

Surveillance radiologique de l'environnement : la surveillance des aérosols

- I - Généralités sur les aérosols atmosphériques
- II - Le réseau de surveillance des aérosols
- III - Du prélèvement à la mesure des aérosols

I - Généralités sur les aérosols atmosphériques

Les aérosols atmosphériques, fines particules en suspension dans l'air, jouent un rôle important dans le transport de polluants, en particulier de substances radioactives. Ils peuvent être inhalés par l'homme et constituent ainsi une voie d'atteinte à surveiller.

1. Origine des aérosols atmosphériques

Inventé par l'Allemand Schmauss en 1920, le mot **aérosol** désigne la suspension, dans un milieu gazeux (air, dans la plupart des cas), de particules liquides, solides ou les deux, présentant une vitesse limite de chute négligeable. Dans l'air, dans les conditions normales, cela correspond à des particules de dimensions comprises entre quelques fractions de nanomètre et 100 micromètres.

En toute rigueur, le terme "aérosol" désigne un système diphasique formé par des particules et le gaz porteur. Mais dans la pratique, ce terme s'applique aux seules particules en suspension dans l'air.

La science des aérosols, initiée comme telle dans le courant des années 1950, s'est considérablement développée durant ces vingt dernières années. En effet, considérés parmi les polluants atmosphériques majeurs, impliqués dans le **réchauffement global de la planète** et le **trou de la couche d'ozone**, les aérosols interviennent dans de nombreux phénomènes naturels, comme la formation des nuages et des précipitations et les échanges océan-atmosphère. Ils sont également les vecteurs de la radioactivité atmosphérique.



La science des aérosols a des applications dans de nombreux domaines industriels : conception de salles à empoussièrisme contrôlé (salles propres), dans la filtration, l'épuration de l'air, la climatisation. On les rencontre davantage encore dans les industries de pointe utilisatrices de technologies impliquant certaines de leurs propriétés physiques et dont les produits fabriqués dépendent très fortement des transferts de la contamination (aérospatiale, électronique, circuits intégrés, agroalimentaire, pharmacie, nanotechnologies liées à la métallurgie). On les prend en compte également dans la sûreté des réacteurs nucléaires (expérience Phébus de l'IRSN à Cadarache, par exemple).

Les aérosols étant facilement inhalables par l'homme et pouvant s'accumuler dans le système bronchique profond, leurs effets sur la santé font l'objet de nombreuses investigations et mesures dans le cas de l'hygiène industrielle.

La science des aérosols est largement pluridisciplinaire et demeure très active face aux enjeux technologiques, environnementaux et sanitaires. Elle concerne les domaines de la physique (dispersion, dépôt, filtration, métrologie, ...), de la chimie (réactivité des aérosols) et de la biologie (transport de germes pathogènes, comme les légionnelles).

2. Les aérosols, vecteurs de la pollution atmosphérique

L'atmosphère est composée principalement d'azote (78 %) et d'oxygène (21 %), ainsi que de petites quantités d'argon, de vapeur d'eau, de dioxyde de carbone, auxquels s'ajoutent de très petites quantités d'autres gaz, ainsi que des aérosols.

La composition de l'atmosphère est très sensible aux rejets de gaz et de particules générés par les activités humaines, en particulier l'industrie et le transport qui s'ajoutent aux émissions naturelles permanentes. Certains polluants sont émis directement, d'autres sont produits par des réactions chimiques entre différents polluants dans l'atmosphère. Selon leur nature, ces polluants peuvent avoir diverses conséquences sur notre environnement. Suivant leur rémanence, c'est-à-dire leur durée de vie dans l'atmosphère, et leur mode de propagation, les polluants émis dans l'atmosphère peuvent exercer des perturbations de l'échelle locale à l'échelle planétaire. L'appauvrissement de la couche d'ozone et les changements climatiques représentent des problèmes d'envergure planétaire.

Bien qu'objets microniques, voire nanométriques, les aérosols atmosphériques jouent un rôle clé dans le fonctionnement du système terrestre. Environ trois milliards de tonnes de particules sont injectés chaque année dans l'atmosphère par des processus naturels (érosion des sols, éruptions volcaniques, embruns océaniques) ou par les activités humaines (activité industrielle, circulation automobile, feux).

La présence d'aérosols dans l'air ambiant, vecteurs de polluants, est susceptible d'impacter les écosystèmes et l'homme. Dans ce contexte, l'IRSN s'intéresse à deux effets particuliers dans l'environnement :

- les aérosols présents dans l'air au niveau du sol, finissant par se déposer sur les surfaces, selon des processus physiques nombreux et complexes. Ils peuvent ainsi contaminer les sols, les végétaux, les lieux de vie et, au-delà, se retrouver dans la chaîne alimentaire et les milieux aquatiques.
- les aérosols pouvant être directement respirés par l'homme, ils constituent à ce titre une voie d'atteinte directe aux polluants chimiques, radioactifs, voire biologiques, pouvant être particulièrement critique en situation accidentelle.

3. Les aérosols et la radioactivité

Actuellement, les mesures de la radioactivité des aérosols montrent une forte prédominance des radionucléides d'origine naturelle. Les traces de radionucléides artificiels mesurés sont

liées aux événements passés (tirs atmosphériques, accident de Tchernobyl) ou aux rejets industriels actuels.

La radioactivité des aérosols est due principalement aux radionucléides des familles naturelles de l'uranium et du thorium ainsi qu'aux descendants du radon. Le radon est un gaz radioactif naturel dont les produits de décroissance, également radioactifs, s'agrègent aux poussières présentes dans l'air. Il vient de l'uranium et du thorium naturels présents dans les roches du sous-sol, en quantités variables suivant les conditions météorologiques.

Le niveau d'activité des aérosols varie en fonction du taux d'empoussièrement, dépendant lui-même de la nature des sols et de leur couvert végétal. Le radon et ses descendants conduisent à des niveaux d'activité dans l'air qui selon la nature du sol et les conditions météorologiques peut varier de quelques dixièmes de becquerel par mètre cube d'air à quelques centaines de becquerels par mètre cube d'air. La radioactivité naturelle des aérosols atmosphériques, après décroissance du radon et de ses descendants à vie courte, se situe généralement en dessous de 1 mBq/m³ d'air.

Le béryllium 7, d'origine naturelle, est également présent dans les aérosols. Il est créé sous l'effet du rayonnement solaire sur la haute stratosphère. Il se retrouve "stocké" dans la stratosphère. La diffusion à partir de ce réservoir et le mouvement saisonnier des masses d'air atmosphériques expliquent la variation annuelle : un maximum l'été, un minimum l'hiver.

Le césium 137, radioélément artificiel provenant des retombées d'essais nucléaires aériens anciens et de l'accident de Tchernobyl, reste présent dans les mesures réalisées sur les aérosols mais à des niveaux extrêmement bas (entre 0,1 et 0,3 µBq/m³).

Entre 1945 et 1982, plus de 500 essais aériens d'armes nucléaires ont été effectués par les Etats-Unis (197), l'URSS (219), le Royaume-Uni (21), la France (45) et la Chine (22). L'essentiel de la puissance a été libéré au début des années 1960 et plus particulièrement durant les années 1961 et 1962 par les tirs américains et soviétiques jusqu'au traité de non-prolifération des armes nucléaires signé en août 1963. L'essentiel de ces tirs a eu lieu dans l'hémisphère nord. Les retombées, constituées de produits de fission et de produits d'activation, ont eu lieu à près de 90% dans cet hémisphère.

Les retombées de ces produits radioactifs ont entraîné une contamination globale de notre environnement qui perdure encore de nos jours, même s'il est de plus en plus difficile d'observer des niveaux supérieurs aux limites de détection des appareillages pour ces radionucléides désormais présents à l'état de traces dans l'environnement.

II - Le réseau de surveillance des aérosols

La surveillance de la radioactivité des aérosols est assurée par l'IRSN depuis plus de 40 ans par un réseau de stations réparties sur tout le territoire national et dans les DOM-TOM.

1. Les objectifs de la surveillance

L'objectif de la surveillance de la radioactivité des aérosols atmosphériques est d'évaluer l'impact sur l'air ambiant de toutes les activités humaines mettant en oeuvre des radionucléides et de déceler et caractériser toute élévation anormale de la radioactivité de l'air consécutive à un accident.

Cette surveillance régulière couvre l'ensemble du territoire et livre ainsi des données objectives permettant d'assurer l'absence d'exposition anormale liée aux activités nucléaires et de caractériser les conditions d'exposition ambiante auxquelles sont exposées naturellement les populations selon leurs lieux de vie.

Dans la pratique, deux types complémentaires de surveillance sont régulièrement pratiqués :

- la surveillance des sources potentielles d'émission de radionucléides (stations de surveillance des installations nucléaires) afin de contrôler l'état normal de la situation et de détecter précocément toute anomalie ;
- la surveillance du territoire et des zones habitées (stations de référence, stations de surveillance des centres urbains et industriels, stations de surveillance outre-mer) pour disposer d'un ensemble de données suffisantes pour quantifier les expositions, notamment en cas d'accident.

2. L'historique du réseau de surveillance de l'air

La première station a été mise en service au Service Régional de Nancy en 1961. Au mois de juin de la même année, les premiers résultats sont publiés dans les tableaux mensuels de mesures du **Service Central de Protection contre les Rayonnements Ionisants (SCPRI)**. Les mesures bêta globales sont effectuées tout de suite après le prélèvement, 3 heures après, 24 heures après et 5 jours après le prélèvement. Des mesures par spectrométrie gamma sur les filtres présentant une activité bêta globale élevée permettent de suivre l'augmentation de la radioactivité atmosphérique consécutive aux essais d'armes nucléaires dans l'atmosphère.

Parallèlement, l'**Institut de protection et de sûreté nucléaire (IPSN)** a mis en place, à partir de 1959, un observatoire de la radioactivité dans l'atmosphère constitué d'un ensemble de stations de prélèvements d'aérosols. Cet observatoire s'est étendu en 1970 aux retombées atmosphériques.

En 1963, le réseau SCPRI compte 10 stations en France. Les analyses par spectrométrie gamma sont devenues systématiques sur les filtres regroupés par semaine et par station. Des études de recherche des poussières radioactives isolées sont effectuées mensuellement par **autoradiographie** des filtres. Les tests nucléaires chinois font l'objet d'analyses plus complètes sur les filtres, publiées en 1965 dans une annexe spéciale du rapport mensuel. En août 1965, **la première station de référence est créée au Vésinet**. La surveillance globale du territoire est assurée par les 25 autres stations comprenant les stations de la météorologie nationale.

En 1968, le réseau comporte 30 stations classées en 4 catégories : **métropole** (surveillance globale du territoire), **sites nucléaires** (Fontenay, Avoine (Chinon), Chooz, Brennilis), **Outremer** (Réunion) et **station de référence** (Le Vésinet). Avec le développement du programme nucléaire français et suite à l'accident nucléaire majeur de Tchernobyl (26 avril 1986), le nombre de stations du réseau croît rapidement pendant les années 80. En 1989, le réseau comporte 59 stations.

En 1990, les premières mesures alpha globales sont réalisées sur les filtres des stations de la Rochelle et Lodève. Certaines stations, créées dans les années soixante, ont aujourd'hui disparu. En 2008, le réseau comporte 68 stations dont 33 sont dédiées à la surveillance des installations nucléaires.

L'ensemble des résultats relatifs aux poussières atmosphériques prélevées dans ces stations est publié depuis 1961 dans les tableaux mensuels de mesures du SCPRI, de l'OPRI puis de l'IRSN jusqu'en 2003. Depuis 2004, ces résultats sont publiés dans le bilan radiologique de l'environnement édité annuellement par l'IRSN et par ailleurs accessibles dans la rubrique "Résultats de surveillance de l'IRSN" de ce site.

3. Les différents types de stations de surveillance

Les stations de surveillance des installations nucléaires

Les Installations Nucléaires de Base surveillées sont essentiellement des **Centres Nucléaires de Production d'Electricité** exploités par EDF. Plusieurs types de réacteurs sont contrôlés : les Réacteurs à eau sous pression (en exploitation ou en démantèlement comme à Chooz A), les

réacteurs de la filière Gaz eau lourde (Brennilis - en démantèlement) et de la filière Uranium naturel graphite gaz (Le Bugey). Des stations de surveillance sont également installées près des réacteurs à neutrons rapides en fonctionnement (réacteur expérimental Phénix) ou à l'arrêt (prototype industriel superphénix de Creys-Malville).

Les centres d'études nucléaires du CEA (Saclay, Fontenay, Cadarache, Pierrelatte) sont contrôlés quotidiennement, ainsi que le centre d'études des matériaux pour la fabrication des armes nucléaires (Valduc).

Les sites liés au cycle du combustible (Enrichissement, fabrication du combustible, retraitement, stockage) font également l'objet d'une surveillance quotidienne. Une station de prélèvement de poussières atmosphériques est installée au centre international d'étude de la physique des particules du CERN, situé en Suisse mais à proximité de la frontière.

Les stations de surveillance des centres urbains et des sites industriels

Ces stations sont installées près des villes, en général des chefs lieux. Bien que certaines soient peu éloignées d'installations nucléaires importantes, elles n'entrent pas pour autant dans le dispositif spécifique de surveillance de ces sites. Leur finalité est d'évaluer l'exposition des populations dans des sites urbanisés se situant parfois à proximité des centrales nucléaires.

La majorité de ces stations est exploitée en collaboration avec Météo France (Ajaccio, Lille, Brest, Strasbourg, Tours, Bourges, Biarritz, Toulouse, Nice, etc.). Les autres stations sont prises en charge par des services techniques ou des laboratoires municipaux (Paris, Bordeaux), des entreprises (SOMANU, Rhodia Chimie, AREVA). L'IRSN assure également la gestion de la station de prélèvement de Beaumont près du centre de retraitement du combustible de AREVA La Hague.

Les stations de surveillance d'Outre-mer

L'IRSN dispose de 4 stations de prélèvement dans les DOM-TOM. Par convention, Météo France gère les stations de la Martinique (mise en service en 1965), de Saint-Pierre-et-Miquelon (mise en service en 1979) et de la Réunion (mise en service en 1966). Celle de la Polynésie française est exploitée par le Laboratoire d'Etude et de Surveillance de l'Environnement (LESE) de l'IRSN, installé à Tahiti.

III - Du prélèvement à la mesure des aérosols

1. Le prélèvement des aérosols

Technique de prélèvement

La surveillance permanente de la radioactivité des aérosols atmosphériques au niveau du sol est assurée par des dispositifs de prélèvement d'air sur filtre fixe.

L'appareillage est constitué d'un système d'aspiration, d'un compteur volumétrique et d'un manchon porte-filtre protégé des précipitations par un capot en aluminium.



La tête de prélèvement a été conçue de manière à échantillonner de façon omnidirectionnelle les particules aérosols contenues dans l'air. La forme de la tête permet de réduire l'incidence des turbulences atmosphériques, de prélever en modifiant le moins possible la distribution granulométrique de l'aérosol. Elle permet également de conduire les particules aspirées jusqu'au filtre avec un minimum de perte et d'empêcher au maximum la pénétration de l'eau de pluie, des insectes et des débris végétaux.

Le dispositif d'aspiration est constitué d'une pompe munie d'un débitmètre (compteur volumétrique) placé dans le circuit d'aspiration entre la pompe et le filtre. Le débitmètre est essentiel pour pouvoir contrôler le bon fonctionnement du dispositif d'aspiration ainsi que l'étanchéité de l'ensemble du circuit d'échantillonnage. Le débit maximal pour les prélèvements d'air est de $10 \text{ m}^3/\text{h}$ à pression normale.

Des filtres en cellulose pure sont utilisés quotidiennement (et depuis plus de 40 ans) sur les stations de prélèvement de l'IRSN. D'autres filtres (à base de cellulose et de fibre de verre) sont utilisés en routine pour les prélèvements effectués au niveau des exutoires (contrôle des effluents gazeux des centrales nucléaires par exemple). Il existe de nombreux types de média filtrant utilisés pour la collecte des aérosols. Les filtres de prélèvement les plus utilisés actuellement sont en fibre de cellulose, en fibre de verre, en fibre de verre avec cellulose, en téflon ou en fibre de polypropylène.



Protocole et stratégie de surveillance

La durée de prélèvement est de 24 heures. Si la logistique le permet, les stations fonctionnent 7 jours sur 7, toute l'année. Les filtres sont transmis quotidiennement au laboratoire de l'IRSN.

L'implantation des stations a été effectuée en fonction de nombreux paramètres :

- climatologie ;
- zones d'activités (stations proches des centres urbains et des zones industrielles) ;
- points de rejets potentiels (centrales nucléaires, centres d'études, site de stockage).

Les stations de prélèvement sont généralement implantées dans des zones dégagées, situées sous les vents dominants principaux (ex : stations AS1 près des centrales nucléaires).



Les principales étapes du prélèvement

Les opérations relatives au prélèvement de poussières atmosphériques font l'objet de consignes IRSN qui ont été reprises dans la norme NF M 60-760 (mesure de la radioactivité dans l'environnement - Air). Les principales étapes du prélèvement décrites dans cette consigne sont :

- la mise en place et le retrait du filtre qui peut s'avérer délicate étant donné la fragilité de la matrice ; - la mise en marche et l'arrêt du préleveur ;
- les formalités de transmission (fiche d'identification du prélèvement, renseignements météorologiques, état du filtre lors du retrait, remarques éventuelles) ;
- les modalités de conditionnement pour le transport de l'échantillon.

Après son retrait du porte-filtre, le filtre est soigneusement placé dans une pochette de papier cristal (étui non électrostatique) à l'aide de pinces brucelle. Cette pochette est ensuite fixée à la fiche d'identification du prélèvement.

2. La préparation et le traitement des filtres

Enregistrement des filtres

L'IRSN reçoit et traite près d'une centaine de filtres par jour. Les enveloppes contenant les prélèvements sont réceptionnées en fin de matinée. Le laboratoire effectue tout d'abord les opérations d'identification des filtres, de vérification des données et d'enregistrement informatique des fiches d'identification. Ces données sont stockées dans une base de données qui permet de suivre l'échantillon de sa réception à la validation des mesures de radioactivité qui seront réalisées.

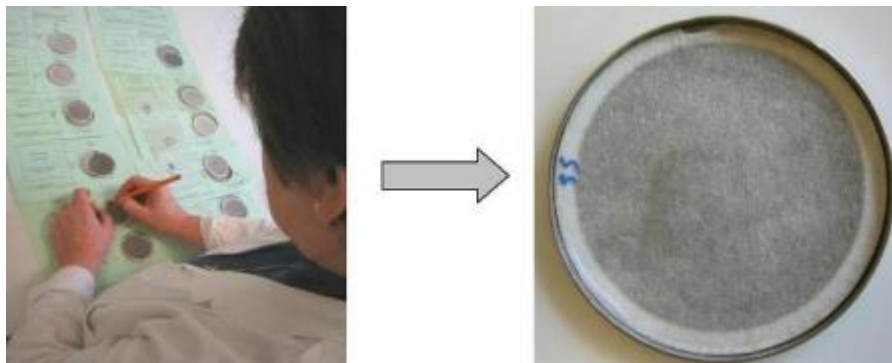
Número de prélèvement	Type de prélèvement	Site	Date de réception en laboratoire	Durée globale estimée
023360005	aéros sol aspir filt ble	Saclay	02/12/2002	16
023360006	aéros sol aspir filt ble	Saclay	02/12/2002	16
023360007	aéros sol aspir filt ble	St Laurent des Eaux	02/12/2002	16
023360008	aéros sol aspir filt ble	Eurodif Tricastin	02/12/2002	16
023360009	aéros sol aspir filt ble	St Laurent des Eaux	02/12/2002	16
023360010	aéros sol aspir filt ble	St Laurent des Eaux	02/12/2002	16
023360011	aéros sol aspir filt ble	St Laurent des Eaux	02/12/2002	16
023360012	aéros sol aspir filt ble	Eurodif Tricastin	02/12/2002	16
023360013	aéros sol aspir filt ble	Pierrelatte	02/12/2002	16

Toutes les données afférentes (sites, dates, heures, compteur, volume aspiré, données météorologiques) sont enregistrées dans la base de données. Tout commentaire inscrit par le préleveur sur la fiche ou toute remarque utile sont également reportés dans une page de commentaire prévue à cet effet.

Un plan de préparation prévoyant la répartition des prélèvements selon leurs dates de prélèvement et la nature de l'analyse à réaliser (premier comptage bêta global à réception du filtre, second comptage bêta global, comptage alpha global) est édité une fois tous les enregistrements effectués. Ces informations sont transmises au Laboratoire des mesures nucléaires de l'IRSN.

Préparation des coupelles et traitement des filtres

Dans un deuxième temps, la **préparation des coupelles inox** (support des filtres pour le comptage) est effectuée. Le numéro d'identification attribué par la base de données à chaque prélèvement est noté sur le rebord des filtres ainsi que sur les fiches de prélèvement. Les filtres sont alors placés dans les coupelles inox (51 mm de diamètre) préalablement identifiées.



La troisième phase consiste en un **traitement chimique** des filtres (collodion au dixième dans l'acétone) qui permet de fixer les poussières atmosphériques. Le séchage des coupelles s'effectue à l'air sous sorbonne.

Transmission au laboratoire de mesures nucléaires

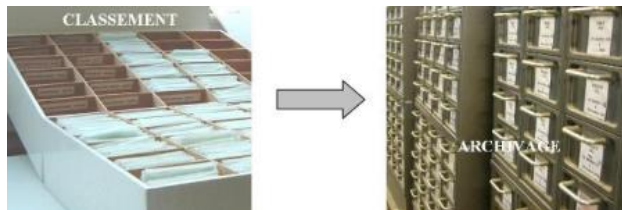
Les coupelles sont ensuite placées dans des boîtes de Pétri afin de protéger les échantillons pendant leur transport au laboratoire de mesures nucléaires.

La répartition des coupelles dans les boîtes de Pétri est effectuée en fonction du listing de chargement édité en fin d'enregistrement des fiches d'identification.



Archivage des filtres et classement

Après analyse, les échantillons sont archivés à vie. L'IRSN dispose d'un système de classement mis en place depuis l'origine du réseau, comportant plus de 500 000 filtres et représentant plus de 45 ans d'activité.



3. La mesure de la radioactivité des aérosols

Mesure "bêta global"

Le principe de mise en œuvre consiste à effectuer une mesure sur le filtre après la décroissance des radioéléments naturels à vie courte (descendants du radon et du thoron). Si une activité anormale est constatée, un comptage alpha et une spectrométrie gamma sont réalisés afin de vérifier la présence éventuelle d'un radioélément artificiel.

Ainsi le comptage bêta global est effectué au moins cinq jours après la fin du prélèvement pour s'assurer de la disparition totale de tous les descendants du radon à vie courte et du thoron. L'activité rendue est alors exprimée à la date de comptage.

Si ce comptage dépasse un seuil établi pour chaque site (la moyenne, au cours d'une année, du comptage "bêta global" dépend de la nature du sol ou du climat d'une région), une spectrométrie gamma et un comptage "alpha global" sont effectués.

Depuis 2003, l'IRSN dispose de compteurs proportionnels fonctionnant en régime Geiger et ne permettent pas l'identification des radioéléments présents. Un contrôle de bon fonctionnement de chaque compteur est effectué à chaque cycle de comptage par un contrôle du bruit de fond et des mouvements propres, un contrôle de rendement et un contrôle du nombre de coupelles comptées par cycle.



Mesure "alpha global"

Des mesures de l'activité alpha globale sont effectuées sur les filtres provenant de l'environnement de certains sites nucléaires (réacteurs moxés, centres d'études nucléaires, centre de retraitement du combustible de La Hague, usine d'enrichissement EURODIF) ainsi que sur le site du Vésinet (station de référence). Le comptage alpha global s'effectue également sur les compteurs proportionnels.

Spectrométrie gamma

Une mesure systématique par spectrométrie gamma (détecteurs Germanium Hyperpur) est réalisée pour chaque station sur les prélèvements groupés du mois.

