



L.M.N.-A.C.  
UMR CEA E4



LITVINENKO-MOREL IVAN  
Année 2005 (promotion A1)

## STAGE TECHNICIEN 2<sup>ème</sup> ANNÉE



### Mise au point d'un système autonome de prélèvement d'eau tritiée dans l'air

Stage effectué du 04/04/05 au 11/06/05

Au sein de la SEIVA

Sous la responsabilité de :

Eric FINOT (Tuteur Universitaire)

Christelle BERGEON et Christophe MAVON (Tuteurs entreprise)

Remerciements :

Je veux tout d'abord remercier Catherine SAUT et Eric FINOT de la SEIVA de m'avoir proposer ce stage.

Je tiens également à remercier le Pr Michel FROMM de m'avoir accueilli chaleureusement au LMN-AC de Besançon.

Je tiens à remercier plus particulièrement Christophe MAVON et Christelle BERGEON pour leurs précieux conseils et leur disponibilité.

Enfin, je tiens à remercier toutes les personnes du SPR du centre CEA de Valduc pour leur contribution.

## SOMMAIRE

### **INTRODUCTION**

p.1

### **I) Généralités**

-

#### **1- Présentation générale**

p.2

1.1- La SEIVA		p.2	
1.2- Le LMN-AC UMR CEA E4 de Besançon		p.2	
1.3- Le centre CEA de Valduc		p.2	
<u>2- Le tritium</u>		p.2	
2.1- Caractéristiques du tritium		p.3	2.2-
Origine du tritium	p.4		
2.3- Le tritium et l'environnement		p.4	
2.4- Les risques		p.5	
<u>3- Comptage du tritium par scintillation liquide</u>		p.5	
<u>4- Le desséchant</u>		p.6	
4.1- Choix du desséchant		p.6	
4.2- Comparaison entre le tamis moléculaire et le gel de silice		p.6	
4.3- Le gel de silice		p.6	
 <b><u>II) Partie expérimentale</u></b>			
<u>1- Mesures de tritium dans les eaux potables</u>		p.7	
<u>2- Mise au point du système</u>		p.7	
2.1- Etude de l'absorption d'eau tritiée sur du gel de silice		p.7	
2.2- Etude de la régénération du desséchant		p.8	
<u>3- Fonctionnement en conditions réelles</u>		p.9	
 <b>CONCLUSION</b>		p.11	
 <b>Références</b>		p.12	
 <b>Glossaire</b>		p.13	
 <b>ANNEXES</b>		p.15	

## **INTRODUCTION**

Mon stage technicien comptant pour la 2<sup>ème</sup> année de l'ESIREM a été réalisé à la SEIVA de Dijon en collaboration avec le LMN-AC de Besançon et avec la contribution du SPR du centre CEA de Valduc. Pour mesurer la teneur en tritium présente dans l'air, les services du CEA de Valduc utilisent une méthode basée sur le piégeage de ce radioélément par barbotage.

Cette méthode permet de prélever à la fois l'eau tritiée et le tritium gazeux présents dans l'air mais elle a trois principaux inconvénients. Tout d'abord, l'appareillage fonctionne sur le secteur ce qui nécessite la proximité d'une prise de courant. Ensuite, le temps de prélèvement est d'une semaine ce qui est long. Enfin, le troisième inconvénient est son coût élevé à l'achat.

Afin de pouvoir réaliser une mesure rapide dans l'environnement un système a été imaginé avec une pompe autonome sur batterie qui aspirerait l'air à travers un desséchant absorbant l'humidité. Ce système résoudrait le problème de l'alimentation électrique et diminuerait également le coût de la méthode.

L'objectif de mon stage est la mise au point d'un système de prélèvement d'eau tritiée dans l'air avec la création d'un prototype et validation de celui-ci par comparaison avec les résultats obtenus par le centre CEA de Valduc.

Après avoir rapidement présenté la SEIVA, le CEA de Valduc et le LMN-AC de Besançon, les généralités sur le tritium et sa méthode de comptage seront abordées.

Ensuite, le choix du desséchant sera traité. La partie expérimentale traitant des travaux réalisés et des résultats obtenus sera développé dans une deuxième partie.

Enfin, une conclusion sur les travaux ainsi que des perspectives seront données.

## **I) Généralités**

### **1. Présentation générale**

#### **1.1- La SEIVA [1]**

SEIVA signifie Structure d'Echange et d'Information sur VALduc. Créée en 1996, la SEIVA est une structure indépendante d'ouverture, un lieu de dialogue qui laisse la parole à chacun. Elle est composée d'élus locaux, de représentants d'administrations, d'organismes régionaux, d'associations et d'experts. Son budget est principalement assuré par les Ministères de l'Industrie et de l'Environnement, le Conseil général de Côte d'Or. Elle évalue et informe les citoyens sur l'impact du fonctionnement du centre de Valduc sur l'environnement, la recherche, l'économie locale, dans la mesure où les sujets abordés ne sont pas confidentiels. Par ailleurs, la SEIVA organise annuellement une campagne indépendante d'analyse de la radioactivité dans l'environnement et des calculs de l'impact sur les populations de ces doses de radioactivité artificielle absorbées sont réalisés et comparés aux normes en vigueur.

#### **1.2- Le LMN-AC UMR CEA E4 de Besançon [2]**

Créé en 1983, le Laboratoire de Microanalyses Nucléaires Alain Chambaudet (LMN-AC) du nom de son fondateur est un laboratoire de l'Université de Franche-Comté affilié au CEA sous le nom E4. Le LMN-AC a 3 thèmes principaux de recherche dans le domaine des capteurs, des polymères et de la dosimétrie.

Mes expériences ont été réalisées dans l'UT MARIO (Unité Technique Métrologie et Analyse des Rayonnements Ionisants, appartenant au LMN-AC). Créée en 2005 et dirigée par le Professeur Michel Fromm, l'UT a pour vocation d'apporter son soutien aux activités d'enseignement et de recherche dans le domaine des rayonnements ionisants au sein de l'UFR ST de l'Université de Franche-Comté. L'UT MARIO contribue également à la surveillance de l'environnement en mesurant notamment l'activité en tritium dans des échantillons d'eau. En 2005, l'UT MARIO va demander son accréditation par le COFRAC (Comité Français d'Accréditation) pour ce type d'analyses.

### 1.3- Le centre CEA de Valduc [3]

Le centre de Valduc est l'un des dix établissements du Commissariat à l'Energie Atomique. Créé en 1957, le centre CEA de Valduc est situé en plein cœur de la Bourgogne, à 45 km au nord-ouest de Dijon. Depuis plus de 40 ans, Valduc conçoit, fabrique et assure la maintenance des composants nucléaires des armes de la force de dissuasion française. Le centre de Valduc dépend de la Direction des Applications Militaires du CEA (CEA-DAM).

Des études de sûreté nucléaire relatives à la prévention du risque de criticité dans les installations sont également menées sur le site par le SPR (Service de Protection contre les Rayonnements).

## 2. Le tritium

Le but de mon stage est de prélever l'eau tritiée dans l'air. Il paraît donc indispensable de définir le tritium ainsi que sa méthode de comptage.

### 2.1- Caractéristiques du tritium [4]

Le tritium a été mis en évidence par Rutherford en 1934. C'est un radio-isotope (isotope radioactif) de l'hydrogène de numéro atomique 1 et de poids atomique 3. Son noyau contient 2 neutrons et 1 proton. Il est noté  $^3\text{H}$  ou T (Fig.1).

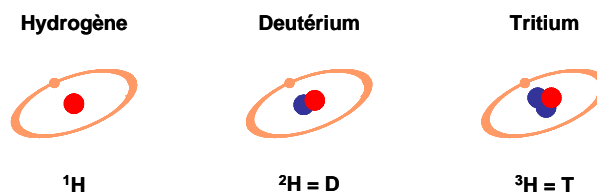


Fig.1 Schéma des isotopes de l'hydrogène

La radioactivité ne concernant que le noyau et non les électrons, les propriétés chimiques des isotopes radioactifs sont les mêmes que celles des isotopes stables. Le tritium a ainsi les propriétés chimiques de l'hydrogène et pour l'essentiel réagit comme lui.

Le tritium se désintègre par émission  $\beta^-$  (émission d'un électron) pour donner de l'hélium 3 selon la réaction nucléaire en Fig.2.

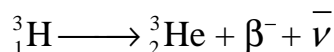


Fig.2 Equation de désintégration nucléaire du tritium

L'antineutrino  $\bar{\nu}$  est une particule neutre, de masse voisine de 0 ce qui le rend pratiquement indétectable. L'énergie maximum des  $\beta^-$  caractéristique de cet isotope est égale à 18,6 keV avec une énergie moyenne de 5,7 keV. Le rayonnement  $\beta^-$  est peu pénétrant car il est arrêté par 5 millimètres d'air ou par 6  $\mu\text{m}$  d'eau.

La désintégration du tritium 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 (T=12,34 ans) ; N et  $N_0$  : nombre de radionucléides présents à l'instant t et  $t_0$ .

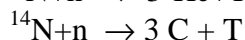
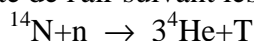
Par exemple en une année il disparaît 5,6 % de tritium par décroissance radioactive. Après 125 ans, il en reste moins d'un millième. Le stockage du tritium n'entraîne donc pas de risque à long terme.

Du point de vue des applications, le tritium a été utilisé de façon très importante dans la recherche en biologie moléculaire. Il a rendu possible, en tant qu'hydrogène, le marquage de très nombreuses molécules dont l'ADN.

## 2.2- Origine du tritium

### 2.2.1- Origine naturelle

Il existe une production naturelle de tritium qui provient principalement de l'action des neutrons du rayonnement cosmique sur les noyaux d'azote de l'air suivant les deux réactions suivantes:



L'inventaire naturel est de 3 à 4 kg dans toute l'atmosphère. Il y a aussi en quantité bien plus faible une origine tellurique.

### 2.2.2- Origine artificielle

L'origine artificielle est essentiellement due aux essais nucléaires atmosphériques qui ont rejeté 650 kg de tritium entre 1952 et 1963. Aujourd'hui, il en reste moins de 100 kg. La fabrication d'armes nucléaires (réacteurs tritigènes) génère également des rejets de l'ordre de 0,04 kg/an. Les réacteurs électrogènes rejettent environ 0,02 kg/an dans l'atmosphère. On trouve également des traces dans les déchets des établissements utilisant le tritium comme traceur biologique.

## 2.3- Le tritium et l'environnement

Le tritium se dissémine très facilement dans l'environnement car il se substitue à l'atome d'hydrogène, lui-même omniprésent dans l'eau, la matière organique, etc.

Le devenir du tritium dépend de façon forte de la forme chimique qu'il prend. Le tritium est présent sous les quatre formes suivantes :

#### - Le tritium gazeux : HT

Cette première forme n'est pas assimilée par les plantes et peu assimilée par les animaux et l'homme. HT ne s'oxyde en HTO que très lentement dans l'air (durée de vie supérieure à 10 ans). Par contre HT est oxydé très rapidement et presque complètement par les bactéries de l'interface sol-atmosphère. HT n'est oxydé que faiblement par les bactéries des voies respiratoires humaines.

#### - L'eau tritiée : HTO ou T<sub>2</sub>O

Dans ce cas le tritium s'est substitué à un ou deux hydrogènes de l'eau. L'eau tritiée s'assimile rapidement et se dissémine dans l'ensemble du corps vivant (eau cellulaire ...). C'est elle qui dans tous les cas est responsable d'au moins 80 % des doses reçues en cas d'expositions diverses. Les voies de contamination sont l'inhalation, l'ingestion et la diffusion à travers la peau. HTO disparaît naturellement après une période biologique de l'ordre de 10 jours. En cas d'exposition accidentelle, on peut accélérer le remplacement de l'eau afin d'éliminer plus rapidement le tritium en buvant une grande quantité d'eau.

#### - Le tritium organique 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, ...). Le tritium organique en position échangeable est en équilibre avec le tritium contenu dans l'eau cellulaire et subit les mêmes évolutions.

#### - Le tritium organique en position " non échangeable "

C'est le tritium directement lié au carbone : T-C. Le tritium organique en position non échangeable par définition reste plus durablement présent que HTO. C'est lui qui " marque " l'environnement de façon durable. Le rôle joué par cette fraction reste faible du point de vue de la radioprotection.

## 2.4- Les risques

En tant qu'hydrogène, le tritium ne présente pas de toxicité chimique. On est donc en présence d'une radiotoxicité due à son émission bêta. La faible énergie du rayon bêta n'entraîne pas de contamination externe. La contamination si elle existe est toujours interne et les voies d'absorption sont l'inhalation, l'ingestion, la diffusion cutanée. Les risques liés au tritium gazeux sont plus de 10 000 fois plus faibles que ceux liés au tritium sous la forme d'eau tritiée. La dose efficace par unité d'incorporation, pour le tritium, est néanmoins l'une des plus faibles de tous les radionucléides. La limite de potabilité de l'eau est de  $100 \text{ Bq.L}^{-1}$ .

## 3- Comptage du tritium par scintillation liquide [5]

### 3.1- Principe de la scintillation liquide

Le principe de la scintillation liquide est représenté Fig.3.

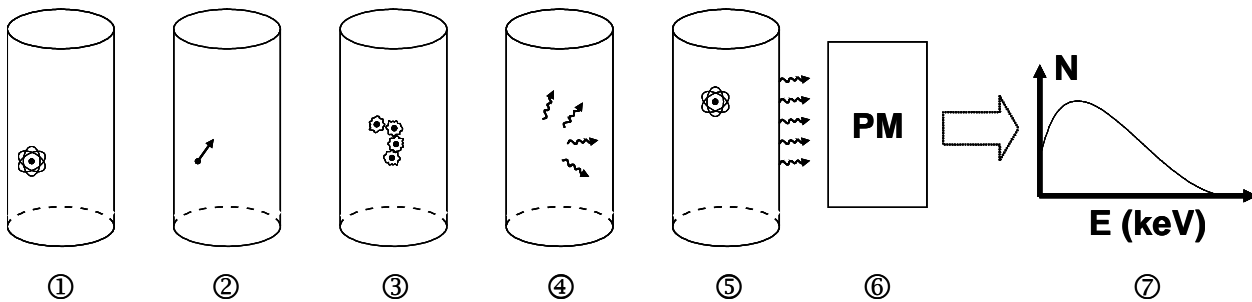


Fig.3 Schéma du mécanisme de la scintillation liquide

Dans une fiole de comptage, l'échantillon d'eau est mélangé à un liquide contenant des molécules scintillantes. Un atome de tritium de l'échantillon se désintègre ① en libérant un  $\beta^-$  ②. Le  $\beta^-$  excite les molécules scintillantes ③ qui reviennent à un état stable en émettant un ou des photon(s) ④. Le nombre de photons émis est proportionnel à l'énergie du  $\beta^-$ . Ces photons sont alors détectés par deux photomultiplicateurs ⑤ ⑥. Enfin, le spectre  $\beta^-$  est obtenu ⑦.

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

- Le quenching chimique qui interfère sur la production de photons. Dans ce cas, des molécules non scintillantes interagissent avec les  $\beta^-$  émis à la place des substances scintillantes.
- Le quenching dû à la couleur qui interfère sur la détection des photons.

### 3.2- Protocole expérimental

Pour chaque échantillon d'eau tritiée, une fiole de référence et deux fioles de comptage sont réalisées. La fiole de référence est constituée de 10 mL d'une eau à très faible teneur en tritium mélangée à 10 mL de liquide scintillant.

Une fiole de comptage est constituée de 10 mL d'eau tritiée mélangée à 10 mL de liquide scintillant. Le liquide scintillant est le UGLLT (Ultima Gold Low Level Tritium). Il est utilisé pour compter les faibles concentrations en tritium dans les fioles. Le temps de comptage est de 200 minutes par fiole. Les données imprimées après comptage indispensables au calcul de l'activité sont le tSIE et le CPM (Voir feuille de résultats en *Annexe 1*). Le tSIE renseigne sur le phénomène de quenching dans la fiole tandis que le CPM correspond au nombre de coups par minute.

### 3.3- Méthode de calcul de l'activité

L'activité dans un liquide correspond au nombre de désintégrations par seconde par litre et s'exprime en  $\text{Bq.L}^{-1}$ . Pour calculer l'activité en tritium d'un échantillon il faut d'abord calculer l'efficacité de comptage E grâce à l'équation de la courbe de quenching. Ensuite, le nombre de désintégrations par minute

(DPM) est calculé à l'aide de la relation 
$$DPM = \frac{CPM}{E}$$
 avec  $CPM = CPM_{mesure} - CPM_{ref}$ . L'activité  $C_A$  en  $Bq.L^{-1}$

<sup>1</sup> s'obtient ensuite en faisant 
$$C_A = \frac{DPM}{60} \times 100$$
 pour avoir le nombre de désintégrations par seconde ramené à 1L sachant que le volume de prise d'essai est de 10mL. Les incertitudes correspondantes aux activités sont également calculées.

#### 4- Le desséchant

Le but du stage est de prélever l'eau tritiée dans l'air à l'aide d'un desséchant. Il faut donc en premier lieu choisir le desséchant le plus adapté à notre système.

##### 4.1- Choix du desséchant

Il existe 5 desséchants différents sur le marché qui sont :

- Le gel de silice avec indicateur de saturation
- Le gel de silice sans indicateur de saturation
- Le tamis moléculaire
- Le chlorure de calcium ( $CaCl_2$ )
- L'argile activé

L'inconvénient majeur du  $CaCl_2$  est qu'il devient liquide lorsqu'il absorbe de l'eau. Il n'est donc pas du tout adapté pour notre système.

L'argile activée, quant à elle, existe sous forme d'une fine poudre ce qui entraînerait d'importantes pertes de charge lors de l'aspiration. Elle n'est donc pas non plus adaptée.

Nous avons donc focalisé notre choix sur les deux formes de gel de silice et sur le tamis moléculaire.

##### 4.2- Comparaison entre le tamis moléculaire et le gel de silice

Une étude en milieu semi-aride (-40°C l'hiver à 38°C l'été) de ces deux desséchants a été menée et a montré que leur efficacité est quasiment la même [6].

Nous aurions alors pu choisir indifféremment l'un ou l'autre de ces deux desséchants. Mais nous savons que le gel de silice est régénéré à 130°C contre 450°C pour le tamis moléculaire et que le tamis moléculaire a un coût plus élevé que le gel de silice. Ces deux observations nous ont conduit à choisir le gel de silice.

##### 4.3- Le gel de silice

Le gel de silice (ou silica gel en anglais) de formule  $SiO_2, xH_2O$  a pour particularité d'absorber l'eau. Il existe du gel de silice avec du chlorure de cobalt ( $CoCl_2$ ) comme indicateur de saturation. Les grains sont bleus foncés lorsqu'ils sont secs et ils deviennent roses lorsqu'ils sont en présence d'eau (*Annexe 2*). Il existe également du gel de silice sans indicateur de saturation, les grains dans ce cas ont la forme de billes blanches. Le gel de silice est doté d'une capacité d'absorption d'eau de 30% de son poids et sa température de régénération est de 130°C d'après les données du fournisseur.

## II) Partie expérimentale

### 1- Mesures de tritium dans les eaux potables

Le but de ces mesures est d'apprendre à prélever et préparer les échantillons et surtout de se familiariser avec la méthode de scintillation liquide. Les prélèvements d'eau potable comptant pour la campagne d'analyse annuelle de la SEIVA (*Annexe 3*), réalisés le 18/04/05 autour de Valduc, ont été analysés au LMN-AC à partir du 20/04/05 par la méthode de scintillation liquide.



La préparation des fioles et le calcul de l'activité sont réalisés comme décrit précédemment en D)3. Les résultats obtenus par scintillation liquide sont présentés *Annexe 4*. On remarque que les eaux de consommation collectées sont bien en dessous de la limite de potabilité de  $100 \text{ Bq.L}^{-1}$ .

## 2- Mise au point du système

Le système de prélèvement d'eau tritiée dans l'air à l'aide d'une pompe autonome n'avait jamais été réalisé dans le laboratoire auparavant; il a donc fallu le mettre au point. Le prélèvement de l'eau tritiée se fait en deux étapes qui sont l'absorption de l'eau sur le desséchant et la régénération de celui-ci.

### 2.1- Absorption d'eau tritiée sur du gel de silice

L'objectif de cette étape est de recréer expérimentalement une atmosphère en eau tritiée connue et de l'absorber sur du gel de silice afin de connaître le rendement d'absorption du desséchant. (Fig.4)

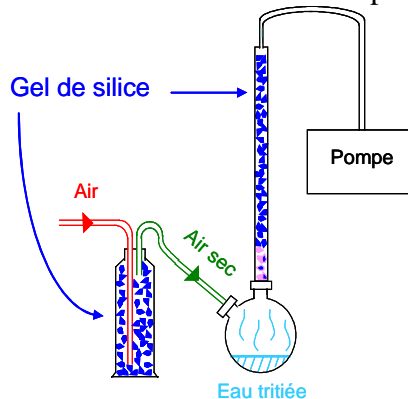


Fig.4 Principe de l'absorption de l'eau tritiée sur un desséchant

De l'air sec est aspiré à l'aide d'une pompe (Caractéristiques en *Annexe 5*) dans un ballon contenant 25 mL d'eau tritiée d'activité connue. Les vapeurs d'eau (tritiées ou non) présentes dans le ballon sont entraînées par ce flux d'air et sont absorbées par le gel de silice.

Le dimensionnement de l'enceinte d'absorption dépend principalement du débit d'air aspiré. En effet, le temps de passage de l'air humide dans la colonne doit être suffisamment important pour permettre un piégeage efficace.

Pour diminuer les temps de prélèvement, nous avons dimensionné la colonne afin d'obtenir un rendement acceptable à un débit de  $4 \text{ L.min}^{-1}$  (débit maximum de la pompe).

Une campagne d'essais a également montré que le rapport (eau absorbée/absorbant) doit être compris entre 5 et 10% pour obtenir un rendement satisfaisant. Le diagramme de Mollier (*Annexe 6*) prévoit, pour des conditions ambiantes courantes (50% humidité relative à  $25^\circ\text{C}$ ) environ 10g d'eau par  $\text{m}^3$ .

D'après ces essais, nous avons choisi d'utiliser **400 g de desséchant** pour le remplissage de la colonne.

Les rendements moyens obtenus en fonction du type de gel de silice sont :

**Avec indicateur de saturation =  $(95,6 \pm 4,1) \%$**

**Sans indicateur de saturation =  $(98,2 \pm 1,1) \%$**

Pour les deux gels de silice les rendements d'absorption sont très bons mais nous avons tout de même un meilleur rendement avec le gel de silice sans indicateur de saturation (*Annexe 7*). De plus, le gel de silice sans indicateur de saturation est également plus fiable compte tenu de la valeur de l'écart type. En ce qui concerne l'étape d'absorption, il serait donc préférable d'utiliser le **gel sans indicateur de saturation**.

### 2.2- Etude de la régénération du desséchant

Cette étude consiste à régénérer le gel de silice en le chauffant et à condenser l'eau désorbée. (Fig.5)

Réfrigérant

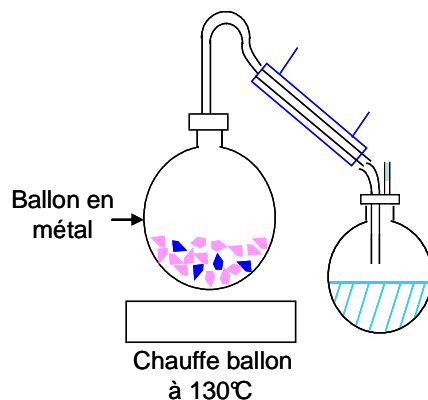


Fig.5 Principe de la désorption

Du fait que l'on réalise une distillation à sec la verrerie n'est pas utilisable, le gel est ainsi régénéré dans un ballon en métal (130°C pendant 3 heures). Ensuite, l'eau tritiée désorbée est condensée dans un ballon (*Annexe 8*). Enfin, cette eau tritiée est analysée par scintillation liquide pour comparer son activité avec celle de l'eau tritiée de départ.

Les activités obtenues avec les deux gels sont reportés dans le tableau ci-dessous (*Annexe 9*).

Activité $C_A$ (Bq.L <sup>-1</sup> )			
Sans indicateur de saturation		Avec indicateur de saturation	
eau tritiée de départ	eau tritiée désorbée	eau tritiée de départ	eau tritiée désorbée
209,2 ± 18,6	213,7 ± 19,0	215,9 ± 19,2	295,4 ± 25,9
	216,1 ± 19,2		90,4 ± 8,6
227,4 ± 20,4	243,1 ± 21,5		
227,4 ± 20,2	235,6 ± 20,9		
	226,5 ± 20,0		

Le tableau montre que les résultats obtenus avec le gel de silice avec indicateur de saturation sont toujours supérieurs aux valeurs d'activité de la source tritiée de départ. Par contre, les résultats avec le gel de silice sans indicateur de saturation sont satisfaisants.

C'est donc le gel de silice sans indicateur de saturation qui a été retenu pour le système de prélèvement de l'eau tritiée dans l'air.

### 3- Fonctionnement en conditions réelles

#### 3.1- Protocole

L'objectif du fonctionnement en conditions réelles est de réaliser un prélèvement simultané entre notre système et celui des barboteurs (*Annexe 10*). La colonne du système mis au point est composée de 400 g de gel de silice blanc recouvert de quelques grains de gel de silice bleu. Ces derniers permettent de contrôler visuellement si le gel de silice blanc est saturé en eau.

Les barboteurs sont localisés dans quatre villages autour du CEA qui sont Echalot (Nord-Ouest), Salives (Nord-Est), Léry (Sud-Ouest) et Moloy (Sud-Est). La rose des vents de ces quatre dernières années (*Annexe 11*) montre que le vent dominant autour du CEA est en direction de Salives et que le deuxième vent dominant est en direction d'Echalot. Les prélèvements ont donc été réalisés dans ces deux communes.

Afin d'être dans des conditions comparables à celles des barboteurs notre système a été réglé de la façon suivante :

Système utilisé pour le prélèvement		
Réglages des Paramètres	Système des barboteurs	Notre système de pompe autonome
Débit de prélèvement (L.min <sup>-1</sup> )	0,5	4
Volume d'air prélevé sur une semaine en m <sup>3</sup>	5,04	1,92
Durée de prélèvement	1 semaine	1 semaine
Durée de pompage	1 semaine	8 h

Du fait que la durée de pompage soit de huit heures pour une durée de prélèvement d'une semaine, la pompe va fonctionner par intermittence pendant une minute avec des pauses à environ vingt minutes d'intervalle. Nos résultats d'activité d'eau tritiée dans l'air ont ensuite été comparés avec ceux des barboteurs.

### 3.2- Résultats

Après une semaine de prélèvement, le gel de silice blanc est régénéré et l'eau tritiée absorbée par le gel est désorbée. Cette eau tritiée est ensuite analysée par scintillation liquide et son activité en Bq.L<sup>-1</sup> est obtenue. Enfin, cette activité est ramenée au volume d'air prélevé (Bq.m<sup>-3</sup>).

Lieu de prélèvement	Système mis au point			barboteur
	Volume d'eau absorbée mL	Activité de l'eau tritiée Bq.L <sup>-1</sup>	Activité de l'eau tritiée dans l'air en Bq.m <sup>-3</sup>	Activité de l'eau tritiée dans l'air en Bq.m <sup>-3</sup>
Salives	17,89	98	0,93	1,53
<b>Echalot</b>	<b>14,59</b>	<b>101,2</b>	<b>0,78</b>	<b>0,71</b>

Le tableau montre que les résultats d'activité obtenus avec notre système sont inférieurs mais de l'ordre de grandeur de ceux obtenus avec les barboteurs pour Salives. L'écart pourrait s'expliquer par le fait que notre mode de prélèvement se fait par intermittence alors que celui des barboteurs est continu.

L'écart pourrait peut-être aussi s'expliquer par des échanges isotopiques au sein du gel de silice [7].

**En revanche, la valeur de l'activité d'eau tritiée dans l'air est quasiment la même pour Echalot.**

Ce dernier résultat est très encourageant quant au devenir de ce système. Il constitue un premier pas vers la validation de la méthode même si cette validation nécessite d'effectuer d'autres prélèvements.

## CONCLUSION

Ce stage m'a permis de me familiariser avec le fonctionnement d'un laboratoire de recherche dans lequel j'ai participé au développement d'un point de vue expérimental d'un système autonome de prélèvement d'eau tritiée dans l'air.

Le système mis au point présente l'avantage d'être simple à utiliser et à priori très fiable. En effet, les résultats d'activité obtenus après régénération du gel de silice sont proches de ceux de l'eau tritiée de départ. De plus, ce système est léger et autonome ce qui permet de faire des prélèvements à l'endroit souhaité ; il pourra ainsi permettre d'apporter des résultats complémentaires aux études menées par la SEIVA et le CEA de Valduc.

Pour une validation plus complète du système de prélèvement, il reste encore à étudier l'impact des conditions météorologiques sur les résultats obtenus ainsi que l'effet des échanges isotopiques pouvant se produire au sein du gel de silice.



-  
-  
-  
-  
-  
Glossaire:

### Isotopes

On appelle isotopes, des noyaux qui diffèrent par le nombre de neutrons. Des isotopes possèdent les mêmes propriétés chimiques et atomiques. Par contre les propriétés nucléaires sont différentes, car le nombre de neutrons influe sur la stabilité du noyau. La majorité des atomes présents dans la nature sont des isotopes stables. Les isotopes radioactifs, beaucoup plus nombreux, ont généralement disparu en raison de leur instabilité. Ils peuvent être recréés artificiellement par exemple pour des applications médicales.

### Radioactivité

C'est la propriété que possèdent certains éléments naturels ou artificiels d'émettre spontanément des particules  $\alpha$ ,  $\beta$  et/ou un rayonnement  $\gamma$ .

Il y a émission de rayonnement lors de la désintégration d'un élément instable ou de la fission.

L'uranium et le plutonium sont des nucléotides émetteurs de particules  $\alpha$ .

Les noyaux lourds instables comme le tritium se désintègrent en émettant des particules  $\beta$ .

### Radioactivité alpha

Le rayonnement alpha est constitué d'un noyau d'hélium comprenant 2 protons et 2 neutrons. Il porte 2 charges positives. Des atomes dont les noyaux radioactifs sont trop chargés en protons et en neutrons émettent souvent un rayonnement alpha. Ils se transforment en un autre élément chimique dont le noyau est plus léger. Par exemple, l'uranium 238 est radioactif alpha et se transforme en thorium 234.

Les particules composant le rayonnement alpha sont fortement ionisants, mais très peu pénétrants. Une simple feuille de papier les arrête.

### Radioactivité bêta

On appelle électrons « bêta » les électrons émis spontanément par certains noyaux radioactifs excédentaires en neutrons.

*Radioactivité bêta moins* : Le rayonnement bêta moins est constitué d'un électron chargé négativement. Un des neutrons au sein du noyau se désintègre en un proton plus un électron, ce dernier étant éjecté.

*Radioactivité bêta plus* : Le rayonnement bêta plus est constitué d'un positon (particule de même masse que l'électron mais chargée positivement). Un des protons au sein du noyau se désintègre en un neutron plus un positon, ce dernier étant éjecté. La radioactivité  $\beta^+$  est beaucoup plus rare dans la Nature.

Pour les deux types de désintégration bêta, le noyau garde le même nombre de nucléons (donc la même masse atomique).

Un écran de quelques mètres d'air ou une simple feuille d'aluminium suffisent pour les arrêter.

### Radioactivité gamma

Le rayonnement gamma (ou photon) est une onde électromagnétique comme la lumière visible, les ondes radios, les rayonnements infrarouges et ultraviolets, les rayons X mais plus énergétique (de l'ordre du million d'électronvolts). Ce rayonnement suit souvent une désintégration alpha ou bêta. Après émission de la particule alpha ou bêta, le noyau est encore excité car ses protons et ses neutrons n'ont pas trouvé leur équilibre. Il se libère alors d'un trop-plein d'énergie par émission d'un rayonnement gamma.

### Décroissance radioactive

L'activité d'un échantillon radioactif diminue avec le temps du fait de la disparition progressive des noyaux instables qu'il contient. La désintégration radioactive d'un noyau donné est un phénomène aléatoire.

### Période radioactive

La « période » ou « demi-vie » d'un élément radioactif est le temps nécessaire pour que sa radioactivité diminue de moitié. Ce temps caractéristique ne dépend pas de l'âge de l'échantillon. La radioactivité décroît très vite avec le nombre de périodes : elle est divisée par 1000 au bout de dix périodes.

Pour les déchets radioactifs, on parle de « vie courte » lorsque la période est inférieure à 5 ans et de « vie moyenne » lorsqu'elle est comprise entre 5 et 100 ans ; les noyaux dont la période dépasse 100 ans sont dits « à vie longue ». Les isotopes utilisés pour les diagnostics médicaux sont à vie très courte.

## Les unités

Le Becquerel (Bq) et le Curie (Ci) : unités d'activité

Un becquerel équivaut à une désintégration par seconde. C'est une unité extrêmement petite. Le becquerel remplace une unité historique longtemps employée, le curie ou Ci. Un curie vaut 37 milliards de becquerels. C'est l'activité d'un gramme de radium.

## Doses et radioprotection

Faibles doses

On appelle faibles doses des expositions pour lesquelles aucun effet nuisible n'a été observé chez l'adulte. La limite supérieure délimitant le domaine des faibles doses n'est pas définie précisément. Elle se situerait à une centaine de millisieverts. Selon cette définition les expositions de l'ordre du millisievert, rencontrées dans la vie courante, constituent de très faibles doses.

L'absence d'observations n'est pas une preuve d'une absence d'effets des rayonnements ionisants. Elle signifie que ces effets sont trop faibles pour se manifester d'une manière claire.

Dose efficace

La « dose efficace » est une dose biologique. Très utilisée en radioprotection, elle mesure l'exposition d'une personne individuelle aux rayonnements. Elle tient compte de la sensibilité des tissus affectés. C'est la dose à considérer quand il s'agit d'estimer le risque résultant d'une exposition à la radioactivité. Elle s'exprime en sieverts ou millisieverts.

Radiotoxicité

La radiotoxicité mesure la nuisance d'un noyau radioactif assimilé par l'organisme à la suite d'une inhalation ou ingestion. Elle tient compte du devenir de la substance dans le corps humain, mais non de la probabilité que ce radioélément soit assimilé par l'organisme. Cette probabilité dépend des précautions prises et de l'environnement. Pour une même quantité ingérée, la radiotoxicité varie d'un facteur 1 à 10 000 entre des émetteurs bêta de faible énergie comme le tritium et des noyaux lourds émetteurs alpha.

## ANNEXES

- ANNEXE 1 Feuille type de résultats en scintillation liquide
- ANNEXE 2 Couleurs des grains du gel de silice sans indicateur de saturation
- ANNEXE 3 Protocole de la campagne d'analyses de la SEIVA 2005
- ANNEXE 4 Résultats des activités des eaux de consommation
- ANNEXE 5 Caractéristiques de la pompe de prélèvement
- ANNEXE 6 Diagramme de Mollier

- ANNEXE 7 Tableaux des résultats de rendement d'absorption en fonction des différents paramètres pour le gel de silice avec et sans indicateur de saturation
- ANNEXE 8 Montage de la régénération
- ANNEXE 9 Tableau des résultats d'activité avec le gel de silice sans indicateur de saturation
- ANNEXE 10 Prélèvement simultané entre notre système et celui des barboteurs
- ANNEXE 11 Rose des vents pour les quatre dernières années
- ANNEXE 12 Rose des vents pour la semaine du 23/05/2005 au 30/05/2005 et du 30/05/2005 au 06/06/2005