

UTILISATION DU PIÉGEAGE PASSIF POUR LA SURVEILLANCE DU TRITIUM ATMOSPHERIQUE

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

^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

INTRODUCTION

Le tritium est omniprésent dans l'environnement, qu'il soit produit naturellement ou qu'il soit rejeté par les industries civiles ou par celles dédiées aux applications militaires. En France, une trentaine d'installations nucléaires produisent et rejettent du tritium sous trois formes différentes : hydrogène tritié (HT), eau tritiée (HTO, T₂O) ou sous la forme de composés organiques volatiles (ex : CTH₃). Il fait partie, avec les gaz rares et le carbone 14, des radionucléides les plus rejetés actuellement par les installations nucléaires. La mesure de ces radionucléides dans l'atmosphère (gaz, eaux de pluie) a donc une importance primordiale pour asseoir une surveillance pertinente des rejets des installations, comprendre les transferts de ce radionucléide dans l'environnement et in fine évaluer/consolider la connaissance sur les impacts écologiques et sanitaires. Si la mesure directe du tritium est relativement développée pour la surveillance des rejets aux cheminées, les niveaux d'activités dans l'atmosphère extérieure sont trop faibles pour permettre d'envisager cette solution technique et nécessitent de recourir à l'analyse sur prélèvement. Ainsi, la surveillance environnementale du tritium dans l'air repose aujourd'hui en France sur la réalisation de prélèvements par barboteurs, plus récemment par des condenseurs, suivie d'analyses par scintillation liquide en laboratoire. Efficaces et fiables, ces dispositifs présentent néanmoins deux inconvénients majeurs : leur coût et leur besoin en alimentation, parfois peu compatibles avec les besoins d'une expertise environnementale.

En 2012, l'IRSN s'est intéressé au développement d'une technique alternative de prélèvement, basée sur le piégeage passif du tritium représentatif du milieu atmosphérique, et permettant d'apporter simplicité de mise en œuvre, faible coût, sans perdre en fiabilité et en versatilité.

PRINCIPE DE FONCTIONNEMENT DU PIERGEUR PASSIF

Le piègeur passif est un dispositif de prélèvement constitué par un matériel adsorbant, le tamis moléculaire, et par une barrière entre l'environnement et le support d'échantillonnage. Le tamis moléculaire étant une substance très hydrophile, sans une barrière permettant de maîtriser le flux de vapeur d'eau piégé, il serait saturé en très peu de temps, bien avant la fin de la période de prélèvement souhaitée. Cette barrière est constituée par un couvercle et par une structure tronconique intérieure perforée (figure 1). L'ensemble des deux composants permet de maintenir un taux de prélèvement constant pendant toute la durée de prélèvement. Pour faire un parallèle avec les systèmes de prélèvement actifs (barboteur par exemple), le tamis moléculaire joue à la fois le rôle de pompe et de média de collecte du tritium. Le tamis moléculaire choisi (zéolithe en aluminosilicate) a la particularité d'adsorber sélectivement les molécules dont le diamètre est inférieur à la taille des pores de sa structure cristalline tout en excluant celles d'un diamètre supérieur. Le dimensionnement du modèle développé par l'IRSN permet de faire varier la surface d'échange (modèle de couvercle perforé) pour ajuster la durée de prélèvement entre 1 et 30 jours.

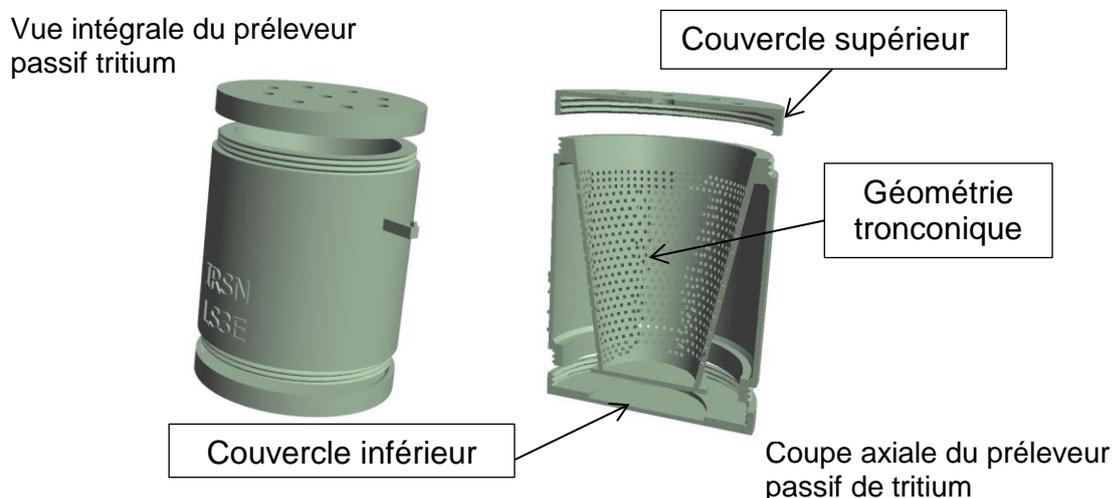


Figure 1 - Géométrie du préleveur passif tritium (Brevet IRSN n : WO2014037461)

A la fin de son exposition dans l'atmosphère à échantillonner, le piègeur est envoyé vers le laboratoire où la récupération du tritium à doser est effectuée à l'aide d'un système de désorption. La désorption est effectuée en chauffant le tamis moléculaire à 400°C sous un flux de 10 L.h⁻¹ d'azote. La vapeur d'eau tritiée piégée ainsi libérée est collectée par un piège froid. Un échantillon de 10 ml de l'eau ainsi recueillie est ensuite analysé classiquement. La conversion en Bq/L vers un résultat en Bq/m³ d'air est réalisée sur la base des données d'hygrométrie relative et de température enregistrées par un dispositif autonome.

$$A_{\text{tritium, air}}(\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}) = A_{\text{tritium, échantillon}}(\text{Bq} \cdot \text{L}^{-1}) \times \text{quantité d'eau par mètre cube d'air} (\text{L} \cdot \text{m}^{-3})$$

MISE EN ŒUVRE DES PIEGEURS DANS LE CADRE D'UNE SURVEILLANCE OPERATIONNELLE

Après une phase de développement et de caractérisation (CALDEIRA IDEIAS et al., 2016) de 2012 à 2015, l'IRSN a réalisé, en collaboration avec le CEA et EDF, plusieurs campagnes de mesure du tritium avec ces piègeurs passifs déployés dans l'environnement du CNPE de Gravelines et du CEA de Saclay. Dans l'objectif de tester ces dispositifs pour des niveaux d'activités plus importants, les rejets du CEA de Saclay ont également été suivis par cette technique. Pour l'environnement, les tests ont montré non seulement une très bonne

concordance avec les activités mesurées par les dispositifs existants (eaux de pluie et barboteurs) mais aussi une sensibilité bien meilleure permettant de détecter plus fréquemment du tritium : en effet, le piégeage passif n'induit pas une dilution du prélèvement, il est possible de détecter des niveaux d'activités moins élevés de tritium dans l'air. Concernant les effluents, les résultats obtenus avec les piègeurs passifs ont été globalement supérieurs de 10-20% à ceux mesurés par le barboteur, traduisant une éventuelle perte d'une partie du prélèvement par ce dernier dispositif.

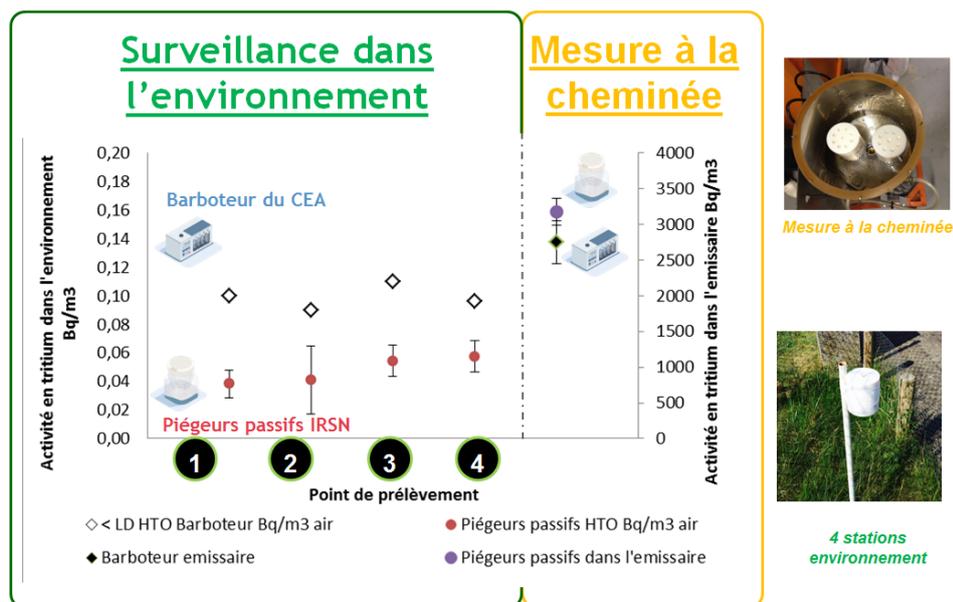


Figure 2 – Exemple de la comparaison des résultats en tritium avec les barboteurs et les préleveurs passifs

CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

Les premières mises en œuvre des préleveurs passifs pour la surveillance du tritium dans les effluents gazeux et dans l'environnement, ont montré une excellente adéquation avec les besoins opérationnels des programmes de surveillance de l'environnement actuels. 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 pour des études ou suite à une pollution radiologique par du tritium. Leur utilisation dans le cadre des contrôles d'ambiance et de la radioprotection de l'homme est en cours d'étude également. Dans le cadre de la poursuite de ce projet, de nouveaux axes de développement et de recherche seront menés visant :

- la miniaturisation / simplification de l'étape de désorption ;
- la qualification des pièges pour d'autres formes du tritium et le carbone 14.

REFERENCES

- Caldeira Ideias P., (2014), Prélèvement du tritium atmosphérique, Rapport IRSN PRP/SESURE/2014-24
- Caldeira Ideias P., Pierrard, O., Tournieux D., Manificat G., Tenailleau L., (2016), Développement d'un piègeur passif pour la surveillance du tritium atmosphérique, Radioprotection (sous-press)