



IRSN

INSTITUT
DE RADIOPROTECTION
ET DE SÛRETÉ NUCLÉAIRE

Faire avancer la sûreté nucléaire

Guide de bonnes pratiques des laboratoires de mesure de radioactivité en situation post-accidentelle

JANVIER 2011

Rapport IRSN DEI/STEME n° 2011-02

CODIRPA

Comité directeur pour la
gestion de la phase post-
accidentelle d'un accident
nucléaire ou d'une
situation radiologique

DIRECTION DE L'ENVIRONNEMENT ET DE L'INTERVENTION
Service de traitement des échantillons et de métrologie de
l'environnement

Demandeur	GT3 du CODIRPA
Référence de la demande	Réunion n° 10 du GT3 du 18 avril 2008
Numéro de la fiche programme	

**Guide de bonnes pratiques des laboratoires de
mesure de radioactivité en situation post-
accidentelle**

Janvier 2011

Rapport IRSN DEI/STEME n° 2011-02

HISTORIQUE DES MODIFICATIONS

Version	Date	Auteur	Pages ou paragraphes modifiés	Description ou commentaires
1	Janvier 2011	J.L. PICOLO et <i>al.</i>	-	Version initiale

LISTE DES PARTICIPANTS

Nom	Organisme
Stéphanie DEMONGEOT	IRSN/DEI/SIAR/GLM
Vincent GIRARD	AREVA/NC
Catherine ONODY	IRSN/DRPH/SDI/LAMR
Jean-Louis PICOLO	IRSN/DEI/STEME
Caroline QUINIO	DGAL/Sous-direction de la qualité de l'alimentation/Bureau de la législation alimentaire
Stéphane SCAPOLAN	CEA/SPR Saclay
Jean-Luc TILLIE	DGCCRF SCL 59

SOMMAIRE

1. INTRODUCTION	4
2. PRELEVEMENT DES ECHANTILLONS	6
2.1. QUANTITE DE MATIERE	6
2.2. IDENTIFICATION DU PRELEVEMENT.....	9
2.2.1. Lieu, date et heure de prélèvement	9
2.2.2. Nature de l'échantillon	9
2.2.3. Traitement éventuel pour assurer la stabilité des échantillons	10
2.2.4. Débit de dose au contact de l'échantillon	10
2.2.5. Identification du préleveur	10
2.3. CONDITIONNEMENT FINAL DE L'ECHANTILLON ASSOCIE A SA FICHE D'IDENTIFICATION	10
2.4. DEMANDE D'ANALYSE.....	11
2.4.1. Type d'analyse à réaliser	12
2.4.2. Niveau de performance métrologique souhaité	12
2.4.3. Délai d'analyse	13
2.4.4. Échange d'informations entre le prescripteur de l'analyse et le laboratoire.....	14
3. EXPRESSION DES RESULTATS	17
4. RECEPTION DES ECHANTILLONS AU LABORATOIRE	17
4.1. RADIOPROTECTION DU PERSONNEL	18
4.2. PREVENTION DU RISQUE DE CONTAMINATION CROISEE ENTRE ECHANTILLONS	18
4.3. CONSERVATION EN ATTENTE DE TRAITEMENT	18
4.4. ACTIONS A REALISER EN ZONE DE RECEPTION	21
4.4.1. Contrôle du débit de dose au contact et de la non contamination externe des conteneurs .	21
4.4.2. Acceptabilité de l'échantillon	21
4.4.3. Enregistrement dans le système de gestion d'échantillons du laboratoire.....	21
4.4.4. Contrôle préalable par spectrométrie gamma.....	21
5. GESTION DES DECHETS	22
6. PREPARATION DES ECHANTILLONS.....	23
7. COMPTAGES	24
7.1. INCERTITUDE DE MESURE	24
7.2. LIMITE DE DETECTION	26
7.2.1. Définition.....	26
7.2.2. Facteurs d'influence de la limite de détection	28
7.2.3. Exemple de redéfinition du temps de comptage par rapport à l'objectif fixé par la demande d'analyse	28
8. RADIONUCLEIDES D'INTERET	29

8.1.	DANS LE CAS D'UN INCIDENT SUR UN REACTEUR AYANT CONDUIT A LA FUSION DU CŒUR AVEC OU SANS RUPTURE DE CONFINEMENT	30
8.2.	DANS LE CAS D'UN INCIDENT SUR UN REACTEUR AYANT CONDUIT A LA FUSION DU CŒUR AVEC PIEGEAGE DES PARTICULES.....	30
8.3.	REJET ACCIDENTEL D'UNE USINE DE RETRAITEMENT	30
8.4.	REJET ACCIDENTEL D'UNE USINE DE FABRICATION DE PU	31
8.5.	RADIONUCLEIDES LES PLUS DOSANTS	31
9.	MESURES PAR SPECTROMETRIE GAMMA	31
9.1.	RISQUE DE CONTAMINATION DES INSTALLATIONS	31
9.2.	DETECTEURS GAMMA	32
9.3.	LIMITE DE DETECTION	32
9.4.	CONDITIONS DE MESURE	33
9.4.1.	Géométrie de mesure	34
9.4.2.	Conditions de remplissage des conteneurs	34
9.4.3.	Inhomogénéité de l'échantillon	35
9.4.4.	Densité de l'échantillon	36
9.4.5.	Composition élémentaire de l'échantillon	38
9.4.6.	Niveau d'activité.....	39
9.5.	ANALYSE DES SPECTRES.....	41
10.	ANALYSES DES RADIONUCLEIDES NON EMETTEURS GAMMA	42
10.1.	DEMARCHE DE TRI.....	43
10.1.1.	Comptages globaux	43
10.1.2.	Contribution des radionucléides d'origine naturelle	44
10.1.3.	Tri particulier pour le tritium dans les solides par « lessivage »	44
10.1.4.	Analyse d'un indicateur gamma.....	44
10.2.	LES TRAITEMENTS APPLICABLES AUX ECHANTILLONS ET LEURS CONTRAINTES	46
10.2.1.	Homogénéisation.....	46
10.2.2.	Séchage- calcination	47
10.2.3.	Dissolution.....	47
10.2.4.	Séparation chimique.....	48
10.2.5.	Pertes durant la séparation et Le traitement chimique	48
10.2.6.	Exemple de traceurs utilisés	49
10.3.	GENERALITES SUR LES MESURES DES RADIONUCLEIDES EMETTEURS ALPHA ET BETA	49
10.3.1.	Mesure des radionucléides émetteurs alpha	49
10.3.2.	Mesure des radionucléides émetteurs bêta	50
10.3.3.	Cas particulier de la mesure de Sr-90.....	51
10.4.	SPECTROMETRIE DE MASSE.	51
10.5.	TABLEAU COMPARATIF DES MESURES HORS SPECTROMETRIE GAMMA.....	53
11.	CONCLUSION.....	53
	LISTE DES TABLEAUX	55

LISTE DES FIGURES	56
REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES	57
ANNEXE 1	58
ANNEXE 2	61
ANNEXE 3	64
ANNEXE 4	65
ANNEXE 5	66

1. INTRODUCTION

Ce guide a été élaboré par l'IRSN en application d'une des recommandations du groupe de travail n°3 « évaluation des conséquences radiologiques et dosimétriques en situation post-accidentelle » du Comité directeur pour la gestion de la phase post-accidentelle d'un accident nucléaire ou d'une situation radiologique (CODIRPA) [1].

Il s'adresse principalement aux laboratoires de mesure de radioactivité susceptibles d'être sollicités au moment ou à la suite d'un accident nucléaire ou radiologique survenant en France ou à l'étranger : laboratoires « environnement » des exploitants nucléaires, laboratoires d'analyses départementaux du réseau DGAL, laboratoires d'analyses du réseau DGCCRF, laboratoires de surveillance de la radioactivité dans l'environnement de l'IRSN, etc.. Il s'adresse aussi, en partie, aux prescripteurs d'analyses et aux équipes de prélèvement d'échantillons.

Son objectif est de favoriser la production, dans un délai adapté à la situation, de résultats d'analyses fiables, d'un point de vue métrologique, et exploitables par le demandeur. Il prend en compte les particularités liées aux radionucléides et aux gammes d'activités potentiellement présents dans les échantillons à traiter lors des phases d'urgence et de transition post-accidentelle à court terme (quelques mois après l'évènement). La phase post-accidentelle de plus long terme est considérée comme relevant des pratiques usuelles des laboratoires.

Quelle que soit la phase considérée, les résultats des mesures réalisées peuvent être exploités à des fins diverses : aide à la décision, expertise de crise (évaluation des conséquences radiologiques et dosimétriques), contrôles réglementaires ou de radioprotection. Ces différents objectifs, qui impliquent la mise en œuvre de techniques de mesure généralement similaires, font cependant appel à des protocoles d'analyse adaptés.

Pour le besoin des analyses à court terme, le choix de ces protocoles relève souvent d'un compromis prenant en compte : le flux d'échantillons à analyser, le délai souhaité d'obtention des résultats et l'incertitude de mesure ou la limite de détection à atteindre.

Les recommandations figurant dans ce guide ont été abordées dans l'ordre chronologique des actions à mener pour l'analyse d'un échantillon, de son prélèvement à la transmission du résultat de mesure au demandeur. Le guide ne traite ni de la stratégie d'échantillonnage, ni des techniques de prélèvement d'échantillon. Cependant, certains aspects relatifs aux opérations de prélèvement, ayant un impact direct sur la métrologie, sont évoqués.

Les différents points traités dans ce guide relèvent de :

- **l'organisation des laboratoires :**
 - gestion du flux d'échantillons à l'arrivée dans les laboratoires ;
 - radioprotection du personnel ;
 - identification et enregistrement des échantillons ;

- risques de contaminations croisées des échantillons ;
- risques de contaminations des installations ;
- transmission des résultats ;
- archivage des données brutes de mesure ;
- archivage des résultats ;
- archivage d'échantillons ;
- élimination des déchets.

- **la métrologie :**

- aide à l'adaptation des méthodes au besoin en termes de limite de détection et d'incertitude de mesure ;
- usage privilégié de la spectrométrie gamma ;
- stratégies d'analyse.

Le guide renvoie, chaque fois que nécessaire, à des textes et normes de référence dont la bibliographie est donnée en annexe.

Les exemples et les recommandations données dans ce guide ne le sont qu'à titre indicatif. Ils ont pour objectif d'être une aide à la réflexion du laboratoire pour lui permettre une anticipation dans la préparation des moyens et des équipes à faire face à une situation post-accidentelle.

Pour l'élaboration de ce guide, l'IRSN s'est appuyé sur un groupe de travail dont la composition est la suivante :

- Stéphanie DEMONGEOT - IRSN/DEI/SIAR/GLM ;
- Vincent GIRARD - AREVA/NC ;
- Catherine ONODY - IRSN/DRPH/SDI/LAMR ;
- Jean-Louis PICOLO - IRSN/DEI/STEME et pilote du groupe de travail ;
- Caroline QUINIO - DGAL/Sous-direction de la qualité de l'alimentation/Bureau de la législation alimentaire ;
- Stéphane SCAPOLAN - CEA/SPR Saclay ;
- Jean-Luc TILLIE - DGCCRF SCL 59.

2. PRELEVEMENT DES ECHANTILLONS

Il est fait l'hypothèse que l'échantillon à analyser a été prélevé au bon endroit et dans le respect des protocoles de prélèvement [2] assurant sa représentativité de la zone prélevée.

Recommandation :

Pour qu'un échantillon soit analysable et pour que les résultats des analyses pratiquées soient exploitables, les conditions suivantes doivent être respectées :

- une quantité de matière suffisante à l'analyse souhaitée ;
- une fiche d'identification levant toute ambiguïté sur l'origine et la date de prélèvement de l'échantillon ;
- une demande explicite du type d'analyse et, idéalement, du niveau de performance métrologique attendu en termes d'incertitude de mesure ou de limite de détection ;
- éventuellement le niveau de priorité relative à accorder au traitement de l'échantillon ;
- une identification claire du demandeur et du destinataire des résultats.

2.1. QUANTITE DE MATIERE

Les prises d'essai nécessaires sont spécifiques de chaque technique d'analyse (voir tableau 1).

Recommandation :

Les quantités globales de matière prélevée doivent prendre en considération :

- la diversité des analyses à réaliser sur un même échantillon ;
- pour les méthodes destructives, la nécessité de réaliser plusieurs essais ;
- le souhait de constituer une échantillothèque en vue d'analyses complémentaires ultérieures ;
- les facteurs de réduction des traitements préliminaires des échantillons lorsque les protocoles de mesure impliquent l'analyse de matière sèche ou de cendres.

Radionucléide	Matrice		
	Eaux	Biologiques ou denrées alimentaires (lait, viande, poisson, végétaux)	Sols / Sédiments
Alpha global + Bêta global	100 mL	Quelques grammes d'échantillon sec ou calciné	Quelques grammes d'échantillon sec ou calciné
H-3, C-14	10 mL	< 0,5 g Frais pour H-3 Sec pour C-14	< 0,5 g Frais pour H-3 Sec pour C-14
Mesures gamma Cs-137, Co-60, I-131, U-235 et autres	500 mL (après concentration ou pas)	2 L d'échantillon Végétaux prélevés sur 1 m ²	500 ml
Mesures alpha U-234, 235, 238 ; Pu-238, 239, 240 ; Am-241	500 mL	100 g d'échantillon	100 g d'échantillon
Sr-90	1 L	1 L (lait) 1 kg d'échantillon (lait, viande, poisson, végétaux)	0,1 à 50 g

Tableau 1 - Exemples de prises d'essai nécessaires à différents types d'analyses pratiquées en routine dans les laboratoires de mesure de la radioactivité d'échantillons de l'environnement. Valeurs exprimées en masse ou volume de matière fraîche sauf mention contraire

Les réductions de masse, après séchage ou calcination, peuvent varier dans de grandes proportions d'un type d'échantillon à un autre. Des exemples de facteurs de réduction pour des échantillons de l'environnement extraits de [3] sont présentés dans les tableaux 2 et 3.

Type d'échantillon	Masse fraîche/ masse sèche
Carotte	10
Céréale	1,1 à 6,5
Champignon	10 à 25
Herbe	2 à 7
Lichen	1,1 à 3
Mousse terrestre	2 à 7
Poireau-Choux	1,1 à 11
Pomme de terre	1,2 à 5
Salade	10 à 20
Sol	1,2 à 3
Tomate	1 à 1,5
Viande	1,9 à 3,8
Algue	2 à 12
Moule	3,7 à 7,5
Poisson	2,5 à 5,3
Sédiment	1,2 à 4,2

Tableau 2 - Exemples de rapports masse fraîche sur masse sèche pour des échantillons de l'environnement.

Type d'échantillon	Masse fraîche/ masse de cendres
Carotte	70 à 130
Champignon	70 à 155
Herbe	10
Lichen	8 à 30
Mousse aquatique	4,5 à 28
Mousse terricole	1,1 à 62
Pomme	300 à 400
Pomme de terre	100
Salade	80 à 110
Thym	8 à 45
Tomate	145
Viande	20 à 90
Algue	10 à 30
Moule	15 à 55
Patelle	15 à 60
Poisson	10 à 100

Tableau 3 - Exemples de rapports masse fraîche sur masse de cendres pour des échantillons de l'environnement.

Recommandations :

Le retour d'expérience montre, qu'*a priori*, une quantité de l'ordre de 2 litres pour les liquides et de 2 kg pour les solides permet, par excès, de disposer de la quantité de matière nécessaire à la réalisation de la grande majorité des analyses à effectuer en situation post-accidentelle. Cependant, pour optimiser les prélèvements et la gestion des échantillons, il est recommandé au laboratoire de mesure d'indiquer au demandeur de l'analyse les quantités minimales nécessaires.

La définition des quantités prélevées doit aussi tenir compte du risque d'exposition des intervenants lors du prélèvement. Ainsi en phase d'urgence, pour les interventions sur les territoires exposés au panache radioactif, le temps de présence du préleveur sur le terrain doit être limité. Par exemple pour la mesure de Cs-137 et d'I-131 en zone exposée, si le prélèvement d'1 m² d'herbe nécessite une durée excessive en termes de radioprotection, la quantité prélevée pourra être réduite en conséquence. Cette contrainte doit être prise en considération par le laboratoire de mesure.

2.2. IDENTIFICATION DU PRELEVEMENT

Cette identification doit être effectuée simultanément au prélèvement. Elle doit comporter, *a minima*, tous les éléments spécifiques de l'échantillon, nécessaires à l'exploitation du résultat d'analyse, et qu'il ne sera plus possible d'établir une fois l'échantillon parvenu au laboratoire de mesure.

2.2.1. LIEU, DATE ET HEURE DE PRELEVEMENT

L'indication du lieu de prélèvement peut apparaître soit sous la forme de coordonnées géographiques, relevées au moyen d'un système GPS, soit sous une forme descriptive, plus subjective et donc présentant un plus grand risque d'erreur. Dans le cas d'un échantillon biologique issu d'un prélèvement sur un individu, l'identité de l'individu se substitue aux coordonnées géographiques. Pour les prélèvements animaux, tels que le lait, les noms de l'éleveur et de la commune doivent au moins figurer pour permettre la localisation du lieu d'élevage.

La date et l'heure de prélèvement doivent bien sûr être renseignées.

2.2.2. NATURE DE L'ECHANTILLON

Si la nature de l'échantillon peut généralement faire l'objet d'un contrôle *a posteriori* (végétaux, denrées alimentaires...), certains types d'échantillons ne sont réellement exploitables que si l'on dispose de renseignements complémentaires à la nature de l'échantillon. Par exemple un frottis et un filtre ne sont respectivement représentatifs que d'une surface frottée ou d'un volume d'air filtré. Ces paramètres doivent donc être enregistrés au moment du prélèvement. La nature d'une eau (eau profonde, de surface, de pluie...) doit aussi être spécifiée.

2.2.3. TRAITEMENT EVENTUEL POUR ASSURER LA STABILITE DES ECHANTILLONS

Si conformément à certains protocoles de prélèvement un traitement est appliqué pour assurer la stabilité de l'échantillon (acidification des eaux, formol dans le lait...), l'existence et la nature de ce traitement doivent être indiquées.

Recommandation :

En cas d'analyses multiples à réaliser sur un même échantillon, il est important d'appliquer avec discernement les traitements pour la conservation. Certains traitements, sont susceptibles de compliquer l'analyse de radionucléides particuliers, par exemple, l'acidification d'une eau dont on souhaiterait aussi mesurer la teneur en tritium.

2.2.4. DEBIT DE DOSE AU CONTACT DE L'ECHANTILLON

Pour assurer, dès la fin du prélèvement, la manipulation de l'échantillon dans les conditions de radioprotection adaptées, il est souhaitable de voir figurer la valeur du débit de dose mesuré au contact de l'échantillon.

2.2.5. IDENTIFICATION DU PRELEVEUR

Pour permettre un éventuel recours, transmettre ou obtenir auprès du préleveur un renseignement complémentaire, l'identité et les coordonnées du préleveur ou du responsable de prélèvement doivent aussi apparaître.

Enfin si le préleveur dispose de sa propre nomenclature d'enregistrement des prélèvements celle-ci doit pouvoir figurer.

2.3. CONDITIONNEMENT FINAL DE L'ECHANTILLON ASSOCIE A SA FICHE D'IDENTIFICATION

Le degré de renseignement figurant sur la fiche d'identification d'un prélèvement peut être envisagé différemment selon que l'on considère une situation d'urgence ou une situation post-accidentelle de court et moyen terme.

En situation d'urgence où les échantillons peuvent être destinés à la réalisation de mesure par des moyens mobiles, souvent par spectrométrie gamma, un format de fiche susceptible de faire office d'étiquette d'identification peut être utilisé. En situation post-accidentelle, un type de fiche plus détaillée peut être envisagé [2].

Recommandations :

L'étiquetage, comportant les informations utiles à l'exploitation des résultats, doit être rendu solidaire du conteneur.

L'étiquette peut être collée directement sur le conteneur.

Si le risque de contamination du conteneur, après remplissage, est potentiel, chaque conteneur sera conditionné en sac plastique fermé sur lequel on aura collé préalablement l'étiquette ou la fiche rappelant toutes les informations nécessaires à l'identification.

Un exemple de fiche d'identification est donné tableau 4.

Référence du prélèvement		
Type d'accident		
Identification du préleveur (nom, organisme)		
Date		Heure
Lieu de prélèvement	__ ° __ ' __ ,	__ ° __ ' __ ,
Description de l'échantillon		
<input type="checkbox"/> Sol (terre - sable)	<input type="checkbox"/> Végétaux	<input type="checkbox"/> Liquide ³
<input type="checkbox"/> Filtre ¹	<input type="checkbox"/> Cartouche ¹	<input type="checkbox"/> Frottis
<input type="checkbox"/> Denrée alimentaire	<input type="checkbox"/> Échantillon biologique	<input type="checkbox"/> Autres
Traitement de l'échantillon (acidification, formol...)		
Observations		
Débit d'équivalent de dose au contact ²	nSv/h	
	μSv/h	

¹ indiquer le volume d'air prélevé

² rayer la mention inutile

³ indiquer la nature (eau de surface, profonde, pluie...)

Tableau 4 - Exemple de fiche d'identification susceptible de faire également office d'étiquette.

2.4. DEMANDE D'ANALYSE

Le préleveur n'a généralement pas l'information du type d'analyse qui sera demandé pour le prélèvement qu'il effectue. La demande d'analyse doit donc faire l'objet d'un document spécifique transmis au laboratoire de mesure, soit joint aux échantillons, soit diffusé par un moyen spécifique.

Recommandations :

La fiche de demande d'analyse doit établir :

- le type d'analyse à réaliser ;
- le niveau de performance métrologique souhaité ;
- l'identification des échantillons prioritaires.

Elle doit aussi indiquer :

- la référence de l'échantillon ;
- la nature de l'échantillon ;
- le demandeur de l'analyse ;
- le destinataire des résultats.

2.4.1. TYPE D'ANALYSE A REALISER

Dans la mesure du possible la demande d'analyse doit spécifier la nature des radionucléides recherchés.

2.4.2. NIVEAU DE PERFORMANCE METROLOGIQUE SOUHAITE

Le demandeur, particulièrement en situation d'urgence, est rarement en situation d'être très explicite sur le niveau de performance métrologique souhaité. Ce type d'information doit, dans de nombreux cas, être déduit par le laboratoire puis éventuellement confirmé, en lien avec le demandeur ou le destinataire des résultats, à partir de la connaissance des objectifs de l'analyse demandée.

3 catégories d'objectifs principales peuvent, *a priori*, être envisagées :

- établissement d'un marquage radiologique lié à l'accident considéré, pour contribuer par exemple à la validation d'un zonage de contamination obtenu par modélisation ou par d'autres moyens de mesure (véhicules laboratoires, mesures de débit de dose *in situ*) ;
- contrôle réglementaire lié par exemple à des décisions d'autorisation de consommation ou de commercialisation de denrées alimentaires ;
- expertise en vue par exemple du suivi chronologique de l'évolution d'un marquage avéré.

Ces différents objectifs conditionnent les performances à atteindre en termes d'incertitude ou de limite de détection. Ces performances sont également imposées par :

- l'état radiologique du lieu d'origine de l'échantillon avant l'évènement considéré ;
- la valeur des seuils réglementaires critères de décision ;
- l'amplitude des évolutions de marquage que l'on souhaite mettre en évidence.

Un exemple possible de mise en forme d'une fiche de demande d'analyses est donné ci-après.

Demande d'analyses	Laboratoire destinataire :
---------------------------	----------------------------

Objectif de la mesure

Marquage de l'environnement

Contrôle par rapport à seuil réglementaire (par exemple NMA) référence réglementaire à préciser :

Expertise

Type des échantillons

solide liquide filtre frottis Biologique Autre¹ :

Identification des échantillons

Référence préleveur ou demandeur de l'analyse	Lieu et heure de prélèvement	Nature de l'échantillon	Référence Laboratoire d'analyse

Mesure d'émetteurs γ

<input type="checkbox"/> artificiels (tous) <ul style="list-style-type: none"> <input type="checkbox"/> ⁶⁰Co <input type="checkbox"/> ¹³¹I <input type="checkbox"/> ¹³⁷Cs <input type="checkbox"/> ²⁴¹Am <input type="checkbox"/> autres ¹ :	<input type="checkbox"/> naturels (tous) <ul style="list-style-type: none"> <input type="checkbox"/> famille ²³⁸U, préciser les radionucléides : <input type="checkbox"/> famille ²³⁵U, préciser les radionucléides : <input type="checkbox"/> famille ²³²Th, préciser les radionucléides : <input type="checkbox"/> ⁴⁰K
---	--

Mesure globale

<input type="checkbox"/> α global	<input type="checkbox"/> β global
--	---

Mesure d'émetteurs β pur

<input type="checkbox"/> ³ H	<input type="checkbox"/> ⁹⁰ Sr :	<input type="checkbox"/> autres ¹ :
<input type="checkbox"/> ¹⁴ C		

Mesure α

<input type="checkbox"/> Am isotopique	<input type="checkbox"/> Pu isotopique	<input type="checkbox"/> Th isotopique	<input type="checkbox"/> U isotopique
<input type="checkbox"/> ²¹⁰ Po	<input type="checkbox"/> ²²⁶ Ra	<input type="checkbox"/> U pondéral	<input type="checkbox"/> autres ¹

à préciser

Observations

Destinataire des résultats :

Demandeur : Tel :	Date :	Signature :
----------------------	--------	-------------

Tableau 5 - Exemple d'une fiche de demande d'analyse.

2.4.3. DELAI D'ANALYSE

Les délais de restitution des résultats sont fonction de la nature des radionucléides recherchés, de la matrice à analyser et du niveau de performance souhaité. Ils dépendent également du nombre d'échantillons transmis simultanément et de la cadence de ces transmissions.

Selon les cas les délais d'analyse peuvent être de l'ordre de la demi-journée, la journée, la semaine, voire de plusieurs semaines en cas de traitement chimique complexe et de recherche d'une limite de détection ou d'une incertitude très basses.

A titre d'exemple quelques ordres de grandeur génériques sont indiqués dans le tableau 6.

Radionucléide	Alpha global + Bêta global	H-3 ; C-14	Mesures gamma Cs-137 ; Co-60 I-131 ; U-235 et autres	Mesures alpha U-234, 235, 238 ; Pu-238, 239, 240 ; Am-241	Sr-90
Délai	1 jour	0,5 jour	0,5 jour	1 semaine	3 jours

Tableau 6 - Ordre de grandeur de quelques délais d'analyses envisageables pour un niveau de performance type surveillance de l'environnement.

2.4.4. ÉCHANGE D'INFORMATIONS ENTRE LE PRESCRIPTEUR DE L'ANALYSE ET LE LABORATOIRE

Pour les analyses qu'il réalise, le laboratoire doit être en mesure de renseigner le prescripteur, rapidement et de manière synthétique : sur l'ordre de grandeur de ses délais d'analyse, des incertitudes et limites de détection envisageables. Il doit aussi pouvoir estimer sa capacité de mesure.

Recommandation :

Pour les principaux radionucléides pour lesquels il peut être sollicité, le laboratoire doit prévoir de disposer de fiches types, qu'il se procure ou qu'il établit. Ces fiches doivent faciliter les échanges avec les prescripteurs d'analyses, en situant clairement les contraintes et les possibilités relatives à l'analyse d'un radionucléide donné dans une matrice particulière.

Une forme très opérationnelle de ces fiches peut être envisagée. Elle peut s'inspirer, par exemple, du format proposé pour les études de sites contaminés sur le site du National Nuclear Laboratory (UK) accessible sur <http://www.nnl.co.uk/news/site-investigations-handbook-update.html> [5].

Les temps d'analyse indiqués correspondent à l'analyse d'un seul échantillon. Les temps d'analyse réels dépendent du nombre d'échantillons à analyser et du plan de charge des laboratoires.

Ils sont déclinés en 3 catégories qui peuvent être identifiées par un code couleur :

- Vert : Court : < 1-2 jours ;
- Orange : Moyen : 2-5 jours ;
- Rouge : Long > 5 jours.

Les radionucléides sont répartis en 4 catégories également identifiées par une couleur :

- Vert : émetteurs bêta pur de faible énergie, non détectables par comptage bêta global ;
- Bleu : émetteurs bêta pur de haute énergie, détectable par comptage bêta global ;
- Jaune : émetteurs bêta gamma, détectables par spectrométrie gamma ;
- Rouge : émetteurs alpha.

Les tableaux 7 et 8 montrent des exemples de fiches métrologiques opérationnelles.

Radionucléide		Période		Activité Spécifique			
H-3		12,33 ans		3,6 x 10 ⁺¹⁴ Bq/g			
Données Nucléaires							
Alpha		Bêta		X-Gamma		Autres	
keV	%	keV	%	keV	%		
		18,6	100				
Seuils d'exemption							
Quantité (Bq) : 10 ⁹				Concentration (Bq/g) : 10 ⁶			
Teneurs rencontrées usuellement dans l'environnement							
Naturellement présent dans toutes les eaux de surface à des teneurs < 1 Bq/L.							
Conservation des échantillons							
Le tritium est très mobile et peut facilement s'échapper de l'échantillon. Des précautions particulières sont nécessaires pour maintenir l'intégrité de l'échantillon, éviter des contaminations croisées et préserver le bruit de fond des laboratoires de traitement et de mesure. Un double emballage et une conservation au frais sont recommandés.							
Techniques d'analyses							
Type d'échantillon	Technique de séparation		Technique de mesure		Limite de détection	Délai	
Eaux	Distillation (HTO seulement)		Scint. liquide		5 Bq/L	Court	
Frottis	Comptage direct		Scint. liquide		0,05 Bq	Court	
Solides	Combustion (tritium total)		Scint. liquide		10 Bq/kg	Court	
Interférences possibles							
Distillation : avec les radionucléides volatiles (par exemple isotopes de l'iode et du ruthénium) si des techniques de distillation sont mises en œuvre et si l'échantillon n'est pas mis préalablement en milieu basique.							
Comptage direct : avec les autres émetteurs bêta/gamma potentiellement présents.							
Combustion : avec les radionucléides volatiles s'ils sont présents en proportion importante.							
Capacité de Mesure							
Autres informations							
Risque important de contaminations croisées.							
Les techniques de combustion permettent généralement de réaliser simultanément la détermination du C-14. Des échantillons issus de l'industrie pharmaceutique contiennent une forte proportion de tritium organiquement lié. Le tritium généré dans un échantillon par activation neutronique très fortement lié peut nécessiter des températures de combustion élevées.							

Tableau 7 - Exemple de fiche métrologique opérationnelle pour la mesure du tritium.

Radionucléide		Période		Activité Spécifique			
239Pu		24110 ans		2,3 x 10 ⁺⁹ Bq/g			
Données Nucléaires							
Alpha		Bêta		X-Gamma		Autres	
keV	%	keV	%	keV	%		
5105,5	11,9			51,6	0,03		
5144,3	17,1			129,3	6,3x10-3		
5156,6	70,8			375,1	1,6x10-3		
Seuils d'exemption							
Quantité (Bq) : 10 ⁴				Concentration (Bq/g) : 1			
Teneurs rencontrées usuellement dans l'environnement							
Sans objet							
Conservation des échantillons							
Les solutions aqueuses doivent être acidifiées pour éviter la précipitation. Pas de précautions particulières pour les échantillons solides.							
Techniques d'analyses							
Type d'échantillon	Technique de séparation		Technique de mesure		Limite de détection	Délai	
Eaux	Précipitation, séparation sur colonnes		Spectro alpha, ICPMS		0,005 Bq/L	Long	
Frottis	Comptage direct		Compteurs proportionnels		0,01 Bq	Court	
Solides	Précipitation, séparation sur colonnes		Spectro alpha, ICPMS		0,2 Bq/kg	Long	
Interférences possibles							
La spectrométrie alpha ne permet pas la discrimination de Pu-239 et Pu-240. Cette discrimination est obtenue par spectrométrie de masse.							
Capacité de Mesure							
Autres informations							
Par ailleurs, un autre système d'analyse se développe et est en service dans certains laboratoires permettant de réaliser des analyses Pu-239 rapides avec le système dit PERALS (extraction liquide-liquide spécifique avec scintillant puis mesure directe par SL - 100 mL - Quelques mBq/L en SD avec préparation < 1 heure).							

Tableau 8 - Exemple de fiche métrologique opérationnelle pour la mesure du plutonium 239.

3. EXPRESSION DES RESULTATS

Pour faciliter la lecture et la comparaison de résultats d'origines diverses, il est recommandé d'utiliser les unités suivantes :

Air	: Bq/m ³
Lait, eau	: Bq/L
Dépôt surfacique	: Bq/m ²
Sol	: Bq/kg sec et/ou Bq/m ²
Végétaux	: Bq/kg sec et/ou Bq/m ²
Denrées alimentaires	: Bq/kg frais

4. RECEPTION DES ECHANTILLONS AU LABORATOIRE

Il est souhaitable qu'un premier tri des échantillons soit réalisé en amont du laboratoire d'analyse.

Ce tri doit permettre, d'une part de limiter les risques de contamination croisée des échantillons, d'autre part de faire un choix raisonné du laboratoire destinataire en fonction de la gamme d'activité présumée.

En phase d'urgence, il peut être effectué, avant expédition au laboratoire, par mesure de débit de dose ou par spectrométrie gamma réalisées grâce aux moyens mobiles présents sur place.

En l'absence de moyens de mesure mobiles, il peut aussi s'appuyer sur l'origine géographique et sur la nature de la matrice, et conduire au regroupement des échantillons en fonction de leur niveau de contamination potentielle.

Recommandation :

Le laboratoire doit prévoir un lieu spécialement dédié à la réception des échantillons prélevés sur des territoires contaminés. Les conditions de leur conservation en attente de la mesure doivent aussi être prévues.

L'organisation du lieu de réception, qui peut être une structure temporaire, doit permettre d'assurer :

- la radioprotection du personnel ;
- la conservation et la non-contamination croisée des échantillons ;
- le maintien du bruit de fond des laboratoires à un niveau ne remettant pas en cause, par irradiation ou contamination, les performances métrologiques (cas d'échantillons à fortes teneurs en émetteurs gamma ou en tritium par exemple).

Les actions qui y sont réalisées sont les suivantes :

- le contrôle radiologique du débit de dose au contact et de la non-contamination externe du conteneur de l'échantillon ;
- la vérification de l'identification de tous les échantillons réceptionnés ;

- la vérification des informations de la fiche d'identification de l'échantillon et de la fiche de demande d'analyses ;
- l'étiquetage complémentaire éventuel et enregistrement des échantillons, de préférence dans l'outil de gestion du laboratoire pour garantir la traçabilité de l'ensemble des informations associées à l'échantillon ;
- le reconditionnement éventuel des échantillons pour éliminer le risque de contamination des installations de mesure vers lesquelles les échantillons sont finalement orientés ou pour transmettre au laboratoire une géométrie de mesure mieux adaptée à l'analyse demandée.

4.1. RADIOPROTECTION DU PERSONNEL

L'équipe de réception doit pouvoir disposer d'instruments de radioprotection [4] :

- radiamètre pour la mesure du débit de dose ;
- contaminamètre avec sonde alpha/bêta, gamma, voire X selon les radionucléides à rechercher pour la mesure de contamination.

Le personnel doit être formé à leur utilisation.

Des moyens conventionnels blouses, gants et si nécessaire des équipements individuels plus spécifiques (masques, lunettes, etc.) doivent être mis à sa disposition.

L'éventualité de la mise en place d'une dosimétrie individuelle passive, même si cette dosimétrie est absente en situation de routine, doit être envisagée.

4.2. PREVENTION DU RISQUE DE CONTAMINATION CROISEE ENTRE ECHANTILLONS

Pour limiter le risque de contamination des échantillons entre eux, les plans de travail utilisés doivent être décontaminables. Des bâches en vinyle et des bacs de rétention doivent être approvisionnés et disponibles en quantité suffisante.

Recommandation :

L'approvisionnement en moyens de protection divers : bâches en vinyle, blouses, gants et en équipements individuels plus spécifiques (masques, lunettes, etc.) doit aussi être prévu.

4.3. CONSERVATION EN ATTENTE DE TRAITEMENT

En situation accidentelle les flux d'échantillons peuvent être tels que les analyses ne puissent se faire dès réception.

A titre d'exemple, les tableaux 9 et 10 reprennent quelques recommandations [5] pour assurer la conservation respectivement d'échantillons solides et d'échantillons liquides. L'ISO 5667-3:2003 donne également des lignes directrices générales sur les précautions à prendre pour conserver et transporter toutes les sortes d'échantillons d'eau, y compris ceux destinés aux analyses biologiques, à l'exclusion de

ceux destinés aux analyses microbiologiques. Ces lignes directrices s'appliquent en particulier chaque fois qu'un échantillon ponctuel ou composite ne peut être analysé sur site et doit être transporté vers un laboratoire pour y être analysé.

Recommandation :

Afin d'assurer l'intégrité de l'échantillon dans le temps, les aspects logistiques doivent être prévus : lieux de stockage réfrigérés, aires de stockage ventilées...

Analyte	Conteneur de stockage	Préservation	Durées de stockage		Autres informations
			4 °C	-20 °C	
Solides non biodégradables					
Tritium et Iode	Verre de préférence ou Polyéthylène avec double emballage en cas de nécessité	Si polyéthylène : Feuille d'aluminium et double emballage	30 jours	6 mois	A l'obscurité
Autres radionucléides	Polyéthylène	s.o.	4 mois	>1 an	A l'obscurité
Solides biodégradables					
Tritium	Verre de préférence ou Polyéthylène avec double emballage en cas de nécessité	Si polyéthylène : Feuille d'aluminium et double emballage	Pas recommandé	6 mois	A l'obscurité
Autres radionucléides	Polyéthylène	s.o.	7 jours	1 an	A l'obscurité

Tableau 9 - Conservation d'échantillons solides.

Analyte	Conteneur de stockage	Préservation	Durées de stockage		Autres informations
			4 °C	-20 °C	
Alpha bêta global	Polyéthylène		1 mois		Si des matières en suspension sont présentes procéder à une filtration dès que possible
Spectrométrie gamma	Polyéthylène		1 mois		
H-3	Verre de préférence ou Polyéthylène avec double emballage en cas de nécessité	Si polyéthylène : Feuille d'aluminium et double emballage	2 mois		Si des matières en suspension sont présentes procéder à une filtration dès que possible
Sr-90	Polyéthylène	HNO ₃ pH<2	1 mois		Si dosage des iodes à prévoir remplacer HNO ₃ par HCl
C-14 ; Ru-106	Verre	4g/L NaOH			Si des matières en suspension sont présentes procéder à une filtration dès que possible
Iodes	Verre	2 mL sodium hypochlorite (à 10 % en poids ou en volume)/L	1 mois		
		Thiosulfate de sodium	1 mois		
Cs-134 ; Cs-137	Polyéthylène	HCl pH< 2	6 mois		
Plutonium	Polyéthylène	HNO ₃ concentré 12,5 mL /L	6 mois		1 mois maximum recommandé dans les normes
Actinides (Th, U, Np, Pu, Am)	Polyéthylène (rincé à l'acide)		6 mois		1 mois maximum recommandé dans les normes

Tableau 10 - Conservation d'échantillons d'eau.

4.4. ACTIONS A REALISER EN ZONE DE RECEPTION

4.4.1. *CONTROLE DU DEBIT DE DOSE AU CONTACT ET DE LA NON CONTAMINATION EXTERNE DES CONTENEURS*

Après vérification de l'intégrité du conditionnement de l'échantillon, le débit de dose est mesuré au contact de l'échantillon durant une dizaine de secondes. La valeur mesurée est comparée à celle éventuellement indiquée sur la fiche d'identification.

La non-contamination du conditionnement est vérifiée au moyen de la sonde alpha/bêta.

4.4.2. *ACCEPTABILITE DE L'ECHANTILLON*

En fonction du résultat des contrôles de radioprotection, des analyses demandées, du niveau d'activité potentiel, de la quantité de matière et de l'existence ou non des informations indispensables à l'exploitation du résultat de mesure, l'échantillon peut être jugé recevable ou non par le laboratoire. S'il est jugé recevable, il est transmis au poste d'enregistrement. Dans le cas contraire, un lieu de stockage temporaire doit être prévu dans l'attente d'un traitement ultérieur : information du demandeur, retour à l'expéditeur, élimination en déchet...

Des ordres de grandeur d'activités mesurables en routine par un laboratoire « environnement » doté d'une structure particulière pour la réception et le traitement des échantillons les plus actifs sont donnés en annexe 3.

Recommandation :

Le laboratoire doit prévoir dans la mesure du possible la gamme d'activité dont la mesure lui semble acceptable.

4.4.3. *ENREGISTREMENT DANS LE SYSTEME DE GESTION D'ECHANTILLONS DU LABORATOIRE*

Recommandation :

Si elles permettent l'assurance absolue de la traçabilité des caractéristiques essentielles de l'échantillon, chaque laboratoire doit conserver, dans la mesure du possible, ses procédures d'enregistrement habituelles.

Les renseignements indispensables à cette traçabilité sont extraits de la fiche d'identification et de la fiche de demande d'analyse associées à l'échantillon. Ces fiches sont ensuite archivées.

Si la nomenclature d'enregistrement du laboratoire l'impose, un ré-étiquetage de l'échantillon est pratiqué.

4.4.4. *CONTROLE PREALABLE PAR SPECTROMETRIE GAMMA*

La valeur du débit de dose au contact peut, dans le cas où une connaissance à priori du ou des radionucléides présents est possible, fournir un ordre de grandeur du niveau d'activité présent en

utilisant les données figurant dans [4]. Par exemple, pour le césium 137 en solution dans un bécher de 50 mL, on trouve un débit de dose au contact de l'ordre de 10^{-4} $\mu\text{Sv/h/Bq}$. Ce qui permet de situer, même grossièrement, aux alentours de quelques kBq un échantillon de forme approchante pour lequel le débit de dose au contact est de l'ordre du $\mu\text{Sv/h}$.

Cependant une mesure préliminaire par spectrométrie gamma est susceptible, d'une part de préciser le niveau d'activité probable des radionucléides présents, d'autre part d'estimer si l'établissement d'une corrélation entre la présence et l'activité d'émetteurs gamma dont la mesure est facilement accessible et celle d'émetteurs alpha, bêta pur ou même gamma, plus complexes à déterminer est envisageable (voir 10.1.4).

Recommandation :

Si la typologie de l'incident traité le rend pertinent (présence potentielle d'émetteurs gamma), il est conseillé de prévoir une orientation systématique des échantillons vers une première mesure par spectrométrie gamma.

Si l'échantillon est correctement conditionné, cette mesure par spectrométrie gamma peut être réalisée directement sur l'échantillon transmis. Sinon, il faut prévoir un reconditionnement. Si le mécanisme des passeurs d'échantillons éventuellement associé aux chaînes de spectrométrie gamma du laboratoire le permet, la géométrie de mesure est placée dans un nouveau sac plastique pour limiter les risques de contamination des supports du passeur d'échantillon et du détecteur.

Recommandation :

Si l'on s'attend à des activités relativement importantes (voir valeur du débit de dose), il est nécessaire de vérifier, dans le cas de la mise en œuvre d'un passeur d'échantillon, que l'activité d'un échantillon n'impacte pas sur celle de son proche voisin. En général les châteaux de plomb des passeurs ont une épaisseur moindre, et en cas d'activité non négligeable, peuvent laisser passer une fraction du rayonnement gamma et ainsi perturber les analyses.

A l'issue du contrôle, en fonction des pratiques habituelles du laboratoire, l'échantillon est envoyé dans le circuit d'analyse ou fait l'objet d'un traitement particulier à apprécier par le laboratoire.

5. GESTION DES DECHETS

La gestion des déchets générés, potentiellement contaminés, doit être prévue dès la réception et le tri des échantillons.

L'ANDRA édite un guide d'enlèvement des déchets radioactifs qui s'adresse aux producteurs ou aux détenteurs de déchets radioactifs hors secteur électronucléaire (hôpitaux, universités, laboratoires de recherche, industrie...). Les recommandations de ce guide sont adaptées aux besoins d'un laboratoire d'analyse sollicité en situation post-accidentelle. Ce guide est accessible sur le site www.andra.fr/ [6].

Il impose, par exemple, de distinguer la nature des déchets et de conditionner distinctement :

- flacons de scintillation en polyéthylène et leur contenant ;

- flacons de scintillation en verre et leur contenant ;
- solides incinérables ;
- solides non incinérables ;
- solutions aqueuses ;
- solvants ;
- huiles minérales ou organiques ;
- solides putrescibles.

Des critères tels que :

- le type d'émission radioactive,
- la période de décroissance,
- l'activité totale,
- le débit de dose au contact,
- la contamination surfacique,

sont également à prendre en compte.

Recommandation :

L'ANDRA fournit à la demande les 2 types d'emballages imposés pour le conditionnement de ces déchets : fûts de 120 L (F120) et fûts à bonde de 30 L (B3) dont l'approvisionnement peut être prévu par anticipation.

6. PREPARATION DES ECHANTILLONS

En situation de routine, afin de stopper l'évolution biologique et chimique de la matrice et d'assurer les conditions de conservation adaptées aux impératifs des techniques de mesure, les échantillons sont préparés avant stockage (séchage, calcination, acidification...). Le temps nécessaire à cette préparation doit être pris en compte dans la durée globale de l'analyse.

En phase d'urgence, dans le cas d'échantillons fortement contaminés, cette étape peut s'accompagner d'un risque élevé de contamination du matériel utilisé (broyeur, four, étuve, lyophilisateur...).

Recommandation :

En fonction de l'urgence de l'analyse et du niveau d'activité, la possibilité d'analyser l'échantillon frais, sans aucun traitement préalable, doit être envisagée systématiquement.

Après contrôle, acceptation, enregistrement et éventuellement mesure préliminaire par spectrométrie gamma, le fractionnement et le traitement des fractions destinées aux différentes analyses sont réalisés dans les laboratoires habituellement dédiés à ces activités.

Recommandation :

La norme NFV03-009-2 - Produits alimentaires - Mesure de la radioactivité dans les denrées alimentaires - guide pour la préparation des échantillons de denrées alimentaires - Obtention d'un échantillon pour essai - recommande de traiter, si possible, les échantillons dans l'ordre croissant de la radioactivité attendue.

La traçabilité des traitements subits et la connaissance de leurs facteurs de concentration (voir tableaux 2 et 3), doivent être assurées en considérant que, en particulier pour les denrées alimentaires, les résultats seront dans de nombreux cas à exprimer en Bq/kg poids frais.

Recommandation :

En cas d'analyses multiples, ou du souhait de pouvoir ré-analyser un échantillon déjà transformé, il est important de ne pas appliquer à l'ensemble de l'échantillon un traitement pour la conservation ou les besoins de l'analyse qui serait susceptible d'altérer ou de compliquer la mesure de radionucléides particuliers, par exemple par le séchage ou la calcination à des températures éliminant des radionucléides volatiles susceptibles d'être recherchés.

Le laboratoire de préparation doit lui aussi disposer des capacités de stockage des fractions préparées dans des conditions garantissant la conservation de l'intégrité de l'échantillon, la stabilité, l'absence de contamination croisée.

Recommandation :

En fonction du contexte, c'est dès l'étape de préparation que doit être prise en considération la nécessité de constituer une échantillothèque à partir de produits frais, congelés, séchés ou calcinés.

7. COMPTAGES

Recommandation :

En situation de crise, les contraintes, souvent fortes, de délai de rendu de résultats et le nombre important d'échantillons à mesurer impliquent en premier lieu de prévoir une optimisation du temps accordé aux mesures en considérant les impératifs d'incertitude de mesure et de limite de détection.

7.1. INCERTITUDE DE MESURE

Indépendamment de l'incertitude due à l'échantillonnage, les composantes de l'incertitude finale d'un résultat de mesure sont essentiellement :

- l'incertitude statistique de comptage ;
- l'incertitude du facteur d'étalonnage tenant éventuellement compte d'un écart entre les conditions d'étalonnage et les conditions de mesure dû :

- aux caractéristiques de l'échantillon (nature, géométrie) différentes de celle de l'étalon ;
- à l'hétérogénéité de l'échantillon mesuré ;
- l'incertitude sur les rendements des opérations de concentration ou de séparation chimique appliquées à l'échantillon frais avant la mesure.

Les composantes de l'incertitude liées à l'étalonnage et aux caractéristiques de l'échantillon sont détaillées, pour le cas des mesures par spectrométrie gamma, au chapitre 9 du guide.

La précision d'une mesure dépend en particulier du nombre de désintégrations (N) qui ont été détectées, donc du temps de mesure (t) et du rendement de détection de l'instrument de mesure. Le comptage associé à son incertitude statistique s'écrit :

$$N \pm \sqrt{N}$$

Si l'on exprime le taux de comptage $n = N/t$ (impulsions dénombrées par unité de temps), le taux de comptage associé à son incertitude statistique s'écrit :

$$n \pm \sqrt{\frac{n}{t}}$$

S'il est acceptable pour l'objectif de mesure que l'on s'est fixé, de dégrader l'incertitude statistique de comptage d'un facteur 10, alors un gain d'un facteur 100 sur le temps de comptage peut être obtenu.

Le tableau 11 montre l'évolution de l'incertitude statistique de comptage en fonction du nombre d'impulsions dénombrées.

Objectif d'incertitude statistique de comptage (k=1)	Nombre d'impulsions à dénombrer
10 %	100
5 %	400
2 %	2500
1 %	10 000
0,5 %	40 000
0,1 %	1 000 000

Tableau 11 - Évolution de l'incertitude statistique de comptage en fonction du nombre d'impulsions dénombrées.

Recommandation :

Lorsque les dispositifs de comptage le permettent, il peut-être utile de définir le nombre d'impulsions à dénombrer en lieu et place de la durée du comptage. Le comptage s'arrête alors dès que ce nombre est atteint et, si le détecteur est équipé d'un passeur automatique, la mesure d'un nouvel échantillon peut être engagée.

7.2. LIMITE DE DETECTION

7.2.1. DEFINITION

La plus petite valeur d'activité détectable lors de la mesure dépend, elle aussi, du temps accordé à cette mesure ainsi que du bruit de fond de l'installation de comptage (comptage observé en l'absence de l'échantillon à mesurer ou du radionucléide recherché).

Elle est déterminée par rapport à une valeur dite « Seuil de Décision » (SD).

Dans le cas de la recherche de très faibles activités, la mesure d'un échantillon peut donner un résultat très proche de celui obtenu lors de la détermination du bruit de fond de l'installation de mesure.

Compte tenu du caractère aléatoire du processus de désintégration radioactive, un résultat très légèrement supérieur au bruit de fond mesuré ne donne pas l'assurance totale d'une présence de radioactivité, pas plus qu'un résultat très légèrement inférieur à ce même bruit de fond ne garantit l'absence de cette radioactivité (figure 1).

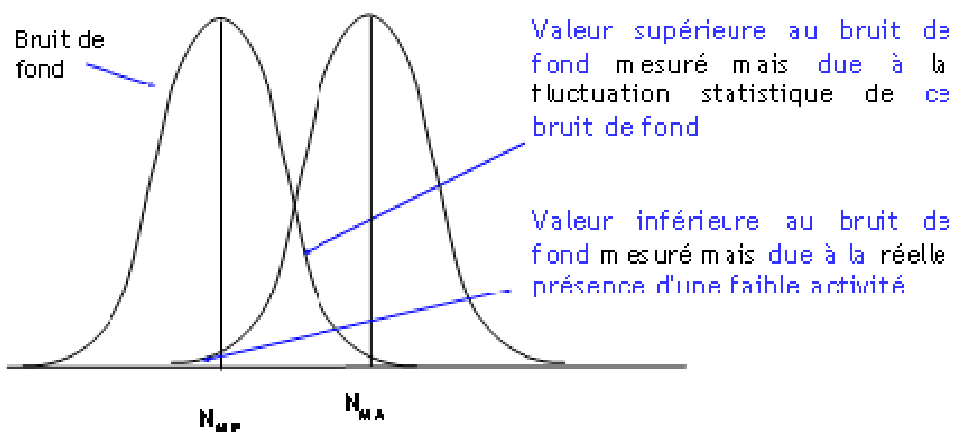


Figure 1 - Distributions des nombres d'impulsions susceptibles d'être observés lors d'une mesure de bruit de fond (MP) et d'une mesure de très faible activité (MA).

Pour se prononcer, l'analyste fait appel aux notions de seuil de décision et de limite de détection caractérisant sa technique de mesure.

Le seuil de décision correspond à une valeur de comptage, SD, pour laquelle on estime que, compte tenu des fluctuations statistiques du bruit de fond, on peut affirmer, avec une probabilité suffisamment élevée de ne pas se tromper (notion de risque α), qu'un comptage supérieur à cette

valeur SD révèle effectivement la présence de radioactivité dans l'échantillon mesuré. L'activité de l'échantillon et son incertitude peuvent alors être calculées.

Si par contre la mesure de l'échantillon donne un comptage inférieur à cette valeur SD, on peut seulement affirmer, également avec une probabilité quantifiée de ne pas se tromper (notion de risque β), que même si une radioactivité est présente, bien que n'ayant pas été détectée, elle est en tous cas inférieure à une valeur appelée Limite de Détection (LD). Selon les techniques de mesure LD est approximativement égale à 2SD.

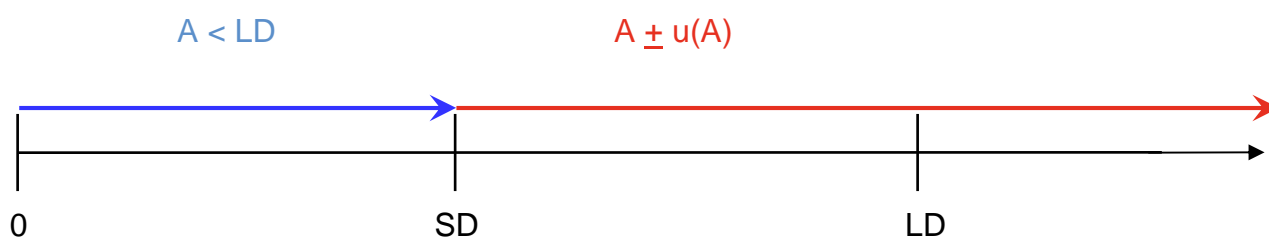


Figure 2 - Expression du résultat en fonction du seuil et de la limite de détection.

En première approximation la valeur de SD correspond en fait à une mesure dont la seule incertitude statistique de comptage est égale à 100 %. Dans certains cas, quand on ajoute les autres composantes d'incertitude (étalonnage, rendement chimique...) on peut obtenir une incertitude globale sur la valeur exprimée supérieure à 100 %, par exemple : $A = (50 \pm 53) \text{ Bq}$, ce qui peut être troublant pour le destinataire du résultat.

Les évolutions récentes apportées par la norme ISO 11929 sur la « détermination de la limite de détection et du seuil de décision des mesurages de rayonnements ionisants », en cours de déploiement dans les laboratoires, portent essentiellement sur les bases théoriques du calcul des valeurs de SD et de LD.

Jusqu'à présent, seuil de décision et limite de détection étaient déterminés dans le respect des travaux de Currie (1968) [7], considérant uniquement des sources de fluctuation de comptages de nature aléatoire (incertitude de type A). La norme ISO 11929 s'appuie sur une théorie dite « Bayésienne » prenant aussi en compte des incertitudes de type B, liées par exemple aux variations de rendement chimique et aux incertitudes d'étalonnage etc. Elle introduit également des modifications dans le mode d'expression des résultats sans toutefois remettre en cause la nature des conclusions quant à la présence ou non de radioactivité dans un échantillon.

Avec l'application progressive de cette nouvelle norme ISO 11929 dans les normes techniques, si le résultat de mesure est supérieur ou égal au seuil de décision, le laboratoire doit rendre le résultat accompagné de son incertitude relative élargie à $k=2$. Par contre, si le résultat est inférieur au seuil de décision (SD), le laboratoire rendra désormais une valeur inférieure à ce SD.

La limite de détection servira uniquement à vérifier, dans le cas d'une valeur limite définie par le demandeur de l'analyse ou d'un seuil réglementaire à respecter (LR), que le système de mesure et la méthode sont adaptés au besoin, c'est-à-dire si $LD < LR$.

7.2.2. FACTEURS D'INFLUENCE DE LA LIMITE DE DETECTION

Les limites de détection usuelles en surveillance de l'environnement sont données en annexe 2. Les facteurs d'influence de la limite de détection sont :

- au moment du prélèvement (par exemple filtres aérosols) :
 - la durée et le débit du prélèvement d'air ;
- au moment du traitement de l'échantillon :
 - la prise d'essai ;
 - les facteurs de concentration ;
 - les rendements de séparation chimique ;
- au moment de la mesure :
 - le nombre d'impulsions dénombrées (temps de comptage, taux de comptage) ;
 - le bruit de fond de l'instrument de mesure ;
 - dans le cas particulier des spectrométries alpha et gamma, la présence d'autres radionucléides.

Le laboratoire pourra donc agir soit au moment du traitement de l'échantillon soit au moment de la mesure pour adapter son niveau de performance au besoin exprimé par le demandeur.

Si après traitement de l'échantillon la source obtenue est mesurée avec une LD de 1 Bq :

- pour une source issue du traitement de 1 g d'échantillon la LD est 1 Bq/g ;
- pour une source issue du traitement de 1 kg d'échantillon la LD est 1 mBq/g.

7.2.3. EXEMPLE DE REDEFINITION DU TEMPS DE COMPTAGE PAR RAPPORT A L'OBJECTIF FIXE PAR LA DEMANDE D'ANALYSE

Les contrôles réglementaires relatifs à des décisions d'autorisation de consommation ou de commercialisation de denrées alimentaires s'appuient sur des niveaux maximaux admissibles d'activité [8].

Un objectif de limite de détection égale à quelques % (1 à 10 %) de la valeur réglementaire à partir de laquelle on jugera de la qualité d'une denrée alimentaire est suffisant pour exprimer avec un niveau d'incertitude acceptable toute valeur significative supérieure au seuil de décision.

En première approximation la limite de détection est inversement proportionnelle à la racine carrée du temps de comptage :

$$\frac{LD_1}{LD_2} \cong \sqrt{\frac{t_2}{t_1}}$$

L'évolution théorique de la limite de détection en fonction du temps de comptage (toutes choses égales par ailleurs) est présentée figure 3.

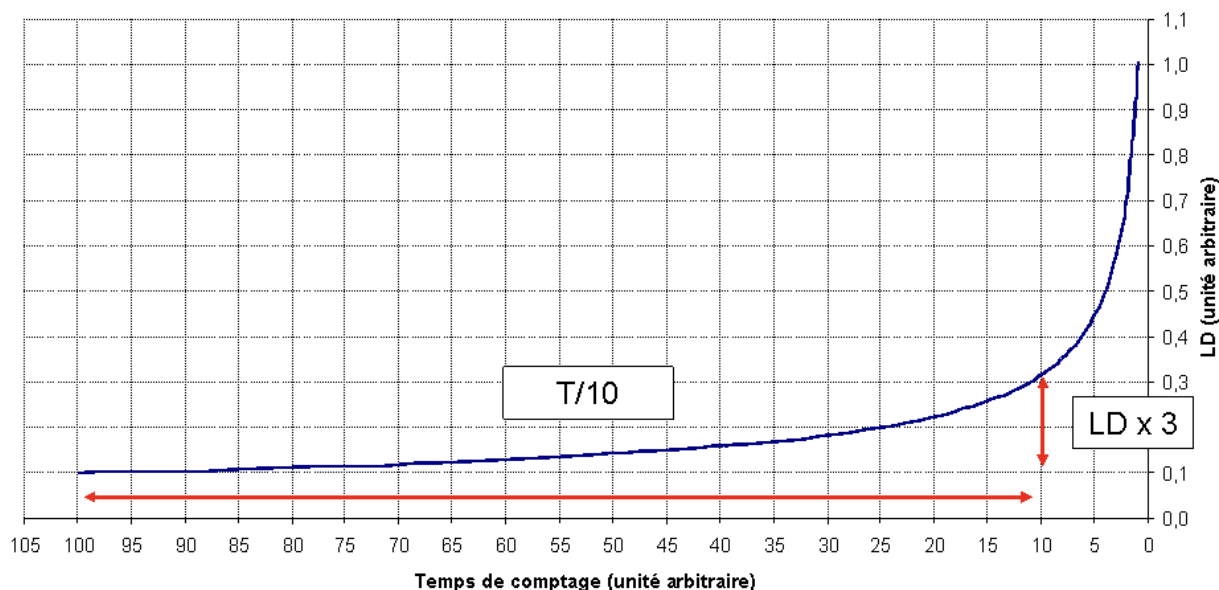


Figure 3 - Évolution théorique de la limite de détection en fonction du temps de comptage. L'abaissement de la limite d'un facteur 3 nécessite un temps de comptage 10 fois plus long.

Le tableau 12 montre un exemple de réduction du temps de comptage permettant de juger, avec la précision suffisante, d'un éventuel dépassement de niveau maximal admissible pour des denrées alimentaires.

LD Routine	NMA	LD Crise (NMA/100)
1 Bq/kg	400 Bq/kg	4 Bq/kg
Temps de mesure 6 heures		Temps de mesure < 0,5 heure*

* temps de comptage permettant d'atteindre les LD visées mais aussi d'avoir les niveaux d'incertitude souhaités (20 % ; 50% ?) pour des activités peu supérieures au seuil de décision.

Tableau 12 - Exemple d'adaptation du temps de comptage en fonction de la LD à atteindre.

S'il est acceptable, pour l'objectif de mesure que l'on s'est fixé, de dégrader la limite de détection d'un facteur 3 alors un gain d'un facteur de l'ordre de 10 sur le temps de comptage peut être obtenu.

8. RADIONUCLÉIDES D'INTERET

En situation accidentelle, les radionucléides auxquels les laboratoires de mesure risquent de se trouver confrontés sont potentiellement plus nombreux et différents de ceux qu'ils mesurent habituellement. La nature de ces radionucléides est fonction du type d'accident, mais aussi du temps écoulé depuis la fin des rejets.

A l'exception du tritium, du strontium 89 et 90 et des émetteurs alpha purs il est possible de détecter la plupart des radionucléides artificiels au moyen de la spectrométrie gamma.

A titre d'exemples non exhaustifs on peut citer certains radionucléides attendus selon le type d'incident [9].

8.1. DANS LE CAS D'UN INCIDENT SUR UN REACTEUR AYANT CONDUIT A LA FUSION DU CŒUR AVEC OU SANS RUPTURE DE CONFINEMENT

Le 1^{er} jour (radionucléides ayant une période supérieure à 6 heures) :

Y-90, Sr-91, Y-93, Nb-96, Mo-99, Rh-105, Pd-109, Ag-111, Pd-112, Cd-115, Sn-121, Sn-125, Sb-126, Sb-127, I-131, I-132, Te-131m, Te-132, I-133, I-135, La-140, Pr-142, Ce-143, Pr-143, Ba-146, Nd-147, Pm-149, Pm-151, Eu-152m, Sm-153, Sm-156, Eu-157, Np-239.

La première semaine (radionucléides ayant une période supérieure à 1 jour) :

Rh-86, Sr-89, Y-90, Y-91, Nb-95, Zr-95, Nb-96, Mo-99, Tb-160, Ru-103, Rh-105, Ag-111, Pd-112, Cd-115, Cd-115m, Sn-121, Sb-124, Sn-125, Sb-127, I-131, Te-131m, Te-132, I-133, Cs-136, Ba-140, La-140, Ce-141, Ce-143, Pr-143, Nd-147, Pm-149, Pm-151, Sm-143, Np-239.

A long terme :

H-3, Sr-89, Sr-90, Y-91, Nb-93m, Nb-95, Ru-103, Ru-106, Ag-110m, Cd-113m, Cd-115m, Sn-121m, Sn-123, Sb-124, Sb-125, I-129, Cs-134, Cs-137, Ce-141, Ce-144, Pm-147, Tb-160, Pu-238, Pu-239, Pu-240, Am-241, Pu-241, Cm-242, Pu-242, Am-243, Cm-244.

8.2. DANS LE CAS D'UN INCIDENT SUR UN REACTEUR AYANT CONDUIT A LA FUSION DU CŒUR AVEC PIEGEAGE DES PARTICULES

Le 1^{er} jour :

H-3, Rb-88, Sr-89, Sr-90, Y-90, Sr-91, Y-91, Ru-103, Ru-105, Ru-106, I-121, I-123, I-132, I-134, I-135, Cs-136, Cs-137, Cs-138, Cs-139, Ba-139, Ba-140, La-140.

La première semaine :

H-3, Sr-89, Sr-90, Ru-103, Ru-105, Ru-106, I-131, I-133, Ba-140, La-140.

A long terme :

H-3, Sr-89, Sr-90, Tc-99, Ru-103, Ru-106, I-129, I-131, Cs-137.

8.3. REJET ACCIDENTEL D'UNE USINE DE RETRAITEMENT

Sr-90, Nb-95, Zr-95, Tc-99, Ru-103, Ru-106, I-129, I-131, Cs-134, Cs-137, Ce-141, Ce-144, Pu-238, Pu-239, Pu-240, Am-241, Pu-241, Cm-242, Pu-242, Am-234, Cm-244.

8.4. REJET ACCIDENTEL D'UNE USINE DE FABRICATION DE PU

Pu-238, Pu-239, Pu-240, Am-241, Pu-241, Pu-242.

8.5. RADIONUCLEIDES LES PLUS DOSANTS

Recommandation :

Les radionucléides susceptibles d'avoir un impact dosimétrique seront à considérer avec une attention particulière. Le laboratoire doit donc s'interroger sur sa capacité à les quantifier dans différents types de matrices.

On peut citer de manière non exhaustive : Sr-89, Sr-90/Y-90, Nb-95, I-131, I-132, I-133, I-135, Te-132, Cs-134, Cs-137, Ba-140, La-140, Ce-144, Pu-238, Pu-239, Pu-240, Pu-241, Am-241, Cm-242, Cm-244...

9. MESURES PAR SPECTROMETRIE GAMMA

En situation de crise, la spectrométrie gamma, technique de mesure, qualitative et quantitative, ne nécessitant pas de traitement de l'échantillon, donc non destructive, est adaptée à l'ensemble des matrices (air, eau, sol, sédiments, végétaux). Son utilisation doit être, chaque fois que possible, privilégiée.

La mesure peut éventuellement être associée à des actions de concentration par évaporation de certains liquides, broyage, séchage, compression de certains végétaux ou sols pour obtenir des abaissements de limite de détection.

Le dossier de recommandation pour l'optimisation des mesures édité par la CETAMA [3] décrit tous les aspects essentiels de la spectrométrie gamma appliquée aux échantillons de l'environnement. Ne sont traités ici que les aspects propres à la mise en œuvre de cette technique de mesure en situation de crise.

9.1. RISQUE DE CONTAMINATION DES INSTALLATIONS

Compte tenu, dans la majorité des cas, de l'absence de nécessité d'un prétraitement, les échantillons directement issus du prélèvement peuvent être présentés aux chaînes de mesure. Même si le contrôle de non contamination des échantillons est organisé, il est nécessaire de s'assurer qu'aucune contamination durable du détecteur, des supports des passeurs d'échantillons et de la face interne des blindages, qui compromettrait la justesse des résultats ou les limites de détection, n'est possible.

Si la mise en place des échantillons sur le détecteur est faite manuellement, ou si le mécanisme du passeur d'échantillon le permet, le maintien lors de la mesure du conteneur dans le sac zippé éventuellement utilisé pour l'expédition ou dans un sac de remplacement est envisageable à condition qu'il modifie peu la géométrie de mesure dans laquelle a été réalisé l'étalonnage.

Recommandation :

La précaution minimale consiste à recouvrir le capot du détecteur d'un film plastique qui pourra être changé en cas de contamination accidentelle. La fréquence du contrôle périodique des supports d'échantillons et bien sûr du bruit de fond global de l'installation est à adapter en fonction du flux d'échantillons mesurés et du risque potentiel de contamination.

9.2. DETECTEURS GAMMA

La majorité des radionucléides émetteurs gamma se caractérise par des raies d'énergies comprises entre 40 keV et 2 MeV.

Les types de détecteurs les plus classiquement rencontrés dans les laboratoires sont les détecteurs au germanium (GeHp) coaxiaux de type N ou de type P d'environ 40 % d'efficacité.

Un détecteur coaxial de type N permet, contrairement à un détecteur de type P, d'accéder à la plage d'énergie de 5 à 50 keV avec un bon rendement de détection nécessaire par exemple à la mesure de radionucléides d'énergie < 100 keV : Pb-210 (46,54 keV) ; I-129 (29 keV).

9.3. LIMITE DE DETECTION

En spectrométrie gamma, pour un radionucléide donné, au-delà des autres facteurs d'influence, la limite de détection est également fonction des autres radionucléides présents dans l'échantillon et de leur contribution au spectre à analyser.

L'évolution de la limite de détection en fonction du temps de comptage et du bruit de fond à l'énergie considérée peut s'écrire :

$$\frac{LD_1}{LD_2} \cong \sqrt{\frac{t_2}{t_1}} \times \sqrt{\frac{BdF_1}{BdF_2}}$$

Par convention les performances en termes de limite de détection sont généralement données pour Cs-137. Le tableau 13 montre quelques exemples de limites de détection obtenues en routine par les laboratoires de surveillance de l'environnement, sur diverses matrices, conditionnées dans des géométries différentes.

Matrice	Sol	Céréales	Végétaux	Poisson Viande	Lait
Quantité	500 g	500 g	prélèvement 1m x1 m	équivalent 2 L	2 L
Préparation	séchage broyage	s.o.	séchage broyage	découpage et mise en vrac	ajout de conservateur
Géométrie	galette	SG500	galette	Marinelli 2L	Marinelli 2L
Temps de comptage	6 heures	6 heures	6 heures	6 heures	6 heures
LD	5 Bq/kg	1,2 Bq/kg	5 Bq/kg	0,3 Bq/kg	0,3 Bq/L

Tableau 13 - Exemples de limites de détection (Cs-137) obtenues en conditions de routine par spectrométrie gamma.

9.4. CONDITIONS DE MESURE

La justesse d'un résultat de mesure quantitative par spectrométrie gamma dépend essentiellement de la connaissance du rendement de détection de la chaîne de mesure.

La valeur de ce rendement de détection est fonction de :

- la géométrie de comptage (conteneur + détecteur) ;
- la nature de l'échantillon ;
- l'énergie des rayonnements gamma mesurés.

Au-delà du fait que les activités présentes dans les échantillons peuvent être significativement plus élevées que celles rencontrées dans les échantillons mesurés en routine, les conditions de mesure par spectrométrie gamma, particulièrement dans la phase d'urgence et dans la phase post-accidentelle de court terme, se caractérisent par la mesure d'échantillons dont les caractéristiques sont sensiblement différentes des conditions d'étalonnage des laboratoires.

En situation d'urgence, le remplissage du conteneur, la composition, la densité, l'homogénéité de l'échantillon, peuvent être éloignés des conditions de l'étalonnage.

Il est possible d'estimer, soit expérimentalement [10], soit par simulation, l'ordre de grandeur des erreurs dues à ces différences.

Dans la suite du chapitre les estimations ont été déduites des simulations réalisées au moyen du logiciel GESPECOR (Germanium Spectrometry Correction Factor) [11].

Toutes les simulations ont été effectuées pour une géométrie d'échantillon de 500 mL, à 6 énergies de radionucléides représentatifs de la gamme 50 à 1500 keV : Am-241 (59 keV); Co-57 (122 keV); I-131 (364 keV); Cs-137 (662 keV); Co-60 (1173 et 1332 keV).

9.4.1. GEOMETRIE DE MESURE

Les laboratoires mesurant des échantillons de faible activité placent généralement ces échantillons au contact du détecteur.

De nombreux types de conteneurs standardisés (géométries enveloppantes « Marinelli » ou non), dont les volumes varient de quelques dizaines de cm³ à plusieurs litres sont utilisés pour les mesures [12].

Recommandation :

En situation d'urgence on privilégiera la mesure sur des échantillons conditionnés en géométrie de type SG500, géométrie la plus répandue dans les laboratoires et présentant un bon compromis quantité de matière/efficacité de détection sur une large plage d'énergies. Il est préférable d'utiliser un conteneur transparent disposant d'une marque permettant de vérifier le niveau de remplissage.

Les laboratoires veilleront à disposer d'un stock suffisant de ce type de conteneur.

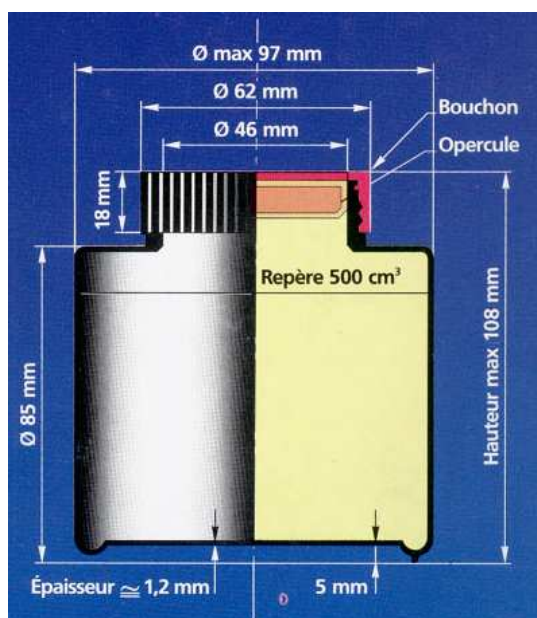


Figure 4 - Flacon normalisé SG 500.

9.4.2. CONDITIONS DE REMPLISSAGE DES CONTENEURS

Le niveau de remplissage normal d'un SG500, correspondant au trait de jauge marqué sur le conteneur, est de 6,8 cm. En conditions d'urgence, il peut donc arriver que les conteneurs soient remplis soit par excès soit par défaut.

A titre d'exemple, au contact d'un détecteur GeHp coaxial 40% de type N, pour un échantillon d'eau, le fait de mesurer un SG500 rempli à 5 cm, alors que l'étalonnage du détecteur a été réalisé à la marque de 6,8 cm indiquée sur le conteneur, induit une surestimation de l'activité de plus de 20% à haute énergie et de près de 30% à 60 keV (figure 5). Pour des remplissages inférieurs à 5 cm la surestimation devient rapidement très importante.

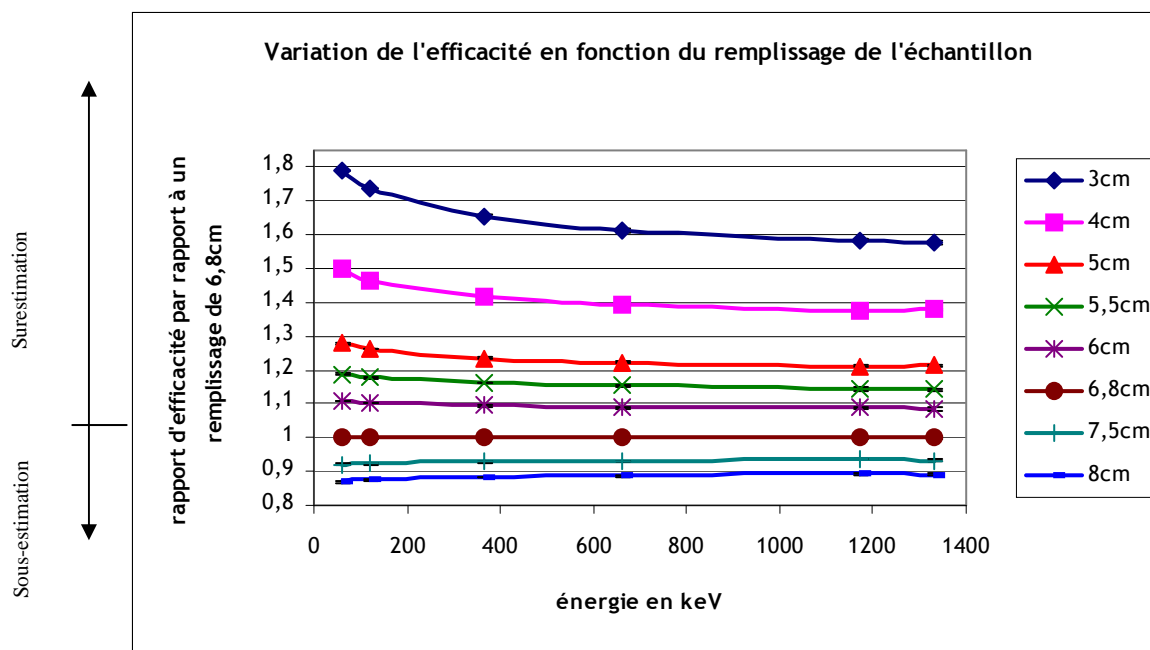


Figure 5 - Variation de l'efficacité en fonction du remplissage d'un SG 500 avec un échantillon d'eau.

Une géométrie pas assez remplie induit une surestimation de l'activité (15 à 20 % selon l'énergie).

Une géométrie trop remplie induit moins d'erreur (inférieure à 15 %) mais une sous-estimation de l'activité.

L'effet observé est d'autant plus marqué que la densité de l'échantillon est élevée.

9.4.3. INHOMOGENEITE DE L'ECHANTILLON

L'efficacité de détection est déterminée par la mesure d'un étalon dont l'activité est répartie de manière homogène. La mesure d'un échantillon non homogène peut provoquer, selon les cas, une sous-estimation ou une surestimation de l'activité réellement présente (voir figure 6).

Par exemple, pour un échantillon de sol de densité 1, rempli à la marque (6,8 cm) et placé au contact du détecteur (GeHp coaxial 40 % de type N), la mesure d'un échantillon dont l'activité est concentrée dans le cm supérieur conduit, en moyenne, à une sous estimation de l'activité de l'ordre d'un facteur 2,5. Cette sous-estimation peut atteindre un facteur 5 pour les basses énergies. A l'inverse si l'activité se trouve concentrée dans le cm inférieur de l'échantillon, l'activité présente peut être surestimée d'un facteur 2 à 3.

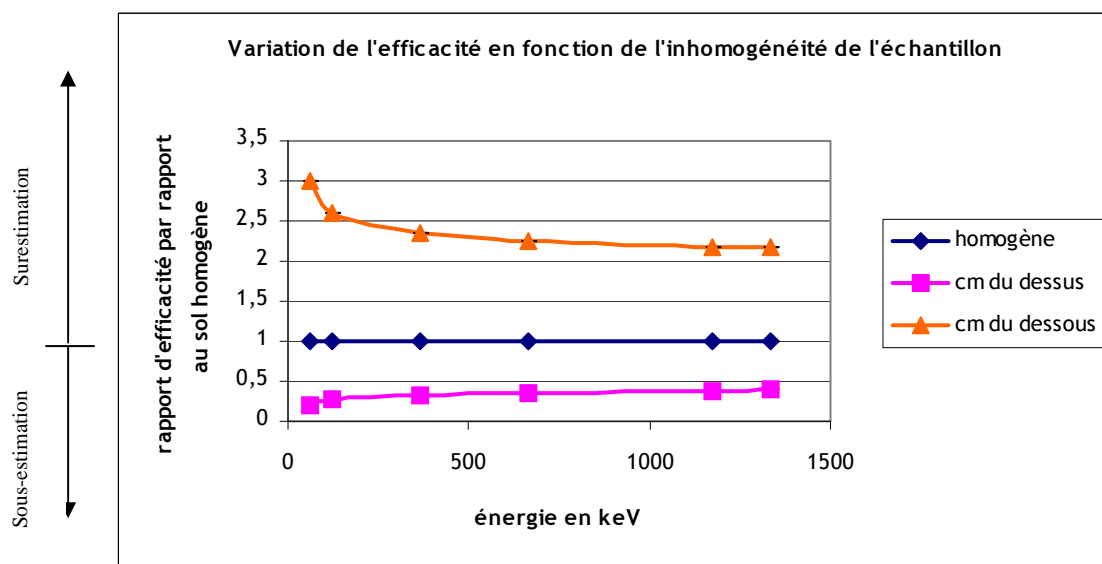


Figure 6 - Variation de l'efficacité en fonction de l'inhomogénéité de l'échantillon (sol densité 1).

Les effets liés à l'inhomogénéité d'un échantillon sont d'autant plus critiques que la densité de cet échantillon est élevée.

9.4.4. DENSITE DE L'ECHANTILLON

Les laboratoires ne disposent généralement que d'une gamme limitée d'étalons. De grandes variations de densité peuvent être constatées sur certains types d'échantillons et pour la majorité des laboratoires il n'est pas envisageable de disposer d'étalons adaptés à chaque cas de figure ou de logiciels de calcul permettant de recalculer, pour différentes matrices, une courbe d'efficacité à partir d'un étalonnage réalisé avec une solution aqueuse.

Recommandation :

La densité de l'échantillon peut-être grossièrement estimée par pesée. Un conteneur SG500 rempli à la marque contient par définition 500 cm³ de matière et la tare du conteneur est en moyenne de 60,8 g.

Les densités d'échantillons végétaux mesurés habituellement peuvent varier entre 0,1 et 1. Si le laboratoire dispose d'étalons représentatifs d'une densité de 0,3 (voir figure 7) la mesure d'échantillons de densité comprises en 0,1 et 1 peut conduire à :

- une surestimation de l'activité d'échantillons de densité inférieure à 0,3 allant jusqu'à 12 % à basse énergie ;
- une sous-estimation de l'activité d'échantillons de densité supérieure à 0,3 allant jusqu'à 30 % à basse énergie.

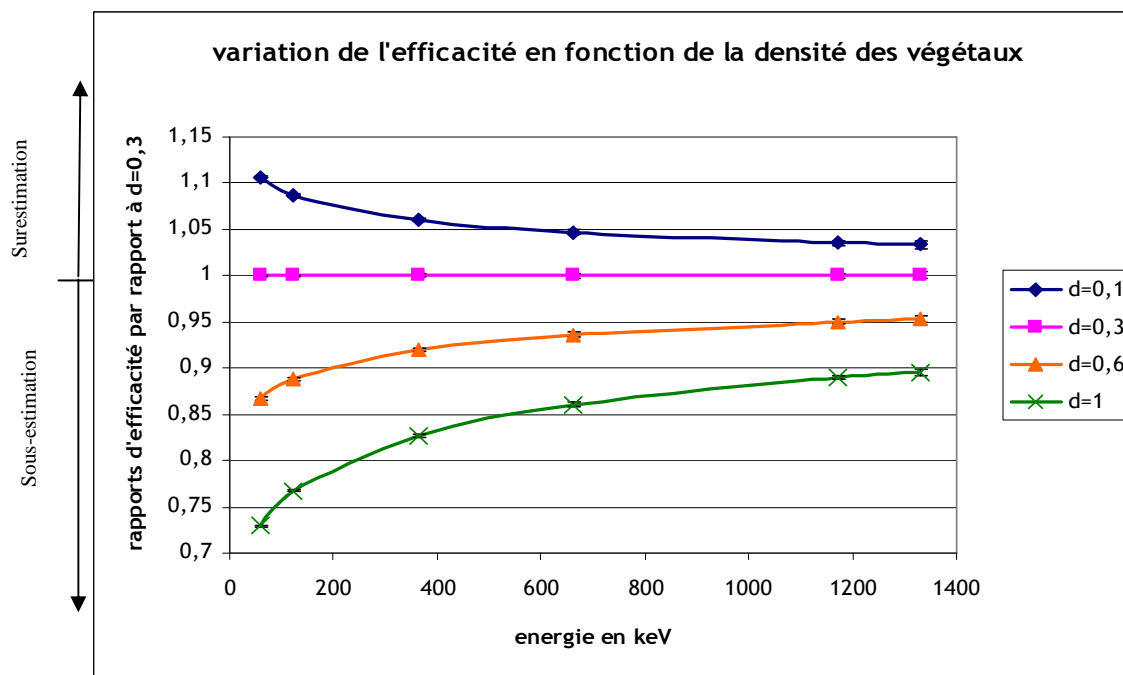


Figure 7 - Variation de l'efficacité en fonction de la densité d'un échantillon de végétaux.

De la même manière pour des échantillons de sol dont la densité peut varier entre 0,5 et 2 on observe (voir figure 8) que l'utilisation d'un étalonnage effectué au moyen d'un échantillon de densité 1 peut conduire à :

- une surestimation de l'activité d'échantillons de densité inférieure à 1 ;
- une sous-estimation de l'activité d'échantillons de densité supérieure à 1 ;

Ces écarts de l'ordre de 10 à 15 % à haute énergie peuvent aller jusqu'à 35 à 40 % à basse énergie.

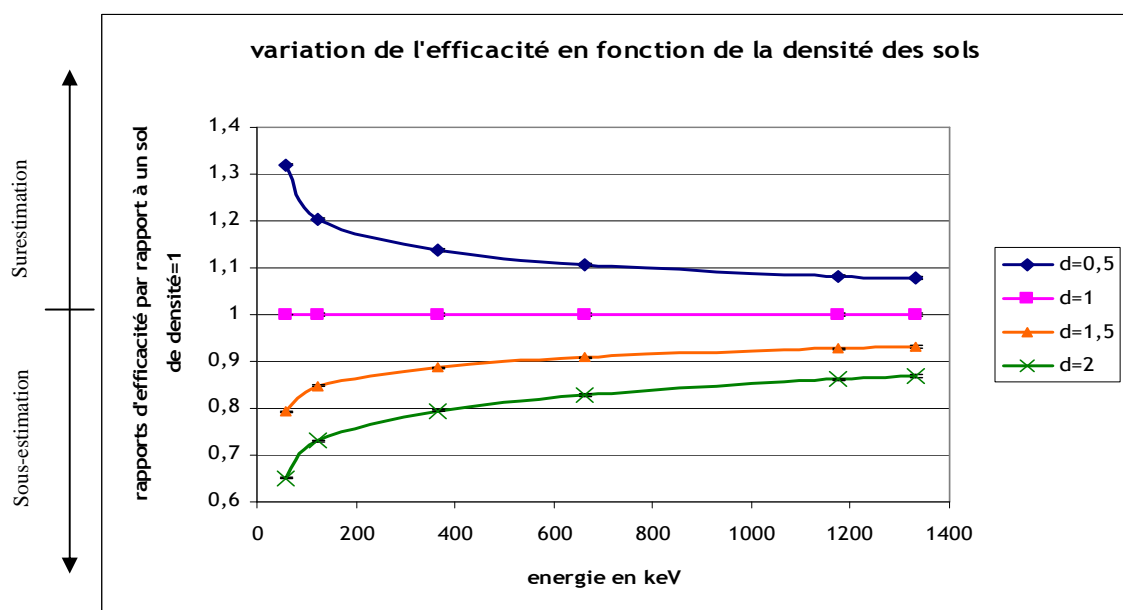


Figure 8 - Variation de l'efficacité en fonction de la densité d'un échantillon de sol.

9.4.5. COMPOSITION ELEMENTAIRE DE L'ECHANTILLON

A basse énergie (<50 keV) par exemple pour la mesure de I-129 ($E_\gamma = 29$ keV) l'influence de la composition élémentaire de l'échantillon est prépondérante sur celle de la densité. Si cette composition est connue, des logiciels librement accessibles permettent le calcul des coefficients d'auto atténuation [13].

Par exemple, dans le cas de l'analyse de sol si l'on retient les caractéristiques respectives de 3 types de sols :

- sol normal : O, Si, Al, Fe, H Z moy = 12,4
- sol minéral : O, Si, Al, Ca, Mg, K, Ti, Mn Z moy = 16,6
- sol tourbeux : O, C, H, N, S Z moy = 7,6

En admettant des densités équivalentes de 1, les variations liées à la composition deviennent prépondérantes dès 60 keV (-20%). Elles ne peuvent être considérées comme négligeables qu'à partir de 100 keV (voir figure 9 et [3]).

Recommandation :

Dans la pratique, en l'absence de la connaissance des caractéristiques de la matrice, l'analyse d'un premier spectre présentant sur une large gamme d'énergies, soit des raies d'un même radionucléide, soit des raies de divers radionucléides d'une même chaîne de désintégration dont on peut établir les conditions d'équilibre, permet de définir simplement des coefficients de correction d'auto atténuation à appliquer pour les échantillons de même type [3].

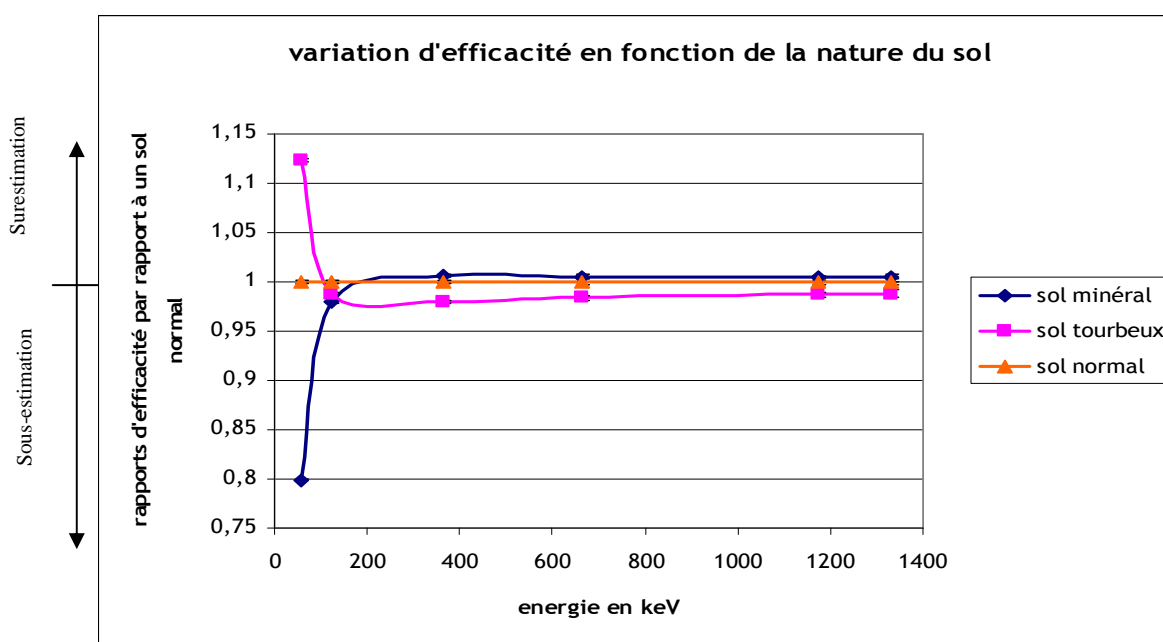


Figure 9 - Variation de l'efficacité en fonction de la composition de l'échantillon.

9.4.6. NIVEAU D'ACTIVITE

En situation d'urgence ou post-accidentelle, on ne peut exclure que des niveaux d'activité élevés rencontrés sur certains échantillons puissent provoquer une saturation de l'électronique de mesure qui doit être prise en compte par la correction du « temps mort » de l'installation. Ce type de correction, habituellement négligeable, n'est généralement pas appliqué par les laboratoires « environnement ».

En cas de nécessité l'éloignement du détecteur peut permettre, en diminuant l'efficacité géométrique de réduire le taux de comptage (voir figure 10 et figure 11).

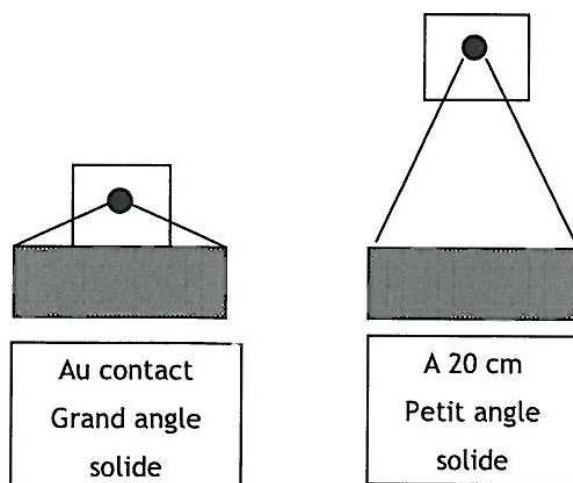


Figure 10 - Angle solide de comptage.

Le fait de placer l'échantillon à 5 cm du détecteur permet de diviser par trois le taux de comptage sur le détecteur. En se plaçant à 10 cm, on divise ce taux d'un facteur 6. Enfin à 20 cm le taux de comptage est divisé par 20 par rapport à la mesure au contact.

A 10 cm du détecteur une incertitude de 1 cm sur la distance conteneur-détecteur conduit à une incertitude de l'ordre de 15 % sur le rendement de détection.

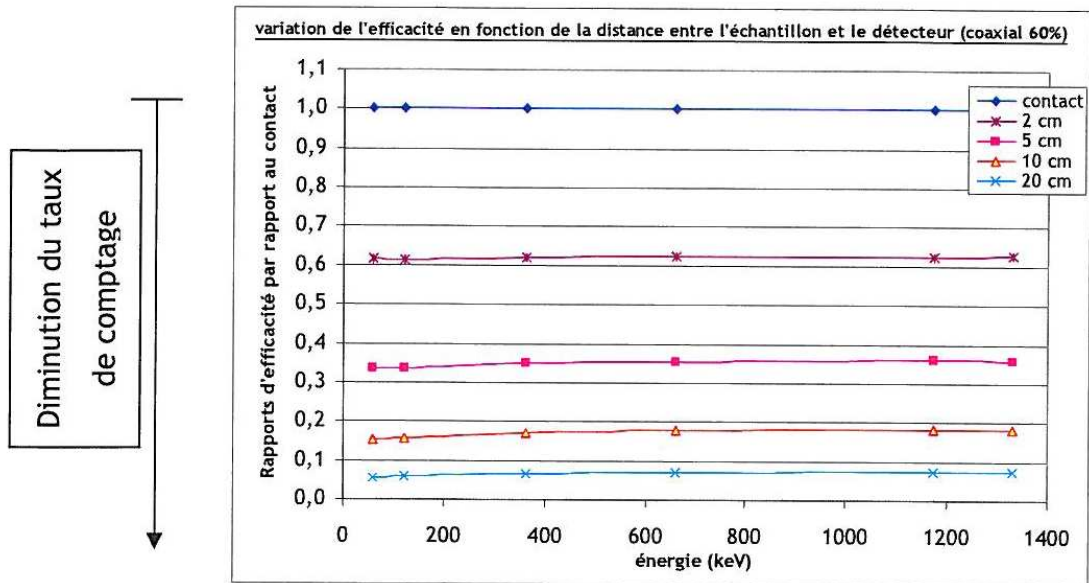


Figure 11 - Variation de l'efficacité en fonction de la distance au détecteur.

L'éloignement du détecteur diminue également le facteur de correction dû aux coïncidences et aux effets de sommation qui devient inférieur à 1 % à partir de 10 cm d'éloignement. Les effets d'un remplissage par excès ou par défaut du conteneur ainsi que de l'inhomogénéité de l'échantillon sont également atténués.

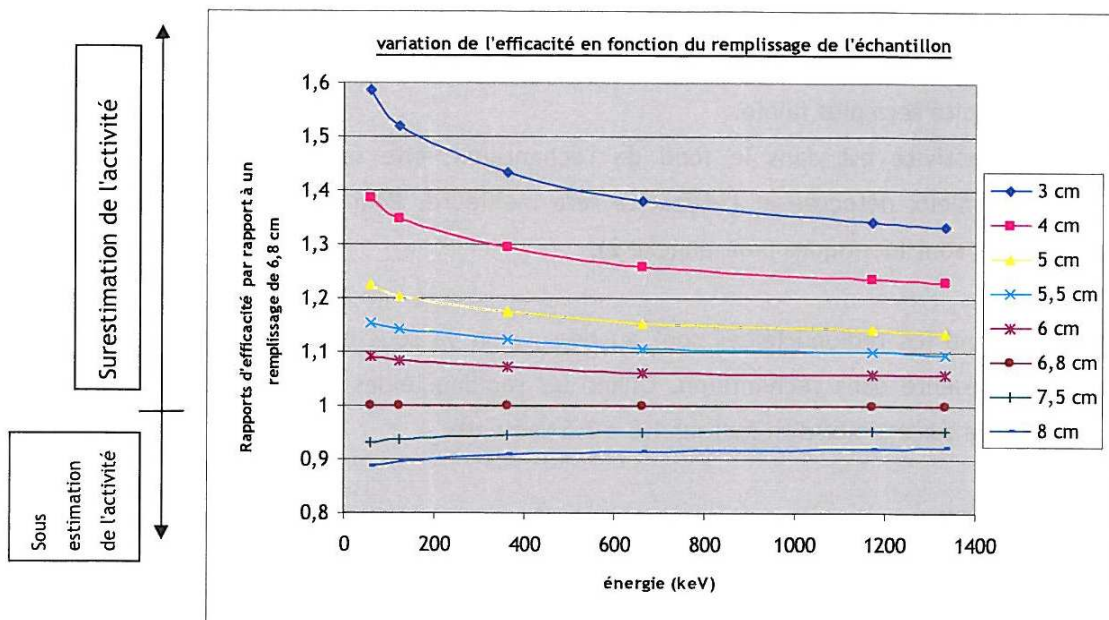


Figure 12 - Variation de l'efficacité en fonction du remplissage d'un SG 500 avec un échantillon d'eau placé à 10 cm du détecteur.

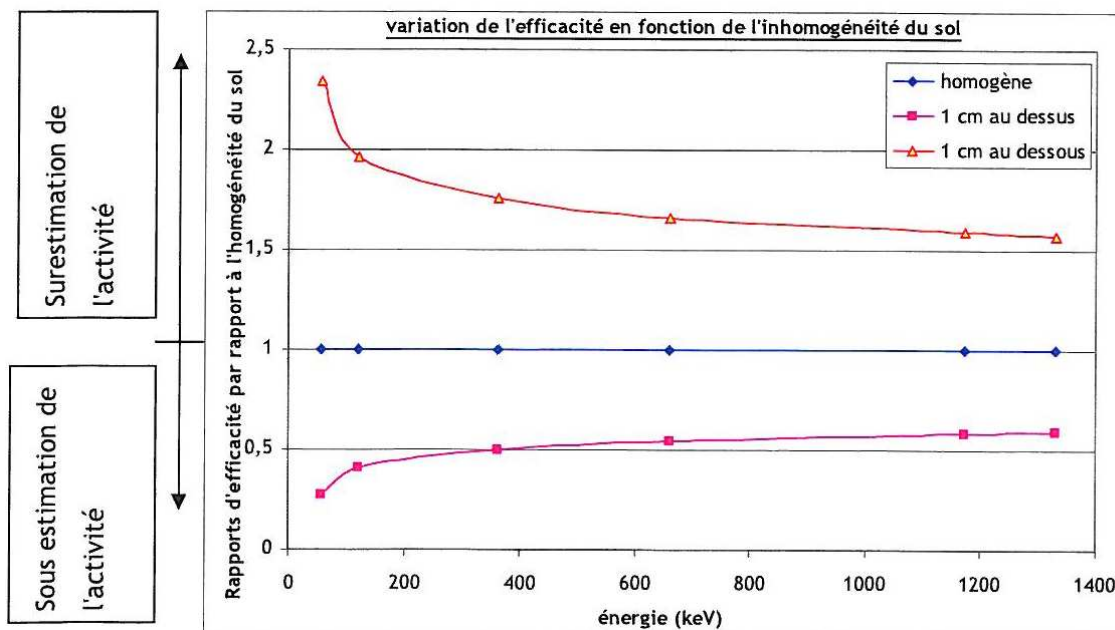


Figure 13 - Variation de l'efficacité en fonction de l'inhomogénéité de l'échantillon (sol densité 1) placé à 10 cm du détecteur.

9.5. ANALYSE DES SPECTRES

Les radionucléides d'origine naturelle, propres à la matrice elle-même, par exemple dans le cas d'un sol ou d'un sédiment, combinés aux radionucléides d'origine artificielle issus des rejets conséquence de l'accident considéré, conduisent à l'obtention de spectres gamma souvent complexes. Les spectres gamma obtenus dans le cadre d'une situation accidentelle sont donc susceptibles d'être composés d'un nombre de raies très supérieur à celui des spectres habituellement traités par les laboratoires (voir figure 14).

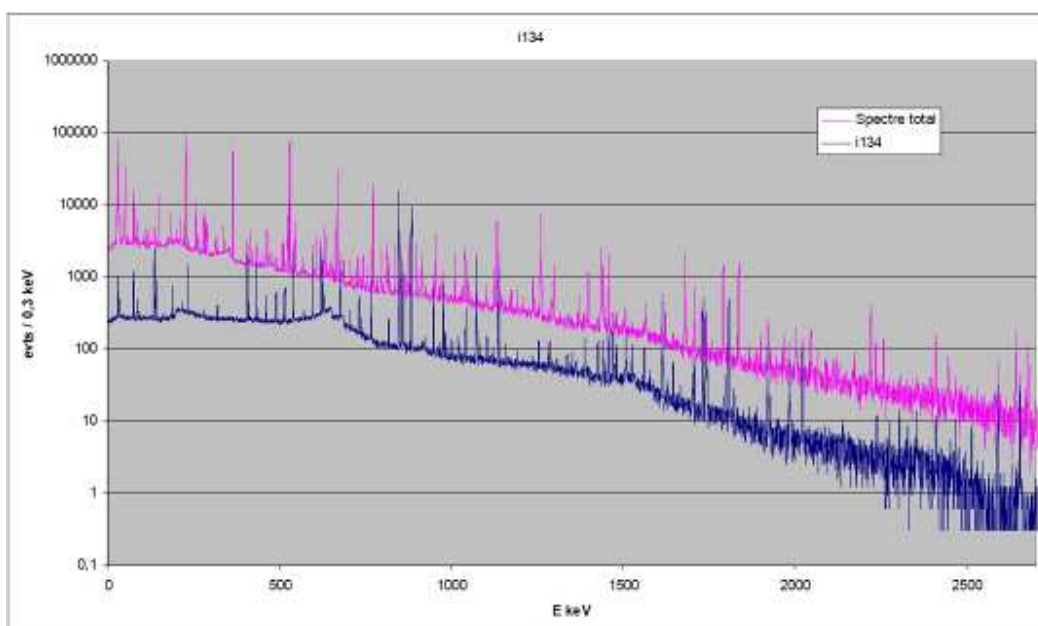


Figure 14 - Simulation par modélisation Monte Carlo d'un spectre d'analyse par spectrométrie gamma (comptage pendant 10 minutes) d'un échantillon de sol prélevé à 2 km sous le vent d'un réacteur à eau pressurisée, 2 heures après le début des rejets d'un accident de fusion du cœur maîtrisée en cuve.

Recommandation :

Certaines versions de logiciels de déconvolution sont limitées quant au nombre de raies analysables simultanément sur un même spectre. En situation accidentelle, cette limite peut être atteinte dans le cas de certains spectres complexes. Il est conseillé aux laboratoires de s'assurer de cette valeur.

La difficulté majeure de l'analyse d'un spectre en situation de crise réside dans l'importance accrue du risque d'interférences entre des raies gamma émises à des énergies proches par les différents radionucléides présents. Ces interférences compliquent d'une part la tâche d'identification et d'autre part la tâche de quantification.

Recommandation :

L'efficacité du traitement peut être augmentée par la constitution, a priori, d'une table de données nucléaires adaptée à la nature potentielle des rejets observés. Outre la sélection des radionucléides pertinents, le choix des données retenues portera également sur la sélection pour chaque radionucléide des raies d'intensité d'émission suffisante et présentant peu de risque d'interférences.

Pour affiner et valider les résultats des déconvolutions, l'analyste s'appuiera avantagement sur :

- une table classée par énergie croissante [14] ;
- une connaissance des raies caractéristiques du bruit de fond de son installation et des raies naturellement présentes dans les échantillons (voir annexe 4) ;
- un répertoire des interférences potentielles (voir annexe 5).

10. ANALYSES DES RADIONUCLEIDES NON EMETTEURS GAMMA

L'analyse des émetteurs alpha ou « bêta pur » implique généralement leur extraction de la matrice dans laquelle ils sont incorporés. Cette extraction passe par des opérations de radiochimie, le plus souvent longues et délicates à mettre en œuvre.

Quelles que soient les adaptations envisagées, il est la plupart du temps difficile de réduire radicalement les délais d'analyses impliquant une étape de radiochimie.

Par exemple l'AIEA propose en libre accès (<http://www.iaea.org/>) des procédures pour la détermination rapide des isotopes du plutonium et de l'Am-241 dans les sols et sédiments par spectrométrie alpha [15], ainsi que pour la détermination rapide de Sr-90 dans le lait [16].

Mais, s'ils permettent effectivement une réduction non négligeable des délais de rendu de résultats, les protocoles proposés, utilisant la fusion alcaline dans le cas de la mesure de Pu, restent complexes à mettre en œuvre, peuvent nécessiter des équipements particuliers et doivent faire l'objet d'une mise en application régulière si l'on veut en assurer la fiabilité. Ce qui n'est généralement pas envisageable pour la majorité des laboratoires susceptibles d'être sollicités en situation de crise.

Dans les autres cas, les adaptations envisageables augmentent surtout le risque de voir un protocole trop rarement appliqué, mal appliqué, et ce pour un gain de temps relativement modeste.

Seule l'optimisation des temps de comptage en fonction de l'incertitude ou de la limite de détection nécessaire est simple à réaliser. A quelques exceptions près, pour les radionucléides non émetteurs gamma, il semble illusoire de vouloir proposer très efficacement une métrologie « laboratoire de crise ».

Recommandation :

En restant sur des protocoles classiques, donc maîtrisés, l'expérience montre que la mobilisation et la réorganisation des équipes est d'une grande efficacité. En assurant, par exemple, l'enchaînement sans temps mort des étapes de chimie, sur des opérations de chimie relativement lourdes un gain d'un facteur 2 n'est pas exclu par rapport à des délais de routine.

10.1. DEMARCHE DE TRI

L'objectif des laboratoires doit donc être de n'engager d'opérations de radiochimie que sur les échantillons le justifiant vraiment, en faisant appel à des démarches de tri, par mesure d'indicateurs alpha global, bêta global ou, dans certains cas, gamma.

10.1.1. COMPTAGES GLOBAUX

Ces comptages sont généralement couramment pratiqués par les laboratoires.

Recommandation :

Dans le domaine des radionucléides non émetteurs gamma, il est recommandé aux laboratoires porter leurs efforts en priorité sur leur capacité à organiser des démarches de tri reposant sur des comptages globaux (alpha global, bêta global).

Les comptages globaux nécessitent un traitement minimal de l'échantillon. Des compteurs proportionnels à circulation de gaz sont généralement mis en œuvre. La scintillation liquide avec discrimination alpha/bêta peut également être utilisée sur des échantillons d'eau. Ces comptages peuvent être réalisés rapidement, dans l'espace de 24 heures, selon le type de préparation préalable. L'instrument est habituellement étalonné par rapport à un radionucléide émetteur alpha (U naturel, Pu-242, Pu-239, ou Am-241) et un radionucléide émetteur bêta (K-40, Cs-137, Sr-90+Y-90). La réponse du détecteur varie en fonction du radionucléide choisi.

La composition de l'échantillon peut également influencer le résultat de la mesure. Ces facteurs d'influence (auto atténuation) sont corrigés au moyen d'abaques établis par le laboratoire pour ses conditions de mesure.

La méthode n'est pas adaptée pour la détection d'émetteurs bêta de faible énergie H-3, C-14, Ni-63, Pu-241, etc., pour lesquels on privilégiera la scintillation liquide.

10.1.2. CONTRIBUTION DES RADIONUCLÉIDES D'ORIGINE NATURELLE

Des comptages significatifs très variables peuvent être observés en alpha/bêta global, simplement dus à la présence de radionucléides d'origine naturelle dans les sols. Le laboratoire veillera à disposer de « blancs » de référence réellement représentatifs des échantillons analysés.

10.1.3. TRI PARTICULIER POUR LE TRITIUM DANS LES SOLIDES PAR « LESSIVAGE »

En cas de présence suspectée de H-3 dans des échantillons solides, un tri peut être effectué en lessivant l'échantillon par trempage dans l'eau et mesure de l'eau de trempage.

La technique est applicable seulement si le tritium est présent sous forme d'eau tritiée et si la présence du tritium est imputable à une contamination essentiellement surfacique.

Dans d'autres cas, le choix de la technique d'analyse dépendra de la forme chimique sous laquelle se trouve le tritium, et de la matrice.

Pour les échantillons aqueux la distillation est souvent employée pour purifier la fraction d'eau à analyser. L'eau doit être rendue basique avant distillation pour éviter la perte des radionucléides volatiles. Cependant le tritium organiquement lié risque de ne pas être distillé et d'être perdu.

Si la contamination est intimement associée à la matrice, une procédure conduisant à la destruction totale de l'échantillon est préférable, soit chimiquement, soit thermiquement par combustion.

La combustion permet la récupération de l'ensemble du tritium, sous toutes ses formes, par condensation de la vapeur d'eau dégagée.

10.1.4. ANALYSE D'UN INDICATEUR GAMMA

Sur un certain nombre d'échantillons, provenant d'un même lieu et ayant été prélevés à la même période, on peut envisager de corréliser la présence d'un émetteur gamma aisément détectable avec celle du ou des radionucléides alpha ou bêta pur d'intérêt.

De même, dans le cas d'un mélange complexe de nombreux radionucléides émetteurs gamma, la quantification d'un nombre réduit de radionucléides identifiés dans le spectre obtenu peut suffire à estimer rapidement, toujours par corrélation, l'activité du reste des radionucléides contribuant au spectre, évitant ainsi une analyse complète du spectre qui peut prendre beaucoup de temps (plusieurs heures) et être source d'erreurs [1].

Recommandation :

Si l'échantillon comprend un mélange de radionucléides émetteurs gamma, alpha et bêta pur, son analyse par spectrométrie gamma peut suffire si une corrélation de la présence d'un émetteur gamma avec les radionucléides émetteurs alpha ou bêta pur est établie.

Il est à noter que la corrélation d'activités entre radionucléides n'est valable qu'à petite échelle, car le rapport des activités des différents radionucléides déposés évolue en fonction de la distance ; de plus, chaque radionucléide ayant une période radioactive différente, la corrélation d'activités évolue

au cours du temps ; enfin, les différences de comportement physico-chimique des radionucléides dans l'environnement peuvent également modifier, à plus long terme, cette corrélation.

Malgré ces difficultés et limites, l'existence d'abaques de corrélation serait utile aux laboratoires chargés des mesures de contrôles car ceux-ci ont généralement peu de moyen en radiochimie et devraient rendre des résultats dans des délais aussi courts que possible. Ces laboratoires pourraient alors limiter leur effort d'analyse de tri à un nombre limité d'indicateurs radiologiques, simples et rapides à mesurer.

Recommandation :

Il serait utile qu'en situation post-accidentelle (et si possible dès la phase d'urgence), les laboratoires qui en ont la capacité, établissent aussi rapidement que possible de tels abaques de corrélation, propres à la situation en cours, en réalisant des mesures d'expertise sur des échantillons pertinents prélevés à différentes distances du point de rejet. Ces abaques seraient ensuite mis à disposition des laboratoires effectuant des analyses de contrôle.

L'établissement de ces abaques pouvant prendre du temps (de quelques heures à quelques jours selon le type de radionucléide), il serait également pertinent de préparer à l'avance des abaques types, correspondant à des termes sources accidentels de référence, de manière à disposer au plus vite de premiers ordres de grandeur de l'activité de radionucléides non quantifiés lors des premières mesures effectuées au cours de la phase d'urgence ou au début de la phase post-accidentelle.

La figure 15 illustre la démarche à suivre pour établir de telles corrélations d'activités entre les différents radionucléides présents dans l'environnement et des radionucléides de référence faciles à mesurer.

Recommandation :

Dans le cas d'un rejet accidentel contenant un mélange complexe de radionucléides émetteurs bêta/gamma et bêta pur (typiquement le cas d'un rejet de réacteur nucléaire), il est recommandé de choisir des radionucléides de référence parmi ceux qui sont émetteurs gamma, plutôt que l'activité bêta globale pour laquelle l'établissement d'une corrélation avec chaque radionucléide peut se révéler complexe dans un premier temps.

Le choix de l'activité bêta globale pour établir des corrélations ne devrait être retenu qu'en cas d'événement impliquant majoritairement des radionucléides émetteurs bêta pur (par exemple, dispersion d'une source de strontium 90) et pourrait également être envisagé à plus long terme, une fois que la plupart des radionucléides à vie courte ont disparu.

Le choix de l'activité alpha globale comme indicateur radiologique de référence est à privilégier dans le cas d'un accident rejetant majoritairement des radionucléides émetteurs alpha. Par ailleurs, l'utilisation de l'activité bêta ou alpha globale ne convient que dans le cas d'une contamination environnementale par des radionucléides bêta ou alpha à un niveau nettement supérieur au bruit de fond naturel et est inappropriée pour la quantification de ces radionucléides à l'état de trace.

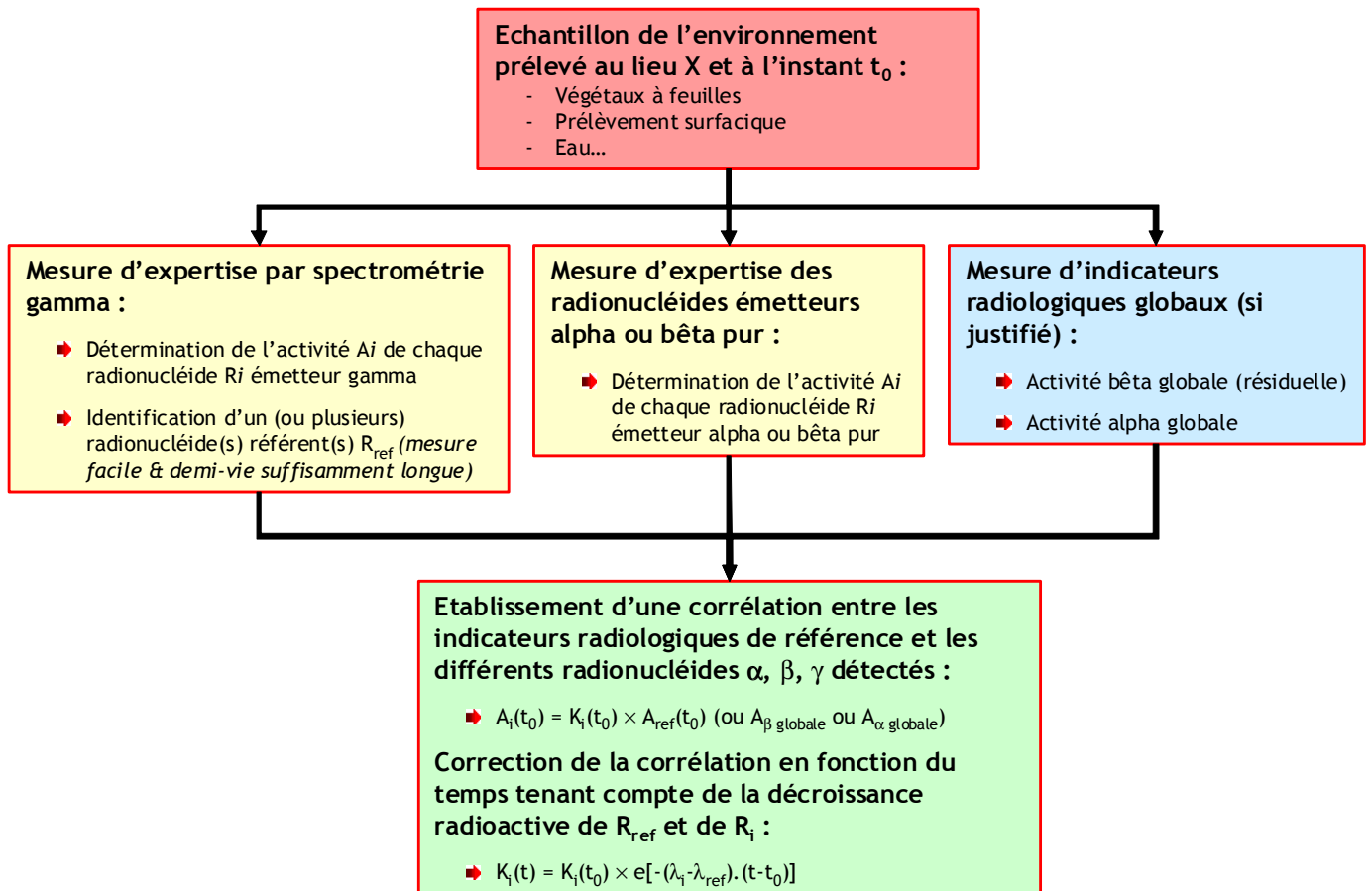


Figure 15 - Établissement d'une corrélation entre l'activité des radionucléides d'un échantillon prélevé dans l'environnement et celle d'un radionucléide de référence. Selon ce schéma de principe, il est admis que, pour une matrice et un secteur géographique donnés, seule la décroissance radioactive influence cette corrélation. N.B. : ce schéma de principe est à adapter aux cas des radionucléides issus de filiations radioactives.

10.2. LES TRAITEMENTS APPLICABLES AUX ÉCHANTILLONS ET LEURS CONTRAINTES

Dans la plupart des cas autres que la spectrométrie gamma au-delà de l'étape de préparation décrite au paragraphe 6, un traitement physico-chimique de l'échantillon est nécessaire avant mesure. Dans certains cas les procédures appliquées peuvent avoir un impact sur la justesse du résultat final [5].

10.2.1. HOMOGENEISATION

Il est essentiel d'homogénéiser l'échantillon avant de prélever les parties aliquotes nécessaires à l'analyse. L'homogénéisation peut être réalisée avant ou après les traitements supplémentaires que peuvent être le séchage ou la calcination.

Recommandation :

Les propriétés chimiques de l'ensemble des émetteurs alpha et bêta que l'on souhaite analyser doivent être prises en considération avant application d'un traitement à la totalité de l'échantillon.

Les échantillons d'eau contiennent des matières en suspension susceptibles de fixer de nombreux radionucléides. On peut décider de les filtrer et d'analyser le filtrat et l'eau filtrée séparément ou d'homogénéiser l'échantillon avant de l'analyser dans sa globalité.

Pour des échantillons de sol, l'échantillon est fréquemment tamisé pour retirer les débris divers. La masse de chaque fraction obtenue à l'issue du tamisage doit être enregistrée. Si nécessaire il est possible de broyer et d'homogénéiser l'échantillon dans sa totalité.

Recommandation :

S'il n'est pas envisageable d'appliquer les opérations nécessaires à l'homogénéisation à l'ensemble de l'échantillon : la mesure par spectrométrie gamma de la totalité, puis le fractionnement pour les aliquotes nécessaires aux autres analyses ainsi que la mesure de chaque aliquote par spectrométrie gamma permettent, si nécessaire, d'estimer un facteur correctif prenant en compte l'inhomogénéité de l'échantillon de départ.

10.2.2. SECHAGE- CALCINATION

Afin d'éviter les biais de mesure causés par des teneurs en eau variables d'un échantillon à l'autre, les échantillons sont souvent séchés à poids constant avant analyse.

Le séchage permet également d'augmenter la durée de conservation d'un échantillon.

La lyophilisation, le séchage à l'étuve ou au four à micro-ondes peuvent être envisagés et demander respectivement des jours, des heures ou des minutes.

La lyophilisation est bien adaptée aux échantillons susceptibles de se dégrader à la chaleur.

Cependant le séchage conduit à la perte de l'eau tritiée ainsi que des radionucléides volatiles, l'ampleur des pertes dépendra du traitement utilisé.

En plus, certains protocoles d'analyses requièrent l'élimination des matières organiques par calcination ou combustion. Ces traitements sont également à l'origine de pertes de radionucléides volatiles en fonction des températures appliquées.

Les radionucléides pouvant faire l'objet de pertes significatives au cours de ces traitements sont par exemple : H-3, C-14, S-35, Tc-99, Ru-103/106, Cs-137, Po-210, Pb-210, etc..

10.2.3. DISSOLUTION

La plupart des protocoles d'analyse d'émetteurs alpha/bêta, impliquent une étape de dissolution de l'échantillon. Cela peut se faire par une attaque « douce » au moyen d'un acide fort tel que l'acide nitrique, l'acide chlorhydrique ou de l'eau régale. Cependant certaines formes chimique de plutonium, d'uranium ou de thorium peuvent nécessiter des attaques acides plus vigoureuses à base d'acide fluorhydrique ou perchlorique (applicables à des masses < 0,5 g et plutôt lentes).

Par exemple l'uranium peut être présent dans l'environnement sous de nombreuses formes chimiques, et les méthodes d'attaque différentes appliquées par exemple à un sol peuvent conduire à des résultats allant du simple au double.

10.2.4. SEPARATION CHIMIQUE

Hors spectrométrie gamma la plupart des techniques d'analyse requièrent une étape de séparation chimique.

L'objectif de cette séparation est de :

- concentrer le radionucléide recherché pour améliorer les limites de détection ;
- isoler ce radionucléide de la matrice pour limiter l'atténuation des particules alpha et bêta ;
- séparer un radionucléide d'autres radionucléides ou éléments (pour le cas de la spectrométrie de masse) susceptibles d'interférer lors des mesures ;
- mettre le radionucléide sous une forme compatible avec la technique de mesure employée.

Les techniques de séparation intègrent toujours une ou plusieurs phases d'évaporation, distillation, précipitation, extraction de solvant, séparation chromatographique.

Cette étape implique généralement un travail assez long pouvant aller facilement jusqu'à 5 jours selon la complexité de la technique et l'échantillon initial.

10.2.5. PERTES DURANT LA SEPARATION ET LE TRAITEMENT CHIMIQUE

Les pertes de radionucléides sont inévitables au cours du traitement. Elles sont quantifiées au moyen d'un traceur ajouté au début du traitement.

Le rapport de la quantité de traceur ajoutée à celle retrouvée en fin de traitement donne le rendement global des opérations effectuées.

Le traceur peut-être un isotope stable du radionucléide recherché, auquel cas le dosage initial de cet isotope dans l'échantillon doit-être effectué, ou un isotope radioactif non présent dans l'échantillon.

Dans le cas de l'analyse des actinides émetteurs alpha, le traceur est un isotope radioactif également émetteur alpha et permet la détermination globale du rendement chimique et du rendement de mesure.

Dans d'autres cas le traceur peut également être un isotope stable mesuré par une technique non radiométrique (absorption atomique, ICP-AES...).

Recommandation :

Il est recommandé aux laboratoires de se préoccuper des sources d'approvisionnement en traceurs, qu'il n'utilise pas en conditions de routine, mais susceptibles de leur être nécessaires pour la réalisation des analyses pour lesquelles il pourrait être sollicité en situation d'urgence.

10.2.6. EXEMPLE DE TRACEURS UTILISES

Radionucléide à déterminer	Traceur	Méthode de détermination du rendement
Ca-41,Ca-45	Ca stable	Gravimétrie/ICPAES
Fe-55	Fe stable	ICPAES
Ni-63	Ni stable	ICPAES
Sr-89, Sr-90	Sr-85 Sr stable	Spectrométrie gamma Gravimétrie/ICPAES
Tc-99	Tc-99m Re stable	Spectrométrie gamma Gravimétrie/ICPAES
I-129, I-131	I stable	Gravimétrie/colorimétrie
Po-210	Po-208 ou Po-209	Spectrométrie alpha
Ra-226	Ba-133	Spectrométrie gamma
Thorium (alpha ou ICPMS)	Th-229	Spectrométrie alpha ou ICPMS
Uranium alpha	U-232	Spectrométrie alpha
Uranium ICPMS	U-233	ICPMS
Np-237	Np-239	Spectrométrie gamma
Pu alpha	Pu-242	Spectrométrie alpha
Am+Cm alpha	Am-243	Spectrométrie alpha

Tableau 14 - Exemples de traceurs utilisés.

10.3. GENERALITES SUR LES MESURES DES RADIONUCLEIDES EMETTEURS ALPHA ET BETA

10.3.1. MESURE DES RADIONUCLEIDES EMETTEURS ALPHA

On se référera utilement au dossier de recommandation pour l'optimisation des mesures (DROP) « Mesure du rayonnement alpha » à paraître en 2011 [17].

Les radionucléides émetteurs alpha communément mesurés sont :

Po-210, Ra-224, Ra-226, Th-230, Th-232, U-234, U-235, U-236, U-238, Np-237, Pu-238, Pu-239, Pu-240, Am-241, Cm-242, Cm-244, Cf-252.

Les mesures spectrométriques sont généralement réalisées au moyen de détecteurs semi-conducteurs.

10.3.1.1. Spectrométrie alpha

Compte tenu du faible parcours des particules alpha dans la matière, les radionucléides émetteurs alpha doivent être séparés de la matrice les contenant et préparés en sources minces pour pouvoir être mesurés par spectrométrie alpha.

Pour quantifier individuellement chaque radionucléide, une séparation chimique préalable à la spectrométrie alpha est nécessaire. Les interférences en énergie des raies provenant de divers radionucléides alpha ne peuvent être traitées que grâce à des chimies séparatives. Quand les

interférences sont issues d'isotopes (U-235/U-236 ; Pu-239/Pu-240 ; Cm-242/Cm-244) la spectrométrie alpha n'apporte pas de solution.

La spectrométrie alpha nécessite beaucoup de temps pour le besoin des séparations chimiques, jusqu'à 5 jours, et les durées de comptage peuvent être de 24 heures à 2 semaines si on souhaite atteindre des limites de détection très basses.

Les traceurs, généralement isotopes du radionucléide recherchés, et dont la présence n'est pas attendue initialement dans l'échantillon, sont ajoutés au début des traitements appliqués à l'échantillon. Dans le cas du curium, Am-243, dont le comportement chimique est identique, peut également être utilisé comme traceur. Un coefficient de correction doit cependant être utilisé si on souhaite maintenir le niveau de justesse de la méthode.

10.3.1.2. Mesures alpha par scintillation liquide

Les radionucléides émetteurs alpha peuvent également être détectés par scintillation liquide. Le rendement de détection est de l'ordre de 100 %. Un radionucléide émetteur alpha apparaîtra dans le spectre avec une énergie de l'ordre de 10% de son énergie typique comparée à un émetteur bêta. Par exemple : un rayonnement alpha de 5 MeV apparaîtra dans la même partie du spectre qu'un rayonnement bêta de 500 keV.

De nombreux appareils de mesure par scintillation liquide sont dotés de systèmes de discrimination alpha/bêta. Le rendement de discrimination est fonction du quenching de l'échantillon.

La résolution par scintillation liquide est bien moindre que par spectrométrie alpha au moyen de semi-conducteurs. Ce qui rend souvent impossible l'usage d'un traceur. La principale utilisation de la technique en situation post-accidentelle reste le tri.

10.3.2. MESURE DES RADIONUCLEIDES EMETTEURS BETA

Les radionucléides communément mesurés par comptage bêta sont :

- les produits d'activation : H-3, C-14, S-15, Ca-41, Ca-45, Fe-55, Ni-63 ;
- les produits de fission : Sr-89, Sr-90, Tc-99, I-129, Pm-147.
- les actinides : Pu-241.

Des mesures plus spécifiques (Sr-90+Y-90) peuvent demander 8 à 15 jours.

10.3.2.1. Mesures du rayonnement bêta au moyen de compteurs à gaz

Le spectre en énergie des particules bêta est un spectre continu, peu favorable à la spectrométrie et à l'analyse qualitative. Il est donc également nécessaire de faire appel à la séparation chimique lors de protocoles comparables à ceux de la spectrométrie alpha.

Dans certaines conditions une analyse spectrométrique qualitative limitée, mettant en jeu des écrans est envisageable pour des radionucléides ayant des spectres bêta suffisamment différents.

10.3.2.2. Mesures du rayonnement bêta par scintillation liquide

C'est une des techniques les plus communes pour la mesure des radionucléides émetteurs bêta. La scintillation liquide est très utilisée car elle permet notamment une bonne sensibilité aux radionucléides émetteurs bêta de faible énergie.

Le rendement de détection peut être proche de 100% pour les radionucléides émetteurs de forte énergie. Le radionucléide purifié est mélangé à un cocktail scintillant dans un flacon en verre ou en polyéthylène pour produire un mélange homogène qui doit être protégé de la lumière pour éviter les phénomènes de luminescence. Le rendement de détection dépendant de l'énergie et du quenching de l'échantillon pour lequel une correction doit être appliquée.

Le bruit de fond de l'instrument, qui peut être élevé, peut être réduit de manière significative avec un blindage de qualité, un compteur de garde et une électronique d'anti-coïncidences.

La scintillation liquide est très performante pour les radionucléides émetteurs bêta de faible énergie tels que H-3, C-14, Ni-63, bien que le risque d'interférence par chimie luminescence soit plus important et source d'erreur s'il n'est pas correctement appréhendé.

10.3.3. CAS PARTICULIER DE LA MESURE DE SR-90

La mesure de Sr-90 est réalisée après séparation chimique par des méthodes chromatographiques, le Sr-85 ou du Sr stable est utilisé comme traceur. Après séparation de Sr-90, la mesure repose sur la croissance de Y-90 ($t_{1/2}=64$ heures) pour lequel l'équilibre est atteint après 2 semaines environ.

Des techniques reposant sur l'extraction de Y-90 sont utilisables si on fait l'hypothèse de sa présence à l'équilibre dans l'échantillon ce qui n'est souvent pas le cas. La mesure est faite au moyen de compteurs proportionnels à circulation de gaz, des interférences avec Sr-89 sont possibles et doivent être corrigées.

Pour les émetteurs bêta de forte énergie tels que Sr-90 et particulièrement son descendant Y-90, le comptage du rayonnement Cerenkov autorise également une meilleure sensibilité de mesure mais sans possibilité spectrométrique.

Une lumière est produite lors du passage des particules dans un milieu aqueux en dehors de toute présence de molécule scintillante. C'est cette émission lumineuse qui est détectée.

Les rendements sont moindres qu'avec un liquide scintillant mais le bruit de fond est considérablement réduit ce qui conduit à un rapport signal sur bruit (Facteur de Mérite) plus favorable. Aucune information spectrométrique n'est utilisable.

10.4. SPECTROMETRIE DE MASSE.

L'ICPMS quadripolaire est mise en œuvre dans des laboratoires de plus en plus nombreux.

Cette technique est très souvent plus efficace que les techniques radiométriques pour la mesure des radionucléides à période longue tels que Tc-99, I-129, U, Th, Np-237, Pu.

La spectrométrie de masse est particulièrement complémentaire de la spectrométrie alpha (voir figure 16), pour la détermination des rapports isotopiques U-238/U-235 ; Th-230/Th-232 et particulièrement Pu-239/Pu-240.

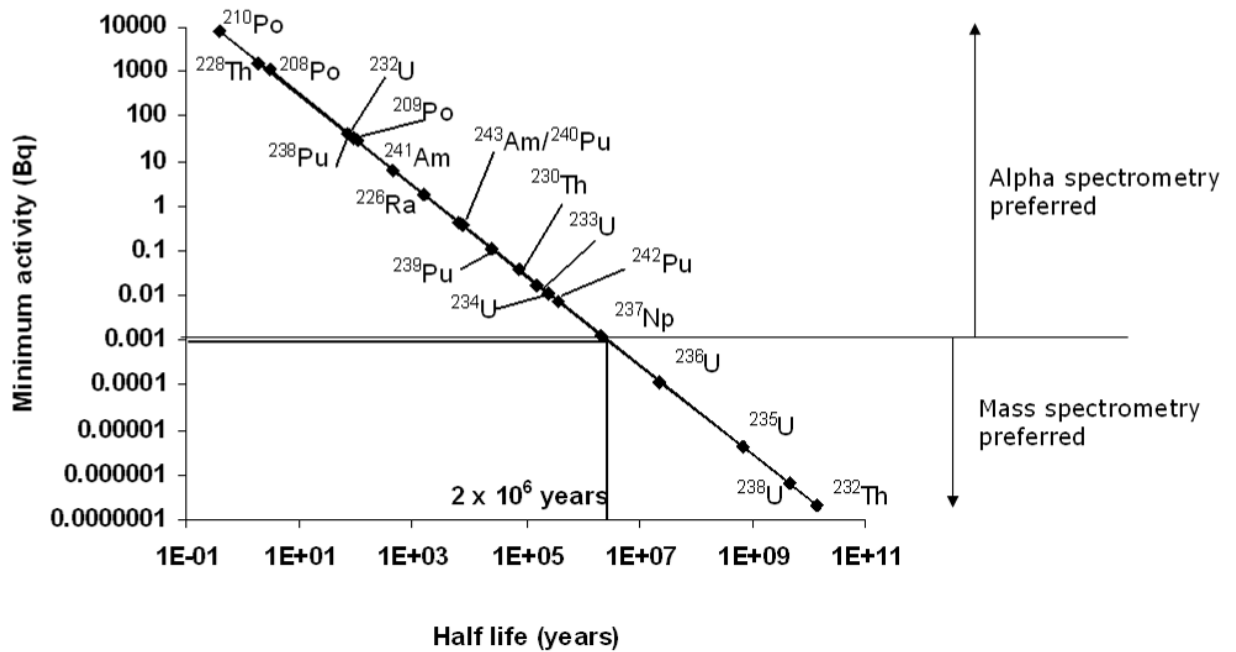


Figure 16 - Complémentarité de la spectrométrie de masse et de la spectrométrie alpha [5].

Les délais de mesure sont relativement rapides, jusqu'à 40 échantillons sont mesurables par jour. Des traitements chimiques peuvent être nécessaires selon les matrices ce qui peut rendre les délais comparables à ceux de la spectrométrie alpha. La mesure directe d'échantillons d'eau suffisamment pure est envisageable rendant les mesures possibles entre 24 et 48 heures.

10.5. TABLEAU COMPARATIF DES MESURES HORS SPECTROMETRIE GAMMA

Technique	Avantages	Désavantages
Alpha et bêta global	Rapide et peu coûteux	Peu sensible aux radionucléides émetteurs bêta de basse énergie. Rendement de détection fonction de l'énergie des particules, risques important de sur ou sous estimation de l'activité.
Bêta par scintillation liquide	Permet de quantifier des radionucléides émetteurs bêta spécifiques avec un bon rendement et de faibles limites de détection.	Séparation chimique nécessaire. Délai important, connaissance minimale a priori de l'échantillon.
Spectrométrie alpha	Permet de quantifier des radionucléides émetteurs alpha spécifiques avec un bon rendement et de faibles limites de détection.	Séparation chimique nécessaire. Délai important, connaissance minimale a priori de l'échantillon.
Spectrométrie de masse	Efficace pour la quantification d'émetteurs à vie longue. Permet de discriminer des radionucléides qui ne le sont pas par des techniques radiométriques ($^{239}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$)	Séparation chimique nécessaire. Interférences isobariques et suppression de matrice à prendre en compte

Tableau 15 - Tableau comparatif des mesures

11. CONCLUSION

Du point de vue des laboratoires de mesure de radioactivité dans les matrices environnementales, la phase post-accidentelle d'un accident nucléaire ou d'une situation radiologique se traduit essentiellement par un afflux d'échantillons présentant, potentiellement, des niveaux d'activité supérieurs à ceux rencontrés habituellement et pour lesquels les résultats d'analyses seront demandés dans des délais sensiblement raccourcis par rapport à ceux pratiqués en routine.

L'aptitude des laboratoires à répondre aux attentes des prescripteurs d'analyses repose sur la capacité d'adaptation des structures existantes à absorber ce flux d'échantillons particuliers dans un délai inhabituellement contraint, tout en assurant la qualité de la prestation métrologique au niveau attendu et la préservation de l'outil de mesure sur la durée de la crise.

La bonne adaptation des moyens aux besoins passe, en premier lieu, par l'absence d'ambiguïté quant aux attentes du prescripteur et la bonne information par le laboratoire quant à ses capacités

d'analyses, les niveaux de performances, en termes d'incertitudes et de limites de détection, des méthodes envisageables et l'impact de leur choix sur le délai de rendu des résultats.

Sur cette base une bonne préparation logistique doit être anticipée pour établir dans le plus court délai une filière spécifique de traitement des échantillons couvrant toutes les étapes de la réception de l'échantillon à sa mesure. Cette anticipation passe par l'approvisionnement de matériel spécifique pour ce qui peut être stocké, une bonne connaissance des filières d'approvisionnement pour le reste.

L'utilisation de la spectrométrie gamma, méthode qualitative et quantitative par excellence, ne nécessitant généralement aucun traitement physico-chimique de l'échantillon doit être privilégiée chaque fois que possible.

Les méthodes de tri, reposant sur des techniques de comptages alpha/bêta globaux, doivent être maîtrisées au mieux par les laboratoires pour limiter le recours aux protocoles impliquant des étapes de radiochimie longues et complexes au minimum d'échantillons.

De même, l'utilisation d'un « traçage gamma » en cas de recherche de radionucléides émetteurs alpha, bêta pur ou gamma complexes à analyser, dont il est démontré qu'ils sont systématiquement associés à un ou des émetteurs gamma plus aisés à mesurer, doit être envisagée chaque fois que nécessaire. Cette approche permettra de répartir au profit d'une plus grande efficacité la charge des analyses en fonction des moyens et des compétences des divers laboratoires impliqués.

Ce guide souhaite donc avoir apporté, l'essentiel des éléments qui permettront à chaque laboratoire de se préparer au mieux, selon tous ces aspects, en fonction de ses caractéristiques propres.

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 1 - Exemples de prises d'essai nécessaires à différents types d'analyses pratiquées en routine dans les laboratoires de mesure de la radioactivité d'échantillons de l'environnement. Valeurs exprimées en masse ou volume de matière fraîche sauf mention contraire	7
Tableau 2 - Exemples de rapports masse fraîche sur masse sèche pour des échantillons de l'environnement.	8
Tableau 3 - Exemples de rapports masse fraîche sur masse de cendres pour des échantillons de l'environnement..	8
Tableau 4 - Exemple de fiche d'identification susceptible de faire également office d'étiquette.	11
Tableau 5 - Exemple d'une fiche de demande d'analyse.....	13
Tableau 6 - Ordre de grandeur de quelques délais d'analyses envisageables pour un niveau de performance type surveillance de l'environnement.	14
Tableau 7 - Exemple de fiche métrologique opérationnelle pour la mesure du tritium.	15
Tableau 8 - Exemple de fiche métrologique opérationnelle pour la mesure du plutonium 239.....	16
Tableau 9 - Conservation d'échantillons solides.	19
Tableau 10 - Conservation d'échantillons d'eau.....	20
Tableau 11 - Évolution de l'incertitude statistique de comptage en fonction du nombre d'impulsions dénombrées.	25
Tableau 12 - Exemple d'adaptation du temps de comptage en fonction de la LD à atteindre.....	29
Tableau 13 - Exemples de limites de détection (Cs-137) obtenues en conditions de routine par spectrométrie gamma.	33
Tableau 14 - Exemples de traceurs utilisés.....	49
Tableau 15 - Tableau comparatif des mesures.....	53

LISTE DES FIGURES

Figure 1 - Distributions des nombres d'impulsions susceptibles d'être observés lors d'une mesure de bruit de fond (MP) et d'une mesure de très faible activité (MA).	26
Figure 2 - Expression du résultat en fonction du seuil et de la limite de détection.	27
Figure 3 - Évolution théorique de la limite de détection en fonction du temps de comptage. L'abaissement de la limite d'un facteur 3 nécessite un temps de comptage 10 fois plus long.	29
Figure 4 - Flacon normalisé SG 500.	34
Figure 5 - Variation de l'efficacité en fonction du remplissage d'un SG 500 avec un échantillon d'eau.	35
Figure 6 - Variation de l'efficacité en fonction de l'inhomogénéité de l'échantillon (sol densité 1).....	36
Figure 7 - Variation de l'efficacité en fonction de la densité d'un échantillon de végétaux.....	37
Figure 8 - Variation de l'efficacité en fonction de la densité d'un échantillon de sol.	37
Figure 9 - Variation de l'efficacité en fonction de la composition de l'échantillon.	38
Figure 10 - Angle solide de comptage.	39
Figure 11 - Variation de l'efficacité en fonction de la distance au détecteur.	40
Figure 12 - Variation de l'efficacité en fonction du remplissage d'un SG 500 avec un échantillon d'eau placé à 10 cm du détecteur.	40
Figure 13 - Variation de l'efficacité en fonction de l'inhomogénéité de l'échantillon (sol densité 1) placé à 10 cm du détecteur.	41
Figure 14 - Simulation par modélisation Monte Carlo d'un spectre d'analyse par spectrométrie gamma (comptage pendant 10 minutes) d'un échantillon de sol prélevé à 2 km sous le vent d'un réacteur à eau pressurisée, 2 heures après le début des rejets d'un accident de fusion du cœur maîtrisée en cuve.	41
Figure 15 - Établissement d'une corrélation entre l'activité des radionucléides d'un échantillon prélevé dans l'environnement et celle d'un radionucléide de référence. Selon ce schéma de principe, il est admis que, pour une matrice et un secteur géographique donnés, seule la décroissance radioactive influence cette corrélation. N.B. : ce schéma de principe est à adapter aux cas des radionucléides issus de filiations radioactives.	46
Figure 16 - Complémentarité de la spectrométrie de masse et de la spectrométrie alpha [5].	52

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- [1] - *Évaluation des conséquences radiologiques et dosimétriques en situation post-accidentelle* - Rapport final du GT3 du CODIRPA (2010).
- [2] - *Protocoles de prélèvements et de mesures radiologiques directes et indirectes dans l'environnement en situation accidentelle* - Note Technique IRSN (DEI/SIAR 08-0876-DEI/SESURE 2009-13).
- [3] - *Dossier de recommandation pour l'optimisation des mesures (DROP)* - Spectrométrie gamma appliquée aux échantillons de l'environnement - Coordonnateurs G. Le Petit, G. Granier, CEA/CETAMA Editions TEC & DOC (2002) (ISBN 2-7430-0580-7).
- [4] - *Radionucléides & Radioprotection- Guide pratique* - Manuel pour la manipulation de substances radioactives dans les laboratoires de faible et moyenne activité - D. Delacroix, J.P. Guerre, P. Leblanc, EDP Sciences (2003).
- [5] - *A Guide to Methods for Site Investigation At Potentially Contaminated Sites* - Accessible sur <http://www.nnl.co.uk/news/site-investigations-handbook-update.html> .
- [6] - *Guide d'enlèvement des déchets radioactifs* - Accessible sur <http://www.andra.fr/download/andra-producteur-fr/document/240.pdf> .
- [7] - *Limits for qualitative detection and quantitative determination* - Anal. Chem., 40 : 586-593. Currie LA (1968).
- [8] - *Règlement EURATOM No 2218/89 DU Conseil du 18 juillet 1989* - Modifiant le règlement (Euratom) no 3954/87 fixant les niveaux maximaux admissibles de contamination radioactive pour les denrées alimentaires et les aliments pour bétail après un accident nucléaire ou dans toute autre situation d'urgence radiologique.
- [9] - *Technical reports series N° 295* - Measurement of radionuclides in food and the environment - A guidebook -AIEA 1989.
- [10] - *Évaluation des erreurs potentielles de mesure par spectrométrie gamma sur des échantillons de sols, de végétaux et d'eaux non homogènes conditionnés en géométrie SG 500* - O. Hay, S. Brun Note technique CEA/DSM/SPR/2006-0234.
- [11] - *Estimation des incertitudes de mesure en situation de crise à l'aide de simulation d'efficacité de détection* - Anne de Vismes Ott, Stéphanie Roger, Rapport IRSN/DEI/STEME/2010-01.
- [12] - *GTN5 - Méthodes de mesures de laboratoires du comité d'instrumentation de radioprotection, Normalisation des flacons utilisés en spectrométrie gamma* - Rapport CEA/R-5145 (1982).
- [13] - *XCOM Photon Cross section on a personal computer* - NBSIR 87 : 3597 Berger M and Hubbel JH (1987); Berger MJ (1992), NIST. <http://physics.nist.gov/PhysRefData/Xcom/html/xcom1.html> .
- [14] - *NUCLÉIDE-LARA - Bibliothèque des émissions alpha, X et gamma classées par ordre d'énergie croissante* - M.M. Bé, C. Dulieu, V. Chisté ; Rapport CEA-R-6201. CEA - LNHB F-91191 Gif-sur-Yvette Cedex - http://www.nucleide.org/DDEP_WG/Nucleide-LARA_2008.pdf
- [15] - *Procedure for the rapid determination of Pu isotopes and Am-241 in soil and sediment samples by alpha spectrometry*, 2009 IAEA/AQ/11 ISSN 2074-7659, AIEA, Vienna November 2009.
- [16] - *Validation of rapid methods for the determination of radio strontium in milk*, C.K. Kim et al. Applied Radiation and Isotopes 57 (2009) 786-793.
- [17] - *Dossier de recommandations pour l'optimisation des mesures (DROP)* - Mesure du rayonnement alpha, CEA/CETAMA Editions (à paraître).
- [18] - *NATO Handbook for sampling and Identification of radiological Agents (SIRA)* (September 2005) AEP-49 volumes 1 et 2.

ANNEXE 1

Références normatives pour les mesures de radioactivité

Denrées alimentaires

NF V03-009-1 Juillet 2002 Produits alimentaires - Mesure de la radioactivité dans les denrées alimentaires - Partie 1 : guide pour l'échantillonnage, le transport et la conservation des denrées alimentaires - Obtention d'un échantillon pour laboratoire

NF V03-009-2 Juillet 2002 Produits alimentaires - Mesure de la radioactivité dans les denrées alimentaires - Partie 2 : guide pour la préparation des échantillons de denrées alimentaires - Obtention d'un échantillon pour essai

Sols

NF ISO 18589-1 Décembre 2005 Mesurage de la radioactivité dans l'environnement - Sol - Partie 1 : lignes directrices générales et définitions

NF ISO 18589-2 Mars 2008 Mesurage de la radioactivité dans l'environnement - Sol - Partie 2 : lignes directrices pour la sélection de la stratégie d'échantillonnage, l'échantillonnage et le prétraitement des échantillons

NF ISO 18589-3 Mars 2008 Mesurage de la radioactivité dans l'environnement - Sol - Partie 3 : mesurages des radionucléides émetteurs gamma

NF ISO 18589-4 Mai 2009 Mesurage de la radioactivité dans l'environnement - Sol - Partie 4 : mesurage des isotopes du plutonium (plutonium 238 et plutonium 239 + 240) par spectrométrie alpha

NF ISO 18589-5 Mai 2009 Mesurage de la radioactivité dans l'environnement - Sol - Partie 5 : mesurage du strontium 90

NF ISO 18589-6 Mai 2009 Mesurage de la radioactivité dans l'environnement - Sol - Partie 6 : mesurage des activités alpha globale et bêta globale

NF M60-790-4 Juillet 1999 Énergie nucléaire - Mesure de la radioactivité dans l'environnement-Sol - Partie 4 : méthode pour une mise en solution des échantillons de sol

Air

NF M60-759 Avril 2005 Énergie nucléaire - Mesure de la radioactivité dans l'environnement - Air - Détermination de l'activité volumique des iodes atmosphériques

NF M60-812-1 Novembre 2006 Énergie nucléaire - Mesure de la radioactivité dans l'environnement - Partie 1 : guide du mesurage de l'activité volumique de l'air en C14 à partir d'un prélèvement atmosphérique

NF M60-312 Octobre 1999 Énergie nucléaire - Mesure de la radioactivité dans l'environnement-Air - Détermination par scintillation liquide de l'activité volumique du tritium atmosphérique prélevé par la technique de barbotage de l'air dans l'eau.

Bio indicateurs

NF M60-780-3 Mai 1997 Énergie nucléaire - Mesure de la radioactivité dans l'environnement. Bio indicateurs - Partie 3 : guide général pour la conservation et la manipulation des échantillons.

NF M60-780-4 Mai 1997 Énergie nucléaire - Mesure de la radioactivité dans l'environnement. Bio indicateurs - Partie 4 : guide général pour la préparation des échantillons.

NF M60-780-8 Mars 2001 Énergie nucléaire - Mesure de la radioactivité dans l'environnement - Bio indicateurs - Partie 8 : glossaire

Eaux

ISO 5667-3 : 2003 Qualité de l'eau -- Échantillonnage -- Partie 3: Lignes directrices pour la conservation et la manipulation des échantillons d'eau

NF M60-800 Septembre 2004 Énergie nucléaire - Mesure de l'indice de radioactivité dans l'environnement - Eau - Mesurage de l'indice de radioactivité bêta global en équivalent strontium 90 et yttrium 90 dans l'eau peu chargée en sels

NF M60-801 Septembre 2004 Énergie nucléaire - Mesure de la radioactivité dans l'environnement - Eau - Mesurage de l'indice de radioactivité alpha en équivalent plutonium 239 dans l'eau peu chargée en sels

NF M60-802-1 Juillet 2000 Énergie nucléaire - Mesure de la radioactivité dans l'environnement-Eau - Partie 1 : mesurage de l'activité des émetteurs Bêta par scintillation liquide - Cas particulier du tritium

NF M60-802-2 Juillet 2000 Énergie nucléaire - Mesure de la radioactivité dans l'environnement-Eau - Partie 2 : mesurage de l'activité des émetteurs Bêta par scintillation liquide - Cas particulier du carbone-14

NF M60-802-3 Juin 2002 Énergie nucléaire - Mesure de la radioactivité dans l'environnement - Eau - Partie 3 : mesurage de l'activité des émetteurs Bêta par scintillation liquide - Cas particulier de la présence simultanée du tritium et du carbone 14

NF M60-804-1 Avril 2004 Énergie nucléaire - Mesurage de l'activité des transuraniens (Pu, Am, Cm, Np) par spectrométrie alpha dans l'eau - Partie 1 : généralités

NF M60-804-2 Avril 2004 Énergie nucléaire - Mesurage de l'activité des transuraniens (Pu, Am, Cm) par spectrométrie alpha dans l'eau - Partie 2 : séparation des radionucléides à mesurer par l'utilisation de résines anioniques, cationiques et par chromatographie d'extraction

NF M60-804-3 Avril 2004 Énergie nucléaire - Mesurage de l'activité des transuraniens (Pu, Am, Cm, Np) par spectrométrie alpha dans l'eau - Partie 3 : séparation des radionucléides à mesurer par l'utilisation de résines par chromatographie d'extraction (petits volumes)

NF M60-805-3 Septembre 2005 Énergie nucléaire - Mesure de la radioactivité dans l'environnement - Eau - Partie 3 : mesurage de la concentration de l'uranium dans l'eau par scintillation liquide alpha

NF M60-805-4 Décembre 2005 Énergie nucléaire - Mesure de la radioactivité dans l'environnement - Eau - Partie 4 : mesurage de l'uranium dans l'eau par spectrométrie de masse avec plasma couplé par induction

NF M60-805-5 Décembre 2005 Énergie nucléaire - Mesure de la radioactivité dans l'environnement - Eau - Partie 5 : mesurage de l'activité et de la concentration de l'uranium dans l'eau par spectrométrie alpha

NF M60-806-1 Mai 2005 Énergie nucléaire - Mesure de la radioactivité dans l'environnement - Eau - Partie 1 : mesurage de l'activité du strontium 90 dans les eaux - Séparation radiochimique du strontium par l'acide nitrique et mesurage de l'activité bêta de l'yttrium 90

NF M60-806-2 Mai 2005 Énergie nucléaire - Mesure de la radioactivité dans l'environnement - Eau - Partie 2 : mesurage de l'activité du strontium 90 dans les eaux - Extraction par solvant organique de l'yttrium 90 et mesurage de l'activité bêta

NF M60-806-3 Mai 2005 Énergie nucléaire - Mesure de la radioactivité dans l'environnement - Eau - Partie 3 : mesurage de l'activité du strontium 90 dans les eaux - Séparation radiochimique du strontium par extraction sur résine de type "éther-couronne" et mesurage de l'activité bêta

NF M60-807 Septembre 2006 Énergie nucléaire - Mesure de la radioactivité dans l'environnement - Eau - Mesurage de l'activité en plomb 210 dans l'eau par spectrométrie gamma

ISO 10703:2007 Qualité de l'eau -- Détermination de l'activité volumique des radionucléides -Méthode par spectrométrie gamma à haute résolution

ISO 9697:2008 Qualité de l'eau -- Mesurage de l'activité bêta globale des eaux non salines -- Méthode par source concentrée

ISO 10704:2009 Qualité de l'eau -- Mesurage des activités alpha globale et bêta globale des eaux non salines -- Méthode par dépôt d'une source fine

ISO 11704:2010 Qualité de l'eau -- Mesurage des activités alpha globale et bêta globale des eaux non salines -- Méthode de comptage par scintillation liquide

Effluents et déchets

NF M60-316 Mai 2002 Énergie nucléaire - Technologie du cycle du combustible - Déchets - Détermination du strontium 90 dans les effluents et déchets après séparation chimique préalable

NF M60-328 Septembre 2006 Énergie nucléaire - Technologie du cycle du combustible - Déchets - Détermination de l'activité du plutonium 241 dans les effluents et déchets après séparation chimique préalable

NF M60-329 Janvier 2008 Énergie nucléaire - Technologie du cycle du combustible - Déchets - Détermination de l'activité alpha du plutonium dans les effluents et déchets par spectrométrie alpha

Autres

NF M60-812-2 Août 2006 Énergie nucléaire - Mesure de la radioactivité dans l'environnement - Partie 2 : mesurage de l'activité du carbone 14 par scintillation liquide dans les matrices carbonées de l'environnement

ANNEXE 2

Limites de détection usuelles en surveillance de l'environnement

Extrait du bilan radiologique de l'environnement français en 2008

Synthèse des résultats des réseaux de surveillance de l'IRSN

Rapport DEI n° 2009-04

Eaux de pluie		
Radionucléide	Limite de détection	Unité
Cs-137	0,11	Bq/L
Ra-226	0,027	
Pu-238	0,0014	
Am-241	0,0020	
Pu-241	0,13	
H-3	6,7	
Sr-90	0,0062	
α global	0,054	
β global	0,14	
Pu-239+240	0,00094	

Flore terrestre (feuilles d'arbre)		
Radionucléide	Limite de détection	Unité
Ag-110m	0,75	Bq/kg sec
Sb-124, Sb-125	1,60	
I-131	1,79	
Co-58	0,82	
Co-60	0,93	
H-3	150-200*	Bq/kg frais
C-14	225-270*	Bq/kg de carbone

* Valeurs indicatives : méthode par combustion avec oxydiser

Légumes feuilles (salades)		
Radionucléide	Limite de détection	Unité
I-131	0,03	Bq/kg frais
Co-58	0,24	
Co-60	0,11	
Cs-137	0,08	
Mn-54	0,11	
Ag-110m	0,11	
Sb-124, Sb-125	0,46	
H-3(libre)	4,55	Bq/L

Céréales		
Radionucléide	Limite de détection	Unité
Be-7	3,9	Bq/kg frais
Co-58	0,5	
Co-60	0,5	
Ru-106	3,9	
Ag-110m	0,4	
Cs-134, Cs-137	0,5	
Sb-124, Sb-125	1,2	

Lait		
Radionucléide	Limite de détection	Unité
I-131	0,48	Bq/L
Cs-134	0,16	
Cs-137	0,17	
H-3	6	

ANNEXE 3

Gammes d'activités (limites haute et basse) mesurables en routine par un laboratoire environnement doté d'une structure de réception et de traitement particulière pour les échantillons les plus actifs

	Eaux	Echantillons solides	Aérosols sur filtres
Spectrométrie gamma (Fonction du radionucléide)	$10^{-3} < A < 100 \text{ Bq/L}$	$1 < A < 1000 \text{ Bq/kg}$	$10^{-6} < A < 10 \text{ Bq/m}^3$
Alpha Global	$0,025 < A < 30 \text{ Bq/L}$	$100 < A < 10000 \text{ Bq/kg}$	$3 \cdot 10^{-5} < A < 0,1 \text{ Bq/m}^3$
Bêta Global	$0,15 < A < 30 \text{ Bq/L}$	$300 < A < 10000 \text{ Bq/kg}$	$3 \cdot 10^{-4} < A < 0,1 \text{ Bq/m}^3$
H-3	$10 < A < 1000 \text{ Bq/L}$	$1 < A < 10000 \text{ Bq/kg}$	
C-14	$10 < A < 1000 \text{ Bq/L}$	$1 < A < 10000 \text{ Bq/kg}$ (de carbone)	
Sr-90/Y-90	$0,001 < A < 10 \text{ Bq/L}$	$1 < A < 1000 \text{ Bq/kg}$	
Autres émetteurs bêta purs (Ni-63, Pu-241, etc.)	$5 < A < 1000 \text{ Bq/L}$		
Uranium et thorium isotopique	$0,01 < A < 20 \text{ Bq/L}$	$1 < A < 2000 \text{ Bq/kg}$	
Ra-226	$0,04 < A < 1000 \text{ Bq/L}$	$0,04 < A < 1000 \text{ Bq/kg}$	
Pu isotopique et Américium	$0,01 < A < 20 \text{ Bq/L}$	$1 < A < 2000 \text{ Bq/kg}$	

ANNEXE 4

Raies caractéristiques du bruit de fond en spectrométrie gamma (extrait de [18])

NATO/PfP UNCLASSIFIED

AEP-49
Volume 1

Table E.4: Background Gamma Lines in Spectra Measured by Ge Spectrometer

E_γ [keV]	Nuclide	Decay Chain
53.2	Pb-214	U
75.0	Pb-212	Th
75.0	Pb-214	U
75.0	Tl-208	Th
77.1	Pb-212	Th
87.2	Pb-212	Th
	Pb-214	U
92.9	Th-234	
99.5	Ac-228	Th
129.1	Ac-228	Th
154.2	Ac-228	Th
186.2	Ra-226	U
	U-235	
209.3	Ac-228	Th
238.6	Pb-212	Th
242.0	Pb-214	U
270.2	Ac-228	Th
278.0	Tl-208	Th
295.2	Pb-214	U
300.1	Pb-212	Th
328.0	Ac-228	Th
338.3	Ac-228	Th
351.9	Pb-214	U
409.5	Ac-228	Th
438.8	K-40	double escape
463.0	Ac-228	Th
511.0	Tl-208	Th
511.2		annihilation
562.3	Ac-228	Th
583.0	Tl-208	Th
609.3	Bi-214	U
665.5	Bi-214	U
703.1	Bi-214	U
727.0	Bi-212	Th
755.2	Ac-228	Th
763.1	Tl-208	Th
768.4	Bi-214	U
772.1	Ac-228	Th
782.0	Ac-228	Th
785.5	Bi-212	Th
785.9	Pb-214	U
794.7	Ac-228	Th
806.2	Bi-214	U
830.5	Ac-228	Th
835.5	Ac-228	Th
840.0	Ac-228	Th
860.4	Tl-208	Th
893.4	Bi-212	Th

E_γ [keV]	Nuclide	Decay Chain
904.5	Ac-228	Th
911.1	Ac-228	Th
934.1	Bi-214	U
950.0	K-40	single escape
964.1	Bi-214	U
964.4	Ac-228	Th
1000.7	Pa-234m	U
1035.5	Ac-228	Th
1052.0	Bi-214	U
1078.6	Bi-212	Th
1120.3	Bi-214	U
1155.2	Bi-214	U
1238.1	Bi-214	U
1281.0	Bi-214	U
1377.7	Bi-214	U
1385.3	Bi-214	U
1401.5	Bi-214	U
1408.0	Bi-214	U
1460.8	K-40	
1495.8	Ac-228	Th
1501.5	Ac-228	Th
1509.2	Bi-214	U
1512.8	Bi-212	Th
1538.5	Bi-214	U
1543.4	Bi-214	U
1556.9	Ac-228	Th
1580.2	Ac-228	Th
1583.2	Bi-214	U
1588.0	Ac-228	Th
1592.5	Tl-208	Th /double escape
1599.3	Bi-214	U
1620.6	Bi-212	Th
1624.7	Ac-228	Th
1630.4	Ac-228	Th
1638.0	Ac-228	Th
1661.3	Bi-214	U
1667.4	Ac-228	Th
1684.0	Bi-214	U
1693.1	Bi-214	U /single escape
1729.6	Bi-214	U
1764.5	Bi-214	U
1838.3	Bi-214	U
1847.4	Bi-214	U
2103.5	Tl-208	Th /single escape
2118.6	Bi-214	U
2204.2	Bi-214	U
2447.9	Bi-214	U
2614.7	Tl-208	Th

U decay chain of ²³⁸U.
Th decay chain of ²³²Th.

ANNEXE 5

Interférences possibles en spectrométrie gamma extrait de [9]

1/4

TABLE XVI. POSSIBLE INTERFERENCES IN GAMMA SPECTROMETRY
($\Delta E_\gamma = \pm 5 \text{ keV}$; $t_r = > 1 \text{ d}$; $P_\gamma = > 0.01$)

Nuclide	E_γ (keV)	P_γ	t_r (d)	Interfering nuclide	E_γ (keV)	P_γ	t_r (d)
Cr-51	320.084	0.0985	27.71	Np-239	315.88	0.013	2.35
				Rh-105	319.24	0.196	1.50
				Nd-147	319.4	0.022	11.06
				Ra-223	324.1	0.040	U-235
				Rn-219	324.1	0.040	U-235
Mn-54	834.843	0.99975	312.5	Bi-211	831.8	0.033	U-235
				Pa-234	831.8	0.057	U-238
				Pb-211	831.8	0.030	U-235
				Ac-228	835.6	0.015	Th-232
Co-57	122.0614	0.8559	271.84	Np-239	117.7	0.063	2.35
				Np-239	120.7	0.023	2.35
				Ra-223	122.4	0.011	U-235
				Rn-219	122.4	0.011	U-235
Co-58	810.775	0.9945	70.78	Pa-234	806.2	0.033	U-238
Fe-59	1099.251	0.561	44.53	—	—	—	—
	1291.569	0.436	44.53	—	—	—	—
Co-60	1173.238	0.999	1925.5	—	—	—	—
	1332.502	0.999824	1925.5	—	—	—	—
Zn-65	1115.546	0.504	243.9	Bi-214	1120.4	0.136	U-238
				Sc-46	1120.545	1.000	83.80
Zr-95	724.199	0.440	64.09	Sb-126	720.4	0.560	12.5
				Ce-143	722.0	0.045	1.40
				Sb-124	722.78	0.1126	60.2
				Sb-127	723.0	0.018	3.85
				Bi-212	727.17	0.065	Th-232
				La-140	751.79	0.0441	1.6779
Nb-95	765.8	0.998	35.0	Ag-110m	763.928	0.224	249.79
				Bi-214	768.7	0.042	U-238

Nuclide	E_γ (keV)	P_γ	t_r (d)	Interfering nuclide	E_γ (keV)	P_γ	t_r (d)
Mo-99/ Tc-99m	140.466	0.8896	(2.7476)	Co-57	136.4743	0.1058	271.84
				U-235	143.78	0.097	2.57×10^{11}
				Rn-219	144.3	0.032	U-235
				Ra-223	144.3	0.032	U-235
	181.057	0.0603	2.7476	Ce-141	145.4442	0.489	32.5
				Sb-125	176.334	0.0689	1008.1
				Cs-136	176.75	0.132	13.7
				U-235	185.72	0.54	2.57×10^{11}
				Pa-234	186.0	0.019	U-238
				Ra-226	186.211	0.0351	584 400
	366.421	0.0122	2.7476	I-131	364.48	0.816	8.021
				Pa-234	369.8	0.034	U-238
	739.5	0.1231	2.7476	Pa-234	742.8	0.029	U-238
777.921	0.0433	2.7476	Ag-110m	744.26	0.0464	249.79	
			Te-131m	773.7	0.46	1.25	
			Te-131m	782.7	0.067	1.25	
Ru-103	497.080	0.909	39.272	Cd-115	492.29	0.081	2.23
Ru-106/ Rh-106	621.84 1050.47	0.0995 0.01452	(372.6) (367)	Ag-110m Cs-136	620.35 1048.1	0.0277 0.805	249.79 13.7
Ag-110m	657.749	0.94652	49.79	Sb-126	656.2	0.028	12.5
				Cs-137	661.66	0.850	10 958
	884.667	0.734	249.79	Pa-234	880.8	0.130	U-238
				Pa-234	883.2	0.120	U-238
1384.27	0.247	249.79	Sc-46	889.277	1.000	83.8	
			—	—	—	—	
Sb-124	602.72	0.9792	60.2	Sb-125	600.557	0.178	1008.1
				Sb-127	603.6	0.042	3.85
				Ir-192	604.414	0.0819	73.831
				Cs-134	604.699	0.976	754.2
				Sb-126	605.0	0.024	12.5
				Sb-125	606.641	0.0502	1008.1
	1691.02	0.488	60.2	—	—	—	—

Nuclide	E_γ (keV)	P_γ	t_r (d)	Interfering nuclide	E_γ (keV)	P_γ	t_r (d)
Sb-125	176.334	0.0689	1008.1	Cs-136	176.75	0.132	13.7
				Mo-99	181.057	0.0603	2.7476
	427.889	0.2933	1008.1	Ba-140	423.69	0.0315	12.751
				Bi-211	426.9	0.019	U-235
				Pb-211	427.1	0.019	U-235
				La-140	432.55	0.0299	1.6779
				Sb-124	602.72	0.9792	60.2
	600.57	0.178	1008.1	Sb-127	603.6	0.042	3.85
				Ir-192	604.414	0.0819	75.1
				Cs-134	604.699	0.976	754.2
635.895	0.1132	1008.1	Sb-126	605.0	0.024	12.4	
			I-131	636.973	0.0712	8.021	
I-131	364.48	0.816	8.021	Tl-210	360.0	0.040	U-238
				Mo-99	366.421	0.0122	2.7476
				Pa-234	369.8	0.034	U-238
Cs-134	604.699	0.976	754.2	Sb-125	600.557	0.178	1008.1
				Sb-124	602.72	0.9792	60.2
				Sb-127	603.6	0.042	3.85
				Ir-192	604.414	0.0819	73.831
				Sb-126	605.0	0.024	12.5
				Sb-125	606.641	0.0502	1008.1
	795.845	0.854	754.2	Bi-214	609.3	0.412	U-238
				Te-131m	793.6	0.159	1.25
				Tl-210	795.0	1.000	U-238
				Ac-228	795.0	0.039	Th-232
				Pa-234	796.6	0.039	U-238
				Sn-125	800.5	0.010	9.62
Cs-137	661.66	0.850	10958	Ag-100m	657.749	0.9465	249.79
				Ce-143	664.0	0.050	1.40
				Te-131m	665.0	0.035	1.25
				Bi-214	666.0	0.022	U-238
				Sb-126	666.2	1.000	12.5

Nuclide	E_γ (keV)	P_γ	t_r (d)	Interfering nuclide	E_γ (keV)	P_γ	t_r (d)
Ba-140/ La-140	162.9	0.0621	12.751	Te-123m	158.96	0.840	119.7
				U-235	163.36	0.045	2.57×10^{11}
				Cs-136	164.04	0.045	13.7
	328.77	0.2074	(12.751)	Ra-223	324.1	0.04	U-235
				Rn-219	324.1	0.04	U-235
				Ac-228	328.3	0.026	Th-232
				Th-227	329.7	0.023	U-235
				Pa-231	329.9	0.01	U-235
				Ir-192	484.578	0.032	73.831
				—	—	—	—
	487.03	0.4594	(12.751)	—	—	—	—
				537.38	0.2439	12.751	—
				815.83	0.2364	(12.751)	Ag-110m
1596.49	0.954	(12.751)	Cs-136	818.48	1.000	13.7	
			Pa-234	819.7	0.027	U-238	
			—	—	—	—	
Ce-141	145.4442	0.489	32.5	Tc-99m	140.466	0.8896	2.7476
				U-235	143.78	0.097	2.57×10^{11}
				Rn-219	144.3	0.032	U-235
				Ra-223	144.3	0.032	U-235
				Te-131m	149.7	0.242	1.25
				—	—	—	—
Ce-144	133.544	0.1109	284.45	Ac-228	129.1	0.021	Th-232
				Pa-234	131.2	0.200	U-238
				Co-57	136.4743	0.1058	271.84