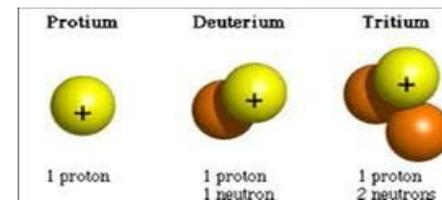


DE LA RECHERCHE À L'INDUSTRIE



Analyse des différentes formes de tritium à très bas niveau dans l'environnement.



IRSN

INSTITUT
DE RADIOPROTECTION
ET DE SÛRETÉ NUCLÉAIRE

Nicolas Baglan : CEA/DAM/DIF
Catherine Cossonnet - IRSN/PRP-ENV/STEME/LMRE,

www.cea.fr

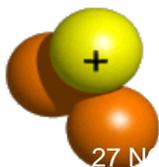
SFRP – PARIS – 20 Novembre 2013

① Généralités

- ➔ Données physico-chimiques
- ➔ Origine
- ➔ Comportement
- ➔ Différentes formes de tritium dans les échantillons de l'environnement

② L'analyse du tritium dans les échantillons de l'environnement

- ➔ Références
- ➔ Mise en forme de l'échantillon avant mesure
- ➔ Outils analytiques mis en jeu



1 proton
2 neutrons

³H généralités :

■ Données physico-chimiques :

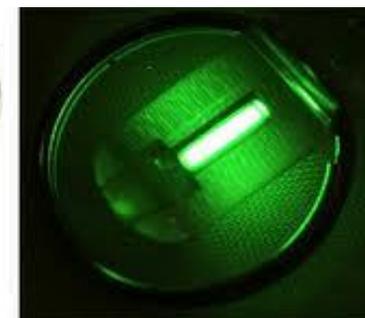
■ Période : $T_{1/2} = 12,312 \pm 0,025$ a (*)

■ $E_{\beta \text{ max}} = 18,564 \pm 0,003$ keV et $E_{\beta \text{ moy}} = 5,68 \pm 0,01$ keV (*)

■ $A_{\text{sp}} = 3,58 \cdot 10^{14}$ Bq.g⁻¹ ou 358 TBq.g⁻¹

■ Equation de désintégration ${}^3\text{H} \longrightarrow {}^3\text{He} + e^{-} + \bar{\nu}$

■ Isotope de l'hydrogène qui peut intégrer toutes les molécules contenant de l'hydrogène dont celles du vivant



Tritium



1 proton
2 neutrons

(*) LNHB/CEA – Table de radionucléides

³H Origines :

■ Naturelles :

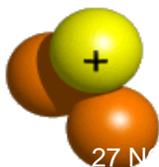
- Production atmosphérique
 - ↳ essentiellement produit dans la haute atmosphère d'après :

$$^{14}\text{N} + n \Rightarrow ^{12}\text{C} + ^3\text{H}$$
- Production terrestre
 - ↳ très faible production de tritium à la surface de la terre estimée comme < à 1 atome de tritium/cm²/s

■ Anthropiques :

- Essais nucléaires atmosphériques
- Réacteurs nucléaires
- Usines de retraitement
- Autres (production tritium, détritiation, applications industrielles, centres de recherche,...)
- Réacteurs du futur

Tritium



1 proton
2 neutrons

^3H Différentes formes de tritium dans l'environnement :

■ Formes physicochimiques variées

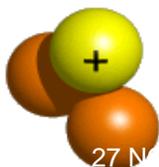
- Gaz : HT, HTO, CH₃T
- Liquide (eau) : pure ou non (distillation)
- Environnement (hors eaux) : Eau constitutive de l'échantillon (TFWT ou TED), Tritium Organiquement Lié (TOL)
 - Règne végétal
 - Règne animal

■ Présent dans l'environnement en faibles concentrations (~ niveau pré nucléaire hors influence d'une installation)

■ Analyse dans les échantillons de l'environnement ?

- Prélèvement
- Traitement de l'échantillon (végétal, animal)
- Mesure

- scintillation liquide
- produit de filiation (hélium 3) par spectrométrie de masse



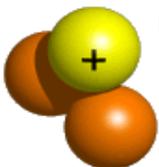
1 proton
2 neutrons

^3H Références : Normes et méthodes

■ Au 1 Nov. 2013 :

- NF ISO 9698 (Février 2011) : Détermination de l'activité volumique du tritium – Méthode d'essai par comptage des scintillations en milieu liquide.
- PR NF ISO 13168 (2013/08) : Détermination simultanée des activités volumiques du tritium et du carbone 14 – Méthode d'essai par comptage des scintillations en milieu liquide. Cas particulier de la présence du tritium
- NF M 60-822-0, 1 et 2 : Energie nucléaire- Mesure de la radioactivité dans les effluents gazeux – Détermination de l'activité des émetteurs du tritium et du carbone 14 dans les effluents et rejets gazeux.
 - Partie 0 : Généralités et calcul global associé à l'activité du tritium et du carbone 14. (à paraître)
 - Partie 1 : Echantillonnage du tritium et du carbone 14 dans les effluents gazeux (2011/12)
 - Partie 2 : Détermination de l'activité du tritium dans la solution de piégeage des effluents ou rejets d'effluents gazeux échantillonnés par la technique de barbotage. (2012/12)
- Méthode 384 de la CETAMA : Analyse des radionucléides dans l'environnement
 - .Analyse du tritium dans les matrices environnementales.
- PR NF M 60-824 : Energie nucléaire- Mesure de la radioactivité dans l'environnement – Mesurage du tritium de l'eau libre et du tritium organiquement lié dans les matrices environnementales,.

Tritium

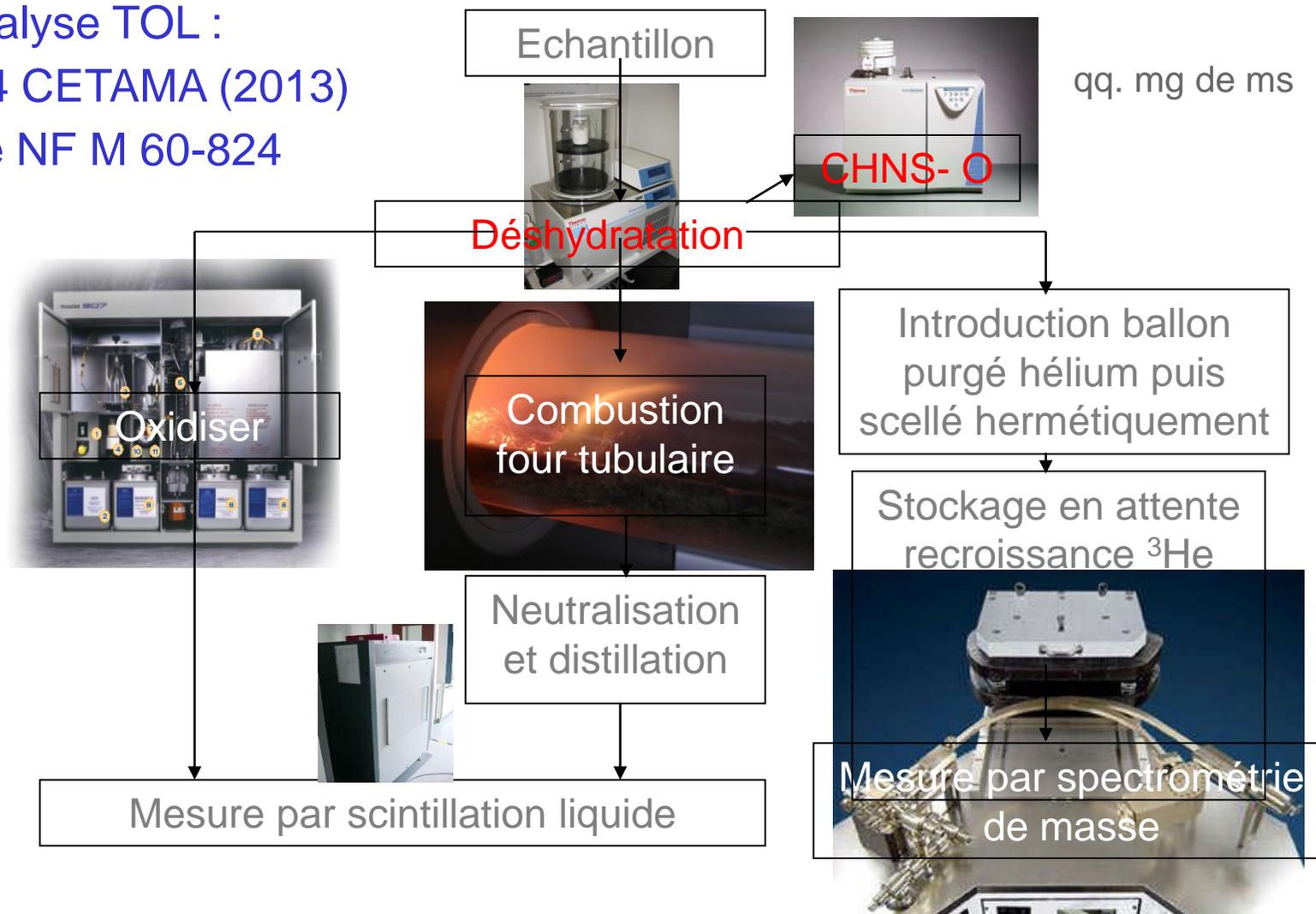


1 proton
2 neutrons

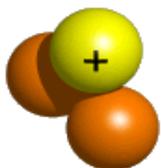
^3H Outils analytiques : mise en forme de l'échantillon (végétal, animal,...)

Synoptique analyse TOL :

- Méthode 384 CETAMA (2013)
- Projet norme NF M 60-824



Tritium



1 proton
2 neutrons

³H Outils analytiques : Combustion



Oxidiser

$$m_s \leq 1 \text{ g}$$



Bombe de combustion

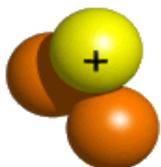
$$1 \text{ g} \leq m_s \leq 10 \text{ g}$$



Four de combustion

$$5 \leq m_s \leq 40 \text{ g}$$

Tritium

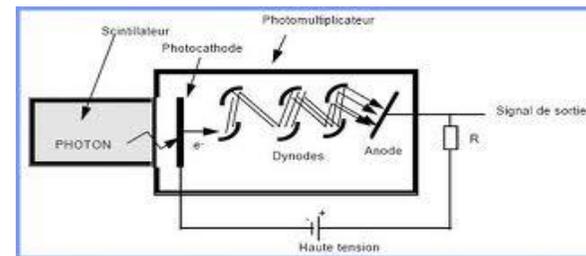
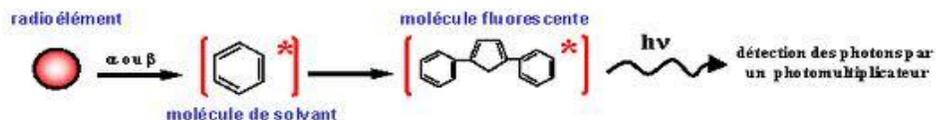


1 proton
2 neutrons



Masses d'échantillon croissantes

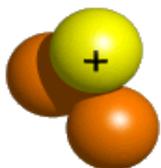
³H Outils analytiques : Scintillation liquide



m en kilogrammes,
n and n_0 en cps
(coups par seconde),
t et t_0 en secondes,
et η en %.



Tritium



1 proton
2 neutrons

$$A_s^{TOL} = A_m^{eau_comb} \times \frac{(\%)_{H}^{ech}}{(\%)_{H}^{eau}}$$

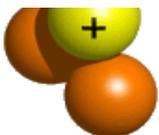
Utilisation analyseur
CHNS

^3H Outils analytiques : Stockage échantillon



Pot en verre mis dans pot métallique

Étanchéité par soudure



1 proton
2 neutrons



Banc de dégazage 10^{-7} mbar



Vide atteint, fermeture pot

2 pinces écrasement tube en Cu

Stockage pour recroissance ^3He



Durée de l'isolement = f(masse échantillon, LD visée)

^3H Outils analytiques : Spectrométrie de masse hélium

Installation des pots sur la ligne d'introduction du spectromètre



Spectromètre de masse Thermo Scientific HELIX SFT

Tritium



1 proton
2 neutrons

$$A_s^{\text{TOL}} = \frac{\lambda N(^3\text{He})_T}{m_s (1 - e^{-\lambda t})}$$

Scintillation liquide

Compteur Aloka LB7(70/70)



Compteur Wallac Quantulus ou
Packard série 3170 - 3180 (10/10)



Compteur Packard P2900
et suivants (10/10)



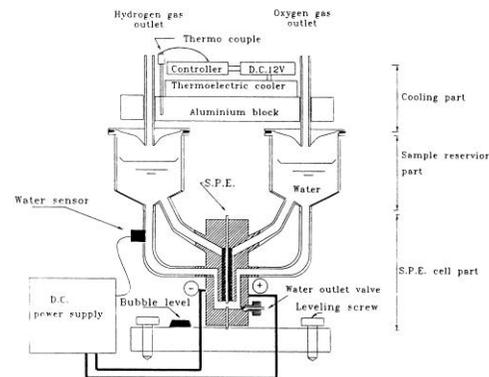
0,2 Bq.kg⁻¹

1 Bq.kg⁻¹

10 Bq.kg⁻¹

100 Bq.kg⁻¹

Enrichissement électrolytique



Pour aller + bas

Spectrométrie de masse

$$A = f(t_{\text{stockage}})$$



Compteur Aloka LB7(70/70)

Compteur Wallac Quantulus ou Packard série 3170 - 3180 (10/10)

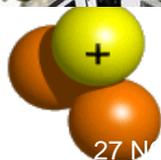


10 Bq.kg⁻¹



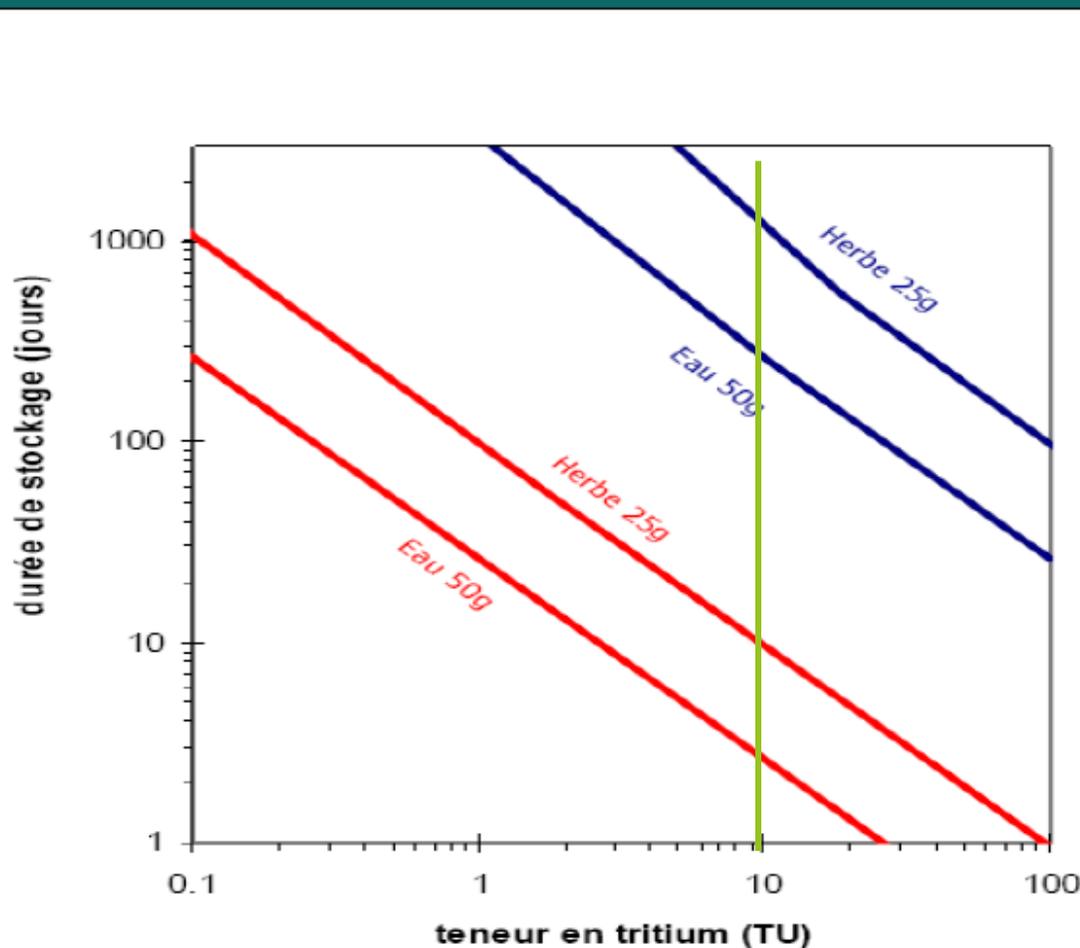
0,2 Bq.kg⁻¹

1 Bq.kg⁻¹



1 proton
2 neutrons

LD = f(durée de stockage)



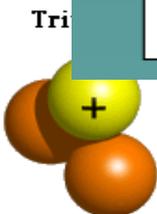
1 TU = 0,118 Bq.L⁻¹

- LD
- $u(A)/A = 50 \% \text{ à } k = 2$
- $u(A)/A = 5 \% \text{ à } k = 2$

LD en scintillation liquide

— 10 g eau, 1000 min comptage

Données issues du CEA/LSCE



1 proton
2 neutrons