



## SFRP - Congrès National de Radioprotection

**IRSN**

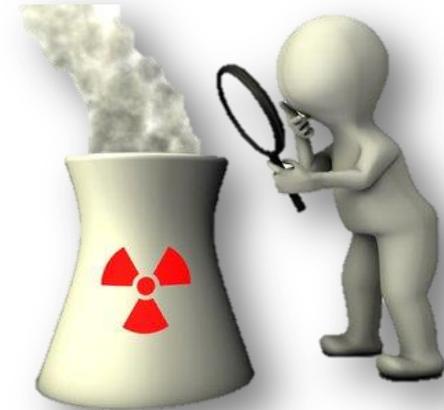
INSTITUT  
DE RADIOPROTECTION  
ET DE SÛRETÉ NUCLÉAIRE

IRSN – Pôle radioprotection

Azza HABIBI, Catherine COSSONNET, Béatrice BOULET, Fabrice LEPRIEUR

*Faire avancer la sûreté nucléaire*

# **SEPARATION AUTOMATISEE ET COUPLAGE AVEC LA MESURE POUR LA QUANTIFICATION RAPIDE DES ACTINIDES ET DE $^{90}\text{Sr}$**

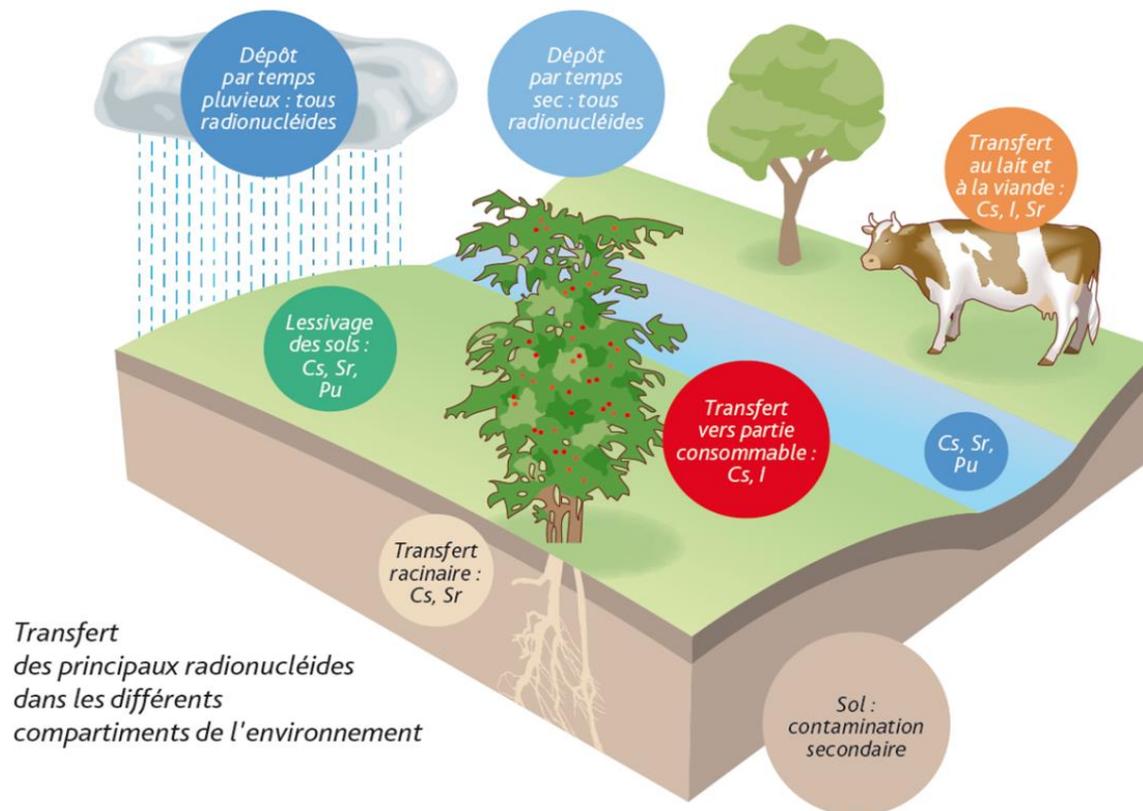


## Dans le cas d'un accident radiologique

### 1) Modélisation (terme source → Dépôt)

### 2) Mesures

- *in situ*
- laboratoires mobiles



### 3) Mesures en laboratoire

### 4) Surveillance post-accidentelle

## REx Post-Fukushima



Extrait contrat d'objectifs État-IRSN 2010-2013 qui a été signé le **11 avril 2011** : « Afin d'accroître sa capacité d'intervention sur le terrain en cas d'accident nucléaire d'origine accidentelle ou malveillante, l'IRSN poursuivra le **développement de méthodes et d'outils** dédiés à l'expertise en temps réel des **accidents** et la gestion de la **phase post-accidentelle**. »

### ■ Méthodes de routine très performantes (actinides + $^{90}\text{Sr}$ )...

- Limites de détection très basses
- Incertitudes faibles



### ■ Mais ne répondant pas à la crise

- Trop long en radiochimie (**plutonium et strontium au moins 3 semaines**)
- Pas de méthode pour quantifier  $^{89}\text{Sr}$



l'IRSN doit guider **rapidement** les pouvoirs publics

## **Abaisser le délai de réponse**



***Quels radionucléides ?***



$^{234,235,236,238}\text{U}$

$^{230,232}\text{Th}$

$^{239,240,241}\text{Pu}$

$^{237}\text{Np}$

$^{241}\text{Am}$

$^{90}\text{Sr}$

## Situation post-accidentelle

### Abaisser la durée

Etape

Mise en solution  
+  
Co-précipitation

Purification  
+  
Séparation des  
interférents

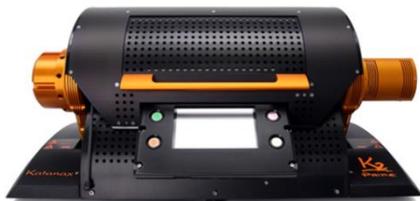
Mesure rapide

Action

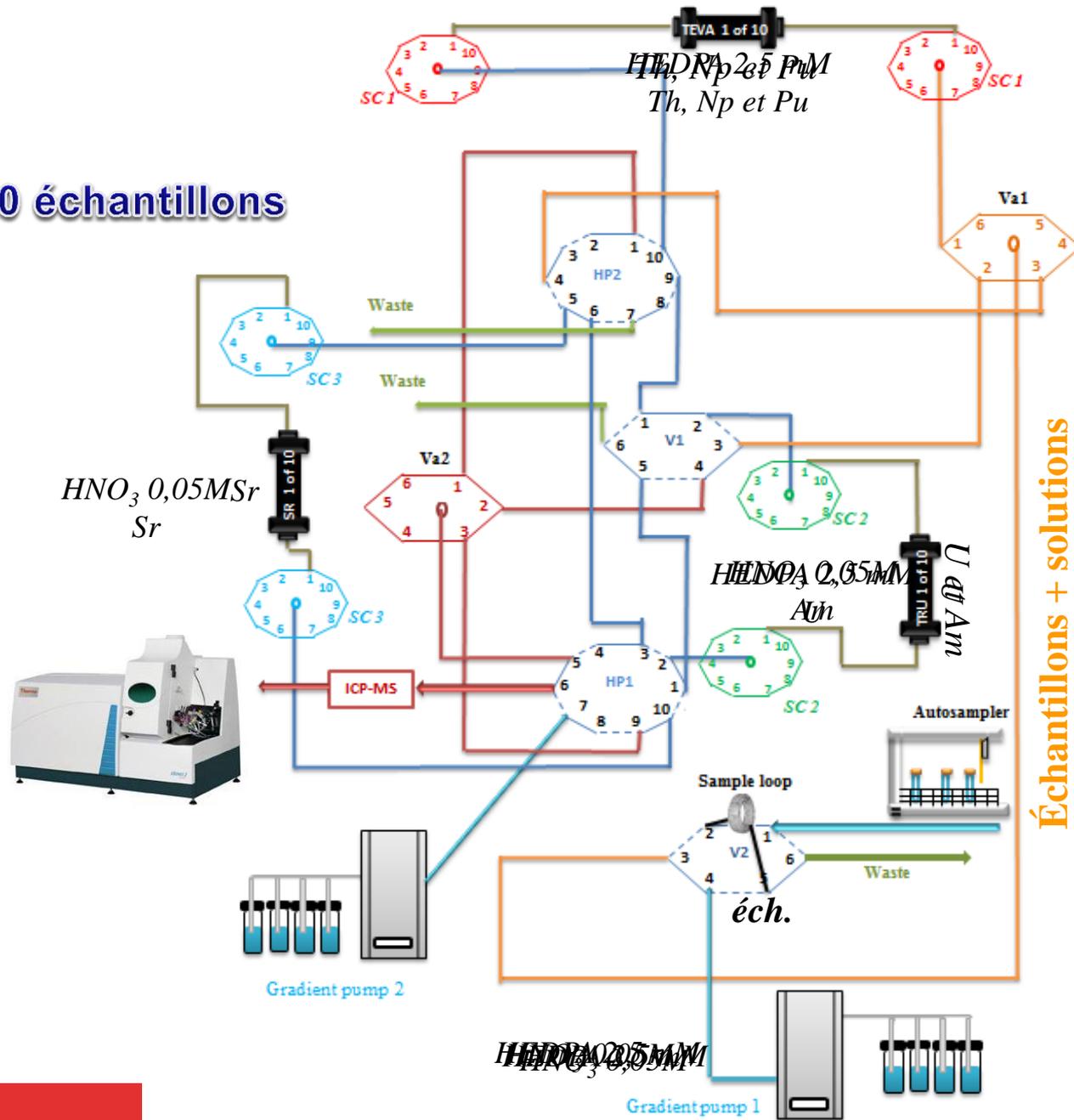
- Prise d'essai
- fusion alcaline

- Protocole unique
- Automatisation de la séparation chromatographique

- ICP-MS
- Couplage en ligne avec la séparation



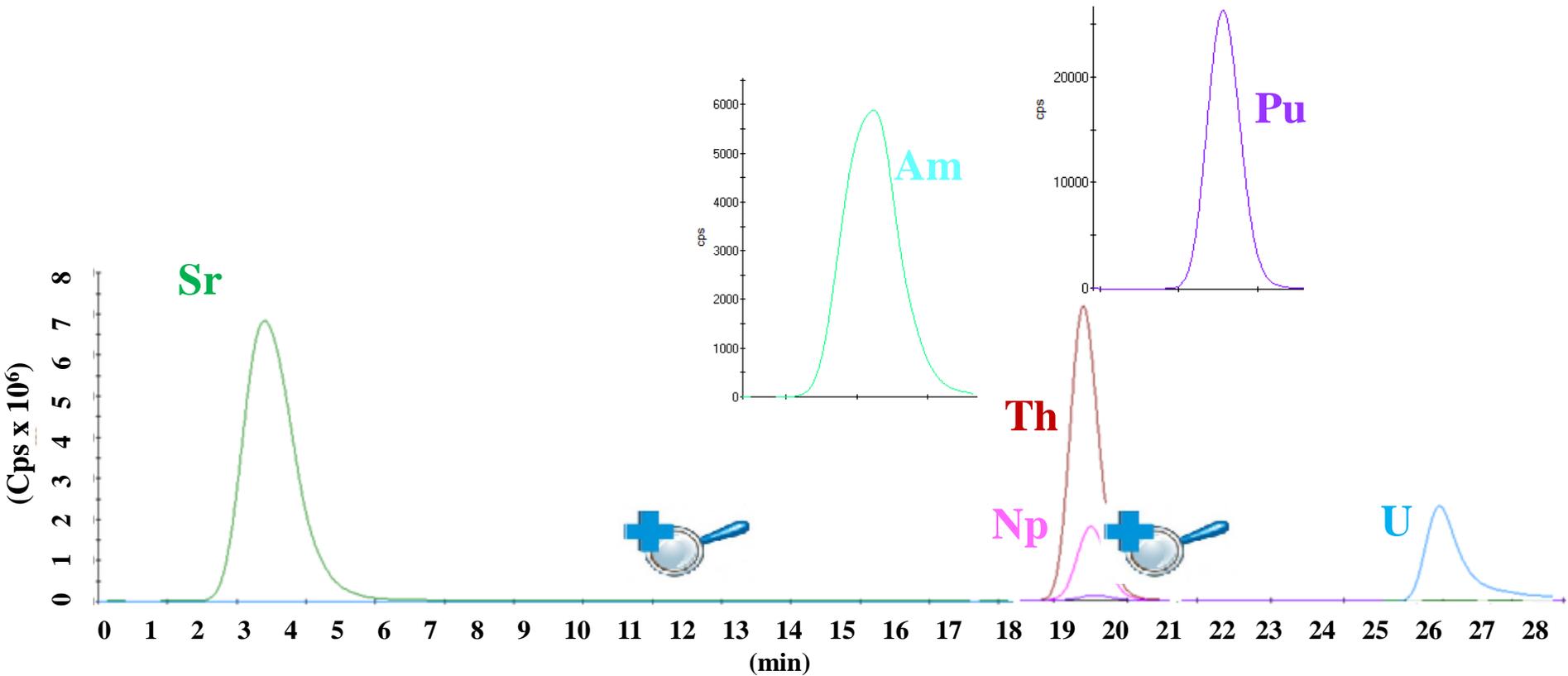
## Possibilité d'enchaîner 10 échantillons



Échantillons + solutions

- 1) Chargement
- 2) Rinçage
- 3) Élution de Sr
- 4) Élution de Am
- 5) Élution de Th, Np et Pu
- 6) Élution de U

# Chromatogramme de la séparation automatisée et couplée à la mesure par ICP-MS



**Durée totale de séparation + mesure = ~ 1 heure**

**10 échantillons par jour !**



## Limites de détection

Prises d'essai : 500 mL pour les eaux et 0,2 – 0,5 g pour les solides



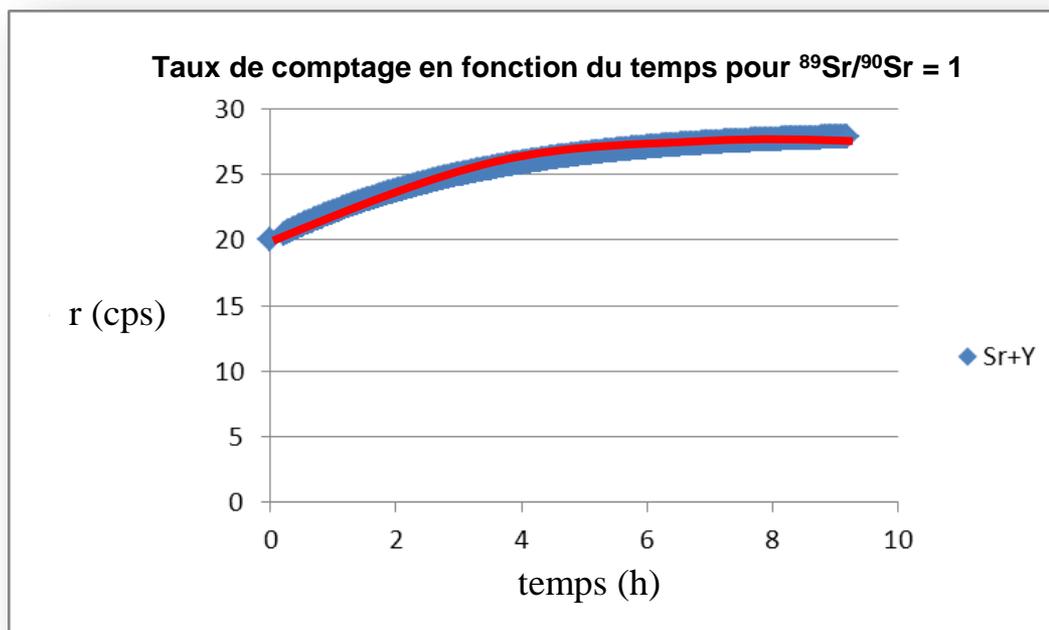
	$^{238}\text{U}$	$^{232}\text{Th}$	$^{90}\text{Sr}$	$^{236}\text{U}$	$^{237}\text{Np}$	$^{239}\text{Pu}$	$^{240}\text{Pu}$	$^{241}\text{Pu}$	$^{241}\text{Am}$
<b>Eaux (Bq/kg)</b>	$1,66 \times 10^{-4}$	$2,00 \times 10^{-5}$	71,1	$8,76 \times 10^{-8}$	$2,12 \times 10^{-6}$	$1,87 \times 10^{-4}$	$6,82 \times 10^{-4}$	$3,11 \times 10^{-1}$	$6,55 \times 10^{-3}$
<b>Solides 0,2 g (Bq/kg)</b>	$3,12 \times 10^{-1}$	$5,77 \times 10^{-2}$	4700	$2,41 \times 10^{-4}$	$4,62 \times 10^{-3}$	$4,07 \times 10^{-1}$	1,49	$6,79 \times 10^2$	7,01
<b>Solides (Bq/kg) routine</b>	$\sim 2,0 \times 10^{-1}$	$\sim 5,0 \times 10^{-2}$	< 1	$\sim 3,0 \times 10^{-4}$	-	< $1,0 \times 10^{-3}$		$\sim 1$	< $1,0 \times 10^{-3}$

**Quantification de  $^{90}\text{Sr}$  par comptage nucléaire même en cas de crise**

## Quantification de $^{89}\text{Sr}$ et $^{90}\text{Sr}$ par compteur proportionnel à gaz

Comptage simultané de 10 échantillons

Durée des cycles = 30 min et nombre de cycles = 48  $\longrightarrow$  24 h supplémentaires



Prise d'essai	LD (Bq/kg)		NMA (Bq/kg)
	$^{90}\text{Sr}$	$^{89}\text{Sr}$	$^{90}\text{Sr}$
0,5 g	44	34	75*

Pour un rapport d'activités  $^{89}\text{Sr}/^{90}\text{Sr}$  compris entre 0,2 et 100

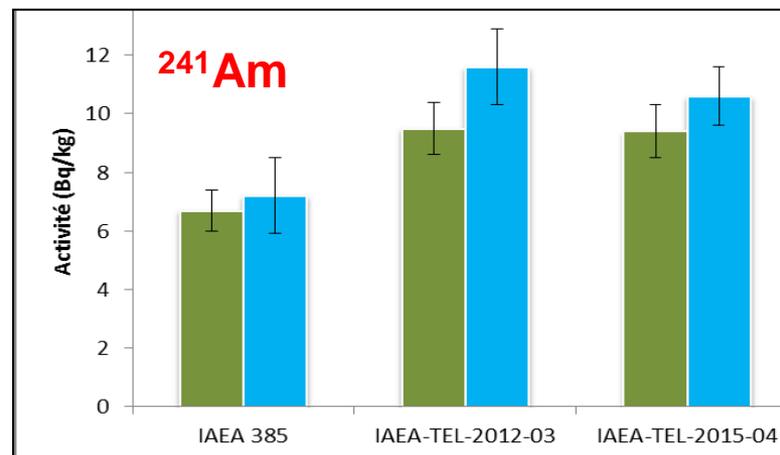
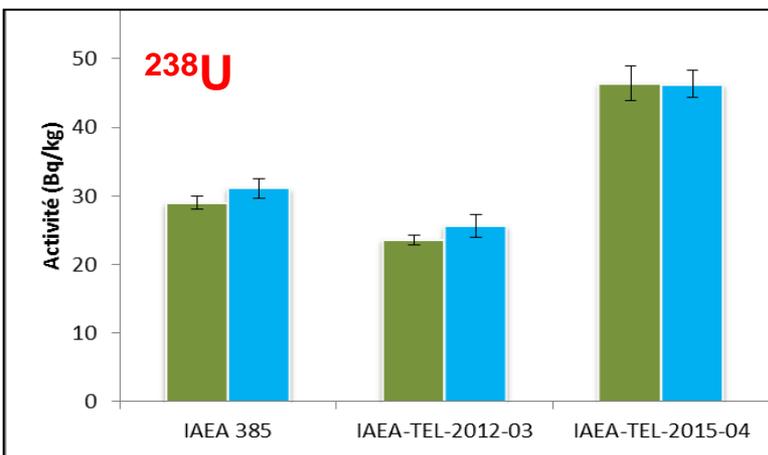
\* Aliments pour nourrissons

A. HABIBI *et al.* A unique procedure for the rapid determination of actinides and radiostrontium in river water samples. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*

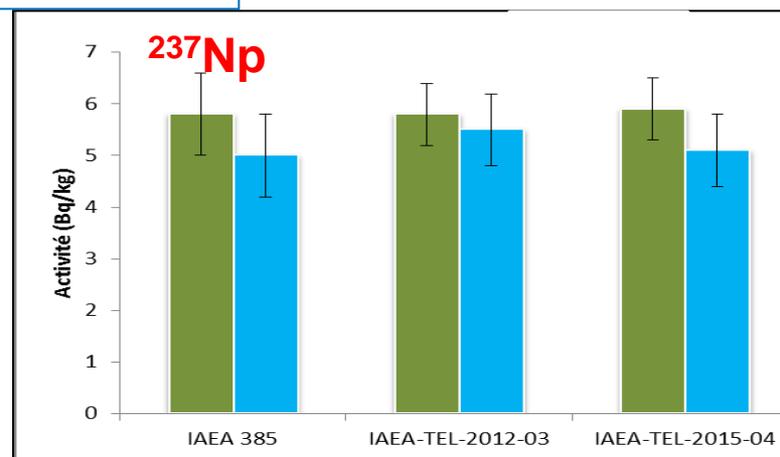
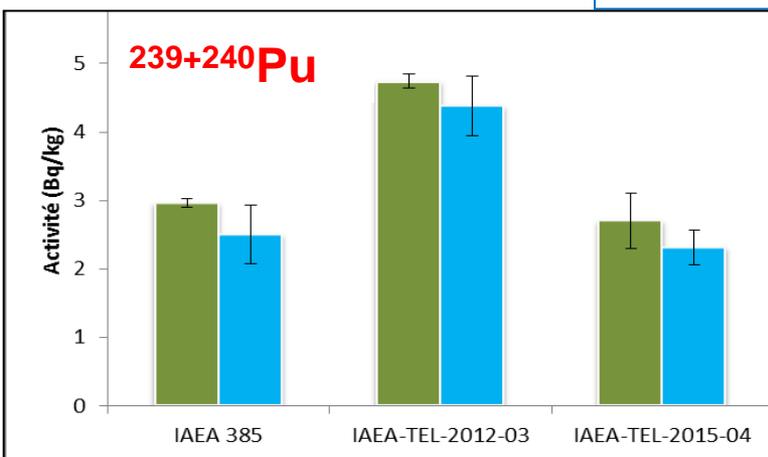
**IAEA 385 : sédiment**  
**IAEA-TEL-2012-03 : sol**  
**IAEA-TEL-2015-04 : sol**

## Justesse de la méthode

- Activités de référence
- Activités expérimentales



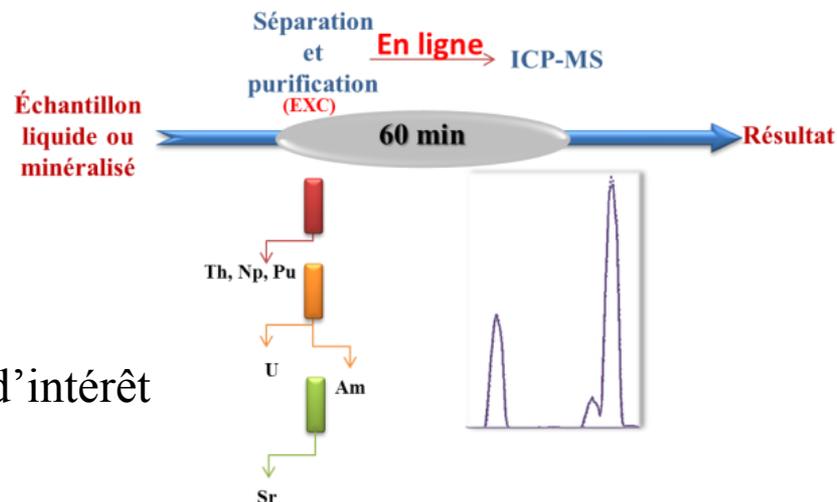
## Excellente compatibilité



**Activité de référence** : activité certifiée, résultat intercomparaison ou activité théorique

## Conclusion

- **Protocole unique automatisé** pour les 6 éléments d'intérêt  
**U, Th, Pu, Np, Am et Sr**
- **Excellente séparation** des interférents
- **Excellente compatibilité** des activités expérimentales avec les activités de référence
- **Pour les PE étudiées :**
  - **LD** compatibles pour analyses **crise et routine** pour les eaux (couplage ICP-MS)
  - **LD** compatibles pour analyses **crise** pour les solides (couplage ICP-MS + CP)



Réduction de la durée de la séparation chimique + mesure :

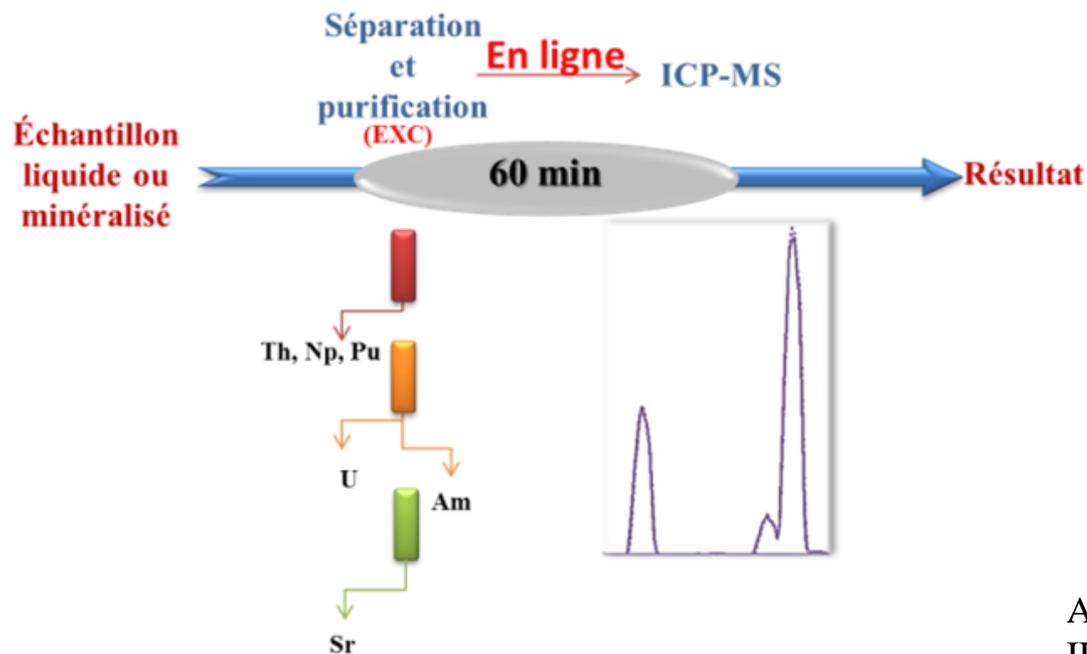
2-3 semaines  $\longrightarrow$  **~ 1 heure**

## Perspectives



- **Installation d'un deuxième système à l'IRSN** (augmenter la capacité analytique)
- **Partage inter-laboratoire d'un stock de consommables** (être opérationnel)
- **Extension des habilitations** (formation du personnel)
- **Maintien des compétences** (organisation d'exercices de crise, échantillons de surveillance...)
- **Adaptation du protocole de crise aux méthodes de routine** (prises d'essai plus importantes)

# Merci pour votre attention



Azza HABIBI  
IRSN/PRP-ENV/STEME/LTE  
[Azza.habibi@irsn.fr](mailto:Azza.habibi@irsn.fr)