



# Mesure de la radioactivité dans l'environnement et besoins métrologiques

P. Chardon, G. Gontier, P.Y. Hémidy, G. Rousseau

# Les mesures de radioactivité dans l'environnement

## Deux finalités complémentaires mais distinctes

- Mesures à but réglementaire
  - Rôle de surveillance et d'alerte : démontrer que les conditions d'exploitation satisfont aux exigences réglementaires
  - Techniques et seuils définis en fonction de l'étude d'impact sanitaire et environnemental
  - Fréquence rapprochée et disponibilité rapide des résultats afin d'identifier toute élévation singulière
- Mesures à but d'expertise et d'amélioration des connaissances
  - Connaître le contexte radioécologique global de l'installation
  - Comprendre sur le long terme le devenir des radionucléides dans la biosphère
  - Techniques et seuils déterminés de manière à établir les signatures radiologiques des sources en présence

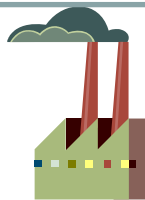
⇒ **Démarche choisie par EDF dès le démarrage du parc (point « zéro ») et reconduite annuellement depuis 1992 (avec un approfondissement décennal) sur l'ensemble de ses CNPE**

# La radioactivité dans l'environnement d'un CNPE



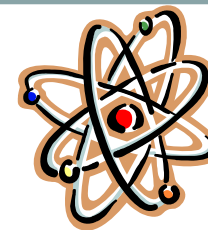
Essais aériens et accidents

$^3\text{H}$ ,  $^{14}\text{C}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,...



Recherche, Industrie, Médecine

$^{131}\text{I}$ ,  $^3\text{H}$ ,  $^{14}\text{C}$ ,  $^{99\text{m}}\text{Tc}$ ...



Autres industries du nucléaire

$^3\text{H}$ ,  $^{14}\text{C}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{131}\text{I}$ ,  $^{58}\text{Co}$  ...



Naturelle d'origine tellurique

$^{40}\text{K}$ ,  
Chaîne  
de  $^{238}\text{U}$ ,  
 $^{235}\text{U}$ ,  
 $^{232}\text{Th}$



Naturelle « renforcée »



Naturelle d'origine cosmogénique

$^7\text{Be}$ ,  
 $^{14}\text{C}$ ,  
 $^3\text{H}$ ,  
...



CNPE

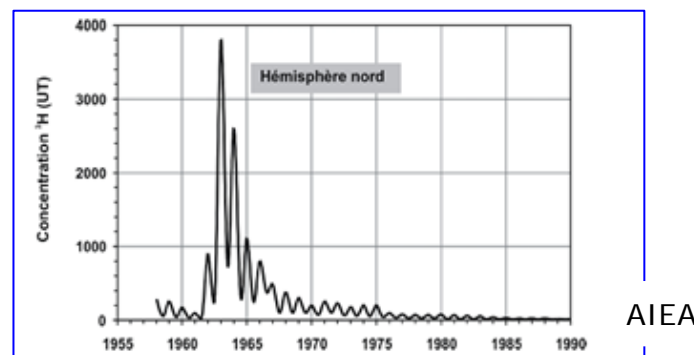
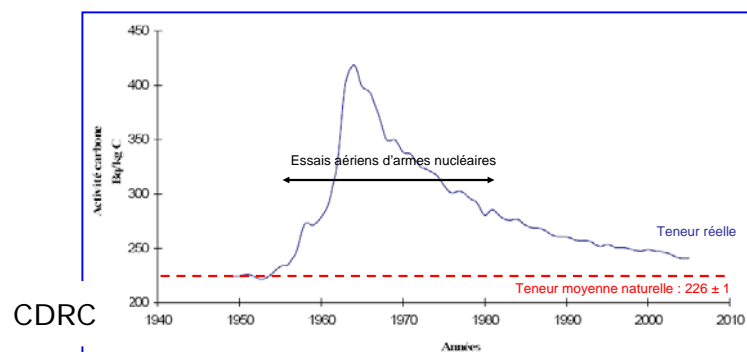
$^3\text{H}$ ,  $^{14}\text{C}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{131}\text{I}$ ,  $^{58}\text{Co}$  ...

=> Sources multiples

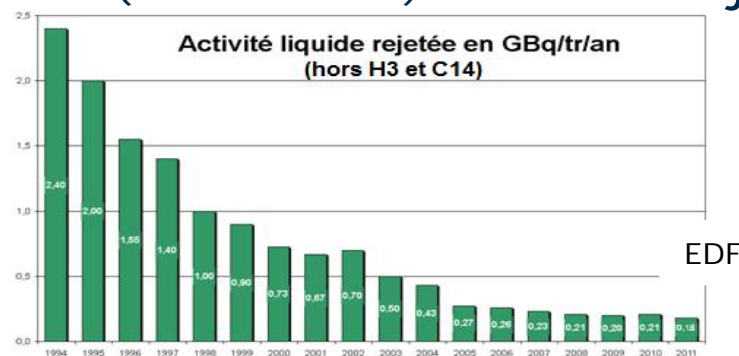
=> Radionucléides communs

# La radioactivité dans l'environnement d'un CNPE

- Diminution de la contribution de l'héritage du passé
  - Arrêt des essais aériens d'armes nucléaires
  - Décroissance radioactive et redistribution des radionucléides



- Réduction des PF/PA (hors H3/C14) dans les rejets liquides des CNPE



⇒ Diminution du « signal » sur de nombreux paramètres

# Problématique

« Comment extraire et caractériser le signal propre au CNPE »

Dans un contexte de sources multiples, de radionucléides communs avec des caractéristiques différentes (chimie, mobilité, période, ...), de diminution globale du signal

## La réponse passe par :

- La stratégie analytique et d'échantillonnage
- Les prélèvements
- Le traitement des échantillons
- La métrologie
- L'interprétation des résultats

= > Nécessité d'associer des compétences pluralistes (mesure, biologie,...)

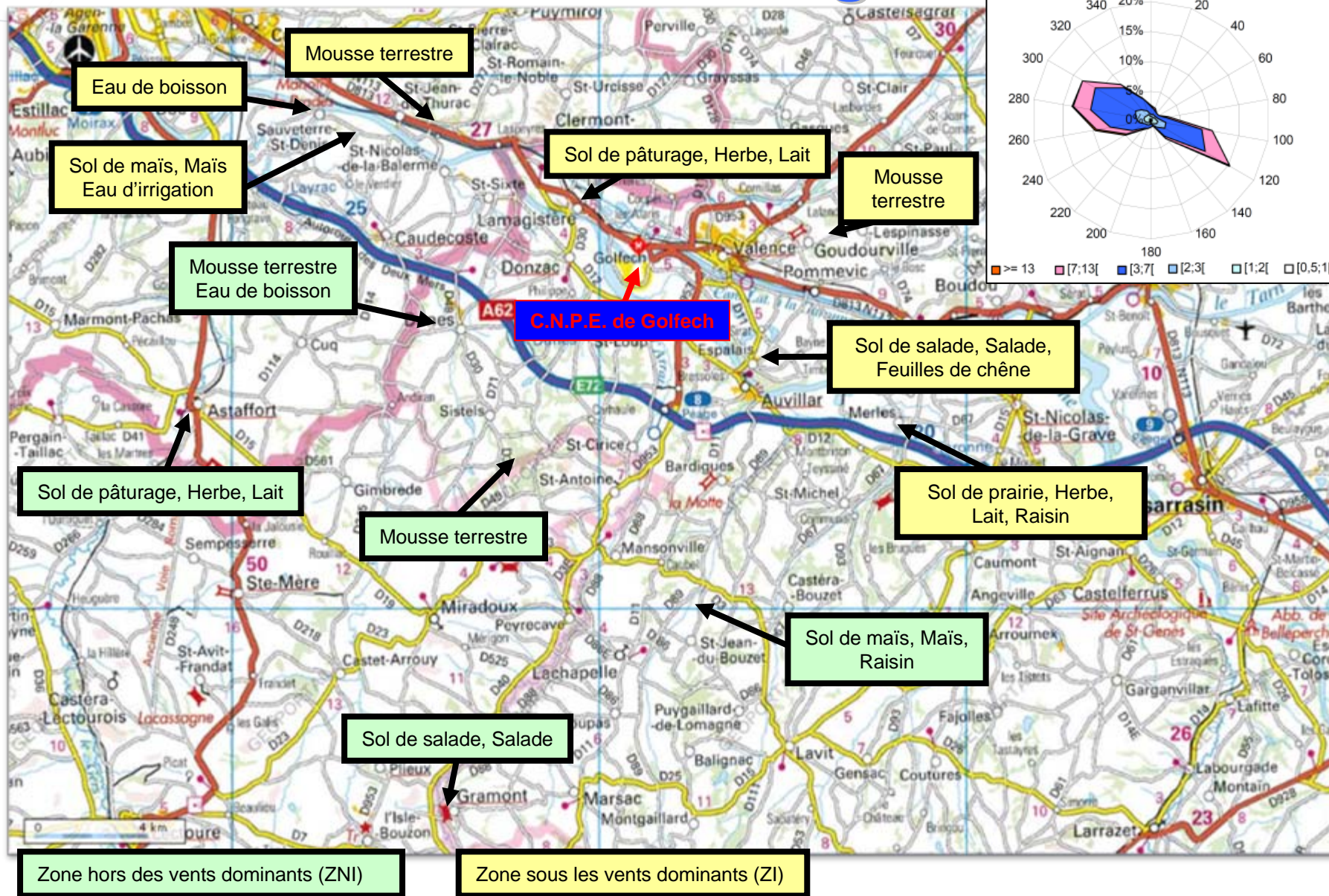
# Stratégie analytique et d'échantillonnage

- Connaissance du contexte de l'installation
- Choix des paramètres pertinents et donc des techniques à utiliser
- Choix des matrices (affinité, représentativité, disponibilité et pérennité spatiale et temporelle)
- Anticipation sur l'avenir : échantillothèque

=> Stratégie optimisée et robuste,  
adaptée au contexte de chaque site



# Plan d'échantillonnage



# Plan d'analyse (hors réglementaire)

## MILIEU TERRESTRE

Nature	<sup>131</sup> I	<sup>60</sup> Co	<sup>58</sup> Co	<sup>110m</sup> Ag	<sup>54</sup> Mn	<sup>137</sup> Cs	<sup>134</sup> Cs	HTO	TOL	<sup>14</sup> C	<sup>63</sup> Ni	<sup>55</sup> Fe	<sup>90</sup> Sr	<sup>238</sup> Pu	<sup>239+240</sup> Pu	<sup>241</sup> Am	<sup>129</sup> I
Feuille de Chêne																	
Production agricole																	
Mousse terrestre																	
Sol de pâturage/prairie																	
Pâturage, herbe, luzerne																	
Lait																	
Litière																	
Lichen/champignon																	

Suivi annuel

Bilan décennal

$\gamma$

$\alpha$

$\beta$



# Performances métrologiques

Objectif : déterminer les signatures radiologiques de chaque source

$^{137}\text{Cs}$ , $^{60}\text{Co}$	0,1 Bq/kg sec dans les végétaux	} « Bas seuil »
$^{238}\text{Pu}$ , $^{239+240}\text{Pu}$ , $^{241}\text{Am}$	1 mBq/kg sec dans les sols/sédiments	
$^{90}\text{Sr}$	0,1 Bq/kg sec dans les sédiments/végétaux	
$^{63}\text{Ni}$ , $^{55}\text{Fe}$	0,5 Bq/kg sec dans les sédiments	
Tritium	1 Bq/l	
Carbone 14	Incertitude de qq %	} « Précision »

=> Recours à des techniques/outils de pointe non standards et différents de ce qui est mis en œuvre pour les mesures réglementaires

=> Nécessité de prises d'essai importantes qui dimensionnent des quantités d'échantillons prélevées et préparées

# Prélèvement des échantillons

Plusieurs semaines

Définis en fonction du plan analytique et d'échantillonnage

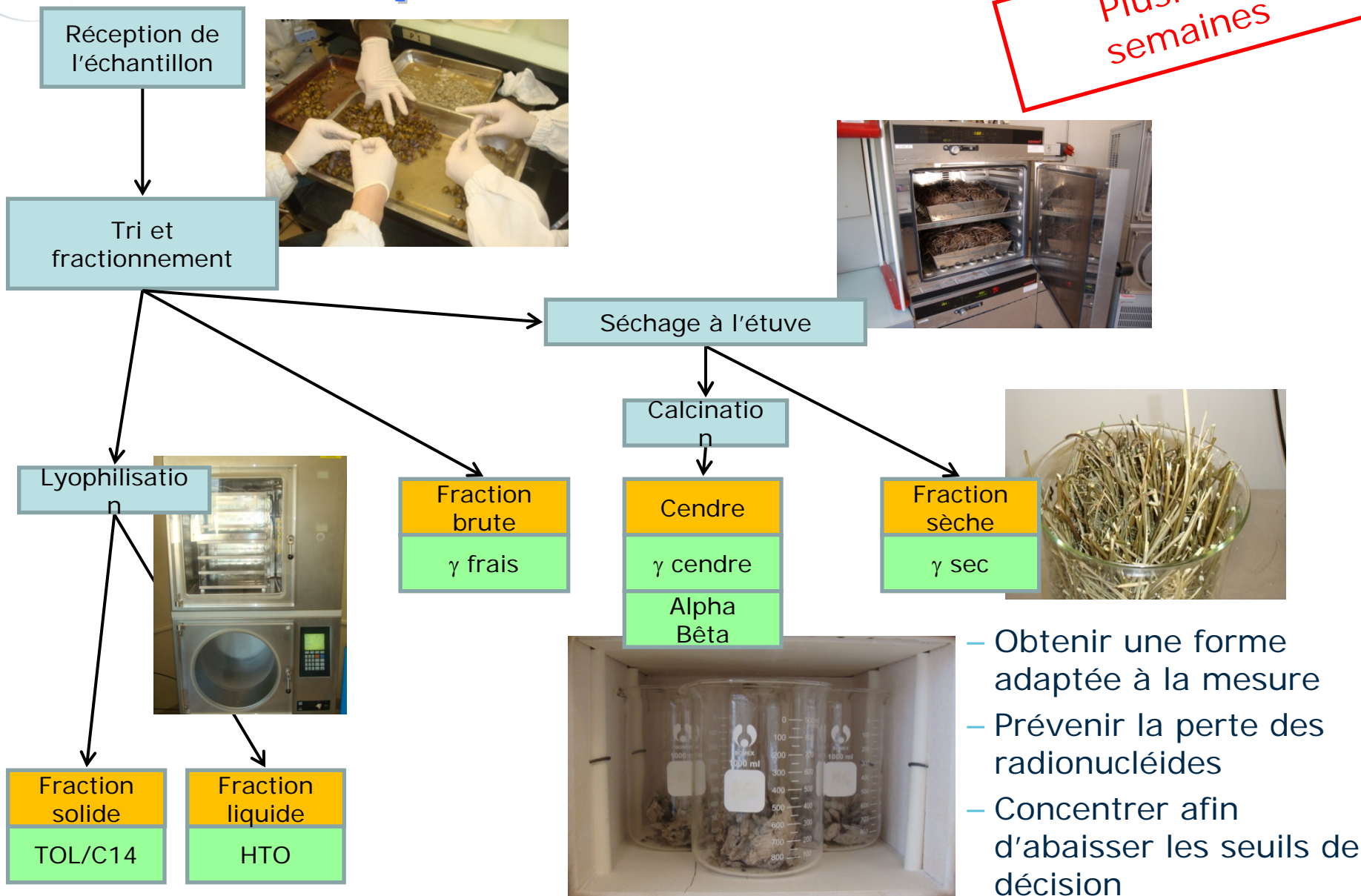
- Très grande quantité (mesures + échantillothèque)
- Matrices « associées » prélevées sur la même période
- « Propreté »
- Représentativité
- Conservation
- Enregistrement

=> logistique, organisation, anticipation



# Préparation des échantillons

Plusieurs semaines



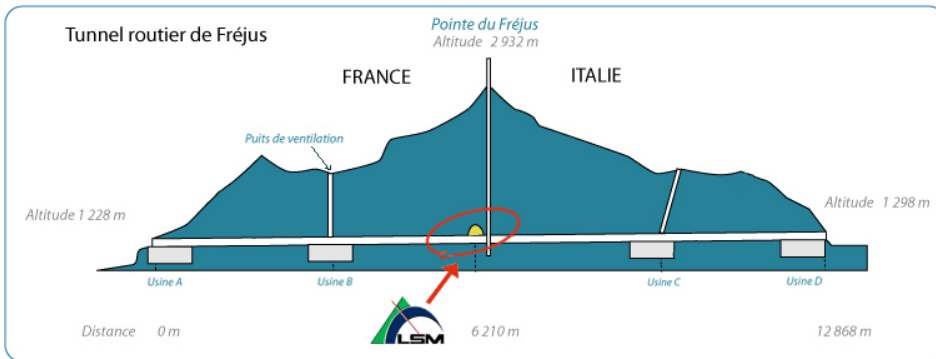
- Obtenir une forme adaptée à la mesure
- Prévenir la perte des radionucléides
- Concentrer afin d'abaisser les seuils de décision

# Métrologie : spectrométrie $\gamma$

2 à 3 semaines

$^{131}\text{I}$ ,  $^{129}\text{I}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{58}\text{Co}$ ,  $^{54}\text{Mn}$ ,...

Détecteurs, paramètres de comptage, environnement et traitements du signal adaptés (temps de comptage, gestion du radon et des rayonnements cosmiques, autoabsorption,...)





# Métrologie : radiochimie

1 à 2 mois

$^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$

- Radiochimie approfondie puis électrodéposition (2 à 3 semaines)
- Mesure en chambre de spectrométrie alpha (15 joursx2)



$^{90}\text{Sr}$ ,  $^{63}\text{Ni}$  et  $^{55}\text{Fe}$

- Radiochimie approfondie

- Échantillon



- Liquide

- Filtrat





Plusieurs mois

# Métrologie : $^{14}\text{C}$ et $^3\text{H}$

## carbone 14

## Tritium organiquement lié

### – Par scintillation liquide

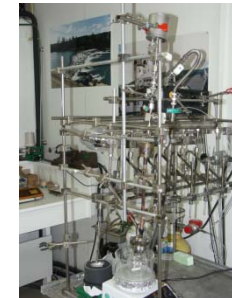
Synthèse de benzène (combustion, carburation, hydrolyse, trimérisation)

Oxydation jusqu'à  $850^\circ$ , neutralisation, distillation

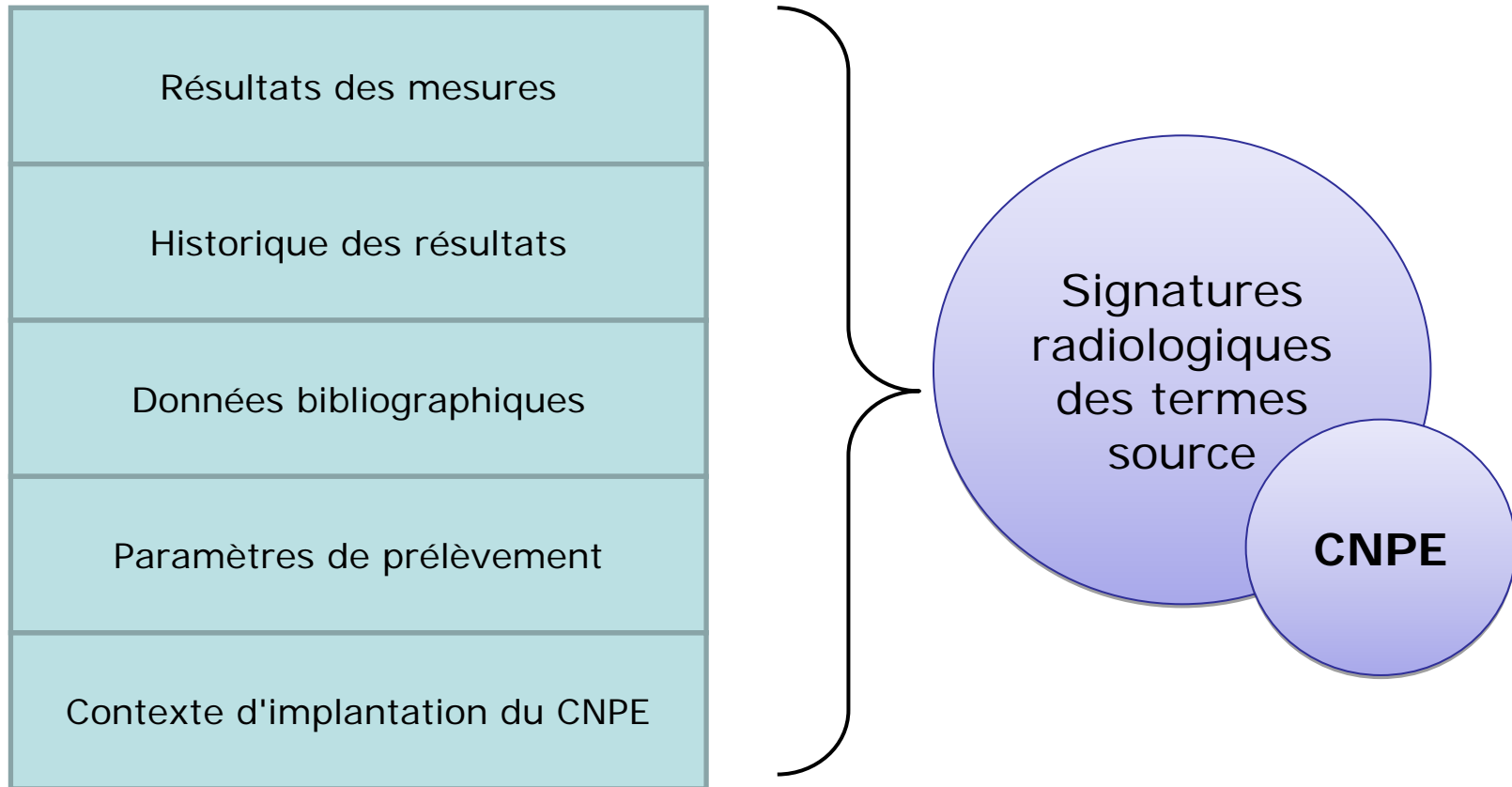


– Par SMA : transformation du C contenu dans l'échantillon en graphite

– Par mesure de l' $^3\text{He}$  par spectromètre de masse



# Synthèse



# Conclusion et perspectives

- Ces études d'expertise complètent les mesures réglementaires mais ne peuvent les remplacer
- La méthodologie permet d'atteindre l'objectif de caractériser le signal propre aux CNPE vs les autres sources
- La métrologie est l'un des facteurs importants qui conditionne l'atteinte de cet objectif
- Les moyens métrologiques actuels sophistiqués sont en adéquation qualitative avec l'objectif

# Conclusion et perspectives

- Nécessité renforcée de fonctionner en réseau pour :
  - Associer des spécialistes en radiochimie, détecteurs, traitement de signal, ...
  - Mutualiser les coûts d'investissement et de développement
  - Améliorer les délais et le nb d'échantillons pris en charge
  - Bénéficier des derniers développements :
    - Amélioration des techniques séparatives
    - ICP MS HR, Système anti-Compton, AMS,...
    - Mesures in-situ
- L'expérience et la technicité sont capitalisées dans ces études autour des CNPE et disponibles pour de nombreux domaines d'expertise