

ANALYSE DU CARBONE 14 DANS LES MATRICES BIOLOGIQUES AU MOYEN D'UN FOUR TUBULAIRE

Comparaison des performances avec la méthode par oxidizer

Valentin Blais – Marjolaine Mahu – Lionel Tenailleau

- I. Présentation EAMEA/GEA
- II. Pourquoi la Marine Nationale s'intéresse au carbone 14 ?
- III. Qu'est ce que le carbone 14 ?
- IV. Présentation des méthodes de mesure du carbone 14.
 - I. Oxidizer
 - II. Four tubulaire
- V. Comparaison des performances des deux méthodes

Qui sommes nous ?

Ecole des Applications Militaires de l'Energie Atomique

Mission : arrêté du 11 mars 1999 (art. 2)

- Contribuer à l'enseignement militaire supérieur interarmées en assurant la formation des officiers et sous-officiers des trois armées, de la gendarmerie nationale et des services interarmées en matière de sciences, de techniques et de sécurité nucléaires.
- Participer à la formation des ingénieurs et techniciens relevant de la délégation générale pour l'armement et à celle des ingénieurs relevant d'organismes civils travaillant sur des programmes nucléaires militaires.

Domaines concernés

- Armes nucléaires
- Propulsion nucléaire
- Maîtrise des risques
- Recherche, études et développement



Groupe d'Etudes Atomiques

Missions :

- Développement et validation des méthodes de mesure de la radioactivité dans les rejets et l'environnement
- Etude de la diffusion et des transferts des radionucléides depuis le point de rejet vers l'environnement.
- Evaluation des matériels de détection pour la surveillance radiologiques des sites de la marine.
- l'expertise et la synthèse des données relatives au suivi des rejets et de la surveillance radiologique et chimique des sites nucléaires de la Marine
- Validation des calculs d'impact dosimétrique des installations nucléaires de la marine.

Capacités d'analyses et d'expertises :

- Analyse du ^3H et du ^{14}C dans les eaux, l'air, les effluents liquides et les matrices biologiques.
- Analyse par spectrométrie gamma d'échantillons solides, liquides et gazeux.
- Analyse par spectrométrie alpha dans les eaux et effluents liquides.
- Comptages alpha/bêta dans les eaux, les filtres et les frottis.

Accréditation/Agréments :

- Accrédité COFRAC (NF EN ISO/CEI 17025) pour l'analyse du tritium dans les eaux.
- Détient 17 agréments de l'ASN pour l'analyse de la radioactivité dans l'environnement.



Pourquoi la Marine Nationale s'intéresse au carbone 14 ?

Surveillance réglementaire de l'environnement (DARPE)

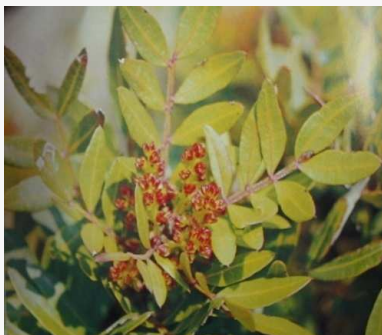
Exploitant
Nucléaire

Prélèvement de
bioindicateurs

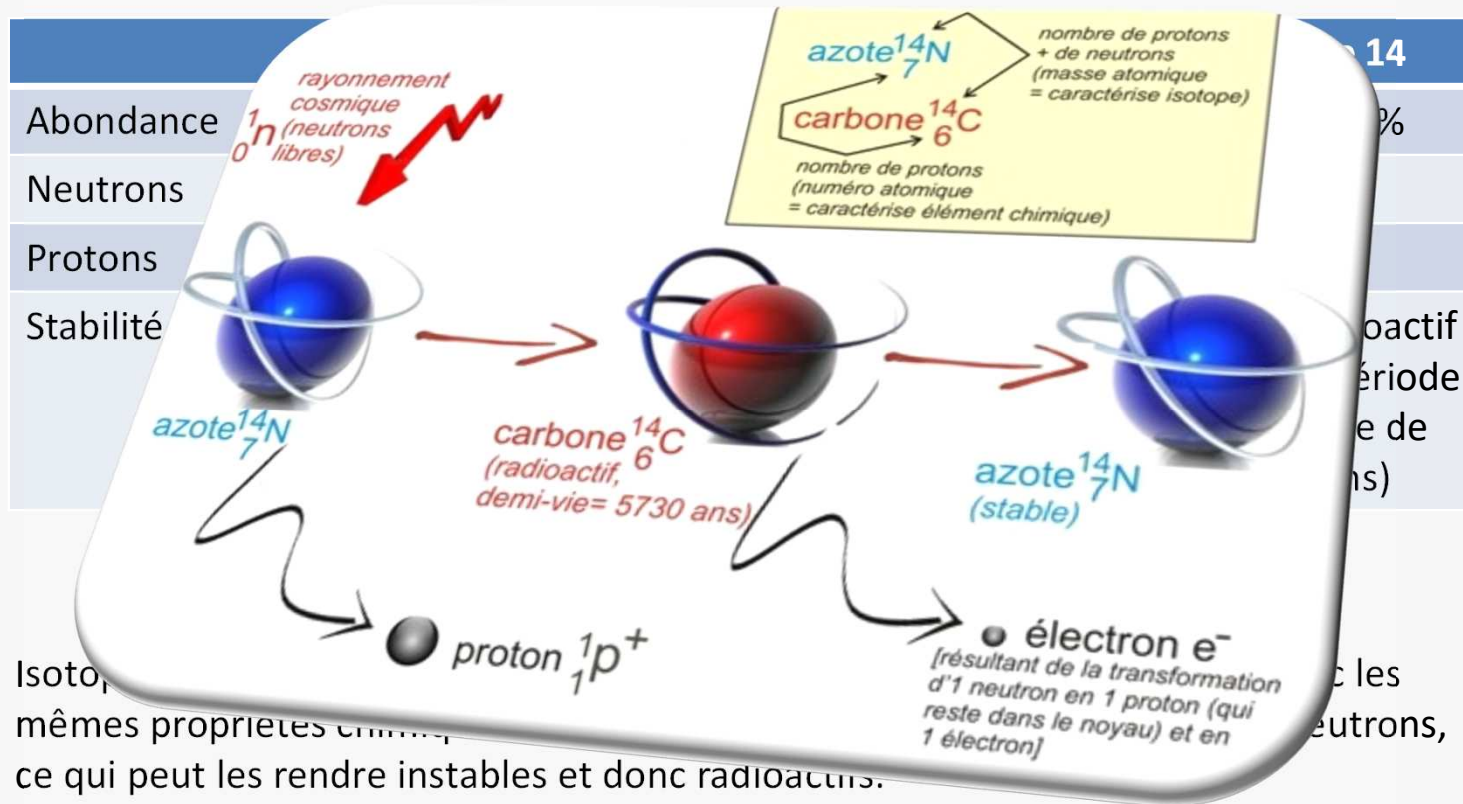
Mesure des
émetteurs gamma,
du tritium et du
carbone 14

Renseignement au
Réseau National de
Mesures de la
radioactivité dans
l'environnement (RNM)

www.mesure-radioactivite.fr



Qu'est ce que le carbone 14 ?



Isotopes ont les mêmes propriétés chimiques, ce qui peut les rendre instables et donc radioactifs.

Source image: <https://www.les-crises.fr/climat-13-les-cycles-solaires-2/>

Méthodes de mesure du carbone 14

Méthodes présentes dans la norme NF M60-812-2 d'août 2006 :

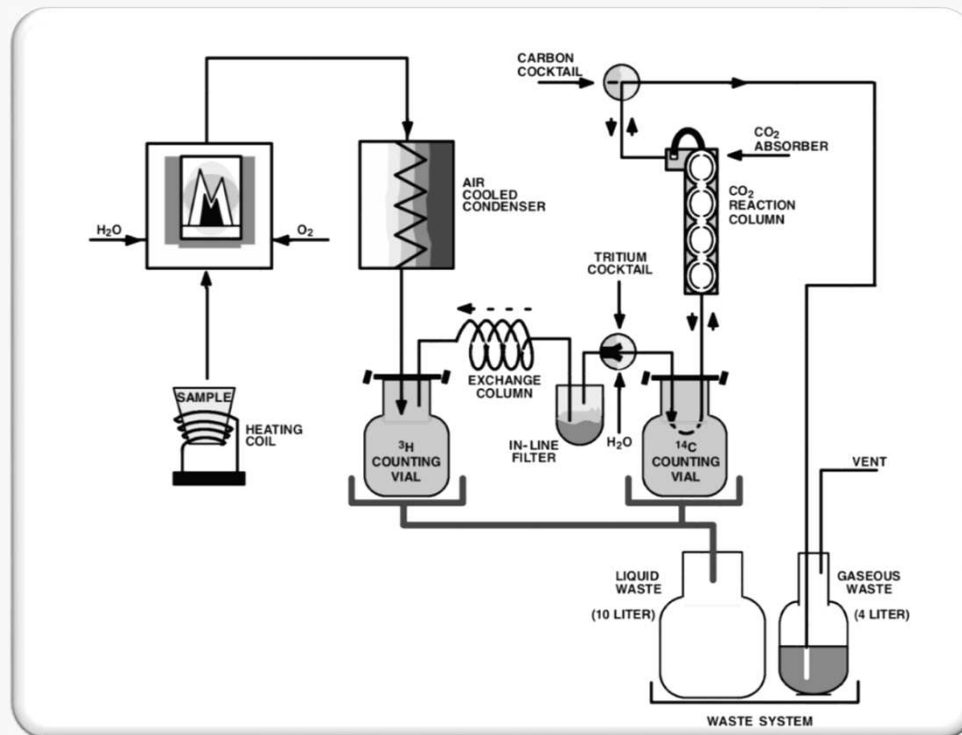
- Combustion par un instrument intégré : exemple de l'«Oxidizer»
- Combustion par bombe de Parr
- Oxydation par voie humide
- Synthèse de benzène

Méthode ajoutée dans le projet de norme NF M60-812-2 actuellement en révision :

- Combustion par four tubulaire

Combustion par un instrument intégré : exemple de l'«Oxidizer»

SCHÉMA DE FONCTIONNEMENT

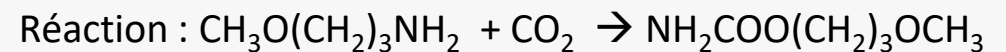


Avantages de la méthode :

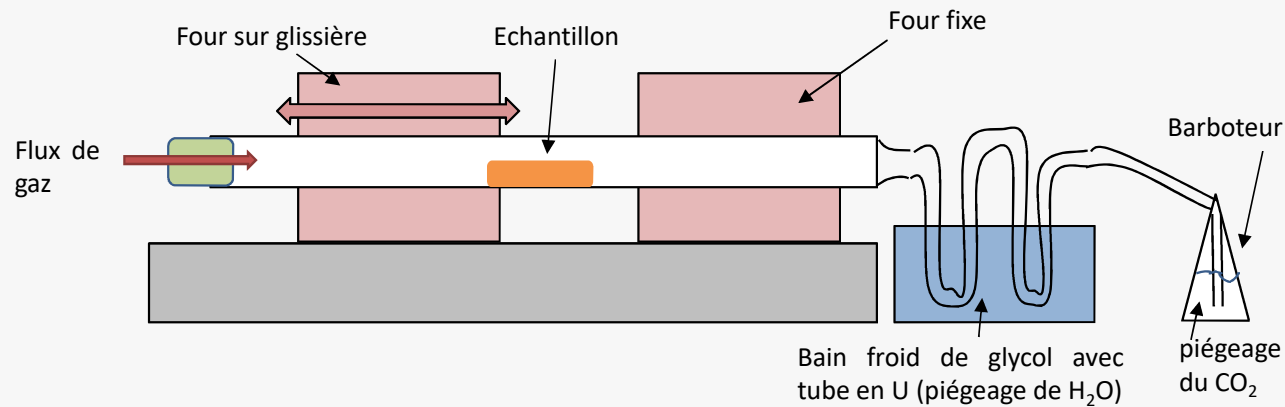
- Combustion rapide permettant de traiter un grand nombre d'échantillons.
- Système totalement automatisé.

Inconvénients de la méthode :

- Faible prise d'essai (< 0,5 g)
- Appareil relativement fragile
- Nécessité de marquer un échantillon afin de prendre en compte le rendement combiné de combustion + détection



Principe de la combustion par four tubulaire



- Piégeage de l'eau de combustion tritiée dans deux tubes en U
- Piégeage du carbone 14 dans un liquide de piégeage adapté (soude, Carbosorb®; Oxysolve® C-400)

Type de liquide de piégeage	NaOH 2M	Carbosorb®	Oxysolve® C-400
Capacité en g de carbone /L de réactif	12	31	33
Scintillant associé	HionicFluor®	PermaFluor®	Scintillant intégré
Ratio liquide de piégeage / Scintillant	4/16	8/12	/

Combustion par four tubulaire



Four tubulaire

Avantages de la méthode :

- Permet la récupération du tritium et du carbone 14 en une seule combustion
- Grande prise d'essai (30 à 40 g) → Mesure TOL

Inconvénients de la méthode :

- En cas de piégeage dans la soude, il est nécessaire d'utiliser un appareil à scintillation liquide acceptant les grands volumes afin d'atteindre une limite de détection inférieure au niveau naturel
- Traitement des échantillons plus long

Principe de la combustion par four tubulaire

Piégeage du carbone 14 dans la soude



Activité volumique en Bq/L dans la solution de piégeage : $C_A = \frac{(r_g - r_0)}{(\epsilon_q \times V_{ech})}$

- C_A : activité volumique (Bq/L)
- r_g : nombre moyen de coups par seconde de la prise d'essai
- r_0 : nombre moyen de coups par seconde du bruit de fond (flacon « blanc »)
- ϵ_q : rendement de détection obtenu avec l'étalon
- V_{ech} : volume de solution de barbotage prélevé (L)



Activité spécifique en Bq/kg de carbone :

- avec soude non saturée : $a_c = \frac{C_A}{\epsilon_p \times m \times \%c}$

- C_A : activité volumique (Bq/L)
- m : masse de la prise d'essai en kg
- ϵ_p : rendement de combustion
- $\%c$: taux de carbone dans l'échantillon

- avec soude saturée : $a_c = \frac{C_A}{m_{cs}}$

- a_c : activité en Bq/kg de carbone
- C_A : activité volumique (Bq/L)
- m_{cs} : nombre de grammes de carbone par litre de soude saturée

$$\text{avec : } m_{cs} = V_{ech} \cdot \frac{12 \cdot C_{NaOH}}{2}$$

- C_{NaOH} = concentration de la soude en mol/L
- V_{ech} : volume de solution de barbotage prélevé (L)

Comparaison des deux méthodes

Appareil de traitement	Oxidizer	Four tubulaire			
Type de liquide de piégeage	Carbosorb®	Carbosorb®	Oxysolve® C-400	NaOH 2M	
Flacon de comptage	20 mL	20 mL	20 mL	20 mL	140 mL***
Volume du réactif de piégeage (mL)	8	8	20 mL	4	30
Volume de liquide scintillant (mL)	12	12		16	110
SD (Bq/kg de C) pour 6 h de comptage	60	60*	≈ 30**	200	60

* Valeur obtenue par le LASEM de Cherbourg

** Valeur estimée par calcul mais non vérifiée expérimentalement

*** Nécessite l'utilisation d'un appareil à scintillation liquide type ALOKA LB7

Niveau naturel en carbone 14 : ≈ 230 Bq/kg de carbone

- La méthode d'analyse du carbone 14 dans les végétaux par four tubulaire permet d'atteindre des seuils de décision équivalents à ceux obtenus avec un oxidizer.
- Le piégeage du carbone 14 issu de l'échantillon peut être réalisé en même temps que la combustion pour l'analyse du TOL.
- L'utilisation d'une grande prise d'essai (possible avec la soude) permet d'avoir un bien meilleur seuil de décision sur la mesure du TOL qu'avec un oxidizer.
- La détermination de l'activité massique en Bq/kg d'échantillon nécessite de connaître le taux de carbone dans l'échantillon par exemple au moyen d'un analyseur élémentaire.



MERCI POUR VOTRE ATTENTION