

Véronique GUEHL  
M1SPC

# RAPPORT DE STAGE

## Mise au point d'un dispositif autonome de prélèvement d'eau tritée dans l'air



Stage du 15 mai au 23 juin 2006 réalisé au sein de la SEIVA  
Sous la responsabilité de Eric FINOT, Emmanuelle COMTE, Christelle BERGEON et Christophe  
MAVON

## **REMERCIEMENTS:**

Je tiens tout d'abord à remercier Emmanuelle COMTE et Eric FINOT pour m'avoir encadrée dans ce stage et accueillie chaleureusement au sein de la SEIVA.

Je tiens également à remercier le Professeur Michel FROMM et toute l'équipe de l'UT MARIO, plus particulièrement Christelle BERGEON et Christophe MAVON pour m'avoir conseillée et aidée à aboutir dans ce projet.

Finalement je remercie toute l'équipe du SPR du CEA Valduc pour leur disponibilité, ainsi que le Conseil Régional de Bourgogne, financeur de mon stage.

# SOMMAIRE

<b><u>INTRODUCTION</u></b>	page 3
<b>I) <u>GENERALITES</u></b>	
1) <u>Présentation des différentes structures</u>	
a) La SEIVA	page 4
b) Le LMN-AC	page 4
c) Le CEA Valduc	page 4
2) <u>Le tritium</u>	
a) Généralités	page 5
b) Transferts dans l'environnement	page 6
c) Principales voies d'exposition pour l'homme	page 7
<b>II) <u>MESURE DE LA TENEUR EN TRITIUM DANS EAUX DE CONSOMMATION</u></b>	
1) <u>Prélèvements</u>	page 8
2) <u>Analyses</u>	
a) Méthode de comptage par scintillation liquide	page 8
b) Résultats et interprétation	page 9
<b>III) <u>MESURE DE LA TENEUR EN TRITIUM DANS L'EAU ATMOSPHERIQUE</u></b>	
1) <u>Prototype et résultats antérieurs</u>	
a) Description	page 10
b) Etude expérimentale	page 11
2) <u>Analyses complémentaires</u>	page 11
3) <u>Protocole expérimental</u>	page 11
<b><u>CONCLUSION</u></b>	page 12
<b>GLOSSAIRE</b>	page 13
<b>REFERENCES</b>	page 14
<b>ANNEXES</b>	page 15

# INTRODUCTION

Mon stage s'est déroulé au sein de la SEIVA en collaboration avec le LMN-AC de Besançon et avec la contribution du SPR du CEA Valduc.

En 2005, un système de prélèvement de la vapeur d'eau dans l'air a été mis au point par Ivan LITVINENKO-MOREL alors stagiaire de la SEIVA.

Alors que le CEA de Valduc utilise comme méthode de prélèvement des barboteurs, la SEIVA souhaite pouvoir réaliser ses propres mesures à l'aide d'un système autonome. Contrairement aux barboteurs qui fonctionnent sur alimentation et sur une durée de prélèvement d'une semaine, le prototype élaboré peut lui, fonctionner sur batterie et sur des temps beaucoup plus courts (par exemple 8 heures).

Cependant ce prototype a été validé en laboratoire (avec une marge d'erreur inférieure à 10%) mais seulement deux mesures ont pu être effectuées en conditions réelles.

L'objectif de mon stage est donc de valider ce prototype en conditions réelles et d'établir le protocole expérimental correspondant.

Après avoir brièvement présenté la SEIVA, le LMN-AC et le CEA; des généralités sur le tritium seront évoquées. Par la suite, la méthode de comptage du tritium sera abordée, lors de l'analyse des eaux de consommation. Le prototype et les résultats expérimentaux obtenus seront présentés pour donner lieu au protocole final établi. Pour conclure, différentes perspectives seront envisagées.

## **I) GENERALITES**

### **1) Présentation des différentes structures**

#### **a) La SEIVA [1]**

Créée en 1996, la SEIVA (**S**tructure d'**E**change et d'**I**nformation sur **VALDUC**) évalue et informe sur l'impact du fonctionnement du centre CEA de Valduc sur l'environnement, la recherche, l'économie locale, dans la mesure où les sujets abordés ne portent pas sur les éléments confidentiels couverts par son classement d'installation nucléaire de base secrète par le Premier Ministre. Pour ce faire, la SEIVA réalise, chaque année,

des campagnes d'analyses sur les eaux (eaux de consommation aux alentours de Valduc, rivières, ...), sur les aliments (miel, salade, pommes de terre, ...), les végétaux (lichens, ...) et les animaux (poissons, gibier, ...).

Cette structure indépendante est financée principalement par l' Autorité de Sûreté Nucléaire ainsi que le Conseil Général de Côte d'Or. Constituée de 45 membres, la SEIVA réunit des parlementaires, conseillers généraux et maires concernés, des personnalités qualifiées des milieux scientifiques, médical et associatif, des représentants du monde agricole et les services de l'Etat concerné.

b) Le LMN-AC (Laboratoire de Microanalyses Nucléaires-Alain Chambaudet) de Besançon [2]

Créé en 1983, le Laboratoire de Microanalyses Nucléaires (LMN) a obtenu le statut de Laboratoire de Recherche Correspondant du CEA en septembre 2000. Le 15 décembre 2003, l'équipe accède au statut d'Unité Mixte de Recherche (UMR) du CEA et devient LMN-AC (en hommage à son créateur; le Professeur Alain Chambaudet) UMR CEA E4. Cette unité comporte trois principaux axes de recherche :

- interaction rayonnement matière,
- mécanismes moléculaires d'intérêt biologique,
- capteurs chimiques.

Ce laboratoire comporte également une unité technique, l'UT MARIO (**Unité Technique Métrologie et Analyse des Rayonnements Ionisants**) créée en 2005, avec à sa direction le Professeur Michel Fromm. L' UT-MARIO effectue notamment, pour la SEIVA, les analyses concernant les mesures de tritium dans l'eau.

c) Le CEA (Commissariat à l'Energie Atomique) Valduc [3]

Le centre de Valduc est l'un des dix établissements du Commissariat à l'Energie Atomique. Créé en 1957, le CEA Valduc est situé à 45 km au nord-ouest de Dijon. Le centre de Valduc dépend de la Direction des applications militaires du CEA. Il a trois missions principales :

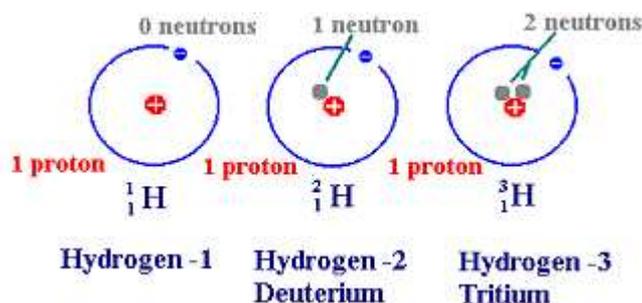
- les recherches amont et développements technologiques sur les matériaux nucléaires et sur les objets d'expérimentation,
- la réalisation et le maintien en condition opérationnelle des composants nucléaires des armes de la force de dissuasion, ainsi que le démantèlement d'armes anciennes retirées du service,
- la gestion des matières nucléaires liées à ses activités.

Le SPR (**S**ervice de **P**rotection contre les **R**ayonnements) effectue, notamment, sur le centre et dans un périmètre proche les analyses environnementales de surveillance et de contrôle.

2) Le Tritium

a) Généralités [4] [5] [6]

Le tritium, de symbole  $^3\text{H}$  ou T, est l'isotope (Fig. 1) radioactif de masse 3 de l'hydrogène. Il possède 1 proton et 2 neutrons.



### Fig. 1 Isotopes de l'hydrogène

Il a les propriétés physico-chimiques de l'hydrogène et pour l'essentiel réagit comme lui; l'effet isotopique joue souvent assez peu.

Le tritium se désintègre en Hélium 3 avec émission d'un rayonnement  $\beta^-$  (électron) d'énergie maximale de 18,6 keV. L'énergie moyenne du rayonnement bêta émis est 5,7 keV (Fig. 2). Il s'agit donc d'un rayonnement peu pénétrant puisqu'il est arrêté par 5 mm d'air ou par 5  $\mu$ m d'eau.



### Fig. 2 Equation de désintégration du tritium

La période radioactive du tritium est de 12,35 ans.

Sa désintégration est régie par la loi de décroissance radioactive suivante :

$$N = N_0 e^{-\left(\frac{\ln 2}{T} \times t\right)}$$

T : période radioactive du tritium ; N et  $N_0$  : nombre de radionucléides présents à l'instant t et  $t_0$ .

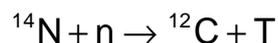
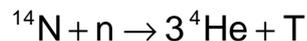
*Exemple* : au bout d'un an ( $t= 1$ ) et si on prend  $N_0 = 3000$  :  $N = 2836.13307$  , le nombre de radionucléides disparus est donc de :

$$3000 - 2836.13307 = 163.86693$$

$$\frac{163.86693}{3000} \times 100 \approx 5.5\%$$

Il en disparaît donc 5,5% par an ; au bout de 125 ans, il en reste moins d'un millième.

Bien que sa période radioactive soit assez courte, le tritium est présent en permanence dans l'environnement. Il est produit, de façon naturelle, en grande partie par l'action des rayonnements cosmiques sur l'azote, l'oxygène et l'argon de l'air. Par exemple :



*(les neutrons sont produits par l'impact des rayons cosmiques sur l'atmosphère)*

D'autres sources de tritium peuvent être produites artificiellement :

- essais d'armes nucléaires (bombes à fission ou à fusion nucléaire)
- rejets des usines de retraitement des combustibles irradiés et des centrales nucléaires. Dans ces dernières, le tritium est produit dans le combustible lors de la fission de l'uranium et par réaction d'activation avec divers éléments comme le lithium, le bore et le deutérium.

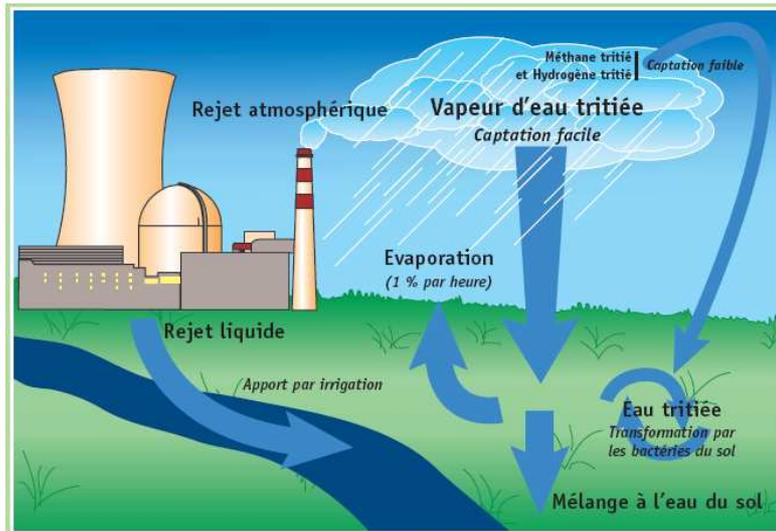
#### b) Transferts dans l'environnement [7] [8]

Le tritium peut se présenter sous différentes formes dans l'environnement :

- inclus dans des métaux, des produits organiques ( $\text{T}_{\text{orga}}$ ) ou minéraux. En ce qui concerne les produits organiques, le tritium peut être en position échangeable, c'est le tritium présent dans les molécules organiques où il s'est substitué à l'hydrogène dans les radicaux typiques (-OH, -SH, = NH, ...) ; ou en position non échangeable, c'est le tritium directement lié au carbone: **T-C**.

- liquide, essentiellement sous forme d'eau tritiée (**HTO** ou **T<sub>2</sub>O**)
- gazeux sous forme de tritium gazeux (**HT**) ou encore de vapeur d'eau tritiée (**HTO**).

Dans le milieu naturel et les espèces vivantes, le tritium se présente le plus souvent sous forme d'eau tritiée et dans une moindre mesure, sous forme organique.



**Fig. 3 Transferts du tritium dans l'environnement**

Les formes prépondérantes du tritium dans l'environnement sont par ordre d'importance décroissante, l'eau tritiée (HTO), l'hydrogène tritié (HT) et le méthane tritié (CH<sub>3</sub>T). De part leur faible solubilité, l'hydrogène et le méthane tritiés sont peu entraînés par la pluie (captation faible). La vapeur d'eau tritiée, quant à elle, est facilement captée par les gouttes de pluie (captation facile).

Au contact et dans les premiers centimètres du sol, l'hydrogène tritié se transforme rapidement en eau tritiée. Ce phénomène est attribué à la présence de micro-organismes. Une partie de cette eau tritiée est ré-émise dans l'atmosphère par évaporation, à la vitesse d'environ 1% par heure. Une autre partie s'enfonce dans le sol et se mélange à l'eau du sol. Le tritium peut aussi être apporté à la surface du sol par infiltration directe d'eau tritiée liquide (Fig. 3).

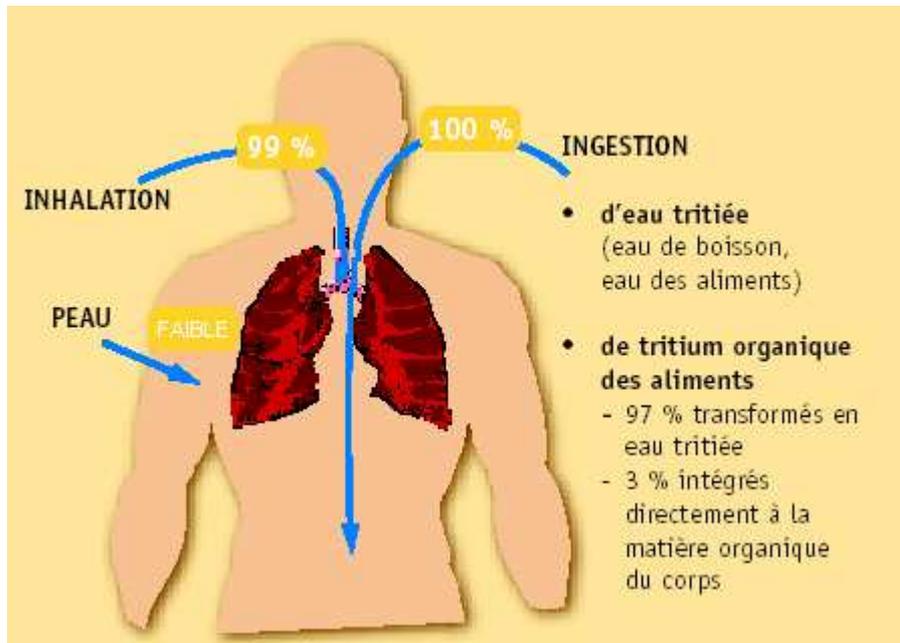
#### c) Principales voies d'exposition pour l'homme

Le rayonnement  $\beta^-$  émis ayant une faible énergie et un faible parcours, le tritium ne présentera un risque radiologique que s'il pénètre dans l'organisme. Trois voies d'exposition ont été identifiées (Fig. 4) :

- *Absorption par ingestion* : l'absorption du tritium (HT), de l'eau tritiée (HTO) et du tritium organique (T<sub>orga</sub>) est quasi-complète. En fonction de sa forme chimique, le tritium peut être absorbé directement (3%) ou après dégradation de la molécule porteuse. En 30 minutes, la distribution est homogène dans l'organisme.

- *Absorption par inhalation* : Le tritium, l'eau tritiée et dans une moindre mesure le tritium organique, peuvent être inhalés sous forme gazeuse. Moins de 0,01% de l'activité inhalée d'HT passe dans le sang où une partie pourra être transformée en eau tritiée. 99% de l'eau tritiée et du tritium organique inhalés sous forme gazeuse ou d'aérosols sont transférés dans le sang sans modification de la forme chimique.

- *Absorption par la peau* : Le tritium pénètre assez peu dans la peau. Il peut se combiner avec l'eau des tissus pour former de l'eau tritiée et du tritium organique rapidement transférables au sang.



**Fig. 4 Transfert du tritium à l'homme**

Elimination du tritium dans l'organisme :

- *Cas de l'eau tritiée (HTO)* : La cinétique est identique à celle de l'eau à l'exception des 3% transformés en tritium organique. L'élimination s'effectue principalement par l'urine et, dans une moindre mesure, par les fèces, la respiration et la sueur. La période biologique du tritium sous forme d'eau tritiée est d'environ 10 jours.
- *Cas des molécules organiques tritiées ( $T_{orga}$ )* : Bien que des travaux sur leur devenir soient encore nécessaires, il est établi qu'elles peuvent être métabolisées et servent à produire de l'énergie et de l'eau qui peut être recyclée dans la synthèse de différents éléments. La période biologique moyenne est de 40 jours; elle peut varier de quelques semaines à plusieurs mois.

## **II) MESURE DE LA TENEUR EN TRITIUM DANS LES EAUX DE CONSOMMATION**

Depuis 1998, la SEIVA effectue tous les ans un suivi du marquage radioactif des eaux de consommation en tritium sur 9 points significatifs : Arceau, Fouchanges, Spoy, Courtivron, Le Meix, Salives, Minot, Etalante et Poiseul-la-Grange [Annexe 1]. Chaque année une de ces eaux est analysée de façon plus détaillée (effectuée par l'IRSN) : tritium, césium et potassium.

Ces mesures ont été effectuées au cours de mon stage afin de me familiariser avec les méthodes d'analyses du tritium.

### **1) Prélèvements**

Les échantillons ont été prélevés, en double, chez l'habitant le 06 juin 2006 [Annexe 2].

Un échantillon pour chaque village est remis au SPR du CEA de Valduc, le deuxième est analysé dans un laboratoire indépendant (l'UT-MARIO de Besançon). Finalement, les résultats sont comparés et pourront alors être communiqués.

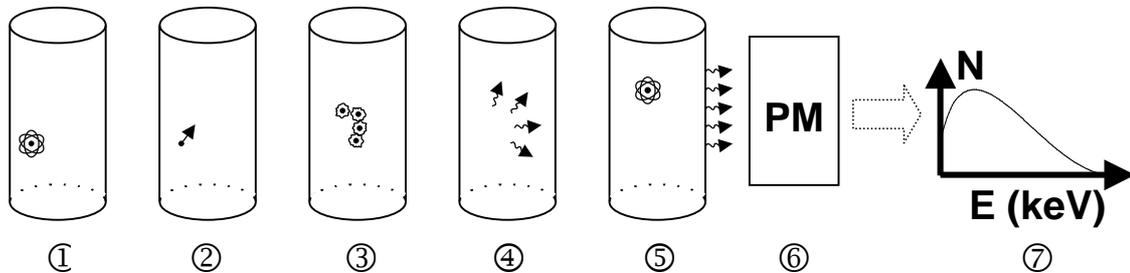
### **2) Analyses**

Les analyses ont donc été réalisées à l'UT MARIO (Université de Besançon), qui pour mesurer la teneur en tritium (émission  $\beta^-$ ) utilise la méthode de comptage par scintillation liquide (tout comme le CEA de Valduc).

a) Méthode de comptage par scintillation liquide [9]

a.1) Principe

Le principe (Fig. 5) de la scintillation liquide est la transformation partielle de l'énergie cinétique des particules bêta du tritium, dans un mélange échantillon-liquide scintillant, en photons lumineux dont le nombre est proportionnel à l'activité volumique du tritium.



**Fig. 5 Schéma de principe de la scintillation liquide**

Dans une fiole de comptage, l'échantillon d'eau est mélangé au liquide scintillant (contenant des molécules scintillantes).

Un des atomes de tritium de l'échantillon va se désintégrer ① en libérant un  $\beta^-$  ②.

Le  $\beta^-$  excite les molécules scintillantes ③.

Elles émettent alors un ou des photons ④ afin de retrouver leur stabilité. Le nombre de photons émis est proportionnel à l'énergie du  $\beta^-$ .

Ces photons sont alors détectés par deux photomultiplicateurs ⑤ ⑥.

On obtient alors le spectre  $\beta^-$  ⑦.

Il existe des phénomènes parasites (2 sortes) à cette mesure appelés phénomènes d'affaiblissement lumineux ou quenching :

- le quenching chimique qui interfère sur la production de photons (des molécules non scintillantes interagissent avec les  $\beta^-$  émis)
- le quenching dû à la couleur qui interfère sur la détection des photons.

a.2) Préparation des échantillons

Tout d'abord, une fiole (fioles de 20 mL en polyéthylène) de référence contenant 10 mL de liquide scintillant et 10 mL d'eau de référence (l'eau de référence est une eau à très faible teneur en tritium) est préparée. Puis la fiole échantillon est préparée (si possible en faire deux identiques), on mélange 10 mL d'échantillon et 10 mL de liquide scintillant. Les flacons sont secoués afin d'homogénéiser les solutions.

Pour éviter une éventuelle formation d'électricité statique, on tamponne les flacons avec un chiffon humide. Les fioles sont ensuite placées dans une cassette, elle-même insérée dans le compteur à scintillation liquide (Fig. 6), chacune d'entre elles est comptée pendant 200 minutes [Annexe 3].



**Fig. 6 Compteur à scintillation liquide**

b) Résultats

Une fois l'analyse effectuée dans le scintillateur (Tricarb), nous obtenons deux valeurs nous permettant de déterminer l'activité : [Annexe 4].

Echantillons	Activité volumique (Bq.L <sup>-1</sup> )	Incertitude (Bq.L <sup>-1</sup> )
Salives	37,1	3,3
Minot	27,1	2,5
Poiseul la Grange	5,3	0,8
Le Meix	42,9	3,7
Spoyn	10,3	1,3
Courtivron	16,0	1,7
Fouchanges	11,7	1,4
Arceau	12,5	1,4

D'après la recommandation de 1993 de l'OMS (Organisation Mondiale de la Santé), la limite tolérée pour l'eau est de 7800 Bq.L<sup>-1</sup>.

Le CEA de Valduc a choisi de suivre la valeur guide directive 98/83/CE qui est de 100 Bq.L<sup>-1</sup>. Au-delà des vérifications sont effectuées même si l'eau reste potable selon l'OMS.

Toutes les eaux prélevées ont une activité inférieure à 100 Bq.L<sup>-1</sup>. Elles sont donc toutes largement consommables.

On constate que ces valeurs depuis 10 ans diminuent [Annexe 5].

### **III) MESURE DE LA TENEUR EN TRITIUM DANS LEAU ATMOSPHERIQUE**

En 2005, Ivan LITVINENKO-MOREL, stagiaire à la SEIVA, a mis au point en laboratoire, en collaboration avec le LMN-AC de l'Université de Besançon, un système autonome permettant de prélever la vapeur d'eau dans l'air.

1) Prototype et résultats antérieurs [10]

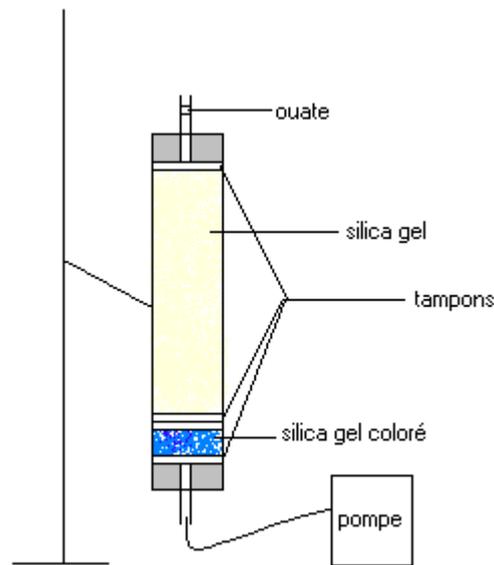
a) Description

Une des missions du précédent stage était de déterminer le type de desséchant à utiliser pour le type d'analyse souhaitée. Après différentes mesures, il s'est avéré que le gel de silice sans indicateur de saturation était le plus approprié (température de "fonctionnement", température de régénération, rendement,...).

Pour couvrir les conditions de température, de pression et d'hygrométrie possibles, une masse de 350g de gel de silice a été choisie.

La vapeur d'eau est pompée (fonctionnement sur batterie, débit de 4L.min<sup>-1</sup>) à travers le gel de silice qui absorbe l'eau (H<sub>2</sub>O ou HTO). Quelques grains de gel de silice bleu (qui deviennent roses en présence d'eau) sont déposés sur le gel de silice blanc dans le but d'en contrôler son niveau de saturation. Les différents tampons permettent d'une part de séparer les deux gels et d'autre part d'empêcher une fuite de gel de silice, ceci tout en

laissant passer l'air. Un petit morceau d'ouate est placé à l'entrée du tube de prélèvement pour empêcher l'intrusion de certains insectes ou de certaines impuretés. (Fig. 7)



**Fig. 7 Schéma du prototype**

Une fois le prélèvement effectué, le gel de silice est régénéré [Annexe 6], 10 mL d'eau sont nécessaires pour réaliser la mesure de tritium par scintillation liquide, sinon l'échantillon est dilué avec de l'eau de référence (on tient compte du facteur de dilution au moment du résultat final).

#### b) Etude expérimentale en conditions réelles

Après avoir obtenu des résultats satisfaisants en laboratoire (marge d'erreur inférieure à 10%), le système de prélèvement autonome a été installé en parallèle avec les barboteurs [Annexe 7] de Valduc situés à Salives et Echalot (les deux villages les plus exposés car situés dans les vents dominants [Annexe 8]).

Les résultats alors obtenus étaient encourageants mais pas suffisants pour valider ce prototype d'où la nécessité cette année d'effectuer des mesures supplémentaires.

## 2) Analyses complémentaires

Nous disposons cette année de deux prototypes que nous avons installés, pour commencer, en parallèle avec les barboteurs du SPR du CEA Valduc situés à Salives (village le plus exposé) [Annexe 9].

Ces mesures sont effectuées dans le but de pouvoir comparer nos résultats avec ceux obtenus par le SPR afin de vérifier si notre système peut être validé.

Après deux semaines d'analyses (4 mesures différentes) nous obtenons des résultats tout à fait concordants avec ceux du SPR: écart compris entre 5% et 14% pour 3 des quatre mesures. En ce qui concerne la quatrième, l'écart est supérieure, mais la valeur reste du même ordre de grandeur [Annexes 10 et 11]. Compte tenu des incertitudes, ces valeurs sont tout à fait compatibles. Pour notre système, l'incertitude ne tient compte que de la méthode de comptage. Il est difficile de chiffrer l'incertitude relative au reste de la manipulation, mais il faut savoir qu'elle n'est pas très importante. Si on augmente légèrement nos valeurs d'incertitude, les mesures sont d'autant plus concordantes.

	ACTIVITE (Bq.m <sup>-3</sup> )		
	SYSTEME MIS AU POINT		BARBOTEURS
	Tube 1	Tube 2	
<b>Du 29/05/06 au 05/06/06</b>	0,20±0,02	0,16±0,02	0,14± 0,04
<b>Du 06/06/06 au 11/06/06</b>	0,18±0,02	0,18±0,02	0,19±0,05

Après avoir validé ce système l'année précédente en laboratoire, nous pouvons maintenant le considérer validé en conditions réelles.  
Un protocole expérimental peut donc être rédigé.

### 3) Protocole expérimental

Afin de rendre possible l'utilisation de ce système par toute personne susceptible d'effectuer des prélèvements, un protocole expérimental est rédigé, de la mise en place du système jusqu'à la régénération du gel de silice. L'analyse en tritium de l'eau recueillie sera alors réalisée à l'UT-MARIO de l'Université de Besançon [Annexe 12].

# CONCLUSION

Ce stage m'a permis d'acquérir une meilleure connaissance du fonctionnement d'un laboratoire et de la vie associative.

Le système mis au point est maintenant validé et opérationnel. Il présente de nombreux avantages : peu coûteux, simple d'utilisation, facilement transportable et autonome.

Grâce à ce système différentes analyses sont envisageables. Certaines, sur un prélèvement d'une durée d'un week-end (activité du centre nulle), sont actuellement en cours afin de savoir si la teneur en tritium dans l'air a le temps de diminuer quand le centre ferme pendant deux jours. Par ailleurs, la SEIVA pense réaliser des études sur l'influence des conditions météorologiques à activité du centre égale (par exemple au mois d'août (été) et décembre (hiver) pendant les périodes de fermeture) pour réduire le nombre de paramètres pouvant interférer.

De plus, en cas d'incident, la mise en place de ce système peut de suite être effectuée, la durée de prélèvement étant relativement courte, les premiers résultats de l'impact sur l'environnement pourront donc être connus rapidement.

# GLOSSAIRE

- **Activité (A)** : L'activité A d'une quantité d'un radionucléide à un état énergétique déterminé et à un moment donné est le quotient de dN par dt, où dN est le nombre probable de transitions nucléaires spontanées à partir de cet état énergétique dans l'intervalle de temps dt.

$$A = dN/dt$$

- **Becquerel** : unité de mesure de la radioactivité, le becquerel vaut une désintégration par seconde en moyenne, quels que soient le nombre, la nature et l'énergie des particules émises. On le note Bq. Le becquerel est une unité très petite et l'on utilise le plus souvent ses multiples: le gigabecquerel (1 GBq =  $10^9$  Bq), terabecquerel (1 TBq =  $10^{12}$  Bq).

L'ancienne unité, le Curie (Ci), valait  $3,7 \times 10^{10}$  désintégrations par seconde, soit 37 GBq.

- **Désintégration radioactive** : perte par un atome de l'une ou plusieurs de ses particules constitutives, ou réarrangement interne de ses particules ; ils s'accompagnent toujours de l'émission d'un rayonnement.

La désintégration peut-être spontanée (radioactivité naturelle) ou induite (radioactivité artificielle).

- **Isotopes** : éléments dont les atomes possèdent le même nombre d'électrons et de protons, mais un nombre différent de neutrons. On recense actuellement environ 325 isotopes naturels et 1200 isotopes créés artificiellement.

- **Période radioactive (ou demi-vie)** : temps nécessaire pour que la quantité d'atomes d'un élément radioactif se soit désintégrée de moitié. La période varie avec les caractéristiques de chaque radioélément: 110 minutes pour l'argon 41; 8 jours pour l'iode 131 et 4,5 milliards d'années pour l'uranium 238. Aucune action physique

extérieure n'est capable de modifier la période d'un radioélément, sauf une transmutation (transformation d'un radioélément en un autre).

- **Période biologique ( $T_B$ )** : Temps au bout duquel la moitié de la masse d'une substance a été éliminée de l'organisme par des processus uniquement physiologiques. Exemple : la période biologique de l'iode est voisine de 100 jours.
- **Radionucléide** : Isotope radioactif. Ce terme est utilisé par abus de langage en lieu et place du terme radioélément, alors qu'il ne désigne que le noyau de l'atome.
- **Rayonnement bêta** : les particules composant le rayonnement bêta sont des électrons de charge négative ou positive. Un écran de quelques mètres d'air ou une simple feuille d'aluminium suffisent à les arrêter (symbole  $\beta$ ).

## REFERENCES :

### Sites internet :

- [1] [www.seiva.fr](http://www.seiva.fr)
- [2] [www.univ-fcomte.fr](http://www.univ-fcomte.fr)
- [3] [www.cea.fr](http://www.cea.fr)
- [4] [www.irsn.fr](http://www.irsn.fr)
- [5] [www.francenuc.org](http://www.francenuc.org)
- [6] [www.fusion-magnetique.cca.fr](http://www.fusion-magnetique.cca.fr)
- [7] [www.sfrp.asso.fr](http://www.sfrp.asso.fr)

### Bibliographie :

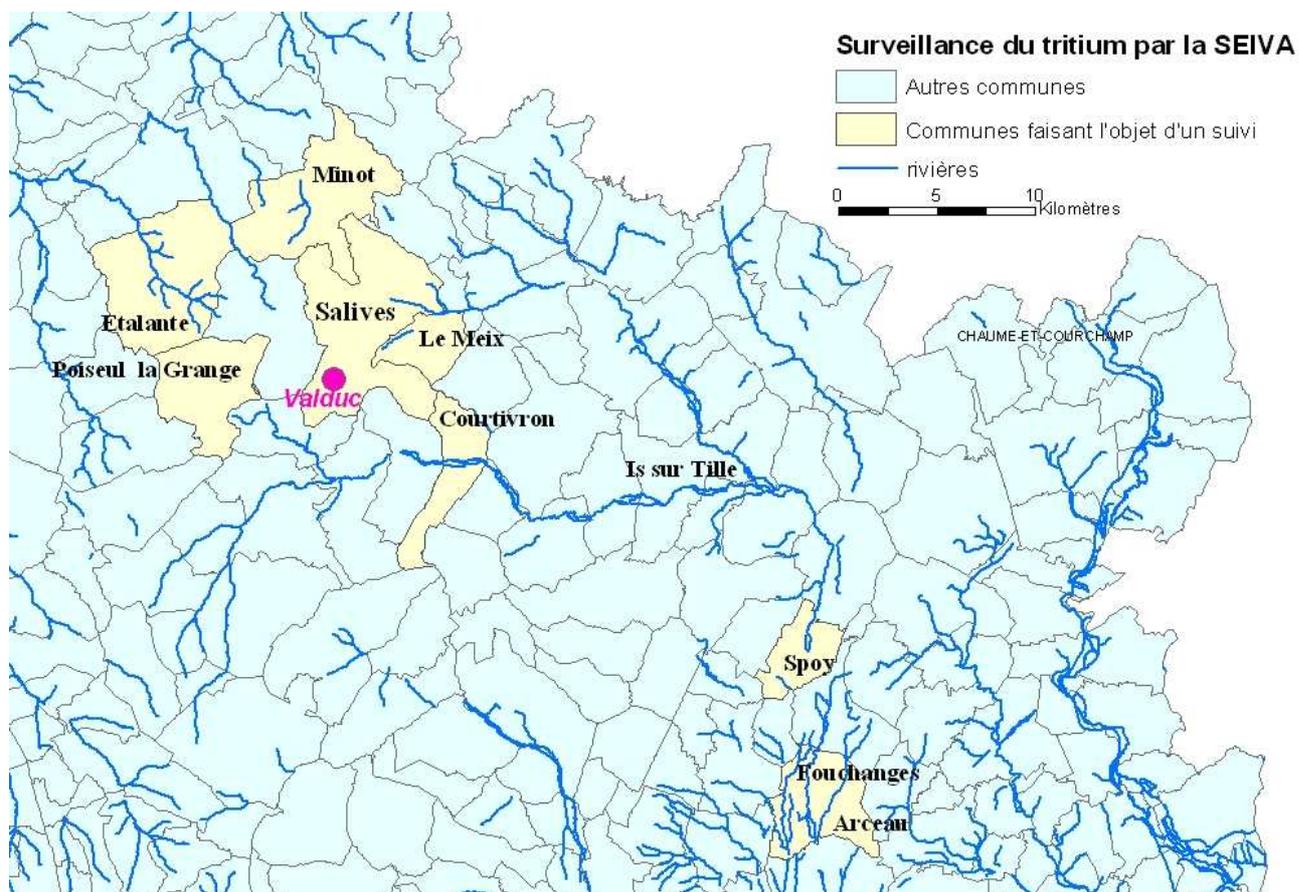
- [8] «Le tritium et l'environnement » Y. BELOT, M. ROY et H. METIVIER  
Les éditions de physique IPSN 1996
- [9] « Les mesures de radioactivité à l'aide des compteurs à scintillateur liquide »  
G. SIMMONET et M. ORIA, Eyrolles 1986
- [10] Rapport de stage Ivan LITVINENKO-MOREL
- [11] Manuel d'utilisation : Barboteur à Tritium

# ANNEXES

- ANNEXE 1 :** Carte des villages où les eaux de consommation ont été prélevées
- ANNEXE 2 :** Protocole : Prélèvement des eaux de consommation
- ANNEXE 3 :** Mode opératoire : Préparation des échantillons
- ANNEXE 4 :** Analyse d'une feuille de résultats donnés par le Tricarb
- ANNEXE 5 :** Evolution de la quantité de tritium dans l'eau de consommation (Bq.L<sup>-1</sup>)
- ANNEXE 6 :** Montage de la régénération du gel de silice
- ANNEXE 7 :** Fonctionnement des barboteurs
- ANNEXE 8 :** Rose des vents
- ANNEXE 9 :** Prototypes et barboteurs
- ANNEXE 10 :** Mesures expérimentales effectuées à Salives en parallèle avec les barboteurs
- ANNEXE 11 :** Analyse et résultats expérimentaux des prélèvements effectués à Salives en parallèle avec les barboteurs
- ANNEXE 12 :** Protocole expérimental

# ANNEXE 1

## Carte des villages de prélèvement des eaux de consommation



## ANNEXE 2

### Echantillonnage de l'eau Principales précautions à prendre

(Norme NF EN ISO 5667-3 : juin 2004)

- Les flacons vides sont stockés et transportés fermés hermétiquement par leur bouchon.
- Ne pas toucher l'intérieur des flacons avec les doigts ou un objet.
- Rincer le flacon de prélèvement avec l'échantillon.
- Remplir complètement le récipient et le boucher de manière qu'il n'y ait **pas d'air** au-dessus de l'échantillon.
- Ne pas prélever des particules de grandes tailles (feuilles ...) en même temps que l'échantillon.
- Ne pas placer de matière étrangère dans les flacons d'échantillonnage (thermomètre ...).
- Ne pas fumer à proximité des échantillons.
- Ne pas placer les échantillons ouverts près d'un ventilateur ou d'un système d'air conditionné, ou à proximité d'aliments ou de boissons.
- Conserver les échantillons **entre 1 et 5 °C**, soit au réfrigérateur, soit dans une glacière pour le transport (la température de réfrigération donnée est celle de l'environnement de l'échantillon et pas celle de l'échantillon lui-même). La réfrigération n'est efficace que si elle est appliquée immédiatement après le prélèvement des échantillons.
- Conserver les échantillons **à l'abri de la lumière** (surtout pour les analyses alpha/bêta).
- Apporter les échantillons au laboratoire le plus rapidement possible.

## ANNEXE 3

### MODE OPERATOIRE PREPARATION DES ECHANTILLONS

#### 1 – MATERIEL SPECIFIQUE :

- Flacons en polyéthylène de 20 mL,
- Dispensette de 10 mL.

#### 2 – REACTIFS :

- Liquide scintillant,
- Eau de référence.

#### 3 – MODE OPERATOIRE :

- L'identification des fioles se fait sur leur bouchon.
- Fiole de référence : préparer une fiole contenant 10 mL de liquide scintillant et 10 mL d'eau de référence.
- Fiole échantillon : préparer si possible 2 fioles identiques pour chaque échantillon d'eau à analyser. Dans chaque fiole, mélanger 10 mL de liquide scintillant avec 10 mL d'échantillon.
- Secouer les flacons afin d'homogénéiser les solutions.
- Placer les fioles dans une cassette. La position n°1 de la cassette est réservée à la fiole contenant l'eau de référence.
- Vérifier que le drapeau de la quille est en position réinitialisation et placer la cassette dans le Tricarb.
- Etablir un protocole de comptage (voir manuel d'utilisation de l'appareil).

#### 4 – ANALYSE ET RESULTATS :

- Les échantillons sont analysés automatiquement lorsque le drapeau de la quille est lu par le Tricarb.
- Après chaque analyse, un fichier résultat est créé sous Windows et les données suivantes sont imprimées :

S#	Time	CPMA	CPMB	CPMC	tSIE	Flag	Lum
----	------	------	------	------	------	------	-----

- L'activité en Bq.L<sup>-1</sup> de l'échantillon est déterminée à l'aide de ces données.

## ANNEXE 4

### Analyse d'une feuille de résultats donnés par le Tricarb

Calcul de l'activité volumique  $C_A$  en  $\text{Bq.L}^{-1}$  à partir des résultats du Tricarb :

- on calcule l'efficacité de comptage  $E$  (%) grâce à l'équation de la courbe de quenching ( $E(\%)$  en fonction du TSIE), le TSIE étant donné dans les résultats du Tricarb.

- on sait que le nombre de désintégrations par minute ( $DPM$ ) est tel que :

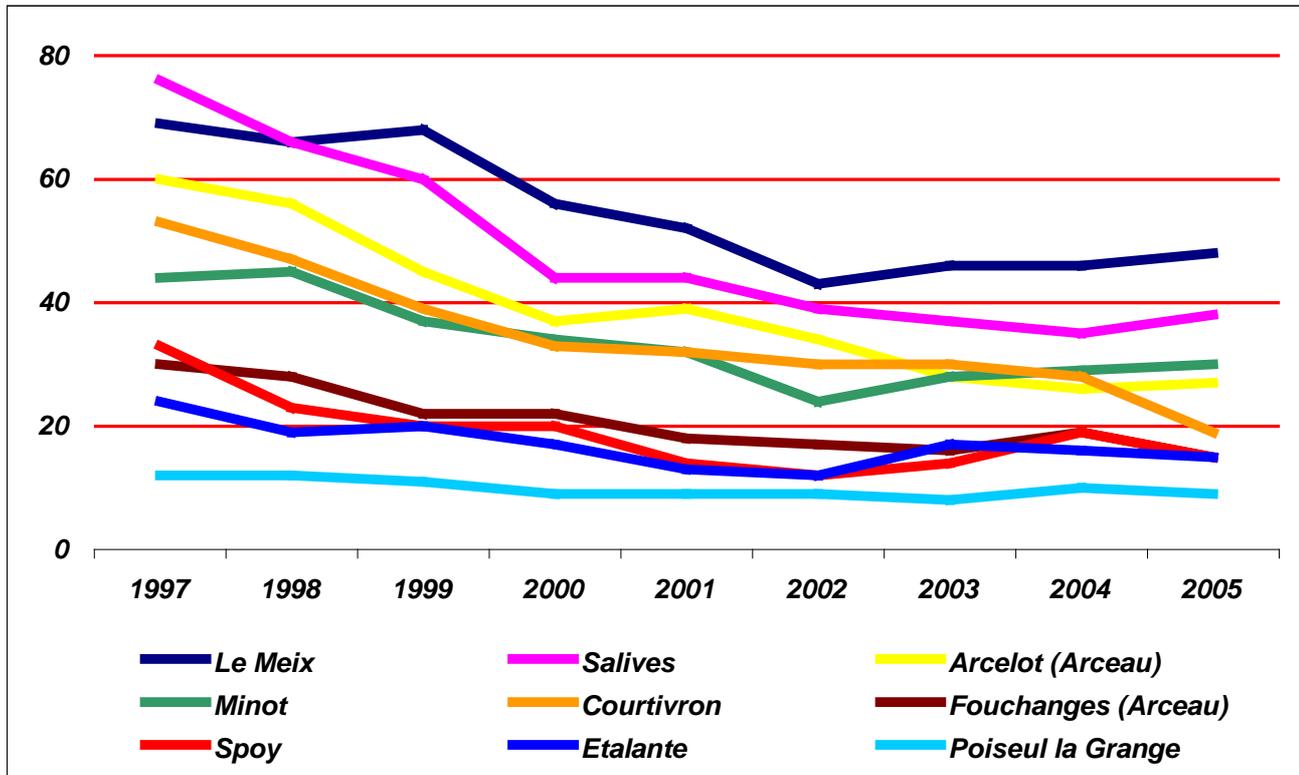
$$DPM = \frac{CPM}{E} \text{ avec } CPM = CPM_{\text{mesuré}} - CPM_{\text{ref}} \text{ ( } CPM \text{ : nombre de coups par minute,}$$

donné par le Tricarb).

- On obtient  $C_A$  par la relation :  $C_A = \frac{DPM}{60} \times 100$ , ainsi  $C_A$  est en Becquerel (nombre de désintégration par seconde) par litre.

## ANNEXE 5

Evolution de la quantité de tritium dans l'eau de consommation (Bq.L<sup>-1</sup>)



## ANNEXE 6

### Montage de régénération du gel de silice



## **ANNEXE 7**

### ***FONCTIONNEMENT DES BARBOTEURS [11]***

#### **1. PRINCIPE**

Le prélèvement est réalisé en continu, par pompage et barbotage dans l'eau (après filtration des aérosols) de la vapeur d'eau tritiée et éventuellement du tritium-gaz converti en vapeur d'eau tritiée.

#### **2. PRELEVEMENT**

But de l'échantillonnage : Recueillir dans un milieu absorbant le tritium atmosphérique en vue d'une mesure différée en laboratoire, de manière à ce que la concentration en activité volumique soit représentative de celle de l'air à contrôler.

#### **3. METHODE**

Prélèvement en continu d'un volume connu d'air à débit constant.

#### **4. QUANTITE PRELEVEE, PERIODICITE ET DUREE**

Les barboteurs du SPR du CEA de Valduc, sont réglés de telle sorte qu'ils prélèvent à un débit de  $0,5 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$  sur une durée de 7 jours. Le volume d'air prélevé est donc de  $5,04 \text{ m}^3$ .

#### **5. MESURE DU TRITIUM DANS L'EAU DES BARBOTEURS**

Le tritium est ensuite compté par scintillation liquide. On obtient une activité en  $\text{Bq}\cdot\text{L}^{-1}$ .

*Remarque* : le tritium étant piégé dans de l'eau, la solution est diluée. Le facteur de dilution est pris en compte au moment où l'activité est ramenée en  $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ .

## ANNEXE 8

ROSE DES VENTS MAI 2006

## ANNEXE 9



Barboteurs de Valduc et les deux prototypes en place à Salives

Annexe 9



## Annexe 10

		Débit de prélèvement (L.min <sup>-1</sup> )		Volume d'air prélevé sur la durée de prélèvement (m <sup>3</sup> )		Durée de prélèvement		Durée de pompage	
		Barboteurs	Système autonome de prélèvement	Barboteurs	Système autonome de prélèvement	Barboteurs	Système autonome de prélèvement	Barboteurs	Système autonome de prélèvement
Du 29/05/06 au 05/06/06	Tube 1	0,5	4	5,76	1,92	8 jours	7 jours	8 jours	8 heures
	Tube 2	0,5	4	5,76	1,92	8 jours	7 jours	8 jours	8 heures
Du 06/06/06 au 11/06/06	Tube 1	0,5	4	4,32	1,92	6 jours	6 jours	6 jours	8 heures
	Tube 2	0,5	4	4,32	1,92	6 jours	6 jours	6 jours	8 heures

		Masse de gel de silice initiale (g)	Masse de gel de silice après pompage (g)	Masse d'eau absorbée (g)	Masse de gel de silice régénéré (g)	Masse d'eau obtenue après régénération (g)
Du 29/05/06 au 05/06/06	Tube 1	350,15	361,94	11,79	164,17	9,12
	Tube 2	350,13	362,53	12,43	142,49	8,32
Du 06/06/06 au 11/06/06	Tube 1	350,24	362,05	11,81	214,18	7,28
	Tube 2	350,90	362,35	11,45	208,32	7,02

## Annexe 11

		SYSTEME DE PRELEVEMENT AUTONOME								BARBOTEURS
		Masse d'eau absorbée (mg)	Activité mesurée (Bq.L <sup>-1</sup> )	Incertitude (Bq.L <sup>-1</sup> )	Facteur de dilution	Activité solution non diluée (Bq.L <sup>-1</sup> )	Volume d'air prélevé (m <sup>3</sup> )	Activité "prélevée" (Bq)	Activité par m <sup>3</sup> d'air (Bq.m <sup>-3</sup> )	Activité par m <sup>3</sup> d'air (Bq.m <sup>-3</sup> )
Du 29/05/06 au 05/06/06	Tube 1	11,79	13,10	1,50	2,50	32,75	1,92	0,39	0,20	0,14
	Tube 2	12,43	8,80	1,10	2,86	25,14	1,92	0,31	0,16	0,14
Du 06/06/06 au 11/06/06	Tube 1	11,81	8,60	1,10	3,33	28,67	1,92	0,34	0,18	0,19
	Tube 2	11,45	9,20	1,20	3,33	30,67	1,92	0,35	0,18	0,19

## ANNEXE 12

### MODE OPERATOIRE SYSTEME DE PRELEVEMENT DE L'EAU ATMOSPHERIQUE

**Avant propos :** Les tubes contenant le gel de silice sont préparés au laboratoire, par le LMN-AC de l' Université de Besançon. Un premier tampon est déposé dans le fond du tube (bouché), il est alors recouvert de gel de silice bleu (en capsule ou en petite quantité). Deux tampons sont alors placés sur celui-ci afin de le séparer des 350g environ (mais de masse connue) de gel de silice incolore qui viennent le recouvrir. Un dernier tampon est positionné par-dessus. Le tube est alors scellé par un système d'étanchéité.

#### 1 – MATERIEL SPECIFIQUE

- support
- pince et une noix
- tube contenant le gel de silice
- pompe
- tuyau de raccord en plastique
- tournevis

#### Régénération:

- ballon en métal
- tube réfrigérant
- ballon en verre
- ouate
- chauffe-ballon
- régulateur de

température

#### 2 – MODE OPERATOIRE

##### **Mise en place du système**

- La pompe a du préalablement être rechargée pendant 8 heures (si fonctionnement autonome).
- Le lieu de prélèvement doit comporter un abri pour protéger la pompe en cas de pluie.
- Retirer le système d'étanchéité du tube.
- Raccorder le tube et la pompe à l'aide du tuyau en plastique.
- Fixer le tube sur le support à l'aide de la pince et de la noix: ajuster la hauteur pour que le tuyau ne présente pas de plis et pas trop haut pour que le système soit au plus stable.
- Programmation de la pompe :
  - Dévisser la plaque de protection à l'aide du tournevis.
  - Activer le bouton poussoir **ON/OFF** sur la position "on".

- Appuyer sur la touche **START/HOLD** afin de stopper le pompage le temps de la programmation.
  - Appuyer sur la touche **SET UP**, l'écran permettant de régler le temps correspondant au délai initial avant que la période de prélèvement ne commence, s'affiche : régler ce délai à l'aide des boutons **DIGIT SET** et **DIGIT SELECT**, le premier permettant de modifier le chiffre (0 à 9) et le deuxième de passer au chiffre suivant. (le maximum est de 9999 minutes soit environ 7 jours).
  - Appuyer ensuite sur la touche **MODE**, il est alors temps de régler la durée totale du prélèvement avec les mêmes boutons **DIGIT SET** et **DIGIT SELECT** (le maximum est également de 9999 minutes).
  - Réappuyer sur **MODE**, et finalement régler la durée de pompage (inférieure ou égale à la durée totale de prélèvement) toujours à l'aide des boutons **DIGIT SET** et **DIGIT SELECT** (maximum 9999 minutes).
- N.B. : on peut vérifier ou modifier les réglages effectués en appuyant sur la touche **MODE** en boucle.
- Une fois les réglages terminés, activer la pompe en appuyant sur **START/HOLD**, le délai (s'il est différent de 0, sinon le pompage) commence à cet instant, l'écran affiche le décompte toute les minutes.
  - Revisser la plaque de protection.

#### Récupération du système :

- Vérifier que la pompe affiche la durée totale de prélèvement programmée, sinon:
  - si elle affiche un message d'erreur ou qu'elle n'affiche rien c'est qu'il y a eu un dysfonctionnement pendant le prélèvement (par exemple batterie vide).
  - si elle affiche une durée inférieure, le prélèvement n'est pas terminé .
- Vérifier que le gel de silice coloré, n'a pas viré au rose, pour la validité de la mesure.
- Dévisser la plaque de protection et placer le bouton **ON/OFF** sur off.
- Revisser la plaque de protection.
- Enlever le tuyau de raccordement entre le tube et la pompe.
- Remettre le système d'étanchéité.
- Ranger le matériel et apporter le tube le plus rapidement au laboratoire.

#### Régénération du gel de silice :

- Récupérer le gel de silice incolore en descellant le système d'étanchéité et en prenant soin de séparer la partie haute (la plus concentrée) de la partie basse.
- Les peser et noter leur masse totale.
- Ne régénérer alors que la partie la plus concentrée (environ 150-200g).
- Insérer cette partie du gel de silice dans le ballon en métal. Le fermer et le relier au tube réfrigérant, lui-même relié à un ballon en verre. Attention, toute la verrerie doit être parfaitement emboîtée, pour éviter toute fuite éventuelle.
- Ouvrir l'arrivée d'eau et allumer le régulateur de température, réglé sur 100°C, relié au chauffe-ballon lui-même en marche.
- Une fois les 100°C atteints, augmenter la température sur le régulateur jusqu'à 150°C.
- Laisser régénérer pendant 2 heures.
- Au bout de deux heures arrêter les appareils et l'arrivée d'eau.

- Récupérer l'eau dans le ballon et la placer dans une fiole au réfrigérateur jusqu'à l'analyse.
- La verrerie est lavée puis rincée à l'eau distillée et finalement séchée.