
Rejet des effluents gazeux radioactifs

Le document ici présent est organisé en trois parties.

La première concerne les études d'impact réalisées par le laboratoire DAPNIA du CEA en 2006, considérant d'une part, une situation normale de fonctionnement du cyclotron Arronax selon certaines hypothèses de production, d'autre part, une situation accidentelle selon deux scénarios.

La deuxième partie présente le suivi des rejets gazeux sur la base de l'activité réelle du cyclotron Arronax, couvrant la période de 2009 à 2014 inclus.

Enfin, la troisième partie est consacrée à l'évaluation des rejets gazeux en rapport avec les hypothèses de croissance des activités de production du GIP ARRONAX.

Les activités de recherche sont considérées comme non contributives aux rejets d'effluents gazeux aussi, uniquement les productions de radionucléides en mode industriel ou pseudo-industriel sont traitées.

Remarque : les études du laboratoire DAPNIA avaient été transmises lors de la première demande d'autorisation F005042 en 2012.

Document rédigé par Nicolas Varmenot, responsable du service de prévention des risques
Validé par Ferid Haddad, Directeur du GIP ARRONAX
Saint-Herblain, le 27 avril 2015



Contenu

Contenu	2
1. Etude du laboratoire DAPNIA du CEA	3
1.1. Etude d'impact des rejets atmosphériques en fonctionnement normal	3
1.1.1. Hypothèses d'utilisation du cyclotron et activation de l'air des casemates	3
1.1.2. Effet de la filtration	3
1.1.3. Évaluation des quantités rejetées	3
1.1.4. Terme source retenu pour le calcul d'impact	4
1.1.5. Zone géographique de l'étude d'impact	5
1.1.6. Conclusion pour les rejets en fonctionnement normal.....	6
1.2. Etude d'impact du site ARRONAX en situation accidentelle	6
1.2.1. Hypothèses générales	6
1.2.2. Scénarii	7
1.2.3. Choix des radionucléides.....	7
1.2.4. Résultats	7
1.2.5. Conclusion	9
2. Situation réactualisée compte des activités du GIP ARRONAX	9
2.1. Activités de production	9
2.2. Terme source.....	9
2.2.1. Activation de l'air.....	9
2.2.2. Radionucléides gazeux générés par l'activation de l'eau de refroidissement	10
2.2.3. Identification des radionucléides rejetés	11
2.3. Extraction de l'air	11
2.4. Détecteurs en sortie de cheminée	11
2.5. Évaluation des quantités rejetées sur l'année 2014	14
2.6. Comparaison avec les simulations de 2006 du DAPNIA.....	14
2.6.1. Situation normale de fonctionnement.....	14
2.6.2. Situation accidentelle	15
3. Plan d'amélioration	15
4. Situation prévisionnelle tenant compte des activités futures du GIP ARRONAX.....	16
5. Seuil annuel de rejet des effluents gazeux.....	17



1. Etude du laboratoire DAPNIA du CEA

1.1. Etude d'impact des rejets atmosphériques en fonctionnement normal

1.1.1. Hypothèses d'utilisation du cyclotron et activation de l'air des casemates

Afin de définir le terme source du rejet en fonctionnement normal, plusieurs modes d'utilisation ont été examinés :

1. Fonctionnement du cyclotron pendant 10 heures par jour à l'énergie maximale de 70 MeV, pour une intensité de 350 μ A d'un faisceau de protons sur une cible thallium - cuivre (80 μ m Tl), non blindée,
2. Fonctionnement du cyclotron pendant 10 heures par jour dans les mêmes conditions avec la même cible mais blindée,
3. Fonctionnement du cyclotron pendant 22 heures par jour à l'énergie de 30 MeV, pour un faisceau de protons de 350 μ A avec la même cible, non blindée.

Le premier mode de fonctionnement est a priori le plus pénalisant. Ceci sera vérifié par la suite, non seulement en termes d'activité maximale atteinte dans la casemate et d'activité rejetée mais aussi en termes d'impact dosimétrique.

Pour l'ensemble de ces situations de fonctionnement et afin d'évaluer le terme source annuel, on considère que le cyclotron fonctionne 5 jours par semaine pour 50 semaines par an avec une indisponibilité pour maintenance de 5 %, soit au total 237,5 jours de fonctionnement par an.

Le taux nominal de renouvellement de l'air dans les casemates est de 5 volumes par heure. Dans la suite et de manière pénalisante, on a considéré que l'air activé était rejeté depuis la plus petite des casemates (casemate A2).

1.1.2. Effet de la filtration

La cheminée est dotée de deux filtres THE (très haute efficacité) en série. Le premier est supposé avoir une efficacité de 99.9%, le second de 99%.

Cela implique que pour tenir compte de la filtration, l'activité rejetée des radionucléides émis sous forme d'aérosols doit être réduite d'un facteur de 10^{-5} .

Pour tenir compte de la filtration, le calcul de l'impact radiologique sera fait en supposant que :

- le carbone peut être :
 - soit sous forme de C14 aérosols (il faut alors réduire l'activité rejetée après filtration)
 - soit gazeux (C14 CO₂) (les filtres n'ont alors dans ce cas aucun effet), et la totalité s'échappera, mais dans ce cas, les conséquences seront moins pénalisantes.
- le tritium est sous la forme de vapeur d'eau tritiée, donc sous une forme ne pouvant être arrêtée par les filtres et qui est la forme la plus pénalisante,
- l'azote et le soufre sont considérés sous forme gazeuse, avec une absence totale de rétention dans les filtres, approche probablement très pessimiste.

On présente ainsi les résultats du fonctionnement normal par radionucléide pour des individus de différents âges des groupes de référence.

1.1.3. Évaluation des quantités rejetées

Le tableau suivant détaille, pour chaque cas de fonctionnement étudié, l'activité des principaux isotopes présents dans la plus petite des casemates (casemate A2 de 58 m³ avec 5 renouvellements



horaires de l'air) et le débit d'activité à la cheminée, en fin de période d'irradiation. L'activité rejetée est également présentée en prenant en compte la période d'irradiation et la décroissance des isotopes après arrêt du faisceau, la ventilation étant maintenue au débit nominal.

CAS	Energie (MeV)	Cible	Temps d'irradiation (heures)	Radionucléide	H3	C14	N13	N16	O15	S35	Ar37	Ar39	Ar41	Total
				Période (s)	3,89E+08	1,81E+11	5,98E+02	7,13E+00	1,22E+02	7,56E+06	3,02E+06	8,48E+09	6,59E+03	-
1	70	non blindée	10	Activité (Bq)	1,11E+04	1,28E+02	1,41E+09	1,56E+09	4,56E+08	5,34E+00	2,68E+01	1,97E+01	5,43E+05	3,43E+09
				Débit d'activité (Bq/s)	1,55E+01	1,77E-01	1,98E+06	2,16E+06	6,37E+05	7,42E-03	3,72E-02	2,74E-02	7,55E+02	4,76E+06
				Activité rejetée (Bq)	5,57E+05	6,38E+03	7,06E+10	7,78E+10	2,29E+10	2,67E+02	1,34E+03	9,86E+02	2,72E+07	1,71E+11
2	70	blindée	10	Activité (Bq)	/	/	2,77E+08	5,34E+08	1,01E+08	/	/	/	2,82E+05	9,12E+08
				Débit d'activité (Bq/s)	/	/	3,85E+05	7,41E+05	1,40E+05	/	/	/	3,82E+02	1,27E+06
				Activité rejetée (Bq)	/	/	1,39E+10	2,67E+10	5,04E+09	/	/	/	1,41E+07	4,56E+10
3	30	non blindée	22	Activité (Bq)	1,57E+03	/	3,82E+07	9,49E+07	6,01E+05	/	/	/	1,98E+05	1,32E+08
				Débit d'activité (Bq/s)	2,18E+00	/	5,02E+04	1,32E+05	8,35E+02	/	/	/	2,75E+02	1,83E+05
				Activité rejetée (Bq)	1,73E+05	/	3,98E+09	1,04E+10	6,62E+07	/	/	/	2,18E+07	1,45E+10

NB : E-15 veut dire 10^{-15} et / indique une contribution négligeable du radioélément.

Tableau 1 : Activité dans la casemate A2, débit d'activité et rejet à la cheminée pour les différents cas

L'activation de l'air a été calculée avec le code DCHAIN, à partir d'une simulation du transport des particules effectuée, pour la casemate A2, avec le code Monte Carlo 3D PHITS.

Les caractéristiques de la production de neutrons induits par l'interaction des protons avec la cible sont sensibles à l'énergie des protons incidents et à la présence d'un blindage de la cible. Le spectre radiologique de l'air varie donc en fonction du flux de neutrons et de leur énergie.

Ainsi d'autres isotopes que ceux présentés dans le tableau 1 peuvent être produits dans la casemate (par exemple : 11C, 15C, 12B, 37S, 39Cl, 40Cl). La contribution de ces isotopes dans l'impact radiologique peut être considérée comme négligeable compte tenu de leur courte période de décroissance et de leur faible niveau d'activité dans le rejet atmosphérique en conditions normales. Ceci a été vérifié en les intégrant toutefois dans le calcul de l'impact dosimétrique.

Les valeurs du terme source sont présentées ci-dessous pour les différentes situations de fonctionnement.

Elles traduisent l'activité totale du rejet effectif, somme des activités avant filtration au droit des différents exutoires de l'installation (ici, il n'y a que la cheminée du cyclotron).

Elles tiennent compte de la décroissance naturelle des radionucléides avant rejet effectif.

Le tableau suivant présente le terme source annuel de l'installation ARRONAX, pour les situations de fonctionnement étudiées (production dans la casemate A2).

CAS	Energie (MeV)	Cible	Temps d'irradiation (heures)	Radionucléide	H3	C14	N13	N16	O15	S35	Ar37	Ar39	Ar41	Total
1	70	non blindée	10	Activité annuelle rejetée (Bq)	1,32E+08	1,52E+06	1,68E+13	1,85E+13	5,45E+12	6,35E+04	3,18E+05	2,34E+05	6,45E+09	4,07E+13
2	70	blindée	10		/	/	3,29E+12	6,34E+12	1,20E+12	/	/	/	3,35E+09	1,08E+13
3	30	non blindée	22		4,11E+07	/	9,45E+11	2,48E+12	1,57E+10	/	/	/	5,18E+09	3,45E+12

Tableau 2 : Terme source annuel du projet ARRONAX pour les différents cas étudiés (casemate A2)

1.1.4. Terme source retenu pour le calcul d'impact

Afin de justifier du terme source retenu pour les calculs d'impact, le tableau de synthèse des résultats des calculs d'impact dosimétrique réalisés pour les différents cas de fonctionnement étudiés est présenté ci-après :



1.1.6. Conclusion pour les rejets en fonctionnement normal

En supposant que tous les radionucléides proviennent de 2 casemates avec des faisceaux fournis simultanément dans les conditions les plus pénalisantes (70 MeV avec des cibles non blindées) et soient rejetés en même temps et sur toute l'année, l'impact des rejets atmosphériques de l'installation ARRONAX pour le groupe de référence le plus exposé (groupe « Chauvinière » ou « gardien ») est de :

	Adulte	Enfant de 10 ans	Bébé de 1 an
Dose (Sv/an)	18,6E-06	18,6E-06	18,6E-06

Tableau 17 : Impact des rejets atmosphériques de tous les radionucléides à Chauvinière

Cet impact maximal retenu représente 1,9% de la limite réglementaire actuelle (1 mSv.an⁻¹) et 0,8% de l'exposition naturelle moyenne en France (2,4 mSv.an⁻¹).

Le radionucléide contribuant le plus est N13 à raison de 79%.

En un point donné, la voie d'exposition dominante est l'irradiation externe, essentiellement par le panache.

Dans les conditions réelles de fonctionnement du cyclotron, notamment :

- utilisation régulière à des énergies plus proches de 30 MeV que de 70 MeV, compte tenu des principaux radionucléides à produire,
- le cas échéant et si possible, blindage des cibles dans les situations d'utilisation prolongées à 70 MeV.

L'impact radiologique réel pourrait être sensiblement moindre (par exemple : valeur dixième de la valeur retenue de manière conservatrice).

1.2. Etude d'impact du site ARRONAX en situation accidentelle

Deux scénarios accidentels sont étudiés : 1/ la fusion d'une cible de 0,37 TBq (10 Ci) de fluor 18 et 2/ l'incendie de 74 GBq (2 Ci) d'astate 211.

L'impact maximal d'un rejet atmosphérique accidentel (0,37 TBq (10 Ci) de fluor 18) pour le groupe de référence le plus exposé représente environ 2% de la limite réglementaire annuelle pour le public pour des expositions à des rejets normaux et autorisés (1 mSv/an) et est de l'ordre de 1% de l'exposition naturelle moyenne en France (2,4 mSv/an).

Par ailleurs étudié, un rejet atmosphérique accidentel de 74 GBq (2 Ci) d'Astase 211 a un impact négligeable comparé à la limite d'exposition du public pour les rejets en fonctionnement normal ou encore à l'exposition naturelle moyenne en France.

1.2.1. Hypothèses générales

Le rejet est supposé, de façon pénalisante, avoir la forme d'une bouffée instantanée. Les calculs sont faits sans tenir compte des pièges à iode qui ont pour fonction de limiter l'activité pouvant être rejetée pour certains éléments ou composés radioactifs et sans tenir compte de la décroissance avant émission. La rétention des aérosols dans les filtres THE est prise en compte en fonction de la nature des éléments ou composés radioactifs.

En pratique, l'émission des substances radioactives durerait un certain temps pour quitter les locaux concernés. Si l'on souhaitait des dispositions moins conservatrices, il conviendrait de tenir compte de la décroissance radioactive pendant la durée réelle du rejet, des pièges à iode et des dispositions prises pour la conduite de la ventilation en cas d'accident.

Les rejets s'effectuent par la cheminée, à la hauteur de 10 m au dessus du niveau du sol.

Par ailleurs, lorsque la durée de rejet devient grande, les conditions météorologiques peuvent fluctuer, même changer. La dispersion par le battement des vents négligeable pour un rejet quasi instantané serait de l'ordre de 3 au moins, sur une heure, ce qui réduirait d'autant les coefficients de



transfert atmosphérique sur l'axe et donc les concentrations aux différents groupes critiques retenus.

1.2.2. Scénarii

Deux types de scénario ont été retenus pour définir les termes sources en situation accidentelle :

1. La fusion d'une cible dans l'une quelconque des casemates de production,

Dans ce cas de figure, seule l'activité produite dans la cible est prise compte dans le terme source. L'activité résultant de l'activation du support est principalement due à des isotopes à vie courte et dont le poids radiologique est sensiblement plus faible que ceux produits dans la cible.

Les deux premières barrières de confinement constituées par la cible elle-même et sa navette de transfert pneumatique ainsi que l'enveloppe à vide de la station d'irradiation prolongée par les lignes de faisceaux sont considérées comme perdues. L'intégralité des radionucléides présents dans la cible est donc dispersée dans la casemate qui constitue, avec le système de ventilation, le troisième niveau de confinement. L'intégrité de ce dernier niveau de confinement n'est pas mise en cause.

En cas d'incendie consécutif, l'extraction continue de fonctionner tant que les clapets coupe-feux ne se ferment pas. Les dispositifs de filtration THE, alors protégés par les clapets coupe-feux et à distance de la casemate, ne sont pas détruits. Leur efficacité est alors supposée toujours maintenue (2 niveaux de filtration). Il est fait l'hypothèse pénalisante que l'intégralité des radionucléides de la cible est transférée dans l'environnement de manière instantanée, sans prendre en compte les pièges à iode.

2. L'incendie dans le local d'entreposage avant expédition.

Le scénario ici retenu est un incendie maîtrisé dans le local précédent le sas d'expédition des produits. Ce local est susceptible de contenir au plus l'activité en produits radio-pharmaceutiques résultant du traitement de 2 cibles irradiées (cycles de production longs).

L'hypothèse d'un feu embrasant tout le local est peu réaliste, compte tenu de la faible densité de charge calorifique ($DCC < 500 \text{ MJ/m}^2$) de ce local, qui constitue lui-même un secteur feu 2 heures. L'intégralité du confinement n'est alors pas mise en cause.

L'extraction fonctionne tant que les clapets coupe-feux ne se ferment pas. Les dispositifs de filtration THE, protégés par les clapets coupe-feux et à grande distance du local, ne sont pas détruits. Leur efficacité est alors supposée toujours maintenue (1 niveau de filtration). Les éventuels pièges à iode ne sont pas pris en compte.

1.2.3. Choix des radionucléides

Parmi la liste des éléments susceptibles d'être produits par le cyclotron ARRONAX, les radionucléides suivants ont été retenus :

- **le fluor 18**, choisi pour sa forte volatilité et son activité, car susceptible d'être produit sur cible jusqu'à 0,37 TBq (10 Ci). La solution qui le contient sera considérée comme entièrement vaporisée dans l'accident et le fluor émis ne sera pas retenu par les filtres THE, ni par les pièges à iode bien qu'il ait des propriétés similaires à celles de l'iode en tant qu'halogène. Le terme source en ^{18}F est associé à l'accident de fusion de cible, immédiatement en fin d'irradiation. C'est à ce moment que l'activité sera maximale dans l'installation, ce radionucléide ayant une vie courte (1,8 heures).
- **l'astate 211**, choisi pour son impact radiologique (émetteur α produit par le cyclotron ARRONAX). Le tableau 1 montre que ce radionucléide est le plus pénalisant, du point de vue de l'exposition interne (voir le produit $A_i \times F_i$), qui est le mode prépondérant. Le terme source en ^{211}At est associé à un incendie maîtrisé dans le local d'entreposage des produits finis. De manière pénalisante, le rejet est maximisé. L'activité choisie correspond à 2 productions regroupées avant expédition, soit 74 GBq (2 Ci). La décroissance de ^{211}At (7,2 heures) et l'éventuelle rétention dans les pièges à iode ne sont pas prises en compte.

1.2.4. Résultats

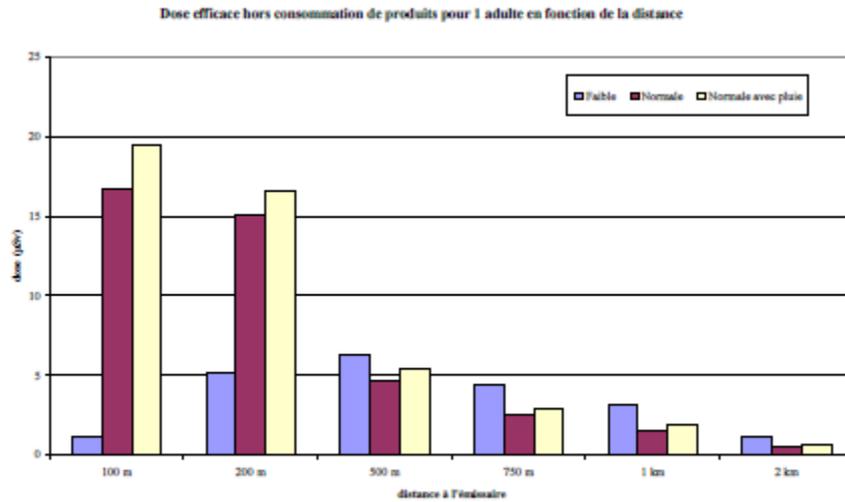


Figure 3: Rejet de ¹⁸F - Dose efficace pour 1 adulte en fonction de la distance

(Sv/an)	exposition au nuage		Exposition par irradiation au dépôt		Exposition par consommation de végétaux directement contaminés		
	inhalation	irr nuage	1 an	50 ans	légumes feuille	légumes fruits	fruits
F18	2,83E-06	7,06E-06	9,64E-06	9,64E-06	3,06E-08	4,73E-09	Négligeable

Tableau 9 : Rejet de ¹⁸F - Dose efficace pour un adulte à 100 m en diffusion normale pluie (Sv/an)

Cas de l'At211

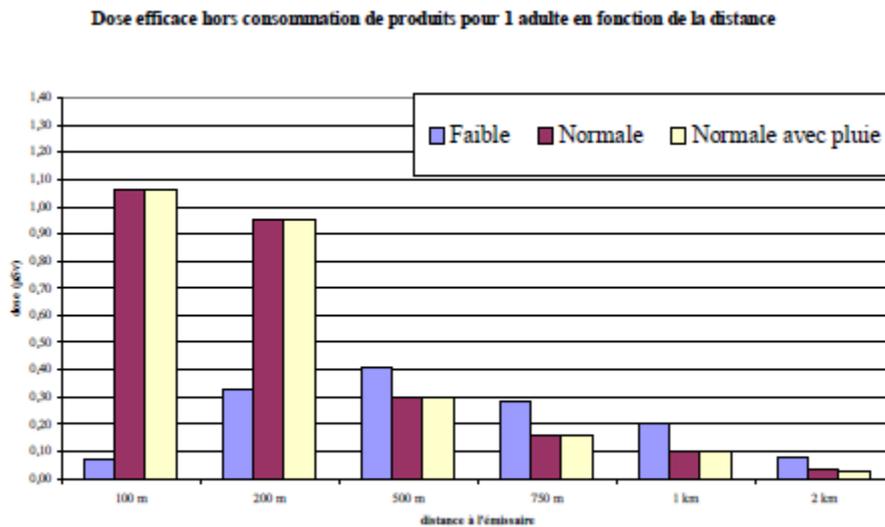


Figure 5: Rejet de ²¹¹At - Dose efficace pour 1 adulte en fonction de la distance

(Sv/an)	exposition au nuage		Exposition par irradiation au dépôt		Exposition par consommation de végétaux directement contaminés		
	inhalation	irr nuage	1 an	50 ans	légumes feuille	légumes fruits	fruits
At211	1,06E-06	4,59E-11	2,75E-10	2,75E-10	5,43E-09	8,39E-10	Négligeable

Tableau 15 : Rejet de ²¹¹At - Dose efficace pour un adulte à 100 m en diffusion normale pluie (Sv/an)



1.2.5. Conclusion

L'accident de référence le plus pénalisant en termes de conséquences radiologiques suite à un rejet atmosphérique correspond à la fusion d'une cible de ^{18}F dans l'une des casemates de production du cyclotron ARRONAX. L'incendie dans le local d'entreposage avant expédition avec rejet atmosphérique d' ^{211}At conduit à des conséquences radiologiques moins pénalisantes ($\sim 1 \mu\text{Sv}$).

Pour un rejet atmosphérique de 0,37 TBq de ^{18}F , la dose maximale reçue par un individu du groupe de référence le plus exposé (groupe le plus proche) est de l'ordre de $20 \mu\text{Sv}$ avec des conditions météorologiques de type « diffusion normale avec pluie ».

Les différences entre les expositions de l'adulte, de l'enfant et du bébé sont peu significatives. Il n'y a donc pas de population particulièrement sensible en termes d'intervention, pour l'accident de référence.

Néanmoins, les doses estimées restent faibles devant :

- le seuil d'intervention défini par la réglementation pour une situation accidentelle (10 mSv),
- la limite d'exposition du public pour les rejets en fonctionnement normal (1 mSv/an),
- l'exposition naturelle moyenne en France (2,4 mSv/an),
- l'exposition annuelle au rayonnement cosmique à une altitude de 50 m qui est estimée à 320 μSv .

2. Situation réactualisée compte des activités du GIP ARRONAX

L'analyse porte sur la période allant du démarrage du cyclotron en 2008 à l'année 2015.

2.1. Activités de production

La production actuelle de radionucléides du GIP ARRONAX est centrée sur :

- le strontium-82 : à raison de 148 GBq maximum par production mensuelle,
- le cuivre-64 : à raison de 3,7 GBq maximum tous les 15 jours,
- l'astate-211 : à raison de 200 MBq maximum par production hebdomadaire,
- le scandium-44 : à raison de 150 MBq maximum tous les 15 jours.

Il s'agit de fréquences moyennes qui ne tiennent pas compte des pannes du cyclotron et autres contraintes de planning d'exploitation.

Les conditions expérimentales de tir pour la production de strontium-82 (cas le plus défavorable) sont les suivantes :

- faisceau de protons de 70 MeV,
- intensité de $2 \times 100 \mu\text{A}$.

2.2. Terme source

Lors des tirs de production, il existe deux voies de production de radionucléides par activation.

2.2.1. Activation de l'air

TABLE 6.5—Yields of radionuclides from neutron activation of air.

Nuclide	Parent Element	Mass Number of Parent	Weight Fraction of Parent Element	Cross Section (mb)	Yield ^a (Bq m ⁻¹)	Total Yield ^a (Bq m ⁻¹)
Radionuclides Produced by High-Energy Neutrons^b						
H-3	Carbon	12	1.2×10^{-4}	10	7.5×10^3	1.5×10^8
	Nitrogen	14	7.55×10^{-1}	30	1.2×10^8	
	Oxygen	16	2.3×10^{-1}	30	3.1×10^7	
Be-7	Carbon	12	1.2×10^{-4}	10	7.5×10^3	4.5×10^7
	Nitrogen	14	7.55×10^{-1}	10	3.9×10^7	
	Oxygen	16	2.3×10^{-1}	5	5.2×10^6	
C-11	Carbon	12	1.2×10^{-4}	30	2.3×10^4	4.5×10^7
	Nitrogen	14	7.55×10^{-1}	10	3.9×10^7	
	Oxygen	16	2.3×10^{-1}	5	5.2×10^6	
N-13	Nitrogen	14	7.55×10^{-1}	10	3.9×10^7	4.9×10^7
	Oxygen	16	2.3×10^{-1}	9	9.4×10^6	
O-15	Oxygen	16	2.3×10^{-1}	40	4.2×10^7	4.2×10^7
Ar-41 Produced by Thermal Neutrons^a						
Ar-41	Argon	40	1.3×10^{-2}	610	1.9×10^{10} ^c	1.9×10^{10} ^c

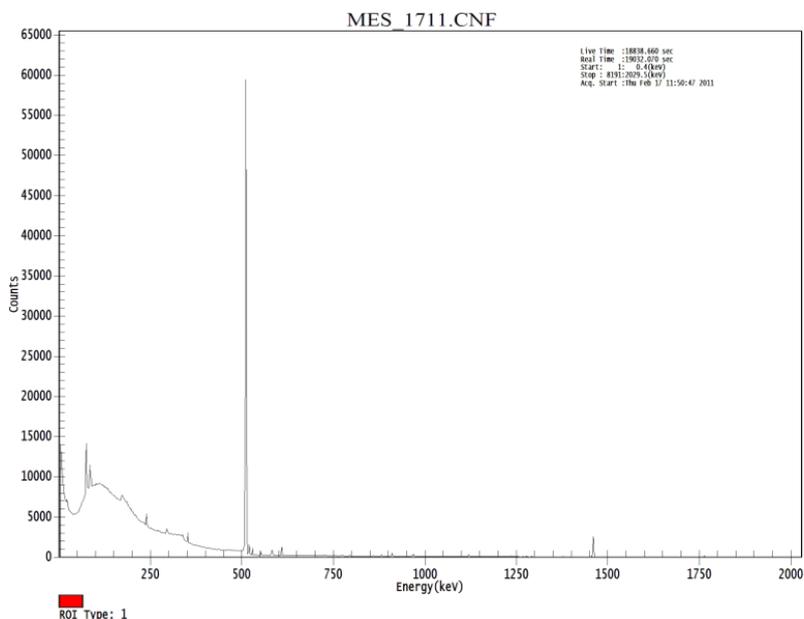
^aYield per 10^{12} s⁻¹.

^bData from Rindi and Charalambus (1967).

^cDivide this value by the surface area of the concrete vault enclosure in cm² to determine the yield in Bq cm⁻³.

Lors de l'irradiation d'une cible par un faisceau de particules, des rayonnements secondaires sont générés composés de photons et de neutrons. Le spectre énergétique de ces derniers est dépendant des conditions expérimentales, en particulier du spectre énergétique du faisceau incident et de la nature chimique de la ou des cibles. L'air présent dans la casemate représente une cible pour ce rayonnement neutronique secondaire et conduit à la formation des radionucléides présentés dans le tableau ci-dessus (NCRP n°144), en proportion dépendant du spectre énergétique du flux neutronique secondaire.

Une mesure de spectrométrie réalisée en février 2011, montre une signature à 511 keV des radionucléides présents dans les tuyaux de rejet des effluents gazeux en condition de tir de production.



2.2.2. Radionucléides gazeux générés par l'activation de l'eau de refroidissement

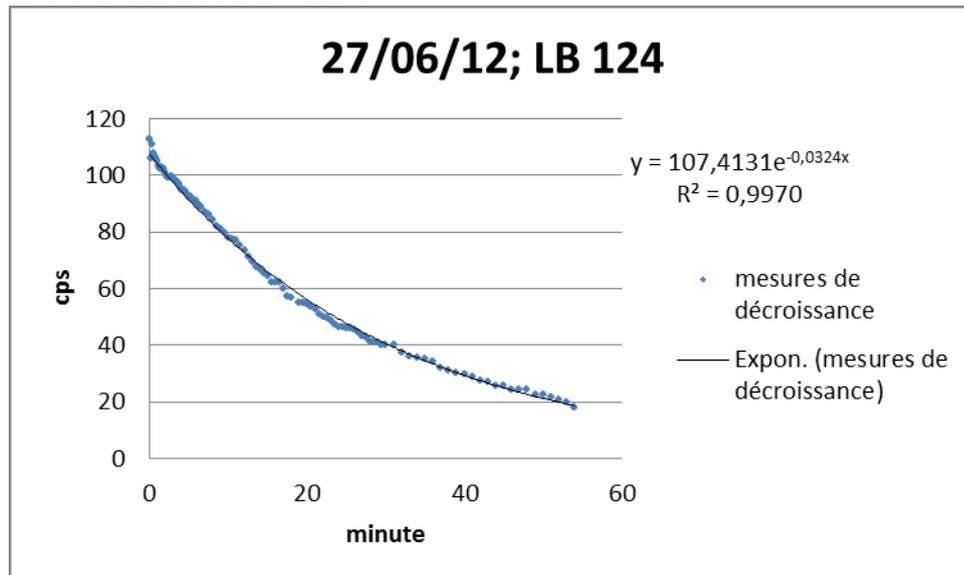
Le circuit de refroidissement des navettes est conçu de telle sorte qu'une partie du faisceau incident peut interagir avec l'eau circulante si l'énergie des particules, après interaction avec la cible, est suffisante. Il en résulte les phénomènes d'activation de l'eau conduisant à la formation de radionucléides tels que le carbone-11, l'oxygène-15, le béryllium-7 et le tritium. Ces radionucléides sont confinés dans le circuit de refroidissement dont une partie est stockée dans des cuves inox.



Celles-ci possèdent une bombonne de désionisation permettant la filtration de l'eau en régime continu.

2.2.3. Identification des radionucléides rejetés

Afin d'identifier les radionucléides rejetés lors des activités de production, une étude a été réalisée à partir d'un prélèvement d'air issu de la cheminée. Celui-ci a été confiné dans un ballon et mesuré à l'aide d'un contaminamètre LB124 afin d'en déterminer la période radioactive. Le graphe ci-dessous montre le résultat de la mesure.



La constante radioactive λ permet de calculer une période radioactive de 21,4 minutes ce qui, compte tenu des incertitudes expérimentales, permet d'identifier le radionucléide au carbone-11 de période radioactive 20,3 minutes. Un lissage à partir d'une équation bi-exponentielle ne permet pas de retrouver d'autres radionucléides dans la liste de ceux qui sont susceptibles d'être créés.

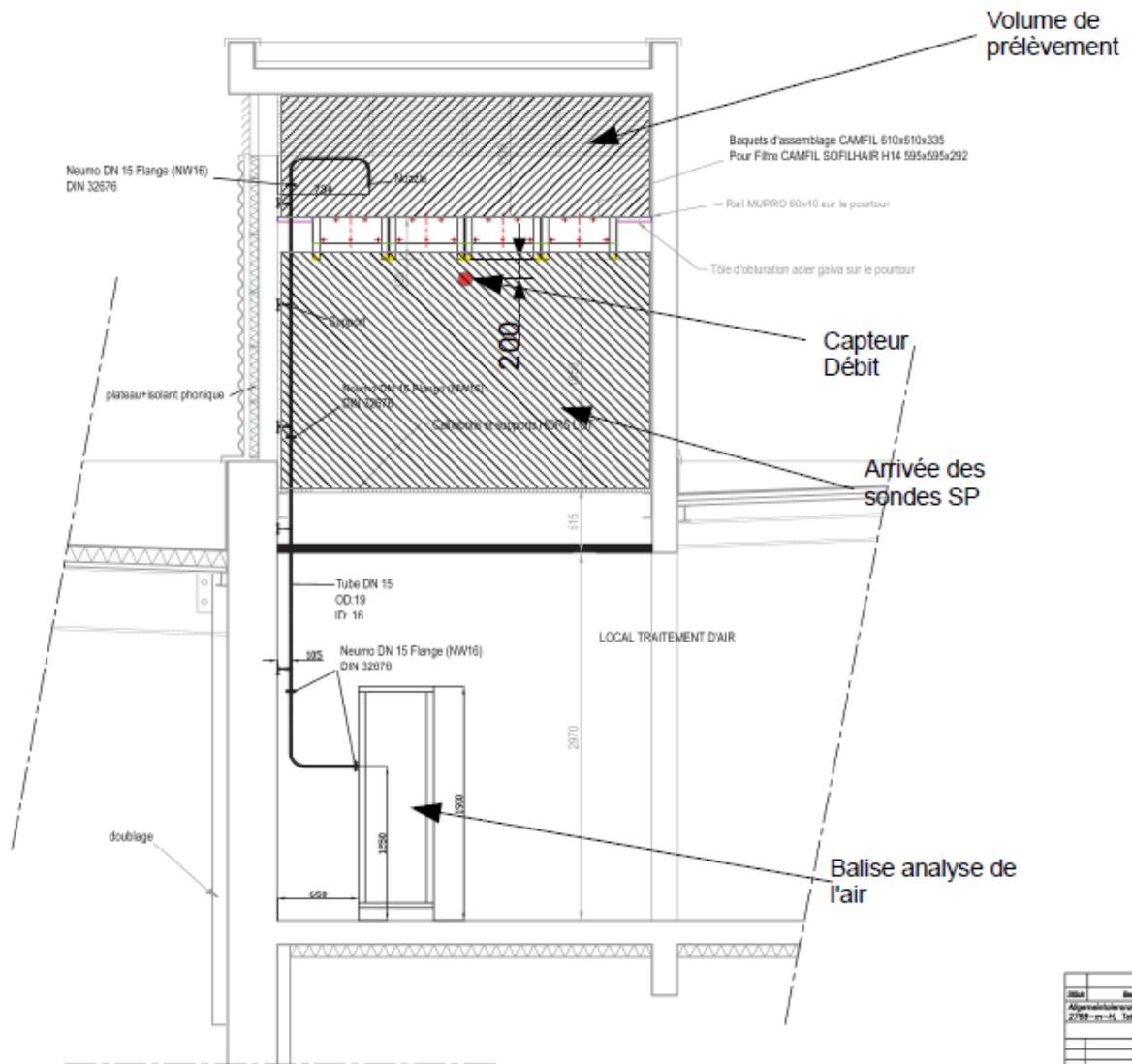
Le carbone-11 semble être le radionucléide principalement rejeté lors des activités de production. Cela n'est pas en accord avec les simulations du DAPNIA mais ces dernières ont été réalisées avec l'hypothèse d'une cible de tantale. En réalité, la cible frappée par les particules incidentes, en l'occurrence des protons, est différente (cible de chlorure de rubidium) ce qui engendre obligatoirement une modification du spectre neutronique secondaire. Dès lors, la prédominance des espèces activées peut en être modifiée. Cela est vraisemblablement le cas dans notre situation.

2.3. Extraction de l'air

Le fonctionnement de la centrale de traitement de l'air ainsi que les consignes de renouvellement d'air (taux de renouvellement de 10 vol/h actuellement) dans les casemates entraînent un volume d'air total rejeté maximal de 2100 m³/heure.

2.4. Détecteurs en sortie de cheminée

Le schéma ci-après représente le principe de fonctionnement de la balise LB 9000 servant à la surveillance des effluents gazeux après les systèmes de filtration. Un repiquage de l'air est réalisé en sortie de la cheminée, en aval du dernier étage de filtres HEPA, au niveau précisément de l'émissaire de sortie, comme indiqué dans sur le schéma suivant.



Les paramètres de flux et volume d'air sont enregistrés par le système d'analyse afin de rapporter les activités mesurées à la quantité d'air rejetée.

L'air ainsi prélevé est analysé par une balise spécifique.

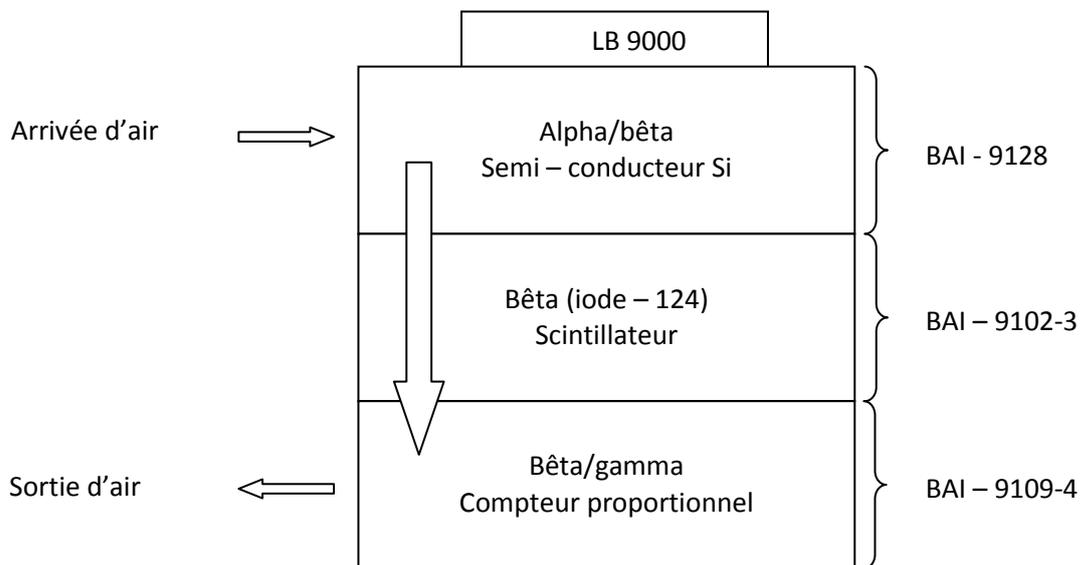


Schéma de principe de la balise LB9000

La balise est composée de trois compartiments blindés : dans chacun d'eux est placé un détecteur dédié à un type de mesure particulier.

Un échantillon d'air prélevé représente un pourcentage du volume de l'air rejeté.

Cet air passe tout d'abord au travers d'un filtre en fibre de verre (BAI 9128) afin de piéger les aérosols et les poussières, puis d'un filtre de charbon actif (BAI 9102-3) et enfin l'air passe dans un réservoir au pied de la console (BAI 9109-4) dédié à la mesure des gaz (compteur proportionnel), avant d'être rejeté dans le local CTA.

Le système de filtration de la BAI 9128 permet de piéger les aérosols et poussières ayant une taille comprise entre 0,01 et 10 μm . A ce filtre est associé un semi-conducteur en Silicium permettant de réaliser la détection des particules alpha et bêta.



Figure n°6 : BAI 9128 BERTHOLD, mesure alpha et bêta.

La mesure de l'activité est donnée en Bq/filtre. Les caractéristiques du détecteur sont présentées dans le tableau ci-dessous.

Tableau n°3 : caractéristique de la BAI 9128

Particule	alpha	bêta
Limite de détection (Bq/m ³)	0,004	0,04
Efficacité	241Am 20%	36Cl 25% ; 60Co 10%
Energie	[3 MeV ; 9 MeV]	[100 keV ; 3 MeV]
Bruit de fond (cps)	<0,002	<0,2

Trois autres BAI identiques à celle-ci sont placées dans les salles contenant les enceintes blindées de traitement de cibles, avec l'ajout d'une sonde gamma.

La BAI 9102-3 est une enceinte dans laquelle se trouve un filtre de charbon actif permettant de piéger les espèces chimiques de la classe des halogènes, en particulier l'iode.

L'air provenant de la BAI 9128 passe au travers du filtre de charbon pour arriver dans un volume mort. L'air de ce volume mort est ensuite envoyé vers la BAI 9109-04.

Devant ce filtre est placé un système de détection permettant de réaliser la mesure des bêtas émis par le filtre et par le volume mort, il s'agit d'un scintillateur de plastique fluorure (PIF).

En l'absence de radionucléides halogénés, le détecteur réalise effectivement une mesure qui est en réalité celle de l'air du volume mort.

Le scintillateur est étalonné avec du Sr-90 et sa gamme d'énergie est comprise entre 50 keV et 2,5 MeV. Les efficacités de détection suivant le radioélément sont présentées dans le tableau suivant.

Tableau n°4 : efficacité du scintillateur PIF.

Radioélément	Pm-147	Cs-137	Tl-204	Sr/Y-90	Co-60	Cl-36	I-124
Efficacité (%)	12	20	34	40	24	25	10

La BAI 9109-04 est un réservoir séparé en deux par une plaque de métal créant ainsi deux volumes distincts : le premier est renouvelé par la pompe, le second est statique. Dans chaque volume est placée une sonde de type LB 6350 permettant la mesure de l'activité du gaz provenant de la cheminée (mesure) ainsi que l'activité du gaz du réservoir clos (garde). En retranchant la « garde »



à la « mesure » on obtient ainsi l'activité du gaz prélevé dans la cheminée et non filtré par les deux barrières précédentes.

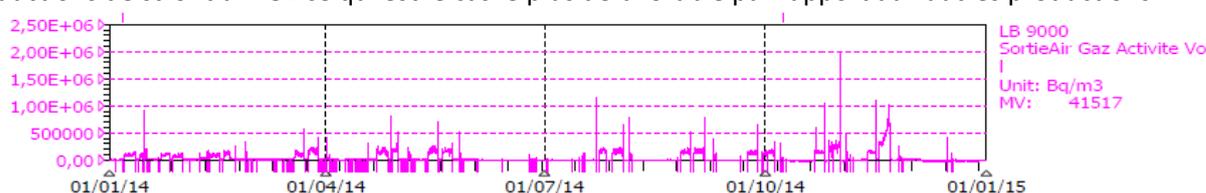
Les détecteurs sont des compteurs proportionnels bêta gamma à l'argon, leurs efficacités sont présentées dans le tableau n°5.

Tableau n°5 : efficacité du compteur proportionnel LB 6350.

Radioélément	C-14	Co-60	Sr/Y-90	I-125	I-131	Am-241
Efficacité (%)	6	14	35	4	27	4

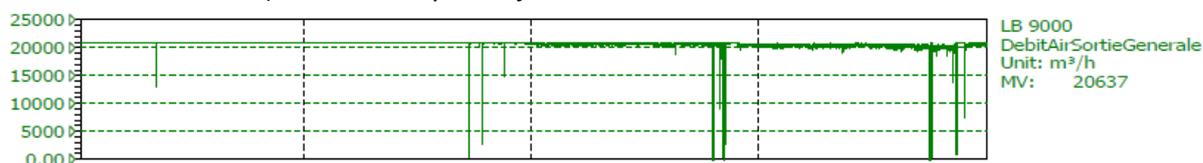
2.5. Évaluation des quantités rejetées sur l'année 2014

Le relevé des mesures sur l'année 2014 reflète également les rejets liés aux activités des années précédentes en les majorants du fait de l'augmentation des activités de production en 2014. En moyenne et en majorant, le compteur proportionnel enregistre un rejet de 250000 Bq/m³ lors des productions de strontium-82 ce qui est le cas le plus défavorable par rapport aux autres productions.



Les pics présents sur le graphique proviennent des opérations de purge des circuits de refroidissement des cibles, opérations obligatoires avant tout mouvement des navettes dans le réseau pneumatique, en particulier lors des fins de tir, lorsque la navette est envoyée dans l'enceinte blindée de réception pour traitement. La purge est très courte en temps.

Le débit d'air de la centrale de traitement d'air est constant si l'on excepte les quelques interruptions intempestifs (hors tir car le fonctionnement du cyclotron est asservi au bon fonctionnement de la CTA). Le débit moyen majoré est de 21000 m³/h.



En faisant l'hypothèse de 12 productions par année, chacune des productions durant 15 jours ouvrés (ce qui permet d'englober les productions autres que le strontium-82), nous obtenons l'estimation des rejets sur une année. Cela représente une activité moyenne de production de 50 % sur le temps disponible du cyclotron, reflétant ainsi l'orientation stratégique du GIP ARRONAX sur l'équilibre des activités recherche/production.

Activité volumique maximale rejetée (Bq/m ³)	débit d'air (m ³ /h)	nombre de jour de production (h)	nombre de production par an	activité totale rejetée par an (Bq)	activité totale annuelle simulée par le DAPNIA	rapport CEA/GIP
250000	21000	15	12	2,27E+13	4,07E+13	1,79

2.6. Comparaison avec les simulations de 2006 du DAPNIA

2.6.1. Situation normale de fonctionnement

L'activité annuelle rejetée en condition normale et réelle d'exploitation du cyclotron ARRONAX se trouve inférieure d'un facteur 1,8 fois à celle obtenue par la simulation du laboratoire DAPNIA.

Cependant, des paramètres diffèrent entre la simulation réalisée par le DAPNIA et la réalité des activités du GIP ARRONAX.



En particulier, le radionucléide identifié par le DAPNIA comme étant le principal responsable de l'exposition pour le public est l'azote-13 alors que dans la configuration actuelle des activités du GIP ARRONAX, c'est le carbone-11 qui semble être présent dans les gaz rejetés (cf. paragraphe 2.2.3). Le carbone-11 se retrouve sous la forme de dioxyde de carbone (CO₂).

Les débits de dose efficace par immersion sont identiques et égaux à $2,1 \cdot 10^{-6} \mu\text{Sv} \cdot \text{h}^{-1}$ par $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$.

Sous sa forme CO₂, le C-11 peut potentiellement être inhalé et la dose efficace engagée par unité d'incorporation est de $6,2 \cdot 10^{-12} \text{Sv} \cdot \text{Bq}^{-1}$ que l'on peut comparer à celle la plus majorant du F-18 qui est de $9,3 \cdot 10^{-11} \text{Sv} \cdot \text{Bq}^{-1}$ (arrêté de décembre 2003).

Cela permet de conclure à la maîtrise des rejets gazeux radioactifs en situation normale de fonctionnement et à l'absence d'impact sur l'environnement du GIP ARRONAX.

2.6.2. Situation accidentelle

Pour l'évaluation de l'impact en situation accidentelle, les scénarii retenus ainsi que le choix des radionucléides n'ont pas lieu d'être modifiés en situation d'exploitation actuelle du cyclotron ARRONAX par rapport aux estimations du DAPNIA.

D'une part, le choix du fluor-18 avait été fait en fonction de ses propriétés chimiques particulièrement défavorables en cas de relargage accidentelle et l'activité retenue est deux fois supérieure à ce qu'il est autorisé de produire actuellement ; d'autre part, l'astate-211 reste à l'heure actuelle, le seul radionucléide émetteur alpha en production « industrielle » et l'activité retenue est celle actuellement autorisée pour sa production.

3. Plan d'amélioration

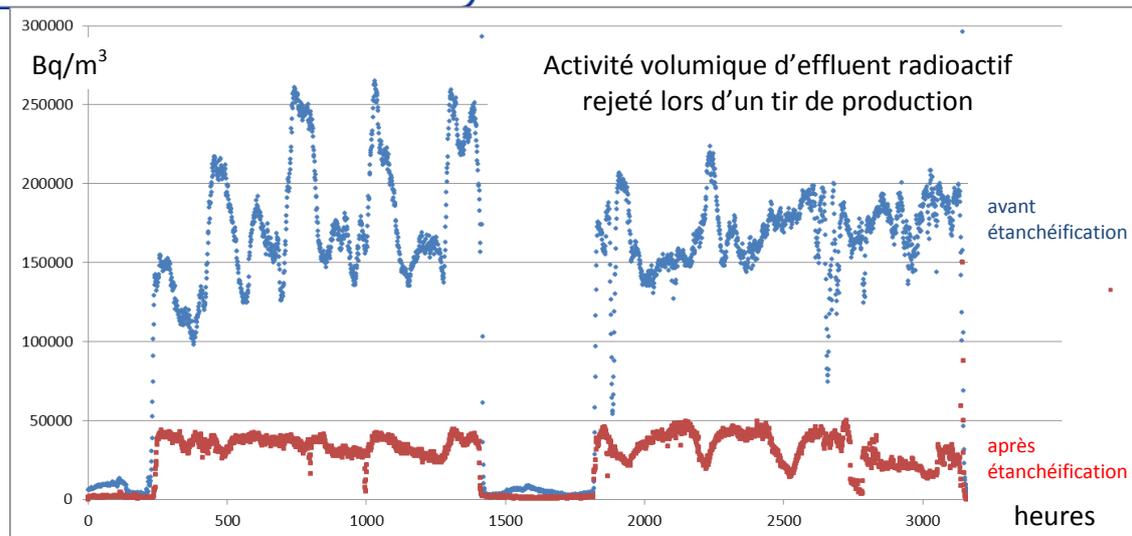
Les mesures ont montré que le dimensionnement initialement prévu dans le programme du GIP ARRONAX, est en accord avec un impact sur l'environnement (public) très faible bien que les paramètres ont été modifiés entre la simulation réalisée par le DAPNIA initialement et la réalité des activités du GIP ARRONAX actuelles.

La compréhension de l'origine de la production des effluents gazeux lors des activités de production permet de dégager des axes d'amélioration afin de réduire tant que faire se peut la quantité de radionucléides rejetée (démarche ALARA).

Ces axes se traduisent en plan d'amélioration que le GIP ARRONAX s'engage à mettre en œuvre.

1. le premier de ces axes a d'ailleurs déjà été concrétisé en décembre 2014 et a permis une réduction sensible (facteur 2) des rejets durant les productions de strontium-82. Il s'agit de l'étanchéification des cuves contenant l'eau des circuits de refroidissement des cibles de production. En effet, une partie importante des radionucléides rejetés sont générés dans les circuits de refroidissement dont le C-11 et un dégazage s'opère à la surface des cuves lorsque l'eau circule. L'étanchéité des cuves permet de confiner ses radionucléides. Un tuyau de 30 mètres de long permet l'évacuation des surpressions vers la sortie des effluents gazeux de la casemate du cyclotron. La longueur du tuyau permet de surcroît d'éliminer les radionucléides de période radioactive très courte (exemple l'azote-16 de période 7,13 secondes).

Le graphe ci-dessous superpose les sorties d'effluents gazeux enregistrées lors des productions de mai 2014 et de février 2015. Entre ces deux dates, les cuves ont été étanchéifiées. On observe le gain de l'ordre d'un facteur 2 à 3 sur la quantité d'activité rejetée.



- le deuxième axe d'amélioration concerne le taux de renouvellement d'air des casemates. En effet la quantité d'activité rejetée est directement proportionnelle à la quantité d'air rejeté et donc au taux de renouvellement de celui-ci. Actuellement, ce taux est de 10 volumes par heure. Cela avait été justifié au démarrage de l'activité par la nécessité de faire diminuer rapidement l'ambiance radiologique des casemates en fin de tir afin de permettre une intervention dans un temps raisonnable. Hors, avec l'expérience, il s'avère que l'activation des stations d'irradiation contenant les supports de cible est le facteur prédominant de l'ambiance radiologique des casemates et que cela impose un temps important entre la fin d'un tir et la possibilité d'une intervention (12 heures environ). Dès lors, l'intérêt d'un taux de renouvellement d'air conséquent dans la casemate s'en trouve limité.

L'objectif est de diminuer le taux de renouvellement d'air des casemates à 5 volumes par heure maximum voire moins tant que le système de CTA le permet et tant que la cascade de dépression entre l'intérieur des casemates et l'extérieur (le couloir en l'occurrence) est conservée.

- Le troisième axe d'amélioration concerne l'optimisation de la quantification des rejets d'effluents gazeux. En effet, les coefficients utilisés dans les différents instruments de mesure sont ceux mis en place par le constructeur Berthold sur la base de leur retour d'expérience des sites de production de fluor-18. Or, sur la base de notre retour d'expérience interne au GIP ARRONAX, nous pouvons ajuster des coefficients afin de refléter au plus juste l'activité rejetée. Ce changement des coefficients n'est pas trivial et nous attendons un complément d'étude interne afin de le mettre en œuvre (en partenariat avec le constructeur Berthold). Il est à noter que les coefficients actuellement utilisés sont majorants quant à la quantification de l'activité rejetée.

L'ensemble de ces axes d'amélioration doivent permettre une meilleure quantification du rejet des effluents gazeux radioactifs, plus proche de la réalité des activités du GIP ARRONAX, ainsi qu'une diminution, dans le même temps, quantitative de ces rejets.

Le calendrier que se fixe le GIP ARRONAX pour la réalisation de ces actions d'amélioration porte sur la fin de l'année 2015.

4. Situation prévisionnelle tenant compte des activités futures du GIP ARRONAX

L'analyse des rejets des effluents gazeux radioactifs doit être complétée par une étude prospective des besoins sur les 5 prochaines années (période de couverture d'une autorisation d'exercer une activité nucléaire délivrée par l'ASN)



L'évolution des activités de production du GIP ARRONAX concerne principalement l'augmentation de la production de strontium-82 selon un procédé nouveau qui est l'irradiation d'une cible de rubidium sous sa forme métallique liquide, améliorant le rendement de production.

Cela est nécessaire afin de viabiliser le fonctionnement du GIP ARRONAX tout en conservant la parité entre les activités de productions commerciales et les activités de recherche. Ces dernières sont en augmentation d'une part du fait des projets de recherche fondamentaux en physique nucléaire, radiochimie et radiobiologie, nécessitant du temps de faisceau disponible, d'autre part, du fait de l'augmentation de la recherche clinique en médecine nucléaire, soit sur petit animal soit sur l'Homme via la mise en service de l'annexe de la pharmacie à usage interne du CHU de Nantes au sein de la zone réglementée du GIP ARRONAX.

Par ailleurs, la collaboration entre la société AAA et le GIP ARRONAX portant sur la production d'holmium-166 se consolide. Le projet de production de ce radionucléide sous forme de macromolécules doit se développer entraînant une augmentation de l'activité produite.

Néanmoins, de toutes ses activités futures, la production de strontium-82 à partir du rubidium métal reste la plus pénalisante en termes de rejet des effluents gazeux radioactifs du fait du temps de tir relativement le plus long et de l'intensité des faisceaux de particules mis en œuvre qui sera augmenté passant de $2 \times 100 \mu\text{A}$ à $2 \times 200 \mu\text{A}$.

L'effet conjugué de l'augmentation du rendement de production du strontium-82 par la voie Rb-métal et de l'intensité des faisceaux de particules incidents doit permettre de réduire parallèlement le temps consacré à la production, au profit des activités de recherche.

Le rapport net de l'impact de ces modifications sur la quantité de rejet des effluents gazeux radioactifs est estimé à +1,5.

Sans considérer les axes d'amélioration précédemment évoqués, cela porte à une estimation de $3,41\text{E}+13$ Bq d'effluents gazeux radioactifs rejetés par année d'activité du GIP ARRONAX pour la période 2015-2020.

Par rapport à l'étude du DAPNIA qui estimait à $4,07\text{E}+13$ Bq la quantité annuelle de rejet d'effluents gazeux radioactifs, l'estimation prospective reste conforme à l'étude d'impact initiale.

5. Seuil annuel de rejet des effluents gazeux

En conclusion des études rétrospectives et prospectives précédentes, nous préconisons un seuil annuel de rejet des effluents gazeux de **$4,07\text{E}+13$ Bq/an**.