

Évaluation de la contamination bêta due au tritium par la réalisation de frottis et utilisation d'un appareil de scintillation liquide transportable

J.-L. TROLET¹, A. OLIVIER², M. PICCIONE¹, L. MANDUCI¹

(Manuscrit reçu le 22 juin 2010, accepté le 8 octobre 2010)

RÉSUMÉ

L'objet de cet article est de proposer un procédé de contrôle de la contamination surfacique, principalement due au tritium, à l'aide d'une mesure par scintillation liquide effectuée sur des frottis humides solubles. La mesure, réalisée *in-situ* grâce à un appareil compact, le TriathlerTM, fournit des résultats dans un délai de l'ordre de quelques minutes. À ce jour, ce type de réalisation est limité au laboratoire d'analyses spécialisé disposant d'appareils sophistiqués. Cette méthode propose une nouvelle approche, minimisant le temps de réalisation et la complexité associée, tout en préservant des seuils de mesure compatibles avec les exigences. Bien que centrée sur la problématique de colis radioactifs transportés par la route et présentant une possible contamination au tritium, cette étude peut aussi fournir une base de réflexion pour tout autre domaine où le contrôle de la contamination revêt une importance certaine. Une dernière partie de ce travail aborde la réalisation simultanée de mesurage du tritium et des émetteurs alpha.

ABSTRACT

An assesment method for tritium contamination surface by using portable liquid scintillation system on survey smears.

An assessment method for tritium surface contamination by liquid scintillation on survey smears is proposed, which employs a special device, the TriathlerTM, till now used only by highly specialized laboratories. Based on the parameters involved in the measurements, an accurate and new procedure is developed which reduce to few minutes an activity measurement within the prescribed conditions of thresholds set by the radioactive materials transports. Though centered on transport contamination, this work may activate a more extended reflection about contamination itself in different fields of human activity.

Key words : Wipe / tritium / liquid scintillation / radioactive transportation / TriathlerTM

1. Introduction

Le transport de matières radioactives par la route est soumis aux prescriptions générales de l'accord européen relatif au transport des matières dangereuses par route dit « accord ADR » (JORF, 2009). La transposition de cet accord, définie par

¹ École des applications militaires de l'énergie atomique, BCRM, CC 19, 50115 Cherbourg-Octeville Cedex, France.

² Laboratoire d'analyses de surveillance et d'expertise de la marine, BCRM, CC 200, 50115 Cherbourg-Octeville Cedex, France.

l'arrêté du 29 mai 2009, fixe le seuil minimal (art. 2.2.7.1.2) de prise en compte de la radioactivité considérée comme une contamination, pour les émetteurs bêta à 0,4 Bq/cm².

Une limite haute de contamination labile acceptée est aussi définie à 4 Bq/cm² pour ce même type de radioélément et à fortiori pour le tritium (art. 4.1.9.1.2).

L'activité minimale détectable, en Bq/cm², (CTHIR, 1996 ; Knoll, 2000 ; ISO 1998), doit garantir ce niveau réglementaire minimal de détection.

Les contrôles réalisés avant transport afin de s'assurer de l'absence de toute contamination sont généralement effectués à l'aide de frottis.

Les niveaux de contamination sont particulièrement difficiles à détecter en raison de la nature même du tritium. En effet, celui-ci présente la particularité d'être un émetteur bêta pur de faible énergie (énergie maximale bêta de 18,6 keV) rendant la détection directe singulièrement difficile en raison de sa forte absorption.

La radioactivité de ce type d'émetteur bêta est généralement mesurée par scintillation liquide (Belot *et al.*, 1996). Le principal avantage de cette méthode est de mettre le radionucléide et le détecteur en mélange intime. L'absence de barrière physique entre le radionucléide et le milieu détecteur autorise un rendement de détection relativement important pour ce type de rayonnement peu pénétrant. De plus, l'activité spécifique du tritium ($3,6 \times 10^{14}$ Bq/g) entraîne qu'une faible quantité, en masse, produit des activités significatives (IRSN, 2001) susceptibles de donner des contaminations surfaciques importantes même pour des fuites insignifiantes.

La complexité de la méthode réside dans la préparation du mélange qui doit posséder :

- un bon rendement optique de scintillation ;
- une bonne homogénéité et une stabilité, à minima pendant le temps de réalisation de la mesure ;
- un rendement de détection important ;
- une forte insensibilité aux paramètres extérieurs.

En raison de certaines contraintes de transport, les contrôles de contamination tritium doivent de plus répondre aux critères suivants :

- une facilité de mise en œuvre par un opérateur non spécifiquement qualifié ;
- une rapidité d'obtention des résultats (moins de 2 heures au total pour 10 frottis) ;
- une interprétation sans ambiguïté des résultats de mesure et comparaison avec les valeurs limites de la réglementation.

L'étude portera sur les matériels et méthodes utilisables, la réalisation des mesures et les difficultés associées.

2. Méthode et matériel

2.1. Principe de la méthode

Le principe de la méthode est basé sur la mise en solution complète du frottis dans le liquide scintillant et la mesure à l'aide d'un appareil transportable au plus près de la zone de travail. Cette technique repose essentiellement sur le choix du couple liquide scintillant – média de prélèvement et sur les critères retenus de paramétrage du Triathler™.

2.1.1. Prélèvement par frottis

En dehors d'un contrôle direct, souvent difficilement réalisable, la mise en évidence de la présence de tritium s'effectue par frottis.

Deux solutions sont possibles :

- réalisation d'un frottis sec, sans adjonction de produit d'extraction ;
- réalisation d'un frottis humide.

Conformément aux recommandations de réalisation et de prélèvements (ISO, 1998) la deuxième solution est retenue.

L'inconvénient principal de cette méthode est la méconnaissance du facteur d'arrachement. La norme prescrit une valeur de 10 %. Cette valeur basse, bien que généralement sous évaluée, est utilisée par les opérateurs, à titre conservatoire, pour le calcul de l'activité ou de la contamination surfacique labile (Shoji *et al.*, 2010).

2.2. Le matériel

2.2.1. Le Triathler™

Il s'agit du premier appareil compact et transportable qui permet de réaliser *in-situ* des mesures en scintillation liquide. Ses avantages, liés à son faible encombrement et sa portabilité, permettent de réaliser des frottis à proximité de la zone de travail.

Cependant il possède quelques inconvénients, par rapport à ses homologues de laboratoire, qui sont :

- une faible protection face aux rayonnements ionisants extérieurs ;
- une correction des artefacts de mesures (*quenching*...) uniquement calculatoire ;

- aucune stabilisation thermique ;
- une absence de dispositif de mesure en coïncidence.

La mesure est réalisée par analyse d'amplitude, en vue d'obtenir un spectre. L'amplification est paramétrable soit de façon linéaire soit de façon logarithmique. Le premier cas permet d'avoir une linéarité de réponse entre l'énergie du rayonnement et sa position sur le spectre.

Le deuxième mode de fonctionnement permet d'avoir un tassement des basses valeurs et donc d'afficher simultanément la contribution des émetteurs bêta et alpha.

Cette étude portera uniquement sur la mesure tritium en amplification linéaire.

Le modèle retenu pour cette étude est le Triathler™ Hidex³ type 425034 n° 2020385⁴.

2.2.2. Liquides scintillants-fiole

Notre choix s'est porté sur une mesure par scintillation liquide et dissolution totale du frottis. Les critères de sélection du liquide scintillant sont :

- la capacité de solubilisation ;
- la vitesse de solubilisation ;
- la stabilité dans le temps du mélange, à minima pendant le temps de comptage.

Les liquides scintillants susceptibles d'être utilisés possèdent chacun des caractéristiques d'usage et de performances qui leurs sont spécifiques. Dans le cas du Triathler™, et afin d'en simplifier l'usage, le distributeur fournit des produits spécifiquement adaptés à l'appareil.

Leurs performances étant déterminées, le constructeur peut alors prévoir des protocoles intégrés dans l'appareil pour chaque type de mesure possible.

Enfin, la fiole de scintillation retenue est en polyéthylène, dans le but d'assurer un maximum de sécurité lors des manipulations réalisées sur la zone opérationnelle.

2.2.3. Rendement et facteurs d'influence

Le rendement de détection des appareils à scintillation liquide dans le cas de la mesure bêta est généralement assez élevé (*i.e.* supérieure à 20 % concernant le tritium).

³ La référence dans le présent article à un produit commercial n'implique pas son approbation, sa recommandation ou une préférence de la part des auteurs.

⁴ Le n° de série est précisé car les réglages obtenus sont différents suivant les appareils.

Comme il ne s'agit pas d'une utilisation standard de l'appareil, avec les protocoles paramétrés en interne, il faut déterminer le rendement de détection dans la situation de mesure. Il est déterminé par l'équation (1). L'incertitude associée est quant à elle calculée par l'équation (2), en négligeant l'incertitude sur le temps de mesure.

$$\eta = \frac{N_{brut} - N_{bdf}}{t_{mesure}A} \quad (1)$$

$$U_{\eta} = k\eta \sqrt{\frac{N_{brut} + N_{bdf}}{(N_{brut} - N_{bdf})^2} + \left(\frac{u_A}{A}\right)^2} \quad (2)$$

N_{brut} comptage brut, N_{bdf} Comptage du blanc, k facteur d'élargissement, A activité de la source de la source étalon $\left(\frac{u_A}{A}\right)$ incertitude sur l'activité de la source étalon.

Le rendement de détection est principalement perturbé par un affaiblissement du flux optique de scintillation, dénommé *quenching*.

Cet affaiblissement du signal optique est le résultat d'une réduction du spectre de fluorescence du à l'empoussièrement par exemple.

L'impact sur le quenching du taux d'empoussièrement du frottis ainsi que la présence du produit extractant sera évaluée par la suite.

3. Résultats et discussions

3.1. Choix du couple scintillant et média de prélèvement

Les essais ont été réalisés avec des séries de 5 frottis de 47 mm de diamètre (± 3 mm) et 20 ml de liquide scintillant.

L'estimation de la dissolvabilité est réalisée de façon empirique en déterminant la surface restante de filtre après un temps d'immersion dans le liquide scintillant.

Les produits scintillants utilisés lors des essais sont tous adaptés à la détection de tritium.

Une dissolution totale correspond à une valeur de 100 %, à l'opposé une dilution très partielle est cotée 10 %. 0 % correspond à un filtre qui a été extrait du flacon après essai sans s'être délité. Enfin le temps de solubilisation est indiqué en minute.

TABLEAU I

**Résultats des tests de solubilisation avec différents média de prélèvement et liquides scintillants.
Results of solubilization tests with different wipes and scintillation liquids.**

Temps (t) en min	< 1	15	60	120
Filtre en coton				
Ultima Gold LLT	0%			
Filter-count				
Monophase S				
Ultima Gold				
OptiPhase 'Hisafe' 3				
Filtre en nitrate de cellulose type buvard				
Ultima Gold LLT	0%			
Filter-count				
Monophase S				
Ultima Gold				
OptiPhase 'Hisafe' 3				
Filtre en cellulose comprimée				
Ultima Gold LLT	0%			
Filter-count				
Monophase S				
Ultima Gold				
OptiPhase 'Hisafe' 3				
Filtre en fibre de verre				
Ultima Gold LLT	0%		10%	
Filter-count				
Monophase S				
Ultima Gold				
OptiPhase 'Hisafe' 3				
Filtre en nitrocellulose				
Ultima Gold LLT	10%			
Filter-count	100%			
Monophase S	20%			
Ultima Gold	10%	20%		
OptiPhase 'Hisafe' 3	0%	10%		
Filtre en ester de cellulose				
Ultima Gold LLT	10%	20%		
Filter-count	100%			
Monophase S	20%			
Ultima Gold	10%	20%		
OptiPhase 'Hisafe' 3	0%	10%		

Le tableau I montre les différentes combinaisons réalisées entre scintillants et filtres pour déterminer leur potentiel de solubilisation.

Au vu des critères définis au paragraphe 2.2 il ressort que le couple filtre en nitrocellulose, ou ester de cellulose, et liquide scintillant Filter-Count offrent les meilleurs résultats en terme de dissolution et de rapidité de réalisation.

Pour la suite des mesures le choix s'est arrêté sur une combinaison filtre en ester de cellulose (sans marquage et de couleur blanche) et scintillant Filter-Count.

3.2. Détermination de la fenêtre d'intérêt

Les essais ont été effectués avec une haute tension de polarisation de 1000 V en mode d'amplification linéaire.

Afin de faciliter l'exploitation des résultats, il a été décidé que l'information analysée ne serait pas le spectre de scintillation complet mais la valeur de l'intégrale de surface de la zone d'intérêt imputable au tritium.

La détermination des seuils bas et haut doit être effectuée afin de borner la partie exploitable du spectre.

3.2.1. Détermination du seuil bas de la fenêtre de mesure

La détermination du seuil bas doit permettre d'exclure la contribution des bruits de fond de mesure composé principalement de la chimiluminescence. Ce phénomène étant propre à une combinaison média – scintillant, il est nécessaire de déterminer le seuil bas associé à ce couple.

Un échantillon non radioactif, « blanc », a été réalisé à partir d'un filtre en ester de cellulose solubilisé dans un flacon polyéthylène contenant 20 ml de Filter-Count (spectre BDF).

Une série d'acquisition de 10 spectres de scintillation « blanc » a permis d'obtenir une référence moyenne.

Dans un deuxième temps une série de 10 mesures d'un échantillon actif est faite et donne un « spectre réel total moyen » (spectre brut).

L'échantillon « actif » a été réalisé à partir d'un filtre en ester de cellulose neuf solubilisé dans un flacon polyéthylène contenant 20 ml de Filter-Count marqué par 24 Bq d'une solution aqueuse étalon de tritium.

La composante de chimiluminescence est découplée de ces deux informations par soustraction canal par canal afin d'obtenir un « spectre net moyen ».

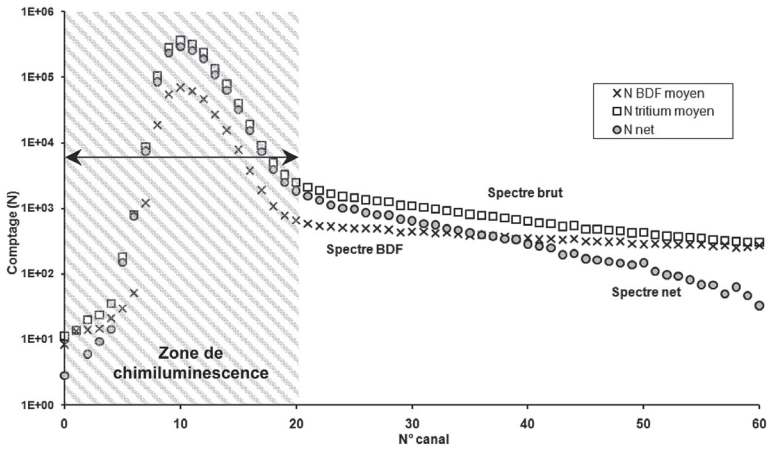


Figure 1 – Chimiluminescence.
Chemiluminescence.

La chimiluminescence apparaît entre les canaux 0 et 20 comme le montre la figure 1.

Dans le cas du couple Filter-Count et ester de cellulose la valeur de seuil bas retenue est de 20.

3.2.2. Détermination du seuil haut

La détermination du seuil haut de la fenêtre de mesure tritium doit prendre en compte de multiples variables (bruit de fond, rendement, limite de détection...). L'estimateur utilisé pour le choix du seuil haut est le « facteur de mérite » (Simonet et Oria, 1977). Ce facteur de mérite se présente sous la forme suivante :

$$F_{\text{mérite}} = \frac{\eta^2}{n_{\text{bdf}}} \quad (3)$$

où η est le rendement de détection et n_{bdf} est le taux de comptage du bruit de fond.

F varie avec la valeur haute de la fenêtre de mesure, le rendement de détection et la valeur du bruit de fond changeant simultanément. La figure 2 montre l'évolution du facteur de mérite et du rendement de détection et arrive à un maximum pour une borne haute positionnée au canal 40.

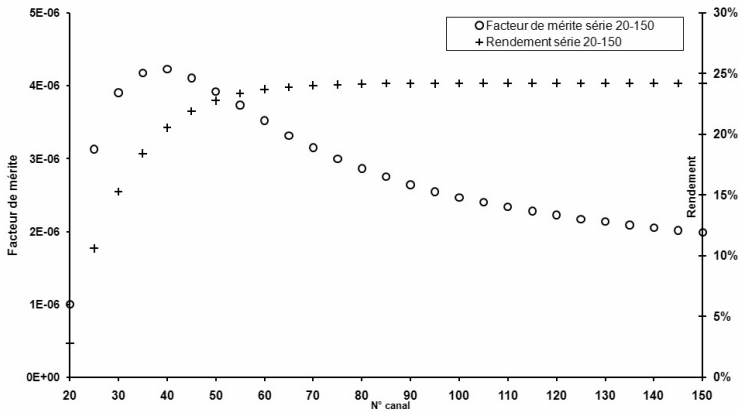


Figure 2 – Évolution du facteur de mérite et du rendement suivant le seuil haut.
Factor evolution in function of upper level threshold.

Toutefois, afin de maximiser le rendement de détection, le canal 60 est retenu comme borne haute.

3.3. Détermination du rendement et son incertitude

En reprenant les paramètres déterminés aux paragraphes précédents, pour 3600 s de mesure et une activité étalon de 24,03 Bq ($\pm 1,54$ Bq pour $k = 2$) déposée sur un filtre neuf, on obtient les valeurs suivantes :

$$N_{brut} = 36819, \quad N_{bdf} = 15964.$$

Le rendement obtenu à partir des équations (1) et (2), est conforme à celui généralement constaté avec d'autres scintillants. L'incertitude absolue sur le rendement est donnée pour un facteur d'élargissement $k = 2$.

$$\eta = 24,1 \pm 1,6 \%$$

3.4. Influence du quenching

3.4.1. Le quenching

Afin de mesurer l'importance du quenching, une série de 10 frottis contaminés de façon identique sert de référence pour le spectre « filtre propre » obtenu par moyenne de l'ensemble. Une série « filtre sale » est réalisée de la même façon après empoussièrement du média.

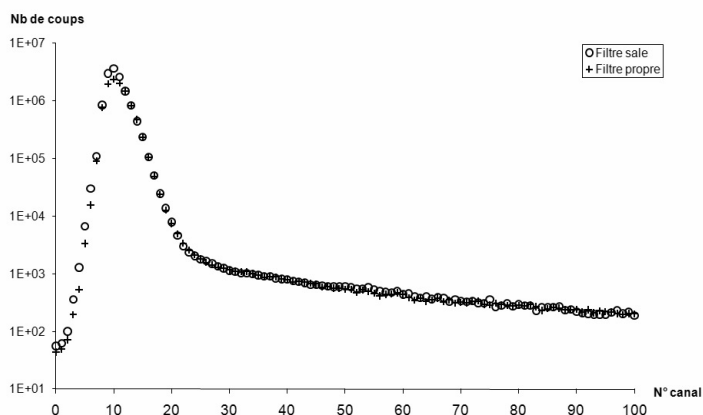


Figure 3 – Spectres moyens avec frottis propre et sale.
Average spectrums for clean and dirty survey smears.

Les deux spectres superposés indiquent l'absence de quenching. On constate que suite à la dissolution du filtre, les poussières s'accroissent dans le fond du flacon et ne diminuent donc pas le rendement de détection. Le quenching peut alors être négligé car les essais montrent que cinq minutes suffisent pour avoir une décantation complète des poussières.

3.4.2. Le quenching chimique

Le solvant d'extraction couramment employé pour les contrôles de radioprotection est l'éthanol. Il faut vérifier que sa présence n'affecte pas le rendement.

Des frottis contaminés de façon identique ont été préparés. Une quantité d'éthanol différente pour chacun d'eux a été déposée. Le rendement de détection sert de paramètre d'analyse des résultats.

Le tableau II montre les valeurs du rendement de mesure pour les diverses quantités d'éthanol. Il montre que la présence d'éthanol dans le scintillant n'affecte pas de façon significative le rendement de détection. L'influence du quenching chimique est donc retenue comme étant négligeable.

3.5. Activité minimale détectable (AMD)

L'activité minimale détectable avec le Triathler™ et le protocole défini, est calculée en se basant sur l'expression du seuil de décision et de la limite de détection en comptage pour un même temps de mesure du bruit de fond et du brut.

TABLEAU II
Estimation du quenching chimique.
Chemical quenching evaluation.

	Filter Count + Advantec	Filter Count + Advantec + 0,1 ml	Filter Count + Advantec + 0,2 ml	Filter Count + Advantec + 0,5 ml
Rendement mesuré	23,7 ± 1,6 %	23,5 ± 1,6 %	23,1 ± 1,5 %	22,6 ± 1,5 %
Commentaires	Référence relative du rendement	Frottis modérément humide	Quantité représentative d'utilisation	Limite d'assimilation de l'éthanol

La formule suivante permet de déterminer l'AMD, basée sur la limite de détection de l'appareil, selon l'approche de Curie (CTHIR, 1996) :

$$AMD = \frac{4}{t_{mesure}} \frac{1}{\eta} (1 + \sqrt{1 + 2n_{bdf} t_{mesure}}) \left(\frac{1}{100_{(surface)}} \frac{1}{1_{(arrachement)}} \right). \quad (4)$$

En reprenant les différents paramètres définis on obtient, à partir de l'équation (4), pour un temps de mesure de 300 s, le résultat suivant :

$$AMD_{3H} = 0,3 \text{ Bq/cm}^2.$$

Cette valeur est inférieure aux exigences réglementaires dans le domaine du transport qui est de 4 Bq/cm². De plus, cela permet d'assurer une absence de contamination dans le cas d'un contrôle, inférieur à 0,4 Bq/cm², au titre de cette même réglementation.

3.6. Répétabilité des résultats

Une série de 5 mesures est réalisée, avec le Triathler™, en laissant en place le mélange scintillant marqué par 25,5 ± 0,38 Bq d'une solution de tritium aqueux.

Le tableau III montre une bonne répétabilité des résultats.

3.7. Comparaison Triathler™ et Tricarb™

Une série de 5 mesures, de 300 s chacune, de 3 échantillons marqués avec des valeurs d'activité différentes provenant d'une solution étalon a été effectuée. Le tableau IV montre les résultats obtenus ($k = 2$).

Les valeurs relevées montrent une bonne concordance entre les résultats du Triathler™ et ceux du Tricarb™ avec cependant une plus faible erreur relative sur les résultats de ce dernier.

TABLEAU III
Résultats des tests de répétabilité de mesure.
Repeatability tests results.

	Mesure 1	Mesure 2	Mesure 3	Mesure 4	Mesure 5	Moyenne	Ecart type expérimental
Activité (Bq)	26,1 ± 1,7	25,1 ± 1,7	25,2 ± 1,7	25,7 ± 1,7	26,1 ± 1,7	25,6	0,96

TABLEAU IV
Résultats des tests de comparaison entre Tricarb™ et Triathler™.
Comparison tests between Tricarb™ and Triathler™.

Activité référence	Tricarb™ ¹	Triathler™
7,63±0,22	7,42±0,68	7,17±1,22
22,87±0,68	21,09±1,96	24,00±2,52
48,35±1,46	48,86±1,94	48,35±4,12

¹ Modèle 2970 TR/SL.

4. Conclusions et perspectives

La méthode de contrôle du niveau de contamination tritium par frottis à l'aide du Triathler™ présentée, permet, en utilisant un appareil transportable, d'atteindre une activité minimale détectable compatible avec les exigences réglementaires fixées par l'ADR.

Les différents essais ont montré que la réalisation d'un mélange composé d'un filtre en ester de cellulose solubilisé dans 20 ml de Filter-Count au sein d'une fiole de polyéthylène respectait ce principe.

Cette technique associée à la fois à un traitement rapide de l'échantillon et un système optimisé de mesure est un moyen fiable de contrôle *in-situ*.

Les résultats obtenus avec le Triathler™ sont relativement proche de ceux obtenus avec le Tricarb™ bien qu'entachés d'une incertitude plus importante. Cependant, dans le cadre d'une utilisation *in-situ* pour le contrôle de frottis, les mesures avec le Triathler™ sont acceptables en termes de précision et de répétabilité.

Par ailleurs les premiers résultats d'étude ouvrent la voie vers la possibilité d'effectuer une mesure simultanée du tritium et des émetteurs alpha.

En effet, une modification des paramètres de spectrométrie du Triathler permet la mesure simultanée alpha et bêta sans superposition des spectres.

Cependant la limite de ce mode de fonctionnement est donnée par le mode d'amplification lui-même pour lequel il est impossible d'intervenir sur le gain d'amplification. Seule la modification de la haute tension de polarisation peut agir sur la hauteur des impulsions. Il faut alors accepter d'avoir un compromis entre les valeurs « tritium » (haute tension importante) et « alpha » (haute tension plus faible).

De multiples essais ont été réalisés dans cette optique afin de vérifier la viabilité de cette configuration en utilisant les matériels retenus dans la partie tritium. Les premiers résultats semblent très probants et permettront d'élargir encore plus le périmètre d'emploi de cette technique.

RÉFÉRENCES

- Belot Y., Roy M., Métivier H. (1996) *Le tritium de l'environnement à l'homme*. Éditions de Physique, Les Ulis. Chap. 2.4, p. 30 et Chap. 2.5.4, p. 36.
- CTHIR (1996) *Rapport 96/049* (G. Ginisty, M. Chentob, F. Dupont, Y. Baron, B. Thomas, Eds.) Chap. 2.2.3.
- IRSN (2001) *Fiche radionucléide TRITIUM*. Département de protection de la santé de l'homme et de dosimétrie. Aspects sanitaires. III.1 Métrologie environnementale.
- ISO (1998) Norme NF ISO 7503-2, Décembre, *Évaluation de la contamination de surface, Partie 2 Contamination par du tritium, Chapitre 3.3.2 (note)*.
- JORF (2009) Arrêté du 29 mai 2009 relatif à la transcription des prescriptions générales de l'accord européen relatif au transport des matières dangereuses par route dit « accord ADR ».
- Knoll G.F. (2000) *Radiation Detection and Measurement*. 3rd edn (J. Wiley & sons, Inc) p. 96, Chap. 3 (3.68).
- Shoji M., Kondo T., Kijima A., Shibao Y., Nakajima T., Yamada K., Nemoto N. (2010) Removal characteristics of wipe devices under various conditions, *Health Phys.* (Operational radiation safety), S136-S141.
- Simonnet G., Oria M. (1977) *Les mesures de la radioactivité à l'aide de compteur à scintillation liquide*. Eyrolles.