantillons biologiques

Objectif :

L'approche consiste en la surveillance des radionucléides émetteurs gamma présents dans le compartiment biologique de l'environnement du GIP CYCERON. Ces émetteurs sont caractéristiques de l'environnement et du fonctionnement correct des installations. D'une manière générale, l'intérêt porte sur les radionucléides ayant une période physique suffisamment longue pour induire un marquage durable de l'environnement.

Dans un premier temps, les radionucléides présentés dans les tableaux de résultats sont d'origine naturelle : le Béryllium-7, le Potassium-40 et les produits de filiation appartenant aux chaînes de l'Uranium-238 et du Thorium-232.

Concernant la recherche des radionucléides artificiels, l'approche retenue depuis 2003 était basée sur des données bibliographiques recensant les produits issus de l'activation des bétons des enceintes des cyclotrons.

A partir du troisième trimestre 2006, le retour d'expérience relatif à l'analyse qualitative (par spectrométrie gamma) du système de filtration de la casemate du cyclotron du GIP à parmi d'élargir le panel des produits d'activation à rechercher. La liste a donc été étendue : le Sodium-24, le Scandium-46, le Cobalt-60, le Zinc-65, le Brome-82, l'Antimoine-122, l'Antimoine-124, l'Iode-123, le Baryum-131, le Baryum-133, le Césium-137, le Samarium-153 et l'Europium-152. De la même manière, six isotopes supplémentaires ont été ajoutés à cette liste suite à l'analyse effectuée sur de l'eau enrichie ainsi que sur une pièce plastique contaminée lors de la synthèse des radio-isotopes : le Manganèse-52, le Manganèse-54, le Cobalt-55, le Cobalt-56, le Cobalt-57, le Cobalt-58 et le Nickel-57. Un récapitulatif des éléments recherchés est présenté en page 6.

Localisation et Nature des prélèvements

La distribution géographique des sites de prélèvements tient compte, à la fois des potentialités qu'offre le site et de l'intensité estimée des dépôts (secs et humides) relatifs aux émissions gazeuses de l'installation.

La zone de prélèvements concerne les 3 hectares du campus Jules HOROWITZ où est implanté le GIP CYCERON en raison de l'existence théorique de dépôts plus importants qu'ailleurs.

Les évaluations faites à l'aide du code GASCON³ (et notamment les coefficients de transferts atmosphériques (CTA) obtenus pour différents endroits) suggèrent que c'est à moins de 100m de l'installation que la dilution des gaz rejetés est la moins importante. Tenant compte du cadastre, c'est donc sur les 3 hectares du campus où est implanté le GIP CYCERON que la situation devrait être la plus pénalisante en termes d'exposition.

Note : Jusqu'en avril 2009, l'accès au campus par le public était possible, tout un chacun pouvant circuler librement à proximité des bâtiments constituant l'installation. Depuis cette date, seules les personnes travaillant sur le site ou autorisées, ont la possibilité de se rendre sur ces 3 hectares du campus.

³ Voir dossier d'enquête publique déposé par CYCERON, version du 17 juin 2003.

Pour cette étendue, l'échantillonnage concerne quatre points distincts situés sur une même zone, à savoir, l'environnement immédiat des bâtiments du GIP CYCERON dans la limite de 100 m autour des émissaires de rejets gazeux.

Considérant la rose des vents mais également l'absence de trajectoires résiduelles d'écoulement d'air, 4 endroits distincts ont été retenus et sont distribués à partir de la direction des vents dominants (Sud-Ouest) avec un pas d'environ 90° par rapport à ce même axe.

Tenant compte des contraintes d'urbanisation passées et en prévision de celles à venir, certaines des stations initialement choisies ont dû être déplacées. Aussi, les lieux de prélèvements (notés de A à D) se situent à environ 75±15 m des cheminées.

Le bioindicateur principal retenu pour cette zone (périmètre de 100 mètres autour des installations) est le **couvert végétal (herbe)**.



Dans le but d'apporter des informations complémentaires sur la qualité de l'environnement autour des installations et, en fonction des potentialités offertes par l'environnement du GIP au long de l'année, deux prélèvements supplémentaires d'indicateurs biologiques atmosphériques (champignons, lichens...) sont prévus.

2. La dosimétrie ambiante intégrée

Objectif :

Evaluer l'impact des installations sur le milieu et les personnes en termes d'exposition externe.

Dispositif

La dosimétrie sera assurée par un dispositif comprenant une chambre d'ionisation associée à une électret (système E-perm) enfermée dans un sac en Mylar et un sac en plastique étanche, pour éviter notamment, la contribution du gaz radon. La durée d'intégration est fixée à un trimestre et la dose annuelle est calculée à partir du cumul des doses trimestrielles. La sensibilité du dispositif est de 10 µGy pour une dose moyenne mensuelle estimée à environ 60 µGy dans le Calvados d'après le réseau TELERAY. Une telle sensibilité permet de connaître la contribution liée aux activités du GIP CYCERON avec un bon niveau de confiance.



Localisation

Les sites de pose des dispositifs intégrateurs sont identiques à ceux choisis pour les prélèvements d'herbe, c'est à dire quatre points distincts (A, B, C & D) distribués à partir de la direction des vents dominants (Sud-Ouest) avec un pas d'environ 90° par rapport à ce même axe.

Les résultats obtenus sont comparés à ceux obtenus dans les mêmes conditions opératoires sur le site du laboratoire ACRO (dispositif T, comme « témoin ») situé à plus de 3 kilomètres des installations nucléaires que compte l'agglomération caennaise.

Les dispositifs sont renouvelés chaque trimestre ainsi que dans l'éventualité d'un aléa technique imposant de connaître l'exposition gamma (i.e. suite à un incident lié à des rejets gazeux).

3. Evaluation de l'exposition ambiante ponctuelle

Objectif :

L'approche consiste à vérifier, lors d'une phase d'activité du cyclotron et de production de molécules marquées, le niveau d'exposition dû au rayonnement gamma à l'extérieur des bâtiments. On cherche ainsi à mettre en évidence toute augmentation du rayonnement ambiant, laquelle pourrait avoir comme origine possible :

- une accumulation localisée de radionucléides, déposés ou en suspension dans l'air, à la suite de rejets d'effluents gazeux ;
- l'existence de source(s) d'irradiation en lien avec certaines zones des bâtiments.

Ainsi, l'étendue concernée par les investigations a été définie de manière à intégrer la totalité des 3 hectares du campus Jules HOROWITZ où est implanté le GIP CYCERON car il s'agit de la zone la plus sensible aux dépôts atmosphériques⁴.

Deux parcours sont alors effectués, l'un à l'aplomb des bâtiments, l'autre, aux limites cadastrales du GIP. En fonction des aménagements effectués sur le campus (nouveaux bâtiments), les parcours peuvent être amenés à être modifiés d'un trimestre sur l'autre.

Appareillage :

L'évaluation repose sur la mise en œuvre *in situ* d'un appareil portatif adapté à la détection des rayonnements gamma, en l'occurrence le DG5 de Novelec. Cet appareil est basé sur l'utilisation d'un capteur à scintillation plastique et d'une électronique à microcontrôleur effectuant l'acquisition et l'interprétation des mesures selon le principe de l'information quantifiée (brevet CEA). L'information délivrée est exprimée en chocs/seconde (c/s) et se réfère au nombre de rayonnements gamma détectés dès lors que leur énergie est supérieure à 50 keV.

Son utilisation est complétée par l'emploi d'un second appareillage de marque APVL (sonde de détection d'irradiation ambiante NBR type FHZ 672 E-10 équipée d'un radiamètre FH 40 G-L10). Cet ensemble permet la détection de sources d'irradiation photon artificielle dans des champs d'irradiation naturelle non homogène et l'expression de débits de dose, le tout sur une gamme d'irradiation très large (entre 1 nSv/h et 100 mSv/h) et avec un temps de réponse très bref. Cet équipement permet la mesure de débit de dose pour des photons à partir de 30 keV.

Méthodologie

Du fait de la rapidité d'acquisition du DG5 et de la fiabilité de la mesure, il n'est pas procédé à des mesures statiques en plusieurs endroits selon un maillage prédéfini (cas de figure habituel) mais à un balayage selon des parcours étudiés de manière à fournir des grandeurs représentatives pour la totalité de la zone étudiée.

En parallèle, et sur les mêmes zones, des gammes de débit de dose sont notées à partir de l'ensemble sonde+radiamètre.

⁴ D'après l'évaluation faite à l'aide du code GASCON (voir dossier d'enquête publique déposé par CYCERON, version du 17 juin 2003).

A chaque fois que le seuil fixé par l'un des appareils est dépassé, l'approche consiste d'une part, à évaluer la superficie concernée, d'autre part, à noter la valeur la plus forte enregistrée et enfin, à évaluer la durée de cette exposition.

Afin d'apprécier les écarts en s'affranchissant des fluctuations du bruit de fond, les résultats sont tous exprimés en pourcentage du seuil de discrimination (SD) ou mouvement propre de l'appareil. Ainsi, toute valeur strictement supérieure au SD témoigne d'une situation radiologique jugée atypique et une valeur de +100% du SD représente approximativement une valeur double de celle du bruit de fond.

Le seuil de discrimination correspond, pour chaque nature de sol différente (terre vs bitume), à la plus forte valeur obtenue lors de mesures statiques effectuées en des endroits non influencés par les activités du GIP CYCERON et similaires en terme de composante radiologique. Ainsi, un nouveau seuil de discrimination est déterminé au préalable à chaque parcours : l'un à partir d'une surface bitumée (revêtement représentatif de la majeure partie de l'aplomb des bâtiments), l'autre à partir d'une surface enherbée représentative de la majeure partie du parcours aux limites cadastrales du GIP.

4. Contrôle des niveaux de radioactivité avant rejet dans le réseau d'assainissement

Objectif :

Evaluer les niveaux de radioactivité (émetteurs gamma et tritium) dans les cuves de décroissance du GIP CYCERON avant rejet dans le réseau collectif d'assainissement.

Contrôle des cuves de décroissance

Le GIP CYCERON est équipé de deux cuves de décroissance (n°1 et n°2). Destinées à assurer la décroissance des effluents liquides potentiellement radioactifs avant rejet, ces cuves sont équipées d'un dispositif d'homogénéisation par air comprimé qui est activé avant chaque prélèvement. Un système de pompage manuel permet de récupérer l'échantillon à l'intérieur de chaque cuve.

Suite à la mise en évidence d'une activité en tritium dans la cuve n°1 (40 Bq/L environ), il a été décidé d'effectuer un suivi régulier et périodique de l'activité tritium et gamma dans ces cuves. Au début de l'année 2011, la cuve n°1 est totalement isolée du réseau. Elle n'est sujette à aucun apport d'effluent. Sa surveillance sera trimestrielle. Seule la cuve n°2 est utilisée et vidée périodiquement dans le réseau d'assainissement. Un suivi périodique est réalisé toutes les deux semaines.

**Evolution de la liste des radionucléides gamma recherchés
dans les échantillons biologiques et/ou effluents.**

En regard du type de radionucléides produits et utilisés sur site, ainsi que du retour d'expérience des différentes analyses conduites à la demande du GIP CYCERON, la liste des radionucléides pris en compte lors des analyses est régulièrement mise à jour.

Ce fut le cas une première fois en 2006 lors de l'analyse du filtre de la casemate du cyclotron puis, plus récemment, fin 2009, lors de l'analyse sur de l'eau enrichie ainsi que sur une pièce plastique contaminée lors de la synthèse des radio-isotopes.

Cette liste sera alors prise en compte lors des prochaines analyses par spectrométrie gamma conduites sur les échantillons biologiques comme sur les effluents.

	Radionucléide	Période radioactive	
	Emetteurs Gamma		
Radionucléides artificiels (produits d'activation)	24 Na : Sodium-24	14,96 h	}
	46 Sc : Scandium-46	83,8 j	
	60 Co : Cobalt-60	5,3 ans	
	65 Zn : Zinc-65	244,15 j	
	82 Br : Brome-82	1,47 j	
	122 Sb : Antimoine-122	2,7 j	
	124 Sb : Antimoine-124	60,2 j	
	123 I : Iode-123	13,21 h	
	137 Cs : Césium-137	30,0 ans	
	131 Ba : Baryum-131	11,5 j	
	133 Ba : Baryum-133	10,57 ans	
	153 Sm : Samarium-153	1,9 j	
	152 Eu : Europium-152	13,4 ans	
	52 Mn : Manganèse-52	5,59 j	
	54 Mn : Manganèse-54	312,13 j	
	55 Co : Cobalt-55	17,5 h	
56 Co : Cobalt-56	77,3 j		
57 Co : Cobalt-57	271,79 j		
58 Co : Cobalt-58	70,86 j		
57 Ni : Nickel-57	36 h		
Radionucléides naturels	40 K : Potassium-40	1,3 10 ⁹ ans	}
	7 Be : Béryllium-7	53,2 jours	
	Emetteur Bêta		
	3 H : Tritium	12,3 ans	

Identifiés lors de l'analyse du filtre de la casemate du cyclotron.

Identifiés lors de l'analyse de l'eau enrichie et de la QMA de purification des ions 18F.

Résultats

Annexes

ANNEXE 1 : Matériel et méthodes

Les méthodes citées ci-après sont employées dans le respect des recommandations de la série de normes AFNOR NF M60-780 relatives aux techniques d'échantillonnage d'indicateurs de l'environnement ainsi qu'à leur préparation et à leur conservation.

1. Méthodologie employée pour le prélèvement des échantillons biologiques

Pour l'ensemble des prélèvements effectués, une même ligne méthodologique a été observée :

- Le renseignement, pour chaque échantillon, d'une fiche comprenant entre autre, la date, l'heure, la position GPS, les conditions météorologiques et les caractéristiques physiques de l'échantillon.
- Le conditionnement immédiat de l'échantillon sous sachet en polyéthylène individuel référencé.
- La conservation des échantillons au laboratoire à 4°C en attente de traitement et de conditionnement (le temps d'attente n'excédant pas 48h).

Le couvert végétal (herbe) : un prélèvement manuel est effectué pour chacun des quatre points et la surface prise en référence s'étend sur 1 m² (quadrat). A l'intérieur de cette zone, l'ensemble du couvert végétal est prélevé. La fraction prélevée de cet indicateur concerne uniquement la partie aérienne des plants, le mat étant écarté. Aucune différenciation d'espèces n'est effectuée.

Les autres indicateurs atmosphériques (lichens, champignons) : le prélèvement est effectué manuellement et de manière à obtenir un échantillon représentatif de la zone de répartition de l'espèce.

2. Méthodologie employée pour le traitement des échantillons biologiques

Le couvert végétal (herbe) : aucun traitement n'est appliqué, les brins de chaque station sont coupés afin qu'ils n'excèdent pas une longueur de 5 cm. Une aliquote de 62,5 g représentative de chaque échantillon est alors retenue, afin de réaliser un échantillon moyen des quatre sites, d'une masse de 250 g, conditionné en géométrie de type SG 500, d'un volume utile de 500 ml, pour comptage en spectrométrie gamma. A l'issue de l'analyse, l'échantillon est desséché à 60°C afin de déterminer le rapport Poids sec / Poids frais.

Les autres indicateurs (lichens, champignons...) : en fonction de la quantité récoltée, il est soit procédé à un comptage à frais des échantillons, soit à leur séchage à 60°C en étuve ventilée. Dans ce cas, le résidu sec est ensuite réduit en poudre et homogénéisé puis conditionné en géométrie adaptée au comptage par spectrométrie gamma.

3. Matériel employé pour les mesures in situ

Détecteur gamma portatif DG5 de NOVELEC

Il s'agit d'un détecteur à scintillateur organique associé à un photomultiplicateur sensible au rayonnement gamma ambiant. La réponse donnée en coups par seconde (c/s) traduit le nombre de rayonnement détecté sans tenir compte de leur énergie dès lors que celle-ci est supérieure au seuil de détection (50 keV).

Sonde NBR FHZ 672 E10 + Radiamètre FH40GL-10 d'APVL

Il s'agit d'une sonde à scintillation (*scintillateur organique et scintillateur NaI*) avec photomultiplicateur intégré, destinée à la mesure de débits d'équivalents de dose gamma et X. La gamme de mesure de débit de dose s'étend de 0,001 μ Sv/h à 100mSv/h ; la gamme de mesure de dose, de 100 nSv à 1 Sv et la gamme d'énergie, de 30 keV à 1,5 MeV.

4. Méthodologie employée pour le prélèvement des échantillons d'effluents liquides

Le prélèvement des échantillons d'effluents liquides est assuré par le laboratoire départemental d'analyse du Calvados, lequel achemine à l'ACRO les échantillons directement dès la fin du prélèvement. Celui-ci est effectué sur une période de 8 heures au moyen d'un dispositif automatique de pompage, permettant de récolter un échantillon moyen sur l'ensemble de la journée.

5. Méthodologie employée pour le prélèvement des échantillons de cuves de décroissance

Un dispositif d'homogénéisation par air comprimé est activé avant le prélèvement sur chacune des cuves de décroissance. Un système de pompage manuel permet ensuite de récupérer 500ml d'échantillon à l'intérieur de chaque cuve.

6. Méthodologie employée pour le traitement des échantillons d'effluents liquides et des cuves de décroissance

Après homogénéisation énergétique, l'échantillon initial est placé au repos pendant douze heures, temps nécessaire à la sédimentation à gravité unitaire.

Une aliquote de 500 ml d'eau résiduaire ainsi décantée, est ensuite prélevée par pipetage puis conditionnée dans une géométrie de comptage de 500 cm³ (type SG500) adaptée à la mesure par spectrométrie gamma.

7. Analyse par spectrométrie gamma

La mesure des émetteurs gamma est effectuée avec une chaîne de spectrométrie gamma Ortec de type N équipée d'un château de plomb d'épaisseur 10 cm. La chaîne d'analyse comprend un analyseur « DSPEC », système d'acquisition numérique (Ortec), associé à un détecteur au germanium hyperpur de type N (Ortec), d'efficacité 32%, monté dans un cryostat vertical. La plage d'énergie prise en référence s'étend de 20 à 2000 keV pour l'analyse qualitative et de 60 à 2000 keV pour l'analyse quantitative, hormis dans le cas de l'iode-129. L'atténuation due à la densité de l'échantillon est prise en compte pour des énergies supérieures à 60 keV et les facteurs correctifs sont déterminés par calcul par la méthode semi-empirique basée sur l'assimilation du détecteur à un point. Néanmoins, pour des énergies inférieures à 100 keV, les phénomènes d'auto-atténuation en rapport avec la composition intrinsèque de l'échantillon sont généralement prépondérants. Aussi, les résultats pour les radionucléides émetteurs gamma de faible énergie (<100 keV) sont à considérer avec prudence (234Th). L'efficacité de référence du détecteur pour la plage d'énergie prise en référence est déterminée à l'aide d'une source liquide multi-radionucléide et d'une source liquide de ¹³³Ba en tenant compte des phénomènes de sommation de coïncidences qui existent avec ce radionucléide. Les sources employées sont des solutions étalons certifiées. Les flacons utilisés pour la spectrométrie gamma sont en polyéthylène translucide de type SG500 ou SG50 jaugés d'un volume utile de 500 ml ou 50 ml.

MESURE DES EMETTEURS GAMMA

Les mesures sont réalisées avec des géométries identiques à celles des sources de référence (SG500 ou SG50) et concernent les radionucléides émetteurs gamma présentant une ou plusieurs raies d'émission sur la plage d'énergie prise en référence. Parmi l'ensemble des radionucléides évoqués précédemment, seuls les plus caractéristiques sont présentés dans les tableaux de résultats (voir tableau 1) en l'absence de demande spécifique par le client. Dans tous les cas, le tableau fait état, au minimum, de tous les radionucléides artificiels détectés. Seules les activités supérieures à la limite de détection de la chaîne d'analyse sont exprimées. Dans le cas contraire et pour les seuls radionucléides mentionnés, la limite de détection –Ld- (ou plus petite activité décelable) précédée du signe " < " est rapportée. Lorsqu'il n'est pas possible de déduire une limite de détection de manière satisfaisante, les données chiffrées sont remplacées par " - ". Lorsqu'un radioélément émetteur gamma a été détecté mais ne peut être quantifié correctement, la mention « Identifié Non Quantifié » (INQ) est rapportée. Lorsqu'un radionucléide mentionné n'a pas été recherché, la mention « non recherché » (nr) est rapportée. L'activité de chaque radioélément présent dans l'échantillon est exprimée en becquerel par kilogramme sec (Bq / kg sec) ou becquerel par litre (Bq/l), suivi de son incertitude absolue calculée pour un intervalle de confiance de 95%. Toute activité exprimée, y compris la limite de détection, est rapportée à la date de référence indiquée dans les tableaux de résultats. La siccité des échantillons solides est également indiquée (Psec/Pfrais) ; la valeur donnée est à considérer avec prudence car elle dépend des méthodes employées pour le traitement et la conservation de l'échantillon.

LE CAS DU ²²⁶RA

Le radium 226, produit de filiation de l'uranium 238, est généralement mêlé à l'uranium dans les matières naturelles. Le calcul de l'activité du ²²⁶Ra seul, par spectrométrie gamma, est alors difficile. La mesure se fait sur une seule raie, de taux d'émission faible, qui interfère avec une raie de l'uranium 235 de taux d'émission fort. Une seule valeur de ²²⁶Ra est rapportée. Il s'agit de la valeur dite « maximale » (²²⁶Ra max) dans l'hypothèse où le radium est seul. Dans l'hypothèse où le radium est associé à de l'uranium naturel en proportion isotopique normale (238U/235U=21) et sous réserve d'équilibre séculaire pour la famille de l'uranium-238, la teneur en radium-226 peut être déduite en multipliant la valeur ²²⁶Ra (max) par un facteur de 0,556. Ce facteur est calculé à partir des caractéristiques nucléaires données pour les isotopes de l'uranium par P. Galle dans Toxiques nucléaires (1982) et de celles communiquées par le Bureau National de Métrologie dans la Bibliothèque NUCLEIDE-LARA (version 2000).

Tableau 1 : radionucléides émetteurs gamma caractéristiques rapportés dans les tableaux de résultats et leur(s) énergie(s) utilisée(s) pour les calculs de la limite de détection et de l'activité massique ou volumique.

Radionucléide	Energie (keV) pour le calcul de la Ld	Energie(s) (keV) pour le calcul de l'activité	Observation(s)
Radionucléides artificiels			
²⁴ Na	1368,6	1368,6	Produit d'activation
⁴⁶ Sc	889,2	889,2 – 1120,5	Produit d'activation
⁵² Mn	935,52	744,2- 935,5	Produit d'activation
⁵⁴ Mn	834,8	834,8	Produit d'activation
⁵⁵ Co	931,5	931,5	Produit d'activation
⁵⁶ Co	846,76	846,8-1238,3	Produit d'activation
⁵⁷ Co	122,06	122,06	Produit d'activation
⁵⁷ Ni	1377,6	127,3-1377,6	Produit d'activation
⁵⁸ Co	810,8	810,8	Produit d'activation
⁶⁰ Co	1332,5	1173,2 – 1332,5	Produit d'activation
⁶⁵ Zn	1115,5	1115,5	Produit d'activation
⁸² Br	776,5	776,5 – 554,3	Produit d'activation
¹²² Sb	564,1	564,1 – 692,8	Produit d'activation
¹²⁴ Sb	602,7	602,7 – 1690,9	Produit d'activation
¹²³ I	158,9	158,9	Produit d'activation
¹³⁷ Cs	661,7	661,7	Produit de fission
¹³¹ Ba	496,3	496,3 – 123,8	Produit d'activation
¹³³ Ba	356	356 – 81,0	Produit d'activation
¹⁵³ Sm	103,1	103,1	Produit d'activation
¹⁵² Eu	121,8	344,3 – 778,9 – 1408	Produit d'activation
Radionucléides naturels			
²³⁴ Th	-	63,3	Atténuation (due à la composition) non retenue
^{234m} Pa	1001	1001	
²²⁶ Ra	-	186,2	Voir « le cas du 226Ra »
²¹⁴ Pb	-	351,9 – 295,2 – 242	
²²⁸ Ac	-	911,2 – 969 – 338,3	
²¹² Pb	-	238,6	
⁴⁰ K	-	1460,8	
⁷ Be	477,6	477,6	

8. Analyse par scintillation liquide

Le dosage du tritium s'effectue avec une chaîne de spectrométrie bêta à scintillation liquide, modèle TRI-CARB 2250CA de Packard. Le dispositif est réfrigéré en permanence à l'aide d'un groupe froid. La salle des analyses est climatisée.

Les géométries de comptage employées sont des fioles en polyéthylène bas bruit de fond anti-statique (référence 6000477) distribuées par la société Perkin Elmer.

L'étalonnage est effectué à l'aide d'une solution HTO certifiée et tient compte de l'affaiblissement lumineux (Quenching). Dans tous les cas, cet ensemble est déterminé pour une matrice analogue à celle des échantillons à mesurer. La fenêtre de comptage utilisée pour le mesurage de l'activité volumique du tritium s'étend de 0 à 6,5 keV. Le mouvement propre (ou bruit de fond) est déterminé à l'aide de l'eau de source minérale naturelle « des Abatilles ».

La grandeur déterminée est l'activité en becquerel (Bq) par litre (L) ou activité volumique. Elle est suivie de son incertitude absolue calculée pour un intervalle de confiance de 95%. Seules les activités volumiques supérieures à la limite de détection de la chaîne d'analyse sont exprimées. Lorsqu'un (ou plusieurs) radioélément(s) émetteur(s) bêta a (ont) été détecté(s) mais ne peut être quantifié correctement, la mention « Identifié Non Quantifié » (INQ) est rapportée.

Toute activité exprimée, y compris la limite de détection, est rapportée à la date de fin de prélèvement.

ANNEXE 2 : Intercomparaisons et qualifications techniques

1. Références normatives

NF M60 série 780 Énergie nucléaire – Mesure de la radioactivité dans l’environnement – Bioindicateurs ; Parties 0 à 5 ; mars 2001.

Bibliographie :

Spectrométrie gamma appliquée aux échantillons de l’environnement. Editions TEC&DOC. 238 pages. Octobre 2002.

Les radioisotopes en recherche biologique - Détection et radioprotection. G. SIMONNET. Editions Masson, 1994.

NUCLEIDE-LARA (version de juillet 2000) : bibliothèque de données nucléaires utilisée pour la spectrométrie gamma communiquée par le Bureau National de Métrologie.

2. Agréments / Intercomparaisons

Le laboratoire de l’ACRO participe depuis 1997 à des intercomparaisons d’envergure nationale, organisées par l’Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire (IRSN). Avec la mise en place du réseau national de mesure, la durée d’un cycle d’exercice inter laboratoires pour un couple [Matrice-Radionucléide] est de quatre ans. Actuellement, le laboratoire de l’ACRO offre la possibilité de mesurer le radon dans l’air, le tritium (HTO) dans les eaux et les radionucléides émetteurs gamma, quel que soit la matrice. D’autres mesures sont en cours de développement.

Les méthodes d’analyses sont conformes aux normes existantes ainsi qu’aux exigences organisationnelles et techniques fixées par la norme ISO/CEI 17025.

Ci-dessous, la liste des intercomparaisons récentes auxquelles à participé le laboratoire de l’ACRO.

Demandeur	ASN	Arrêtés du 17 octobre 2003 et du 27 juin 2005 portant organisation d’un réseau national de mesures de la radioactivité de l’environnement	
Organisateur	IRSN	Service de Traitement des échantillons et de métrologie pour l’environnement	
Matrice de l’échantillon	Code exercice interlaboratoires	Radionucléides mesurés avec succès	Année
Eau	93SH300	3H (tritium)	2008
Algue marine	74AL300	40K, 60Co, 129I, 125Sb, 137Cs	2004
Eau	76EE300	60Co, 134Cs, 137Cs, 241Am	2005
Sol naturel	82SL300	40K, 137Cs	2006
Biologique (feuilles)	91V300	60Co, 134Cs, 137Cs, 109Cd et 40K	2006
Sédiments lacustre	96SL300	Isotopes uranium et thorium, 226Ra, 228Ra, 210Pb, 212Pb	2009
Eau	95EE300	22Na, 65Zn, 106Rh, 134Cs, 137Cs, 241Am	2009
Sol	105SL300	241Am, 134Cs, 137Cs, 60Co, 57Co	2010

A ce jour, le laboratoire dispose d'**agrément**s pour la mesure de la radioactivité dans l'environnement et la mesure du radon :

Décision n°DEP-DEU-0704-2009 du 8/12/09 De l'Autorité de Sûreté Nucléaire	<ul style="list-style-type: none">- Mesure des radioéléments émetteurs gamma de forte, moyenne énergie (>100keV) et de faible énergie (<100keV) dans les matrices de type biologique (validité juin 2014)- Mesure du tritium dans les eaux (validité juin 2014)
Décision n°CODEP-DIS-024-087 du 5 mai 2010 de l'Autorité de Sûreté Nucléaire	<ul style="list-style-type: none">- Mesure de l'activité volumique du radon dans des bâtiments, y compris des bâtiments souterrains et établissements thermaux (validité septembre 2011)
Décision n°CODEP-DEU-2010-031543 du 15/06/10 de l'Autorité de Sûreté Nucléaire	<ul style="list-style-type: none">- Mesure des radioéléments émetteurs gamma de forte, moyenne énergie (>100 keV) et de faible énergie (<100KeV) dans les eaux (validité juin 2015).- Isotopes de U dans les matrices de type "sol".- Isotopes de Th dans les matrices de type "sol".- 226Ra et descendants dans les matrices de type "sol".- 228Ra et descendants dans les matrices de type "sol".- U pondéral dans les matrices de type "sol".