

- Note CEA-N-2295 -

Centre d'Etudes Nucléaires de Cadarache
Institut de Protection et de Sûreté Nucléaire
Département de Protection
Service d'Etudes et de Recherches sur l'Environnement
Laboratoire d'Etudes de Pollution des Eaux

**APPAREIL DE PRELEVEMENT
DES EAUX DOUCES
EN VUE DE LA MESURE RADIOACTIVE**

par

Henri MAUBERT - Philippe PICAT

- JUIN 1982 -

Note CEA-N-2295

DESCRIPTION-MATIERE (mots clefs extraits du thesaurus SIDON/INIS)

en français

EAU DOUCE
ECHANTILLONNEURS
FILTRES
ECHANGEURS D'IONS
CHARBON ACTIVE
RENDEMENT
SURVEILLANCE
CONTAMINATION
RHONE
EVALUATIONS COMPARATIVES
COBALT 57
COBALT 58
COBALT 60
MANGANESE 54
ANTIMOINE 124
CESIUM 137
CESIUM 134
ZINC 65

en anglais

FRESH WATER
SAMPLERS
FILTERS
ION EXCHANGE MATERIALS
ACTIVATED CARBON
EFFICIENCY
MONITORING
CONTAMINATION
RHONE RIVER
COMPARATIVE EVALUATIONS
COBALT 57
COBALT 58
COBALT 60
MANGANESE 54
ANTIMONY 124
CESIUM 137
CESIUM 134
ZINC 65

Centre d'Etudes Nucléaires de Cadarache
Institut de Protection et de Sûreté Nucléaire
Département de Protection
Service d'Etudes et de Recherches sur l'Environnement
Laboratoire d'Etudes de Pollution des Eaux

**APPAREIL DE PRELEVEMENT
DES EAUX DOUCES
EN VUE DE LA MESURE RADIOACTIVE**

par

Henri MAUBERT - Philippe PICAT

Appareil conçu et mis au point par le L.E.P.E.
Avec l'aide des Services Techniques Communs du C.E.N./Cadarache
pour les problèmes techniques et la construction

CEA-N-2295 - MAUBERT Henri - PICAT Philippe

APPAREIL DE PRELEVEMENT DES EAUX DOUCES EN VUE DE LA MESURE RADIOACTIVE.

Sommaire. - Le Laboratoire d'Etudes de Pollution des Eaux, en raison de ses nombreuses interventions sur le terrain a été amené à concevoir un appareil de prélèvement d'eau. Cet appareil, portable et autonome, assure in situ une filtration et une concentration des eaux sur des colonnes de résines et de charbon actif. Après une description de l'appareil on donne des résultats concernant les rendements de piégeage obtenus pour 8 radionucléides, un tableau de comparaison avec la méthode dite par évaporation et une étude de l'effet du traitement des éléments filtrants sur les résultats radioactifs. Il est montré que cette méthode de prélèvement s'avère très sensible.

1982

10 p.

Commissariat à l'Energie Atomique - France

CEA-N-2295 - MAUBERT Henri - PICAT Philippe

A DEVICE FOR FRESH WATER SAMPLING BEFORE RADIOACTIVE MEASUREMENTS

Summary. - On account of the many field operations carried out by the laboratory, a water sampling device has been developed. This portable autonomous device performs in situ water filtration and concentration on ion exchange resins and activated carbon columns. The device is described and the trapping performance for 8 radionuclides is given. A comparison is made with the so-called evaporation method. The effects of the treatment of the filtrating elements on the radioactive results are studied. This sampling method is very sensitive.

1982

10 p.

Commissariat à l'Energie Atomique - France

APPAREIL DE PRELEVEMENT DES EAUX DOUCES
EN VUE DE LA MESURE RADIOACTIVE

H. MAUBERT ; Ph. PICAT

INTRODUCTION

L'utilisation sans cesse croissante par l'homme des eaux douces pour subvenir à ses besoins vitaux (eau de boisson, irrigation, industrie) associée à un développement de l'industrie nucléaire rejetant même après traitement des effluents radioactifs dans l'environnement, implique que l'on soit capable d'évaluer la teneur en substances radioactives de ces eaux.

En pratique, cette évaluation est difficile compte tenu des concentrations très faibles des radionucléides présents, des diverses formes sous lesquelles ils se trouvent (particulaire, soluble, associé à la matière organique) et des variations constantes des concentrations dues aux fluctuations du milieu naturel et aux conditions d'exploitation des installations nucléaires. C'est pourquoi le L.E.P.E (1) a été amené à concevoir et à mettre au point un appareil permettant d'effectuer une mesure précise de la radioactivité de l'eau. Pour les problèmes techniques et la construction de l'appareil, il a été fait appel aux Services techniques communs du Centre d'Etudes Nucléaires de Cadarache.

(1) Laboratoire d'Etudes de Pollution des Eaux.

1 - QUE FAIT L'APPAREIL ?

Il assure, sur le lieu même d'échantillonnage :

- la récolte autonome et automatique de l'eau à mesurer
 - . fonctionnement en 12 V ou 220 V,
 - . volume jusqu'à 300 l,
 - . temps de prélèvement réglable de quelques heures à plusieurs jours ;

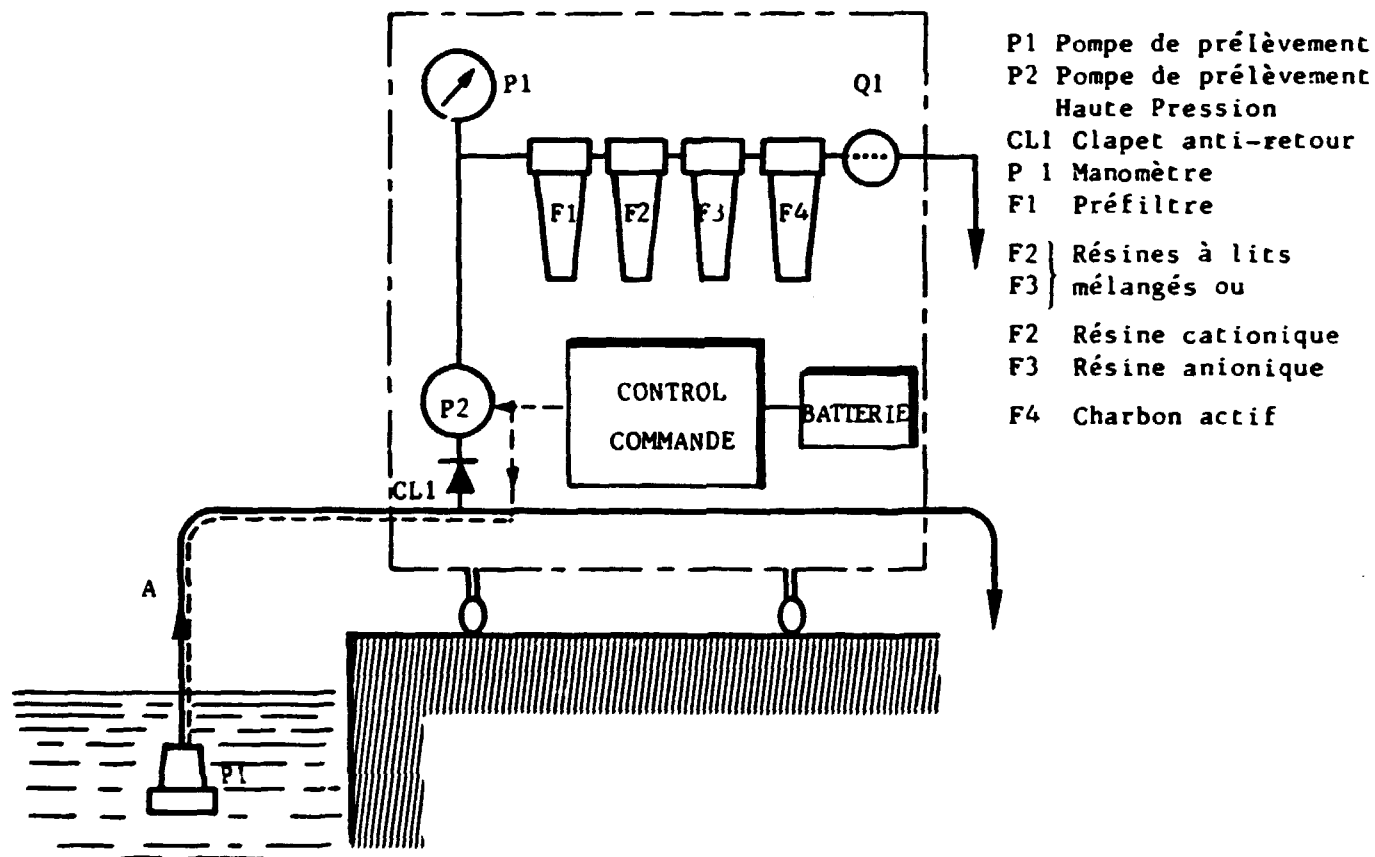
- filtration immédiate
 - . filtre MILLIPORE de porosité 0,8 μm - Norme AFNOR pour la rétention des M.E.S (1) et des formes particulières ;

- Rétention des éléments dissous
 - . totalité du volume d'eau concentré sur deux colonnes de résines, l'une cationique, l'autre anionique, ou, si l'on préfère, sur deux colonnes de résines à lits mélangés ;

- rétention des matières organiques (M.O)
 - . les M.O passent sur un lit de charbon actif qui les retient ainsi que les radionucléides complexés qui leur sont associés.

(1) Matières en suspension.

2 - PRINCIPE DE FONCTIONNEMENT



Après avoir effectué les pré réglages, la séquence de prélèvement se déroule de la façon suivante :

- 1 - La pompe P1 immergée se met en route, remplissant la tuyauterie d'amenée d'eau jusqu'au clapet CL1.
- 2 - 7 secondes après, temps nécessaire à l'élimination de toutes les bulles d'air, la pompe P2 à haute pression se met en route, forçant le liquide à passer sur les appareils filtrants.

3 - Au bout d'un temps prédéterminé, correspondant habituellement à 0,5 l ou 1 l le système s'arrête. La pompe P1 étant de type à roue ouverte, la colonne d'eau A se vidange garantissant l'absence de fixation d'activité sur la tuyauterie de prélèvement.

4 - Après un temps préréglé en fonction de la durée totale du prélèvement l'appareil revient au point 1 .

En jouant sur les différents réglages de durée d'impulsion et de pause entre les impulsions, on peut prédéterminer le volume prélevé et la durée du prélèvement.

Un compteur - décompteur d'impulsion permet de programmer l'appareil pour un certain volume d'eau.

En option un conductivimètre, monté après les éléments filtrants permet d'arrêter automatiquement l'appareil lorsque l'on arrive à saturation des résines.

3 - PERFORMANCES

Le système mis en oeuvre a fait l'objet d'un étalonnage en laboratoire à partir d'une eau contaminée avec un mélange de radionucléides habituellement présents dans les rejets d'installations nucléaires.

TABLEAU 1 - EFFICACITE SELON LES PRODUITS

RADIONUCLEIDES	⁵⁷ Co	⁵⁸ Co	⁶⁰ Co	⁵⁴ Mn	¹²⁴ Sb	¹³⁷ Cs	¹³⁴ Cs	⁶⁵ Zn
Rendement des résines	84 %	87 %	82 %	= 100%	60 %	= 100%	97%	98%

Ces rendements ont été établis avec un effluent d'installation nucléaire dopé par adjonction de radionucléides en laboratoire. En réalité si l'on considère une eau naturelle de très faible activité, les incertitudes de mesure sont telles que les rendements peuvent être assimilés à 100 %, sauf pour l'antimoine (valence 3 ou 5), pour lequel un rendement de 60 % doit être appliqué.

Résultats d'exploitation

De nombreuses mesures ont été déjà pratiquées sur des cours d'eau en France. Le tableau 2 présente les résultats d'une mesure d'activité de l'eau du RHONE à hauteur d'ARLES. Deux méthodes y sont comparées :

- utilisation de l'appareil ;
- évaporation classique d'un grand volume.

TABLEAU 2 - RESULTATS COMPARATIFS DE DEUX MESURES D'ACTIVITE
DE L'EAU DU RHONE (résines à lits mélangés)

RADIONUCLÉIDES MIS EN EVIDENCE		ACTIVITE EN pCi/l ET (10^{-3} Bq/l)				
		PRELEDISS				Méthode par évaporation*
		Particulaire	Dissous	Associé M.O.	Total	
N A T U R E L S	$^{238}\text{U} \rightarrow ^{234}\text{Pa}$	($4,4 \pm 0,7$)	($14,8 \pm 3$)		($19,2 \pm 7,8$)	($20,7 \pm 3,3$)
		$0,12 \pm 0,02$	$0,40 \pm 0,08$	N.S	$0,52 \pm 0,21$	$0,56 \pm 0,09$
	^{226}Ra	($3,3 \pm 0,52$)	($17,8 \pm 3$)		(21 ± 3)	($16 \pm 4,3$)
		$0,09 \pm 0,014$	$0,48 \pm 0,08$	N.S	$0,57 \pm 0,09$	$0,43 \pm 0,09$
$^{232}\text{Th} \rightarrow ^{228}\text{Ac}$	($0,74 \pm 0,37$)	($3 \pm 1,5$)		($3,7 \pm 1,5$)	($3 \pm 1,5$)	
	$0,02 \pm 0,01$	$0,08 \pm 0,04$	N.S	$0,10 \pm 0,04$	$0,08 \pm 0,04$	
^{40}K	(34 ± 6)	($44,4 \pm 11,1$)		($78 \pm 12,6$)	($55,5 \pm 1,1$)	
	$0,92 \pm 0,16$	$1,2 \pm 0,3$	N.S	$2,12 \pm 0,34$	$1,5 \pm 0,03$	
A R T I F I C I E L S	^{137}Cs	($17,8 \pm 1,5$)	($23,7 \pm 3$)	($0,26 \pm 0,15$)	($42 \pm 3,7$)	($23,7 \pm 3$)
		$0,48 \pm 0,04$	$0,64 \pm 0,08$	$0,007 \pm 0,004$	$1,13 \pm 0,10$	$0,64 \pm 0,08$
	^{134}Cs	($4,4 \pm 0,52$)	($7,4 \pm 1,5$)	($\leq 0,15$)	($12 \pm 1,5$)	($6,6 \pm 0,74$)
		$0,12 \pm 0,014$	$0,20 \pm 0,04$	$\leq 0,004$	$0,32 \pm 0,04$	$0,18 \pm 0,02$
	$^{106}\text{Rh} + ^{106}\text{Ru}$	($43 \pm 5,2$)	(688 ± 30)	(55 ± 15)	(732 ± 63)	(540 ± 30)
		$1,15 \pm 0,14$	$18,6 \pm 0,8$	$1,5 \pm 0,4$	$19,8 \pm 1,7$	$14,6 \pm 0,8$
	^{125}Sb	N.D	($7,4 \pm 2,6$)	N.D	($7,4 \pm 2,6$)	($6,7 \pm 0,7$)
			$0,2 \pm 0,07$		$0,20 \pm 0,07$	$0,18 \pm 0,02$
^{60}Co	($0,26 \pm 0,12$)	($0,6 \pm 0,3$)	($\leq 0,15$)	($0,85 \pm 0,3$)	($0,95 \pm 0,22$)	
	$0,007 \pm 0,003$	$0,016 \pm 0,008$	$\leq 0,004$	$0,023 \pm 0,008$	$0,023 \pm 0,006$	
$^{144}\text{Ce} + ^{144}\text{Pr}$	($2,6 \pm 0,37$)	(≤ 3)	($< 1,5$)	($2,6 \pm 0,37$)	N.D	
	$0,07 \pm 0,01$	$\leq 0,08$	$\leq 0,04$	$0,07 \pm 0,01$		
^{54}Mn	($0,22 \pm 0,07$)	($\leq 0,15$)	($\leq 0,15$)	($0,22 \pm 0,07$)	N.D	
	$0,006 \pm 0,002$	$\leq 0,004$	$\leq 0,004$	$0,006 \pm 0,002$		
^{95}Nb	($0,11 \pm 0,037$)			($0,11 \pm 0,037$)	N.D	
	$0,003 \pm 0,001$	N.D	N.D	$0,003 \pm 0,001$		
AUTRES	^7Be	($1,7 \pm 0,37$)			($1,7 \pm 0,37$)	
		$0,046 \pm 0,01$	N.D	N.D	$0,046 \pm 0,01$	N.D

\leq A Dans les conditions de la mesure le radionucléide considéré n'a pu être dosé ; son niveau d'activité est estimé inférieur ou égale à A, mais il n'est pas possible d'être affirmatif quant à sa présence

N.D. Non détecté

N.S. Non significatif. Le charbon actif contenant des radionucléides naturels, les résultats ne peuvent être pris en compte

* Sans distinction de compartiments

4 - TRAITEMENT DE L'APPAREIL FILTRANT

L'appareil peut être utilisé par un personnel non spécialiste.

Les éléments (filtres, résines, charbon) correspondant au prélèvement des 150 à 200 l d'eau sont contenus dans des carters facilement démontables. Les cartouches une fois extraites peuvent subir différents traitements selon les mesures désirées.

- S'il s'agit de mesures en spectrométrie γ les meilleurs résultats seront obtenus pour les filtres et résines après dessiccation et incinération à 560°C, ce qui permet de concentrer considérablement les radionucléides. 200 l d'eau sont ainsi ramenés à quelques grammes de cendres. Les charbons seront mesurés secs et non incinérés afin de ne pas changer la M.O.

TABLEAU 3 - EFFETS DU TRAITEMENT (*) DES FILTRES
ET RESINES SUR LES MESURES RADIOACTIVES

(1) ACTIVITES RADIONUCLEIDES pCi et (Bq)	M.E.S.			RESINE		
	Frais	Sec	Incinéré	Frais	Sec	Incinéré
^{60}Co	(0,5 ± 0,1) 13,5 ± 2,5	(0,57 ± 0,07) 15,5 ± 2	(0,7 ± 0,037) 19 ± 1	(16,2 ± 0,74) 440 ± 20	(19 ± 0,7) 510 ± 20	(21,5 ± 1,1) 580 ± 30
^{137}Cs	(1,16 ± 0,19) 31,5 ± 5	(1,26 ± 0,15) 34 ± 4	(1,3 ± 0,7) 35 ± 2	(4,5 ± 0,46) 123 ± 12	(5,2 ± 0,37) 140 ± 10	(5,9 ± 0,37) 160 ± 10
$^{106}\text{Rh} + ^{106}\text{Ru}$	(< 0,13) < 3,5	(1 ± 0,074) 27 ± 2	(0,89 ± 0,074) 24 ± 2	(< 0,44) < 12	(2,6 ± 0,19) 71 ± 5	(2,7 ± 0,07) 72 ± 2
^{124}Sb	< 0,019 < 0,5	(0,007 ± 0,003) 0,2 ± 0,1	(0,017 ± 0,0007) 0,46 ± 0,02	(2,07 ± 0,37) 56 ± 10	(2,3 ± 0,23) 63 ± 6	(2,6 ± 0,3) 70 ± 9

* Dessiccation à 110°C, suivi d'une incinération à 560°C

(1) Les activités sont ramenées au volume d'eau considéré.

- S'il s'agit de mesures β ou α , d'éléments stables ou d'éléments traces, deux méthodes peuvent être employées :

D'une part on peut éluer les résines afin de recueillir les radionucléides dans une phase liquide que l'on traite selon les méthodes classiques. Mais cela conduit à obtenir des volumes d'élution relativement importants, ce qui nuit à la concentration des éléments recherchés.

D'autre part on peut effectuer soit une analyse par activation des produits incinérés (métaux et éléments traces en particulier), soit solubiliser les cendres, ce qui conduit à obtenir une solution très concentrée que l'on traite selon les méthodes de la radiochimie.

5 - APPLICATIONS

L'appareil a été utilisé depuis 4 ans pour effectuer des prélèvements relativement limités dans le temps (1 à 3 jours) et pour des opérations de contrôle continu de l'activité des eaux.

Le premier type de prélèvement a surtout eu lieu dans le cadre des "points zéro" de certaines centrales (1) P.W.R d'Electricité de France, sur la LOIRE, le RHONE et la SEINE. A CHINON il a été réalisé un prélèvement pendant un rejet provenant des tranches U.N.G.G (2) en activité. Bien que ce jour là les facteurs de dilution aient été très élevés (débits de la LOIRE = 1 600 m³/s) la plupart des radionucléides rejetés en quantités significatives ont été retrouvés. Enfin certains prélèvements ont été effectués autour du site minier de LODEVE.

(1) P.W.R. : Pressurised water reactor

(2) U.N.G.G. : Uranium Naturel Graphite Gaz.

Les opérations de contrôle, s'étendant sur des périodes de plusieurs mois, avec changement des cartouches filtrantes tous les 15 jours, ont eu lieu à FOURQUES, dans la partie terminale du RHONE, en vue de l'étude de la contamination de poissons par l'eau, et sont poursuivies actuellement à VALLABREGUES.

Le but de ces mesures est d'effectuer un bilan des radionucléides émetteurs y transportés par le RHONE avant qu'il ne se jette en mer Méditerranée.

Un de ces appareils a été livré au S.P.R. (Service de Protection contre les Rayonnements) de SACLAY où il fait actuellement l'objet d'essais. (Mme MATUTANO).

6. DEVELOPPEMENTS

1 - L'appareil peut être équipé d'une cellule de conductivité arrêtant automatiquement l'appareil lorsque la conductivité de l'eau en sortie des cartouches de résines dépasse un certain seuil. Cela garantit un prélèvement de volume maximal, donc une meilleure détection.

2 - L'appareil peut être actionné à partir d'un signal extérieur assurant un prélèvement proportionnel au débit du fleuve sur lequel il est placé. Cela a été réalisé sur le RHONE à VALLABREGUES.

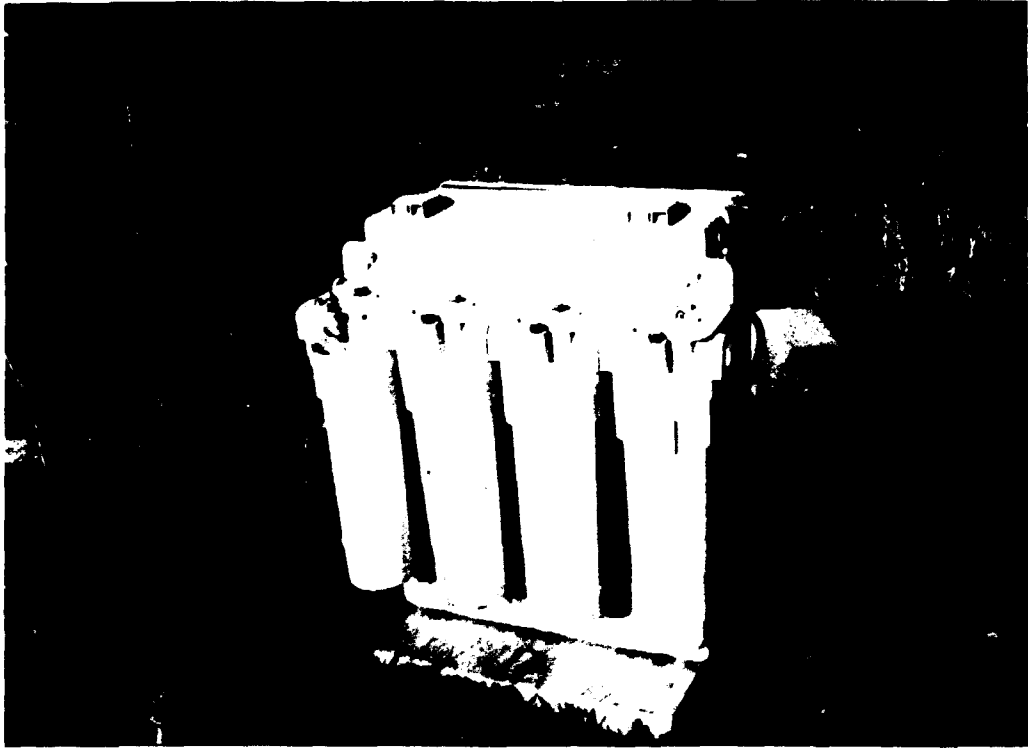
3 - En raison des difficultés liées à l'utilisation du charbon actif, à savoir présence de radionucléides naturels et traitement plus délicat que celui des résines, des adsorbants synthétiques ou des résines chelatantes vont être testés au cours de l'année 1982. Il s'agit de polymères poreux à très grande surface ayant la propriété de retenir les solutés non polaires.

4 - Un petit programme d'ordinateur sur HP85 a été écrit pour dépouiller les mesures effectuées sur les éléments filtrants et les convertir en unité d'activité par litre d'eau.

Information

M. PICAT	I.P.S.N/D.Pr/L.E.P.E	TÉL. : (42) 25 33 41
M. MAUBERT	"	TÉL. : (42) 25 23 71
M. DESCAMPS	"	TÉL. : (42) 25 37 33

Manuscrit reçu le 12 mai 1982



PHOTOGRAPHIE N° 1 - L'APPAREIL EN SERVICE



PHOTOGRAPHIE N° 2 - LA FACE AVANT ET LES COMMANDES



