

ANALYSE DU CARBONE 14 DANS LES MATRICES BIOLOGIQUES PAR FOUR TUBULAIRE. COMPARAISON DES PERFORMANCES AVEC LA METHODE PAR OXIDIZER.

Valentin BLAIS - Lionel TENAILLEAU

Ecole des Applications Militaires de l'Energie Atomique
Département Groupe d'Etudes Atomiques

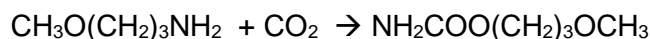
BCRM Cherbourg – CC19 – 50115 CHERBOURG-EN-COTENTIN CEDEX

valentin.blais@intradef.gouv.fr - lionel.tenailleau@intradef.gouv.fr

Le carbone 14 noté ^{14}C est un isotope radioactif du carbone produit en infime quantité dans l'atmosphère par l'action des neutrons cosmiques sur les atomes d'azote présents dans la haute atmosphère. Cependant, le carbone 14 peut également être présent dans notre environnement du fait des rejets des installations nucléaires. C'est sur ce dernier point que la Marine nationale en tant qu'exploitant nucléaire a l'obligation d'évaluer l'impact de ses installations sur l'environnement en mesurant entre autres le niveau de carbone 14 présent dans les bio-indicateurs prélevés autour des installations nucléaires.

La norme NF M60 812-2 présente les méthodes usuelles pour l'analyse du carbone 14 dans les matrices biologiques. Dans le cadre de sa révision, il a été décidé d'y ajouter une nouvelle méthode basée sur le prélèvement du carbone 14 par bullage dans une solution de piégeage des gaz produits par la combustion d'un échantillon dans un four tubulaire. Utilisés pour l'analyse du tritium organiquement lié, les fours tubulaires permettent d'effectuer la combustion d'une quantité d'échantillon très supérieure aux prises d'essai généralement analysées au moyen d'un oxidizer[®] assurant ainsi une meilleure représentativité du prélèvement et permettant d'atteindre des seuils de décision inférieurs au niveau naturel en carbone 14 actuellement de l'ordre de 230 Bq/kg de carbone¹.

L'oxidizer[®] est un appareil qui, après combustion d'une prise d'essai d'environ 0,5 g d'échantillon lyophilisé, prépare automatiquement un flacon pour analyse par scintillation liquide. A l'issue de la combustion, le carbone 14 sous forme de dioxyde de carbone (CO_2), est entraîné sur une colonne contenant un réactif de piégeage (Carbosorb[®] ou Oxysolve[®] C-400). Ce dernier, contenant des carbamates formés selon la réaction ci-dessous, est ensuite mélangé à du liquide scintillant (Permafluor[®] ou Oxysolve[®] C-400) par rinçage de la colonne.



Afin de calculer l'activité en carbone 14 d'un échantillon traité avec l'oxidizer[®], on utilise le rendement combiné de combustion et de détection. Celui-ci correspond au rendement total de la manipulation qui tient compte à la fois de l'efficacité avec laquelle l'oxidizer[®] réalise la combustion de l'échantillon et de l'efficacité de détection de l'appareil de mesure par scintillation liquide. Le rendement combiné est déterminé par marquage d'une prise d'essai avec une activité connue en carbone 14. La source utilisée contient du carbone 14 sous forme de glucose dont la composition chimique est proche des matrices biologiques.

¹ Roussel-Debet, S., 2014b. Useful data for interpreting carbon-14 measurements in the terrestrial environment. Radioprotection 49 (1), 49-54.

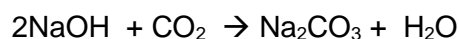
La nouvelle méthode développée par le Groupe d'Etudes Atomiques de la marine utilise un four tubulaire généralement employé pour la combustion des échantillons biologiques en vue d'en effectuer l'analyse du tritium organiquement lié.

Dans cette méthode, l'échantillon est préalablement lyophilisé puis broyé avant d'être brûlé sous courant d'oxygène dans le four tubulaire produisant en sortie du tube du dioxyde de carbone et de la vapeur d'eau.

Dans un premier temps, l'eau est piégée dans deux tubes en U plongeant dans un bain d'éthylène glycol réfrigéré à -10°C afin d'en analyser le tritium éventuellement présent. Le dioxyde de carbone produit par la combustion du végétal est prélevé ensuite par bullage dans l'hydroxyde de sodium (NaOH) ou dans un réactif de piégeage utilisé dans les oxidizer®.

La méthode permet ainsi d'effectuer le traitement de l'échantillon en vue d'extraire et de prélever simultanément le tritium et le carbone 14.

La soude piège le carbone issu de la combustion de la matrice biologique suivant la réaction suivante :



La difficulté de la méthode consiste à évaluer le rendement de combustion ainsi que le rendement de prélèvement du dioxyde de carbone dans la solution de piégeage. Il est possible de s'affranchir de cette difficulté en effectuant la combustion d'une quantité d'échantillon suffisante pour saturer la solution de piégeage (soude ou autre). Par exemple, une solution de soude 1M saturée en carbonate contient 6 g de carbone par litre de soude.

Ainsi, connaissant la masse maximum de carbone que la solution de piégeage peut absorber, on détermine facilement l'activité en carbone 14 par unité de masse de carbone au moyen de la concentration en carbone 14 dans la solution de piégeage par la formule :

$$Am(\text{Bq/kg de C}) = \frac{Av(\text{Bq/L})}{Mv(\text{kg/L})}$$

où A_v est l'activité volumique en carbone 14 mesurée dans la soude
 M_v est la masse de carbone contenue dans la soude saturée en carbonate

Pour exprimer l'activité du carbone 14 de l'échantillon en Bq/kg sec, il convient de connaître le taux de carbone dans l'échantillon, par exemple au moyen d'une analyse élémentaire.

La détermination de l'activité en carbone 14 prélevé dans de la soude se fait soit par mesurage direct d'une prise d'essai de quelques mL ajoutés à du liquide scintillant en proportions adaptées, soit par mesurage d'une aliquote d'environ 1 g de précipité de carbonate de baryum. Dans le premier cas, le seuil de décision est plus faible pour des concentrations de soude plus élevées pouvant contenir plus de carbone. Par exemple, en utilisant de la soude 2M, il est possible d'atteindre un seuil de décision de l'ordre de 200 Bq/kg de carbone avec des flacons de 20 mL pour une durée de comptage de quelques heures. L'utilisation d'un compteur à scintillation liquide de type Aloka LB7 permet d'analyser des plus grands volumes (jusqu'à 140 mL de mélange soude/scintillant) et d'atteindre des seuils de décision similaires à la méthode par oxidizer®, inférieurs à 100 Bq/kg de carbone pour une durée de comptage de quelques heures.

Dans le second cas, le précipité de carbonate est mesuré après séchage soit par scintillation liquide, soit au moyen d'un compteur proportionnel permettant d'atteindre des seuils de décision similaires à ceux obtenus par scintillation liquide.

L'utilisation de réactifs de piégeage tels que le Carbosorb® ou l'Oxysolve® C-400 permet d'obtenir des concentrations de saturation en carbone plus élevées qu'avec la soude et donc d'atteindre des seuils de décision plus faibles avec des flacons de scintillation de 20 mL.