

ACRO

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

www.acro.eu.org

Rapport d'analyse

RAP140319(01)-VAU-v1

Hérouville-Saint-Clair, le 19/03/2014

DEMANDE

ASN Division Paris
10, rue Crillon
75194 Paris cedex 4

Contact **Monsieur Chrupek**
Thierry.chrupek@asn.fr

OBJET Fournir des éléments d'information permettant de statuer sur la nature du fragment prélevé lors de l'intervention du 25/02/14 au Fort de Vaujours.

PRELEVEMENT(S) SOUMIS A L'ANALYSE

ECHANTILLON(S)	N°	Nature	Lieux – observation(s)	Date	Nos références
	1	Fragment métallique	Prélevé dans le couloir d'accès à la casemate TC1 – Fort Vaujours.	25/02/2014	140225-VAU-01

OBSERVATION(S) Ce rapport d'analyse complète le rapport RAP140225(01)-VAU-V2 présentant le relevé des mesures radiologiques effectuées par l'ACRO dans le cadre de l'exercice de mesures au Fort de Vaujours en date du 25 février 2014.

ANALYSE

INTITULE **Détermination par spectrométrie gamma bas seuil de la composition radio-isotopique du fragment radioactif prélevé au Fort de Vaujours le 25/02/14**

TRAITEMENT Aucun

EQUIPEMENT(S) Spectrométrie gamma Ortec de type N comprenant : un blindage en plomb d'épaisseur 10 cm, un système d'acquisition numérique (DSPEC), un détecteur au germanium hyperpur coaxial de type N (Ortec) et d'efficacité 32% monté dans un cryostat vertical.

LB 124 SCINT de Berthold

Détecteur AnS(Ag) scintillateur pour la mesure alpha et bêta-gamma. Réponse en CPS (choc par seconde). Certificat d'étalonnage non référencé en date du 25/10/2012.

OBSERVATION(S)

VISA

Mylène JOSSET et Gilbert PIGREE

1. Identification de l'échantillon

Date de réception : 06/03/14 (expéditeur IRSN)

N° Id	Nature	Origine	Référence ACRO	Analyses réalisées
1	Fragment métallique masse : 0,09 g	Fort-de-Vaujours Couloir d'accès casemate dénommée TC1	140225-VAU-01	Spectrométrie gamma HPGe

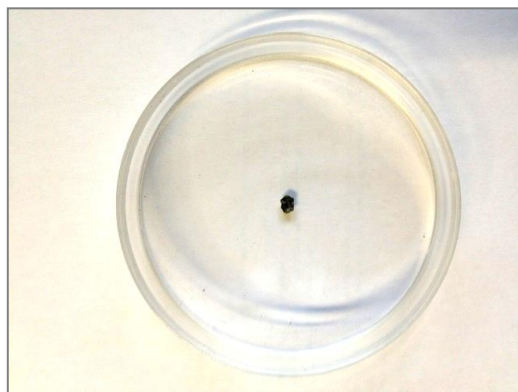
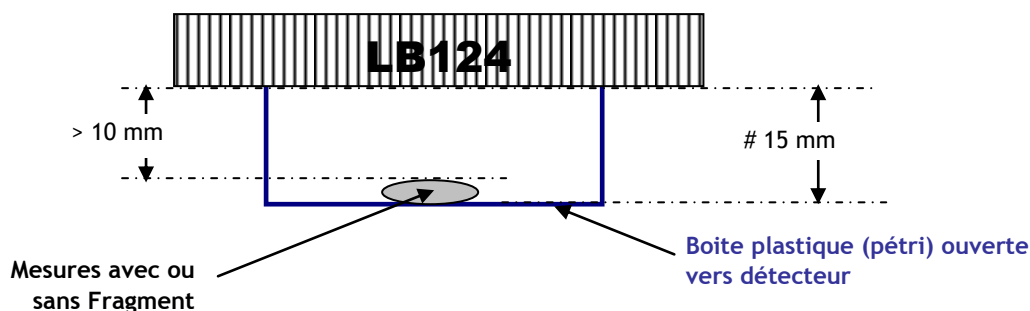


photo 1: Fragment d'uranium conditionné dans une boîte de pétri.

2. Mesures des taux de comptage alpha et bêta global

Réalisées le 06 mars à 14h à l'aide du détecteur LB124 en mode intégration 120s. Pour chaque configuration, deux mesures sont réalisées.

2.1 Conditions de mesure :



2.2 Résultats :

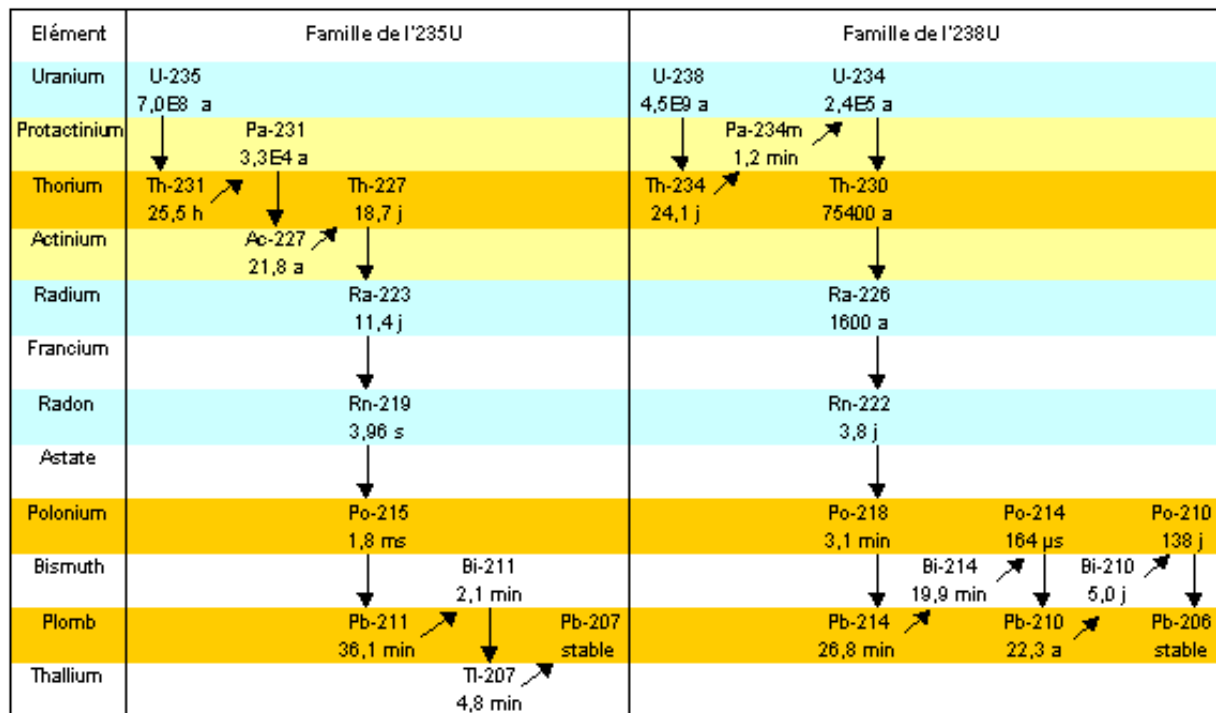
LB124 sur 120s	Mesures avec fragment CPS	Mesures sans fragment CPS
Voie alpha	0,11 (± 28%) 0,23 (± 19%)	0,09 (± 30%) 0,08 (± 33%)
Voie bêta	48,0 (± 1,3%) 47,2 (± 1,3%)	7,2 (± 3,4%) 7,4 (± 3,4%)

Note : Incertitudes données à 1 sigma

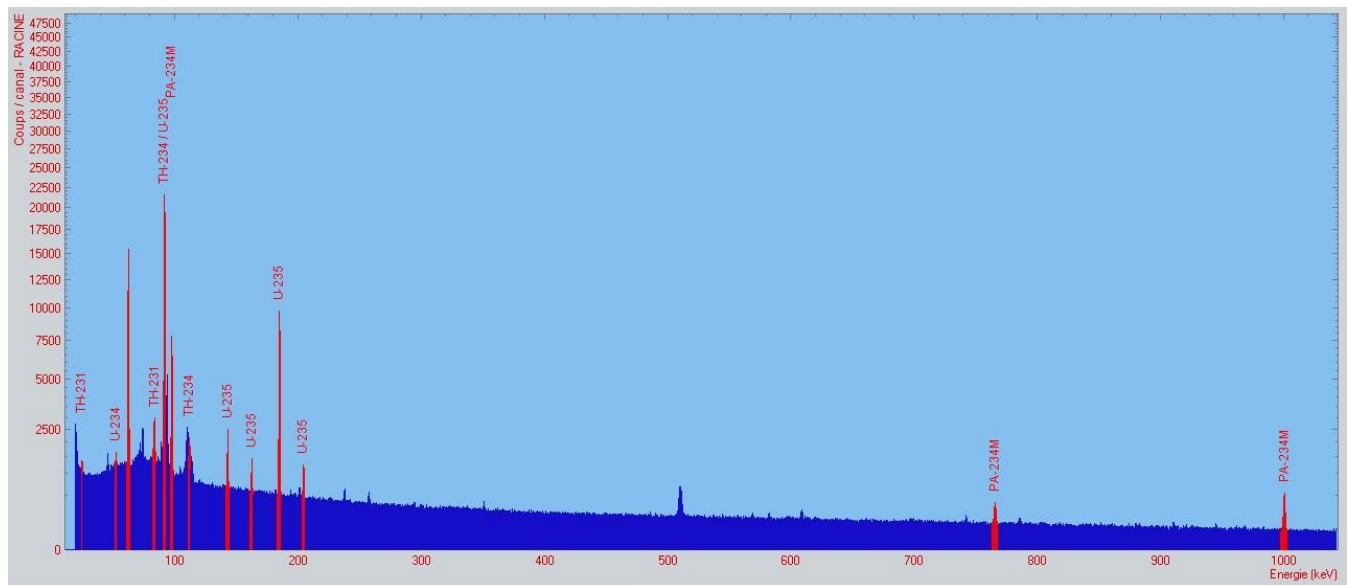
3. Mesures par spectrométrie gamma (GeHP).

3.1 Identification des radio-isotopes présents dans le fragment (analyse qualitative)

IDENTIFICATION DES ECHANTILLONS			
n° d'enregistrement interne	140225-VAU-01		
Nature de l'échantillon	Fragment métallique		
Origine	Fort de Vaujours		
ANALYSE QUALITATIVE PAR SPECTROMETRIE GAMMA			
n° de manipulation	7735		
Temps de comptage actif (s)	232 762 s		
Conditions de mesures : distance échantillon / détecteur	5 cm		
Radionucléides ARTIFICIELS			
Aucun radionucléide artificiel détecté			-
Radionucléides NATURELS			
Th-234	Thorium-234	Ch. 238U	Identifié
Pa-234m	Protactinium-234m	Ch. 238U	Identifié
U-234	Uranium-234	Ch. 238U	identifié
U-235	Uranium-235	Ch. 235U	Identifié
Th-231	Thorium-231	Ch. 235U	Identifié



Spectre



Observations :

- On note l'absence d'actinium-228, de plomb-212 et de radium-224, produits de filiation du Th-232.
 - Dans ces conditions, on retient que la chaîne du Th-232 est absente.
- On note la présence des raies caractéristiques du thorium 234 (Th-234) et du protactinium 244m (Pa234m), premiers descendants de l'uranium-238 (U-238).
 - Compte tenu de la genèse de l'échantillon soumis à l'essai, la présence de Th-234 et de Pa-234m sous-tend l'existence d'U-238 avec lequel ils sont à l'équilibre.
- On note la présence de raies caractéristiques de l'uranium-235 (U-235), notamment aux énergies suivantes : 143, 163 et 205 keV.
 - La présence d'uranium-235 sous-tend l'existence de thorium-231 avec lequel il est à l'équilibre compte tenu de la très courte période physique du Th-231.
- On note l'absence des raies caractéristiques des produits de filiation de l'actinium-227 (Ac-227), donc l'existence d'une rupture dans la chaîne de l'U-235.
 - En l'absence d'actinium-227 et descendants (et donc d'inférence notamment avec le Ra-223), la raie à 84,2 keV est attribuée à seule présence de thorium-231, descendant direct de l'U-235.
- On note l'absence des raies caractéristiques des produits de filiation du radium-226 (Ra-226) qui compose la chaîne de l'uranium 238 à l'état d'équilibre séculaire, donc l'existence d'une cassure. Ainsi, le plomb 214, le bismuth-214 et le plomb-210 ne sont pas observés.
 - En l'absence de plomb-214 (et donc d'inférence), la présence d'uranium-234 (chaîne de l'U-238) est confirmée par l'observation de sa raie la plus probable (0,12%) émise à 53,2 keV.
 - Compte tenu que l'échantillon s'apparente à un fragment métallique, on rejette l'hypothèse d'une « cassure » induite par l'émanation de radon-222 (Rn-222). L'absence des produits de filiation du Ra-226 implique l'absence de ce dernier.
 - Dans ces conditions, la raie à 186 keV est attribuée à seule présence d'uranium-235, (U-235) ce qui est conforté par la position exacte du centroïde du pic (185,75 keV).

Ces constats conduisent à considérer qu'il s'agit d'uranium manufacturé comportant :
 U-235 à l'équilibre avec Th-231
 U-238 à l'équilibre avec Th-234 et Pa-234m
 U-234

3.2 Estimation du rapport isotopique U-238/U-235

Première approche

Le rapport isotopique U-238/U-235 est déduit du rapport des activités. Pour ce faire, **selon une approche simplifiée**, on calcule le rapport des taux de comptages pour la raie du Th-234 à 92,37 keV (chaîne de l'Uranium-238) sur celle du Th-231 à 84,21 keV (chaîne de l'Uranium-235) en tenant compte des rapports d'embranchement et des interférences (déconvolution).

Compte tenu que les énergies prises en considération sont peu différentes (84,21 keV *versus* 92,37 keV), on postule que l'efficacité de détection et l'auto-absorption dans la matrice sont les mêmes aux énergies considérées.

Mesure du fragment métallique collecté sur le site de Vaujourns.

Configuration de comptage : 5 cm / détecteur GeHP (manip 7735)

Symbole	Chaîne	Energie (keV)	Taux absolu (en%)			Nat	Surface nette déconvolution	
							coups totaux	
231Th	235U	84,21	6,7	±	0,4	γ	5199	5199
231Th	235U	92,29	0,41	±	0,05	Kα2		318
234Th	238U	92,37	2,18	±	0,26	γ	86232	41008
234Th	238U	92,79	2,15	±	0,26	γ		40444
235U	235U	93,35	5,75	±	0,12	Kα1		4462

$$\frac{\text{U238}_{(234\text{Th à } 92,37 \text{ keV})}}{\text{U235}_{(231\text{Th à } 84,21 \text{ keV})}} = \frac{41008 / (2,18/100)}{5199 / (6,7/100)} = 24,2$$

La valeur calculée (24,2) est très proche de la valeur attendue dans le cas d'un rapport isotopique normal entre U-238 et U-235.

Pour mémoire : lorsque les proportions d'U-238 et d'U-235 sont respectivement de 99,3% et 0,7% en masse (comme c'est le cas dans la nature), le rapport des activités est d'environ 22.

Deuxième approche

Dans une seconde approche, on cherche à comparer **dans une même configuration** le fragment collecté à Vaujourns à de la Pechblende connue pour présenter un rapport isotopique U238/U235 « normal » et à de l'acétate d'uranyl (fabrication Prolabo 1989) connu pour être de l'uranium appauvri.

Pour ce faire, on calcul les rapports des taux de comptage mentionnés dans le tableau suivant, en tenant compte de l'interférence avec le radium-226 dans le cas de la Pechblende.

Rapport des taux de comptage	Fragment Vaujourns	Pechblende	Acétate d'uranyl
N° de manip	7735	7741	7742
raies 93 keV (Th-234)/186 keV (U-235)	2,5	2,3	8,4
1001 keV (Pa-234m) / 186 keV (U-235)	0,092	0,084	0,30

On constate que les résultats obtenus pour le fragment d'uranium collecté sur le site de Vaujourns sont équivalents à ceux obtenus pour l'échantillon de pechblende (rapport isotopique normal) alors que pour l'acétate d'uranyl, manufacturé à partir d'uranium appauvri, il existe un facteur 4.

CONCLUSION

Ces constats conduisent à valider l'hypothèse que l'uranium manufacturé présent dans le fragment collecté à Vaujourns n'est pas de l'uranium appauvri mais « naturel ».

3.3 Estimation de l'activité totale du fragment

L'estimation de l'activité du fragment est réalisée par comparaison avec la mesure d'une source d'activité connue réalisée dans une configuration identique.

Pour cela, une quantité de 0,14g d'acétate d'uranyl (Prolabo 1989), d'activité connue (activité U-238=6,9 MBq/kg) est analysée dans la même configuration de comptage que celle retenue pour le fragment (5 cm du détecteur GeHP).

L'évaluation de l'activité est ensuite faite à partir de la raie à 1001 KeV du Pa234m qui s'avère être la raie la moins sujette aux effets d'auto-atténuations liés aux caractéristiques des échantillons.

Par cette méthode, l'activité en U238 du fragment est ainsi estimée à 400 Bq, et l'activité totale en uranium et produits de filiation de ce même fragment serait d'environ 1635 Bq.

ANNEXE - INFORMATIONS CONCERNANT LE LABORATOIRE

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, quelle 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.

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

<p>Décision n°DEP-DEU-0704-2009 du 8 décembre 2009 de l'Autorité de Sûreté Nucléaire</p>	<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)
<p>Décision n°CODEP-DIS n°2011-038822 du 11 juillet 2011 de l'Autorité de Sûreté Nucléaire</p>	<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 2016)
<p>Décision n°CODEP-DEU-2010-031543 du 15 juin 2010 de l'Autorité de Sûreté Nucléaire</p>	<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.
<p>Décision CODEP-DEU-2011-031763 du 15 juin 2011 de l'Autorité de Sûreté Nucléaire</p>	<ul style="list-style-type: none"> - Mesure des émetteurs gamma de moyenne énergie (>100 keV) et de faible énergie (<100 keV) dans les sols.

Le laboratoire de l'ACRO participe depuis 1997 à des inter-comparaisons d'envergure nationale, organisées par l'Institut de Radioprotection et de Sûreté 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.