

**IRSN**INSTITUT  
DE RADIOPROTECTION  
ET DE SÛRETÉ NUCLÉAIRE

# Éléments pour la caractérisation radiologique des matières et effluents en application de l'arrêté du 25 mai 2005

DEI/SARG/2008-036

Système de management  
de la qualité IRSN certifié

DIRECTION DE L'ENVIRONNEMENT  
ET DE L'INTERVENTION  
Service d'analyse des risques liés à la géosphère


Demandeur	Autorité de Sûreté Nucléaire
Référence de la demande	ASN-DEP-DIS-n°0004-2008 du 7 janvier 2008
Numéro de la fiche programme	03D/T01-002/06
Processus de rattachement	R1-4

## Éléments pour la caractérisation radiologique des matières et effluents en application de l'arrêté du 25 mai 2005

Bureau d'évaluation des risques liés à la radioactivité naturelle

C. Cazala

Rapport DEI/SARG/2008-036

	Réservé à l'unité		Visas pour diffusion		
	Auteur(s)	Vérificateur(s)	Chef du SARG	Directeur de la DEI	Directeur Général de l'IRSN
Noms	C. Cazala	J. Guillevic	D. GAY	D. CHAMPION	J. REPUSSARD
Dates	23/06/08	23/06/08	24/06/08	7/07/08	08/07/08
Signatures					

DIFFUSION : Libre  Interne  Limitée

---

## HISTORIQUE DES MODIFICATIONS

Version	Date	Modifications
V0	Juillet 2008	Emission initiale
V1	octobre 2008	- Correction de forme figure 1

# SOMMAIRE

<b>1 INTRODUCTION.....</b>	<b>1</b>
<b>2 OBJECTIF DE LA CARACTERISATION RADIOLOGIQUE .....</b>	<b>1</b>
<b>3 ORIENTATIONS METROLOGIQUES.....</b>	<b>4</b>
3.1 MESURES SUR SITE.....	4
3.2 PRELEVEMENTS SUR SITE .....	5
3.3 MESURES EN LABORATOIRE .....	5
<b>4 RESTITUTION DES RESULTATS .....</b>	<b>8</b>

# 1 INTRODUCTION

Certaines activités industrielles telles que la production de céramiques réfractaires, la combustion de charbon en centrales thermiques ou encore le traitement de minerais d'étain, d'aluminium ou de zircon, mettent en œuvre des matières premières contenant naturellement des radionucléides. La manipulation et la transformation de ces matières, qualifiées de NORM (Naturally Occuring Radioactive Material) ou TENORM (Technologically Enhanced Naturally Occuring Radioactive Material), peuvent entraîner une augmentation notable de l'exposition des travailleurs ou de celle des populations.

La réglementation nationale traite la situation des « expositions à la radioactivité naturelle renforcée » au travers des dispositions introduites par les décrets n° 2002-460 [1] ; n° 2003-296 [2] ; n° 2007-1582 [3] ; n°2007-1570 [4] et n° 2008-244 [5]. Ces dispositions sont définies plus précisément dans l'arrêté du 25 mai 2005 relatif aux activités professionnelles mettant en œuvre des matières premières contenant naturellement des radionucléides non utilisés pour leurs propriétés radioactives [6]. Cet arrêté impose notamment aux chefs d'établissements concernés de réaliser une évaluation des doses reçues par les travailleurs et les populations.

L'évaluation des doses repose, entre autres, sur la caractérisation physique et radiologique des matières premières, des produits finis, des sous produits et des déchets - réunis sous le terme de « matières » - ainsi que sur celle des effluents. Les annexes deux et trois de l'arrêté du 25 mai 2005 précisent les modalités techniques de réalisation des évaluations des doses, respectivement pour les populations et les travailleurs. Elles stipulent que « la caractérisation radiologique des matières pourra se baser sur les normes en vigueur [7] ou sur un cahier des charges établi par l'IRSN ».

Le présent document constitue le cahier des charges précité. Il est susceptible d'être utilisé pour l'ensemble des études, qu'elles soient génériques (applicables à plusieurs installations) ou spécifiques (applicables à une seule installation).

## 2 OBJECTIF DE LA CARACTERISATION RADIOLOGIQUE

La caractérisation radiologique des matériaux doit permettre d'évaluer le niveau d'exposition des travailleurs et/ou des populations du fait du fonctionnement des installations industrielles visées par l'arrêté du 25 mai 2005.

La radioactivité des matériaux considérés dans les études conduites en application de l'arrêté du 25 mai 2005 résulte de la présence de l'isotope radioactif du potassium ( $^{40}\text{K}$ ) et des radionucléides des chaînes naturelles de l'uranium ( $^{238}\text{U}$  et  $^{235}\text{U}$ ) et du thorium ( $^{232}\text{Th}$ ). Ces trois familles radioactives sont présentées dans la figure 1.

De manière stricte, les évaluations dosimétriques doivent intégrer l'ensemble des radionucléides mentionnés précédemment. Néanmoins, certains radionucléides sont difficiles à mesurer avec les techniques usuelles ( $^{218}\text{Po}$ ,  $^{210}\text{Tl}$ ,  $^{212}\text{Bi}$ ,  $^{216}\text{Po}$ ...). Les phénomènes physiques qui régissent les filiations

radiologiques permettent cependant de s'affranchir de leur analyse. En effet, en raison de leur courte période radioactive, ils peuvent être considérés en équilibre avec leur père. Ainsi, il convient de déterminer a minima les activités des principaux radionucléides à vie longue de chaque chaîne.

Chaîne de l'uranium 238 : Dans les solides, la mesure portera au minimum sur l' $^{238}\text{U}$ , le  $^{226}\text{Ra}$  et le  $^{210}\text{Pb}$ . Si ces radionucléides sont à l'équilibre séculaire - c'est-à-dire qu'ils présentent le même niveau d'activité - on peut alors considérer que tous les radionucléides de la chaîne sont à l'équilibre. Si au contraire, on constate des déséquilibres significatifs, des mesures complémentaires devront être entreprises ( $^{230}\text{Th}$ ,  $^{234}\text{U}$  et  $^{210}\text{Po}$ ). Dans les liquides, la même démarche pourra être entreprise mais la première étape devra également intégrer l'analyse de l' $^{234}\text{U}$  qui peut être en déséquilibre avec l' $^{238}\text{U}$ .

Chaîne du thorium 232 : La mesure devra porter sur le  $^{232}\text{Th}$ , le  $^{228}\text{Ra}$  et le  $^{228}\text{Th}$ .

Chaîne de l'uranium 235 : L'activité des radionucléides constitutifs de cette chaîne peut être soit mesurée directement, soit être déduite de l'analyse des radionucléides de la chaîne de l'uranium 238. En effet, les deux isotopes de l'uranium ayant le même comportement géochimique, le rapport d'activité  $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$  est homogène et égal à 22 dans l'environnement sauf cas exceptionnels. Quand la famille de l'uranium 238 est à l'équilibre, cela signifie que la matrice constitue un système dit « fermé », c'est-à-dire que les descendants ne sont pas remobilisés. Les descendants de l'uranium 235 sont des isotopes des mêmes éléments que ceux constituant la chaîne de l'uranium 238. Cela implique que les descendants des deux familles présentent les mêmes propriétés physico chimiques. Ainsi, lorsque la famille de l'uranium 238 est à l'équilibre, il peut être considéré que celle de l'uranium 235 est également à l'équilibre. Si au contraire, la famille de l'uranium 238 présente un déséquilibre, une première estimation peut être conduite sur la base de l'hypothèse majorante qui consiste à attribuer à l'ensemble des radionucléides constitutifs de la famille de l'uranium 235, l'activité maximale déterminée dans la famille de l'uranium 238 divisée par 22. Cette approximation est généralement suffisante pour les besoins des évaluations d'exposition, la contribution de la famille de l'uranium 235 étant la plupart du temps négligeable devant celle résultant des familles du thorium 232 et de l'uranium 238.

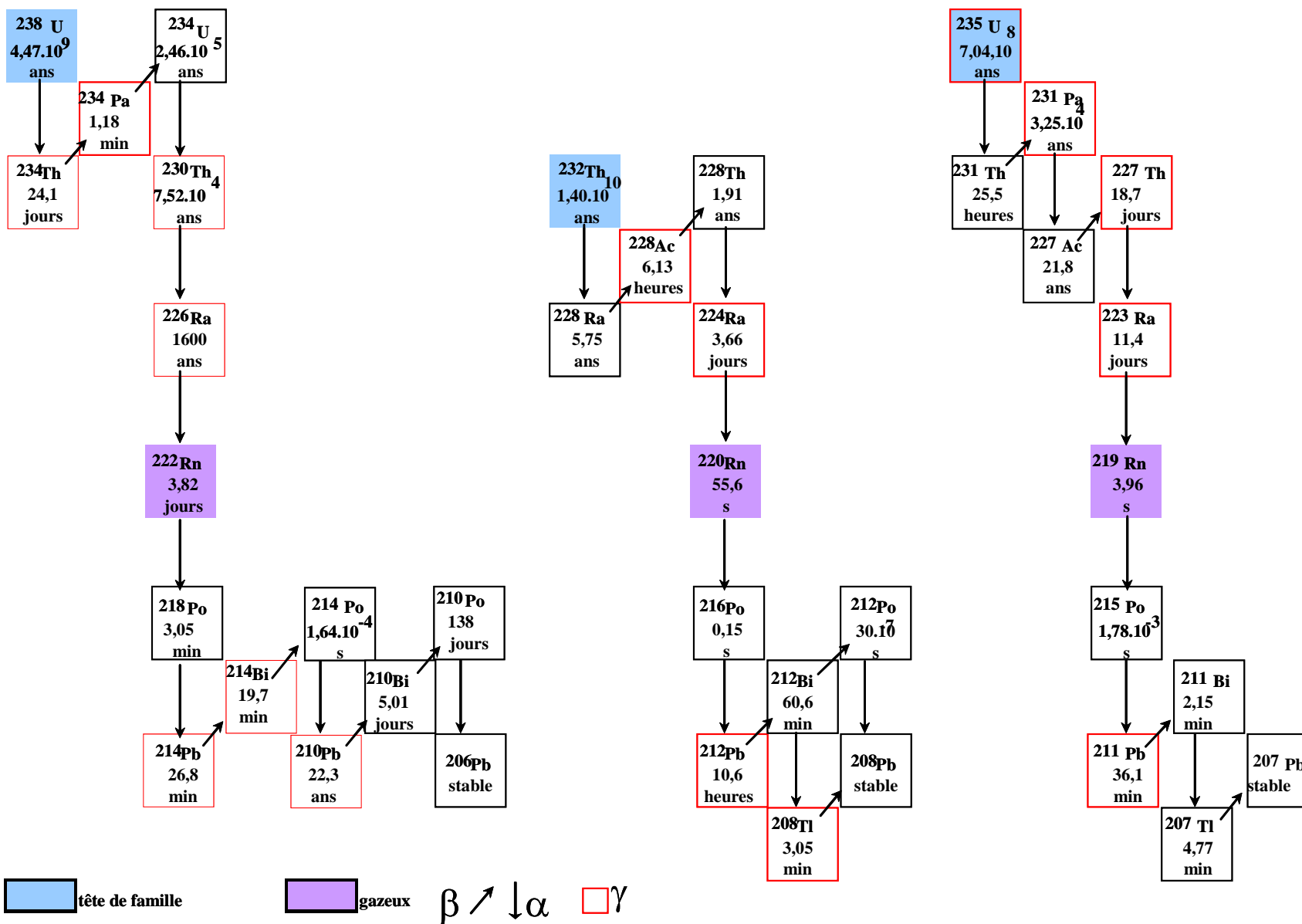


Figure 1 : Familles radioactives naturelles

En complément de la détermination de l'activité des radionucléides de ces trois familles radioactives, il est rappelé que l'activité du  $^{40}\text{K}$  doit également être déterminée et intégrée à l'évaluation des doses.

Le nombre et la nature des analyses radiologiques doivent être adaptés à chaque installation. En particulier, il convient de tenir compte de la quantité et de la diversité des matières présentant une radioactivité naturelle ainsi que des fluctuations associées aux éventuelles modifications des sources d'approvisionnement.

### **3 ORIENTATIONS METROLOGIQUES**

La présente section du document distingue les opérations pouvant être conduites sur site de celles devant être entreprises en laboratoire.

#### **3.1 MESURES SUR SITE**

Les mesures pouvant être entreprises sur le site visent à établir un premier diagnostic de la situation radiologique de l'installation. L'objectif premier est d'identifier les matériaux présentant les plus forts niveaux d'activité afin de cibler les prélèvements nécessaires à l'évaluation des doses. Les techniques pouvant ainsi être mises en oeuvre sont des mesures radiométriques et la spectrométrie gamma in situ.

Dans la mesure où ce document se rapporte uniquement à la caractérisation des matières, la **mesure radiométrique** peut être conduite à l'aide de sondes habituellement utilisées pour la réalisation d'états radiologiques de site [9]. La mesure sera réalisée au contact des matières et à une distance de 50 cm environ. L'objectif est dans un premier temps d'effectuer une hiérarchisation des zones devant faire l'objet d'une caractérisation par le biais de mesures in situ ou en laboratoire. Cette mesure radiométrique permet également d'estimer le niveau d'exposition externe des opérateurs qui travaillent à proximité des matières.

La **spectrométrie gamma in situ**, d'usage assez peu répandu, est aujourd'hui principalement utilisée dans le cadre de la caractérisation de sites contaminés ou pour le démantèlement des installations nucléaires. Cette technique permet de disposer rapidement d'informations sur le niveau d'activité moyen du sol ainsi que sur sa composition radiologique. Elle présente l'intérêt de s'affranchir de l'étape d'échantillonnage et de la multiplication des analyses en laboratoire. Il est néanmoins indispensable de bien considérer ses limites : elle ne permet en effet pas d'analyser les photons de faible énergie ; n'autorise que des mesures surfaciques dont la géométrie est préétablie et requiert une logistique relativement lourde.



## 3.2 PRELEVEMENTS SUR SITE

L'objectif des prélèvements est d'obtenir en laboratoire une caractérisation radiologique dont les résultats pourront être utilisés dans les calculs d'évaluation du niveau d'exposition des travailleurs ou des populations.

L'étape du prélèvement constitue une phase particulièrement importante. En effet, la composition radiologique du prélèvement doit être représentative de celle de la source d'exposition dont il est issu. Les procédures de prélèvement sont encadrées par des normes auxquelles il est nécessaire de se référer. Par exemple, le prélèvement des eaux pourra s'appuyer sur les prescriptions des normes AFNOR 5667-1 à 6.

## 3.3 MESURES EN LABORATOIRE

Les analyses conduites en laboratoire ont pour objectif de déterminer de manière qualitative et quantitative la composition radiologique des échantillons prélevés sur site. Les normes en vigueur sont rappelées dans l'inventaire des normes sur le mesurage de la radioactivité [7] produit par l'IRSN en 2007 à l'attention de l'ASN.

Le tableau 1 présente de manière synthétique les principales techniques d'analyse pouvant être mises en œuvre pour la quantification en laboratoire des différents radionucléides naturels. Les radionucléides devant être recherchés en priorité sont repérés en italique gras.

Les techniques utilisables pour l'analyse de chacun des radionucléide apparaissent sous la forme de cases grisées. Des commentaires sont mentionnés dans la case lorsque l'analyse est conduite de façon indirecte à partir de la mesure d'un descendant (exemple : l'activité du  $^{226}\text{Ra}$  est déterminée en spectrométrie gamma à partir de celle de l' $^{228}\text{Ac}$ ).

Il apparaît que certains radionucléides peuvent être analysés à l'aide de plusieurs techniques. Le choix de la technique à mettre en œuvre doit être guidé par la nature de l'échantillon. Dans l'hypothèse où plusieurs méthodes seraient mises en œuvre, il convient de vérifier la cohérence des résultats obtenus.

Tableau 1 : Principales techniques d'analyse des radionucléides naturels

Famille de l' <sup>238</sup> U						
Radionucléide	Spectrométrie $\gamma$	Spectrométrie $\alpha$	Scintillation liquide	Spectrométrie de masse	Fluorimétrie	Emanometrie
<sup>238</sup> U	Via <sup>234</sup> Th					
<sup>234</sup> Th						
<sup>234m</sup> Pa						
<sup>234</sup> U						
<sup>230</sup> Th						
<sup>226</sup> Ra	Via <sup>214</sup> Pb et <sup>214</sup> Bi					Via <sup>222</sup> Rn
<sup>222</sup> Rn	Via <sup>214</sup> Pb et <sup>214</sup> Bi					
<sup>218</sup> Po						
<sup>214</sup> Pb						
<sup>214</sup> Bi						
<sup>210</sup> Tl						
<sup>214</sup> Po						
<sup>210</sup> Pb		Via <sup>210</sup> Po				
<sup>210</sup> Bi						
<sup>206</sup> Tl						
<sup>210</sup> Po						

Famille du <sup>232</sup> Th						
Radionucléide	Spectrométrie $\gamma$	Spectrométrie $\alpha$	Scintillation liquide	Spectrométrie de masse	Fluorimétrie	Emanometrie
<sup>232</sup> Th						
<sup>228</sup> Ra	Via <sup>228</sup> Ac					
<sup>228</sup> Ac						
<sup>228</sup> Th	Via <sup>212</sup> Pb et <sup>208</sup> Tl					
<sup>224</sup> Ra						
<sup>220</sup> Rn						
<sup>216</sup> Po						
<sup>212</sup> Pb						
<sup>212</sup> Bi						
<sup>208</sup> Tl						
<sup>212</sup> Po						

Famille de $^{235}\text{U}$						
Radionucléide	Spectrométrie $\gamma$	Spectrométrie $\alpha$	Scintillation liquide	Spectrométrie de masse	Fluorimétrie	Emanometrie
$^{235}\text{U}$						
$^{231}\text{Th}$						
$^{231}\text{Pa}$						
$^{227}\text{Ac}$	Via $^{223}\text{Ra}$ et $^{227}\text{Th}$					
$^{227}\text{Th}$						
$^{223}\text{Ra}$						
$^{219}\text{Rn}$						
$^{215}\text{Po}$						
$^{211}\text{Pb}$						
$^{211}\text{Bi}$						
$^{207}\text{Tl}$						

Radionucléide	Spectrométrie $\gamma$	Spectrométrie $\alpha$	Scintillation liquide	Spectrométrie de masse	Fluorimétrie	Emanometrie
$^{40}\text{K}$						

### Spectrométrie gamma

Pour les radioéléments recherchés, la mesure par spectrométrie gamma est la technique la plus employée à l'heure actuelle.

La quantification des radioéléments non émetteurs gamma ( $^{238}\text{U}$ ,  $^{228}\text{Ra}$ ,  $^{228}\text{Th}$ ,  $^{227}\text{Ac}$ ), émetteurs gamma de faible intensité d'émission ou encore émetteur gamma dans une zone d'interférence avec l'émission de photons par d'autres radionucléides peut être réalisée par l'intermédiaire de leurs descendants à vie courte émetteurs gamma, dès lors que l'équilibre radioactif père/fils est atteint.

La possibilité de quantifier avec une précision suffisante les radionucléides recherchés dépend :

- du type de détecteur utilisé ;
- de l'environnement dans lequel la mesure est conduite ;
- de l'activité spécifique de l'échantillon ;
- le cas échéant du coefficient de concentration appliqué (en cas de traitement de l'échantillon par évaporation ou calcination) ;
- de la géométrie de comptage ;
- de la densité de l'échantillon, en particulier pour le  $^{210}\text{Pb}$ .

L'analyse en spectrométrie gamma des radionucléides, identifiés dans le tableau 1 comme étant analysables par cette technique, peut conduire à des valeurs non significatives (cela peut être le cas par exemple pour le  $^{230}\text{Th}$  dans les eaux). Il convient alors de mettre en œuvre des méthodes d'analyse plus sensibles présentées ci-après.

### Spectrométrie alpha

L'activité de certains radionucléides ( $^{234}\text{U}$ ,  $^{210}\text{Po}$ ,  $^{232}\text{Th}$  par exemple) ne peut pas être déterminée en spectrométrie gamma. Certains sont détectables en spectrométrie alpha. Cette technique basée sur la détection des interactions entre les noyaux d'hélium (particules  $\alpha$ ) et un gaz ou un semi conducteur présente l'avantage d'atteindre des limites de détection généralement plus basses que celles obtenues en spectrométrie gamma. Pour certains radionucléides, elle peut donc être mise en œuvre lorsque l'analyse en spectrométrie gamma n'a pas conduit à une valeur significative ( $^{230}\text{Th}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{228}\text{Ra}$ ,  $^{228}\text{Th}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{231}\text{Pa}$ ,  $^{227}\text{Th}$ ). Son principal inconvénient réside dans le fait qu'elle requière en préalable à l'analyse une préparation chimique (au minimum une dissolution totale par minéralisation) de l'échantillon.

### Scintillation liquide et émanométrie

Le principe commun à ces deux techniques est l'excitation d'une substance scintillante par les particules et la quantification de la lumière émise en retour. Ces techniques peuvent être appliquées sans prétraitement sur les eaux mais requièrent, a minima, une dissolution totale des échantillons solides. La mise en œuvre de traitements radiochimiques classiques permet d'améliorer la qualité de la mesure et de mieux différencier les radionucléides en vue d'analyses isotopiques.

### Fluorimétrie

Cette technique radiométrique ne s'applique qu'à la recherche de l'uranium et présente des performances relativement restreintes. Elle est généralement utilisée dans le cadre d'analyses non quantitatives pour tester de manière rapide la présence d'uranium en forte concentration.

### Spectrométrie de masse

En parallèle aux analyses radiométriques, des dosages pondéraux peuvent être entrepris pour quantifier l'uranium et le thorium. Les techniques de spectrométrie de masse sont alors les plus performantes. Compte tenu de leurs périodes radioactives, les isotopes les plus fréquemment analysés sont l' $^{238}\text{U}$  et le  $^{232}\text{Th}$ . Les facteurs de conversion masse/activité sont les suivants :

$$1 \text{ ppm d'uranium} = 12,4 \text{ Bq.kg}^{-1} \text{ d}'^{238}\text{U}$$

$$1 \text{ ppm de thorium} = 4,07 \text{ Bq.kg}^{-1} \text{ de } ^{232}\text{Th}$$

## **4 RESTITUTION DES RESULTATS**

La restitution de la caractérisation des matériaux doit présenter de manière factuelle les paramètres mesurés et les paramètres déduits sur la base d'hypothèses d'équilibre qui devront être clairement

exposées. Il convient également de préciser les techniques d'analyse utilisées - en précisant le cas échéant les normes appliquées- ainsi que la stratégie et les protocoles d'échantillonnage.

Tout résultat doit être accompagné de l'incertitude de mesure à laquelle il est associé. Dans la mesure du possible, il convient de mettre en œuvre les techniques permettant d'atteindre des valeurs significatives. En effet, le report de valeurs en limite de détection dans des estimations dosimétriques conduit parfois à des valeurs majorantes mais très éloignées de la situation réelle. A titre d'exemple il est rappelé que dans le cadre du contrôle de la qualité radiologique des eaux destinées à la consommation humaine, il est nécessaire d'atteindre des limites de détection égales à 0,04 ; 0,08 et 0,005 Bq.l<sup>-1</sup> respectivement pour le <sup>226</sup>Ra, <sup>228</sup>Ra et les deux isotopes de l'uranium de la chaîne de l' <sup>238</sup>U [8]. Dans le cas où l'analyse conduit à l'impossibilité de fournir une valeur significative, il convient d'indiquer la limite de détection et le seuil de décision afin de pouvoir déterminer les valeurs à prendre en considération dans les calculs d'exposition. Afin de faciliter les calculs d'exposition, les résultats doivent être exprimés par unité de poids ou de volume en précisant s'il s'agit de matière fraîche ou sèche.

## REFERENCES

- [1] Décret n° 2002-460 du 4 avril 2002 relatif à la protection générale des personnes contre les dangers des rayonnement ionisants
- [2] Décret n°2003-296 du 31 mars 2003 relatif à la protection des travailleurs contre les dangers des rayonnements ionisants
- [3] Décret n°2007-1582 du 7 novembre 2007 relatif à la protection des personnes contre les dangers des rayonnement ionisants et portant modification du code de la santé publique (dispositions réglementaires)
- [4] Décret n°2007-1570 du 5 novembre 2007 relatif à la protection des travailleurs contre les dangers des rayonnements ionisants et modifiant le code du travail (dispositions réglementaires)
- [5] Décret n°2008-244 du 7 mars 2008 relatif au code du travail (partie réglementaire)
- [6] Arrêté du 25 mai 2005 relatif aux activités professionnelles mettant en œuvre des matières premières contenant des radionucléides naturels non utilisés pour leurs propriétés radioactives
- [7] Inventaire des normes sur le mesurage de la radioactivité. Rapport IRSN/DEI/STEME/2007-002
- [8] Circulaire N°DGS/EA4/2007/232 du 13 juin 2007 relative au contrôle et à la gestion du risque sanitaire lié à la présence de radionucléides dans les eaux destinées à la consommation humaine, à l'exception des eaux conditionnées et des eaux minérales naturelles
- [9] Guide méthodologique de gestion des sites industriels potentiellement contaminés par des substances radioactives. Version 0, IPSN mai 2001