



MINISTÈRE
DES ARMÉES

*Liberté
Égalité
Fraternité*



Service de santé
des armées

EVALUATION DE L'INTÉRÊT DES DISQUES RA-NUCFILM[®] POUR LES ANALYSES DE ²²⁶RA DANS LES EAUX ET LES URINES

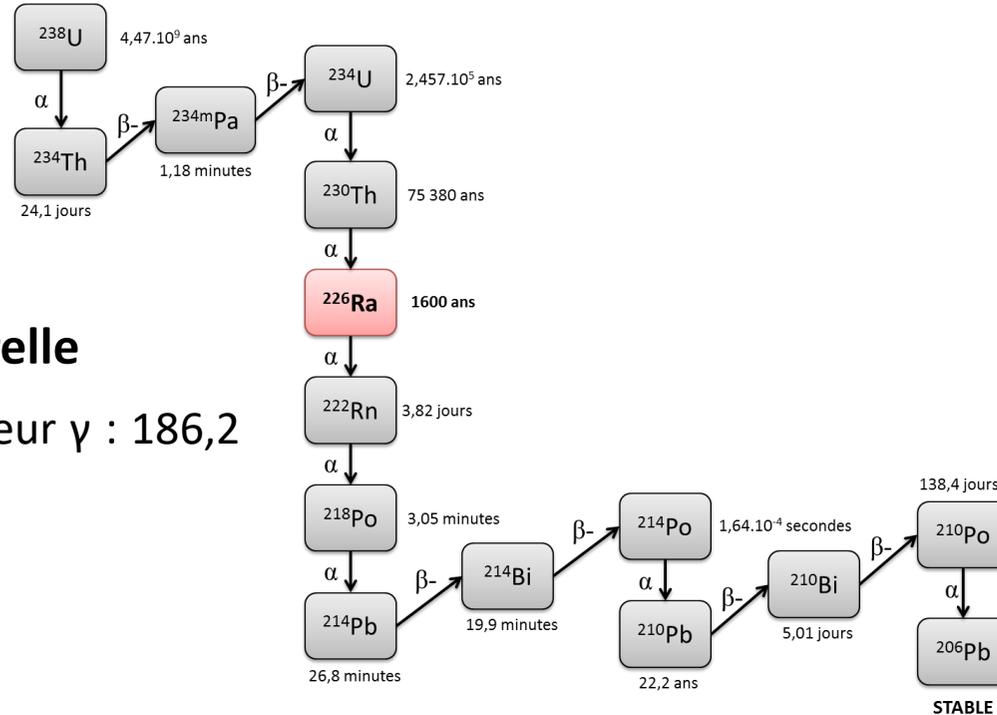
H. Gervot, C. Germond, N. Chianea, J. Loess and D. Saurat

Réunion utilisateur Triskem

En visioconférence, 21 juin 2022

INTRODUCTION

GÉNÉRALITÉS



^{226}Ra = radionucléide d'origine naturelle



- Emetteur α : 4784 keV (94 %) ; émetteur γ : 186,2 keV (3,5 %)
- Demi vie 1600 ans

Echantillon
Eau, urine

Extraction sur résine,
Co-précipitation,...

Spectrométrie α ou γ ,
Scintillation liquide, ICP-MS

Activité en
 ^{226}Ra

OBJECTIF

➔ Développer une méthode d'analyse rapide du ^{226}Ra



Environ 30 eaux
 $\text{LD} \leq 0,04 \text{ Bq/L}$ (arrêté du 26 octobre 2017)



Surveillance spéciale
Mise en évidence $\geq 1 \text{ mSv}$

Evaluer l'intérêt des disques Ra-Nucfilm[®] pour ces deux matrices

- Disque Ra-Nucfilm[®] Triskem

Surface active : MnO_2 → échangeur de cations (dont Po et Pb)

→ Extraction ^{226}Ra et préparation source alpha

Rendement 75 – 90 %

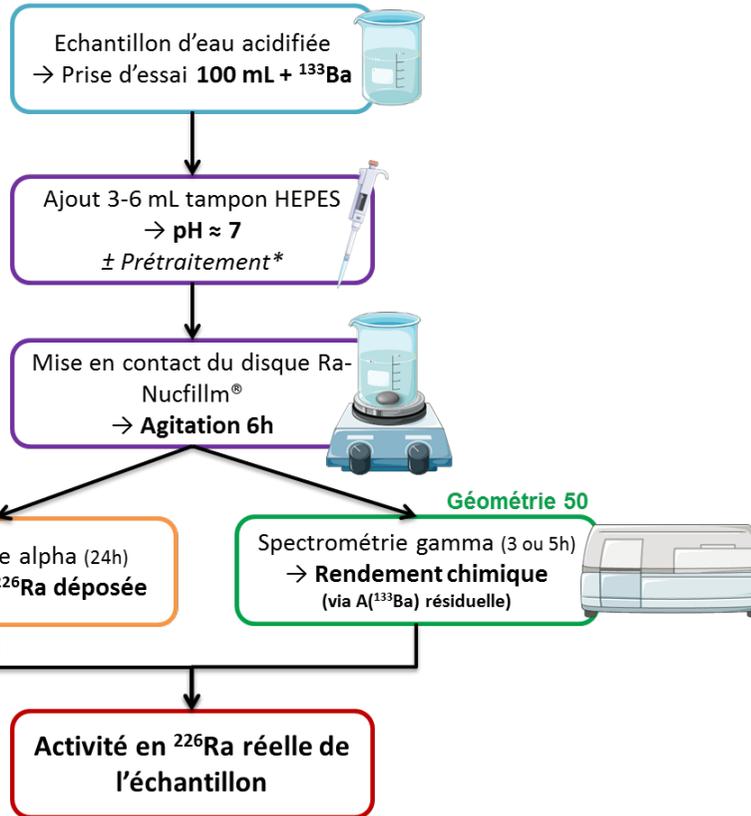


∅ 24,5 mm
↕ 1,6 mm

MATRICE EAU

Protocole et résultats

PROTOCOLE



Eau Lutécia
Faiblement minéralisée



Traceur interne ¹³³Ba

$$\text{Biais (\%)} = \frac{A^{226}\text{Ra}_{\text{calculée}} - A^{226}\text{Ra}_{\text{réelle}}}{A^{226}\text{Ra}_{\text{réelle}}}$$

Critères d'acceptation **-25 / +25 %**

*EDTA pour éliminer d'éventuels interférents (Mg^{2+} , Ba^{2+} ,...)
 NaHCO_3 pour complexer les uranyles

ACTIVITÉ DU TRACEUR INTERNE

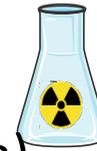
- *Objectif* : ^{133}Ba résiduel $>$ LD (spectrométrie gamma)
- Test de 2 activités de ^{133}Ba

81 Bq/L

243 Bq/L

$^{226}\text{Ra} = 0,1 \text{ Bq/L}$

➔ ^{133}Ba résiduel visible pour ces 2 activités (avec $R < 50\%$)



Traceur interne ^{133}Ba

Géométrie 50

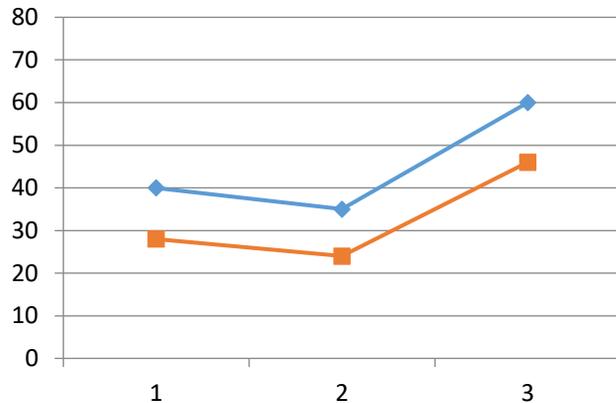
Spectrométrie gamma (3 ou 5h)
→ Rendement chimique
(via $A(^{133}\text{Ba})$ résiduelle)



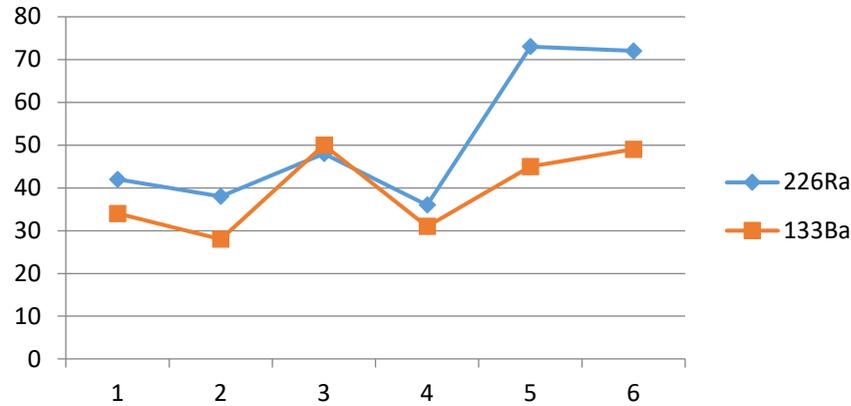
ACTIVITÉ DU TRACEUR INTERNE

→ Activité variable en ^{133}Ba

A (^{133}Ba) = 81 Bq/L



A (^{133}Ba) = 243 Bq/L



—◆— ^{226}Ra
—■— ^{133}Ba

Choix de l'activité du traceur la plus faible

Meilleur CV

Utilisation possible d'un facteur de correction du rendement ?

Facteur de correction

$$f_c = \frac{R_{\text{adsorption}}^{226\text{Ra}}}{R_{\text{chimique}}^{133\text{Ba}}}$$

DÉTERMINATION DU FACTEUR DE CORRECTION

Réalisation de 4 séries de 3 répétitions
(sans EDTA)

$^{226}\text{Ra} = 0,1 \text{ Bq/L}$
 $^{133}\text{Ba} \approx 80 \text{ Bq/L}$



f_c défini à 1,36

Sample	Correction factor	^{226}Ra adsorption yield (%)	^{133}Ba corrected chemical yield (%)	Biais (%)
W1	1.36	42	46	-2
W2		38	38	7
W3		48	68	-24
W4		60	69	-6
W5		53	68	-15
W6		42	60	-24
W7		36	42	-15
W8		73	61	20
W9		72	67	8
W10		40	38	4
W11		35	32	8
W12		60	63	-4

$R_{\text{adsorption}}^{226}\text{Ra} < 75 \% \quad [35-73]$

PRISE EN COMPTE DES INTERFÉRENTS

Réalisation de 2 séries de 3 répétitions
(avec EDTA 0,1 M)

$^{226}\text{Ra} = 0,1 \text{ Bq/L}$
 $^{133}\text{Ba} \approx 80 \text{ Bq/L}$



fc défini à 1,29

Sample	Correction factor	^{226}Ra adsorption yield (%)	^{133}Ba corrected chemical yield (%)	Biais (%)
W13	1,29*	81	86	-5
W14		82	77	6
W15		66	74	-18
W16		54	38	42
W17		67	75	-11
W18		66	76	-13

$R_{\text{adsorption}}^{226}\text{Ra} \approx 69\%$
[54-82]

- Meilleur rendement d'adsorption
- Meilleure reproductibilité

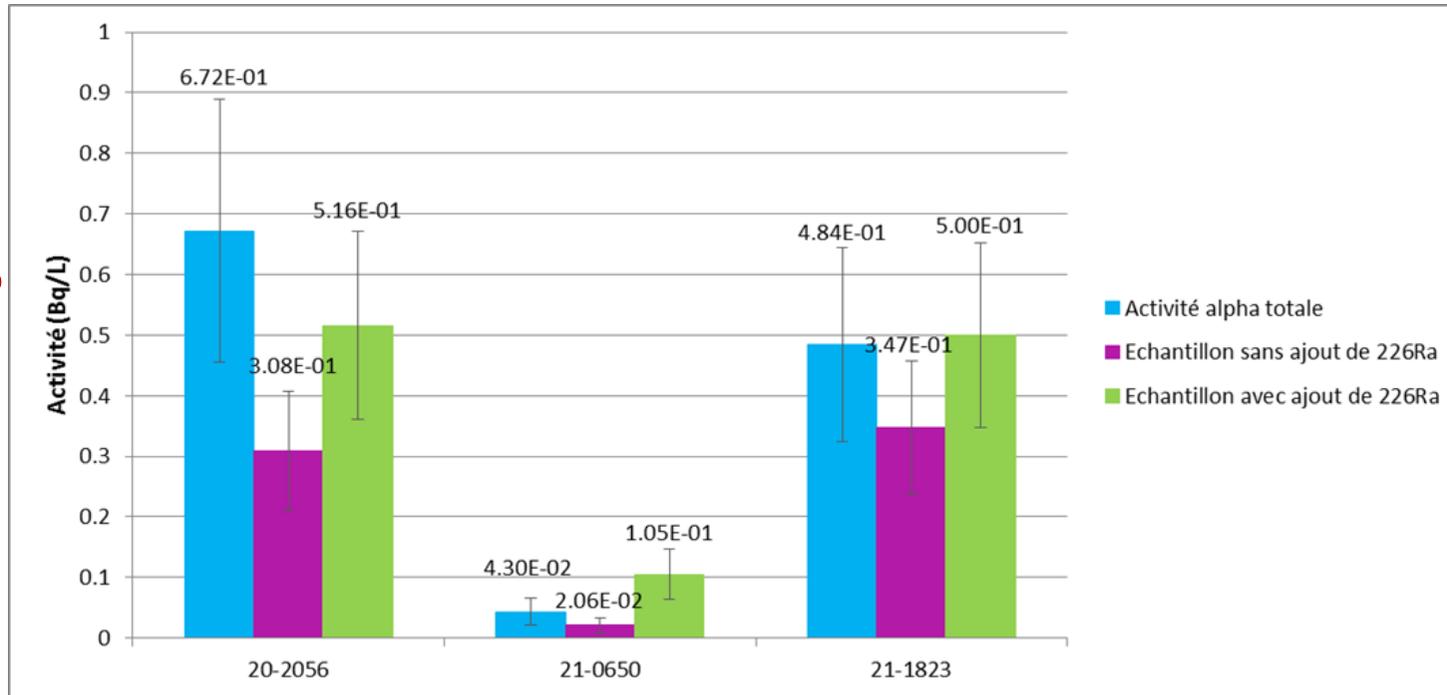
*Recalculé pour la condition « avec EDTA »

ECHANTILLONS RÉELS

→ Eaux de consommation

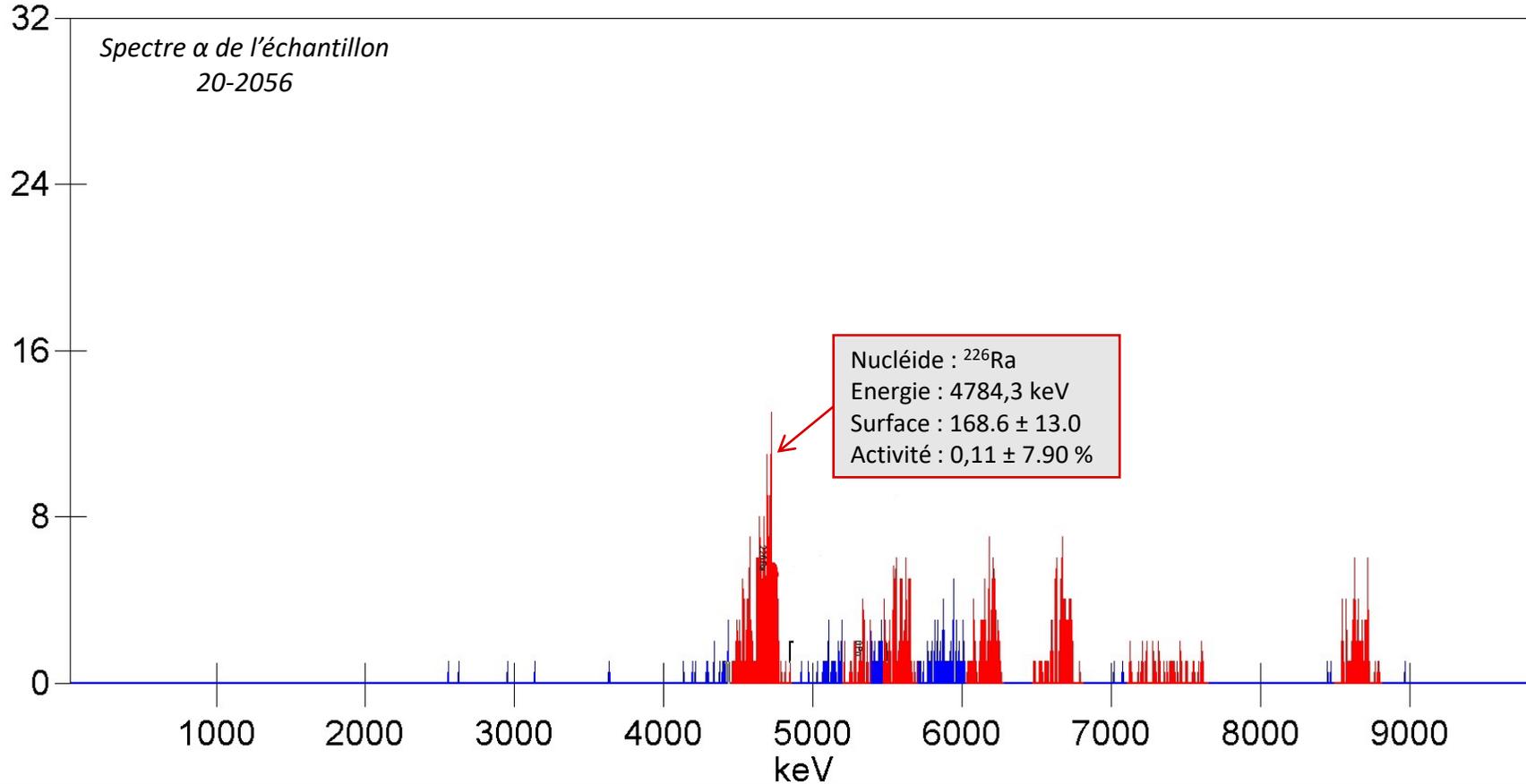
Activité ^{226}Ra inconnue
=> Échantillon avec ou sans ajout de ^{226}Ra (+0,1 Bq/L)

$R_{\text{chimique}} \approx 26\%$



LD < 0,04 Bq/L

ECHANTILLONS RÉELS



ECHANTILLONS RÉELS

→ Inter-comparaison IRSN : $A(^{226}\text{Ra}) \approx 2 \text{ Bq/L}$

Echantillon	Rendement	Rendement chimique corrigé ^{133}Ba (%)	Activité calculée ^{226}Ra (Bq/L)	Valeur assignée ^{226}Ra (Bq/L)	Biais (%)
	d'adsorption ^{226}Ra (%)				
18-5401	36	63	1,16	2,05	-43
18-5402	45	53	1,71	2,02	-15

$f_c = 1,29$

< 50%

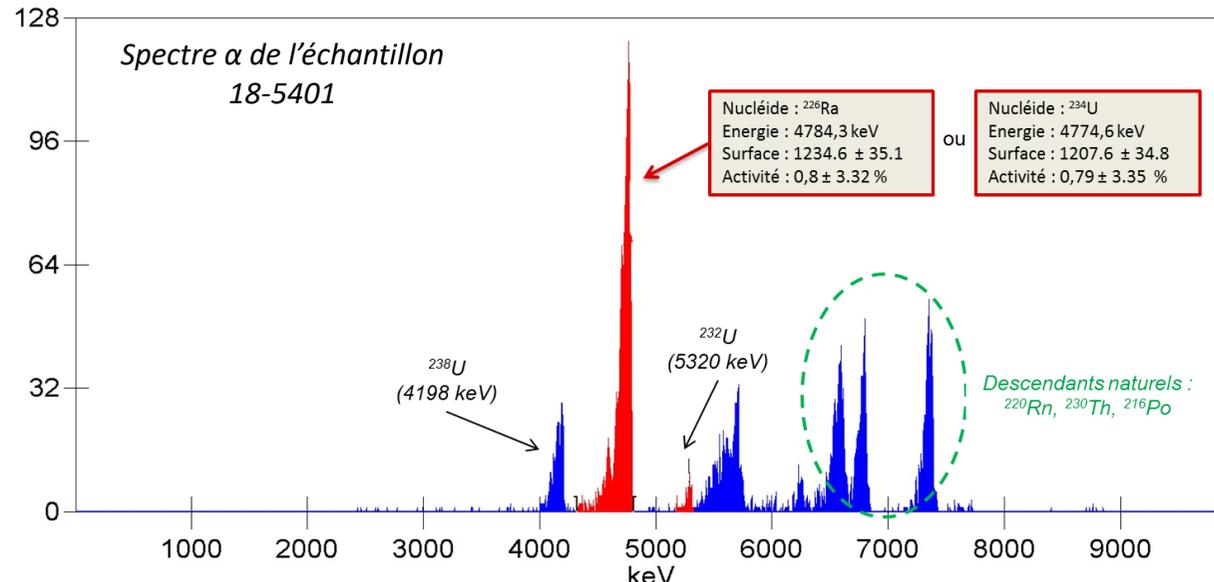
18-5401

Eau douce naturelle
 ^{234}U et $^{238}\text{U} \approx 5 \text{ Bq/L}$

→ Prétraitement supplémentaire
(NaHCO_3) ?

18-5402

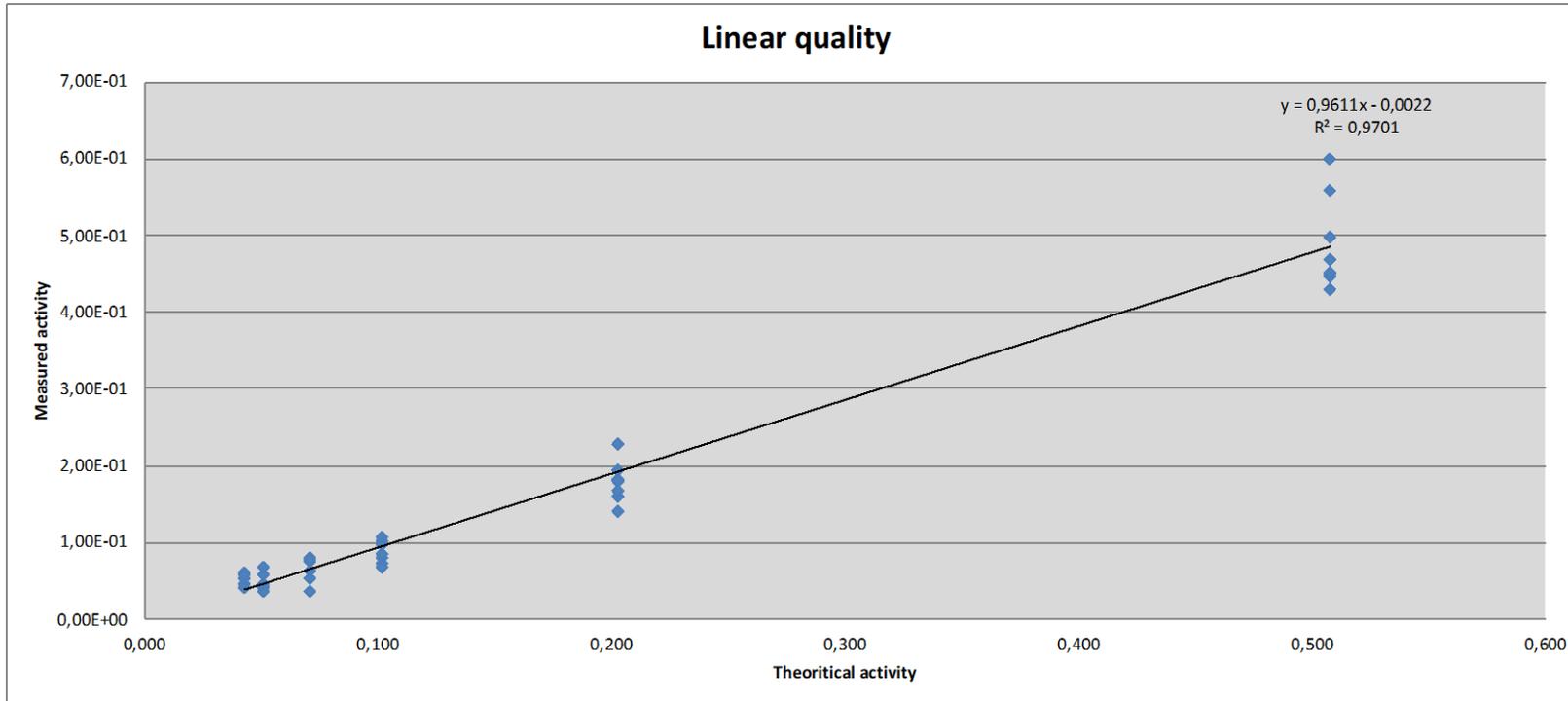
Eau minérale commerciale
Uniquement ^{226}Ra et ^{228}Ra



GAMME D'ACTIVITÉ – VALIDATION MÉTHODE

^{226}Ra de 0,05 à 0,5 Bq/L (avec EDTA)

!! > 0,5 Bq/L contamination
des voies alpha



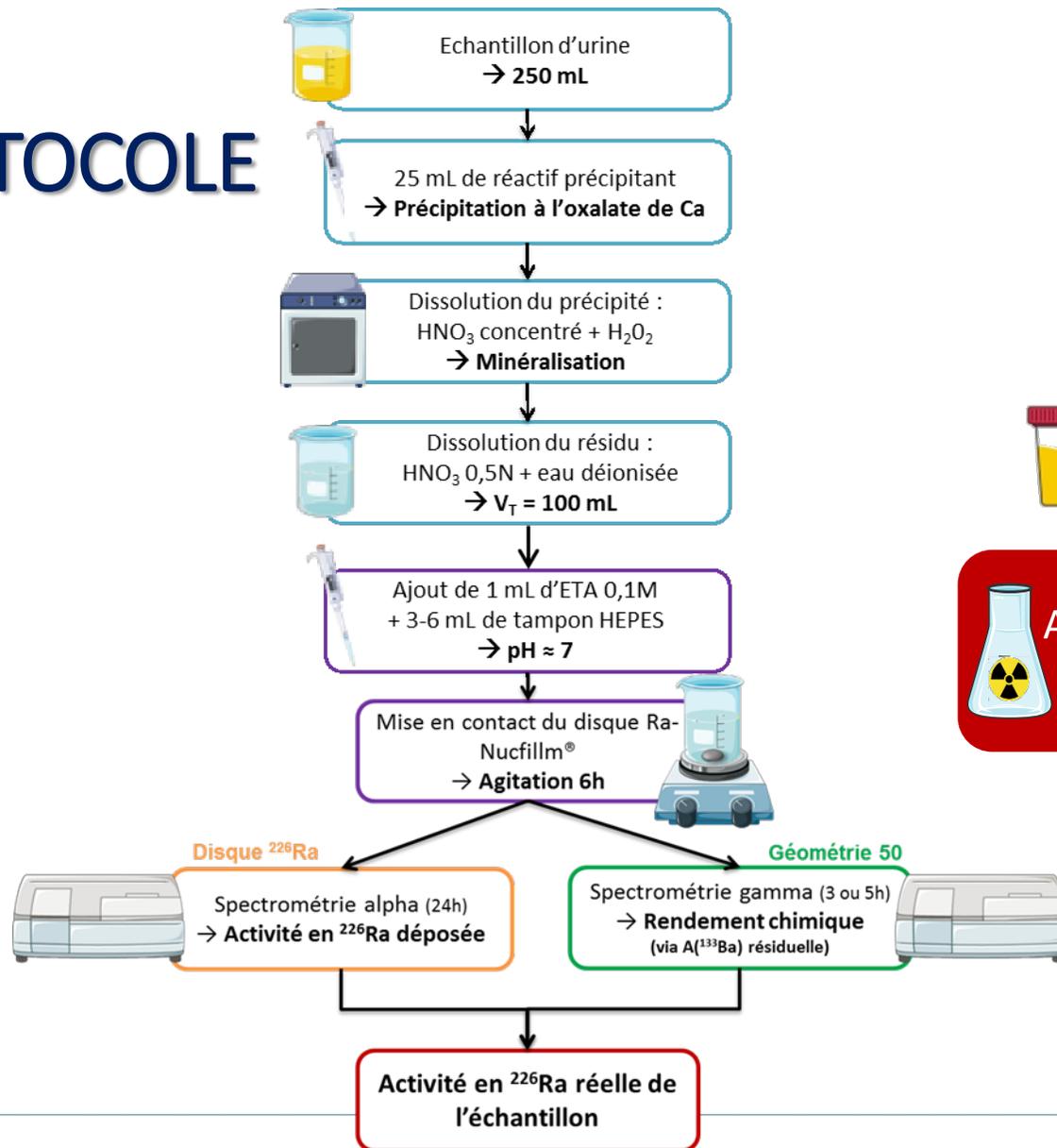
- Reproductible
- Répétable
- $E_n < 1$
- $LD < 0,04$ Bq/L
- $Ur [22 ; 48] \%$



MATRICE URINAIRE

Protocole et résultats

PROTOCOLE



Urine : 250 mL

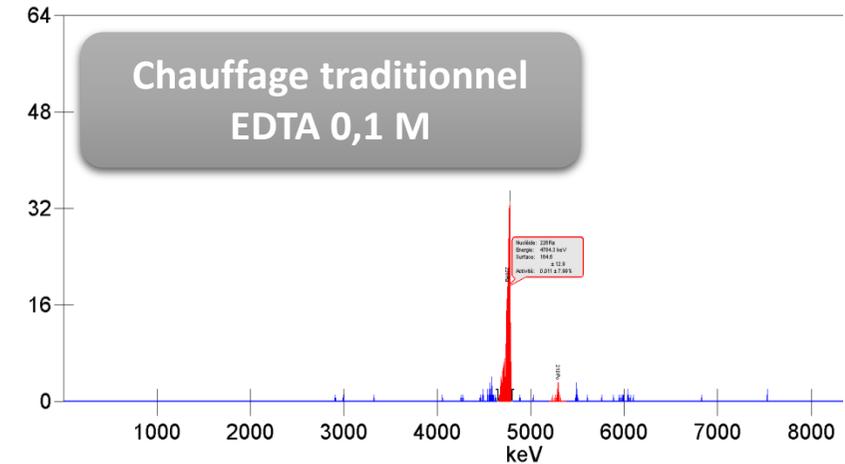
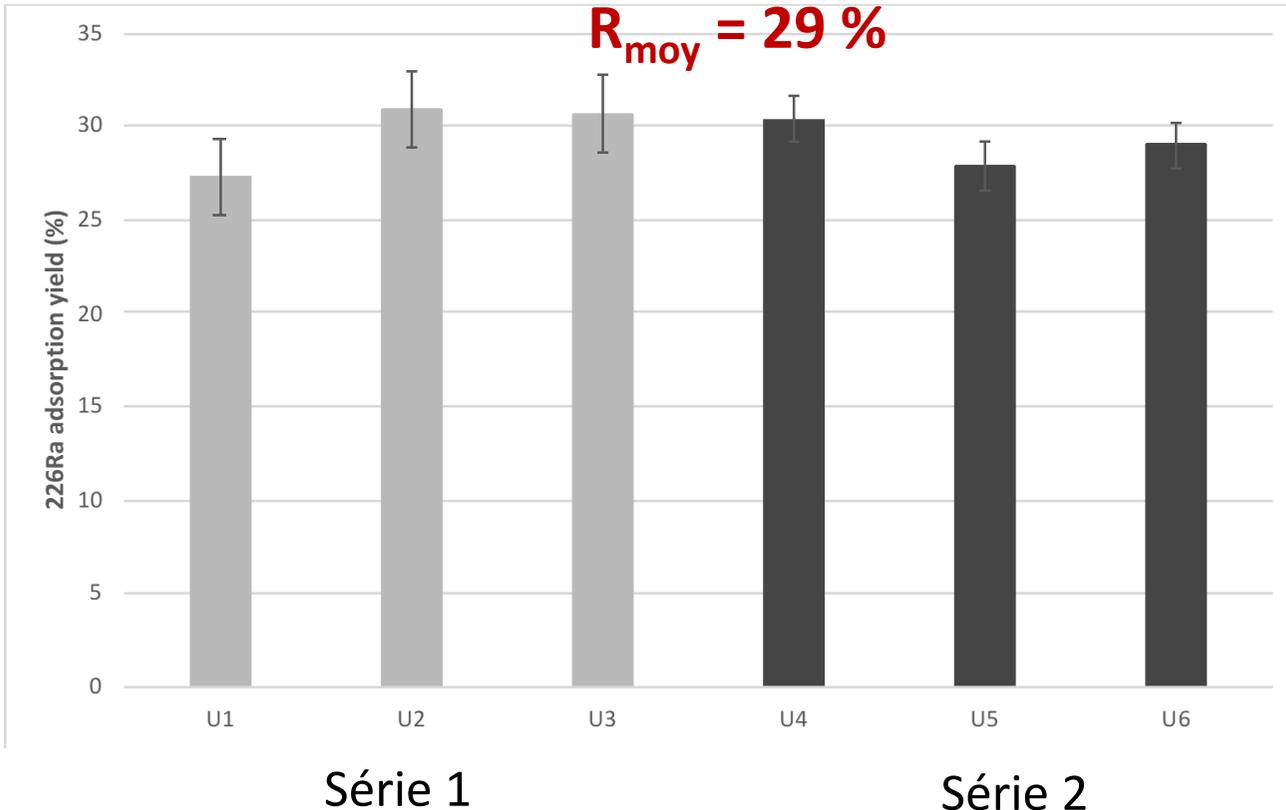


$A(^{133}\text{Ba})_{\text{résiduelle}} \approx A(^{133}\text{Ba})_{\text{initiale}}$
 $R(^{133}\text{Ba}) \approx 0$

MINÉRALISATION

→ Chauffage traditionnel

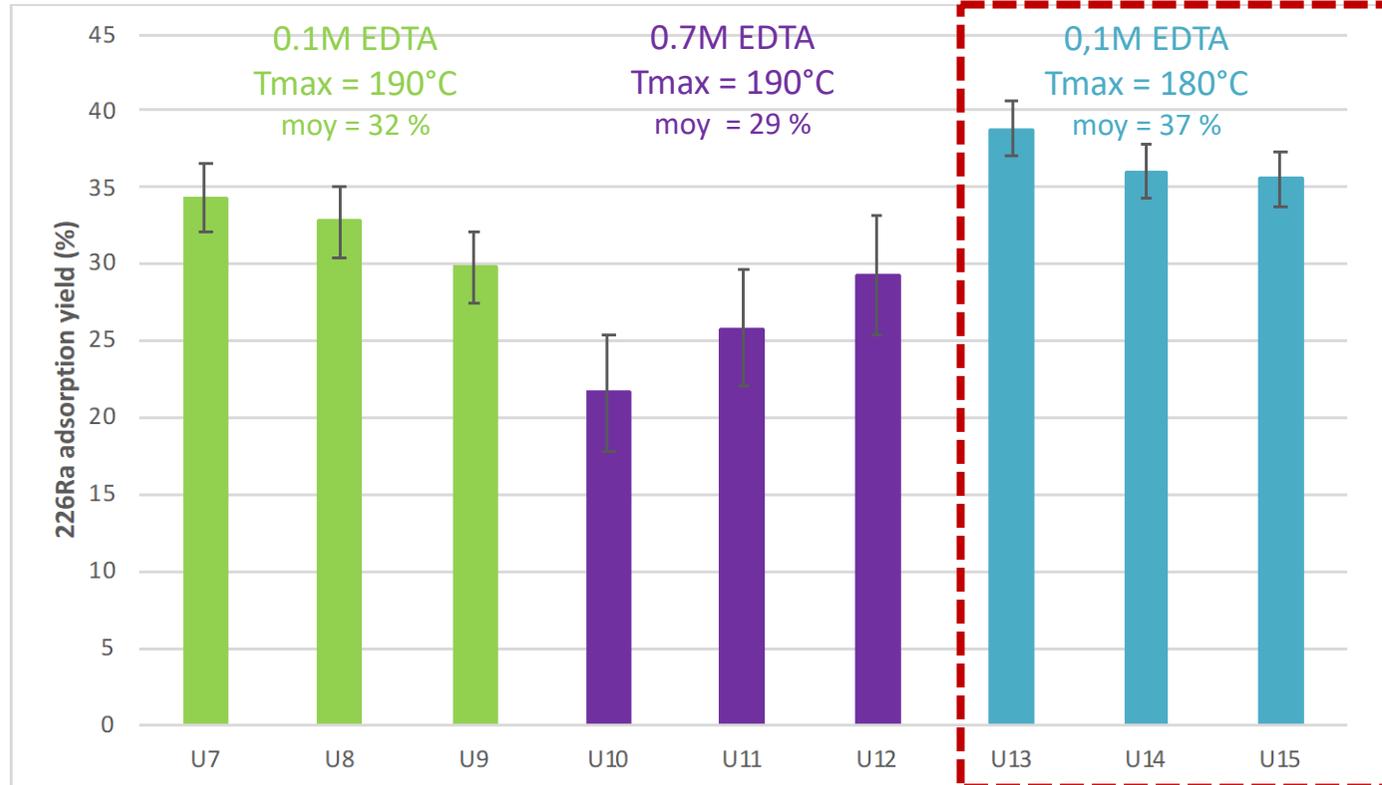
$$A^{226}_{\text{Ra}} = 0,2 \text{ Bq/L}$$



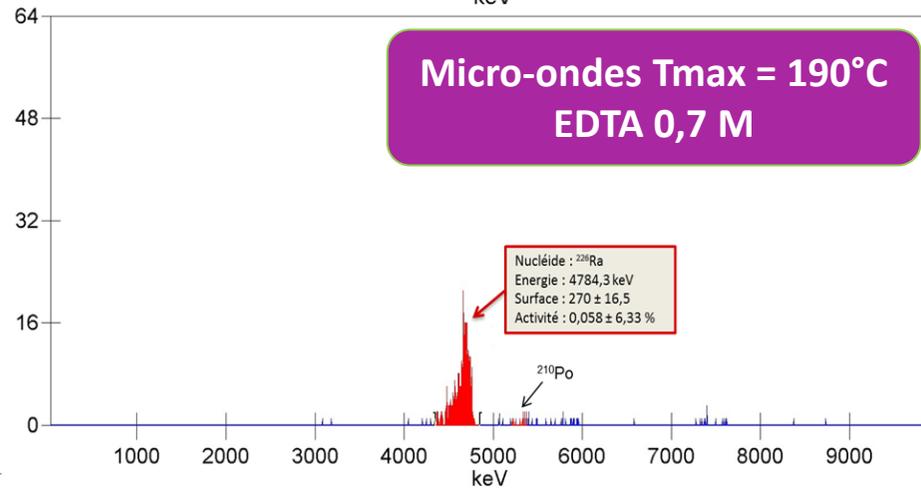
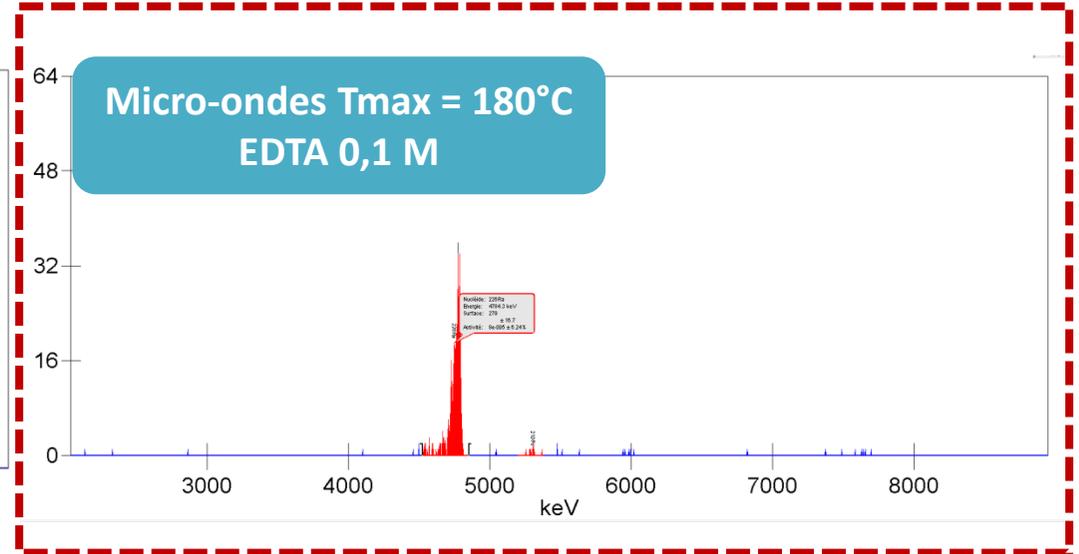
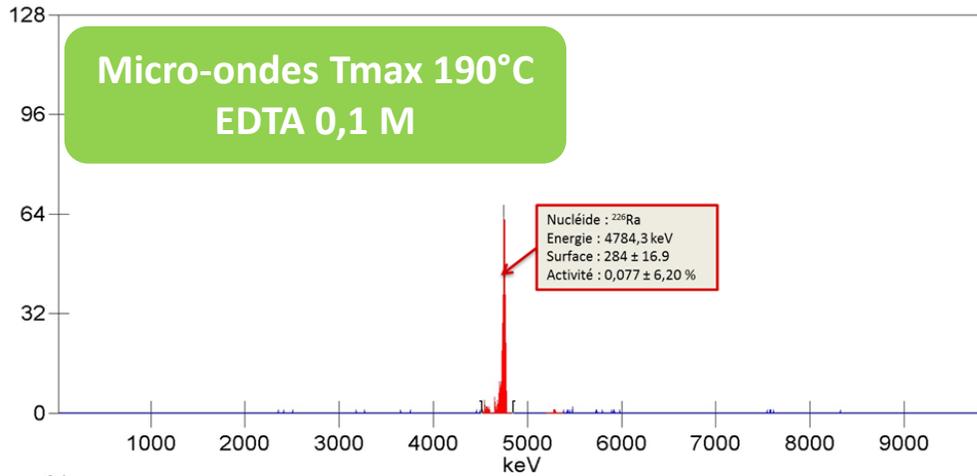
MINÉRALISATION

→ Minéralisation micro-ondes

$A^{226}_{Ra} = 0,2 \text{ Bq/L}$

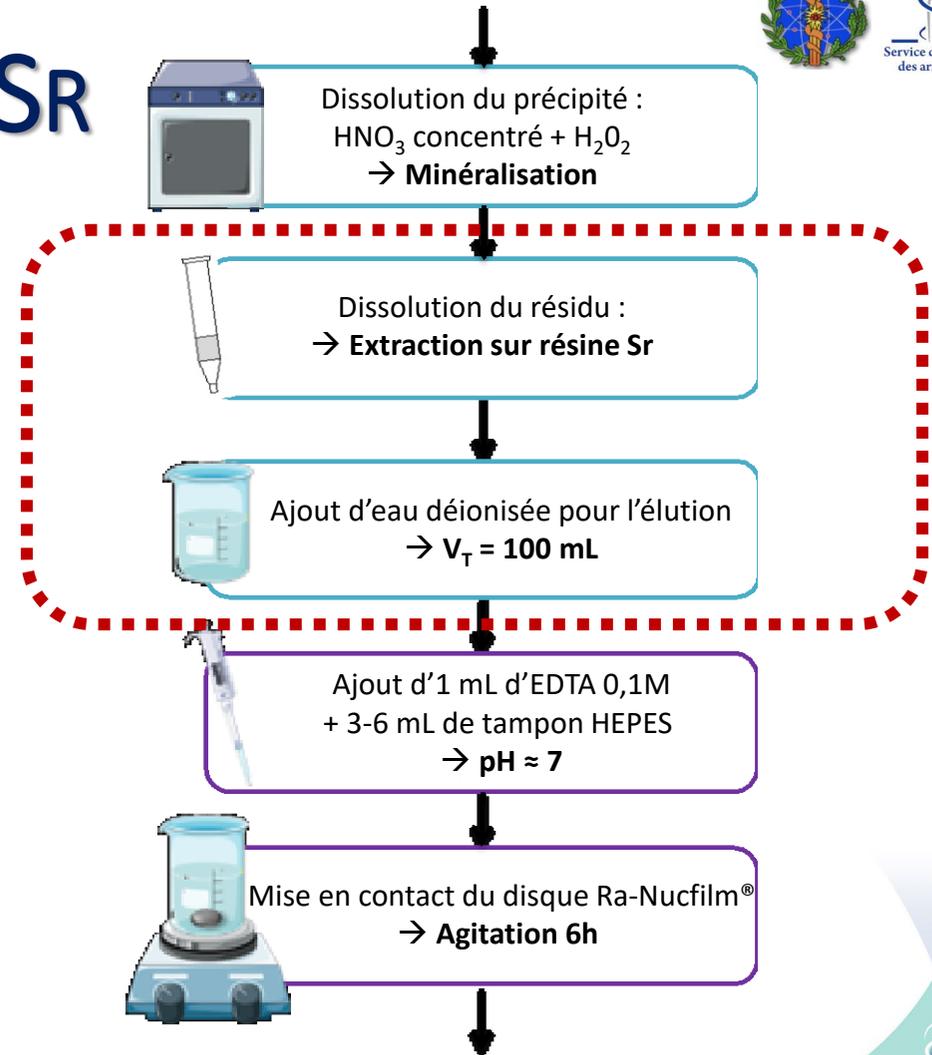


MINÉRALISATION

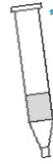
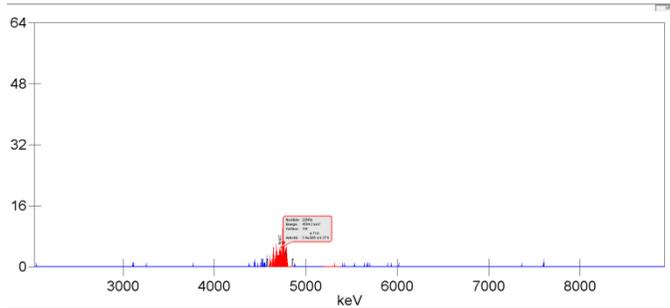


PRÉTRAITEMENT : RÉSINE SR

➔ Utilisation d'une résine Sr pour les analyses de radium
Sadi *et al.*, 2015



PRÉTRAITEMENT : RÉSINE SR



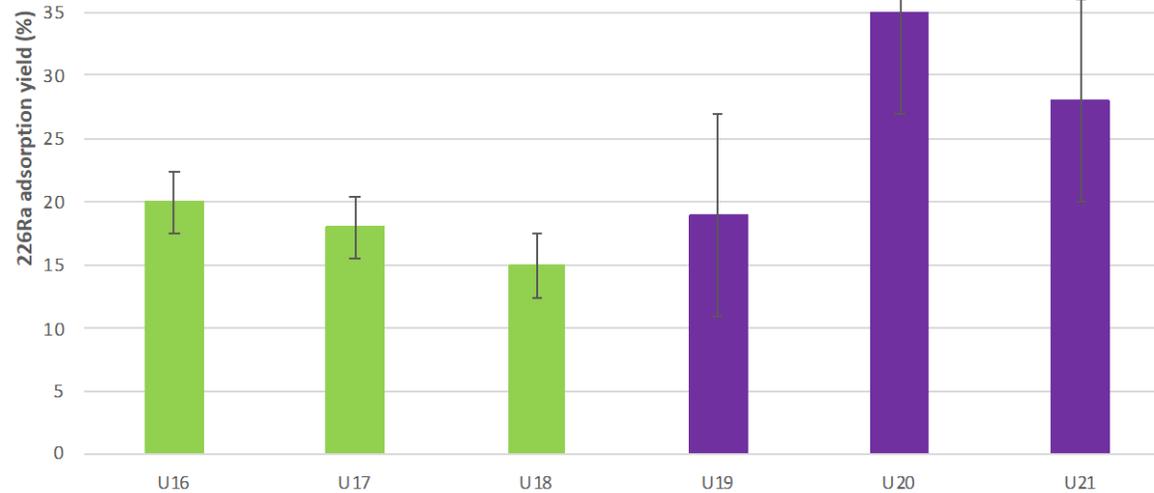
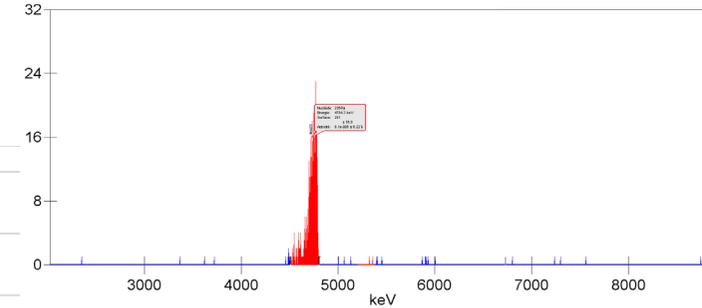
Dissolution du résidu :
→ Extraction sur résine Sr

HCl 8N

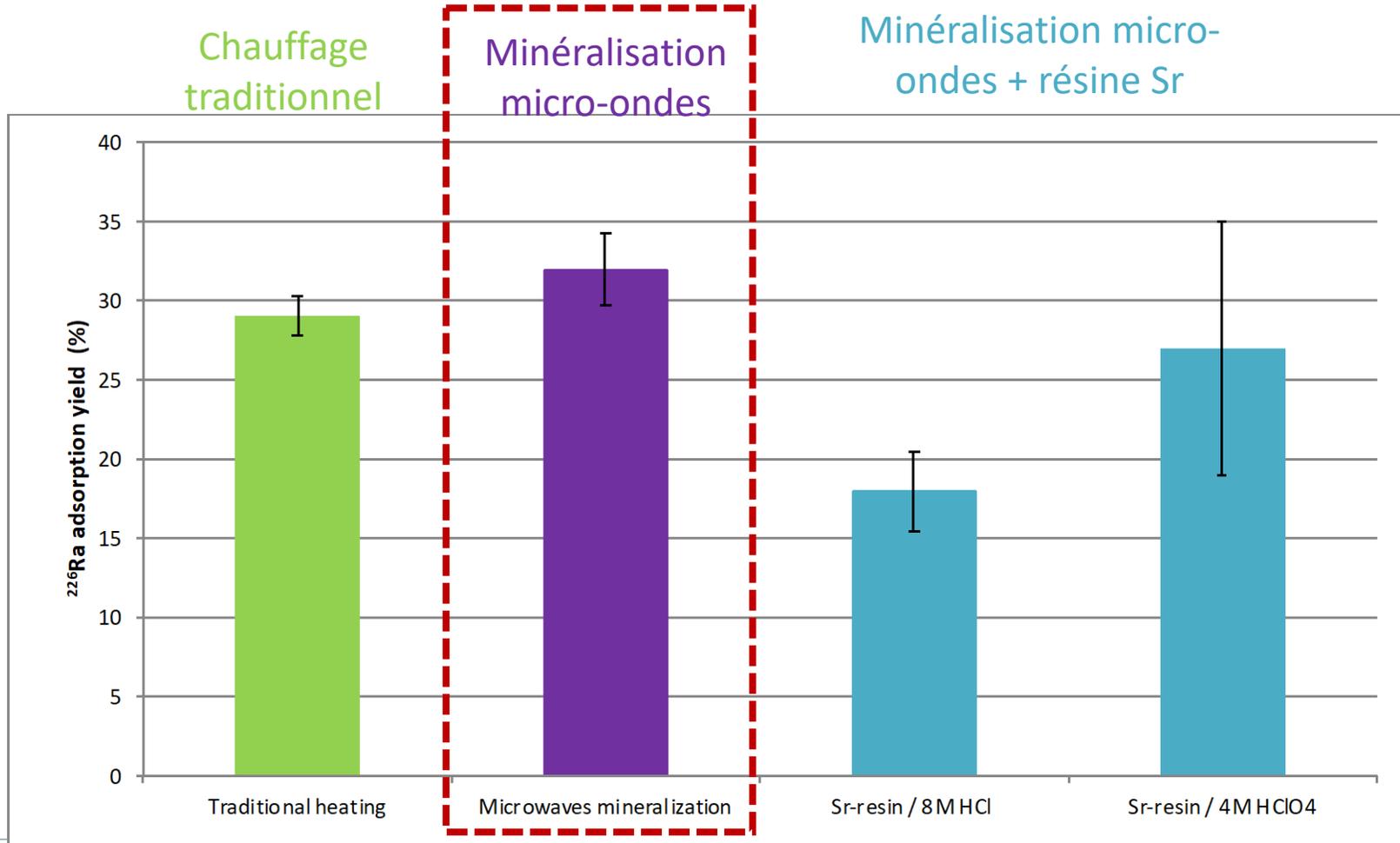
moy = 18 %

HClO₄ 4N

moy = 27 %



DISCUSSION



DISCUSSION

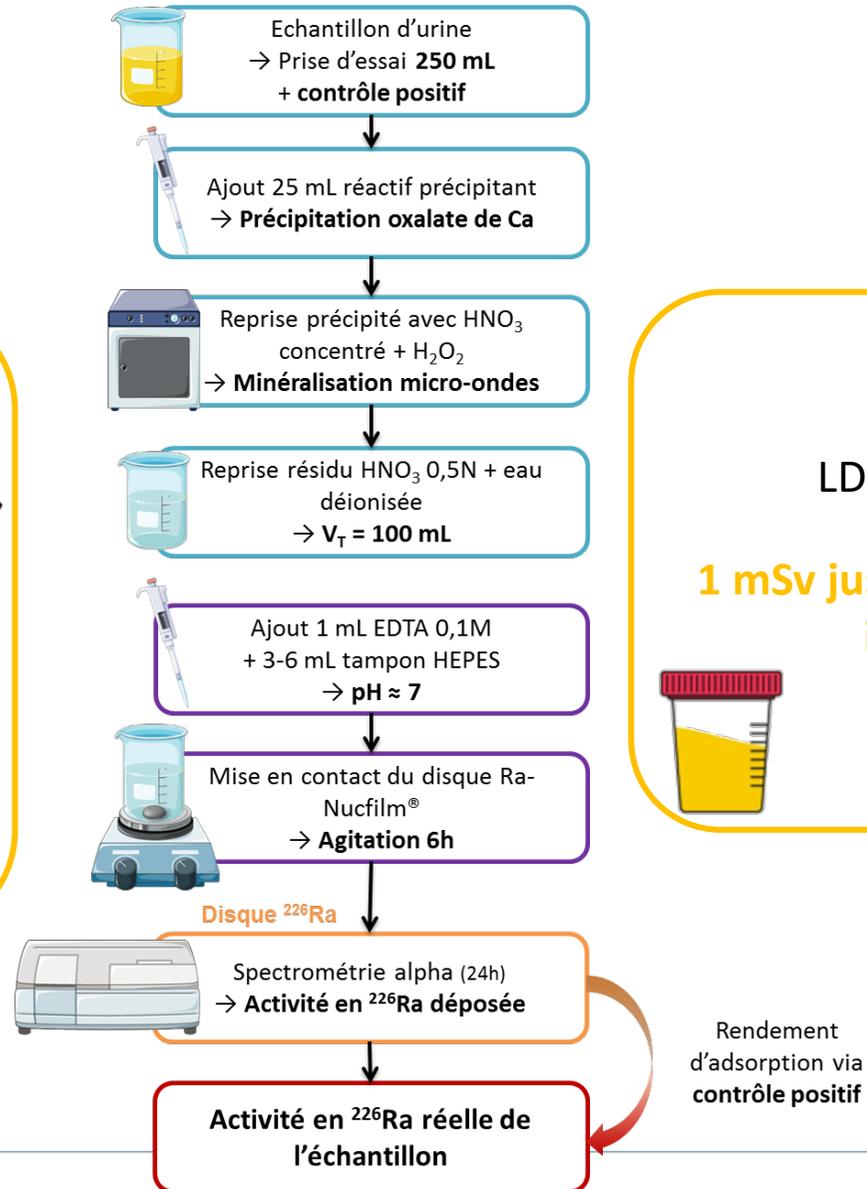
^{133}Ba ≠ Traceur interne

^{224}Ra : émetteur α ; demi-vie 3 jours ✗

Rendement d'adsorption $\approx 30\%$

=> Utilisation d'un contrôle positif ?

Sous réserve de répétabilité sur
la gamme d'activité et absence d'effet matrice



LD $\approx 6,3$ mBq/L

1 mSv jusqu'à 8 jours après
inhalation



CONCLUSION

SENSIBILITÉ

NF ISO 11929 ²⁰²⁰

Statistique de comptage
+ Incertitudes

Variation R_{chimique} [20 ; 80] %

→ LD de 4 – 20 mBq/L

Respect des
recommandations
 ≤ 40 mBq/L

arrêté 26 octobre 2017



GTN5 ¹⁹⁹⁴

Uniquement la statistique de
comptage

$R_{\text{chimique}} = 30$ %

→ LD de 6,3 mBq/L

1 mSv jusqu'à 8 jours après
inhalation



POUR CONCLURE,



Rapides : résultats en 2 jours
Non chronophage
Consommation de peu de réactifs
LD respectant les objectifs

Détermination du R_{chimique}

Etudes supplémentaires nécessaires

- Prétraitement si uranium
- Utilisation du contrôle positif / urines

MERCI DE VOTRE ATTENTION

