

DE LA RECHERCHE À L'INDUSTRIE



# TRAÇAGE DE LA DISPERSION DES SÉDIMENTS CONTAMINÉS DANS LES RIVIÈRES DE FUKUSHIMA À PARTIR DE MESURES ISOTOPIQUES D'U ET DE PU

## RÉSULTATS DE LA THÈSE D'HUGO JAEGLER, SOUTENUE LE 19/09/2018



FABIEN POINTURIER<sup>1</sup>, HUGO JAEGLER<sup>1,2</sup>, AMÉLIE HUBERT<sup>1</sup>,  
ANNE-CLAIRE HUMBERT<sup>1</sup>, J. PATRICK LACEBY<sup>2</sup>, OLIVIER EVRARD<sup>2</sup>

1 : CEA, DAM, DIF, 91297 Arpajon, France

2 : Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement (LSCE),  
UMR 8212 (CEA/CNRS/UVSQ), Gif-sur-Yvette, France

[www.cea.fr](http://www.cea.fr)

# PLAN DE LA PRÉSENTATION

## 1) Introduction

- Contexte et objectifs de l'étude
- Termes sources
- Contraintes au niveau analytique

## 2) Instruments et méthodes

- Méthodes de purification chimique
- Instruments et méthodes pour les mesures isotopiques

## 3) Deux exemples de résultats

- Pu et U dans une carotte de sédiment de lac (barrage de la rivière Mano)
- Pu dans les sédiments de la rivière Niida

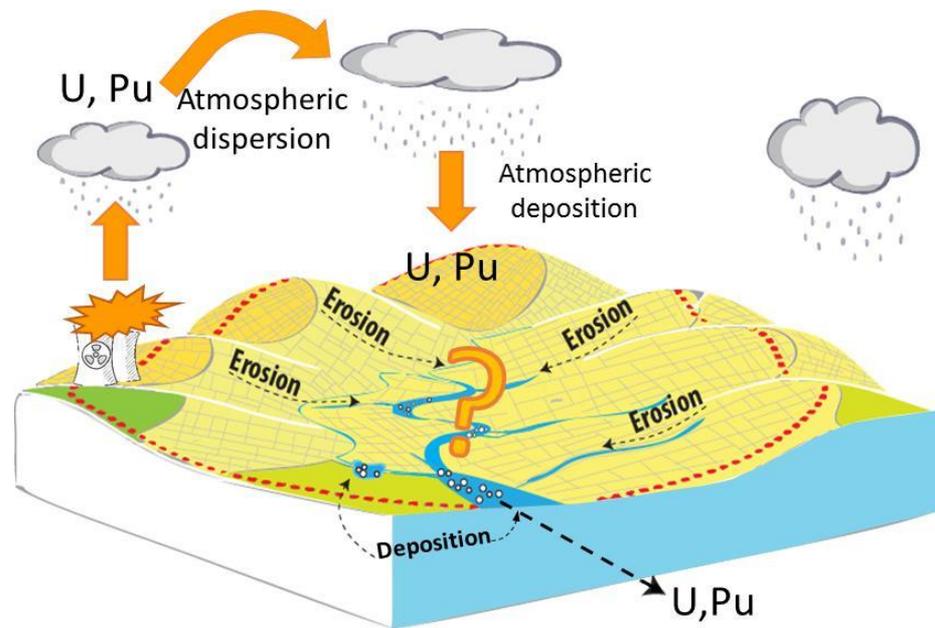
## 4) Conclusions et perspectives

# 1 – CONTEXTE ET OBJECTIFS DE L'ÉTUDE

- Accident de la centrale de Fukushima (mars 2011) :
  - >99% de la radioactivité relâchée est constituée par des radionucléides volatils  $^{131}\text{I}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{133}\text{Xe}$ ,  $^{85}\text{Kr}$ , etc. (beaucoup d'émetteurs  $\gamma$ , périodes courtes).
  - Activité Pu émise :  $\sim 1-2 \times 10^9$  Bq de  $^{239}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu}$ .
  - A titre de comparaison :
    - Retombées Globales :  $\sim 10^{16}$  Bq de  $^{239}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu}$ .
    - Tchernobyl :  $\sim 10^{14}$  Bq de  $^{239}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu}$ .
  - A partir de 2012, plusieurs études montrent la présence de Pu issu de la centrale.

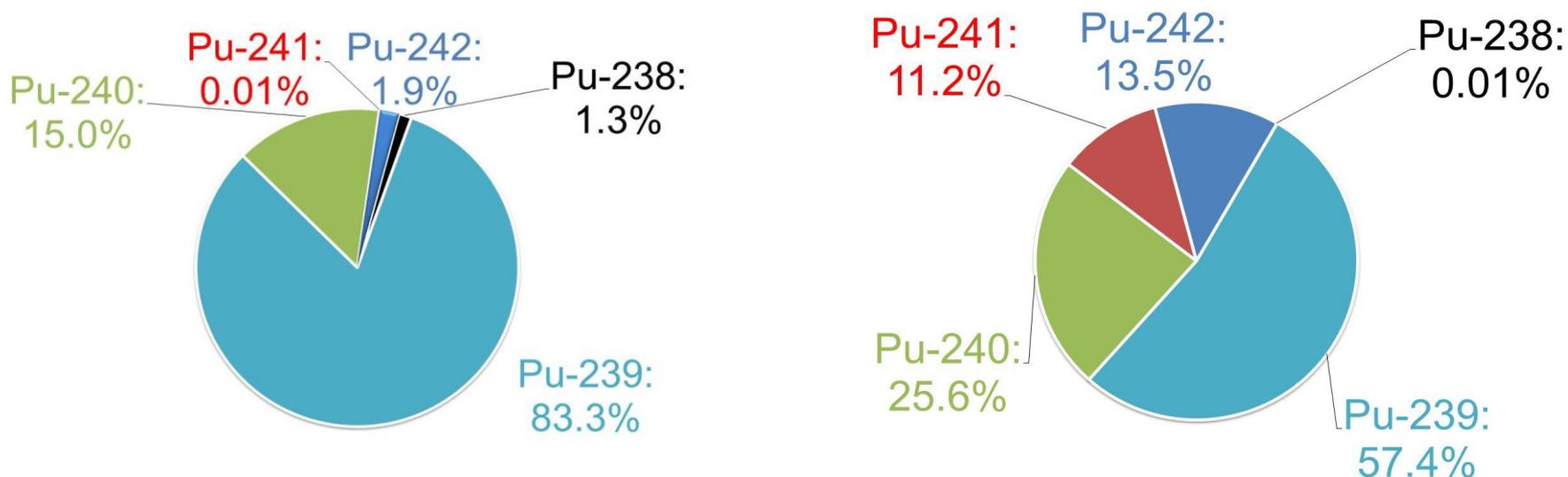


- Termes sources en U et Pu :
  - Impact radiologique négligeable.
  - Utilisation potentielle en tant que **traceurs de la dispersion des sédiments contaminés** le long des rivières drainant le panache de contamination de Fukushima.
  - Forte influence des **typhons estivaux** et des **crues printanières** sur l'érosion des sols.
  - Prise en compte des **opérations de remédiation** entreprises par les autorités japonaises (décapages de surface).



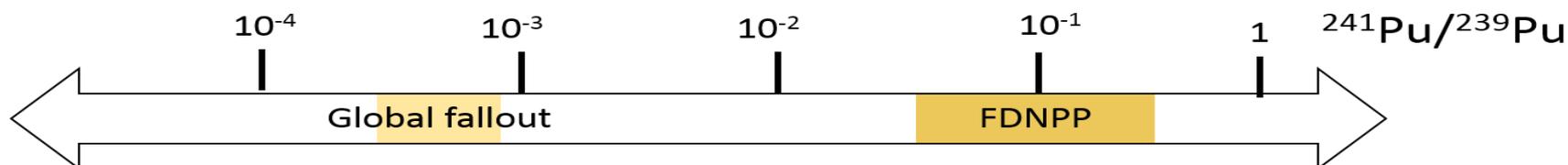
# 1 – SOURCES DE PLUTONIUM

- 2 sources :
  - Réacteurs de **Fukushima-Daiichi NPP** (FD-NPP).
  - Les **retombées globales** des essais nucléaires atmosphériques.
- Intérêt particulier pour l'isotope  $^{241}\text{Pu}$  ( $T_{1/2} = 14,4$  ans).



**Retombées globales** (Kelley et al. 1976)

**FDNPP** (Schwantes et al. 2012)

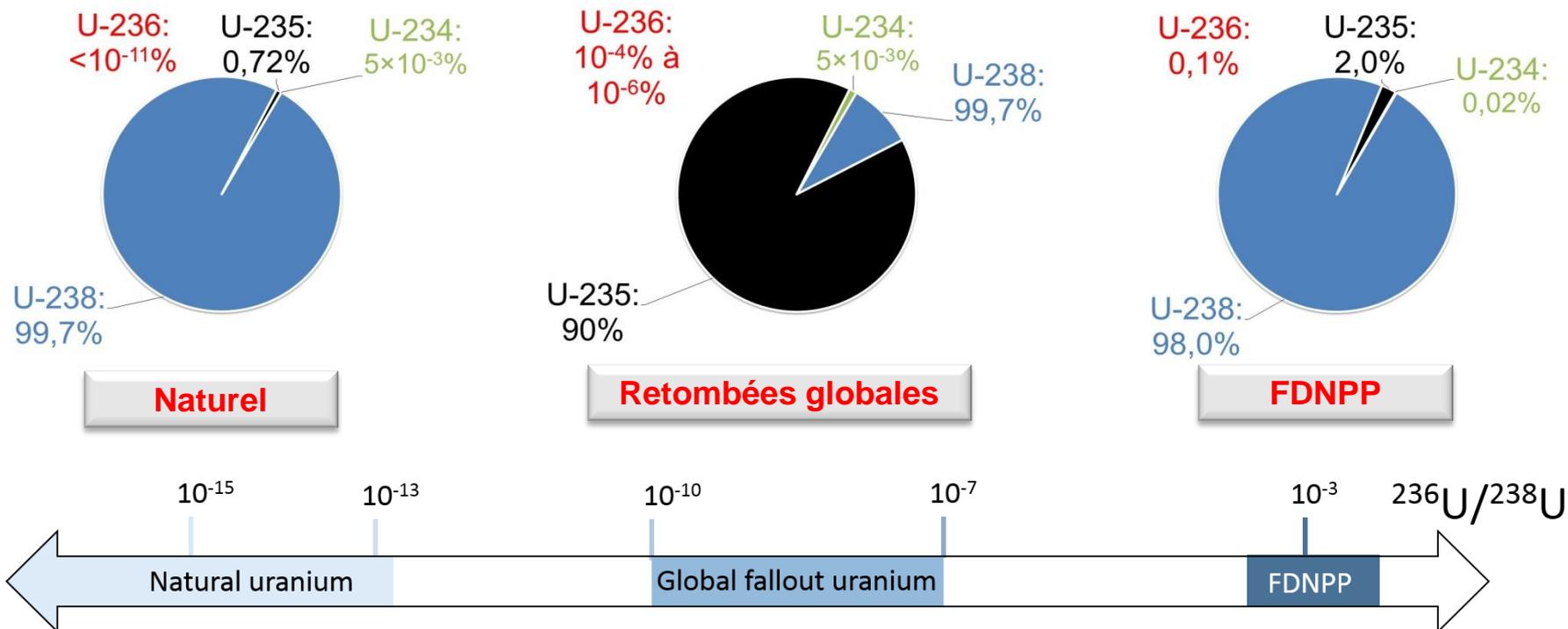


# 1 – SOURCES D'URANIUM

■ 3 sources :

- Réacteurs de **FD-NPP**.
- Les **retombées globales** des essais nucléaires atmosphériques.
- L'**U naturel** du sol.

■ Intérêt particulier pour l'isotope **<sup>236</sup>U**.



# 1 – CONTRAINTES ANALYTIQUES

## Pour le Pu :

- Teneurs en Pu issues de FD-NPP extrêmement faibles : **quelques fg Pu total / g de sédiment ou sol** (quelques  $\mu\text{Bq/g}$  de  $^{239+240}\text{Pu}$ ).
- Pour les abondances, mesure de tous les isotopes :  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ ,  **$^{241}\text{Pu}$** ,  $^{242}\text{Pu}$ .

## Pour l'U :

- Teneurs en U issues de FD-NPP extrêmement faibles : **quelques fg  $^{236}\text{U}$  total / g.**
- Mesure de tous les isotopes :  $^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{234}\text{U}$ ,  **$^{236}\text{U}$**
- **Rapports  $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$  très faibles** car U naturel majoritaire : probablement  **$< 10^{-8}$** .

## Conséquences sur les méthodes d'analyse :

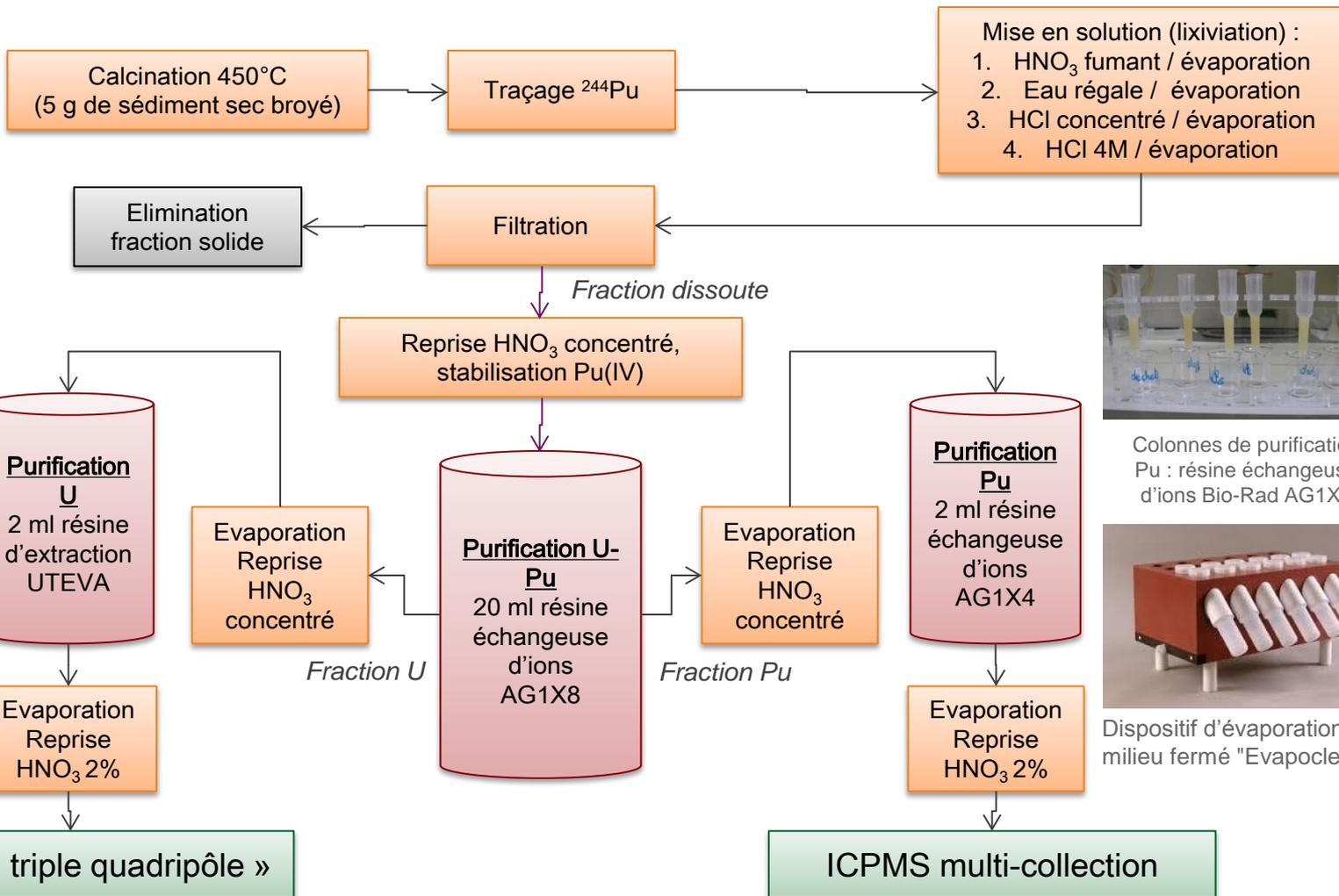
- Prises d'essai suffisantes : **5 g** de sol ou sédiment.
- **Purifications radiochimiques** très efficaces (rendements élevés, élimination matrice).
- Réalisation de mesures **isotopiques** pour déterminer les proportions des différents T.S.  
⇒ **spectrométrie de masse**.
- Besoin d'une sensibilité extrêmement élevée ⇒ **ICPMS** .

## 2 – PURIFICATION CHIMIQUE

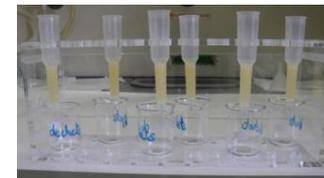
**Nombreuses précautions pour éviter les contaminations** par l'ambient et les contaminations croisées (nettoyages systématiques de la verrerie, minimisation des contacts avec l'atmosphère, etc.).



Calcination à 450°C



Colonnes de purification U-Pu

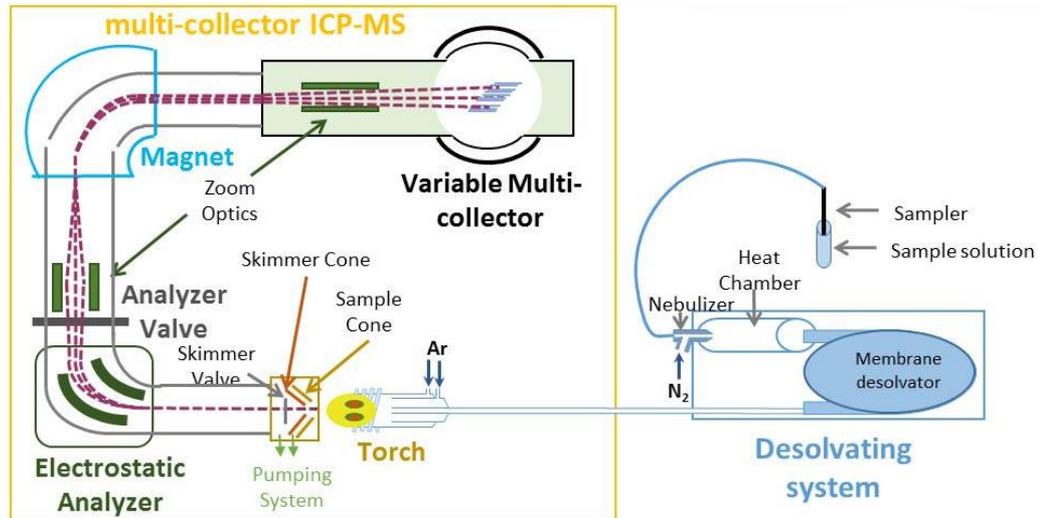


Colonnes de purification Pu : résine échangeuse d'ions Bio-Rad AG1X4



Dispositif d'évaporation en milieu fermé "Evapoclean"

## 2 – MESURES ISOTOPIQUES DU PU PAR ICP-MS MULTI-COLLECTION

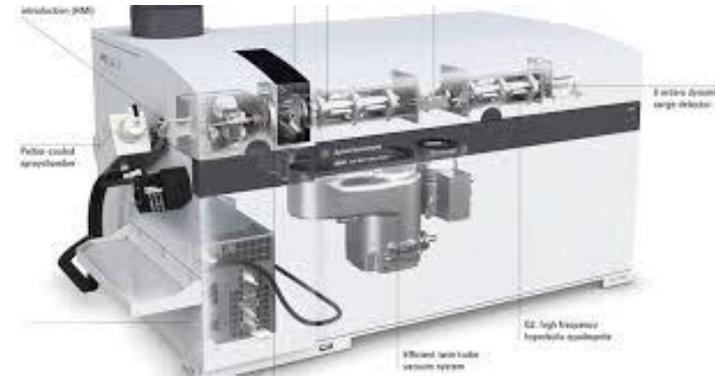


ICP-MS multi-collection Thermo-Scientific « Neptune Plus »

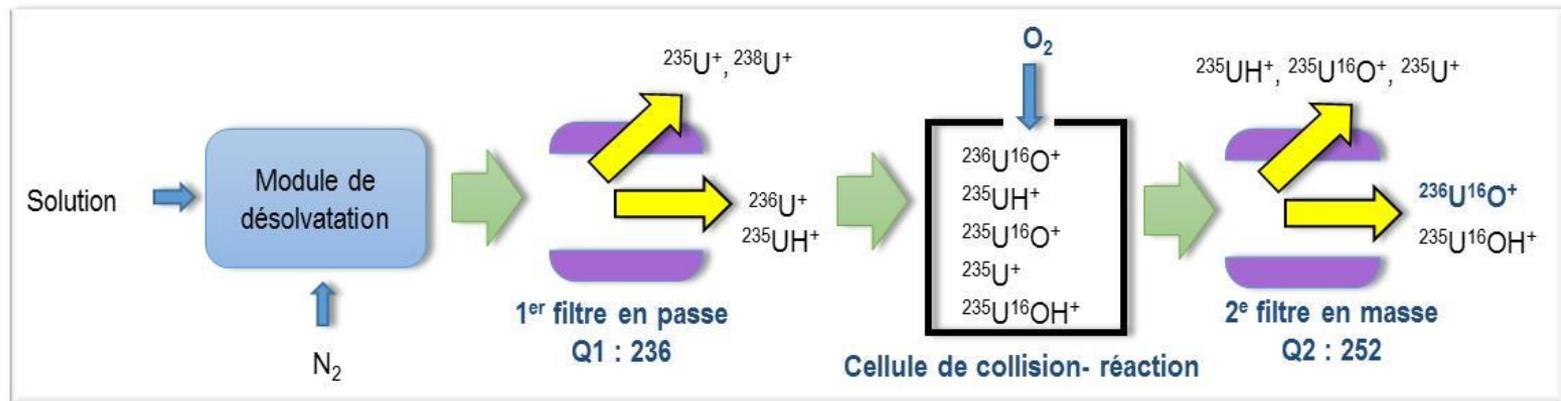
- Optimisation sensibilité :  $2 \times 10^8$  coups/s par  $\mu\text{g/L}$  ( $\times 100$  / ICPMS quadripolaire).
- **Limites de détection** :  $< 1$  fg pour les isotopes du Pu.
- Nombreuses **corrections** de biais et d'interférences :
  - Biais de masse.
  - Gains des détecteurs (multiplicateurs d'ions secondaires – SEM).
  - Bruit de fond des détecteurs.
  - Correction des impuretés isotopiques du traceur (surtout  $^{240}\text{Pu}$  et  $^{242}\text{Pu}$ ).
  - Corrections de pied de pic :  $^{238}\text{U}$  sur  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$  et  $^{241}\text{Pu}$ .
  - Corrections des **interférences poly-atomiques** ( $\text{UH}^+$ ,  $\text{PbO}_2^+$ ).

## 2 – MESURES DES RAPPORTS ISOTOPIQUES $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ PAR ICP-MS « TRIPLE-QUADRIPOLE »

- Rapports  $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$  attendus :  $10^{-7}$  à  $10^{-10}$ .
- Mesure des rapports  $< 5 \times 10^{-7}$  difficile avec les ICPMS/MC (« pied de pic » et interférence  $^{235}\text{UH}^+$ ).
- Utilisation d'ICPMS « triple-quadripôle » (ICPMS/MS) et développement de méthodes d'analyse :
  - « Pieds de pic » du  $^{238}\text{U}$  et  $^{235}\text{U}$  négligeables.
  - Mesure des  $\text{UO}^+$  pour réduire l'influence des  $^{235}\text{UH}^+$  ( $\text{UH}^+/\text{U}^+ \sim 10^{-5}$ ,  $\text{UOH}^+/\text{UO}^+ \sim 10^{-10}$ ).



ICPMS triple-quadripôle (Agilent 8800)



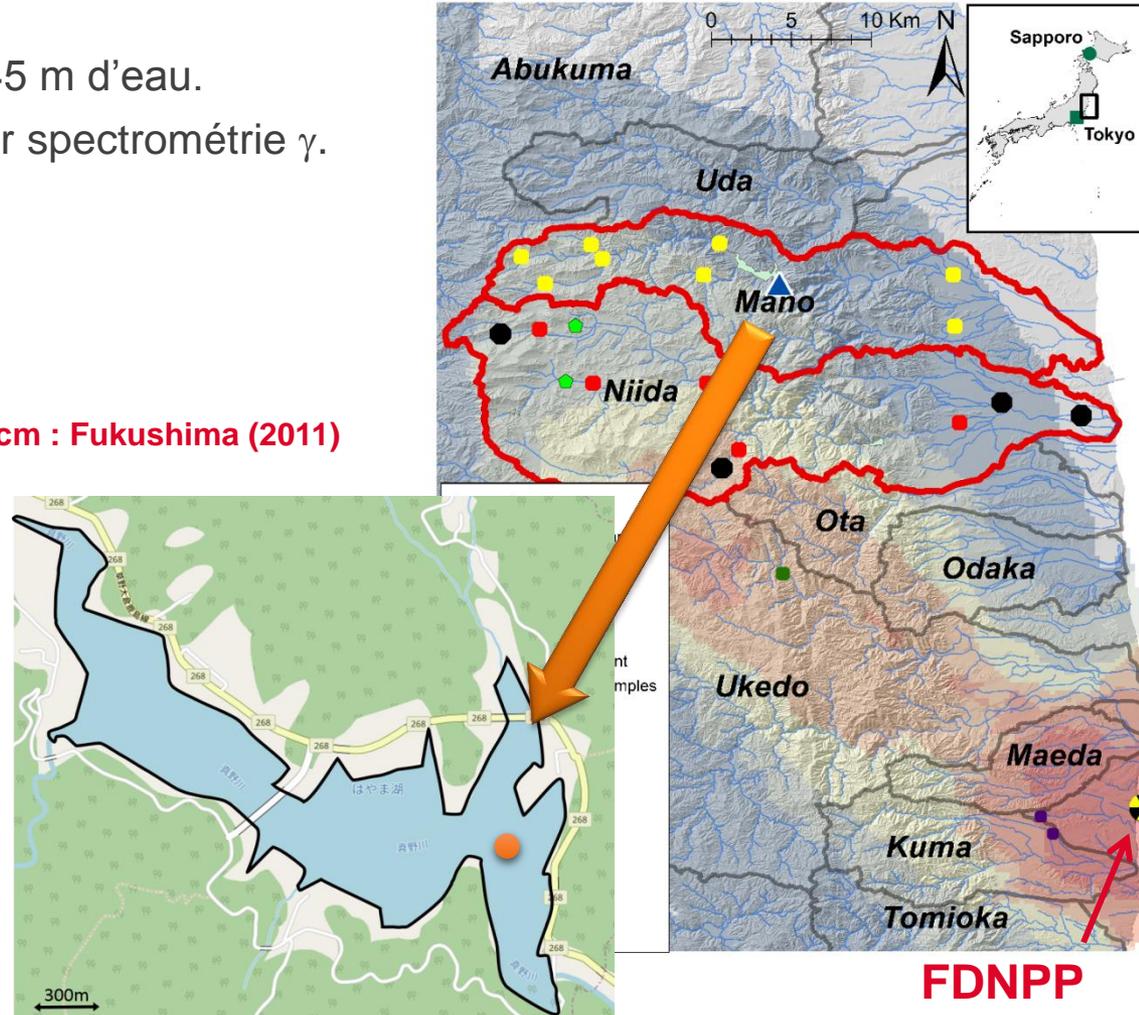
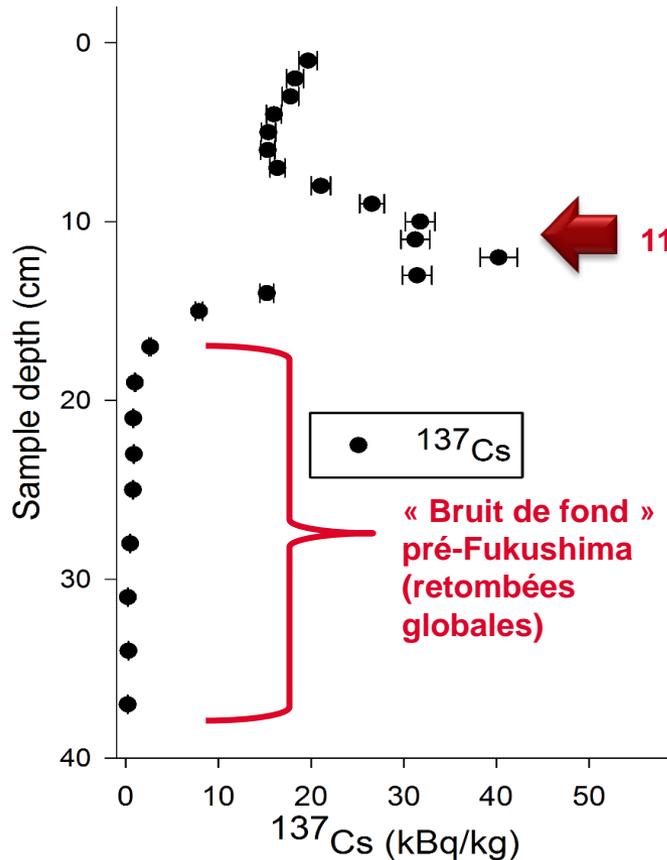
- Analyses réalisées :
  - Au **CEA Saclay** (DEN/DPC/SEARS/LANIE) – **Hélène Isnard** et **Sylvia Diez-Fernandez**.
  - A l'**IRSN Fontenay-aux-Roses** (PSE/ENV – SEDRE/LELI) – **Alkis Gourgiotis**

# 3 – RÉSULTATS : ANALYSE D'UNE CAROTTE DE SÉDIMENTS DE LA RIVIÈRE MANO



■ Carotte prélevée en avril 2015 près du barrage de la rivière Mano :

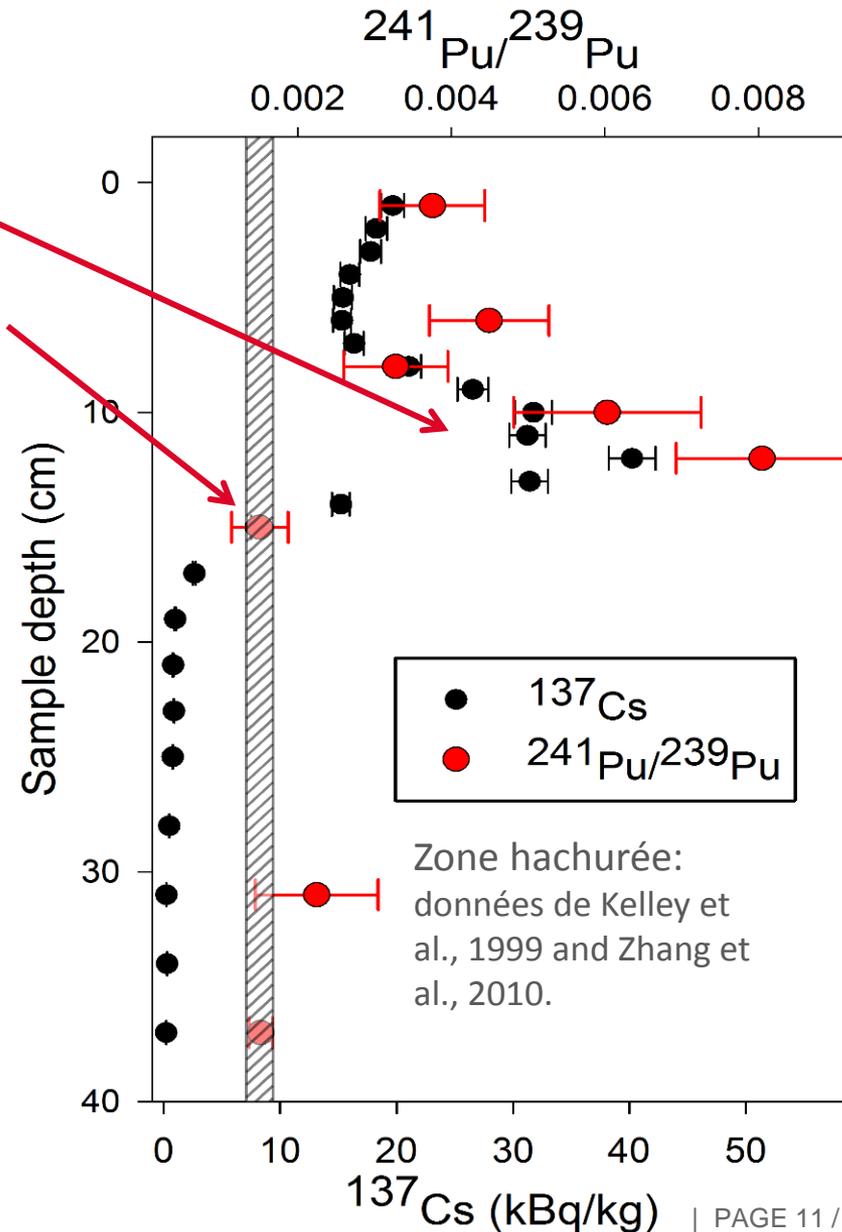
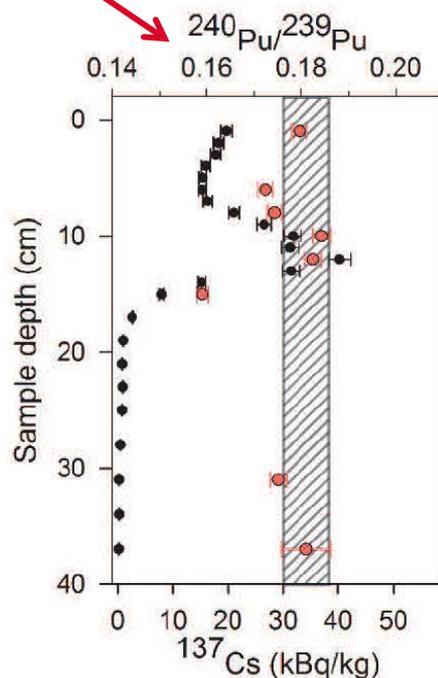
- 40 km au NO de FD-NPP.
- 37 cm de sédiment, sous 45 m d'eau.
- Mesure initiale du  $^{137}\text{Cs}$  par spectrométrie  $\gamma$ .



### 3 – RÉSULTATS : ANALYSE D'UNE CAROTTE DE SÉDIMENTS DE LA RIVIÈRE MANO (PU)

#### Rapports atomiques $^{241}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$

- **Bonne corrélation** entre le rapport atomique  $^{241}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  et l'activité en  $^{137}\text{Cs}$ .
- Bon accord entre les rapports  $^{241}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  mesurés et les données bibliographiques sur les retombées globales.
- Par contre, la mesure des rapports  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  ne permet pas de distinguer les deux sources.

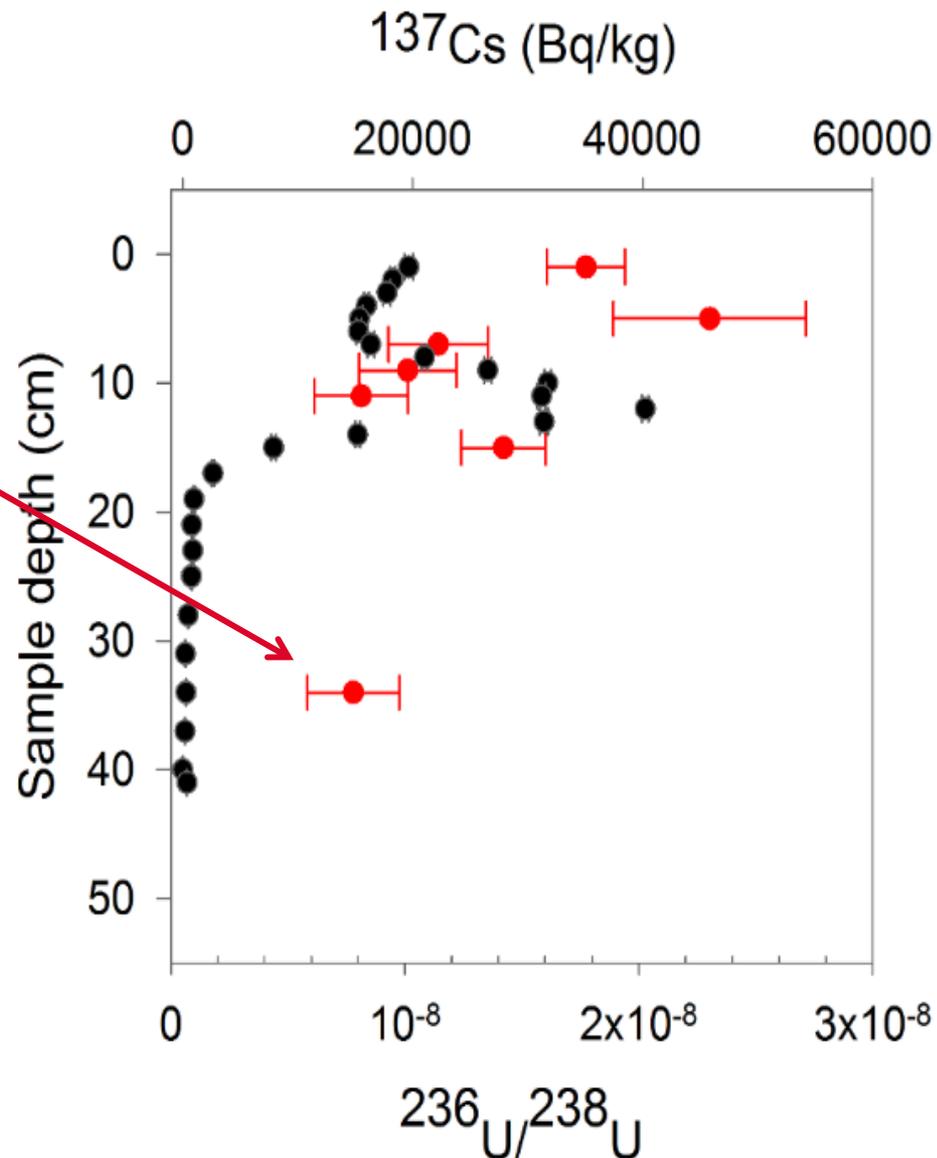
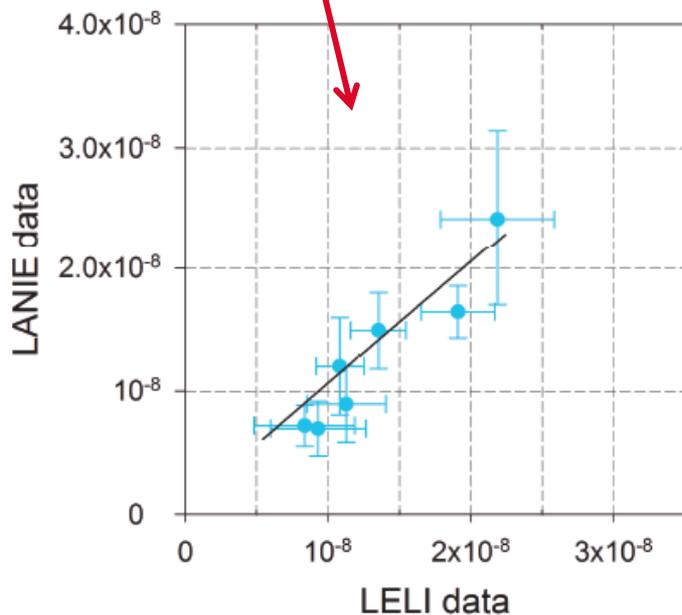


Publication acceptée dans *Chemosphere*

### 3 – RÉSULTATS : ANALYSE D'UNE CAROTTE DE SÉDIMENTS DE LA RIVIÈRE MANO ( $^{236}\text{U}$ )

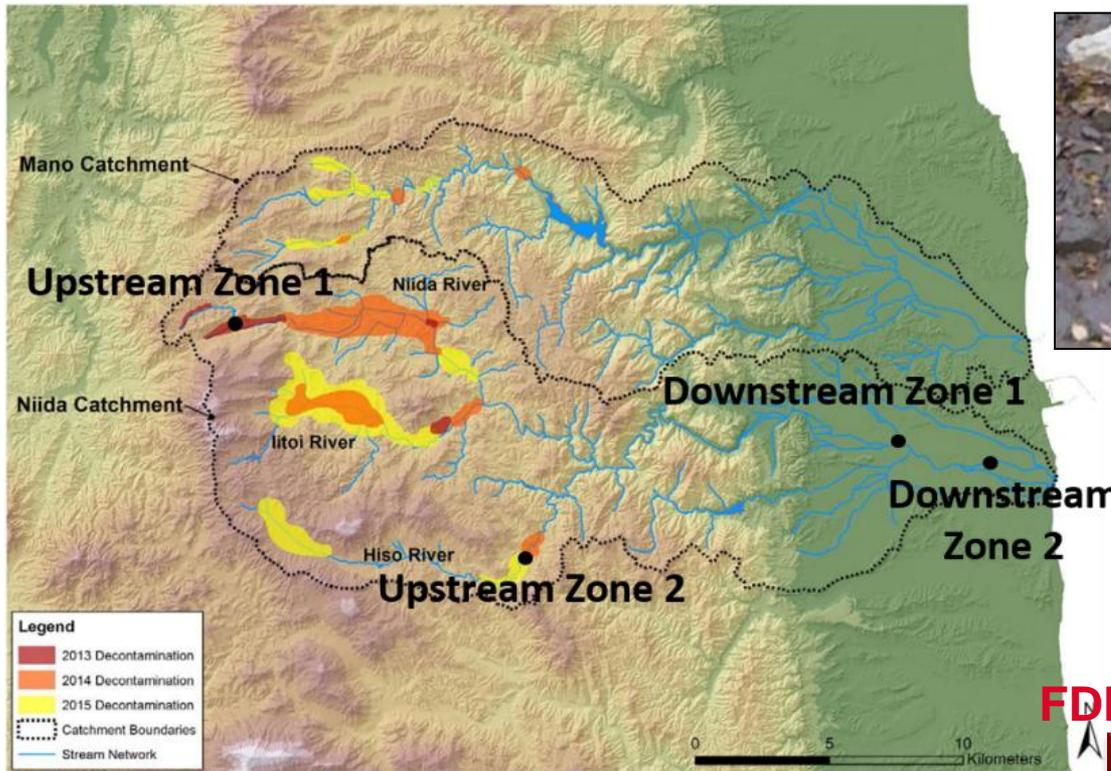
#### Rapports atomiques $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$

- Mesure de **rapports  $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$  très faibles** : entre  $7 \times 10^{-9}$  et  $3 \times 10^{-8}$ .
- Pas de corrélation** entre les rapports  $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$  et les activités en  $^{137}\text{Cs}$ .
- Estimation du **bruit de fond local dû aux retombées globales** :  $\sim 7 \times 10^{-9}$ .
- Bon accord entre les mesures réalisées par les deux laboratoires.



# 3 – RÉSULTATS : ANALYSE DU PU DANS DES SÉDIMENTS DE LA RIVIÈRE NIIDA

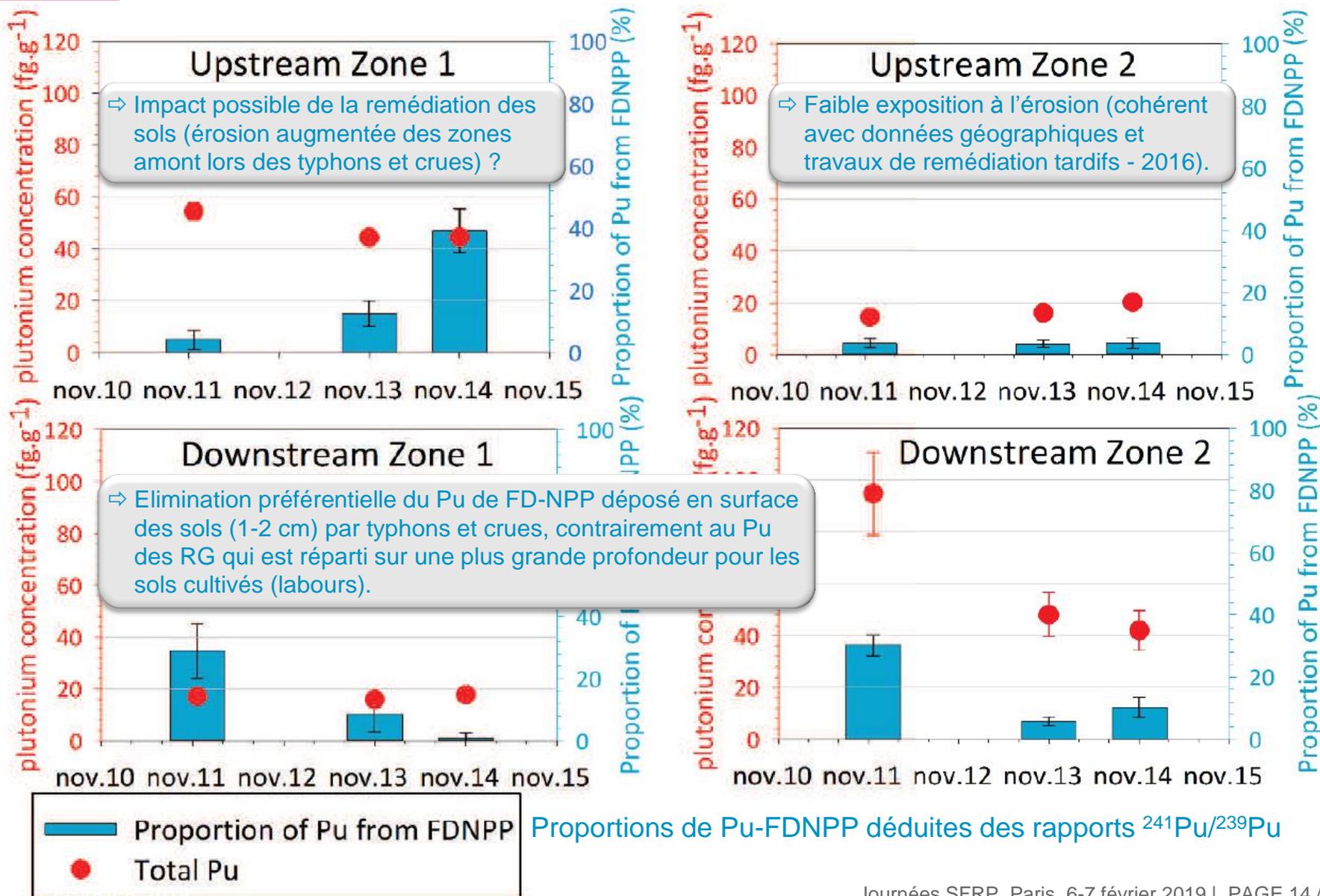
- Prélèvements de **sédiments** (laisses de crues) à 3 périodes différentes (novembre 2011, novembre 2013 et novembre 2014) et en 4 points différents ⇒ **Evolution dans l'espace et le temps** du marquage en Pu.
- Séchage, broyage, tamisage, mesures de contrôle par spectrométrie  $\gamma$ .
- Travaux de **remédiation des sols cultivés dès 2013** (décapage de surface) surtout dans la zone amont 1.



H. Jaegler et al.  
*Environmental Pollution*  
**240** (2018) 167-176



# 3 – RÉSULTATS : ANALYSE DU PU DANS DES SÉDIMENTS DE LA RIVIÈRE NIIDA



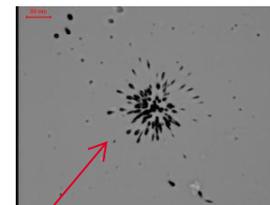
## 4 – CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

### Conclusions

- Pertinence du rapport  $^{241}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  comme indicateur du Pu produit dans les réacteurs.
- **Détections de Pu de FD-NPP jusqu'à 50 km au NO** du point d'émission.
- La masse de  $^{241}\text{Pu}$  totale issue de FD-NPP déposée est estimée à **~100 mg** !
- **Diminution globale des teneurs en Pu** de FD-NPP, plus rapidement que le Pu des RG.

### Perspectives

- Analyses (rapports atomiques du Pu et  $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ ) d'**autres échantillons**.
- Recherche et caractérisation de **particules contenant des actinides** par
  - Repérage des particules contenant du plutonium par **autoradiographie  $\alpha$** .
  - Caractérisation morphologique et élémentaire par **MEB**.
  - Caractérisation isotopique par spectrométrie de masse à ions secondaires (**SIMS**).



Impact de particules  $\alpha$  sur du polycarbonate



Microscope électronique à balayage à effet de champs FEI « Quanta 3D FEG »



Spectromètre de masse à ions secondaires (SIMS) CAMECA IMS-7f