

Zeitschrift: Plan : Zeitschrift für Planen, Energie, Kommunalwesen und Umwelttechnik = revue suisse d'urbanisme
Herausgeber: Schweizerische Vereinigung für Landesplanung
Band: 21 (1964)
Heft: 4

Artikel: Méthodes spéciales pour la mesure de la radio-activité des eaux usées
Autor: Malvicini, A.
DOI: <https://doi.org/10.5169/seals-783792>

Nutzungsbedingungen

Die ETH-Bibliothek ist die Anbieterin der digitalisierten Zeitschriften. Sie besitzt keine Urheberrechte an den Zeitschriften und ist nicht verantwortlich für deren Inhalte. Die Rechte liegen in der Regel bei den Herausgebern beziehungsweise den externen Rechteinhabern. [Siehe Rechtliche Hinweise.](#)

Conditions d'utilisation

L'ETH Library est le fournisseur des revues numérisées. Elle ne détient aucun droit d'auteur sur les revues et n'est pas responsable de leur contenu. En règle générale, les droits sont détenus par les éditeurs ou les détenteurs de droits externes. [Voir Informations légales.](#)

Terms of use

The ETH Library is the provider of the digitised journals. It does not own any copyrights to the journals and is not responsible for their content. The rights usually lie with the publishers or the external rights holders. [See Legal notice.](#)

Download PDF: 16.03.2025

ETH-Bibliothek Zürich, E-Periodica, <https://www.e-periodica.ch>

Méthodes spéciales pour la mesure de la radio-activité des eaux usées

Dr A. Malvicini, Service de protection, C. C. R., Euratom, Ispra

I. — Introduction

Avec l'avènement de l'énergie nucléaire et le développement rapide de multiples applications tant pacifiques que militaires, la radio-activité est venue s'ajouter aux innombrables substances du type conventionnel susceptibles de contaminer les eaux.

Des eaux, la radio-activité peut atteindre l'organisme humain directement au moyen de la consommation de l'eau potable et par l'utilisation industrielle de l'eau lors de la confection des aliments; elle peut aussi l'atteindre indirectement par la consommation d'organismes aquatiques, poissons en particulier, et par la consommation d'aliments dérivés de cultures utilisant, pour l'irrigation, des eaux contaminées par des substances radio-actives.

Pour se faire une idée de l'importance du problème des eaux contaminées, il suffit de penser à l'utilisation agricole intense des eaux de surface dans la région lombarde où le terrain est cultivé surtout en risières et « marcite » dans lesquelles les plantes croissent pratiquement immergées en permanence dans l'eau.

Ces cultures sont plus susceptibles d'être contaminées étant donné que les plantes absorbent facilement la radio-activité de l'eau.

D'autre part les établissements industriels et les institutions scientifiques et sanitaires susceptibles de contaminer l'eau avec des produits radio-actifs, et que nous pourrions qualifier de « source de contamination radio-active », sont actuellement déjà très nombreuses, comme on le verra au paragraphe suivant. De plus, il est bon de se rappeler que le danger potentiel de ces sources de contamination est destiné à croître avec le temps.

Remarquons aussi que la radio-activité ne se détruit qu'avec le temps, c'est-à-dire par décroissance radio-active, il s'en suit que la radio-activité, dispersée dans le sol par les eaux contaminées, s'accumule à la longue, atteignant des niveaux dépendant de la quantité totale de radio-activité rejetée. En d'autre terme la radio-activité confiée aux eaux se retrouve dans le sol d'où elle envahit la chaîne alimentaire parcourant plusieurs fois le cycle complet.

De ces quelques considérations, même très sommaires, il apparaît que la surveillance de la contamination radio-active des eaux en général et des eaux usées en particulier, est extrêmement importante, et constitue un des facteurs qui conditionnent le développement des applications pacifiques de l'énergie nucléaire. Finalement, il ne faut pas perdre de vue certains aspects du problème, d'ordre juridique et économique qui, déjà dans l'état actuel de développement de l'énergie nucléaire, mettent en évidence la nécessité de contrôles adéquats de la radio-activité des eaux usées.

II. — Installations et institutions susceptibles de rejeter des produits radio-actifs

Dans ce paragraphe nous donnons une liste des installations industrielles et des institutions scientifiques et sanitaires en mesure de décharger des eaux contaminées radio-actives:

- a) Centre nucléaire avec réacteurs de recherche et laboratoires pour la manutention de radio-éléments,
- b) réacteurs de puissance pour la production d'énergie électrique,
- c) laboratoire de traitement de combustibles nucléaires irradiés,
- d) réacteurs nucléaires de recherche et d'enseignement non situés dans les centres nucléaires,
- e) laboratoires de radio-isotopes pour applications industrielles,
- f) laboratoires pour le traitement des minerais radio-actifs contenant de l'uranium et du thorium,
- g) usines pour la métallurgie de l'uranium et du thorium,
- h) installations de production d'éléments de combustible,
- i) installations pour le traitement des résidus radio-actifs,
- l) laboratoires de radio-isotopes des hôpitaux, des universités et d'autres institutions scientifiques.

Cette liste, d'ailleurs loin d'être complète, démontre à suffisance comme la gamme de contaminants possibles des eaux est vaste.

III. — La mesure de la radio-activité

La mesure de la radio-activité des eaux peut se faire en continu par voie directe au moment de la décharge, ou par mesure d'échantillons prélevés dans les bassins ou citernes, dans lesquelles on laisse s'accumuler l'eau avant décharge.

Même si les mesures indirectes sur des aliquotes sont à préférer pour leur sensibilité et leur précision et parce qu'elles permettent de déterminer certains radionuclides particuliers, il n'en demeure néanmoins vrai, que la mesure directe offre, quelques fois, maints avantages. Nous examinerons donc brièvement ces deux types de mesures.

La première exigence à laquelle devrait satisfaire toute mesure est une sensibilité adéquate qui devrait être telle à permettre une mesure précise à des niveaux inférieurs aux concentrations maximum admises dans les eaux chargées.

Malheureusement, dans l'état actuel, il ne nous apparaît pas qu'on ait fixé sous forme de normes internationales, des niveaux maximum admissibles de radio-activité des eaux usées, alors que, sur le plan national, certaines décisions ont été prises à ce sujet. D'un autre côté le problème est extrêmement complexe puisque ces concentrations limites ainsi que les quantités maximum qui peuvent être déchargées dans un laps de temps donné avec une marge de sécurité suffisante dépendent de beaucoup de facteurs assez variables selon le cas.

Par exemple, elle dépendent des possibilités de dilution du milieu qui reçoit les décharges, des caractéristiques physico-chimiques des eaux de dilution, de l'utilisation des eaux en aval du point de décharge, de l'existence ou non d'autres points de rejet dans le même cours d'eau.

Pour cette raison il est évident que les modalités du rejet et la détermination de la quantité de radio-activité rejetée d'une part ainsi que la concentration des substances radio-actives d'autre part, exigent une étude appropriée à chaque installation. Dans tous les cas ces modalités doivent être établis en accord avec les autorités sanitaires compétentes.

En attendant que soient établies des normes précises en la matière, on se tient en général aux « Directives et recommandations de la Communauté européenne de l'énergie atomique en matière de protection contre les radiations ionisantes » qui fixent les valeurs des concentrations maximum admises dans l'eau potable pour les personnes professionnellement exposées. A ces valeurs on applique un facteur de sécurité de 10 pour la zone surveillée dans laquelle la dose maximum admise a été fixée à 0,5 rem par an, c'est-à-dire à un dixième de la dose maximum admise par an pour les personnes professionnellement exposées.

3.1. Mesure directe du liquide rejeté

La mesure directe de la radio-activité des eaux déchargées peut être utilisée avantageusement dans quelques cas particuliers, surtout si on connaît l'identité des radionuclides présents dans le liquide et leurs proportions. Cette mesure se fait généralement en continu avec enregistrement du résultat et du débit de l'eau; elle présente l'avantage de révéler des augmentations accidentelles de radio-activité et de pouvoir donner l'alarme. En d'autres termes ce dispositif fait office de « moniteur » de la radio-activité plus que de « mesureur » au sens propre du mot.

La sensibilité de cette méthode de mesure est relativement faible et en limite les prestations pour les mesures de la radio-activité dans la zone surveillée.

Nous examinerons séparément la mesure de la radio-activité alpha et bêta totale et la mesure de la radio-activité gamma.

3.1.1. Radio-activité alpha et bêta totale

Le détecteur qui, par ses caractéristiques de construction et de fonctionnement, se prête le mieux à la mesure directe du liquide est le compteur à passage

de gaz de grande surface. La fenêtre du compteur qui représente la surface sensible de celui-ci est placée à quelques millimètres de la surface libre du liquide. L'épaisseur de la fenêtre peut être extrêmement faible, moins d'un milligramme par centimètre carré, de sorte que les particules alpha et les particules bêta de faible énergie réussissent à pénétrer dans le volume sensible du compteur.

Le gaz de comptage que l'on fait passer continuellement dans le compteur est habituellement un mélange d'argon et méthane (10 %), d'argon et butane (2 %) ou d'argon et propane (1 %).

Le liquide à analyser passe dans un récipient spécialement conçu et placé très près de la fenêtre du compteur. Cette disposition permet d'éviter la contamination du compteur.

Faisant fonctionner le compteur en zone proportionnelle, il est possible de discriminer les impulsions dues aux particules alpha de celles, beaucoup plus petites, dues aux particules bêta et d'obtenir ainsi le taux de comptage des deux types de radiations.

La sensibilité de la mesure dépend de la surface de la fenêtre qui peut être de quelques centaines de centimètres carrés, de l'amplitude du mouvement propre du compteur, de l'épaisseur de la fenêtre et du temps d'intégration de l'instrument de comptage (débitmètre).

La fréquence des impulsions dues au mouvement propre, de par elle-même très basse pour les particules alpha, peut être ramenée à des valeurs très faibles également pour les particules bêta en protégeant le compteur des radiations gamma, de l'ambiance et en introduisant un système approprié à anticoincidence pour éliminer les impulsions dues aux radiations cosmiques.

Observons que ce type de compteur se prête très bien à ces deux opérations; des fréquences de quelques impulsions par minute par décimètre carré de surface sensible peuvent être facilement obtenues même pour la détection des radiations bêta.

La constante d'intégration du débitmètre d'impulsions peut être choisie opportunément, de quelques minutes pour des activités spécifiques basses (10^{-6} $\mu\text{C}/\text{ml}$), plus courtes pour des activités plus élevées. En pratique une constante de temps court est souhaitable puisqu'elle permet une intervention prompte sur le système de décharge dans le cas d'une augmentation brusque de la radio-activité.

La sensibilité d'un compteur de ce type, ayant une surface sensible de quelques décimètres carrés est de l'ordre de 10^{-6} $\mu\text{C}/\text{ml}$ pour le strontium 90 + yttrium 90 à l'équilibre; elle diminue d'un ou deux ordres de grandeur pour les émetteurs bêta de faible énergie et pour les émetteurs de particules alpha.

Le seul désavantage, peu important, des compteurs à passage de gaz réside dans le système d'approvisionnement en continu du gaz d'ailleurs relativement simple pour les installations fixes.

Les compteurs à scintillation, qui ne présentent pas cet inconvénient, peuvent être utilisés avantageusement

pour la mesure continue de la radio-activité alpha et bêta totale des eaux usées. Pour la détection du rayonnement alpha le scintillateur est du sulfure de zinc activé à l'argent, tandis que pour les rayons bêta on utilise les plastifluors minces.

Cependant, si le compteur à sulfure de zinc peut substituer sans tous les rapports, le compteur proportionnel à passage de gaz, par rapport à celui-ci, le compteur avec révélateur plastique pour la détection des radiations bêta présente, lui, quelques désavantages surtout en ce qui concerne la dimension de la surface sensible, bien inférieure à celle des compteurs à passage de gaz et de l'encombrement majeur du compteur et de sa protection.

3.1.2. Radio-activité gamma totale

La mesure continue de la radio-activité gamma totale des eaux est plus aisée par suite du pouvoir de pénétration élevé du rayonnement gamma dans la matière. L'autoabsorption dans l'échantillon est beaucoup moins critique que dans le cas des radiations alpha et bêta.

Le compteur, le plus adéquat pour la mesure directe du rayonnement gamma des liquides est le compteur à scintillation à détecteur à cristal d'iode de sodium activé au thallium NaI (Tl).

Le compteur peut être placé à la surface libre du liquide ou être immergé dans celui-ci. Dans ce dernier cas la sensibilité du compteur est plus grande, mais il présente l'inconvénient de la contamination possible des parois au contact du liquide.

Etant donné l'efficacité élevée de révélation pour le rayonnement gamma, le compteur doit être opportunément blindé contre les radiations gamma du milieu ambiant dans le but d'en augmenter la sensibilité; lorsque le compteur est immergé dans le liquide, celui-ci fait également office de protection contre les radiations gamma de l'ambiance.

La sensibilité dépend des dimensions du révélateur dans le cas également de la révélation du rayonnement gamma des eaux; une sensibilité de 16^{-6} $\mu\text{C/ml}$ peut être facilement obtenue sans avoir recours aux cristaux de grandes dimensions.

La constante d'intégration du débitmètre est habituellement courte puisque la fréquence des impulsions est élevée.

Le niveau de la radio-activité est enregistré en continu en même temps que le volume d'eau rejetée permettant ainsi de faire un bilan de la radio-activité rejetée pendant une période de temps déterminée.

3.2. Mesure sur des échantillons d'eau

On effectue généralement la mesure de la radio-activité sur des échantillons d'eau lorsque la sensibilité de la mesure directe sur le liquide n'est pas suffisante, ou lorsque, pour des raisons de sécurité, les eaux usées sont dirigées vers des bassins ou réservoirs afin de permettre une analyse plus rigoureuse avant la décharge. Ces échantillons peuvent être soumis à des

opérations simples de concentration de la radio-activité permettant ainsi d'arriver à des niveaux de sensibilité beaucoup plus élevés que par la mesure directe.

Un autre avantage de ces mesures regarde l'instrumentation de révélation, qui est, en général, relativement plus simple que celle utilisée pour les mesures en continu. Enfin, on peut soumettre l'échantillon à une analyse plus complète qui comprend la mesure de la radio-activité totale, la spectrométrie gamma et les séparations chimiques de radio-éléments pour effectuer la détermination de la concentration de radionuclides importants du point de vue biologiques.

Ces mesures s'effectuent surtout sur des échantillons prélevés dans le cadre des mesures de contrôle prises pour s'assurer que les conditions de sécurité des populations au voisinage des installations soient respectées.

Signalons également que l'on donne parfois la préférence à un système de prélèvement continu d'échantillons pour les soumettre à l'analyse plutôt qu'à la mesure directe du liquide in situ. Il est clair que dans ce cas on peut effectuer un contrôle plus précis de la quantité de radio-activité rejetée.

Le prélèvement des échantillons doit se faire selon des critères strictement établis afin de le rendre représentatif du volume de liquide dont on l'a pris. Certains dispositifs ont été mis au point répondant à ces critères et prélevant les échantillons d'un volume donné avec une fréquence prédéterminée (1).

Après le prélèvement, l'échantillon est traité pour effectuer une concentration de la radio-activité. Citons parmi les procédés les plus communs: l'évaporation, les résines échangeuses d'ions, la filtration sur des couches des substances ayant une capacité sélective de rétention pour certains éléments. L'évaporation de petits volumes (100 à 1000) est le procédé de concentration le plus diffusé pour la mesure de la radio-activité totale.

3.2.1. Mesure de la radio-activité alpha et bêta totale du résidu d'évaporation

Pour augmenter la sensibilité il convient de distribuer le résidu sec sur des coupelles de grande surface (au moins 100 cm^2) en ayant soin d'assurer une distribution uniforme de celui-ci. L'évaporation peut être effectuée directement sur la coupelle par épiradiateurs aux infrarouges. Le rendement de détection dépend de l'épaisseur et on le détermine par comparaison avec des échantillons d'activité connue disposés dans les mêmes conditions d'épaisseur de couche.

Les compteurs les plus indiqués pour la mesure alpha totale sont les compteurs à sulfure de zinc et les compteurs proportionnels à fenêtre et flux de gaz.

Les compteurs les plus indiqués pour la mesure de la radio-activité bêta totale sont les compteurs à scintillateur de plastique et les compteurs à passage de gaz, tous deux à bas bruit de fond.

On obtient facilement des sensibilités de 10^{-8} et 10^{-9} $\mu\text{C/ml}$ dans les deux cas, même avec des volumes d'eaux de 1000 ml.

3.2.2. Spectrométrie gamma du résidu sec d'évaporation

La spectrométrie gamma du résidu d'évaporation s'effectue avec un compteur à scintillation NaI (TI) relié à un analyseur d'impulsions multicanaux. Cette méthode permet d'identifier dans de nombreux cas les émetteurs gamma et d'en déterminer la concentration après avoir établi l'efficacité de révélation. Citons comme exemple le césium 137, le zirconium 95, le niobium 95, le ruthénium 103, le cérium 141 et 144, le manganèse 54, le cobalt 60, l'iode 131, le zinc 65, etc.

La sensibilité de la mesure est d'autant plus grande que le volume d'eau évaporé est grand. Travaillant sur le résidu d'évaporation de 100 ml d'eau et effectuant des mesures assez longues on peut atteindre avec un bon spectromètre une sensibilité de 10^{-10} $\mu\text{C}/\text{ml}$. Dans la plupart des cas une sensibilité de 10^{-7} à 10^{-8} $\mu\text{C}/\text{ml}$ suffit et il est alors possible de mesurer directement l'échantillon prélevé sans traitement préliminaire.

3.2.3. Détermination de la concentration de radionuclides importants par séparation chimique

Les méthodes décrites plus loin se limitent aux deux radionuclides à longue demi-vie les plus importants du point de vue biologique, c'est-à-dire au strontium 90 et au césium 137. Elles sont le résultat de l'expérience acquise dans le domaine par la section contrôle du site du Service de protection du C. C. R. Euratom, Ispra, où elles sont actuellement appliquées de routine.

Ce paragraphe comprend la description de la préparation de l'échantillon, la détermination des deux nuclides cités et les techniques de comptage.

3.2.3.1. Préparation de l'échantillon

- 1° Evaporer un échantillon d'eau de 5 l, par fractions successives, dans une capsule de porcelaine de 1000 ml sous une lampe infrarouge ou sur bain de sable.
- 2° Incinérer le résidu au four à moufle à 400 ° C pendant au moins 3 heures.
- 3° Laisser refroidir¹ et reprendre le résidu avec 100 ml de HNO₃ chaud environ 5 N².
- 4° Laisser déposer le résidu insoluble et décanter le liquide autant que possible.
- 5° Evaporer le liquide resté dans la capsule et transférer le résidu sec dans un creuset de nickel ou de fer. Ajouter environ 5 fois le poids de Na₂O₂ et faire la fusion au four à moufle à 480 ° C.
- 6° Laisser refroidir. Reprendre prudemment avec la solution acide du point 4 et ajouter si nécessaire de l'acide nitrique concentré jusqu'à obtenir une solution limpide.

¹ Si l'attaque acide s'est montré précédemment peu efficace on passe directement à la fusion.

² Si la mise en solution est complète continuer avec le point 7.

- 7° Ajouter 2 ml de solution d'entraîneur de strontium (voir plus loin sous réactifs particuliers).
- 8° Porter le pH de la solution à 4 au pH-mètre et sous agitation par adjonction de NaOH 3 N.
- 9° Filtrer le précipité constitué surtout de Fe(OH)₃ et/ou de FePO₄. Redissoudre avec quelques gouttes de HNO₃ 5 N et refaire la précipitation.
- 10° Filtrer et réunir le filtrats des points 9 et 10; jeter le résidu³.
- 11° Ajuster le pH à 1 au pH-mètre avec HNO₃ et diluer à 500 ml.
- 8* Porter le pH à 11 avec NaOH 6 N. Ajouter 10 ml de Na₂CO₃ N. Chauffer et filtrer.
- 9* Dissoudre le précipité des carbonates et hydroxydes avec un minimum de HCl concentré.
- 10* Ajouter HCl 36 % jusqu'à doubler le volume de solution et transvaser en ampoule à décanter.
- 11* Extraire deux fois avec un volume égal à la moitié du volume de la solution du point 10* de méthyle-isobutyle cétone (hexone). Ecarter les phases organiques contenant le fer.
- 12* Faire bouillir la phase aqueuse pour éloigner le restant de solvant et ajouter prudemment le filtrat du point 8*.
- 13* Ajuster le pH à 1 au pH-mètre avec NaOH 6 N. Diluer à 500 ml.

3.2.3.2. Détermination du césium 137

La détermination du césium s'effectue par passage de la solution à pH 1 (point 11* ou 13*) sur une couche mince de phosphomolybdate d'ammonium (AMP) préparée sur un papier filtre, qui est comptée directement.

3.2.3.3. Préparation de la couche d'AMP

Cette opération requiert un certain soin puisque une couche imparfaite conduit à des rendements inférieurs à 100 %. On décrit ici la méthode qui a donné les résultats les plus satisfaisants. On utilisera un büchner démontable muni d'un papier filtre serré *Schleicher* et *Schüll* (bande bleue) posé sur un disque mince d'éponge synthétique.

On pèse une quantité d'AMP telle à savoir 20 à 30 mg/cm² de précipité. (Nous avons utilisé 400 et 60 mg d'AMP pour des diamètres de 40 et 18 mm respectivement.) On suspend l'AMP dans l'acide nitrique 0,01 N. On verse la suspension dans le büchner. On filtre lentement sous vide et sans laisser aller à sec on ajoute, à la pisette de l'acide nitrique 0,01 N jusqu'à avoir une colonne de solution d'environ 10 cm de hauteur, parfaitement limpide, au-dessus de la couche d'AMP. On trempe avec précaution un tampon de papier absorbant (type kleenex) pour éloigner l'AMP resté en surface. On fait passer ensuite la solution à analyser en ayant soin de ne pas déranger la couche d'AMP. Ceci est surtout important lorsqu'on effectue plus tard une mesure bêta.

³ Dans le cas où la quantité de fer dépasse 50 mg modifier la procédure à partir du point 7 comme suit:

3. 2. 3. 4. Comptage

On peut effectuer les comptages sur les disques d'AMP à l'aide d'un cristal NaI (Tl) relié à un sélecteur multicanaux.

Dans ce cas il n'est pas nécessaire de tenir compte de l'activité due aux isotopes naturels radio-actifs du potassium et du rubidium qui sont, eux aussi, retenus dans la couche d'AMP. Mais comme beaucoup de laboratoires ne disposent pas d'installation de comptage gamma et que le comptage bêta offre plus de possibilités pour la mesure de très faibles activités, il convient de considérer ici la question de la mesure bêta des échantillons de AMP, d'autant plus, que la mesure bêta peut se faire dans de bonnes conditions grâce au fait que le césium est retenu à la surface du précipité de AMP du moins lorsqu'on travaille en absence d'entraîneur.

Lorsqu'il s'agit de mesurer quelques pc de césium 137, on ne peut tolérer la présence de plus de 0,1 mg de potassium et plus de 0,05 mg de rubidium dans l'échantillon.

On peut éliminer la contamination due au potassium et au rubidium naturels en faisant passer 100 ml de nitrate d'ammonium N à pH 1 sur la couche de 400 mg d'AMP en büchner de 40 mm de diamètre. Dans ces conditions une petite fraction (environ 15 %) du césium est également éluée et il faudra la déterminer expérimentalement.

3. 2. 3. 5. Calcul de l'activité

a) Mesure gamma

- Calculer le nombre d'impulsion par minute sous le pic photo-électrique: A
 - Soustraire le mouvement propre: B
- l'activité en picocurie par litre est donnée par la relation suivante:

$$= \frac{(A - B) \times 100}{R \times 2,22 \times n}$$

ou R est le rendement en pour-cent de l'appareil de mesure, déterminé avec une source standard placée dans les mêmes conditions de géométrie,

n est le nombre de litres de l'échantillon d'eau.

b) Mesure bêta

On utilisera la même relation où A représente cette fois le nombre d'impulsions par minute. On aura soin de bien sécher la couche d'AMP sous infrarouge. Pour les détails opératoires voir plus loin.

3. 2. 3. 6. Détermination du strontium 90

On effectue la détermination du strontium sur la solution passée sur AMP.

3. 2. 3. 6. 1. Réactifs particuliers

- 1° Yttrium: solution à 80 mg/ml (note 1).
- 2° Strontium: solution à 45 mg/ml. Dissoudre 10,750 g de $\text{Sr}(\text{NO}_3)_2$ anhydre dans 100 ml d'eau distillée.

- 3° Barium: solution à 20 mg/ml. Dissoudre 19,060 g de $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$ anhydre dans 100 ml d'eau distillée.

3. 2. 3. 6. 2. Méthode de séparation

- 1° Porter la solution à sec dans un bécher de 600 ml en terminant l'opération sur bain de sable.
- 2° Ajouter 72 ml d'eau distillée et puis lentement et en agitant à l'aide d'un agitateur magnétique 142 ml de HNO_3 100 % (note 2). Continuer à agiter pendant une demi-heure et puis laisser décanter le précipité.
- 3° Filtrer sous vide sur verre fritté G 4 ou sur filtre en fibre de verre. Eloigner autant que possible l'acide aussi bien du bécher que du filtre. Jeter le filtrat.
- 4° Dissoudre le précipité avec 36 ml de H_2O et recueillir la solution dans le bécher dans lequel on a effectué la précipitation des nitrates.
- 5° Ajouter 71 ml de HNO_3 100 % en observant les recommandations du point 2.
- 6° Continuer comme sous 3 et 4, mais en prenant 20 ml d'eau distillée pour dissoudre les nitrates (note 3).
- 7° Ajouter 1 ml de la solution d'yttrium. Chauffer à 90 ° C environ et ajouter NH_4OH concentré jusqu'au virage de la phénolphthaleïne; ajouter trois gouttes de NH_4OH en excès.
- 8° Filtrer le précipité, le redissoudre avec HCl dilué et répéter la précipitation de l'yttrium comme décrit sous 7.
- 9° Réunir les filtrats des points 7 et 8.
- 10° Ajouter 1 ml de la solution de baryum, puis 2 ml d'acétate de sodium 6 M et de l'acide acétique 6 M pour ajouter le pH à 5,5 (en général 1 ml). Utiliser si possible le pH-mètre.
- 11° Chauffer à environ 90 ° C et ajouter 1 ml de Na_2CrO_4 0,3 M.
- 12° Laisser refroidir et filtrer. Jeter le précipité.
- 13° Porter le filtrat à pH 2 avec HCl concentré. Ajouter 1,5 ml de solution d'yttrium. Transvaser dans une bouteille de polyéthylène de 50 ml et stocker 15 jours.

¹ Elimination des contaminants pouvant être présents dans les sels d'yttrium. — Dissoudre 16,85 g de $\text{YCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ dans 60 ml d'eau distillée. Transférer dans une ampoule à décanter de 500 ml, ajouter 60 ml de NH_4NO_3 saturé et 120 ml de tributylphosphate (T. B. P.). Agiter pendant 5 minutes, laisser se séparer les deux phases et recueillir la phase la plus dense dans une autre ampoule de 500 ml. Répéter l'extraction avec 80 ml de T. B. P. Réunir les deux phases organiques (fraction moins dense). — Ramener l'yttrium dans la phase aqueuse par agitation en deux fois avec 100 ml et 70 ml d'eau. Réunir les phases aqueuses et agiter avec 25 ml de tétrachlorure de carbone pour éloigner le T. B. P. restant.

² Les volumes d'eau et d'acide ont été calculés pour obtenir de l'acide nitrique 75 % en poids en faisant usage des tableaux des poids spécifiques des solutions aqueuses d'acide nitrique publiés dans le « Handbook of Chemistry and Physics » et en tenant compte de ce qui suit. — Lorsqu'on dilue l'acide nitrique 100 % il y a une contraction de volume variable avec la dilution et pouvant atteindre un maximum de 8 % pour de l'acide nitrique 55. Il faut donc, soit mesurer la densité de l'acide obtenu par dilution de l'acide à 100 %, soit calculer les quantités respectives d'acide et d'eau en utilisant les tableaux donnant les grammes de HNO_3 par litre et en compensant par une ajoutée supplémentaire d'eau la contraction de volume.

³ A partir de ce point il est avantageux d'effectuer toutes les opérations en tubes de centrifugeuse de 50 ml.

- 14° Reprendre la solution du point 13, porter à 90 ° C environ, précipiter comme sous 7, mais après adjonction préalable de six gouttes de H₂O₂ 30 %. Chauffer pour éliminer l'excès d'eau oxygénée. Laisser refroidir et filtrer.
- 15° Dissoudre le précipité avec HCl et répéter le point 14. Noter l'heure et la date.
- 16° Filtrer et réunir les deux filtrats.
- 17° Dissoudre le précipité de Y(OH)₃ avec HCl 1/9. Ajuster le pH à 4, chauffer et ajouter 10 ml d'oxalate d'ammonium (solution saturée).
- 18° Filtrer l'oxalate sur un disque de papier. Sécher sous infrarouge, poser le papier sur une plaquette d'acier. Couvrir avec une feuille de mylar et compter. Noter l'heure.
- 19° A la solution du point 16 on ajoute 5 ml d'une solution saturée de Na₂CO₃ après l'avoir portée à 90 ° C. Laisser digérer à chaud (note 4).
- 20° Laisser refroidir et filtrer sur disque de papier et préparer l'échantillon (note 5) pour le comptage comme décrit sous 18. Noter l'heure du comptage.

3. 2. 3. 6. 3. Calcul de l'activité

a) A partir du précipité d'oxalate d'yttrium

L'activité en picocurie par litre est donnée par

$$\frac{A_0 \times 100}{R \times 2,22 \times n \times F}$$

ou

A₀ est le nombre d'impulsions nettes extrapolé au moment de la séparation de l'yttrium du strontium. On peut l'obtenir graphiquement par

⁴ La présence de grandes quantités d'ions ammonium peut empêcher la précipitation du carbonate de strontium. Dans ce cas vérifier le pH qui doit être 10,5. S'il est plus bas ajuster avec NaOH 6 M et faire bouillir.

⁵ La détermination du rendement chimique peut se faire soit par spectrométrie gamma du strontium 85 ajouté comme traceur, soit par détermination du strontium entraîneur par spectrophotométrie de flamme après dissolution du précipité de carbonate. Dans ce cas la teneur en strontium stable de l'échantillon doit être connue.

extrapolation de la droite de décroissance radioactive obtenue en portant les impulsions par minute nettes en fonction du temps sur papier semilog.

R est le rendement en pour-cent du compteur pour l'yttrium 90.

n est le nombre de litres de l'échantillon.

F est la fraction de l'équilibre radio-actif atteint au moment de la séparation strontium 90 — yttrium 90.

b) A partir du précipité de carbonate de strontium

Dans ce cas il faut tenir compte de la croissance de l'yttrium 90 depuis le moment de la séparation et de la présence éventuelle de strontium 89.

IV. — Bibliographies

1. Introduction

A. Pfau: General consideration of the measurement and control of radioactivity in Water. *Atompraxis* 3, 384—398, October 1957;

A. Grauby et R. Raimbault: La surveillance de la radio-activité des eaux. *L'eau*, 50^e année, n° 5, p. 307;

H. Kiefer und R. Maushart: Der heutige Stand der Radioaktivitätsüberwachung im Wasser, «*Neue Technik*» Nr. 3 (1960), p. 42;

Bulletin Benelux, 1961-4;

Journal Officiel des Communautés Européennes, 2^e année, n° 11, 20 février 1959;

3. La mesure de la radio-activité

F. B. Barker: Factors affecting the transport of radioactivity by water. *J. Am. Water Works Association* 50, 603, 12 May 1958;

3.1. Mesure directe du liquide rejeté

F. Kalil et J. M. Garnier jr.: System continuously records water level and contamination. *Nucleonics* 14, n° 7, 56—9 (1956);

3.2. Mesure sur des échantillons d'eau

K. Jordan: Measurement of liquides of low specific activity with a scintillation counter. *Atomwirtschaft*, December 1958, p. 496;

C. F. Gordon and A. L. Wolfe: Liquid scintillation counting of aqueous samples. *Analytical Chemistry* 32, n° 4 (1960), p. 574;

Neuwirth R.: Intermittent measurements of radioactive substances in water. *Atompraxis* 3, 402—404, October 1957;

H. Schroeder: Radiochemical determination of radionuclides in water. A compilation of radiochemical analysis. *Atompraxis* 7, 426—433, November 1961;

F. E. Butler: Sr⁹⁰ monitoring at the Savannah River Plant. *Health Physics* 8, 273 (1962).