

ANNEXE 1 : METHODOLOGIE

SOMMAIRE

	Page
CHAPITRE 1 - POINT ZERO RADIOECOLOGIQUE D'UN COURS D'EAU METHODOLOGIE GENERALE	
1 - 1. DEFINITION - INTERET - JUSTIFICATION - LIMITES	1
1 - 2. TRAVAUX EFFECTUES DANS LE CADRE D'UN POINT ZERO	3
1.2.1. Etude documentaire, reconnaissance et préparation des interventions sur le site	3
1.2.2. Intervention sur le site	4
1.2.3. Travaux de préparation des échantillons et dosages quantitatifs radioactifs et physico- chimiques en laboratoire	5
1.2.4. Le dépouillement des données, l'interprétation des résultats et la rédaction du rapport de synthèse	6
 CHAPITRE 2 - METHODES DE PRELEVEMENT ET DE TRAITEMENT AVANT LES ANALYSES ET LES MESURES EFFECTUEES SUR LES CONSTITUANTS D'UN COURS D'EAU	
2 - 1. L'EAU	8
2.1.1. Technique de prélèvement	8
2.1.2. Préparation des échantillons d'eau avant les dosages au laboratoire	9

	PAGE
2 - 2. LES SEDIMENTS	9
2.2.1. Technique de prélèvement	9
2.2.2. Mesures complémentaires effectuées sur les dépôts sédimentaires	11
2.2.3. Préparation des échantillons de sédiment avant les dosages en laboratoire	12
2.2.3.1. Constitution d'échantillons composites	12
2.2.3.2. Préparation des échantillons composites (Z) en vue d'analyses radioactives quantitatives en laboratoire	13
2.2.3.3. Préparation des échantillons composites (Z) en vue d'analyses non radioactives	15
2.2.3.4. Constitution de l'échantillon global (Z') du site destiné à l'étude de la distribution de l'activité en fonction des fractions granulométriques et méthodes de préparation avant les dosages	16
2 - 3. LES VEGETAUX	17
2.3.1. Technique de prélèvement	17
2.3.2. Préparation des échantillons de végétaux avant les dosages en laboratoire	17
2 - 4. LES POISSONS	18
2.4.1. Technique de pêche	18
2.4.2. Préparation des échantillons de poissons avant les dosages en laboratoire	18

CHAPITRE 3 - MOYENS MIS EN OEUVRE "IN SITU" POUR L'EXECUTION DU POINT ZERO RADIOECOLOGIQUE D'UN COURS D'EAU

PAGE

3 - 1. APPAREILS DE PRELEVEMENT	21
3.1.1. Appareil de prélèvement d'eau	21
3.1.2. Appareil de prélèvement des sédiments	23
3 - 2. APPAREILS DE MESURE	28
3.2.1. Le sondeur à ultrasons	28
3.2.2. Le LOCH et son répartiteur de parcours	29
3.2.3. L'ensemble de mesures "in situ" de l'activité γ des sédiments (γ global et spectrométrie γ NaI à bord de la vedette)	29
3.2.3.1. L'ensemble de détection embarqué	29
3.2.3.2. Le traineau de détection	30
3.2.3.3. Le câble conducteur étanche	30
3.2.3.4. L'électronique située à bord	32
3.2.3.4.1. L'ensemble de mesure γ global	32
3.2.3.4.2. L'ensemble de mesure spectrométrique	33
3.2.3.4.3. L'étalonnage de l'ensemble de mesure	34
3.2.4. L'ensemble de mesures "in situ" de l'activité γ des sédiments (γ global et spectrométrie γ NaI à terre)	36
3.2.4.1. L'ensemble de mesure γ global	36
3.2.4.2. L'ensemble de mesure spectrométrique γ NaI	37

CHAPITRE 4 - MOYENS MIS EN OEUVRE AU LABORATOIRE POUR
L'EXECUTION DU POINT ZERO RADIOECOLOGIQUE
D'UN COURS D'EAU

4 - 1. METHODES DE MESURES RADIOACTIVES	38
4.1.1. Spectrométrie γ Ge-Li	38
4.1.1.1. Description de l'installation de spectrométrie γ Ge-Li	38
4.1.1.2. Méthode de mesure	40
4.1.1.3. Limite de détection	41
4.1.1.4. Précision des résultats	43
4.1.2. Radiochimie (dosage du ^{90}Sr)	43
4.1.3. Mesures de l'activité tritium	44
4 - 2. METHODES DE MESURES NON RADIOACTIVES	45
4.2.1. Minéralogie	45
4.2.2. Analyses chimiques	45
4.2.2.1. Analyses des sédiments	45
4.2.2.2. Analyses des végétaux et des poissons	47

CHAPITRE 1

POINT ZERO RADIOECOLOGIQUE D'UN COURS D'EAU
METHODOLOGIE GENERALE

1.1 DEFINITION - INTERET - JUSTIFICATION - LIMITES

Le point zéro radioécologique est une mesure de l'activité naturelle (*) et artificielle (**) des différents compartiments (eau - sédiment flore - faune) d'un cours d'eau au voisinage d'un site prévu pour l'implantation d'une installation nucléaire avant sa mise en service.

Les installations nucléaires sont amenées à utiliser, dans le cadre de leur fonctionnement normal, les eaux de surface et l'atmosphère pour :

- éliminer après traitement les effluents liquides et gazeux radioactifs ou non qu'elles produisent ;
- assurer le refroidissement des condenseurs et des réfrigérants atmosphériques qui les équipent.

Le rejet de produits faiblement radioactifs, liquides ou gazeux, dans l'environnement est une pratique réglementée. Pour les responsables des installations le traitement des produits radioactifs est préoccupation constante ; il s'agit pour eux que ces effluents radioactifs n'entraînent pas dans l'environnement des concentrations supérieures aux concentrations maximales admissibles pour les populations (C.M.A.P.*).

(*) Tous les termes suivis par ce signe sont explicités dans la rubrique "Abréviations et termes techniques" située à la fin du texte.

Il apparaît donc nécessaire de connaître le devenir de ces radionucléides dans le milieu, en tenant compte de :

- la présence de produits de fission et d'activation à vie longue dans les rejets ;
- l'existence de processus de reconcentration de ces radionucléides dans certains constituants du milieu : sédiment - sol - végétaux - faune ;
- l'utilisation permanente du milieu par l'homme pour vivre, se nourrir, travailler et se distraire.

Les autorités gouvernementales ont senti la nécessité d'une évaluation aussi complète et réaliste que possible des risques éventuels pouvant découler de la pratique de ces rejets radioactifs pour l'homme et le milieu.

Parmi de très nombreux textes réglementaires deux arrêtés en date du 10 août 1976 ont été pris, qui font obligation à tout exploitant désirant rejeter des effluents radioactifs liquides ou gazeux d'effectuer et de soumettre au Ministre de l'Industrie et de la Recherche une analyse de l'état initial du site en vue de préparer l'instruction de la demande d'autorisation de rejet.

C'est dans le cadre de cette analyse de l'état initial du site, qui envisage tous les aspects relatifs à l'installation concernée par ces rejets et à leurs répercussions éventuelles sur les populations, qu'est demandée une mesure des "niveaux de radioactivité de l'environnement préalable à la mise en route de l'installation" c'est-à-dire l'établissement d'un point zéro radioécologique.

1.2. TRAVAUX EFFECTUES DANS LE CADRE D'UN POINT ZERO

L'exécution d'un "point zéro" comprend plusieurs phases dont nous décrivons les principaux aspects.

1.2.1. Etude documentaire, reconnaissance et préparation des interventions sur le site

Les eaux de surface font l'objet d'études et de nombreux contrôles par les organismes publics et privés chargés de leur surveillance ou de leur utilisation (production d'énergie, navigation, captages d'eau pour des usages domestiques, agricoles ou industriels, pêches, loisirs, extraction de matériaux comme par exemple les sablières). Les contrôles et les études liés à l'exploitation des points d'eau représentent un acquis de connaissances important, mais dispersé, qu'il convient de prendre en compte et d'analyser pour définir convenablement le plan d'échantillonnage pour estimer les niveaux d'activité de l'environnement étudié, c'est la phase documentaire.

Ce premier travail, accompagné d'une reconnaissance sur le site et de contacts avec un certain nombre de représentants des organismes ayant compétence sur le cours d'eau à étudier, permettra de définir le schéma pratique des interventions à effectuer. Chaque portion de cours d'eau concerné par un rejet futur présente des caractéristiques propres (débit. - nature des fonds - flore et faune présentes - aménagements hydrauliques - utilisation du milieu par l'homme entre autres). Le plan d'échantillonnage proposé doit tenir compte des particularités locales imputables aussi bien au cours d'eau qu'aux habitudes des populations ; l'objectif final de toutes les études radioécologiques étant, rappelons-le, l'estimation des doses délivrées à l'homme.

En fonction des caractéristiques du cours d'eau ainsi mises en évidence on définit les moyens à mettre en oeuvre (personnel - bateaux véhicules - appareils et techniques de prélèvements des différents types d'échantillons), et on en assure la préparation (révision - étalonnages essais - formalités administratives) en vue des campagnes de mesures et de prélèvements prévues sur le site.

1.2.2. Interventions sur le site

En règle générale plusieurs interventions doivent être effectuées sur un cours d'eau pour évaluer convenablement les niveaux d'activité de ses divers constituants.

Elles sont limitées, si possible, à deux campagnes de mesures. Une campagne en fin d'étiage (*) où l'on risque d'observer dans le milieu les niveaux d'activité (1) les plus élevés compte tenu des conditions de débit. Elles se traduisent à la fois par des possibilités de dilution les plus défavorables et par une sédimentation (*) maximale. Cette première campagne permet la récolte et l'étude de l'eau, du sédiment et de la faune présents. Une autre campagne en fin de printemps - début été est plus favorable à la récolte des végétaux.

Ce découpage peut-être considéré comme un minimum indispensable. L'exécution d'interventions supplémentaires étant parfois nécessaire pour parvenir à un échantillonnage plus représentatif.

(1) En dehors de la présence d'installations nucléaires rejetant dans un cours d'eau en amont d'un site prévu pour l'implantation d'une nouvelle installation, les eaux de surface subissent un apport d'activité dû aux retombées issues des explosions atomiques militaires aériennes.

Indiquons simplement ici que les interventions sur le site regroupent, outre les opérations de prélèvements dans les divers compartiments, des mesures hydrologiques (physico-chimie - courantologie - bathymétrie) des mesures radioactives (mesure de l'activité γ globale des fonds, spectrométrie γ NaI "in situ") et des opérations de conditionnement des échantillons récoltés (identification - pesées - dessiccation).

1.2.3. Travaux de préparation des échantillons et dosages quantitatifs radioactifs et physico-chimiques en laboratoire

L'objectif prioritaire des interventions sur le site est la récolte d'échantillons représentatifs des divers compartiments du cours d'eau. L'évaluation convenable des activités naturelles et artificielles de ces compartiments implique obligatoirement la mise en oeuvre ultérieure de méthodes de dosages sélectives et quantitatives conduisant à une identification certaine des émetteurs présents et à une détermination des concentrations de chacun d'entre eux. Préalablement à l'exécution de ces analyses radioactives quantitatives (spectrométrie γ Ge-Li - radiochimie du strontium) et des dosages physico-chimiques entrepris parallèlement, une préparation convenable (filtration - concentration - dessiccation - broyage - incinération) des divers échantillons récoltés est nécessaire. L'activité artificielle présente dans des échantillons prélevés dans l'environnement est très faible; ce fait implique de traiter des quantités importantes pour chaque échantillon (1) et de les concentrer dans le plus petit volume possible de façon à obtenir des activités spécifiques (*) telles que l'on dépasse les seuils de sensibilité des équipements de mesure. Ainsi on parvient à une mise en évidence et à un dosage suffisamment précis des radionucléides présents (voir chapitre 4 du présent rapport).

(1) A titre d'exemple 100 à 150 litres par échantillon d'eau, 12 à 20 kilos "frais" par végétal prélevé, 2 à 10 kilos frais par espèce de poisson.

L'ensemble de ces opérations représente un travail important en temps (préparation) et en technicité (dosages).

Le tableau n°1 récapitule les opérations et dosages entrepris dans le cas des divers échantillons récoltés.

1.2.4. Le dépouillement des données, l'interprétation des résultats et la rédaction du rapport de synthèse.

La présentation des travaux réalisés "in situ" (prélèvements-mesures) et au laboratoire (traitements - dosages - quantitatifs) nécessitent la description des méthodes employées (annexe 1 : Méthodologie) et l'établissement de tableaux visualisant les opérations effectuées et les résultats acquis (annexe 2 : Tableaux).

Enfin, les résultats radioactifs obtenus font l'objet d'un rapport (texte proprement dit) s'appuyant sur l'ensemble des mesures entreprises dans le cadre de la présente étude et sur celles issues d'autres travaux dont les résultats sont analysés dans le cadre de l'étude documentaire.

TABLEAU N°1 : TRAITEMENTS ET DOSAGES CHIMIQUES ET RADIOACTIFS
APPLIQUES AUX DIVERS ECHANTILLONS RECOLTES DANS LE CADRE
D'UN POINT ZERO RADIOECOLOGIQUE.

TRAITEMENTS ET DOSAGES EFFECTUES	NATURE DE L'ECHANTILLON			
	Eau	Sédiment	Flore	Faune
Filtration à 0,45 μ m	+			
Concentration	+ (1)			
Dissection		+ (2)		+ (3)
Dessication à 110°C	+ (1)	+	+	+
Broyage	+ (1)	+ (4)	+	+
Incinération	+ (1)		+	+
Spectro. γ NaI et global		+		
Spectro. γ Ge-Li	+	+	+	+
^{90}Sr	+	+ (5)	+	+
^3H	+			
Analyse totale		+		
Granulométrie		+		
Capacité d'échange éléments échangeables éléments hydrosolubles		+		
Dosage du K^+ et du Ca^{++}		+	+	+
Dosage matière organique		+		
Minéralogie		+		

- (1) Des résines échangeuses d'ions
 (2) Séparation des diverses fractions granulométriques
 (3) Séparation éventuelle des principaux organes
 (4) Seulement pour les analyses radioactives
 (5) Seulement sur les fractions granulométriques.

CHAPITRE 2

METHODES DE PRELEVEMENT ET DE TRAITEMENT AVANT LES ANALYSES ET LES MESURES EFFECTUEES SUR LES CONSTITUANTS D'UN COURS D'EAU

2.1. L'EAU

2.1.1. Technique du prélèvement

Le prélèvement est assuré par un appareillage automatique autonome fonctionnant sur batterie (12 V) assurant :

- la récolte d'un volume important d'eau brute ($V > 100$ litres) sur une période de 8 heures à 10 jours ;
- la séparation "in situ" de l'activité associée aux matières en suspension (M.E.S.) par passage de l'eau sur un filtre MILLIPORE de porosité $0,8 \mu m$ (1) ;
- la concentration de l'activité présente sous forme dissoute par passage sur un lit de résines échangeuses d'ions (2)
- la rétention des radionucléides associés à des matériaux organiques par passage de l'eau filtrée et désionisée sur une colonne de charbon actif.

(1) Filtre $0,8 \mu m$ - matériel agréé par la norme AFNOR pour la détermination des matières en suspension.

(2) Lit de résine cationiques et anioniques mélangées utilisé dans le système MILLIPORE pour la production d'eau déminéralisée de haute qualité (système milli-q).

2.1.2. Préparation des échantillons d'eau avant les dosages au laboratoire

Lorsqu'un prélèvement d'eau en continu est terminé, on récupère séparément le filtre, les résines et le charbon actif, puis on les place dans des barquettes en aluminium à usage unique afin de procéder à leur dessiccation dans une étuve à 40°C. Ensuite le traitement diffère selon qu'il s'agit du filtre, des résines ou du charbon actif. Le filtre et les résines sont incinérés à 560°C de façon à réduire leur volume au maximum. Nous avons effectué des études prouvant que l'augmentation d'activité spécifique obtenue compense largement les pertes par incinération. En revanche le charbon actif chargé de retenir les matières organiques est mesuré sec, l'incinération étant contraire au but recherché. Les échantillons traités sont conditionnés selon leur volume en géométrie 20 cm³ (K), 100 cm³ (C) ou 350 cm³ (B) en vue d'une mesure en spectrométrie γ Ge-Li.

Les activités mesurées sur les produits secs ou incinérés sont rapportées au volume d'eau prélevé par l'appareil ; les résultats sont exprimés en pCi/l d'activité dissoute (résines), associée aux M.E.S. (filtre) et aux matières organiques dissoutes (charbon actif).

2.2. LES SEDIMENTS

2.2.1. Technique de prélèvement

On procède selon deux méthodes pour les prélèvements de surface (tranche 0 - 20 cm) :

- Par dragage en continu des fonds : cette méthode consiste à traîner sur le lit du cours d'eau une benne racleuse à l'aide d'un bateau ; la benne se remplit au fur et à mesure de l'avancement du bateau sur une distance variant de plusieurs dizaines à plusieurs centaines de mètres selon le type de benne employé et la nature du fond.

On obtient ainsi un échantillonnage continu des fonds sur le trajet effectué dont on repère les origines (départ - arrivée) de façon à localiser le prélèvement. Lors des opérations de dragage on procède simultanément ou séparément à une mesure de l'activité γ des fonds afin de localiser les zones les plus actives présentes.

- Par prélèvement ponctuel à l'aide de benne à griffes ou du cône de BERTHOIS et de pelles pour les prélèvements à effectuer sur les berges et sur les bancs émergés. Tous les prélèvements sont conditionnés dans une boîte métallique à usage unique ($\phi = 24$ cm ; $h = 12$ cm) dans laquelle on introduit 4 litres de dépôts (1).

Tous les dosages quantitatifs, radioactifs et physico-chimiques seront effectués à partir des sédiments contenus dans ce type de conteneur.

Le choix d'un volume de dépôt de 4 litres permet de disposer d'une quantité de matériaux sédimentaires suffisamment importante pour avoir des échantillons les plus représentatifs possible du site en chacune des stations de prélèvement. Rappelons, en effet, que l'homogénéité du niveau de contamination des alluvions d'un cours d'eau est moins bonne que celle des masses liquides (2), et qu'il est donc nécessaire de récolter une quantité suffisante de matériaux de façon à ne pas avoir au même point des écarts importants qui seraient dus à une mesure radioactive réalisée sur des échantillons de volume réduit. Son conditionnement en conteneur cylindrique ($\phi = 24$ cm, $h = 12$ cm) permet d'obtenir les meilleurs résultats en spectrométrie γ NaI compte tenu des installations (sonde 4" x 4") dont nous disposons tant sur le site qu'à CADARACHE.

(1) Une jauge permet une évaluation rapide du volume introduit.

(2) En effet si les sédiments concentrent l'activité et ont de ce fait des niveaux plus élevés de contamination qui permettent une mesure plus aisée, ce processus de concentration est fonction notamment de la taille des grains. La récolte d'un échantillon trop réduit dont la composition granulométrique s'écarterait de la valeur moyenne au droit de la station conduirait à un résultat erroné par excès (granulométrie plus fine de l'échantillon récolté par rapport à la moyenne de la station) ou par défaut.

2.2.2. Mesures complémentaires effectuées sur les dépôts sédimentaires

Compte tenu de l'hétérogénéité des dépôts sédimentaires liée aux conditions d'écoulements variables dans la tranche d'eau qui les recouvre et de l'incidence de la granulométrie sur le niveau d'activité d'un sédiment, la définition des possibilités d'accumulation des radionucléides dans le lit d'un cours d'eau nécessite une reconnaissance complète en aval du rejet afin de mettre en évidence les zones les plus intéressantes. Dans cette optique, parallèlement à un prélèvement continu des fonds (dragage) on effectue en continu :

- Une mesure de l'activité γ globale, entre 100 KeV et 2 MeV, dont le but est d'avoir une idée du niveau moyen d'activité du dépôt sédimentaire ; le choix de la bande (100 KeV - 2 MeV) se justifie par le fait que tous les émetteurs γ naturels ou artificiels ont une ou plusieurs émissions γ comprises dans cette fourchette d'énergie.
- Une spectrométrie γ NaI simultanée entre 100 KeV et 2 MeV, dont le but est d'identifier directement, "in situ", les émetteurs γ présents, naturels et artificiels, et d'en estimer grossièrement l'abondance.

Dans ce but, on immerge sur les fonds une sonde de détection carénée dans un traîneau spécialement conçu et raccordée à une électronique de mesure embarquée (voir chapitre 3). Au fur et à mesure de la progression lente du bateau (1 à 2 km/h) effectuant le relevé, on enregistre en continu l'activité γ globale des fonds et on visualise en permanence le spectrogramme dans la bande 100 keV à 2 MeV. On peut ainsi en repérant la route suivie par l'embarcation mettre en évidence les zones les plus actives présentes dans le cours d'eau.

Pour les prélèvements ponctuels effectués sur les berges ou sur des bancs émergés la mesure γ globale et la spectrométrie γ NaI sont effectuées en différé dans un local équipé d'un appareil électronique comparable au matériel embarqué. En général le stockage des impulsions reçues par le détecteur pendant une demi-heure permet de déceler la présence éventuelle d'émetteurs artificiels si les niveaux d'activité sont suffisamment importants (1).

2.2.3. Préparation des échantillons de sédiments avant les dosages en laboratoire

2.2.3.1 Constitution d'échantillons composites

Dans le compartiment eau l'activité est faible mais à peu près homogène dans l'espace à un moment donné, ce qui nécessite la récolte d'échantillons de grand volume en 1 ou 2 stations. Pour le sédiment, assez actif et hétérogène dans l'espace on aboutit en dépit de la procédure de dragage fournissant des échantillons représentatifs d'un parcours donné, à un nombre assez élevé d'échantillons (50 à 100 environ). Afin de limiter les dosages quantitatifs à un nombre plus restreint d'échantillons, on procède à un groupage des prélèvements présentant des caractéristiques voisines (localisation - granulométrie - activité γ globale - émetteurs présents). On obtient des échantillons dits composites résultants d'un mélange en partie égale de différents prélèvements ayant des caractéristiques communes. Les analyses et les résultats obtenus sur ces échantillons composites sont alors représentatifs de toute une zone ou une catégorie de dépôt. En moyenne on constitue de 15 à 20 échantillons composites par site.

Le mélange des prélèvements individuels de 4 litres s'effectue dans un mélangeur (durée du brassage = environ un quart d'heure).

A l'aide d'une jauge on prélève de ce mélange :

- 2 litres en vue d'analyses radioactives quantitatives, conditionnés en barquette en aluminium, qui, après diverses opérations (séchage, tamisage, broyage) constituera l'échantillon composite Z broyé ;
- 1 litre en vue d'analyses sédimentologiques, mis en barquette en aluminium, c'est l'échantillon composite Z non broyé ;

- 1 litre qui servira à la constitution de l'échantillon composite Z', mélange de tous les composites (Z) effectués sur le site, à partir duquel on isolera les sables grossiers ($2 \text{ mm} > \phi > 0,2 \text{ mm}$), les sables fins ($0,2 > \phi > 0,05$) et enfin les limons et argiles ($\phi < 0,05 \text{ mm}$) pour l'étude de la corrélation entre la granulométrie et l'activité.

2.2.3.2 Préparation des échantillons composites (Z) en vue d'analyses radioactives quantitatives en laboratoire

Sur la fraction de 2 litres de chaque composite, nous effectuons dans l'ordre qui suit, les opérations suivantes :

- Une pesée. On détermine le poids volumique du dépôt (mélange eau-sédiment) en place (P_{sh}) que l'on exprime en kg/l ou kg/m^3 .
- Une dessiccation à 110°C , par passage pendant environ 48 h (sables) à 72 h (vases) dans une étuve à ventilation forcée munie d'une régulation en température.
- Une pesée après dessiccation. Elle permet d'obtenir, le poids du seul sédiment sec (P_{ss}) contenu par litre ou m^3 de dépôt que l'on exprime également en kg/l ou kg/m^3 .

On peut à partir de P_{sh} et P_{ss} déterminer la teneur en eau du dépôt.

$$Te \text{ (en \%)} = \frac{P_{sh} - P_{ss}}{P_{sh}} \times 100$$

La détermination de ces 3 termes, P_{sh} - P_{ss} et Te , est indispensable car :

- connaissant le poids de matériaux secs d'un dépôt P_{ss} , on peut calculer l'activité qu'il renferme, à partir des résultats des dosages radioactifs réalisés sur des matériaux secs.

$$\begin{array}{llll}
 \text{Exemple : } \text{dépôt volume} & = 1\,000\text{ m}^3 & = V & \\
 \text{Activité} & = 50\text{ Bq.kg}^{-1} & = A & \\
 P_{ss} & = 800\text{ kg/m}^3 & = P_{ss} &
 \end{array}$$

$$\begin{array}{lcl}
 \text{Activité totale} & & V \times P_{ss} \times A \\
 \text{du dépôt} & \left\{ \begin{array}{l} 1\,000 \times 800 \times 50 = 4,0 \cdot 10^7 \text{ Bq} \end{array} \right. &
 \end{array}$$

- Connaissant le type de dépôt concerné (vase ou sable), on peut avoir une idée de son état de consolidation sur le fond (tassement) et par voie de conséquence, son aptitude à la remobilisation (teneur en eau et fluidité plus ou moins grande).
- Connaissant ces 3 grandeurs, on peut comparer les divers dépôts du cours d'eau entre eux : une activité équivalente de deux dépôts, exprimée en Bq.kg^{-1} sec peut correspondre à une activité des dépôts en place différente du fait d'une teneur différente de ceux-ci en sédiments secs P_{ss} . Inversement, deux dépôts ayant des niveaux de contamination* en place identiques, peuvent correspondre à des valeurs différentes de contamination exprimées en Bq.kg^{-1} de sédiments secs.
- Un tamisage des sédiments secs afin d'éliminer tous les grains dont la taille excède 2 mm ; ces grains ayant une aptitude négligeable à fixer les radionucléides.
- Un broyage, dans un broyeur FORPLEX, type FL.O, de façon à réduire le sédiment à l'état de poudre ; on obtient alors l'échantillon composite Z broyé. C'est à partir de cette poudre (1) que seront effectués tous les dosages radioactifs ultérieurs (spectrométrie γ Ge-Li - radiochimie). Le but de ce broyage est de faciliter l'attaque du sédiment lors des opérations de dissolution par voie acide (employée en radiochimie) et d'obtenir un échantillon homogène pour les dosages radioactifs et de concentrer le maximum d'activité dans le minimum de volume afin d'obtenir les meilleures conditions de détection possibles.

(1) on obtient environ 1 litre de poudre à partir de 2 litres de dépôt.

— Un conditionnement.

En boîte plastique ($V = 350$ CC. $h = 6$ cm, $\phi = 9$ cm) pour les dosages radioactifs quantitatifs (spectrométrie γ GeLi)

En sachet plastique avec environ 20 grammes destinés au dosage radiochimique du strontium. Ce dosage n'est effectué que sur les trois fractions granulométriques (sables grossiers, sables fins, argiles + limons).

En bidon plastique de 1 litre pour archivage (1).

Tous les conteneurs (boîte métallique de prélèvement - barquette en aluminium - boîte de conditionnement) sont à usage unique afin d'éviter toute contamination possible des échantillons par le conteneur, et ils portent toutes les indications permettant le repérage de l'échantillon.

2.2.3.3 Préparation des échantillons composites (Z) en vue des analyses non radioactives

La fraction de 1 litre (mise dans une barquette en aluminium) de chaque échantillon composite est soumise à :

- Une dessiccation à 40°C par passage pendant environ 72 heures (sables) et 96 heures (vases) dans une étuve à ventilation forcée munie d'une régulation en température.
- Un émottage délicat afin de respecter la granulométrie du matériau prélevé.
- Un conditionnement dans 3 conteneurs distincts du sédiment séché à 40°C et émotté délicatement.

Environ 250 g dans un sachet plastique seront envoyés au laboratoire chargé des analyses sédimentologiques et chimiques.

Environ 200 g dans un sachet plastique seront envoyés au laboratoire chargé des analyses minéralogiques.

(1) Tous les échantillons analysés dans le cadre des points zéro sont conservés en cas de contestations ultérieures des mesures.

Le reste est conditionné dans un bidon plastique de 0,5 litre pour archivage.

2.2.3.4 Constitution de l'échantillon global (Z') du site destiné à l'étude de la distribution de l'activité en fonction des fractions granulométriques et méthodes de préparation avant les dosages.

Cet échantillon résulte du mélange des aliquotes de 1 litre prélevées sur chaque échantillon composite Z. On procède au mélange de la même manière que pour la constitution des composites.

La séparation des fractions granulométriques se fait par passage du mélange de sédiments obtenu sur un jeu de 3 filtres à maille carrée de 2 mm - 0,2 mm et 50 μ m respectivement.

Le refus du tamis 2 mm est jeté.

Le refus du tamis 0,2 mm constitue la fraction sables grossiers : $2 > \phi > 0,2$ mm. On l'appelle Z'A.

Le refus du tamis 0,05 mm constitue la fraction sables fins : $0,2 > \phi > 0,05$ mm. On l'appelle Z'B.

Les 2 fractions Z'A, Z'B, subissent alors les mêmes opérations que celles appliquées aux composites.

2.3. LES VEGETAUX

2.3.1. Technique de prélèvement

Le prélèvement des végétaux semi-aquatiques (tel que l'iris) nécessite l'utilisation d'instruments aratoires permettant l'accès aux racines pour arracher ensuite l'ensemble. Les végétaux sont ensuite très soigneusement lavés sur place notamment les racines qui emprisonnent des bouts de bois, des graviers, des sédiments, etc.

2.3.2. Préparation des échantillons de végétaux avant les dosages en laboratoire

Si nécessaire les végétaux sont relavés en laboratoire.

Pour pratiquer leur dessiccation les végétaux sont coupés afin d'être introduits dans des barquettes en aluminium. Cette dessiccation dure environ 24 heures à 110°C. Les produits secs sont très soigneusement pesés puis réduits à l'état de poudre dans un broyeur de type VORWERK.

Suit alors l'étape de l'incinération. Le cycle choisi dure 24 heures et se décompose ainsi :

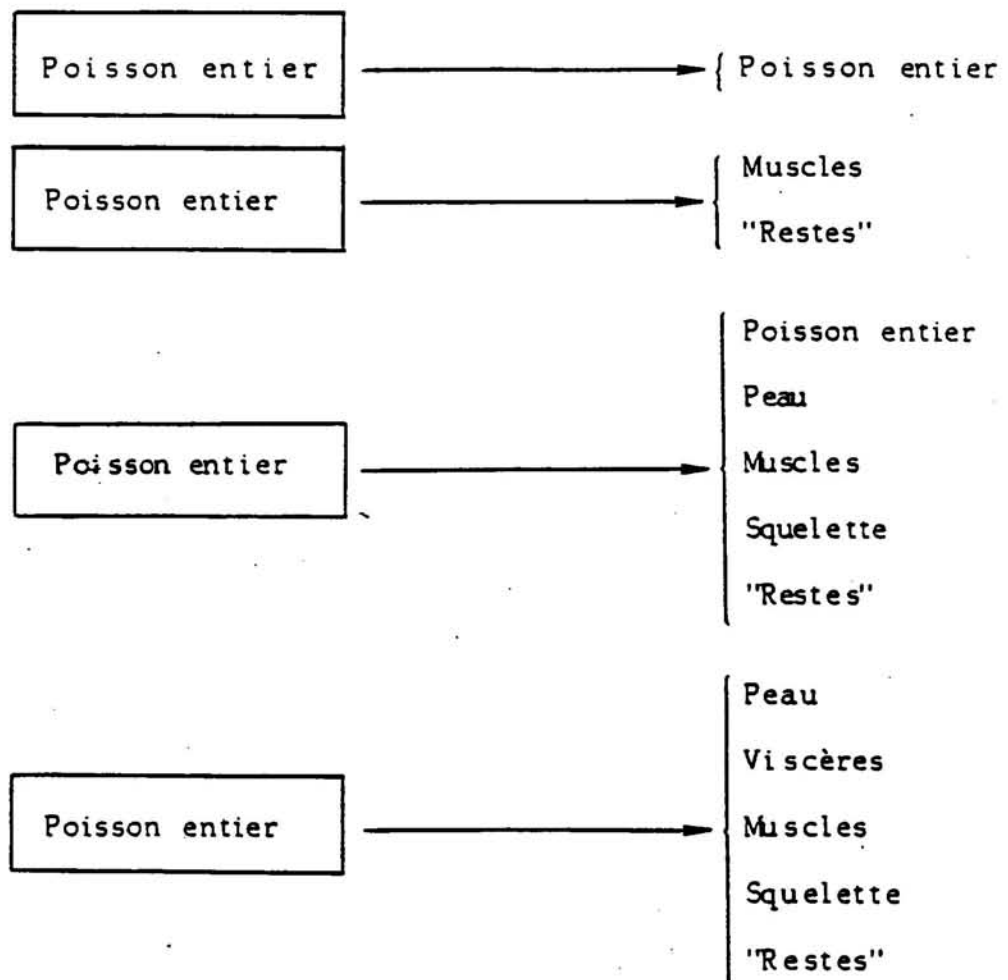
- 1 heure de 20 à 200°C,
- 2 heures à 200°C,
- 1 heure de 200 à 300°C,
- 3 heures à 300°C,
- 3 heures de 300° à 55°C,
- 14 heures à 600°C.

Le produit de cette incinération, les cendres, est lui aussi très soigneusement pesé.

S'ils peuvent être conditionnés tout de suite au laboratoire et compte tenu :

- de la quantité de poissons récoltés ;
- de l'intérêt qu'ils présentent au point de vue de la radioprotection ;
- de leur place dans la chaîne alimentaire (espèces carnivores ou non) ;
- des mesures radioactives à effectuer.

On procède ou non à une dissection. Quatre schémas ont ainsi été choisis :



Les poissons entiers et les organes subissent le même traitement que les végétaux. Il faut cependant noter que le temps de dessication est plus long (entre 48 et 72 heures) et ceci à cause de la teneur en graisse des poissons.

CHAPITRE 3

MOYENS MIS EN OEUVRE IN SITU POUR L'EXECUTION DU POINT ZERO
RADIOECOLOGIQUE D'UN COURS D'EAU

L'exécution des prélèvements et des mesures radioactives qualitatives (γ global et spectrométrie γ NaI) nécessite la mise en oeuvre d'un certain nombre d'équipements qui sont décrits dans le présent chapitre.

3.1. APPAREILS DE PRELEVEMENTS

3.1.1. Appareil de prélèvement d'eau

Il s'agit d'un appareil portable (30 kg - hauteur 60 cm largeur 50 cm - profondeur 27 cm) autonome (batterie 12 volts) (1) qui permet le prélèvement automatique d'un volume d'eau de 100 à 200 litres sur une période pouvant atteindre plus de 10 jours avec filtration des M.E.S. et concentration "in situ" des sels dissous et matières organiques dans un volume réduit (1 litre).

- Principe général de fonctionnement

On effectue le prélèvement selon un régime séquentiel.

Une pompe d'un débit instantané de 100 l/heure prélève un volume de 0,5 litre à intervalles de temps réguliers : le réglage possible de la durée de cet intervalle entre 60 et 3 600 s permet pour un même volume prélevé de faire varier la durée de l'échantillonnage entre quelques heures et plusieurs jours (2).

Aussitôt prélevées, les aliquotes successives de 0,5 litre sont filtrées sur un filtre de grande surface et de porosité 0,8 μ m (3).

(1) Un chargeur incorporé à l'appareil permet un fonctionnement sur secteur avec la batterie en tampon.

(2) 150 litres prélevés filtrés et concentrés en 5 heures à 12 jours 1/2.

(3) Filtre MILLIPORE DI 10 conforme à la norme AFNOR pour l'évaluation de la teneur en matières en suspension.

L'eau ainsi débarrassée de ses matières en suspension (M.E.S.) passe dans deux cartouches successives renfermant chacune un lit de résines échangeuses d'ions cationiques et anioniques mélangées (1) qui assure la concentration de tous les éléments dissous présents dans l'eau sous forme ionique (2) ; l'eau filtrée et désionisée ainsi produite passe enfin sur une cartouche renfermant du charbon actif (3) qui retient les composés organiques présents dans l'eau.

- Possibilités techniques complémentaires de l'appareil

- . mesure du débit total par débitmètre incorporé à l'appareil,
- . prédétermination possible du nombre d'aliquote à prélever avec arrêt automatique de l'appareil lors du dernier prélèvement par compteur d'impulsions préréglable.
- . vidange et renouvellement complet de la colonne d'eau entre chaque prélèvement évitant toute perte d'activité et détérioration de l'échantillon par séjour de l'eau dans le conduit d'aspiration,
- . vitesse d'aspiration importante de l'eau assurant un échantillonnage représentatif des M.E.S.

Tous les accessoires de conditionnement de l'eau (filtre - résines, charbon) sont du matériel de grande diffusion ; ils sont intégrés dans le système de production d'eau ultra pure MILLIPORE.

(1) Il s'agit de la résine MILLIPORE IRN-150 qui est un mélange de résines cationiques IR-120 de capacité d'échange $36,8 \text{ kg Ca Co}_3 / \text{pied}^3$ et anionique IRA-400 de capacité d'échange $17 \text{ kg Ca Co}_3 / \text{pied}^3$ en quantités telles qu'il y ait la même capacité d'échange pour chacune d'elles, ces résines étant prévues dans le système MILLIPORE de fabrication d'eau ultra pure de haute qualité pour produire 150 litres d'eau à 18 megohms/cm à 25°C.

(2) Le volume du lit de résine étant de 1 litre, le rapport de concentration est de l'ordre de 150 pour un prélèvement de 150 litres. Le volume total concentré est fonction de la charge en sels dissous de l'eau prélevé e.

(3) Colonne de charbon actif équipant le système MILLIPORE.

3.1.2. Appareils de prélèvement des sédiments

Selon le mode de prélèvement (ponctuel ou dragage) et selon la nature des fonds, quatre types de benne sont utilisés.

- Pour les prélèvements ponctuels, lorsque les fonds sont peu consolidés on emploie la benne MECABOLIER assez légère (30 kg), à griffes, d'un volume utile de 5 litres. Quand les fonds sont assez compacts on a recours à la benne PETERSEN un peu plus lourde (45 kg), à deux mâchoires sans griffe, d'un volume utile de 8 litres et dont le mécanisme de fermeture plus puissant permet d'entailler les dépôts vaseux ou sableux bien consolidés.
- Pour les prélèvements par dragage sur une longue distance on emploie la benne EMERY. Il s'agit d'un tube cylindrique de 46 cm de long, d'un diamètre de 17 cm représentant un volume utile de prélèvement de 8 litres. Ce tube pèse 16 kg. Il est fermé à sa partie inférieure, sa partie supérieure par contre est ouverte, ce qui permet l'entrée du sédiment lorsque le tube est traîné horizontalement sur le fond ; une tige métallique articulée relie le câble de traction du bateau à la partie supérieure du tube.

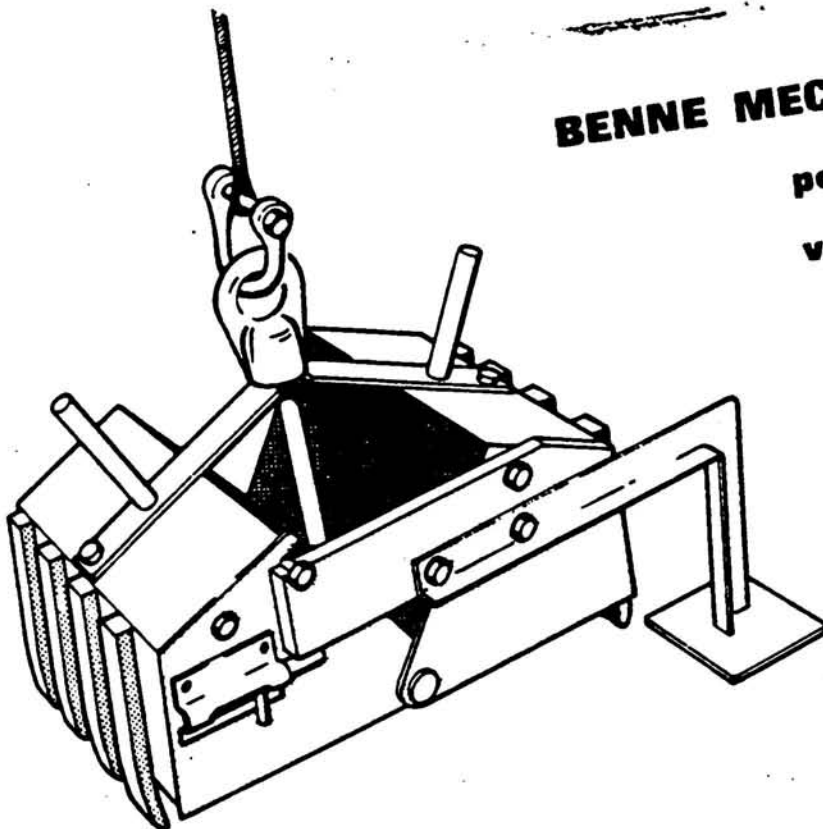
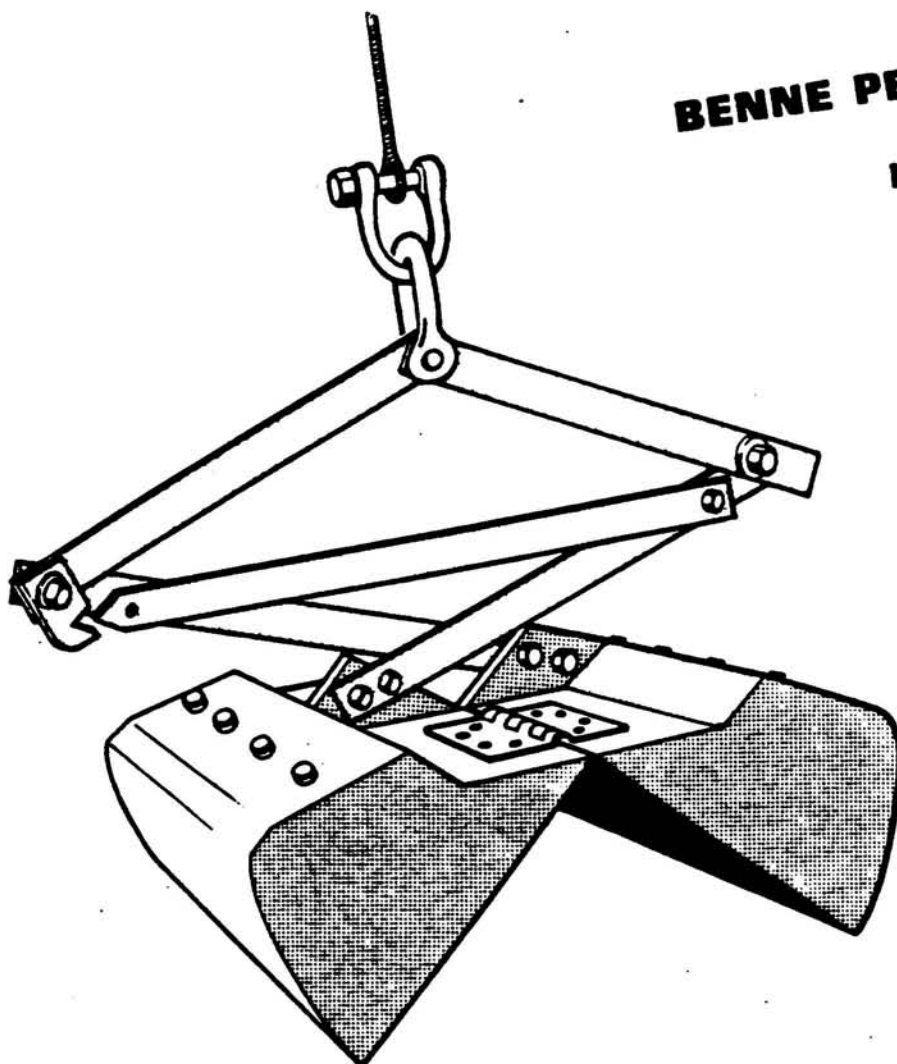
Lorsqu'on désire effectuer un dragage sur une distance de l'ordre d'une dizaine de mètres on utilise la benne LEPE rectangulaire d'un volume de 30 litres et d'un poids de 22 kg ; plus tranchante (section rectangulaire) que la benne EMERY, elle entaille plus rapidement le fond.

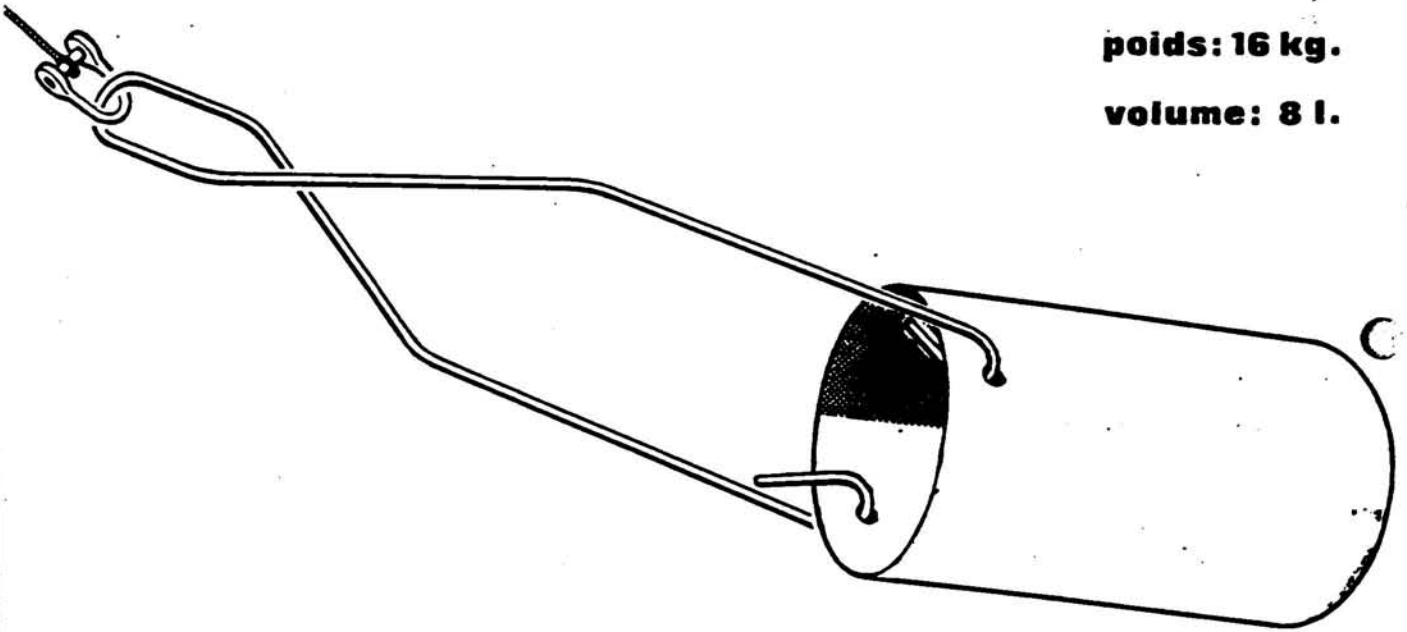
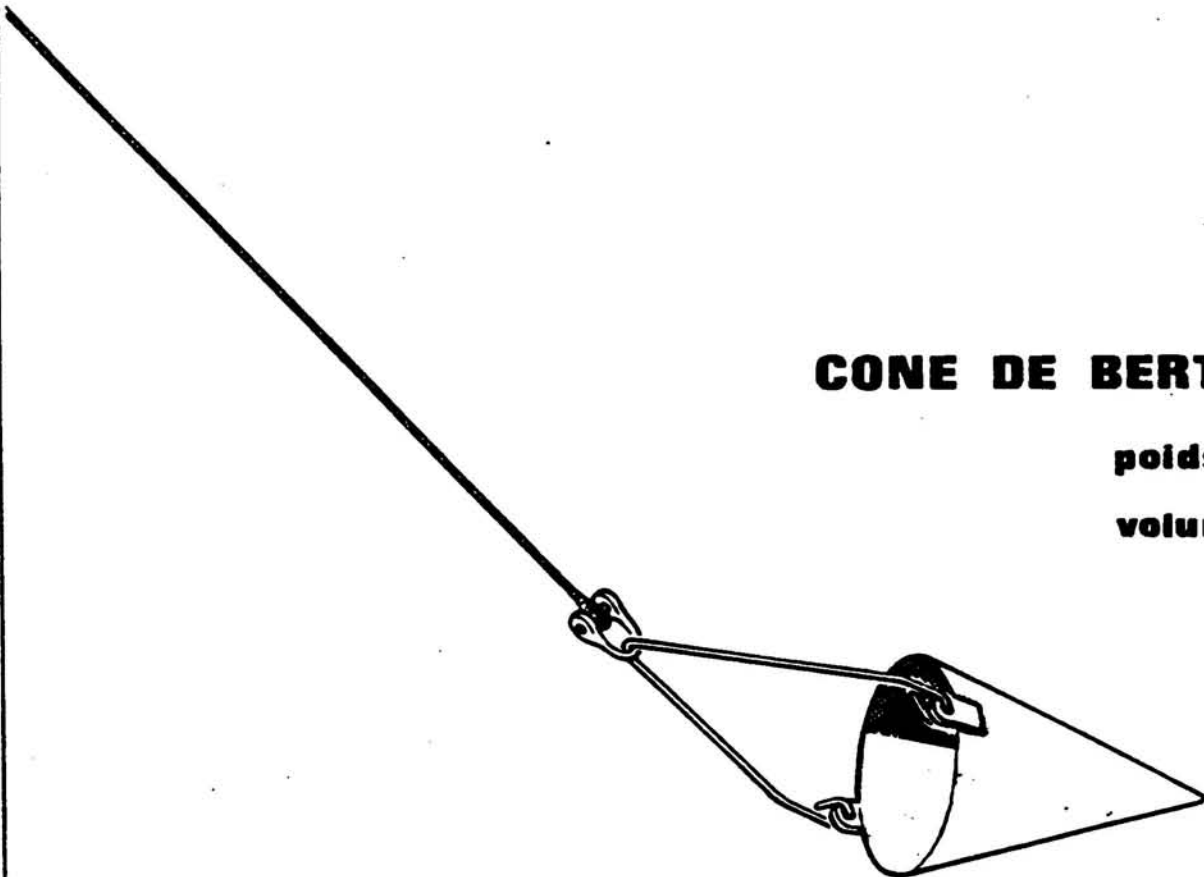
Ces différents types de bennes sont actionnés par l'un des treuils situé sur la plage arrière des embarcations. Chaque treuil est équipé d'un câble porteur en nylon dont la longueur est adaptée à l'importance des fonds sur lesquels on travaille.

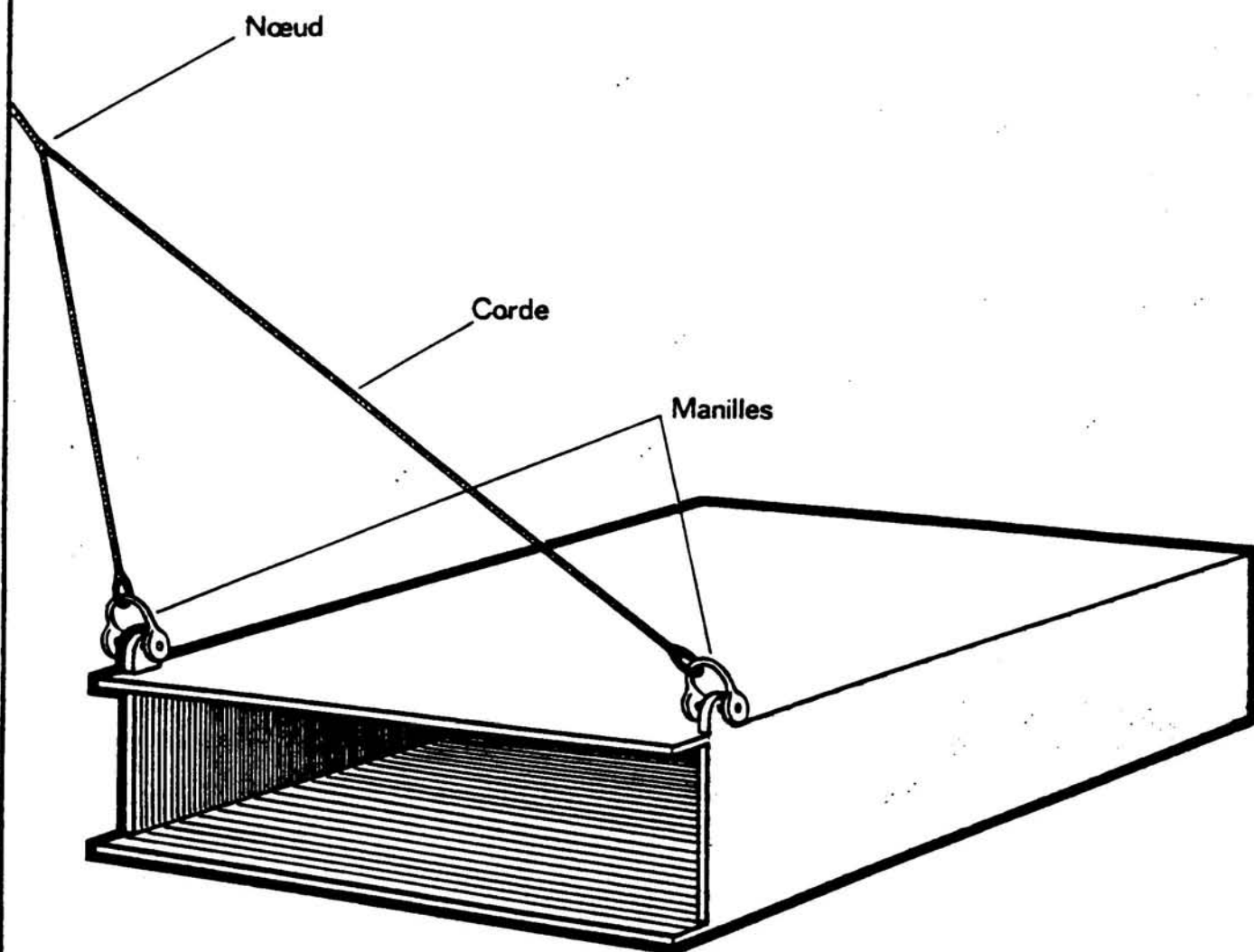
Lorsque les prélèvements ne peuvent se faire à l'aide d'une de ces bennes, ils sont effectués manuellement avec le cône de BERTHOIS.

C'est un cône métallique d'une capacité de 6 litres pesant seulement 2,5 kg que l'on lance dans l'eau à l'aide d'un cordage en nylon et dont la récupération, en laissant racler le cône sur le fond, permet de prélever des sédiments.

Pour effectuer les prélèvements dans l'épaisseur des dépôts-carottage d'un mètre par tronçon de 20 cm - nous utilisons une bêche tarière qui permet de creuser des trous cylindriques de 25 cm de diamètre.

BENNE MECABOLIER**poids : 30 kg.****volume : 5 l.****BENNE PETTERSEN****poids : 45 kg.****volume : 8 l.**

BENNE EMERY**poids: 16 kg.****volume: 8 l.****CONE DE BERTHOIS****poids: 2 kg.****volume: 6 l.**

**BENNE L.E.P.E****poids : 22 kg.****volume : 30 l.**

3.2. APPAREILS DE MESURES

3.2.1. Le Sondeur à ultrasons

La vedette est équipée d'un sondeur ELAC de fabrication allemande (Electroacoustic GMBH - KIEL), type ECHOGRAPH LAZ 51 MT, BOITIER ENREGISTREUR ET REPETITEUR DIGITAL couplés.

. Boitier enregistreur LAZ 51

Il est utilisé exclusivement lors des opérations de relevé bathymétrique (profils en travers, opérations de sonde traînée) ou lors des stations de mesures et de prélèvement d'échantillons. Il possède 6 échelles de lecture :

- Gamme I : 0 - 20 m ; 20 - 40 m ; 40 - 60 m.

- Gamme II : 0 - 80 m ; 80 - 160 m ; 160 - 240 m.

L'échelle 0 - 20 m (la plus communément utilisée sur les sites) permet d'apprécier les profondeurs à 20 cm près.

Un système de changement de vitesse de déroulement de papier et un bouton-traceur (actionné manuellement par l'opérateur au moment du passage de la vedette devant les repères) permettent d'obtenir un enregistrement détaillé des fonds sondés, assorti d'un repérage topographique.

. Répétiteur digital ELAC DAZ 13

Il est placé en face du pilote et sert principalement à la navigation. Il fonctionne sur 12 V et travaille sur une fréquence de 50 kilocycles. Il est équipé d'une alarme basse, affichée manuellement par un potentiomètre. Ce dispositif trouve tout son intérêt, en dehors de la sécurité de navigation en eaux peu profondes, lorsqu'il s'agit d'opérer en suivant une ligne bathymétrique déterminée.

3.2.2. Le LOCH et son répétiteur de parcours

La vitesse du bateau est donnée par un loch électromagnétique BEN ; simultanément un compteur à 6 chiffres donne la distance parcourue en km. Un répétiteur de parcours à 6 chiffres, avec remise à zéro indique la distance parcourue en mètres ; il est utilisé à faible vitesse pour les petits parcours, afin d'avoir une meilleure précision.

3.2.3. L'ensemble de mesures "in situ" de l'activité γ des sédiments : γ global et spectrométrie γ NaI, à bord du bateau.

La mesure des radionucléides émetteurs γ présents sur les fonds s'effectue à l'aide d'appareils de mesure spécialisés, mis au point au laboratoire.

3.2.3.1. L'ensemble de détection embarqué

Le détecteur utilisé est un cristal cylindrique d'iodure de sodium activé au thallium INa (Tl) de 102 mm de diamètre sur 102 mm de hauteur, de marque HARSHAW, type 16S16/5E, dont la résolution est inférieure à 7,5 % pour le ^{137}Cs . Ce cristal est associé à un photo-multiplicateur S R C 125 B01, d'un diamètre de 127 mm et à un préamplificateur.

L'ensemble cristal - photo-multiplicateur - préamplificateur est logé à l'intérieur d'un boîtier métallique en acier inoxydable résistant à une pression de 5 bars, ce qui autorise des mesures dans des fonds atteignant 50 mètres.

Ce boîtier détecteur est lui-même logé dans un habitacle de forme parallélépipédique caréné à l'avant, appelé traîneau de détection.

3.2.3.2. Le traîneau de détection

Le but de ce traîneau de détection est triple :

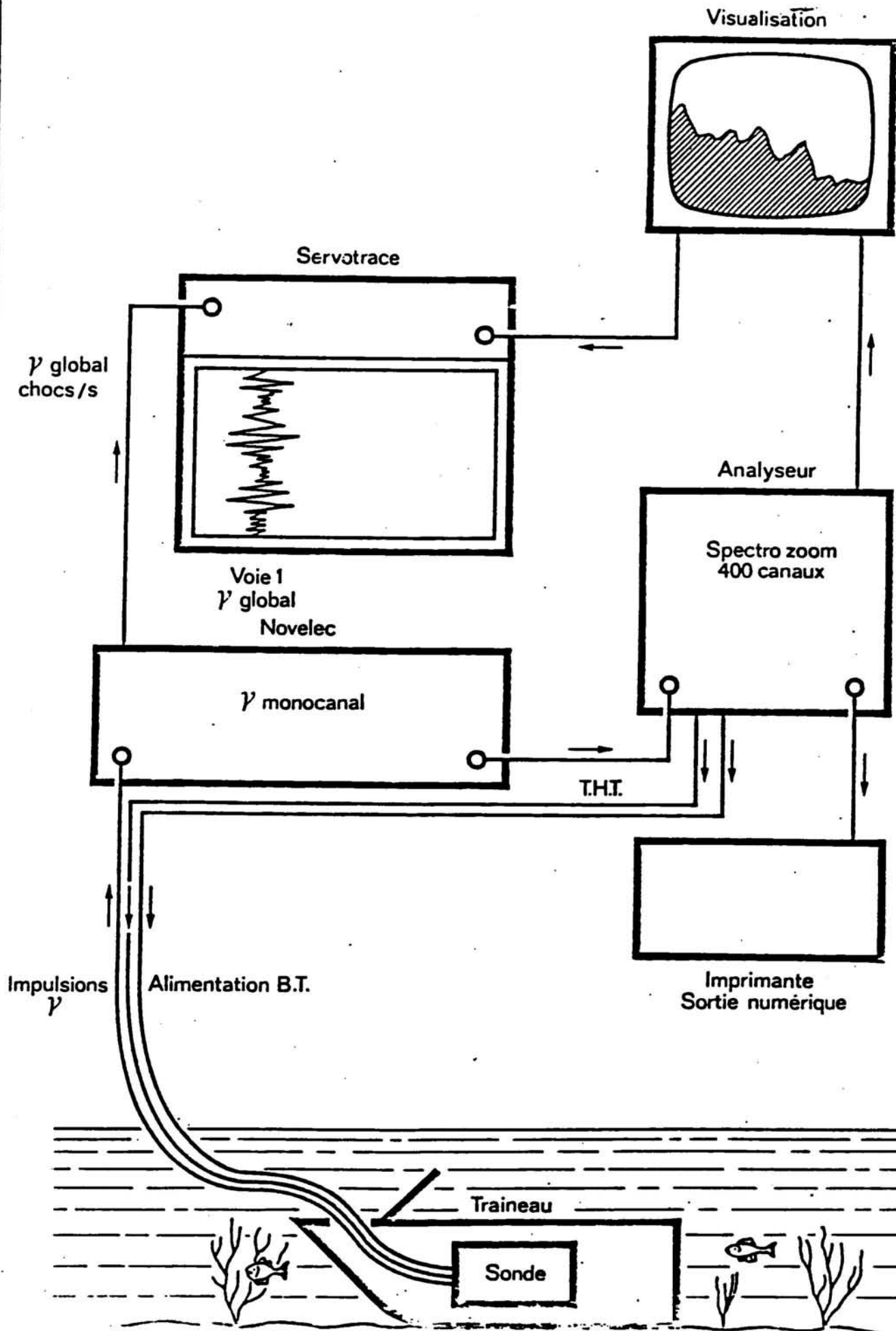
- 1° - comme son nom l'indique, il permet le remorquage du détecteur sur les fonds, lors des opérations de sonde traînée ;
- 2° - il protège le détecteur contre les chocs inévitables se produisant avec les matériaux du fond aussi bien lors de la descente du traîneau sur le fond que pendant les opérations de remorquage ;
- 3° - il conserve des conditions de géométrie constante : permettant une comparaison des résultats obtenus entre les différentes stations quelle que soit la nature des fonds. Sans son conditionnement à l'intérieur du traîneau, véritable emballage métallique fermé de toute part (sauf 2 orifices à la partie supérieure permettant les entrées et sorties d'eau), le détecteur s'enfouirait plus ou moins dans les alluvions en fonction de leur nature (vases - sables - dépôts consolidés ou non) et le taux de comptage obtenu serait entaché d'erreurs provenant d'un contact (enfouissement) plus ou moins complet dans les alluvions en fonction de leur état de consolidation.

Un volet réglable permet de conserver le traîneau plaqué contre le fond lors des opérations de sonde traînée.

3.2.3.3. Un câble conducteur étanche

D'une longueur de 50, 100 ou 200 m selon les besoins ; il relie la sonde immergée à l'électronique située à bord.

Ce câble étanche comprend deux fils coaxiaux : le premier, véhicule la haute tension nécessaire à la marche du détecteur. Son isolement est de 3 kilovolts.

ENSEMBLE DE DÉTECTION γ 

Le deuxième, sert pour l'alimentation en courant continu 12 volts nécessaire à la marche du préamplificateur et véhicule les impulsions délivrées par le détecteur vers l'électronique situé à bord - impédance : 50 ohms.

3 conducteurs simples sont également disponibles.

3.2.3.4. Une électronique située à bord

Cette électronique permet l'exécution simultanée d'une mesure γ globale et d'une mesure en spectrométrie γ des fonds.

Le but de ces deux mesures est double :

- avoir une idée du niveau de radiocontamination des fonds par les émetteurs γ dont l'émission photo-électrique se situe entre 100 keV et 2 MeV; c'est la mesure γ globale.
- identifier sur place les émetteurs γ présents sur les fonds ; c'est la mesure spectrométrique.

3.2.3.4.1. L'ensemble de mesure γ globale

La mesure γ globale se fait à l'aide d'un spectromètre à une voie de marque NOVELEC, dans une bande d'énergie de 100 keV à 2 MeV. Sa fonction est la suivante :

- Il numérise les impulsions en provenance du détecteur pendant le temps de contact du traîneau avec le fond ; ce qui donnera un taux de comptage moyen sur le vecteur parcouru.
- Les impulsions sont intégrées avec une constante de temps donnée par un icromètre qui délivre une tension analogique proportionnelle à leur nombre.
- Eventuellement ce spectromètre peut fournir la Très Haute Tension nécessaire au photomultiplicateur de la sonde détectrice. L'enregistrement analogique est fait par un Enregistreur Yt à 2 voies Sefram de type SERVOTRACE.

1^{re} voie enregistre la sortie ~~analogique~~ de l'ictomètre, la 2^{ème} voie, la bathymétrie sous la forme d'une tension continue donnée par un interface digital analogique à la suite du sondeur à ultra-sons ELAC. Un topeur d'évènement permet de caler le diagramme obtenu par rapport à un système de localisation du bateau de type LORAN, DECCA, etc.

3.23.4.2. L'ensemble de mesure spectrométrique

Il se compose :

- d'un analyseur d'amplitude 200 canaux type spectrozoom sz82 de construction française fabriqué par SEIN (ALFORVILLE).

Cet analyseur est équipé :

- . d'un module (HT82) fournissant la haute tension nécessaire au fonctionnement du photo-multiplicateur,
- . d'un module (AM82) amplifiant les signaux issus du préamplificateur et donnant la tension continue - 12 volts nécessaire au fonctionnement du préamplificateur.
- . d'un écran de télévision 625 lignes (VS82) qui permet la visualisation permanente du spectre pendant la mesure. Il est réglé de façon à avoir une vue du spectre allant de 0 à 2 MeV le canal 66 correspondant au pic ^{137}Cs .

La sortie des informations s'effectue :

- . sous forme numérique à l'aide d'une imprimante IER 214,
- . sous forme graphique en liaison avec l'enregistreur yt SERVOTRACE.

3.2.3.4.3. Etalonnage de l'ensemble des mesures

Le problème le plus délicat dans les mesures d'activité et plus particulièrement "in situ" est de s'assurer d'un étalonnage correct de l'ensemble de mesure et de la stabilité dans le temps de cet étalonnage.

Les causes de dérèglement sont nombreuses sur le site : variation de température au niveau du détecteur, fluctuations de tension, etc. Pour pallier ces inconvénients, on procède à 2 types d'étalonnage chaque jour.

Un étalonnage en énergie de l'ensemble détecteur-sélecteur d'amplitude. Nous savons que l'ensemble des émetteurs γ présents dans les effluents des centrales ont une émission photo-électrique dont l'énergie est généralement comprise entre 0 et 2 MeV.

On règle donc :

- Le sélecteur d'amplitude de façon à recueillir dans les 200 canaux disponibles les signaux correspondant à une énergie allant de 0 à 2 MeV.

Pour ce faire on présente devant le détecteur des sources solides étalons d'émetteurs γ connus (^{137}Cs , ^{60}Co , ^{133}Ba) et on règle le sélecteur en agissant sur le gain de l'amplificateur AM82, de façon à faire coïncider exactement le maximum du pic photo-électrique avec le canal correspondant.

Exemple : pour le ^{137}Cs , dont l'émission γ se fait à 662 keV, on agit sur le gain pour amener le pic dans le 66ème canal. En effet, une bande d'énergie de 2 MeV répartie sur 200 canaux correspond à une bande d'énergie de 10 keV prise en compte par canal, donc le ^{137}Cs à 660 keV doit apparaître si les 200 canaux correspondent rigoureusement à 2 MeV ou $\frac{660}{10} = 66$ ème canal.

L'utilisation d'autres émetteurs permet d'avoir d'autres points de repères (117ème et 133ème canal pour les pics 1,17 et 1,33 keV du ^{60}Co - 36ème canal pour le pic 0,36 keV du ^{133}Ba). On obtient ainsi une droite d'étalonnage qui permet d'établir une correspondance rigoureuse entre canal et énergie.

Un pic apparaissant sur l'écran (VS82) lors d'une mesure, il est ainsi possible de déterminer immédiatement son énergie et d'identifier le radionucléide concerné à partir des tables existantes qui donnent pour chaque radionucléide les émissions γ les caractérisant.

Un étalonnage et une mise en concordance du monocanal γ avec l'ensemble détecteur-sélecteur d'amplitude.

Nous avons vu que les signaux recueillis par le détecteur étaient en sortie de l'amplificateur envoyés d'une part vers le sélecteur SZ82, d'autre part vers le spectromètre SI61 du monocanal γ , afin d'effectuer une mesure γ globale intéressant la bande d'énergie allant de 0,1 à 2 MeV.

Le choix de cette bande 0,1 à 2 MeV est basé sur le fait que la plupart des radionucléides émetteurs γ ont un ou plusieurs pics photo-électriques qui apparaissent dans cette plage d'énergie.

L'élimination des signaux inférieurs à 100 keV a pour but de s'affranchir des parasites que l'on recueille fréquemment en basse énergie et qui s'ajoutent aux signaux issus de la détection d'événements radioactifs, devant être seuls pris en compte. Pour faire la somme de ces signaux compris entre 0,1 et 2 MeV il faut s'assurer d'un calibrage correct du monocanal compatible avec celui réalisé pour l'ensemble détecteur-sélecteur d'amplitude.

3.2.4. L'ensemble de mesures "~~in situ~~" de l'activité γ des sédiments : γ globale et spectrométrie γ NaI à terre

Les échantillons de sédiments au fur et à mesure de leur récolte sur le site sont mis en boîte de 4 litres (ϕ 24 cm ; h = 12 cm), et mesurés à terre à l'intérieur d'un château de plomb (épaisseur des parois 5 cm) de dimensions suffisantes (L = 40 cm, l = 40 cm, h = 25 cm).

Le détecteur γ NaI utilisé est identique à celui employé à bord de l'embarcation. Il est relié à une électronique qui permet l'exécution simultanée d'une mesure γ globale et d'une mesure en spectrométrie γ NaI Tl.

Le but de ces deux mesures est double :

- avoir une idée du niveau moyen de contamination des sédiments par les émetteurs γ dont l'émission photo-électrique se situe entre 100 keV et 2 MeV ; c'est la mesure γ globale;
- identifier sur place les émetteurs γ présents dans les sédiments.

Rappelons toutefois que la spectrométrie γ NaI Tl est plus qualitative que quantitative, elle permet de déceler "*in situ*" la présence éventuelle d'émetteurs artificiels. Seule la spectrométrie γ Geli effectuée en Laboratoire, permettra une identification certaine et un dosage quantitatif des émetteurs γ présents dans les échantillons.

3.2.4.1. L'ensemble de mesure γ global

Il se compose d'un spectromètre une voie de marque NOVELEC. Il reçoit les impulsions en provenance de la sonde de détection et il les numérise pendant un temps égal à leur accumulation dans l'analyseur de spectre.

Le taux moyen de comptage est obtenu en divisant le nombre d'impulsion accumulé par le temps pendant lequel s'est effectué la mesure.

Les échelles de comptage et de temps comportent 6 décades. Une alimentation haute tension est incorporée et peut éventuellement servir à l'alimentation du photomultiplicateur de la sonde de détection.

3.2.4.2. L'ensemble de mesure spectrométrique γ NaI

Il se compose d'un analyseur de spectre Cosynus 60 de marque Schlumberger 2 048 canaux. La visualisation se fait sur écran et le périphérique de sortie est une imprimante LA 34 de marque Digital.

Le sédiment à analyser et la sonde détectrice se trouvent à l'intérieur d'un chateau de plomb d'environ 350 kg, et sont ainsi à l'abri du rayonnement gamma ambiant. Les signaux issus du photomultiplicateur, sont amplifiés et adaptés dans un préamplificateur associé. Ils sont ensuite dirigés vers l'analyseur de spectre. Divers réglages (dont un réglage de gain) permettent l'étalonnage en énergie à partir de sources connues. Un codeur trie les signaux suivant leur amplitude caractéristique et il les accumule dans les canaux correspondants.

La mémoire de 2 048 canaux est partagée en deux groupes de 1 024 canaux. Chaque jour l'étalonnage en énergie de l'Analyseur est fait, ainsi que l'acquisition du spectre gamma ambiant. Ce spectre viendra se loger dans le deuxième groupe, et sera soustrait de chaque spectre, correspondant à une mesure de sédiment (comptage de 30 minutes).

En fin d'acquisition, le contenu de chaque canal et son numéro (1 024 ex) apparaît sur un listing donné par l'imprimante LA 34. En tête du listing est inscrit les références de l'échantillon analysé, la date, la durée de la mesure ainsi que les principaux paramètres de la mesure.

En outre une photographie polaroid 7 x 9 prise sur la visualisation est jointe au listing et donne l'allure générale du spectre.

CHAPITRE 4

MOYENS MIS EN OEUVRE AU LABORATOIRE POUR
L'EXECUTION DU POINT ZERO RADIOECOLOGIQUE D'UN COURS D'EAU

Au laboratoire sont effectuées toutes les opérations de préparation des échantillons qui n'ont pu être réalisées sur le terrain, les dosages radioactifs, minéralogiques et chimiques de type quantitatifs et la majeure partie des tâches relatives à la préparation de l'étude et à l'établissement du rapport.

4.1. METHODES DE MESURES RADIOACTIVES

4.1.1. Spectrométrie γ Germanium-lithium (Ge-Li)

Ces mesures γ Geli sont effectuées au sein même du SERE dans le laboratoire de mesures relatives à l'environnement situé dans le Campus universitaire d'ORSAY (*).

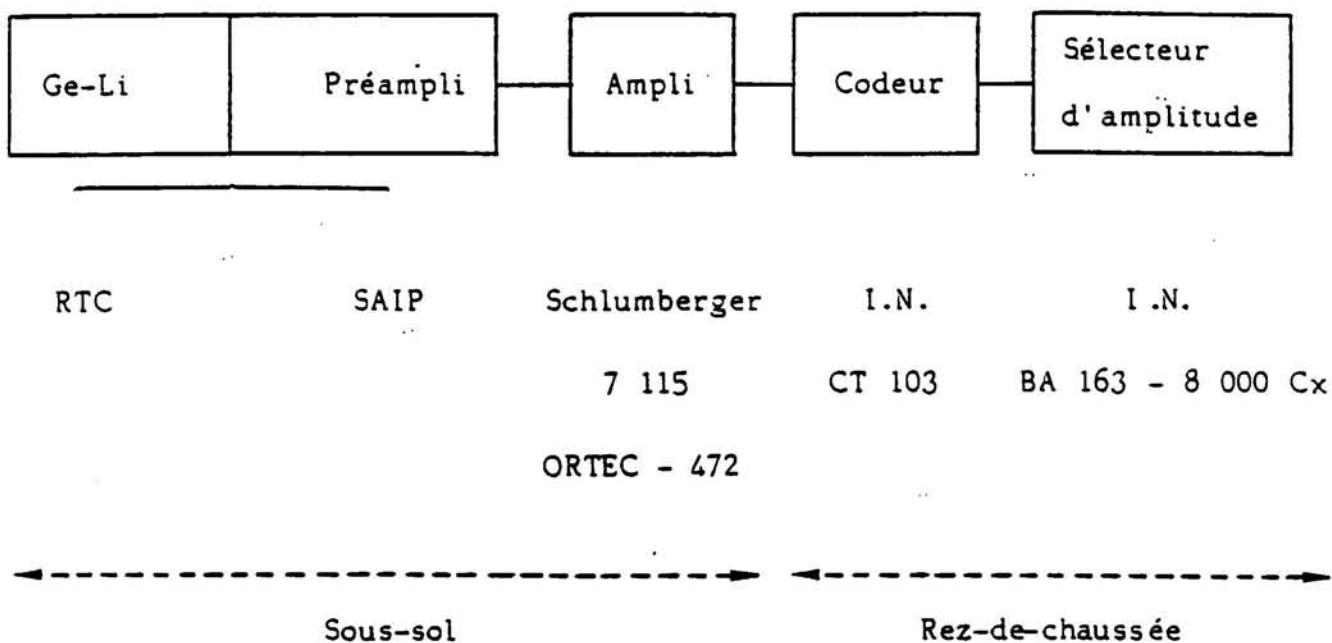
4.1.1.1. Description de l'installation de spectrométrie γ Ge-Li

Six détecteurs jonction d'un volume unitaire de 30 cm^3 et ayant une résolution de 1 à 2 keV sont installés dans une chambre blindée (10 cm Pb de faible activité + 5 mm de cuivre électrolytique).

Cette chambre, située en sous-sol (-7 m), est protégée par une dalle de béton de 2,5 mètres d'épaisseur.

Les 6 détecteurs γ Ge-Li, leurs préamplificateurs et amplificateurs implantés en sous-sol sont raccordés par câbles à l'électronique d'analyse (codeurs - sélecteurs d'amplitude - calculateur - imprimantes perforatrices et console de visualisation situés dans des locaux en rez-de-chaussée).

La chaîne de mesure type peut être décrite par le schéma ci-dessous :



L'ensemble des chaînes de mesure est climatisé à $20 \pm 2^\circ\text{C}$.

Elles sont en outre entièrement automatisées. Durant les mesures (7 spectrographes), les opérations suivantes sont réalisées :

- . contrôle de l'état général du système,
- . contrôle de l'état statique et dynamique de chaque voie,
- . lecture des contenus des canaux,
- . estimation des temps actifs et temps morts et programmation des mesures.

Ces divers contrôles de l'état général du système, ces conditions à observer avant ou pendant la mesure, sont indispensables pour que l'automatisme recherché soit véritablement possible. En effet, les détecteurs jonction, l'électronique qui les accompagne, et les signaux électriques émis sont autant d'entités fragiles atteignant les limites de la technologie correspondante. Par contre, convenablement utilisés et surveillés, ils constituent un outil de mesure inégalable.

Les caractéristiques physiques de chaque voie de mesure sont déterminées à l'issue de chaque mesure et mémorisées sous forme de leurs valeurs moyennes, ce qui nous permet à la fois de déceler toute anomalie éventuelle de fonctionnement et d'utiliser ces valeurs pour procéder à un dépouillement plus précis et plus rapide du spectre en cours d'étude.

4.1.1.2. Méthode de mesure

On procède, chaque fois que cela est possible à une mesure sur une durée de l'ordre de 1 000 minutes (une nuit). L'échantillon est conditionné soit dans une boîte plastique de 350 ml ($\varnothing = 90$ mm - $h = 60$ mm) soit dans une boîte plastique de 160 ml ($\varnothing 90$ mm - $h = 25$ mm). Lorsque la quantité d'échantillon récolté est nettement trop faible (entre 10 et 30 g) on utilise une géométrie plus petite de 20 ml ($\varnothing = 50$ mm - $h = 10$ mm).

Lorsque la quantité d'échantillon est de l'ordre de 1 à 10 g, le produit sec ou incinéré est mélangé à une résine thermopolymérisable ERVAPON, et après homogénéisation, passé dans une presse élaborant l'échantillon par compression à la température ordinaire. La polymérisation a lieu à 50°C.

Les spectrogrammes couvrent une plage d'énergie comprise entre 0,060 et 3 MeV et sont obtenus avec un échantillonnage de 0,5 KeV/canal.

Le dépouillement des spectrogrammes est effectué à l'aide d'un calculateur PHILIPS < PR 8 000 > qui utilise un programme original PHILIP-POT.

Le traitement recouvre l'ensemble des opérations suivantes :

- . identification des pics photo-électriques ; présence et énergies,
- . calcul des intensités des pics,
- . calcul des activités des nucléides présents,
- . évaluation des erreurs sur chaque résultat.

4.1.1.3. Limite de détection

La limite de détection est une grandeur toujours difficile à évaluer avec certitude. Elle est liée en particulier à la fluctuation statistique du fond continu du spectre, donc à l'activité globale de l'échantillon et au temps de mesure.

En outre, le bon isolement de la raie photo-électrique concernée a une influence certaine sur cette limite de détection.

Compte tenu de ces remarques nous avons admis que le pic photo-électrique aura une signification physique lorsque ce dernier "émergera" d'une quantité au moins égale à l'amplitude de la fluctuation du fond environnant.

Il y aura donc autant de limites de détection qu'il y aura de nucléides dosés. Pour simplifier, on donnera, pour un temps de mesure de l'ordre de 1 000 minutes, les exemples suivants en distinguant 2 cas:

1° - Nucléides appartenant au bruit de fond ou à la contamination du détecteur

On admet, dans ce cas, que la limite de détection est égale à la valeur du bruit de fond ou de la contamination.

NUCLEIDES	^{40}K	^{137}Cs	^{60}Co	^{234}Th	^{238}U ↓ ^{234}Pa	^{226}Ra	^{232}Th ↓ ^{228}Ac
Limite de détection en Bq	5,6	0,1	0,3	11	11	3,7	0,4

2° - Nucléides n'appartenant pas au bruit de fond

Pour ces nucléides, la limite de détection est évaluée conformément aux remarques précédentes, étant entendu que ces valeurs ne sont valables qu'au jour de la mesure.

NUCLEIDES	^{51}Cr	^{134}Cs	^{131}I	^{140}La	^{54}Mn	^{124}Sb	^{95}Zr	^{65}Zn
Limite de détection en Bq	1,9	0,2	0,2	0,2	0,4	0,2	0,3	0,4

4.1.1.4. Précision des résultats

La fluctuation statistique qui entache la valeur de l'activité est donnée par $\frac{2\sqrt{N}}{N}$ où N est le nombre de désintégrations recueillies par le détecteur (il définit le pic photo-électrique).

Le rendement du détecteur (1) et les probabilités de désintégration pour chaque nucléide sont connus respectivement à $\pm 3\%$ et $\pm 1\%$.

En définitive, les activités seront données avec une précision égale à $0,04 + \frac{2\sqrt{N}}{2}$.

4.1.2. Radiochimie (Dosage du ^{90}Sr)

Ces dosages sont effectués au Département de Protection dans le Laboratoire de Radiotoxicologie du Centre d'Etudes Nucléaires de FONTENAY AUX ROSES.

On met en solution 20 à 30 g de l'échantillon à analyser. Par addition d'un oxalate on précipite le strontium et le calcium. Si on est en présence de baryum 140 on précipite le baryum sous forme de chromate, sinon on élimine les impuretés radioactives par précipitation d'un hydroxyde d'yttrium.

A ce stade là il est nécessaire de stocker la solution pendant 15 jours. A ce moment là il devient possible de séparer l'yttrium 90 sous forme d'oxalate $[(\text{C}_2\text{O}_4)_3 \text{Y}_2 \cdot 9 \text{H}_2\text{O}]$ dont on mesure l'activité β . Si on exprime l'activité en strontium 90 par rapport au calcium, il est nécessaire de considérer, en plus du calcium contenu dans les sédiments, celui de l'oxalate ajouté pour les besoins du dosage.

On mesure donc l'activité du mélange strontium 90 + yttrium 90 en suivant la décroissance de l'activité de l'yttrium 90.

(1) Le rendement rend compte de la proportion entre les γ émis et les impulsions électriques comptabilisées. Tous les γ émis ne sont pas convertis en scintillations (émises par le cristal) et toutes ces scintillations ne sont pas converties en impulsions électriques.

La précision du dosage est fonction de la quantité d'échantillon utilisé.

Par exemple : pour 10 g la précision est de $0,004 \text{ Bq.g}^{-1}$
pour 20 g la précision est de $0,002 \text{ Bq.g}^{-1}$

4.1.3. Mesures de l'activité tritium

Les échantillons d'eau recueillis en vue de ces analyses ont été confiés au Laboratoire de Radiogéologie et de Mécanique des Roches. Ce laboratoire travaille en liaison avec l'A.I.A.E., à VIENNE, et effectue des mesures de ce type depuis de nombreuses années.

La méthode utilisée est la suivante :

L'eau des échantillons est filtrée et on en prélève 250 ml afin de faire la mesure. On y ajoute 1 ml de solution de NaOH afin de la rendre conductrice et l'échantillon est soumis à l'électrolyse afin de le concentrer.

Les échantillons sont soumis à l'électrolyse par séries de 6. Pour chaque série il est effectué un enrichissement et comptage d'une solution étalon, qui provient du même stock depuis 12 ans et dont on utilise des dilutions appropriées. 16 électrodes étant disponibles on peut enrichir 2 fois 6 échantillons (il faut deux électrodes par échantillon) et 2 étalons. Afin de garantir la reproductibilité des mesures, les mêmes électrodes et les mêmes aciers sont utilisés depuis 15 ans.

De leur volume initial de 250 ml les échantillons sont réduits à un volume de 25 à 26 ml. L'électrolyse dure de 45 à 46 heures.

Ensuite les échantillons réduits enrichis de bioxyde de sodium sont distillés dans une atmosphère saturée de l'échantillon afin d'éviter les pertes en cours de distillation.

Le mélange scintillant est réalisé par adjonction de PPO et PPOP.

Le comptage s'effectue pendant 1 000 mn sur appareil PACKARD et les résultats sont traités par un programme sur calculateur OLIVETTI et donnés avec une précision de deux écarts types (2σ).

4.2. METHODES D'ANALYSES MINERALOGIQUES ET CHIMIQUES

4.2.1. Analyses minéralogiques

C'est l'Institut de Géologie du Bassin d'Aquitaine de BORDEAUX (*) qui effectue ces analyses.

Elles sont effectuées par diffractométrie X sur un appareil CGR, type théta 60 (rayonnement Cu K sélectionné par monochromateur de GUI- NIER ; régime 40 kV 20 mA).

L'analyse de la fraction $< 2 \mu\text{m}$ est effectuée après séparation par attaque à l'HCl N/10 et sédimentation. La méthode utilisée est celle des pâtes orientées et des trois diagrammes (normal, glycol, chaleur).

4.2.2. Analyses chimiques

Elles sont effectuées par la Compagnie Nationale d'Aménagement de la Région du Bas-RHONE et du LANGUEDOC (*).

4.2.2.1. Analyse des sédiments

Granulométrie avec calcaire

Pour la détermination des fractions argileuses et limoneuses, on utilise la méthode de la pipette de ROBINSON. Elle est basée sur l'application de la loi de sédimentation des particules dans un liquide (loi de STOCKES).

La détermination des fractions sableuses se fait par tamisage.

Dosage du calcaire total

L'échantillon subit une attaque par HCl qui détruit les carbonates et provoque un dégagement de CO_2 : $\text{Ca CO}_3 + 2 \text{HCl} - \text{CaCl}_2 + \text{H}_2\text{O} + \text{CO}_2$. On mesure le volume de CO_2 dégagé à l'aide du calcimètre de BERNARD et on en déduit le % de calcaire total.

$$\text{Ca CO}_3\% = \frac{0,25 \times V \times 100}{v \times P}$$

P : poids de l'échantillon

V : volume de CO₂ dégagé par l'échantillon

0,25 : 0,25 g de CaCO₃ pur

v : volume de CO₂ dégagé par les 0,250 g de CaCO₃ pur..

Dosage du calcaire actif

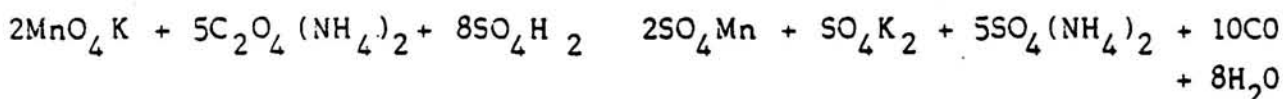
Ce dosage s'effectue par la méthode de DROUINEAU - GALET.

Principe :

Ce dosage repose sur un titrage par oxydo-réduction qui utilise le permanganate de potassium et l'oxalate d'ammonium.

On met en contact le sédiment (1 g) avec un excès (100 ml) d'une solution d'oxalate en donnant un précipité d'oxalate de calcium (CaC₂O₄).

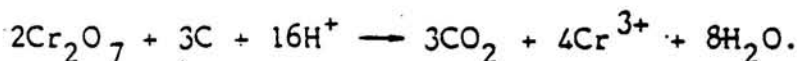
On dose ensuite par retour l'oxalate en excès avec une solution de permanganate N/5 en milieu acide sulfurique.



Dosage de la matière organique

La méthode utilisée est la méthode ANNE.

La matière organique contenue dans l'échantillon est oxydée en milieu sulfurique par le bichromate de potassium.



L'excès de bichromate est ensuite dosé par une solution de sel de Mohr 0,2 N (sulfate de fer et d'ammonium) en présence d'un indicateur (diphenylamine sulfonate de baryum en solution sulfurique).

Dosage des éléments échangeables

On provoque le déplacement des ions fixés sur le complexe absorbant par l'acétate d'ammonium.

Pour déterminer les éléments échangeables on met 10 grammes de sédiments dans 100 ml d'acétate d'ammonium normal puis on agite. Ensuite on dose les ions relâchés par le complexe absorbant.

Capacité d'échange

Elle correspond à la quantité maximale d'ions qu'un sédiment peut retenir. Ces derniers ayant été extraits et mis en solution lors du dosage des éléments échangeables.

La capacité d'échange se définit comme la quantité d'ammonium qui se sera fixée sur le complexe absorbant. Pour la déterminer on opère un déplacement de cet ammonium à l'aide d'une solution normale de KCl sur la prise d'échantillon après dosage des éléments échangeables et rinçage successifs à l'alcool.

Analyse totale

0,500 g à 1 g de sédiment est attaqué en milieu sulfurique et chlorhydrique à chaud. Le résidu solide ne comporte alors pratiquement plus que de la silice. Il est repris à l'acide fluorhydrique à chaud.

Lorsque tout l'échantillon est dissous on laisse sécher afin d'éliminer l'acide fluorhydrique en excès. Ensuite on solubilise à nouveau le résidu en milieu acide (acide chlorhydrique) additionné d'acide borique.

4.2.2.2. Analyses des végétaux et des poissons

Elles se résument à la détermination des teneurs en potassium et calcium. Ces valeurs sont indispensables pour le calcul des activités spécifiques (Bq de Sr-90/g de calcium, Bq de Cs-137/g de potassium).

On met les cendres en solution par attaque à chaud avec un mélange de $\frac{1}{3}$ d'acide nitrique et de $\frac{2}{3}$ d'acide chlorhydrique. Cette attaque est achevée à l'aide d'eau oxygénée à 130 volumes. La solution d'attaque est volumée de 250 ml avec de l'eau distillée puis diluée 10 fois car elle est trop concentrée et trop acide. Les mesures sont effectuées sur un appareil EPPENDORF.