

DÉVELOPPEMENT ET UTILISATION D'UN PIÉGEUR PASSIF POUR LA SURVEILLANCE DU TRITIUM ATMOSPHÉRIQUE

Pedro CALDEIRA IDEIAS^a, O. PIERRARD^a; D. TOURNIEUX^a; G. MANIFICAT^a; L. TENAILLEAU^b; P. BEGUINEL^c

^a Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire, PRP-ENV/SESURE/LS3E, 31 rue de l'écluse, BP 40035, 78116 Le Vésinet.

* pedro.caldeiraideias@irsn.fr

^b Groupe d'Etudes Atomiques de la Marine nationale, EAMEA - BCRM - CC19 - 50115 Cherbourg Octeville

^c Commissariat à l'énergie atomique et aux énergies alternatives, SPR – Saclay

RESUME

Pour compléter le panel des moyens de prélèvement de tritium, un projet a été mené au sein du Laboratoire de Surveillance et d'Expertise Environnementale par Echantillonnage (LS3E) de l'IRSN pour développer un système dit passif permettant de piéger le tritium atmosphérique (HTO). Ce préleveur passif permet d'atteindre les niveaux environnementaux (pas d'effet de dilution), de simplifier l'installation du dispositif sur le terrain (par son faible encombrement et l'absence d'alimentation électrique); des durées variables de prélèvements (1 à plusieurs dizaines de jours) et une utilisation à moindre coût, tant en investissement qu'en fonctionnement. Le dispositif développé a été testé en laboratoire et dans l'environnement. Les performances de cette nouvelle technique permettent d'envisager une utilisation en routine dans le cadre de la surveillance du tritium dans l'air et dans le domaine de la radioprotection.

INTRODUCTION :

Le tritium est omniprésent dans l'environnement, qu'il soit produit naturellement ou rejeté par l'industrie civile et par les installations dédiées aux applications militaires. Les prélèvements atmosphériques de tritium sont aujourd'hui couramment effectués par les différents acteurs de la surveillance en France à l'aide de barboteurs et, plus récemment, avec des condenseurs de vapeur d'eau.

Pour permettre la quantification des flux de radionucléides dans l'environnement, les programmes de surveillance doivent être adaptés à chaque étape de réalisation des installations nucléaires : de la construction au démantèlement, en passant par l'opération. Il faut s'assurer que les dispositifs effectuent un prélèvement qui soit représentatif du milieu. L'échantillon prélevé doit donc avoir toutes les propriétés du milieu échantillonné. Pour un objectif de surveillance radiologique, le principe de piégeage passif peut fournir une réponse opérationnelle à bas coût. Les méthodes de prélèvement passif sont particulièrement adaptées pour la surveillance à long terme de radionucléides dans l'environnement.

L'objectif de développer cette nouvelle technique est de permettre un échantillonnage du tritium représentatif du milieu surveillé et de répondre aux nouveaux besoins de la surveillance de l'environnement : fiabilité, simplicité et versatilité. Son utilisation pourra ainsi servir la surveillance régulière, les études de sites mais également les situations d'urgence radiologique.

METHODOLOGIE

Cette technique de prélèvement est basée sur la propriété de diffusivité moléculaire des gaz. Les molécules tritiées et l'eau diffusent de l'environnement vers le piège à tritium. Ce phénomène se produit grâce à un gradient de pression partielle négative entretenu par le média de piégeage (figure 1).

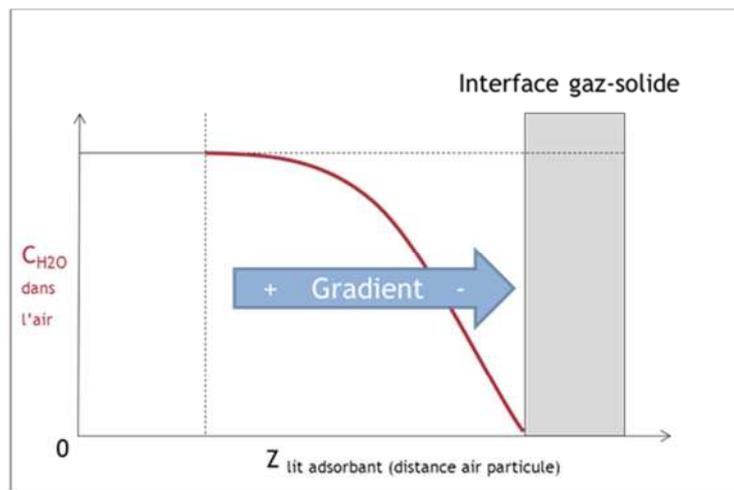


Figure 1 - Gradient de concentration de vapeur d'eau proche du lit de particules.

Pour un fonctionnement correct du piègeur passif, il est essentiel que le transport des molécules de l'air vers le dispositif soit effectué uniquement par diffusion moléculaire et que le média de piégeage ne soit jamais saturé. Après une période de prélèvement, le média est recueilli et subit une étape de désorption de l'eau tritiée piégée puis un comptage du tritium par scintillation liquide. Les mesures de l'hygrométrie de l'air et de sa température sont également réalisées lors du prélèvement, ce qui permet de déterminer l'humidité absolue de l'air et de définir ainsi la teneur en tritium : calcul de l'activité en $Bq.m^{-3}$ d'air, à partir du comptage par scintillation liquide en $Bq.L^{-1}$ d'eau.

Le piègeur passif est un dispositif de prélèvement constitué essentiellement par un matériel adsorbant qui prélève préférentiellement la vapeur d'eau tritiée, et par une barrière entre l'environnement et le support d'échantillonnage. Cette barrière est constituée par un couvercle et par une structure tronconique intérieure perforée. L'ensemble des deux composants maintient un taux de prélèvement constant par rapport à la disponibilité de la vapeur d'eau (standard et tritiée) dans l'environnement (figure 2). Le support d'échantillonnage est composé par un adsorbant qui joue le rôle de pompe (comme dans les systèmes dits actifs) et qui collecte le tritium simultanément. L'adsorbant retenu est le tamis moléculaire. Ce matériau solide est plus connu sur le nom de zéolite (aluminosilicate) et il est composé de structures cristallines formées d'unités tétraédriques. Cette matière a la particularité d'adsorber sélectivement les molécules des gaz. En jouant avec le diamètre des pores cet adsorbant peut piéger de petites molécules tout en excluant celles d'un diamètre supérieur.

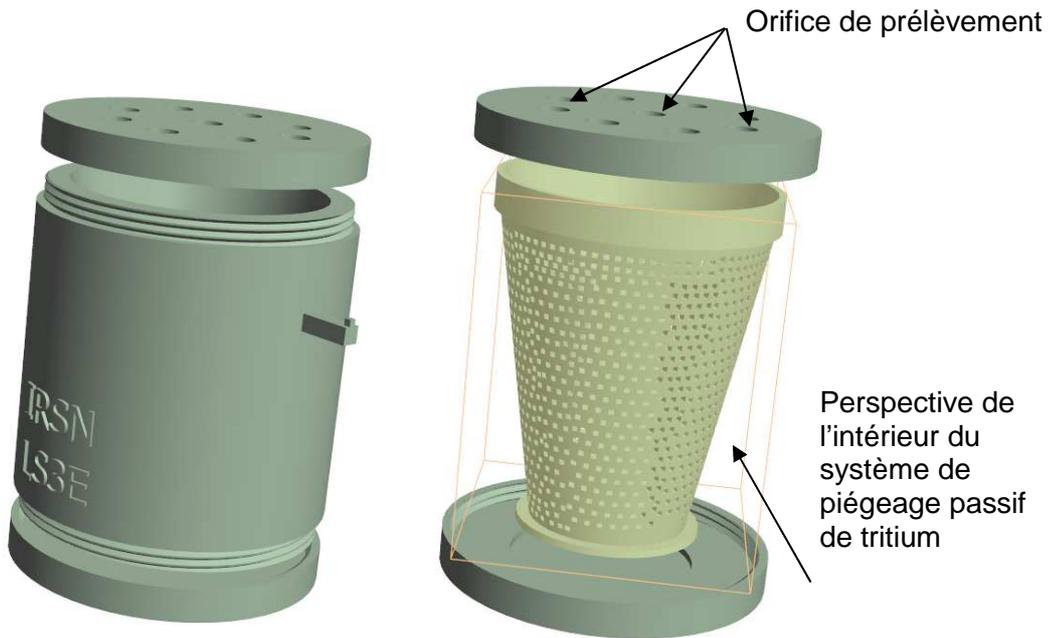


Figure 2 – Géométrie du préleveur passif tritium (Brevet IRSN n : WO2014037461)

RESULTATS/DISCUSSION

1) Réponse des préleveurs passifs en fonction du temps et de l'humidité relative

La réponse de linéarité de prélèvement de la vapeur d'eau atmosphérique par les piègeurs passifs a été étudiée dans différentes configurations (variation du flux d'air et du constituant) de la géométrie retenue. Cette réponse est illustrée sur la figure 3 représentant la prise d'eau des pièges au regard des variations de la disponibilité d'humidité dans l'atmosphère (en violet). La linéarité du prélèvement a été vérifiée pendant 52 jours dans l'environnement et pour des conditions variables d'hygrométrie.

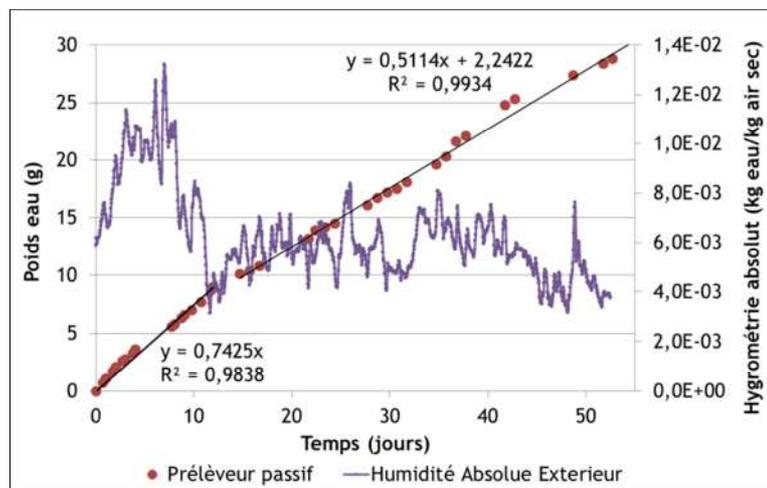


Figure 3 - Représentation graphique de la réponse des préleveurs passifs dans l'environnement

2) Caractérisation de la capacité de piégeage du tritium

Les données des tests effectués en laboratoire (IRSN et Marine Nationale) et dans l'environnement (IRSN et CEA de Saclay) sont exposées dans la figure 4. Les résultats montrent une très bonne corrélation entre les moyens classiques de prélèvement actif par condenseur et le dispositif de prélèvement passif. On peut en déduire que la gamme d'utilisation de ce dernier est potentiellement très importante, depuis les bas niveaux d'activités proches du bruit de fond naturel ou rencontrés à proximité d'installations rejetant peu de tritium, comme les niveaux très élevés (plus de 10 kBq/L) correspondant aux activités les plus élevées rencontrées dans les cheminées de certaines usines.

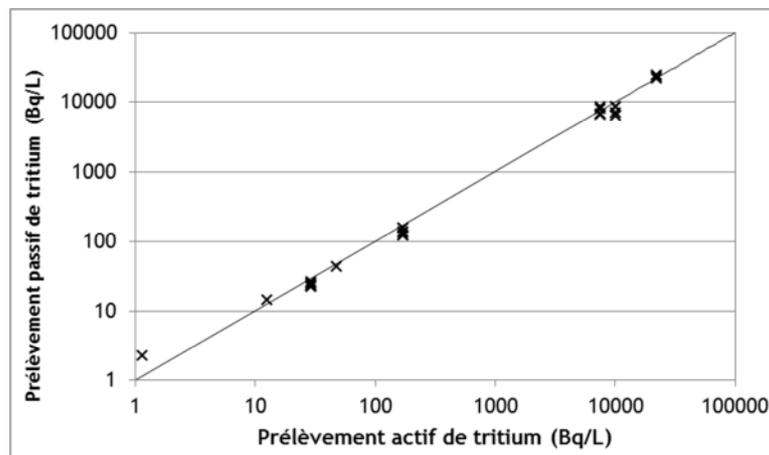


Figure 4 - Rapport de l'activité en tritium mesurée avec les pièges passifs sur l'activité mesurée avec des moyens actifs (activités mesurées dans l'eau extraite du piège)

CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

Le développement et la mise en situation de préleveurs passifs de tritium montrent que leur utilisation est possible dans le cadre de programmes de surveillance de l'environnement. Les tests effectués en laboratoire et dans des conditions réelles en présence de tritium ont permis de vérifier la linéarité de prélèvement avec ces piègeurs, sur une plage de 1 à 50 jours environ. Les mesures effectuées simultanément avec les préleveurs passifs et les systèmes actifs de prélèvement (condenseur de tritium et barboteur) ont démontré la bonne concordance des résultats.

Le champ d'application ouvert par ces dispositifs passifs concerne la surveillance radiologique de l'environnement en situation de routine, comme en cas d'accident. Ce dispositif permet également d'envisager, à moindre coût, la réalisation de cartographies radiologiques sur le terrain, d'être utilisés en situation de crise sur des durées de prélèvement courtes de l'ordre de 24h, mais aussi dans les études de postes en radioprotection.

Dans le cadre de la poursuite de ce projet, de nouveaux axes de développement et de recherche seront menés pour :

1. la miniaturisation / simplification de l'étape de désorption ;
2. la qualification des pièges pour d'autres formes du tritium ou d'autres radionucléides comme le carbone 14.