

PREMIER MINISTRE

COMMISSARIAT A L'ENERGIE ATOMIQUE

DISTRIBUTION, TRANSFERT ATMOSPHERIQUE
ET BILAN DU KRYPTON - 85

par

Raymond PANNETIER

DIRECTION DE LA PROTECTION
ET DE LA SURETE RADIOLOGIQUES

Centre d'Etudes Nucléaires de Fontenay - aux - Roses

Rapport CEA - R - 3591

1968

Ma*

SERVICE CENTRAL DE DOCUMENTATION DU C.E.A

C.E.N. - SACLAY B.P. n°2, 91 - GIF-sur-YVETTE - France

CEA-R-3591 - PANNETIER Raymond

DISTRIBUTION, TRANSFERT ATMOSPHERIQUE ET BILAN
DU KRYPTON-85.

Sommaire. - La mise au point de techniques de prélèvement et de mesure du krypton-85 atmosphérique a permis de déterminer sa répartition géographique. De son utilisation comme traceur on déduit une évaluation des masses d'air qui traversent les fronts subtropicaux. Par ailleurs, le caractère stratosphérique de la pollution de l'air par le krypton-85 au niveau du sol antarctique est mis en évidence.

Le bilan du krypton-85 semble révéler une sous-estimation du bilan des énergies de fission des explosions adopté par le Comité scientifique des Nations Unies et souligne la nécessité de limiter dès que possible les quantités de

./.

CEA-R-3591 - PANNETIER Raymond

THE DISTRIBUTION, ATMOSPHERIC TRANSFER AND
ASSESSMENT OF KRYPTON-85

Summary. - Techniques for sampling and measuring krypton-85 have been developed which allowed to determine its geographical distribution. From its use as a tracer, an evaluation of the air masses which cross over the subtropical fronts has been derived. Besides, the stratospheric character of air pollution by krypton-85 at the level of the antarctic soil has been shown out.

Levels of krypton-85 seem to point out to an under-estimation of the assessment of nuclear explosion fission energies as adopted by the United Nations Scientific committee on the effects of atomic radiation and emphasize the

./.

krypton-85 rejetées dans l'atmosphère par les usines de traitement de combustibles irradiés.

1968

180 p.

Commissariat à l'Energie Atomique - France

need to set limits as soon as possible to the amounts of krypton-85 released to the atmosphere by fuel-reprocessing plants.

1968

180 p.

Commissariat à l'Energie Atomique - France

A partir de 1968, les rapports CEA sont classés selon les catégories qui figurent dans le plan de classification ci-dessous et peuvent être obtenus soit en collections complètes, soit en collections partielles d'après ces catégories.

Ceux de nos correspondants qui reçoivent systématiquement nos rapports à titre d'échange, et qui sont intéressés par cette diffusion sélective, sont priés de se reporter à la lettre circulaire CENS/DOC/67/4690 du 20 décembre 1967 que nous leur avons adressée, et qui précise les conditions de diffusion.

A cette occasion nous rappelons que les rapports CEA sont également vendus au numéro par la Direction de la Documentation Française, 31, quai Voltaire, Paris 7^e.

PLAN DE CLASSIFICATION

- | | |
|--|---|
| 1. APPLICATIONS INDUSTRIELLES DES ISOTOPES ET DES RAYONNEMENTS | 8. PHYSIQUE
8. 1 Accélérateurs
8. 2 Electricité, électronique, détection des rayonnements
8. 3 Physique des plasmas
8. 4 Physique des états condensés de la matière
8. 5 Physique corpusculaire à haute énergie
8. 6 Physique nucléaire
8. 7 Electronique quantique, lasers |
| 2. BIOLOGIE ET MEDECINE
2. 1 Biologie générale
2. 2 Indicateurs nucléaires en biologie
2. 3 Médecine du travail
2. 4 Radiobiologie et Radioagronomie
2. 5 Utilisation des techniques nucléaires en médecine | 9. PHYSIQUE THEORIQUE ET MATHEMATIQUES |
| 3. CHIMIE
3. 1 Chimie générale
3. 2 Chimie analytique
3. 3 Procédés de séparation
3. 4 Radiochimie | 10. PROTECTION ET CONTROLE DES RAYONNEMENTS. TRAITEMENT DES EFFLUENTS
10. 1 Protection sanitaire
10. 2 Contrôle des rayonnements
10. 3 Traitement des effluents |
| 4. ETUDES DU DOMAINE DE L'ESPACE | 11. SEPARATION DES ISOTOPES |
| 5. GEOPHYSIQUE, GEOLOGIE, MINERALOGIE ET METEOROLOGIE | 12. TECHNIQUES
12. 1 Mécanique des fluides - Techniques du vide
12. 2 Techniques des températures extrêmes
12. 3 Mécanique et outillage |
| 6. METAUX, CERAMIQUES ET AUTRES MATERIAUX
6. 1 Fabrication, propriétés et structure des matériaux
6. 2 Effets des rayonnements sur les matériaux
6. 3 Corrosion | 13. UTILISATION ET DEVELOPPEMENT DE L'ENERGIE ATOMIQUE
13. 1 Centres d'études nucléaires, laboratoires et usines
13. 2 Etudes économiques, programmes
13. 3 Divers (documentation, administration, législation, etc...) |
| 7. NEUTRONIQUE, PHYSIQUE ET TECHNOLOGIE DES REACTEURS
7. 1 Neutronique et physique des réacteurs
7. 2 Refroidissement, protection, contrôle et sécurité
7. 3 Matériaux de structure et éléments classiques des réacteurs | |

Les rapports du COMMISSARIAT A L'ENERGIE ATOMIQUE sont, à partir du n° 2200, en vente à la Documentation Française, Secrétariat Général du Gouvernement, Direction de la Documentation, 31, quai Voltaire, PARIS VII^e.

The C.E.A. reports starting with n° 2200 are available at the Documentation Française, Secrétariat Général du Gouvernement, Direction de la Documentation, 31, quai Voltaire, PARIS VII^e.

ORSAY
SÉRIE A.
N° D'ORDRE :
368

THÈSES

PRÉSENTÉES

A LA FACULTÉ DES SCIENCES DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS

CENTRE D'ORSAY

POUR OBTENIR

LE GRADE DE DOCTEUR-ES-SCIENCES PHYSIQUES

PAR

Raymond PANNETIER

PREMIÈRE THÈSE

DISTRIBUTION, TRANSFERT ATMOSPHERIQUE ET BILAN DU KRYPTON -85

DEUXIÈME THÈSE

Propositions données par la Faculté

Soutenues le 21 juin 1968 devant la Commission d'examen

MM. RIOU	}	Président
VASSY		Examineurs
LABEYRIE		
AVARGUES		
LAMBERT		

Centre d'Etudes Nucléaires de Fontenay-aux-Roses
Direction de la Protection et de la Sûreté Radiologiques
Département de la Protection Sanitaire
Section de Contrôle Sanitaire

DISTRIBUTION, TRANSFERT ATMOSPHERIQUE
ET BILAN DU KRYPTON-85

par

Raymond PANNETIER

NOVEMBRE 1968

J'adresse mes respectueux hommages à Monsieur le Professeur RIOU pour l'intérêt attaché à mes recherches et l'honneur qu'il m'a fait en acceptant la présidence du jury.

Je tiens à exprimer une reconnaissance déférente à Monsieur le Professeur VASSY qui a bien voulu faire partie du jury.

Je saisis l'occasion de témoigner une gratitude admirative à Monsieur LABEYRIE pour les conseils qu'il m'a donnés et les horizons qu'il m'a fait entrevoir.

Je suis particulièrement sensible à la façon si naturelle avec laquelle Monsieur AVARGUES a accepté d'être membre du jury et d'y représenter un domaine qui me tient à cœur.

Je prie Monsieur DUHAMPEL d'accepter mes remerciements les plus sincères pour l'intérêt manifesté envers cette étude qu'il a fait inscrire au programme du Commissariat à l'Energie Atomique.

Mes remerciements vont également à Monsieur FARGES pour ses critiques constructives sur un travail dont il a permis les derniers développements.

Par ailleurs je me sens l'obligé de Madame DELIBRIAS qui m'a précédé dans cette étude et à qui je dois de fructueuses discussions ainsi que certains résultats.

Mais ce n'est que grâce à la compréhension de la direction et du personnel de plusieurs organismes que les prélèvements de plusieurs sortes ont pu être effectués. Je ne pourrais, en particulier, oublier ma dette envers AIR-FRANCE, les Expéditions polaires françaises et la COMPAGNIE FRANCAISE des ARMATEURS pour leur gracieuse collaboration ainsi que l'aimable coopération de Monsieur GIZOUARN en ce qui concerne les prélèvements stratosphériques.

Je remercie également Monsieur BOTTER et ses collaborateurs de la section de spectrométrie de masse de SACLAY, qui ont effectué les analyses de tous les échantillons.

Enfin je dois mentionner la collaboration active et parfois enthousiaste de quelques stagiaires affectés aux manipulations que comporte cette étude.

DISTRIBUTION, TRANSFERT ATMOSPHERIQUE ET BILAN
DU KRYPTON-85

	Pages
- LIMINAIRE	5
- INTRODUCTION :	9
- La circulation atmosphérique	
- Caractéristiques du krypton et de son isotope 85	
I - ECHANTILLONNAGE ET MESURE DU KRYPTON-85 ATMOSPHERIQUE	23
I-1. Les prélèvements	
I-2. Préparation des échantillons	
I-3. Mesure de la radioactivité des échantillons	
I-4. Détermination du volume de krypton d'un échantillon	
I-5. Radioactivité spécifique du krypton	
II - REPARTITION GEOGRAPHIQUE DU KRYPTON-85	41
II-1. Tableaux carte et graphiques de répartition	
II-2. Premières déductions	
III - BILAN ACTUEL DU KRYPTON-85 ATMOSPHERIQUE	53
Evolution et analyse des sources	
IV - INTERPRETATION DES RESULTATS SUR LE KRYPTON-85	61
IV-1. Prélèvements effectués au niveau de la mer	
IV-2. Prélèvements stratosphériques	
V - PROSPECTIVE DU KRYPTON-85	71
V-1. Production future	
V-2. Conséquences	
V-3. Solution proposée	
- CONCLUSION	83
- BIBLIOGRAPHIE	

- ANNEXES.	Pages
Annexe A : Les appareils de prélèvements	95
Annexe B : L'adsorbant et l'absorbant utilisés : tamis moléculaire et "UZYRIT".	107
Annexe C : Analyse statistique d'une mesure de radioactivité du krypton - précision de la mesure.	115
Annexe D : Diffusion gazeuse de deux gaz ; homogénéité du mélange.	131
Annexe E : Le krypton-85 produit par les centrales nucléaires.	137
Annexe F : Proposition pour une augmentation de la valeur de la CMA, du Kr-85	143
Annexe G : Le stockage souterrain de gaz en nappe aquifère profonde	147
Annexe H : Banc d'essai : reconstitution des conditions physiques de la haute atmosphère	153
Annexe J : Le maintien du vide secondaire	157
Annexe K : Génèse d'une mesure de radioactivité spécifique du krypton	161
Annexe L : Généralités sur l'atmosphère	167
- ANNEXES hors thèse	
Annexe M : Composés du krypton	171
Annexe N : Le krypton-85, traceur universel	173
Annexe P : Le choix d'un sujet dans le domaine des sciences appliquées.	175

L I M I N A I R E

Le krypton atmosphérique est d'origine primaire et la contribution de la fission naturelle reste absolument négligeable [Bc-1]. L'isotope - 85 produit dans les minerais reste trop longtemps occlus par rapport à sa période, 10, 4 ans, pour qu'on puisse le retrouver dans les eaux de ruissellement des sites uranifères [Ba-1] et encore moins dans l'atmosphère.

Le Kr-85 atmosphérique est donc entièrement artificiel ; c'est encore un irradiateur bien timide et actuellement sa totalité pourrait entrer dans 2 ou 3 bouteilles pour gaz comprimés. D'où l'indifférence quasi-générale des milieux industriels nucléaires à son égard.

A sa naissance avec les autres produits de fission de l'uranium, il fut simplement inscrit sur les registres et abandonné à lui-même ; ainsi, lors du traitement des combustibles irradiés c'est pratiquement le seul produit de fission rejeté en quasi-totalité dans l'atmosphère où il entra discrètement au début. Ce n'est qu'en 1954 que M. de VRIES [Bv-1] s'avisa d'effectuer des mesures de la radioactivité du krypton séparé lors de la distillation de l'air liquide. Dès 1957 on trouve 7 communications le concernant. De 1958 à 1961 on en trouve près d'une centaine dont en particulier celle de G. DELIBRIAS et al. [Bd-1] sur la radioactivité du krypton atmosphérique en France ;

plusieurs de ces communications traitent de l'extraction du Kr - 85 des combustibles irradiés, de sa séparation, de ses utilisations possibles et plus généralement des clathrates, kryptonates et fluorures ; en 1962 on trouve une trentaine de communications ; en 1963 on en trouve une cinquantaine dont celles de W. ROETHER et al. [Br-2] et de KUNIKIKO KIGOSHI [Bk-1] sur la mesure du Kr-85 dans l'atmosphère, respectivement en Allemagne et au Japon. En 1964 on parle beaucoup du krypton comme traceur universel. En 1965 on fait des mesures du krypton dissous dans l'eau de mer, et on envisage l'utilisation du krypton-85 comme traceur hydraulique [Bc-7].

LE KRYPTON - 85 EST UN GAZ RARE ET SA PERIODE RADIOACTIVE EST SUPERIEURE A 10 ANS, aussi certains auteurs précités l'avaient préconisé comme traceur atmosphérique. Quoique sa période soit un peu longue et sa production au sol continue il apparaît comme un des meilleurs traceurs pour l'étude des échanges troposphériques entre hémisphères. Pour cette étude le traceur idéal serait un gaz rare de quelques mois à un an de période, mais il n'en existe pas. Les aérosols ont une vie troposphérique trop brève et la plupart ont leur source dans la stratosphère ; quant aux autres gaz radioactifs qui peuvent servir de traceurs H-3, $^{14}\text{CO}_2$, Xe-133, le dernier a une période de quelques jours seulement et l'interprétation des résultats de la distribution des deux autres est délicate et difficile car l'un ne reste pas gazeux et sera un traceur pour l'eau, et l'autre entre dans le cycle du carbone.

NOUS AVONS DONC ETUDIE LA REPARTITION MONDIALE DU KRYPTON-85 PAR LA DETERMINATION DE LA RADIOACTIVITE SPECIFIQUE DU KRYPTON (Cette grandeur est proportionnelle à la concentration en krypton-85 car il a été prouvé que la composition de l'air en constituants stables est constante).

On sépare tout d'abord les "quelques mg" de krypton des "quelques kg" d'air d'un prélèvement, puis on en détermine la radioactivité par une mesure dans une installation de comptage à bas niveau. La quantité de Kr contenue dans cette source radioactive est déterminée par une analyse, au spectromètre de masse, du gaz à la sortie du compteur.

Il a fallu mettre au point un système de prélèvements à l'échelle du globe. Evidemment le nombre des mesures est limité car pour un échantillon, du prélèvement au résultat, quinze jours de travail en moyenne sont nécessaires. Mais l'analyse de nos résultats permet de présumer un modèle de circulation troposphérique méridienne accompagné d'une estimation des transferts.

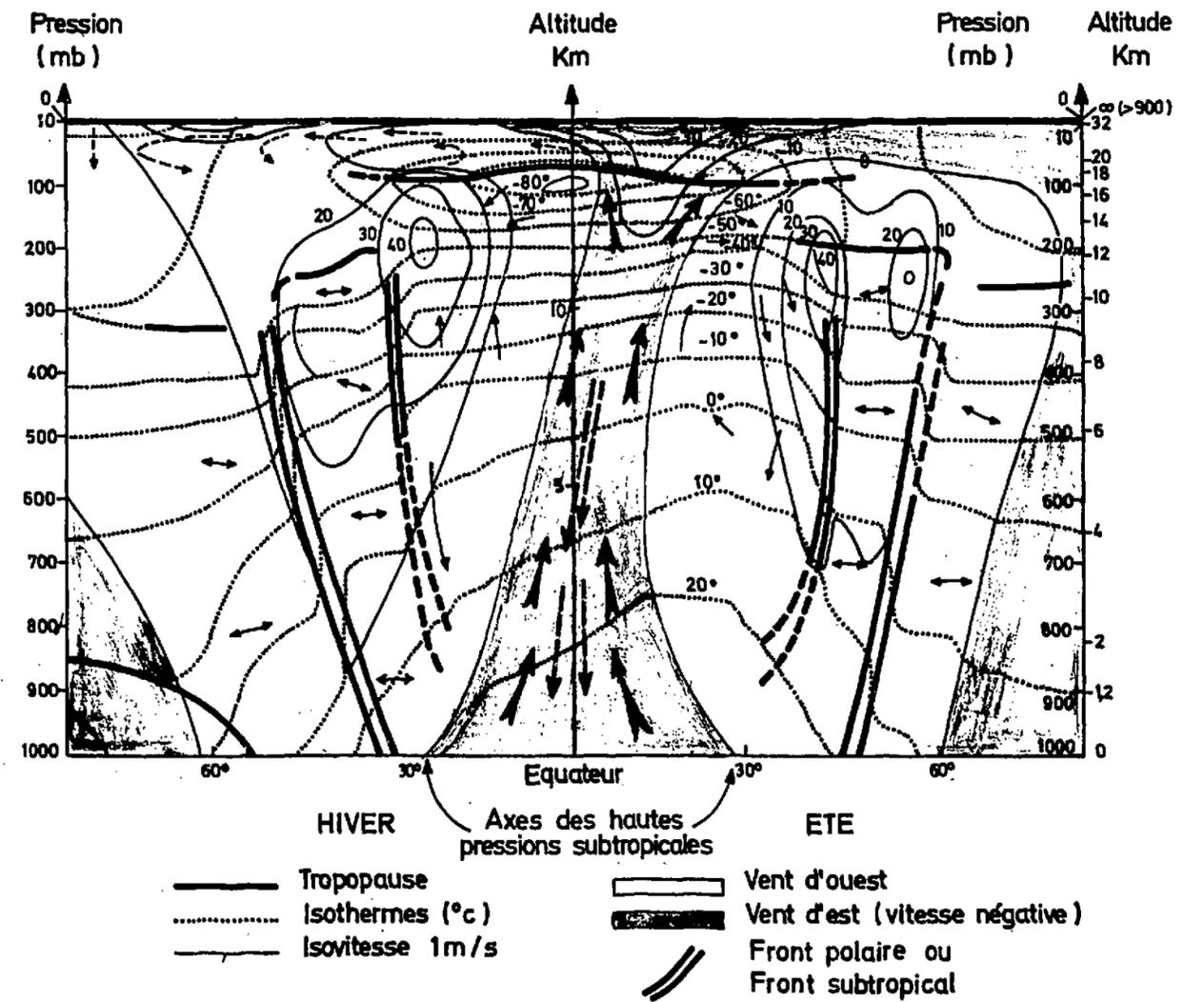
Par ailleurs, le krypton-85 atmosphérique est un irradiateur et son accroissement pose un problème.

NOUS AVONS EVALUE LA "DOSE ENGAGEE" ASSOCIEE A L'EVOLUTION DE LA CONCENTRATION ATMOSPHERIQUE DU KRYPTON-85 et l'avons comparé à celle résultant de la totalité des explosions nucléaires effectuées jusqu'à ce jour. Comme c'est avant la fin de ce siècle que les "doses engagées" correspondantes seront égales, nous pensons ainsi attirer l'attention sur la sous-estimation du risque attaché à ce gaz. Nous proposons, en vue de son élimination une solution conforme aux règles d'hygiène atomique et dont la mise en oeuvre présente en outre des possibilités très intéressantes pour la résolution d'autres problèmes liés à l'énergie nucléaire.

INTRODUCTION

LA CIRCULATION ATMOSPHERIQUE

Le modèle d'atmosphère schématisé ci-dessous est conforme aux hypothèses généralement admises et aux résultats statistiques des mesures météorologiques courantes.



La circulation atmosphérique a été une des premières préoccupations des météorologistes il y a 200 ans. La littérature dont elle est l'objet s'est considérablement enrichie mais elle est en général très dispersée, très fractionnée, très diversifiée.

La synthèse suivante des connaissances actuelles sur la circulation atmosphérique révèle la contribution que peut apporter l'étude du Kr-85 utilisé comme traceur atmosphérique.

- LA CIRCULATION ATMOSPHERIQUE ZONALE.

Le fait dominant, en ce qui concerne la circulation atmosphérique zonale, est celui du système des courants qui circulent en suivant les parallèles.

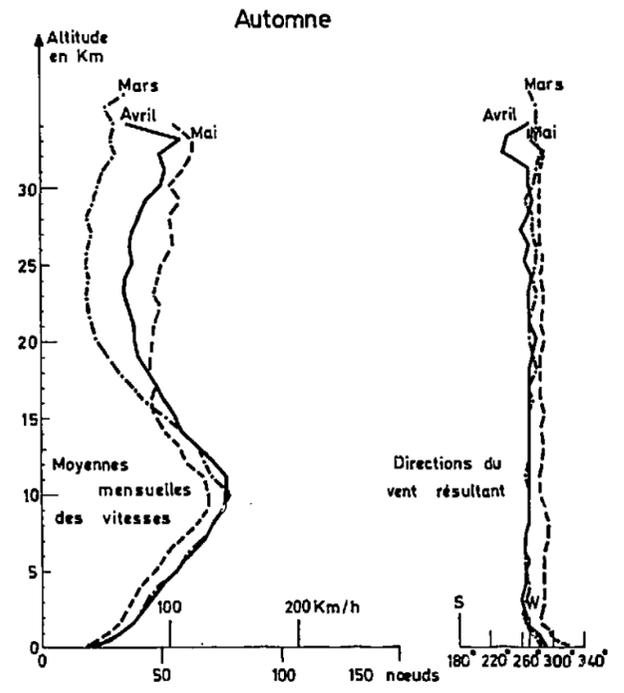
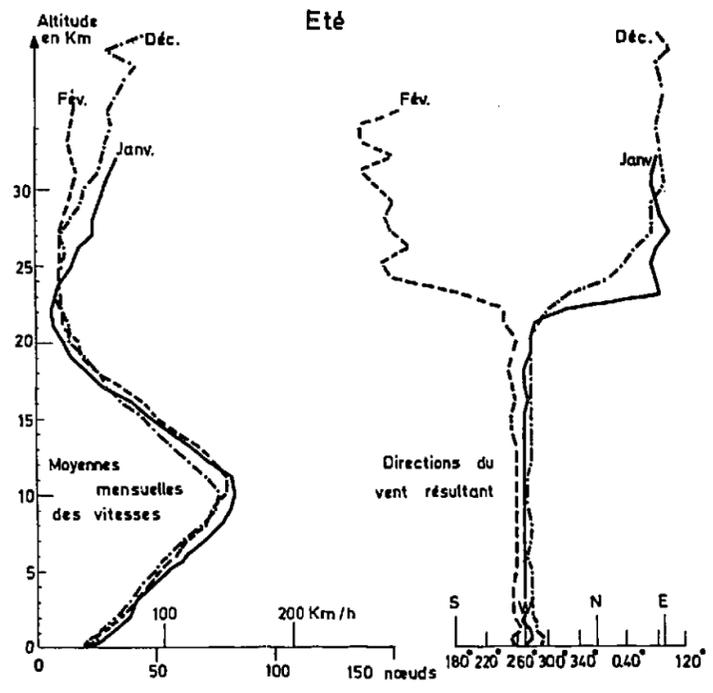
Cette structure zonale est illustrée par la figure de la page 11 qui représente une vue générale de la terre et de son système nuageux prise du satellite ATS -1, le 14 septembre 1967.

Les graphiques des pages suivantes montrent un exemple des caractéristiques des vents aux latitudes moyennes. Les vitesses sont telles que les courants les plus rapides font le tour de la terre en quelque deux semaines. Les composantes longitudinales (270°) des vents troposphériques sont en permanence de l'ordre de cent fois supérieures aux composantes méridiennes (0° et 180°).

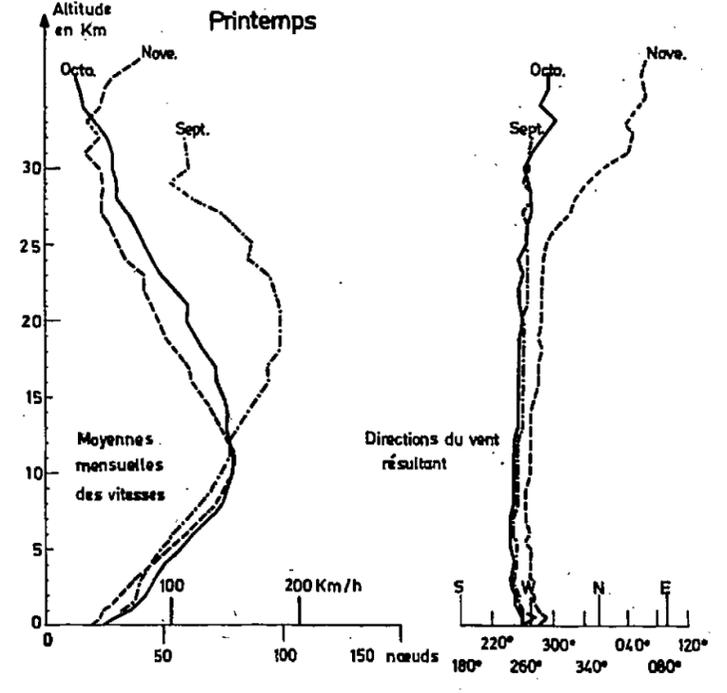
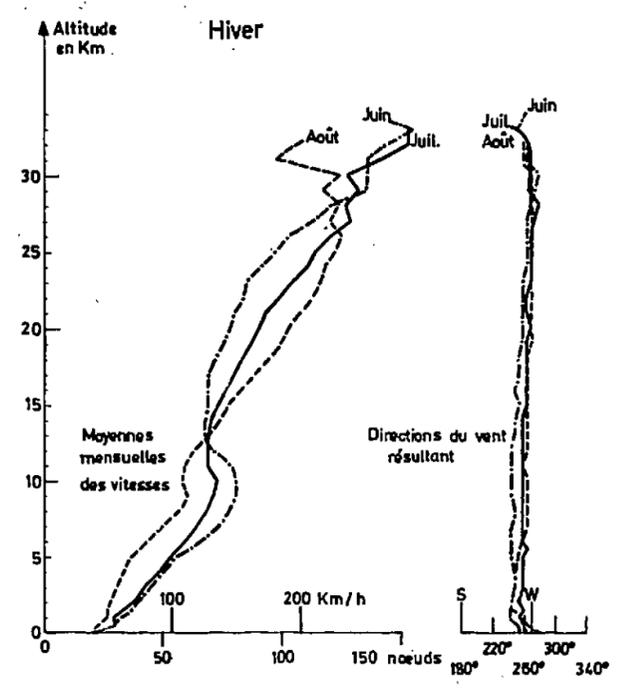
Ceci justifie l'hypothèse de l'homogénéité zonale que nous adopterons en ce qui concerne le krypton mais qui ne peut être étendue aux phénomènes liés à des facteurs météorologiques à court terme (ainsi les retombées d'aérosols, examinées plus loin, peuvent être très différentes en longitude).



NASA ATS-1 SPIN SCAN CLOUD CAMERA PHOTOGRAPH 14 SEPTEMBER 1967



CARACTERISTIQUES DES VENTS A KERGUELEN
68° E . 48° S en 1963-64 Sondage au radar.
Météorologie nationale.



CARACTERISTIQUES DES VENTS A KERGUELEN
68° E 48° S en 1963-64 Sondage au radar.
Météorologie nationale.

- LA CIRCULATION ATMOSPHERIQUE MERIDIENNE.

En dépit des faibles valeurs des composantes méridiennes des vents, transversales ou verticales, c'est la circulation méridienne qui crée les échanges. Elle est l'objet d'un grand nombre d'études dont les conclusions ne sont pas toujours concordantes notamment en ce qui concerne les modes et les volumes des transferts entre hémisphères.

- CIRCULATION MERIDIENNE DEDUITE DES FACTEURS NON RADIOACTIFS.

L'interprétation des résultats des mesures des températures, des vitesses des vents, des pressions et de leurs distributions et variations complétés par l'étude de la répartition d'éléments non radioactifs a conduit à la conception suivante d'un modèle de circulation atmosphérique [Bb-1] (voir aussi figure p.9).

- Circulation méridienne troposphérique intertropicale.

Dans la troposphère des courants méridiens réguliers moyens n'existent de façon permanente que dans la ceinture intertropicale, courants descendants sur les tropiques avec une composante longitudinale, courants ascendants avec une composante longitudinale inverse à l'équateur (convergence équatoriale).

La tropopause tropicale est généralement stable et permanente : elle constitue une frontière quasi-étanche qui n'est guère forcée que par les colonnes ascendantes des fortes explosions atomiques (Iles Jonhson, etc... ..).

- Circulation méridienne troposphérique extratropicale.

Aux latitudes moyennes et hautes tout est changeant ; parfois la tropopause polaire disparaît même, la circulation méridienne horizontale est tantôt Nord-Sud, tantôt Sud-Nord, quelquefois des cellules de circulation se forment aux latitudes moyennes. Une diffusion turbulente qui peut se manifester dans toutes les directions résulte des tourbillons, dépressions et surpressions dont on peut suivre le développement sur les cartes météorologiques.

Lorsqu'à l'occasion des variations thermiques du printemps et de l'automne la tropopause des latitudes moyennes est perturbée, les injections stratosphériques dans la troposphère sont reprises par cette diffusion et atteignent le sol après un certain temps. Ces manifestations sont statistiquement assez régulières pour qu'on ait tenté d'estimer un taux annuel de transfert vertical entre stratosphère et troposphère et une durée de vie moyenne de séjour troposphérique.

- Circulation méridienne stratosphérique.

On n'avait guère de données sur la circulation stratosphérique avant les mesures de radioactivité. Récemment on admettait toutefois l'existence de cellules alors que les premières considérations sur la stabilité avaient conduit à la conception de couches stratifiées, d'où l'appellation.

- CIRCULATION MERIDIENNE DEDUITE DES TRACEURS AEROSOLS RADIOACTIFS.

La plupart des traceurs radioactifs sont des aérosols, les plus nombreux étant d'origine explosive, quelques uns d'origine mixte (créés par les explosions et par les cosmiques).

Les aérosols d'origine explosive sont en grande partie injectés dans la stratosphère (les plus lourds qui forment les retombées locales ne peuvent être pris en considération).

Dans la stratosphère la dispersion d'un nuage radioactif paraît s'effectuer régulièrement ; il semble que le nuage "s'étale" ce qui correspond à la notion des strates régulières qui traduit la stabilité thermique de cette couche. Comme les aérosols qui atteignent la stratosphère sont très légers (souvent $< 0,1 \mu$) ils y restent très longtemps en équilibre et ne redescendent qu'à l'occasion de perturbations "court-circuitant" la tropopause des latitudes extratropicales (voir la figure suivante page 17). Les durées de séjour stratosphérique sont suffisantes pour qu'en 2 ou 3 ans soit atteinte une pseudo-homogénéité de densité d'aérosols de même âge.

Un modèle de transport et de distribution stratosphériques à partir des résultats du Rh-102 utilisé comme traceur est proposé par KALKSTEIN [Bk-3] En France quelques aspects de la circulation méridienne stratosphérique qui conduit à l'homogénéité sont présentés par G. LAMBERT [Bl-4]

Dans la troposphère Le nuage d'aérosols radioactifs qui se trouve dans la troposphère se disloque par turbulence en débris de plus en plus petits et de plus en plus nombreux. Chaque débris est une masse d'air entraînant un petit nuage d'aérosols qui, à cause de leur masse et peut-être de leur charge restent relativement groupés. Lorsque ce désagrégat atteint les altitudes des nuages il est entraîné par les précipitations et on a pu évaluer la durée moyenne de séjour des aérosols dans la troposphère à 30 à 40 jours selon les estimations.* En tenant compte de la faiblesse de la vitesse de diffusion méridienne cette valeur de la durée de vie moyenne troposphérique suffit pour expliquer le caractère principal de la répartition de la radioactivité β totale à vie longue après les explosions nucléaires.

* 1 mois pour la durée moyenne de la tropopause à 3 km.
2 à 10 jours pour la durée moyenne de 3 km au sol.

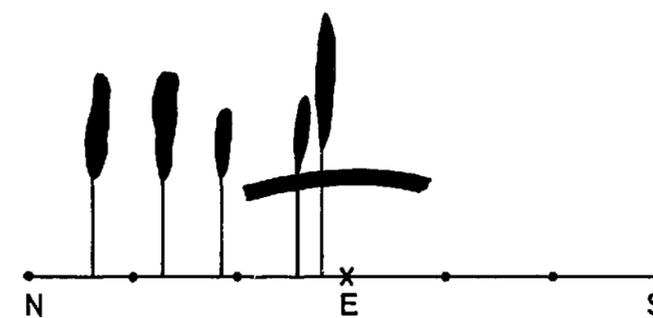
Schématiquement des aérosols d'origine explosive se distribuent principalement de la façon suivante (voir la figure page 17).

Les aérosols injectés dans la stratosphère Nord commencent à s'étaler dans cette couche et aussi à passer dans la troposphère Nord à l'occasion des perturbations qui traversent la tropopause des latitudes moyennes.

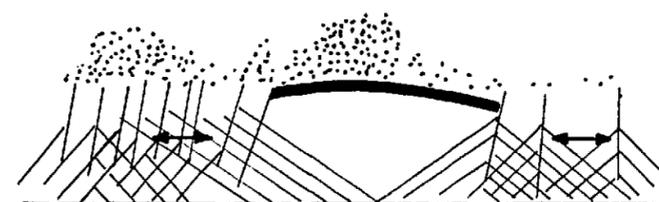
Comme l'étalement d'un nuage dans la stratosphère s'effectue lentement il y a peu d'aérosols au début dans la stratosphère Sud et, partant, très peu passent dans la troposphère Sud aux latitudes moyennes.

La zone intertropicale reste à l'abri des retombées car la durée de vie troposphérique des aérosols ne leur permet pas de les atteindre par diffusion méridienne horizontale. En effet, des latitudes moyennes jusqu'aux tropiques la vitesse de transfert est estimée à environ 1° de latitude par jour au niveau du sol.

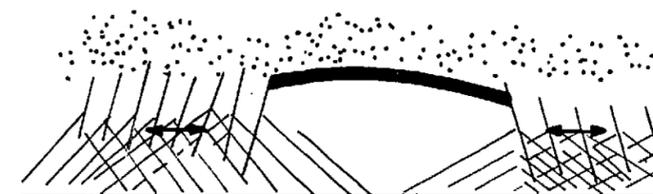
Ainsi, si l'étude des aérosols semble être très intéressante pour celle de la stratosphère, elle ne peut servir celle de la troposphère pour des phénomènes dont la durée est supérieure à celle de leur vie moyenne dans la troposphère.



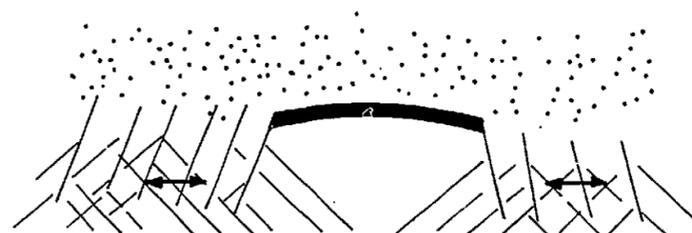
Injection par les explosions
(> 1Mt)



Etalement stratosphérique
après 1 an
Très peu de retombées au
sud



Etalement après 2 ou 3 ans



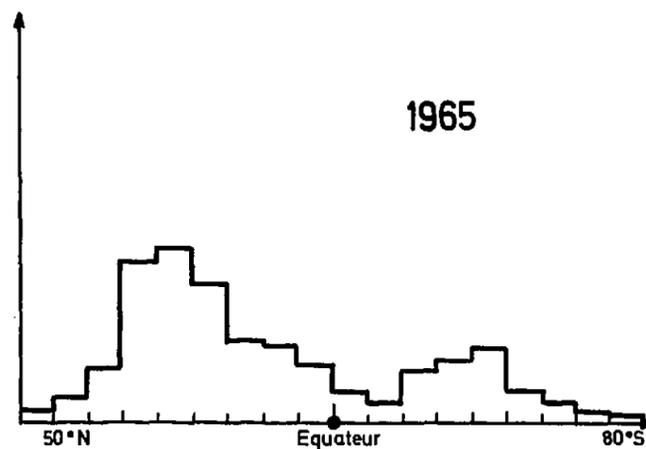
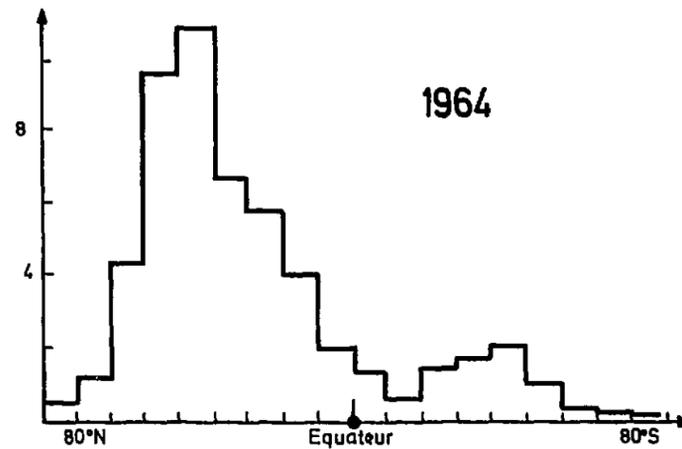
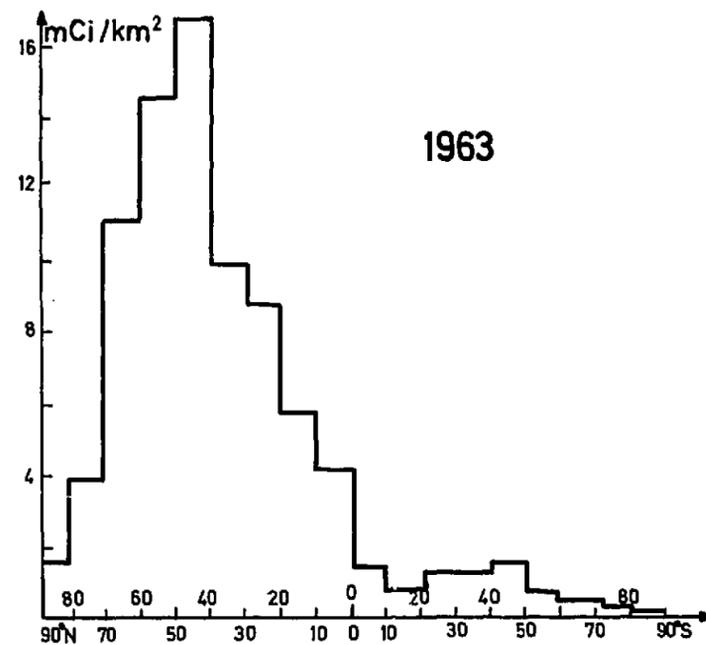
Etalement après 3 ou 4 ans

Schéma du mécanisme de transfert des aérosols radioactifs
d'origine explosive

Retombées de Sr-90.

Ces retombées moyennes annuelles de Sr-90 en 1963-1965 en fonction de la latitude [B1-7], traduisent approximativement le mécanisme simple esquissé par le schéma de la page précédente.

Toutefois ces retombées correspondent à la somme de plusieurs périodes d'essais nucléaires.



- CIRCULATION MERIDIENNE TROPOSPHERIQUE DEDUITE DES TRACEURS RADIOACTIFS GAZEUX.

Les molécules des gaz sont infiniment plus petites que les aérosols et la diffusion moléculaire quoique faible en valeur absolue ($0,1 \text{ m}^2/\text{s}$; cf annexe [D]) s'ajoute à la diffusion turbulente macroscopique pour créer une tendance à l'homogénéité des gaz dans l'air, contrairement à ce qui se passe pour les aérosols. Ce mécanisme s'applique aux gaz traceurs radioactifs qui sont essentiellement le tritium (T) le CO_2 marqué au C-14, le Xe-133 et le Kr-85.

-Le Xe-133 a une période très courte, 5,3 jours.

-Les mesures sur la répartition du tritium sont d'une interprétation délicate car les sources, naturelles et artificielles, sont essentiellement stratosphériques et dès sa rencontre avec la vapeur d'eau, le tritium entre en quasi-totalité dans son cycle.

-Le CO_2 provient de plusieurs types de sources et a plusieurs façons de disparaître, d'où les difficultés d'interprétation des résultats sur une répartition. Toutefois de nombreuses mesures ont été faites sur le $^{14}\text{CO}_2$ et la plupart des conclusions qu'elles ont suggérées sur la circulation méridienne [Bb-1] [B1-7] se retrouvent dans l'étude sur le Kr-85.

-Le traceur idéal pour l'étude de cette circulation atmosphérique serait un gaz rare de période voisine de l'année, injecté en une fois en un lieu déterminé.

TEL N'EST PAS LE CAS DU KRYPTON MAIS, A DEFAUT DU TRACEUR IDEAL, C'EST LUI QUI, PARMIS LES TRACEURS UTILISABLES S'EN APPROCHE LE PLUS.

CARACTERISTIQUES DU KR ET DE SON ISOTOPE KR-85.

(Caractéristiques utiles pour notre étude) [Bp - 1].

- Le krypton, du grec *κρυπτός* : caché, doit son nom à sa découverte tardive en 1898, par RAMSEY et TRAVERS.

- La première production commerciale a été effectuée par G. CLAUDE en 1930.

- Sa concentration volumique dans l'air est de $1,14 \cdot 10^{-6}$ [Bg - 1].

ce qui conduit à $1,14 \cdot 10^{-6} \times \frac{5,1 \cdot 10^{18}}{1,3} = 4,85 \cdot 10^{12} \text{ m}^3$ de Kr pour toute l'atmosphère (concentrations relatives des autres constituants de l'air : Ar : $9,34 \cdot 10^{-3}$ - CO₂ : $3,3 \cdot 10^{-4}$ - Ne : $1,82 \cdot 10^{-5}$ - He : $5,24 \cdot 10^{-6}$ - H₂ : $5 \cdot 10^{-7}$ - Xe : $8 \cdot 10^{-8}$).

- Sa concentration volumique dans l'eau à 15° C est de $6,2 \cdot 10^{-8}$ [Bb - 1].

Ceci conduit à un maximum de : $6,2 \cdot 10^{-3} \times 1,36 \cdot 10^{18} = 8,6 \cdot 10^{10} \text{ m}^3$ de Kr dissous dans l'eau du globe, soit $< 2 \%$ du Kr atmosphérique.

- La composition isotopique du krypton est la suivante (en %) :
Kr-78 (0,354) ; Kr-80 (2,27) ; Kr-82 (11,56) ; Kr-83 (11,55) ;
Kr-84 (56,9) ; Kr-86 (17,57) : la concentration du Kr-85 est très faible ($\approx 0,5 \cdot 10^{-11}$) et le restera.

- Sous une pression normale :

- masse spécifique à 20°C : $3,488 \text{ g/cm}^3$. C'est un gaz inodore.
- masse spécifique à la température de liquéfaction, $\theta_L = -152^\circ\text{C}$: $2,15 \text{ g/cm}^3$. C'est un liquide transparent sans couleur.
- masse spécifique à la température de solidification, $\theta_S = -157^\circ\text{C}$: $3,71 \text{ g/cm}^3$. C'est un solide blanc comme du givre ; à la fusion il semble se sublimer car θ_L est très voisin de θ_S .

- Tension de vapeur à -195°C : $\approx 2 \text{ Torr}$.

- Diamètre de l'atome de Kr : $4,0 \text{ \AA}$.

- Potentiel d'ionisation : 14 eV

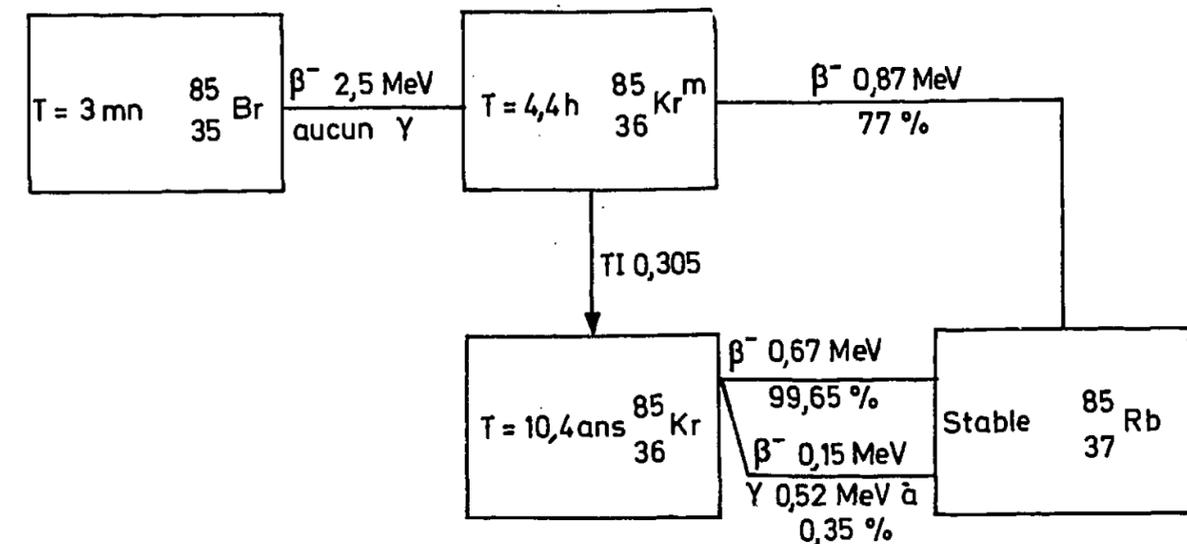
- Energie d'ionisation (énergie moyenne nécessaire pour créer une paire d'ions) : 24 eV : elle est parmi les plus faibles [Bl-3].

- Le radioisotope 85 du krypton a une période de 10,4 ans [Bl-1].

- Le nombre moyen d'atomes de Kr-85 produit par 100 fissions (on l'appelle ρ : rendement thermique de fission) est de [Bn-1].

0,293 pour la fission d'U-235
0,580 pour la fission d'U-233
0,127 pour la fission de Pu - 239

- Le schéma de filiation est le suivant [Bn-1]

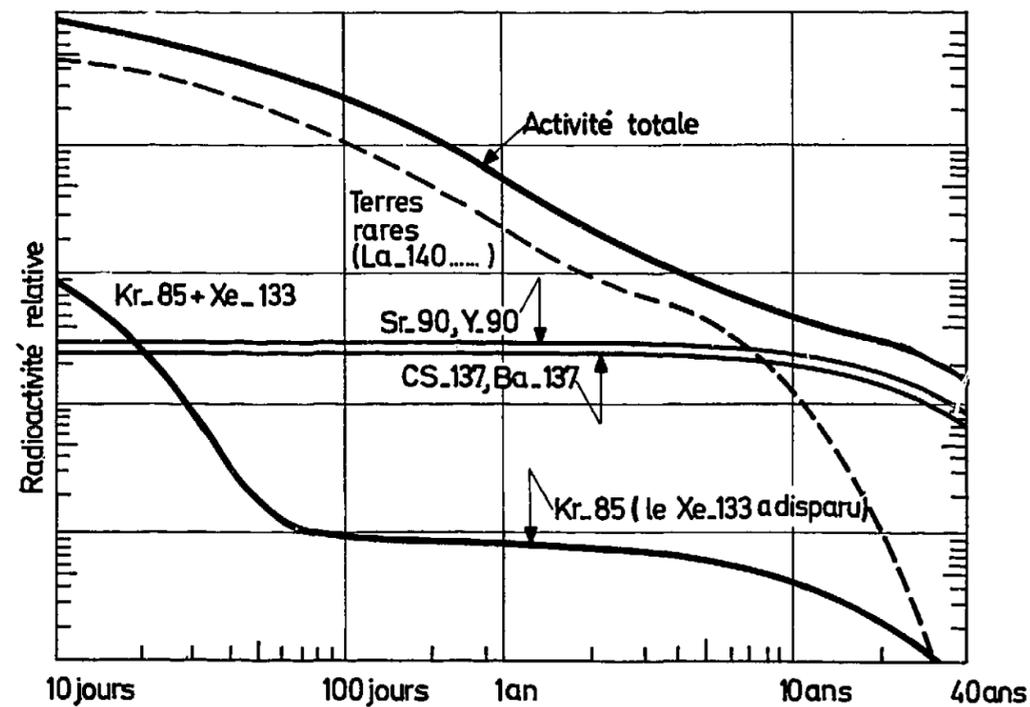


Des données récentes [Bd-3] attribuent au photon émis par le Kr-85 une énergie de 0,514 MeV et une probabilité de 0,435 %.

- La concentration maximale admissible du Kr-85 dans l'air est de $3 \cdot 10^{-6} \text{ Ci/m}^3$ pour les travailleurs dans le cas d'une exposition continue. A notre avis elle pourrait être augmentée [Annexe F].

- L'importance relative de la radioactivité du Kr-85 en fonction du temps écoulé après la fission est représentée sur le graphique suivant dans le cas de la fission d'U-235.

Importance relative en fonction du temps du produit de fission
Kr-85



I - ECHANTILLONNAGE ET MESURE DU KRYPTON-85 ATMOSPHERIQUE.

I - 1. Les prélèvements.

Parmi les mesures de la radioactivité spécifique de l'air en krypton-85, connues à ce jour seules les mesures françaises (G. DELIBRIAS et al.) [Bd-1] et allemandes (M. ROTHER et al.) [Br-1] permettent d'en suivre l'évolution dans le temps. Dans tous les cas les échantillons provenaient de la distillation de l'air liquide.

Les échantillons.

Pour étudier la répartition atmosphérique du Kr-85 il fallait déterminer les caractéristiques d'échantillons compatibles avec les méthodes de prélèvements et les méthodes de mesures dont les exigences sont opposées, en ce qui concerne les volumes traités. Le compromis conduisit à des prélèvements de quelques kilogrammes d'air transportés dans des bouteilles de 25 litres supportant 200 bars.

L'échantillonnage.

L'échantillonnage idéal consisterait à effectuer des prélèvements simultanés en des points judicieusement répartis sur tout le globe. En attendant qu'un tel programme s'inscrive pour une "Année géophysique internationale" à venir nous avons mis en oeuvre :

- des prélèvements au niveau du sol et sur bateau (par compresseur).
- des prélèvements en altitude.

- Sur le réseau d'AIR-FRANCE, par compresseur à l'altitude de vol soit environ 11 000 mètres ; ces prélèvements sont troposphériques ou stratosphériques selon la latitude et la saison.
- A plusieurs altitudes jusqu'à 30 000 mètres. Les appareils de prélèvement, par piégeage sur tamis moléculaire ou par capture dans un ballon-piège sont transportés par ballons gonflés à l'hydrogène.

Les détails sur ces prélèvements et le matériel utilisé sont décrits dans l'annexe [A].

Nous avons cherché à effectuer des prélèvements sous toutes les latitudes du 80° Nord au 66° Sud et à différentes altitudes (ceci n'a été effectué que sur la base du C.N.E.S. d'Aire sur l'Adour).

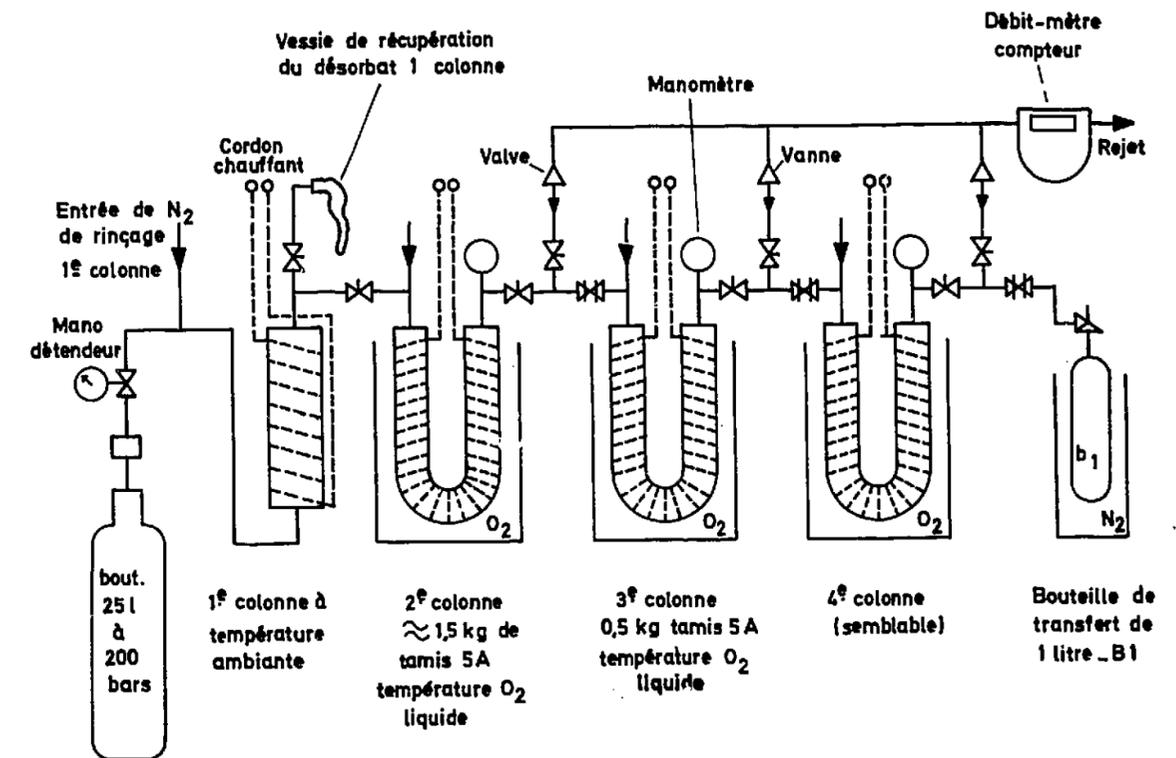
La carte des prélèvements est donnée avec les résultats.

1 - 2. Préparation de l'échantillon de krypton à mesurer.

Chaque prélèvement contient "quelques mg" de krypton dilués dans "quelques kg" d'air. Aussi avant d'effectuer la séparation du krypton à une telle concentration l'échantillon est préalablement enrichi en krypton d'un facteur mille environ.

ENRICHISSEMENT EN KRYPTON.

Cet enrichissement est réalisé sous contrat avec la société "AIR LIQUIDE" sur le banc décrit ci-dessous en utilisant une série d'adsorptions sélectives sur tamis moléculaires [Annexe. B].



Les opérations dont la mise au point a été effectuée en liaison avec les services de l'"AIR LIQUIDE" sont les suivantes :

- Dans une première opération l'air du prélèvement passe avant rejet sur les deux premières colonnes de tamis "5 A" avec un débit de l'ordre de 700 litres par heure. La première colonne contient environ 2 kg de tamis, à la température ambiante, elle a pour fonction de piéger l'eau qui obstruerait la colonne froide ; elle retient également la plus grande partie du CO_2 si elle n'est pas saturée en vapeur d'eau ; dans ce cas on peut récupérer le CO_2 dans une vessie lors de la désorption, en vue d'une éventuelle mesure du C_{14} . La deuxième colonne qui contient $\approx 1,5$ kg de tamis est ainsi protégée ; elle est plongée dans l'oxygène liquide (et non d'azote liquide pour éviter de liquéfier l'oxygène du prélèvement). Elle retient tous les gaz rares sauf l'hélium, mais aussi quelques 140 litres d'air.

- Dans une deuxième opération la 2ème colonne est désorbée par élévation de la température. Le krypton désorbe notamment entre 0 et 150°C mais on monte jusqu'à 300° pour régénérer le tamis qui est balayé en dernier lieu par un courant d'une dizaine de litres d'azote sec. Le désorbat, soit environ 150 litres, passe avec un débit d'une centaine de litres par heure sur la 3ème colonne semblable à la deuxième mais moins chargée en tamis, environ 0,5 kg, où s'effectue une deuxième adsorption sélective.

- Dans une troisième opération la désorption de la 3ème colonne suivie d'un rinçage à l'azote sec donne une vingtaine de litres qui passent avant rejet sur une 4ème et dernière colonne.

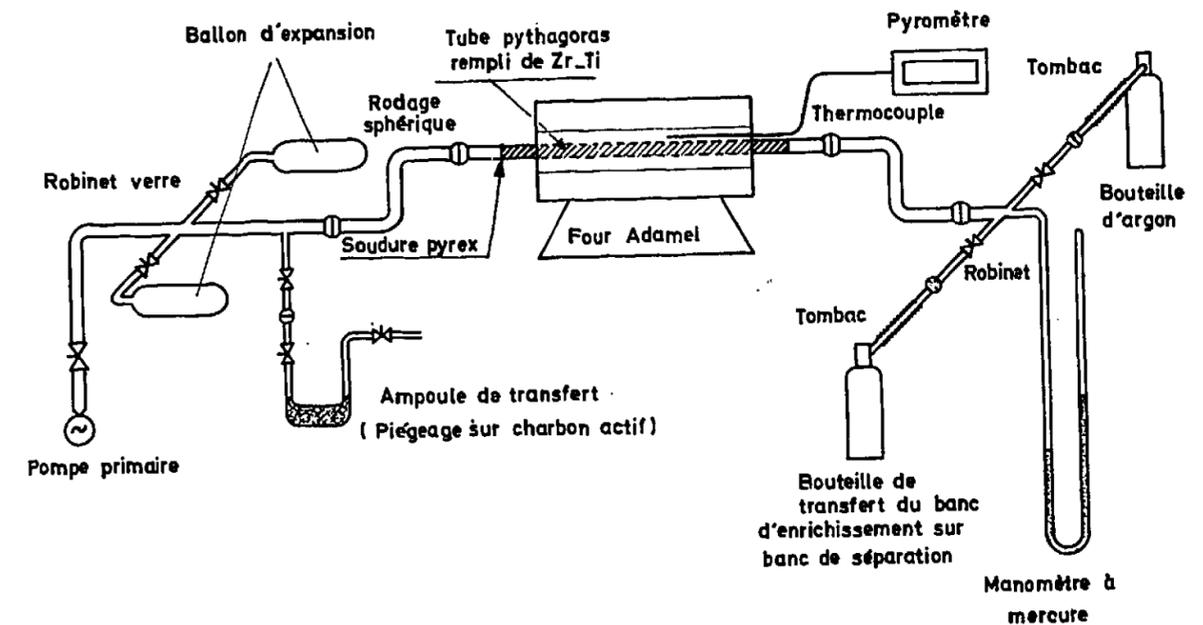
Finalement la désorption de la 4ème colonne donne quelques litres de gaz contenant une partie du krypton initial. Le rendement de l'opération contrôlée par des mesures au spectromètre de masse varie de 30 à 80 % suivant le mode opératoire et les échantillons.

SEPARATION DU KRYPTON.

L'opération d'enrichissement a permis d'obtenir 2 à 3 cm^3 de Kr dans quelques litres de gaz constitué des mêmes composants que l'air mais avec des concentrations variables d'un échantillon à un autre.

L'isolement des gaz rares est alors réalisé par absorption des autres gaz sur l'uzyrit. Des informations sur l'uzyrit, alliage équimoléculaire Zr-Ti et sur les résultats obtenus dans la séparation des gaz rares sont données annexe [B].

BANC DE SEPARATION DU KRYPTON

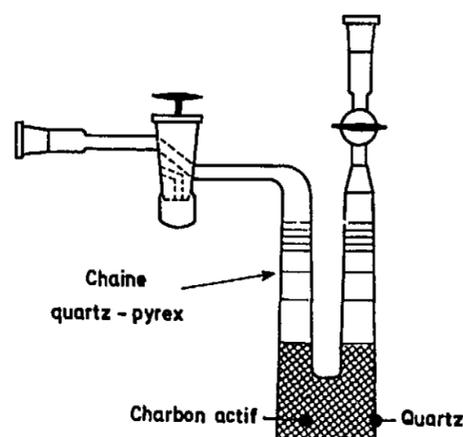


Le banc, figure ci-dessus, sur lequel s'effectue la séparation du krypton est en verre sauf la zone portée à haute température qui est en pythagoras. Tous les volumes partiels en ont été déterminés.

Les opérations effectuées sont les suivantes :

On introduit 60 à 80 g de copeaux brillants d'uzyrit dans la partie médiane du tube en pythagoras puis on raccorde la bouteille de transfert provenant du banc d'enrichissement par un tuyau souple (tom bac en cuivre) soudé au verre avec de l'araldite. On fait le vide dans l'enceinte puis on branche le four

en réglant le thermostat vers 500°C . La température s'élève de $\approx 300^{\circ}$ à 400° à l'heure. On attend environ 2 heures pour vérifier l'étanchéité puis on introduit le gaz à traiter. Au bout d'un temps très variable, de quelques heures à plus d'une journée, la pression tombe pratiquement à zéro. On piège alors le krypton ainsi isolé avec d'autres gaz rares, quelques traces de xenon et de l'argon dans une ampoule de volume minimal pour le transférer dans le compteur. Nous effectuons le piégeage total sur charbon actif * placé dans une ampoule en U **, figure ci-dessous qu'on met dans l'azote liquide.



Plusieurs fois nous avons introduit en fin d'absorption quelques Torr d'argon pour suivre au manomètre le piégeage sur charbon actif (on évite ainsi d'utiliser une jauge de Mac LEOD ou de PIRANI).

Le piégeage s'effectue en une minute environ mais on le prolonge quelques minutes.

Il reste alors à introduire dans le compteur l'échantillon de krypton ainsi isolé. Cette opération s'effectue sur le banc décrit ci-après.

* Le piégeage par cryosorption à -195°C , que nous avons essayé, évite l'introduction éventuelle d'impuretés pendant le transfert du krypton. On obtient une "neige kryptonique" dont la tension de vapeur ≈ 2 Torr, ne convient pas dans notre cas à cause de la petite valeur des volumes que nous traitons.

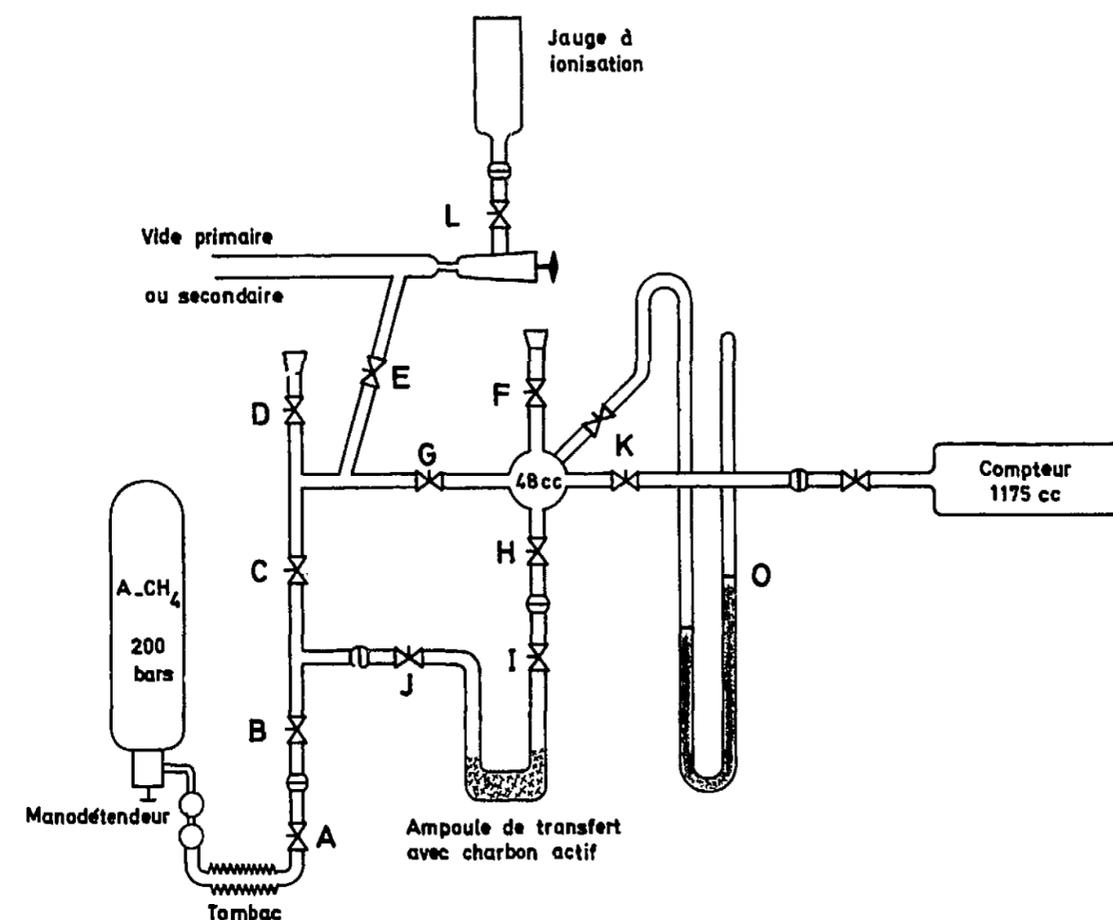
** Cette forme en U permet de balayer l'ampoule, après désorption du krypton, par le gaz de remplissage du compteur et de régénérer le charbon actif vers 600°C .

BANC DE REMPLISSAGE DU COMPTEUR.

Sur ce banc, figure suivante, le volume mort, entre l'ampoule de transfert et le compteur, doit être aussi faible que possible puisqu'il diminue le rendement. Ce volume, qui comprend le manomètre et la robinetterie de vidange, de transfert et de remplissage, atteint 48 cm^3 contre $1\,175\text{ cm}^3$ pour le compteur.

Afin d'éliminer toute trace de molécule électronégative, et principalement d'oxygène, toutes les parties mises en contact avec l'air sont maintenues un temps aussi long que possible sous vide secondaire à chaque remplissage.

Le compteur est particulièrement protégé car après une entrée d'air il lui faut plusieurs jours pour revenir à son état stable avec alternance de vides secondaires et de remplissage en Ar-CH_4 , gaz de remplissage du compteur.



Les opérations effectuées sont les suivantes :

Après avoir vidé le compteur sous vide secondaire jusqu'à quelques 10^{-6} Torr, on le ferme et on met en place l'ampoule de transfert en provenance du banc de séparation du krypton. On vide le banc puis on en rince une première fois les parties accessibles avec le gaz de remplissage du compteur ; on rince une deuxième fois en y adjoignant le compteur puis on désorbe le krypton du charbon actif de l'ampoule de transfert qu'on réchauffe dans un four jusque vers 500°C .

On suit la désorption au manomètre mais on connaît approximativement la quantité piégée. Quand le maximum de désorption est atteint on détend le désorbat dans le compteur dont on termine le remplissage jusqu'à 740 Torr avec le mélange $\text{Ar}-\text{CH}_4$ qui traverse l'ampoule. On ferme le robinet du compteur dont on nettoie les bagues d'isolement au méthylal puis on le manipule avec des gants de coton très propres, ne servant que pour son transport et sa mise en place sur le banc de mesure.

1 - 3. Mesure de la radioactivité des échantillons.

L'installation de mesure de la radioactivité des échantillons est du type "Mesure des faibles radioactivités".

Pour la mesure des faibles radioactivités on recherche un mouvement propre faible et stable.

Aussi :

- On recherche à réduire le plus possible la contamination des matériaux de structure (fer, cuivre, verre, isolant, etc... sont sélectionnés après passage au spectromètre γ).
- On utilise un montage en anticol incidence entre le compteur de mesure et son enveloppe de compteurs de garde et on protège l'installation par des enceintes multiples et variées pour réduire le plus possible les effets du rayonnement cosmique et de la radioactivité ambiante.
- On protège l'installation des perturbations et parasites du secteur par un stabilisateur de tension et un transformateur découplé.

- On manipule le compteur avec minutie et même éventuellement avec des gants de coton, afin d'éviter toute pollution, même non radioactive.
- Enfin on se place le plus possible dans les mêmes conditions opératoires : mesures avec le même compteur, climatisation, enceinte étanche pour la stabilité du degré hydrométrique, etc...)

Par une application méthodique et poussée de ces règles on parvient à des mouvements propres très faibles et très stables [$\text{Bg} - 2$, $\text{Bm} - 4$], mais les résultats obtenus sont minimes en fonction des efforts fournis.

Comme nos échantillons donnent quelques dizaines de coups par minute l'installation décrite ci-dessous est suffisante : elle a un mouvement propre très stable de 3,9 coups par minute.

Nous enregistrons pendant 6 secondes les 3 voies (cosmiques, compteur, anticol incidence) toutes les 600 secondes (10 minutes). Chaque échantillon est ainsi mesuré au moins 100 fois pendant la nuit (1 000 minutes) et par une série plus longue pendant le week-end. Le dépouillement des enregistrements nous a montré que, de nuit, il n'y a pratiquement pas de trains d'impulsions parasites.

Description du banc.

Le schéma général suivant fait apparaître deux parties :

- a) Le compteur proportionnel et sa protection (passive : enceintes blindées, etc..... active, la couronne anticosmique).
- Le compteur a été fabriqué au C.E.A./S.E.P. Il est en acier inoxydable, l'électrode centrale de 50μ est tendue par un ressort (force $\approx 100 \text{ g.}$).

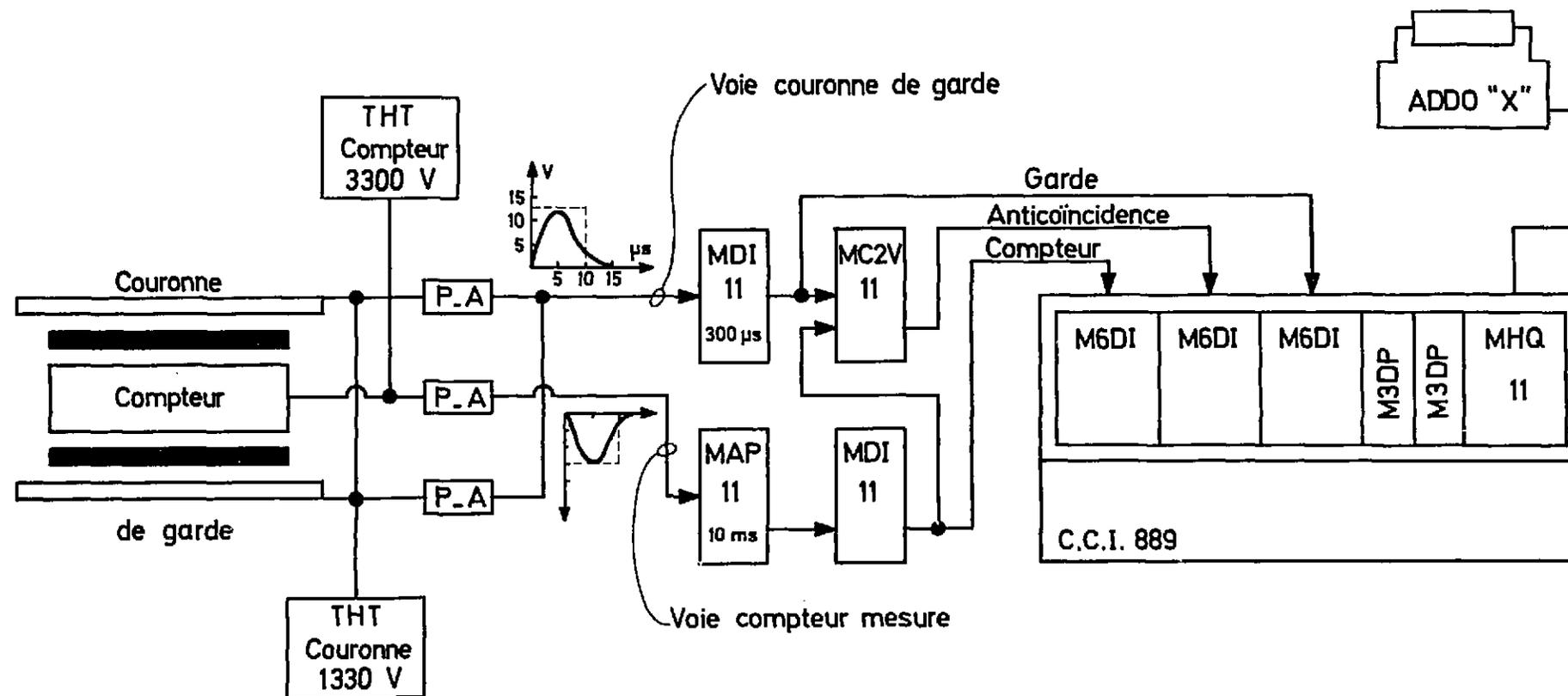


Schéma général - Ensemble pour bas comptage

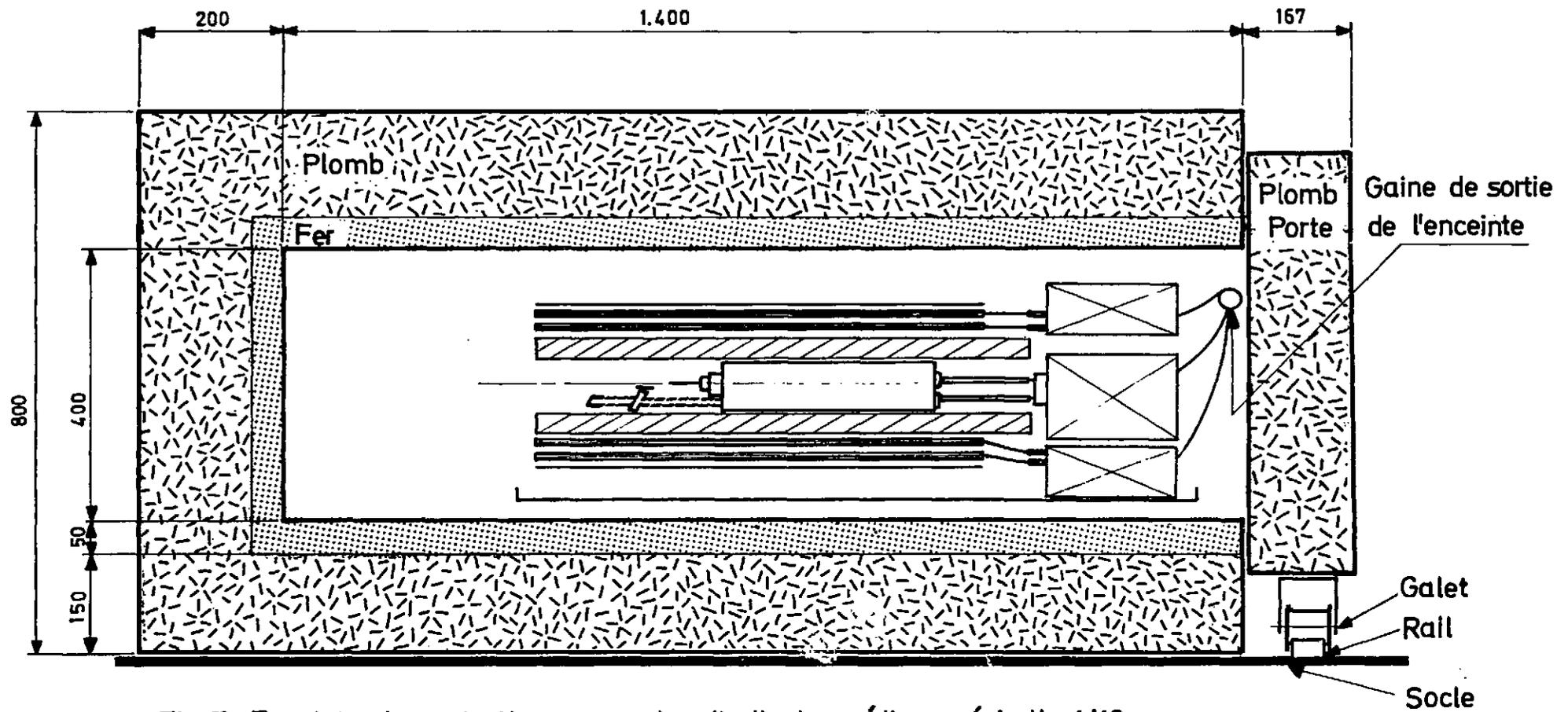


Fig: II _Enceinte de protection_ coupe longitudinale médiane_ échelle 1/10

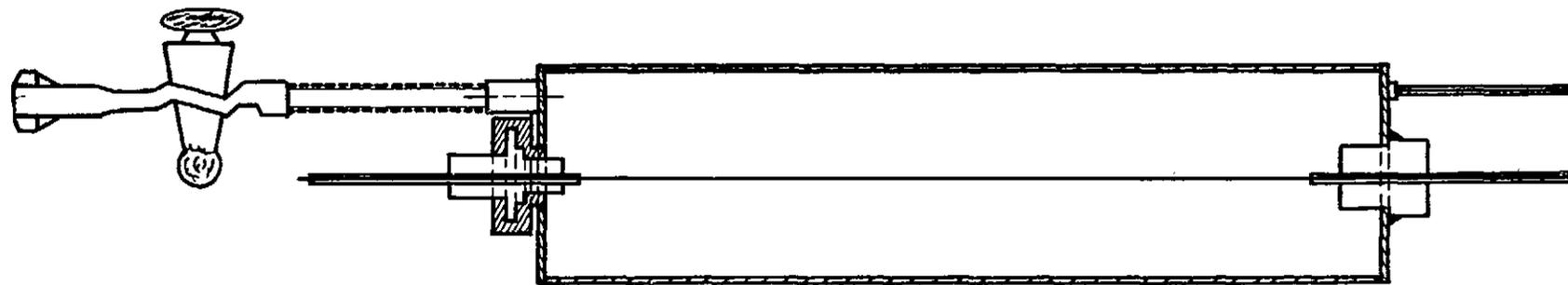
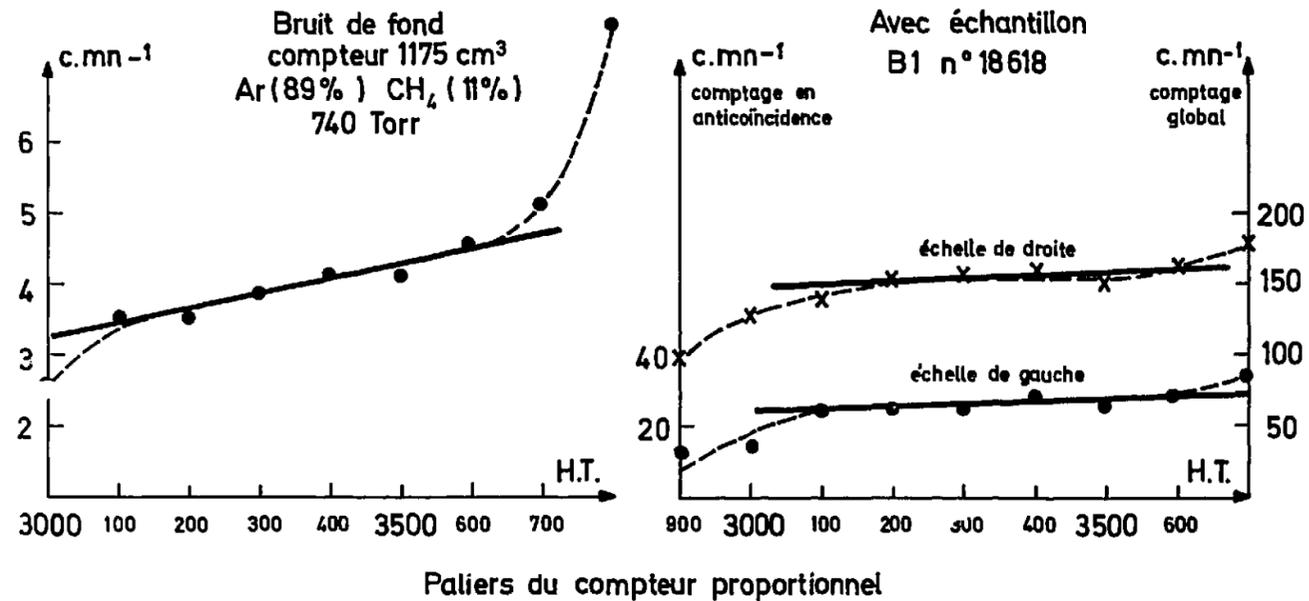


Fig: II_ Compteur (volume 1175 cm³)_ échelle 1/3

Nous avons effectué toutes les mesures avec le même compteur dont les caractéristiques sont les suivantes : Volume 1175 cm^3 ; tension de fonctionnement : $3\,300 \text{ V}$; bruit de fond : $3,9 \text{ c/mn}$: palier 500 V , pente $\approx 5 \%$ (courbes ci-dessous). Les impulsions qu'il délivre sont directement appliquées sur un préamplificateur adaptateur d'impédance logé dans l'enceinte avant d'être envoyées sur l'amplificateur.



L'enceinte blindée (le château), pèse 9 tonnes ; elle est constituée de briques de plomb (FA), faible activité contrôlée et de briques de fer sélectionné en particulier quant à sa non - contamination par le cobalt - 60.

La couronne de garde comprend 36 compteurs type Geiger L.C.T. qui se recouvrent en partie ; ces compteurs ont été sélectionnés d'après leur palier pour une haute tension commune de $1\,320 \text{ V}$; ils sont montés par groupes de 6 ; les impulsions qu'ils délivrent sont directement appliquées sur 2 préamplificateurs logés dans l'enceinte et dont la sortie vers un tiroir discriminateur est commune.

Une chemise d'une soixantaine de kg de mercure rigoureusement pur dans un réservoir en acier inoxydable constitue la dernière protection du compteur, notamment contre la radioactivité des matériaux de la couronne.

b) - L'électronique. Les tiroirs fonctionnels appartiennent au standard Renatran.

- Les impulsions en provenance de la couronne sont envoyées sur un tiroir discriminateur type MDI 11 dont la constante de temps a été portée à $300 \mu\text{s}$ pour que le compteur central soit sûrement bloqué pendant le passage du rayon qui a traversé la couronne.
- Avant d'être appliquées sur un tiroir discriminateur type MDI 11 les impulsions en provenance du compteur sont amplifiées par un tiroir type MAP 11 qui donne un temps mort de 10 ms ; ceci permet d'éliminer d'éventuelles impulsions multiples parasites sans perturber sensiblement le taux de comptage [B1 - 4].

Précision des mesures radioactives.

La radioactivité étant un phénomène aléatoire, le traitement de sa mesure est justifiable des méthodes statistiques sous réserve de certaines conditions.

On doit pouvoir considérer que l'échantillon est bien représentatif, c'est-à-dire qu'il n'est pas altéré après une mesure. Dans notre cas la période du Kr-85, plus de 10 ans, est grande par rapport à la durée des mesures, donc la population formée par l'ensemble de toutes les désintégrations possibles n'est pas sensiblement modifiée en quelques heures (beaucoup moins de 10 % qui est généralement la limite admise).

On doit s'assurer que les résultats des mesures traduisent bien des phénomènes aléatoires obéissant à des lois de probabilité définie ; les perturbations et écarts à ces lois traduiraient l'existence d'anomalies ou de parasites.

Ces conditions étant satisfaites, la précision de la mesure se traduit par l'amplitude de l'intervalle de confiance (exprimé en % de la mesure) qui a une probabilité déterminée de contenir la vraie valeur de la mesure.

Nos mesures sont données avec une précision meilleure que 5 % pour la quasi-certitude. Autrement dit l'intervalle de confiance qui couvre la vraie valeur avec la probabilité 0,998 est $< 5 \%$.

Cette valeur est établie pour un exemple dans l'annexe [C].

Rendement de détection.

Quoique l'interprétation des résultats pour l'étude de la répartition puisse se faire à partir de mesures relatives nous avons cherché à obtenir des mesures absolues ne serait-ce que pour d'éventuelles comparaisons avec des résultats obtenus par ailleurs. Au lieu de déterminer les rendements partiels (rendement géométrique par la méthode de ENGELHEIMMER et LIBBY : deux compteurs semblables mais de longueur différente permettent de déterminer le volume effectif en éliminant les effets de bouts etc...) nous avons cherché à estimer le rendement global à partir d'une source fournie par un laboratoire de mesures absolues. Mais comme on ne pouvait nous fournir de source étalon adaptée à notre gamme d'activité nous avons dû préparer des sources secondaires par dilution de la source mère de Kr-85 dont l'activité était donnée à 2 % ; (annexe [D]).

Compte tenu des corrections de volumes morts et des calculs d'erreurs (1,3 %), la plus importante portant sur l'évaluation du volume de l'enceinte nous avons obtenu les valeurs suivantes pour le rendement.

Sources secondaires de krypton - 85	Ampoule b	Ampoule c	Ampoule d
Volume de l'ampoule en cm ³	3,01	3,00	2,89
Activité théorique	1 287	1 282,4	1 235,4
Activité mesurée	1 006	1 007	975
Rendement global en % (p)	78,17	78,52	78,92

Le rendement global de détection a donc pour valeur :

$$P = 78,5 \% \left[1 \pm \left(\frac{2}{100} + \frac{1,3}{100} \right) \right] = (78,5 \pm 2,6) \%$$

1 - 4. Détermination du volume de Kr contenu dans un échantillon.

Le rendement d'extraction du krypton à partir de l'air est variable d'une préparation à l'autre. Pour définir l'activité spécifique il convient de connaître avec précision le volume de krypton dont on a mesuré la radioactivité.

La détermination du volume du krypton d'un échantillon se fait à partir des résultats de l'analyse spectrométrique du gaz du compteur après la mesure radioactive. Plus précisément on mesure par spectrométrie de masse le rapport des volumes de krypton (tous les isotopes) et d'argon - 36 qui sont du même ordre et les rapports des volumes des autres constituants à celui de l'argon.

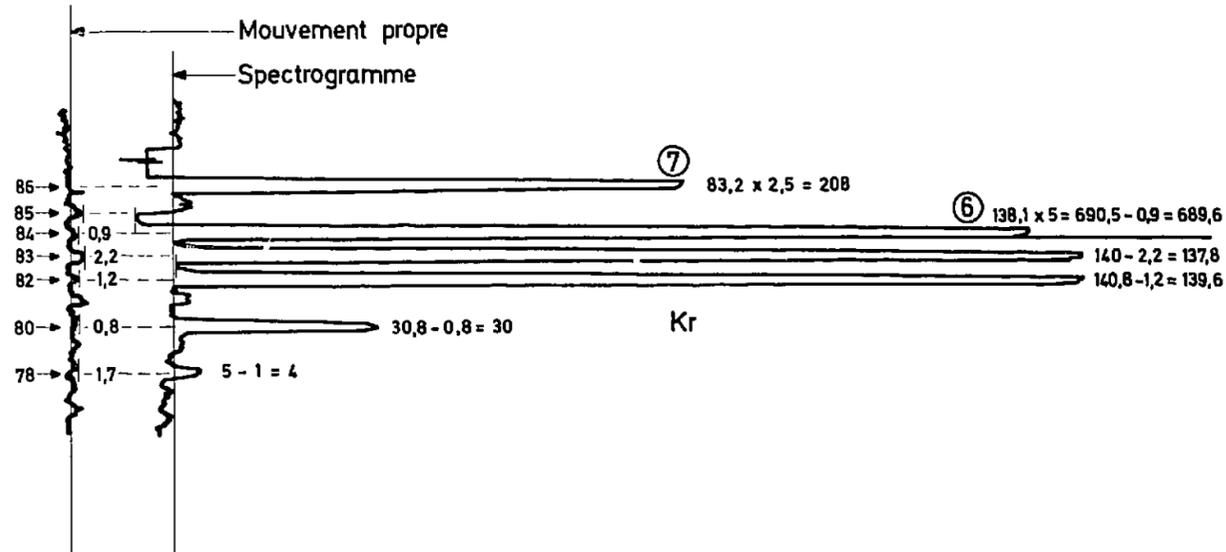
L'analyse spectrométrique est effectuée avec un spectromètre MS2 du Service des Isotopes Stables à SACLAY. La figure suivante représente les parties des deux spectrogrammes (bruit de fond et échantillon) intéressant l'Ar-36 et le Kr.

En tenant compte des sensibilités, des résidus que l'on soustrait et d'un facteur de correction (ce facteur "f" dépend notamment de la section efficace d'ionisation ; il est déterminé par étalonnage) on obtient :

- pour le krypton :

La hauteur totale des pics est 1 208,3 et le facteur de correction correspondant vaut 0,48.

Le nombre relatif en krypton est donc $1 208,3 \times 0,48 \approx 580$.



Spectrogramme de masse - Kr, Ar-36

- pour l'argon

Le pic de l'argon - 36 mesure 1 549 et le facteur correspondant vaut 0,67. Comme la concentration isotopique de l'argon - 36 dans l'argon est de 0,34% le nombre relatif à l'argon est :

$$1\,549 \times 0,67 \times \frac{1}{0,0034} \approx 0,305 \cdot 10^6$$

La concentration du Kr par rapport à l'Ar est donc :

$$\frac{\text{Kr}}{\text{Ar}} = \frac{580}{0,305 \cdot 10^6} \approx 0,19 \%$$

C'est la valeur que nous utilisons pour calculer le volume de Kr dans le compteur.

L'analyse spectrométrique de l'échantillon donne également les concentrations du méthane et des éléments trace, Xe, N₂... par rapport à l'argon. On peut donc calculer la concentration du krypton par rapport au gaz de remplissage du compteur et, par suite, son volume. (cf. *анализ*, p. 165.)

A titre d'exemple et pour illustrer la précision des mesures voici la comparaison des concentrations isotopiques des principaux isotopes du Kr données par les tables et obtenues à partir du spectrogramme d'un échantillon (figure précédente).

Isotope du krypton	Concentration table	Isotopique en % échantillon	Ecart en %
Kr-80	2,27	2,48	(9)
Kr-82	11,56	11,54	0,2
Kr-83	11,55	11,39	1,5
Kr-84	56,90	57,05	0,4
Kr-86	17,37	17,20	1,0

Nous prenons 2 % pour limite de l'erreur sur la mesure spectrométrique.

Si l'on tient compte en outre de l'erreur sur la détermination du volume du compteur $\leq 2\%$, et des fluctuations de la température qu'on considère constamment égale à 20°C (ce qui peut entraîner une erreur maximale de 2 %) l'erreur sur le volume du krypton d'un échantillon sera prise égale à 5 % au maximum.

I - 5 Radioactivité spécifique du krypton.

Comme il a été établi que les concentrations des composants stables de l'air, et du krypton notamment, sont rigoureusement constantes, la connaissance de la radioactivité par cm^3 de krypton entraîne celle de la concentration spécifique de l'air en krypton-85 qui lui est proportionnelle.

Comme la répartition porte sur des mesures relatives, nous prendrons comme grandeur de référence la radioactivité du krypton exprimée en désintégrations qui se produisent en une minute dans un cm^3 de krypton. Cette grandeur traduit également la concentration isotopique du Kr-85.

Pour un échantillon, la radioactivité spécifique "S" est le quotient de la radioactivité mesurée "R" par le volume de krypton qui l'a produite "V".

"R" est une variable aléatoire dont le pourcentage d'erreur a été établi précédemment; il est $\leq 5\%$ pour la quasi-certitude.

"V" est une mesure physique complexe dont le pourcentage d'erreur est également $\leq 5\%$ avec une probabilité qui correspond à la quasi-certitude statistique.

Le pourcentage d'erreur E_s sur la valeur quotient "S" est égale à la racine carrée de la somme des carrés des pourcentages d'erreur E_R et E_V sur les grandeurs composantes "R" et "V".

On a donc :

$$S = \frac{R}{V} \text{ avec le pourcentage d'erreur } E_s = \sqrt{E_R^2 + E_V^2}$$

$$\text{soit ici } E_s = \sqrt{\left(\frac{5}{100}\right)^2 + \left(\frac{5}{100}\right)^2} \approx \frac{7}{100}$$

Nos résultats sont donc exprimés avec un pourcentage d'erreur de 7 %, en ce qui concerne les valeurs relatives. Pour utiliser les résultats en tant que valeurs absolues il faut tenir compte de l'erreur sur le rendement du comptage radioactif, ce qui porte l'erreur à 10 % environ.

II - LA REPARTITION GEOGRAPHIQUE DU Kr-85.

II - 1 - Tableaux, carte et graphiques de répartition.

La concentration atmosphérique du Kr-85 est proportionnelle à la radioactivité spécifique du krypton dont la concentration dans l'air est constante et égale à $1,14 \cdot 10^{-6}$ en volume.

Les tableaux et graphiques suivants présentent les résultats des mesures de la répartition du Kr-85 dans l'atmosphère qui seront interprétés au chapitre IV.

- Les premiers tableaux rassemblent les résultats des mesures effectuées.
- Les lieux des prélèvements sont situés sur la mappemonde mais, comme nous admettons l'homogénéité zonale, tous les prélèvements seront pris en considération pour l'étude de la distribution méridienne à une époque déterminée.

- Le graphique page 47 représente en fonction de la latitude les résultats correspondant aux prélèvements effectués en novembre et décembre 1964. On y remarque un maximum correspondant aux rejets américains puis un palier dans la zone intertropicale avec une "bosse" zénithale et enfin une remontée surprenante aux hautes latitudes australes. Nous avons adjoint quelques valeurs correspondant à des dates différentes afin de comparer les écarts des valeurs dans l'espace et ceux dans le temps.
- Sur le graphique page 48 sont reportés les résultats correspondant aux prélèvements effectués avec la gracieuse collaboration d'AIR-FRANCE.

Compte tenu de l'altitude des vols et des dates on peut distinguer les prélèvements stratosphériques (○) et troposphériques (●). Toutefois une ambiguïté subsiste pour un prélèvement au Sud car nous n'avons pu avoir les résultats des sondages de la station brésilienne de RECIFE. Par ailleurs, c'est le prélèvement dont le traitement a donné le moins de krypton.

- Le graphique page 49 (haut) donne la répartition du Kr-85 en fonction de l'altitude fin octobre 1967 à la latitude de la base d'Aire-sur-L'Adour (Landes).

Le graphique page 49 (bas) représente la variation de la concentration atmosphérique du Kr-85 en fonction du temps en Terre-Adélie. Le graphique donnant la variation de la concentration en France est analysé page 48 et suivantes.

PRELEVEMENTS AU NIVEAU DE LA MER

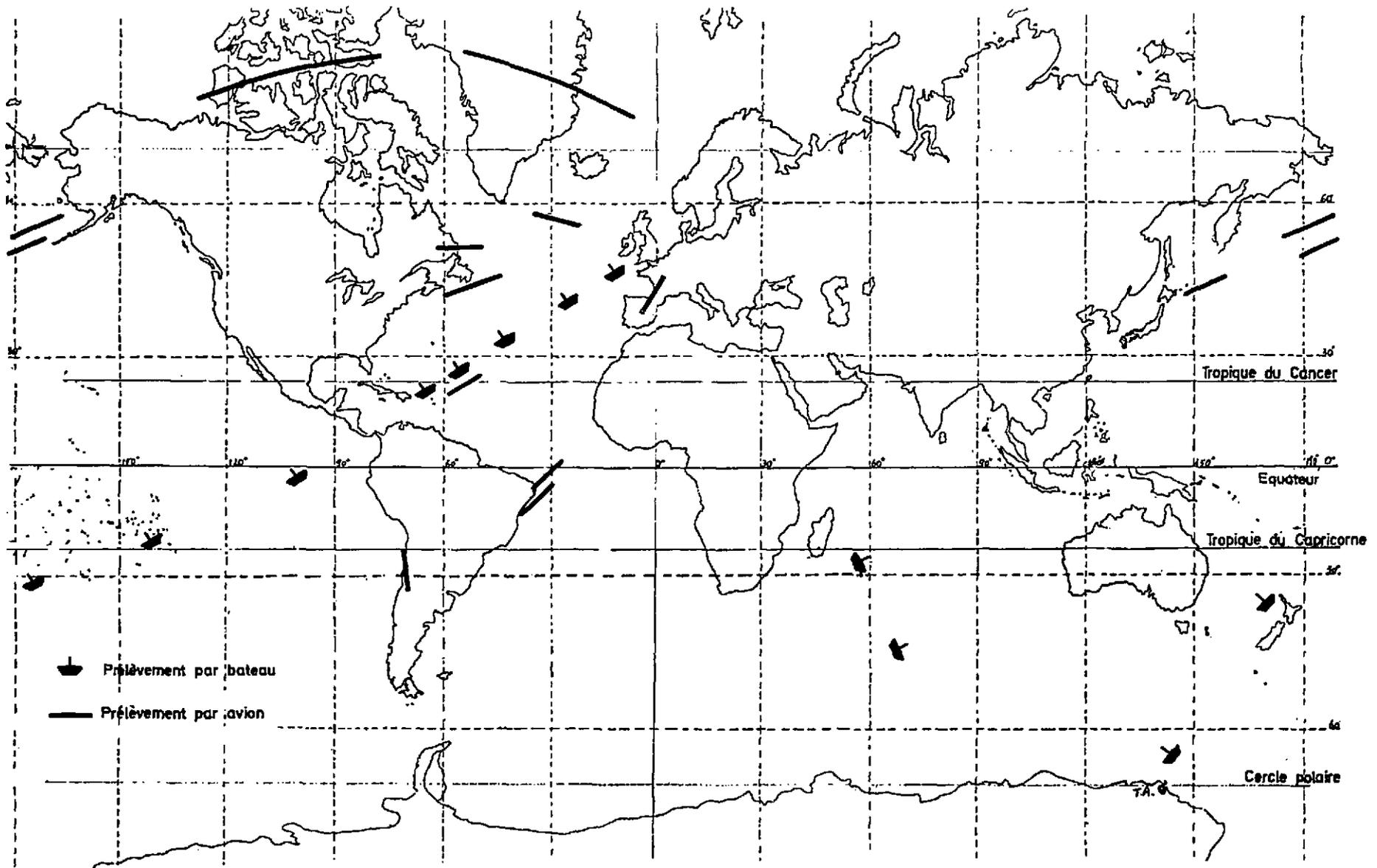
Lieu de prélèvement	Activité mesurée	$\frac{Kr}{Ar}$ en %	Volume en Kr	Act. spéc. mesurée	Act. spéc. à la date du prélèvement
THALA DAN (bateau) Nov. Déc. 64					
10°30 W-47° N	20,16-28,87	0,124-0,194	1,215-1,85	16,55-16,08	19,40
28° W-40° N	17,06	0,104	0,993	17,18	20,80
42° W-32°30 N	19,37	0,139	1,318	14,7	17,30
56° W-25° N	20,43	0,192	1,82	12,87	15,60
68° 30 W-18° N	30,25	0,219	2,09	14,46	17,45
79° 20 W-10° N	22,86	0,183	1,75	13,06	15,85
101° W - 3° S	34,37	0,275	2,645	12,98	15,75
143° 50 W - 22° S	17,87	0,121	1,15	15,55	18,15
174° W - 30° S	29,4	0,231	2,21	13,3	16,05
170° W - 35° S	24,35	0,252	2,41	10,1	12,18
142° E - 62° S	24,27	0,198	1,88	12,93	15,20
GALLIENI (bateau Déc. 64)	21,38	0,165	1,54	13,9	16,35
58° W - 30° S	23,17	0,178	1,68		
65° W - 45° S	31,8	0,288	2,805	11,35	13,25
TERRE - ADELIE					
1960	4,3 4,45	0,176 0,162	1,687 1,55	3,24 3,66	5,55 6,25
1961	41,23	0,361	3,47	11,9	17,7
Décembre 1964	34,12	0,221	2,11	16,3	19,81
7/3/1966	43,1	0,218	2,067	20,82	23,18
1/7/1966	64,5	0,177	2,605	24,7	27,2
28/10/1966	29,2-37,72	0,121-0,163	1,35-1,57	21,6-24,1	24,05
27/12/1966	19,17-36,07	0,092-0,159	0,885-1,53	21,78-23,7	23,8

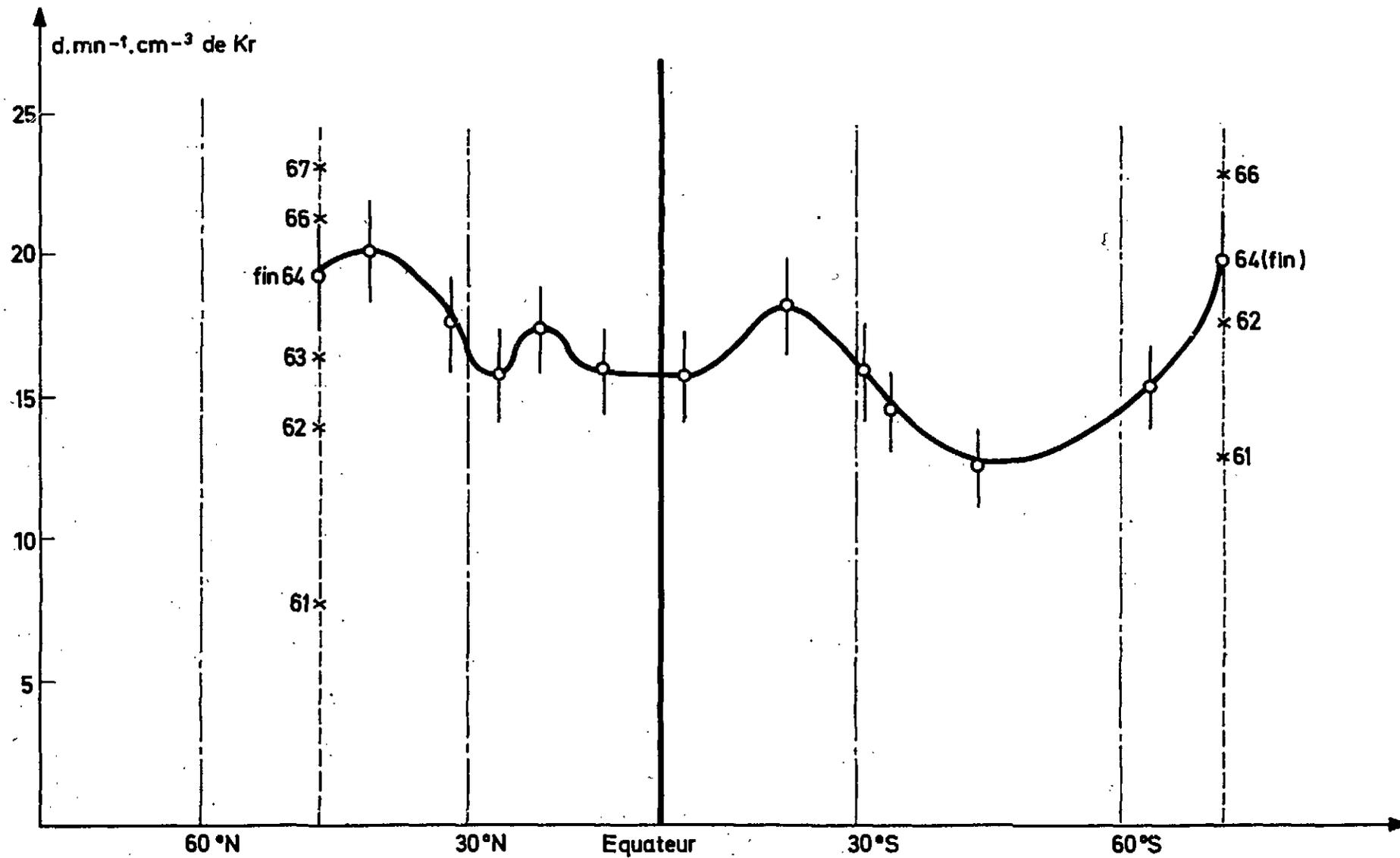
PRELEVEMENTS A \approx 11.000 METRES D'ALTITUDE

Lieu de prélèvement	Activité mesurée	$\frac{Kr}{Ar}$ en %	Volume de Kr	Act. spéc. mesurée	Act. spéc. à la date du prélèvement
Pte à PITRE-ORLY - 11,1 km 31/12/64. 53°W-24°N	34,95	0,245	2,315	15,09	17,92
ANC. HAM. 11,1 km. 10/12/64. 33°W - 77°N	31,58	0,175	0,162	19,45	24,3
RIO-MADRID 10,5 km 11/3/65. 33°W - 4° S	17,2	0,125	1,184	14,52	16,40
TOKYO-ANC 11,1 km 19/3/65. 177°W - 57° N	31,8	0,202	1,935	16,58	18,70
LAX. ORLY 11,7 km 3/4/65. 57°W - 53°N	16,87	0,102	0,967	17,43	19,55
RIO-MADRID 11,7 km 24/2/65 - 31°W 10° S	12,67	0,065	0,632	20,05	22,45
TOKYO-ANC. 11,1 km 1/12/65. 174°W 50°N	43,32 39,02	0,191 0,186	1,817 1,763	23,8 22,45	25,5
TOKYO-ANC. 11,1 km 14/5/66 - 157°W -44°N	37,34	0,218	2,055	18,17	19,0
TOKYO-ANC. 11,1 km 4/6/66 - 104°W - 80°N	63,5	0,314	2,96	21,12	23,1
NYC. ORLY - 11,7 km 25/6/66 -49°W - 45°N	35,56 34,42	0,205 0,185	1,96 1,83	18,3 19,2	19,1 20,0
Pte à PITRE - ORLY 10 km 55°W - 23°N	34,9	0,174	1,66	21,03	22,25

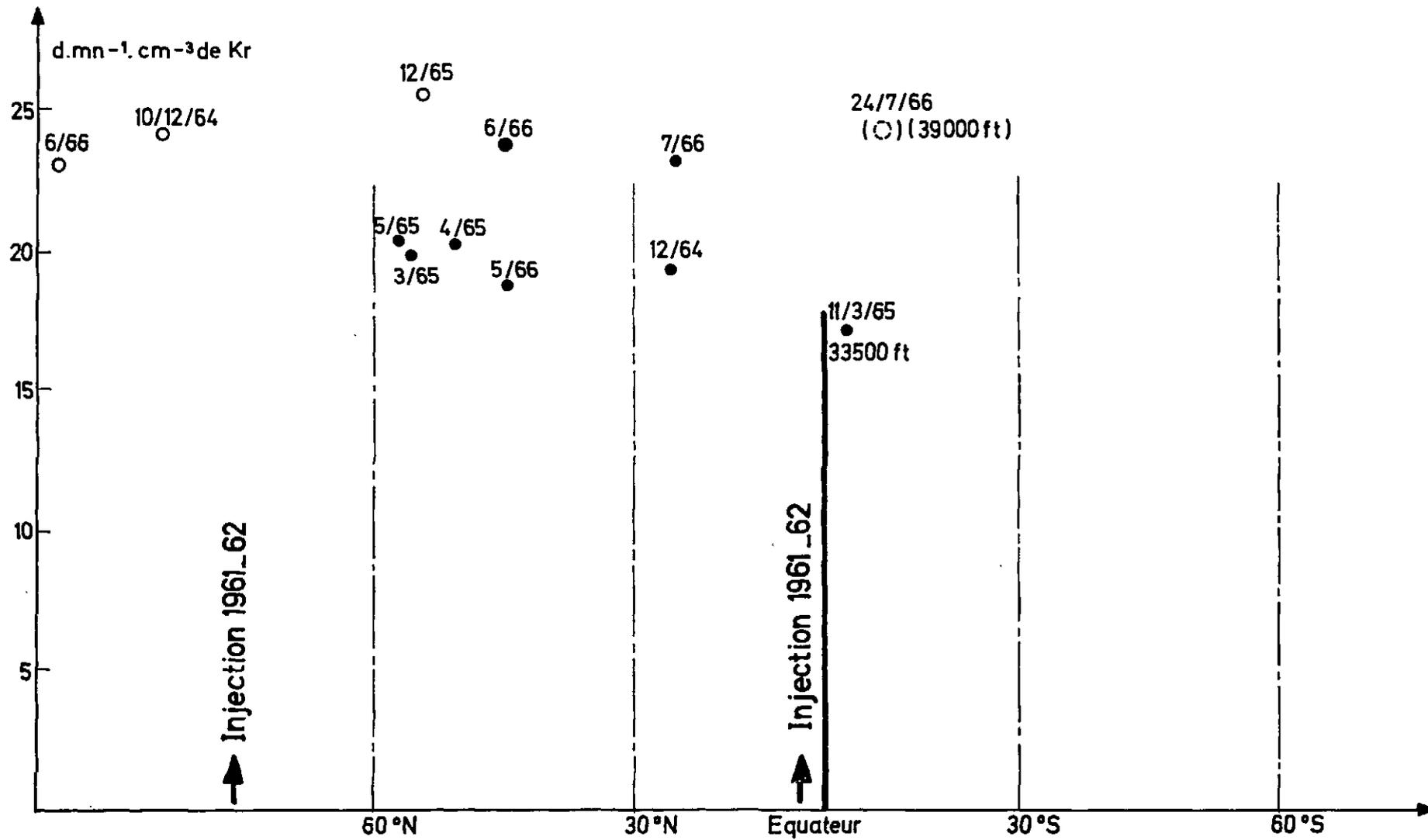
PRELEVEMENTS POUR UNE REPARTITION VERTICALE

Lieu de prélèvement	Activité mesurée	$\frac{Kr}{Ar}$ en %	Volume de Kr	Act. spéc. mesurée	Act. spéc. à la date du prélèvement
AIRE SUR L'ADOUR Fin octobre 1967					
Altitude \approx 1 000 mb	24,5	0,141	1,34	23,15	23,3
Altitude \approx 700 mb	29,5	0,156	1,48	24,8	25
Altitude \approx 300 mb	32	0,174	1,662	24,5	(25)
Altitude \approx 100 mb	9,1	0,050	0,475	24,4	24,6
Altitude \approx 15 mb	3,75	0,022	0,21	22,2	22,4

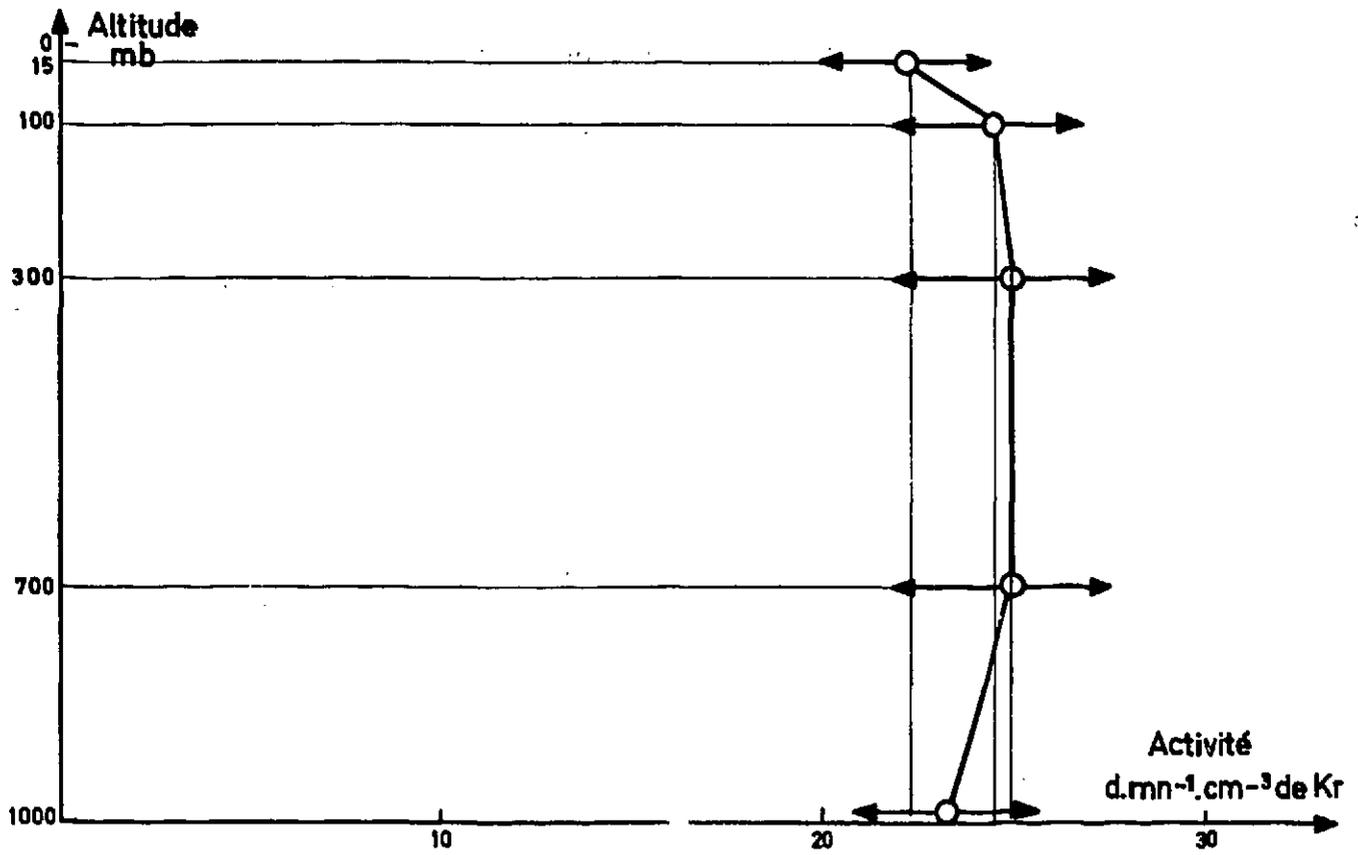




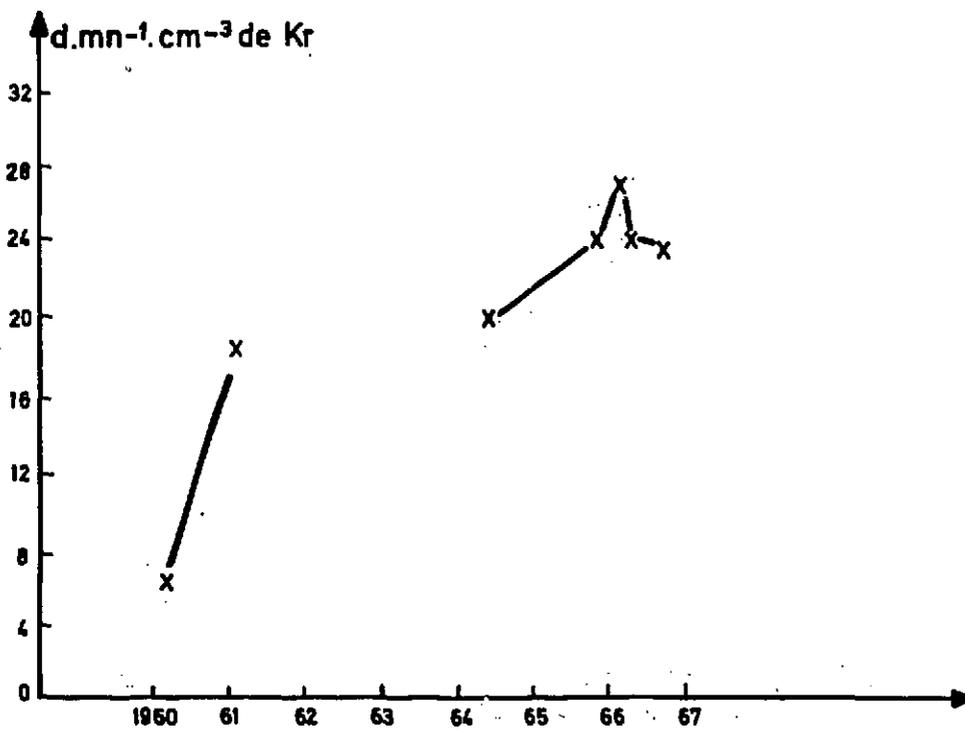
Répartition de la radio-activité spécifique du krypton en fonction de la latitude au niveau du sol en nov. et déc. 1964



Radio-activité spécifique du krypton à l'altitude de vol des "Boeing" ≈ 12.000 m



Répartition de la radioactivité du krypton en fonction de l'altitude en France (24-26 octobre 1967)



Evolution de la radioactivité du Kr en Terre Adélie

11-2. Premières déductions

Voici les déductions que nous tirons des résultats sur la répartition de la concentration en krypton-85, déductions que nous utiliserons ensuite.

1 - Une première constatation est la faible amplitude de la dispersion des valeurs mesurées dont les écarts extrêmes ne dépassent pas 25% des valeurs moyennes correspondantes ; la tendance actuelle à l'égalisation des valeurs résulte de l'arrêt de la production du Kr-85 d'origine explosive.

Cette tendance à une répartition uniforme sera admise pour les calculs du chapitre V, concernant l'évaluation du bilan du Krypton-85 présent et à venir.

Mais, quoique de faible amplitude, les différences des résultats peuvent être exploitées.

2 - Sur le graphique de répartition du Kr-85 en fonction de la latitude (graphique page 47) on remarque une zone centrale où la concentration semble à peu près constante. (Toutefois à la verticale du soleil il apparaît un point isolé où la concentration est plus élevée). Cette zone est approximativement limitée par les fronts subtropicaux (ceintures de hautes pressions).

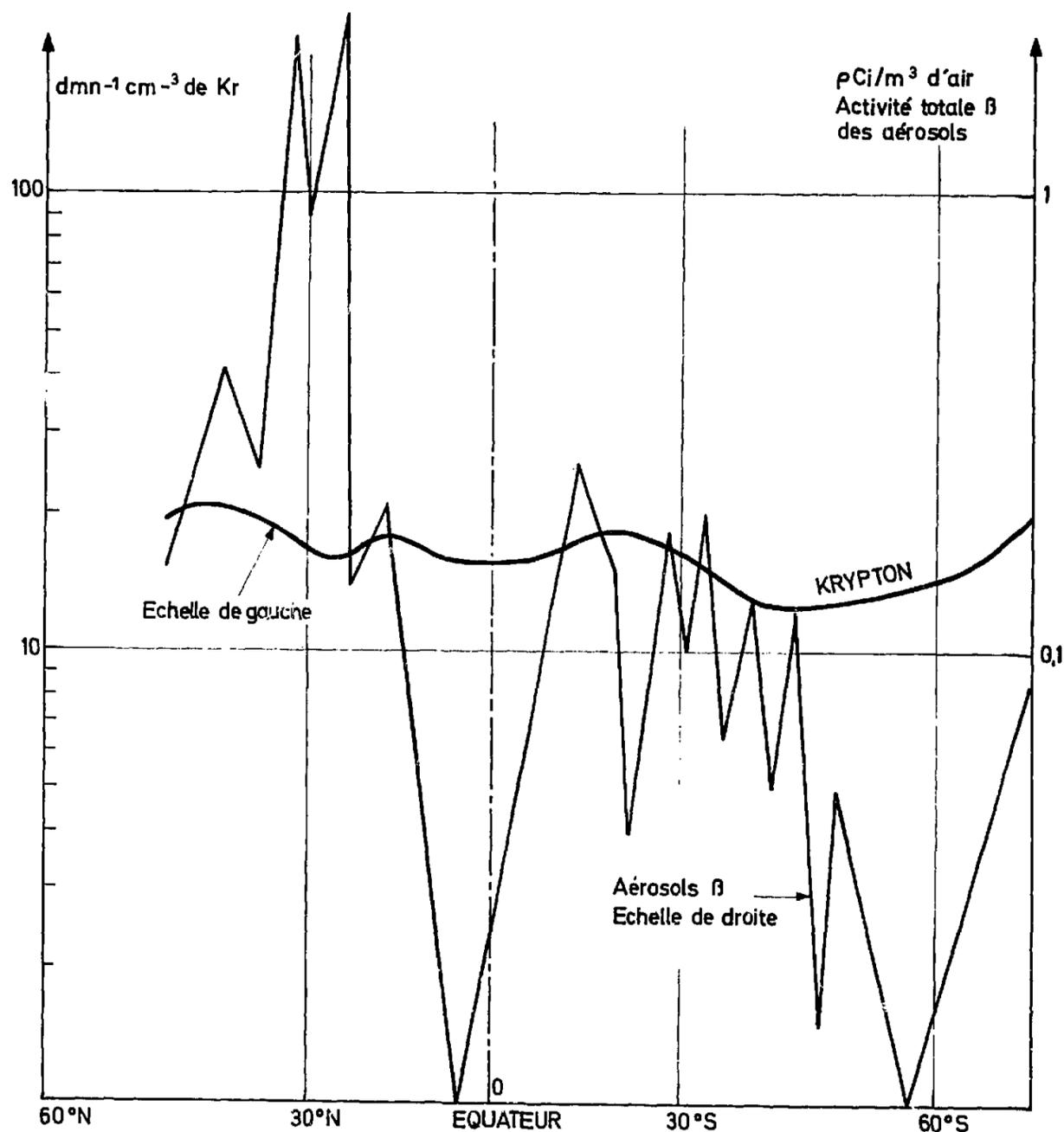
3 - Sur le même graphique on remarque la remontée de la concentration observée en 1964 aux hautes latitudes australes. Cette anomalie apparente est confirmée par les valeurs relevées à d'autres époques. Toutefois ce phénomène devrait s'atténuer car on observe actuellement une tendance à l'égalisation des concentrations en France et en Terre Adélie.

4 - Sur ce même graphique le décalage entre le maximum de la concentration situé vers 45° N et le minimum situé vers 45° S correspondrait à un retard de l'ordre de deux ans environ si l'on admet une évolution dans le temps parallèle en tous lieux dans la troposphère.

5 - En ce qui concerne les résultats des prélèvements à l'altitude de vol des "boeings" de l'ordre de 10 à 12 000 mètres on ne voit guère apparaître aucun autre regroupement que celui des mesures stratosphériques légèrement supérieures à une même époque aux mesures troposphériques mais qui tendent actuellement à s'égaliser.

6 - Le gradient vertical de la concentration en Kr-85 mesuré sur les prélèvements effectués fin octobre 1967 montre que les valeurs stratosphériques et troposphériques sont pratiquement égales alors que leur différence était de l'ordre de 30 % trois ans auparavant.

7 - La comparaison des valeurs obtenues simultanément pour la radioactivité spécifique de l'air due au krypton-85 et aux aérosols (voir les courbes de la page 52) traduit bien l'effet cumulatif dans le cas du krypton-85 et l'apport momentané dans le cas des aérosols. A l'équateur, les valeurs concernant les aérosols sont 250 fois inférieures à celles correspondant au front subtropical nord et la divergence des valeurs homologues entre le Kr-85 et les aérosols y est frappante.



Comparaison des répartitions méridiennes des radioactivités spécifiques du Kr.85 (dispersion ou rapport de la valeur la plus élevée à la plus faible : 1,3) et des aérosols (dispersion:250) au niveau de la mer sur le même itinéraire fin 1964

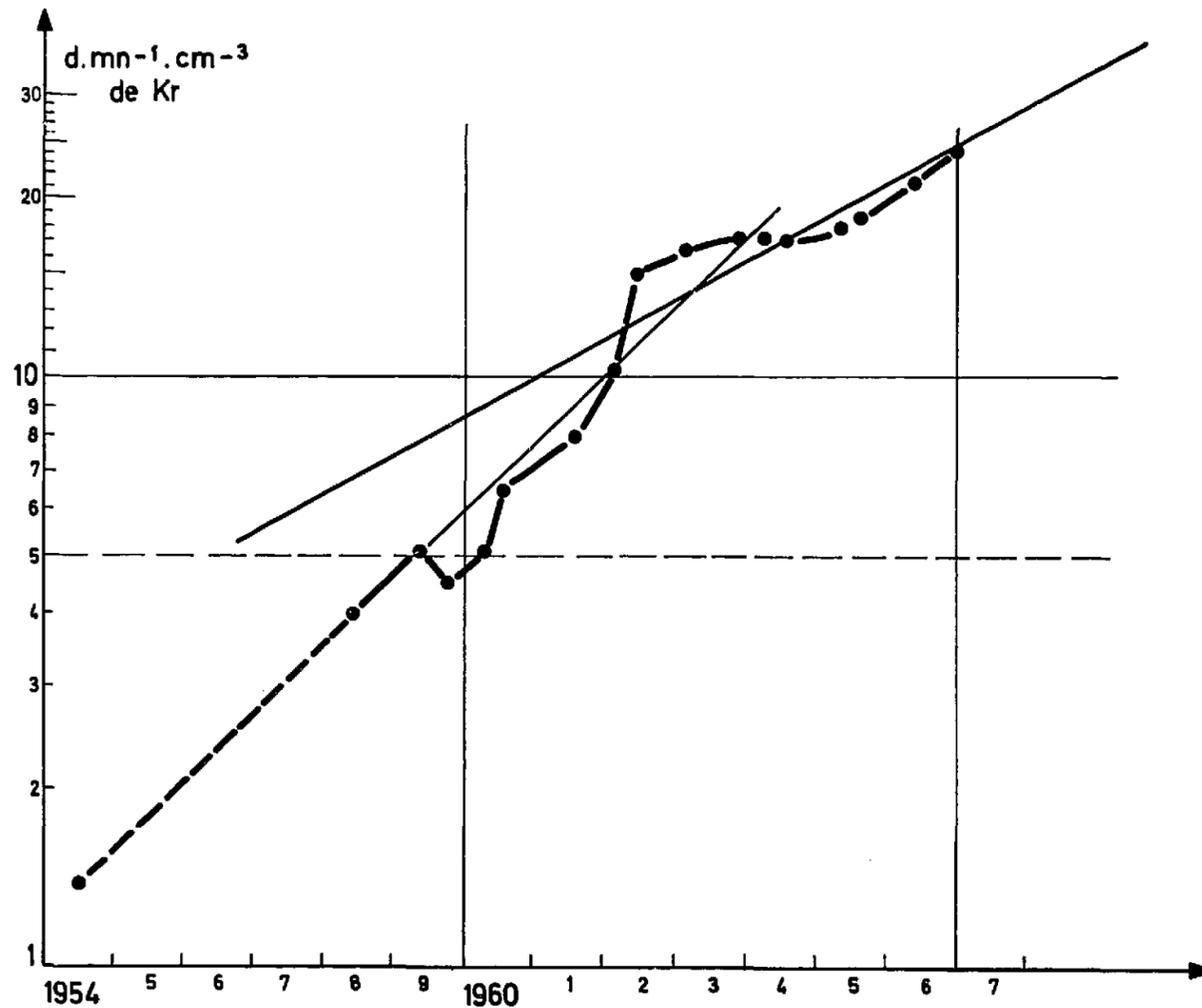
III - BILAN ACTUEL DU Kr-85 ATMOSPHERIQUE.

Remarques liminaires.

- 1 - Les conclusions de l'étude précédente permettent de considérer la distribution du Kr-85 comme uniforme dans la totalité de l'atmosphère, soit $5,1 \cdot 10^{18}$ kg.
- 2 - Comme le krypton dissous dans l'eau représente moins de 2 % du krypton atmosphérique et que l'isotope Kr-85 s'y trouve en général à une concentration isotopique beaucoup plus faible, nous négligerons la quantité de Kr-85 dissous dans l'eau.
- 3 - Nous négligerons la quantité de Kr-85 qui a été récupérée, notamment pour l'utiliser comme source. Il s'agit de quelques centaines de curies sur un total de quelque 10^7 curies.
- 4 - Pour affiner les estimations ultérieures il faudrait introduire des facteurs de correction de faibles valeurs, minorants en ce qui concerne la première remarque, majorants en ce qui concerne les deux suivantes. On peut admettre que ces facteurs se neutralisent.

La radioactivité atmosphérique du krypton obtenu par distillation de l'air liquide a été mesurée dès 1954 par H. DE VRIES [Bv-1]. En France elle est mesurée une fois par trimestre depuis 1958 par G. DELIBRIAS et al. et les résultats ont été publiés [Bd-1]. A titre personnel nous avons eu communication des plus récents dont la corrélation est satisfaisante avec les résultats que nous avons obtenus pour les prélèvements en France.

La courbe suivante qui représente l'évolution de la radioactivité spécifique du krypton en France traduit un décuplement les 9 premières années ; à partir de 1963 on peut admettre 13 à 14 ans pour la durée de décuplement.



Evolution de la radioactivité spécifique du krypton en France

Compte tenu des remarques liminaires on déduit des valeurs observées en France une estimation de la quantité totale du krypton-85 atmosphérique. Cette estimation est représentée par la courbe "K" de la figure page 60.

Mais le krypton-85 provient :

- des explosions nucléaires.
- du traitement des combustibles des centrales nucléaires qui produisent de l'électricité.
- du traitement des combustibles des piles uniquement plutonigènes.

ANALYSE DES SOURCES DE Kr-85.

Reprenons et analysons ces sources de Kr-85.

a) On peut admettre que la totalité du Kr-85 produit par les explosions nucléaires est entrée dans l'atmosphère ; celui engendré dans les explosions sous-marines ou souterraines est entré dans l'atmosphère avec un certain retard ; celui engendré dans les fortes explosions aériennes est entré directement dans la stratosphère.

Une explosion nucléaire du type "fission" de 1 kilotonne équivalent TNT produit * environ $4 \cdot 10^{20}$ atomes de krypton-85.

* Un kilotonne de trinitrotoluène peut dégager 10^{12} calories = $4,18 \cdot 10^{12}$ J.

1 fission \approx 200 MeV = $200 \times 1,6 \cdot 10^{-13}$ J = $3,2 \cdot 10^{-11}$ J.

$$1 \text{ kt (TNT)} = \frac{4,18 \cdot 10^{12}}{3,2 \cdot 10^{-11}} = 1,31 \cdot 10^{23} \text{ fissions}$$

comme 100 fissions d'²³⁵U donnent en moyenne 0,293 noyaux de Kr-85

$$1 \text{ kt (TNT)} = 1,31 \cdot 10^{23} \times 0,293 \cdot 10^{-2} = 3,92 \cdot 10^{20} \text{ atomes de Kr-85}$$

et $3,92 \cdot 10^{20} \times \frac{0,693}{10,4 \times 3,16 \cdot 10^7} \times \frac{1}{3,7 \cdot 10^{10}} = 25,6 \text{ Ci}$

$$1 \text{ kt (TNT)} \longrightarrow 3,92 \cdot 10^{20} \text{ atomes de Kr-85} \approx 25,6 \text{ Ci}$$

On peut donc dresser le tableau suivant à partir de l'inventaire publié par le Comité scientifique de l'O.N.U. [Bn-2]. Nous avons adjoint les productions de quelques autres produits de fission avec lesquels des parallèles ou des divergences seront évoqués.

	Energie produite en Mtonne		Nbre d'atomes produits		Radioactivité due aux explosions en MCi			
	par fission	Totale	de Kr-85 en 10 ²⁴	de C-14 en 10 ²⁶	Kr-85	C-14	Sr-90	Cs-137
1945-51	0,52	0,62	0,20	1	0,012	0,01	0,052	0,088
1952-54	38	60	14,9	61	0,76	0,6	3,8	6,45
1955-56	13	28	5,1	39	0,26	0,4	1,31	2,22
1957-58	40	85	15,7	142	0,80	1,42	4	6,8
1959-60	0,07	0,07		0,1	0,002	0,001	0,007	0,012
1961	25	120	9,80	200	0,50	2	25	4,25
1962	76	217	29,3	350	1,52	3,5	7,6	12,9
1945-62	environ 200	≈ 510	≈ 75	≈ 800	≈ 4	≈ 8	≈ 20	≈ 33

La contribution des explosions nucléaires dans le bilan du krypton-85 se trouve résumée par la courbe "E" de la figure de la page 60. Sur cette courbe, tracée en coordonnées semi-logarithmiques, la pente après chaque période d'essais nucléaires représente la décroissance radioactive du Kr-85. Les injections correspondant à chaque période d'essai sont représentées par un double segment vertical.

Les positions géographiques des champs de tirs sont les suivantes :

ETATS-UNIS

Champ de Tir du Nevada, USA	31°N. 116°O
Polygone d'Eniwetok, Pacifique :	
Eniwetok	11°N. 162°E
Bikini	17°N. 165°E
Ile Johnston, Pacifique	17°N. 169°O
Ile Christmas, Pacifique	2°N. 157°O

GRANDE-BRETAGNE

Iles Monte-Bello, Australie	20°S. 115°E
Woomera, Australie	31°S. 137°E
Polygone de Maralinga, Australie	30°S. 131°E
Ile Christmas, Pacifique	2°N. 157°O
Polygone du Nevada (Etats-Unis)	37°N. 116°O

U.R.S.S.

Champ de Tir de l'Arctique	75°N. 55°E
(Nouvelle Zemble)	
Champ de Tir de Sibérie	75°N. 78°E
Semipolatansk	51°N. 80°E
Mimsk	54°N. 27°E

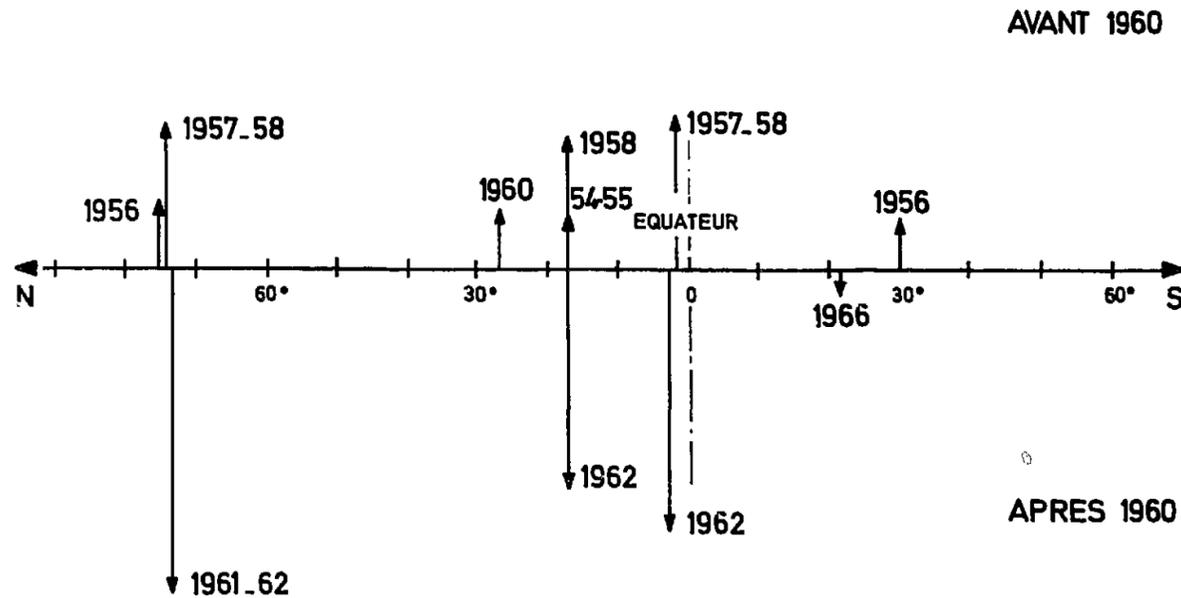
FRANCE

Reggane, Sahara	27°N. 0°
In Ekker, Sahara	25°N. 5°E
Pacifique Muroroa	21°S. 142°O

CHINE

Désert de SIN KIANG	46°N. 93°E (?)
---------------------	----------------

Comme il faut signaler que les essais anglais les plus puissants se sont effectués aux Iles Christmas on voit que la quasi-totalité des explosions s'est effectuée dans l'hémisphère Nord, celles de la période 52-54 plutôt vers le 17°N pour les américains et vers les 50°N pour les russes, celles de 1957-58 plutôt vers les 10°N pour les américains et vers 75°N pour les russes et celles de 1961-62 plutôt vers 2°N pour les américains et 75°N pour les russes. Très approximativement on a la répartition ci-dessous :

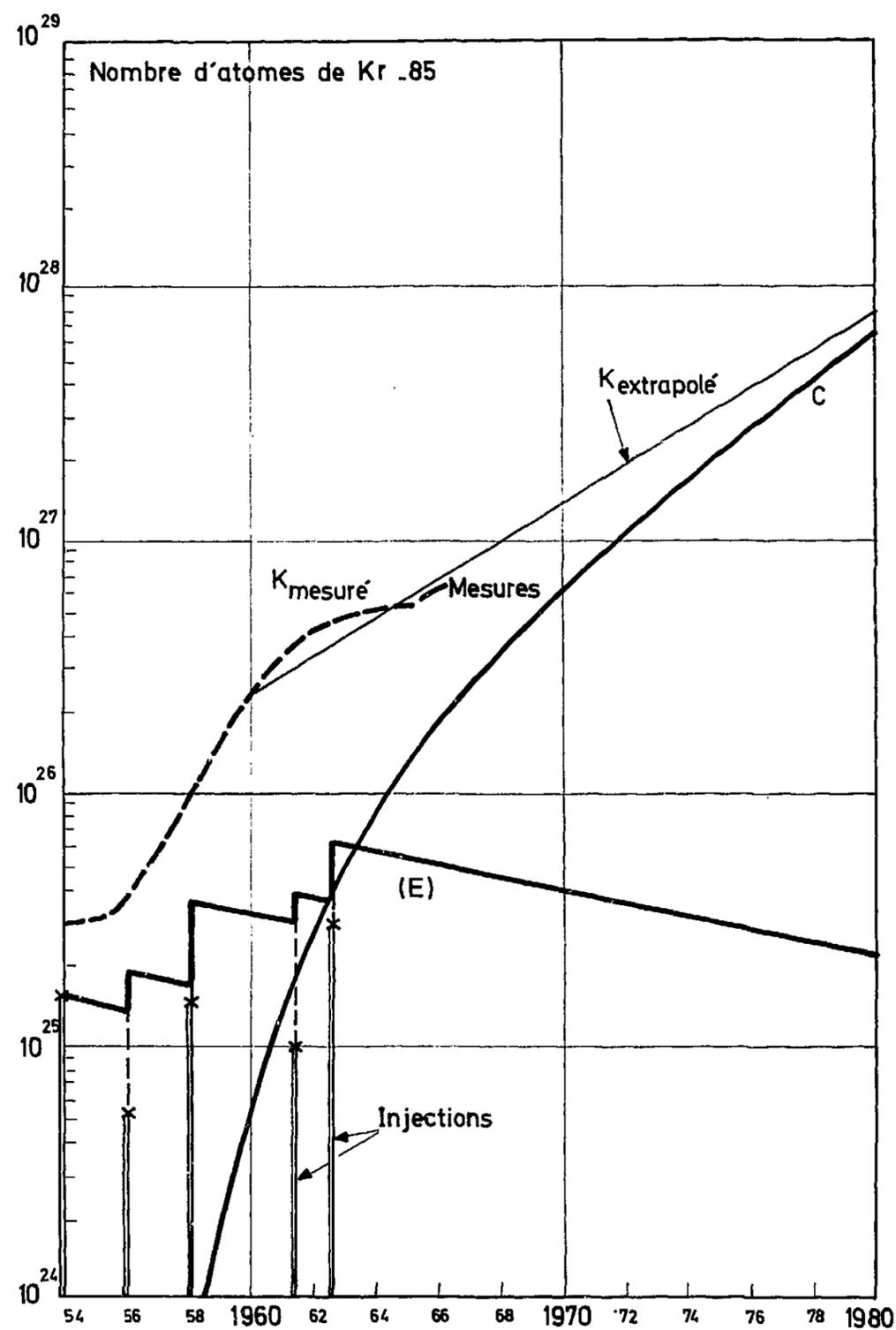


Répartition méridienne des explosions nucléaires

b) La contribution des centrales nucléaires dans le bilan actuel du krypton-85 est analysée au début de l'annexe [E]. Elle se traduit par la courbe "C" de la figure de la page 60 ou l'on voit qu'elle atteint actuellement le tiers du total, mais qu'elle tend à devenir prépondérante.

c) A partir du nombre d'atomes de Kr-85 existant actuellement dans l'atmosphère on est tenté d'avancer une estimation approximative de la production mondiale de Pu-239.

En admettant que pour 100 fissions on obtient actuellement en moyenne une soixantaine de noyaux de Pu-239 (valeur qui tient compte de la petite quantité de Pu-239 qui disparaît par fission dans les réacteurs) on obtient le chiffre d'une soixantaine de tonnes pour la production totale mondiale. Rappelons qu'on estime à 2 tonnes de Pu-239 environ le chargement initial nécessaire pour un seul des futurs réacteurs surgénérateurs à neutrons rapides d'une puissance de l'ordre du gigawatt électrique.



IV INTERPRETATION DES RESULTATS SUR LE KRYPTON-85

Rappelons que le krypton-85, gaz inerte radioactif de période 10,4 ans, une fois entré dans l'atmosphère ne disparaît que par décroissance radioactive, sa solubilité dans l'eau étant négligeable. La quasi-totalité des sources (> 90%) se trouve au sol dans la zone 45°-55° de latitude Nord ; le krypton-85 d'origine explosive a été principalement injecté dans la stratosphère par les fortes explosions.

Ces caractéristiques font du krypton-85 un traceur qui permet d'étudier la circulation méridienne troposphérique à l'échelle de l'année et dont l'intérêt primordial réside dans le fait que les résultats sont établis sans utiliser les paramètres météorologiques tels que composantes des vitesses des vents, repris dans la plupart des études sur la circulation.

IV - 1. Interprétation des mesures de prélèvements effectués au niveau de la mer.

La répartition de la concentration en Kr-85 en fonction de la latitude en novembre-décembre 1964 est représentée figure page 47 et figure 2 page suivante. Pour l'interprétation des résultats, nous admettons les hypothèses suivantes :

1°, le brassage zonal étant beaucoup plus rapide que le brassage méridien, nous admettons l'homogénéité zonale du Kr-85 qui, contrairement aux aérosols, est insensible aux précipitations et à leurs fluctuations. (cf p 10).

2°, Les concentrations stratosphériques du Kr-85 en 1964 n'étant que légèrement supérieures aux concentrations troposphériques et le bilan troposphérique étant très supérieur au bilan stratosphérique, nous considérons comme prépondérante, la diffusion troposphérique à partir de la zone des sources principales (45° - 55°N) et, en première approximation, nous négligeons les échanges stratosphère troposphère. *

3°, Pour l'étude de la distribution des concentrations spécifiques nous utilisons la répartition massique de l'atmosphère, de la troposphère et de la stratosphère en fonction de la latitude représentée par la figure 1 page 63 : l'ordonnée est proportionnelle à la longueur du parallèle correspondant pour la limite de l'atmosphère ; elle est multipliée par l'altitude de la tropopause, exprimée en bar, pour la limite de la troposphère.

Dans ces conditions, nous pouvons découper la troposphère en "n" cellules limitées par des plans verticaux longitudinaux et pour chaque cellule "i", nous pouvons écrire le bilan du krypton - 85 à l'instant t. En appelant $E_i(t)$ la source de Kr-85, N_i le nombre d'atomes de Kr-85 présents, $c_i(t)$

* D'après les valeurs des échanges entre stratosphère - troposphère Nord calculées par plusieurs auteurs [Bn-3 et Bl-8] celles-ci ne représentent que quelques pourcents (3 à 10 % selon les auteurs) des valeurs que nous obtenons pour les échanges de la troposphère Nord, et de la troposphère intertropicale. Les échanges entre stratosphère - troposphère intertropicales seraient beaucoup plus faibles.

REPARTITION MASSIQUE en % d'atmosphère soit de $5 \cdot 10^{18}$ kg

Tropo. polaire Nord ou Sud (Eté)	4,8	Strato polaire Nord ou Sud (Eté)	2,1
" " " " (Hiver)	0,6	" " " " (Hiver)	6,3
" tempérée Nord ou Sud	13,6	" tempérée Nord ou Sud	4,5
" Nord ou Sud (moyenne)	16,3	" Nord ou Sud (moyenne)	8,7
" Inter-tropicale	46,5	" Inter-tropicale	3,3
" totale	79,2	" totale	20,8

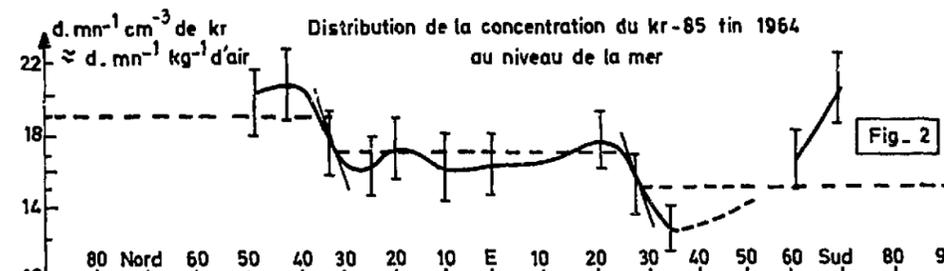
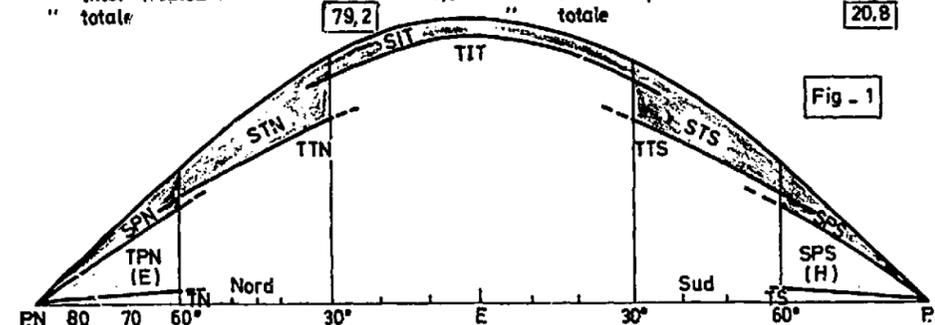


Fig-2 bis

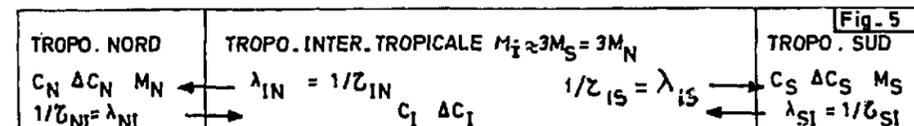
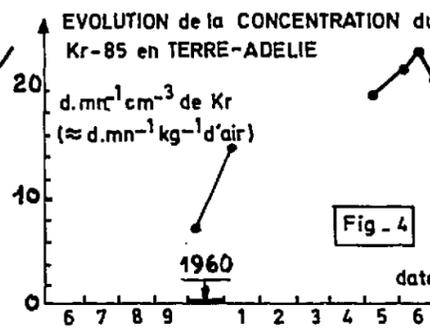
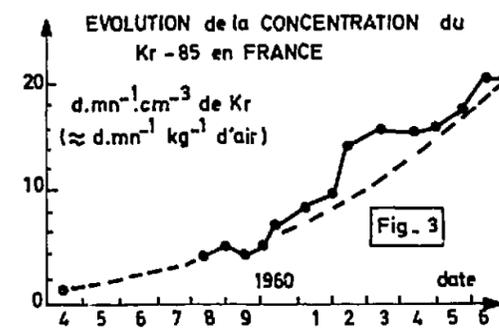
Schématiquement diffusion à travers un plan vertical longitudinal qui augmente de surface de 45° (cos 45° ≈ 0,7) à 30° (cos 30° ≈ 0,85)

Les écarts portant sur une seule valeur ne peuvent être pris en considération

quasi homogénéité

Fort gradient

Remontée très marquée



... La concentration du Kr-85 à l'instant t , λ_{ij}^* le coefficient de transfert de la cellule "i" à une cellule "j" ou probabilité de passage par unité de temps de la cellule "i" à la cellule "j" à travers le plan de séparation des cellules "i" et "j" et λ_{ji} le coefficient inverse, λ la constante radioactive du Kr-85 et β un coefficient qui dépend des unités, le bilan du nombre d'atomes N_i de Kr-85 dans la cellule "i", se traduit par :

$$dN_i = E_i(t)dt - \sum_{j=1}^{j=n} \lambda_{ij} \beta M_i c_j(t) dt + \sum_{j=1}^{j=n} \lambda_{ji} \beta M_j c_j(t) dt - N_i \lambda dt = \beta M_i dc_i(t)$$

Les "n" équations qu'on peut ainsi écrire constituent n-1 équations indépendantes car l'une quelconque est égale à la somme des autres. On adjoint les n-1 équations telles que $\lambda_{ij} M_j = \lambda_{ji} M_i$ qui traduisent l'égalité des masses d'air échangées entre cellules. On peut ainsi déterminer à chaque instant les 2(n-1) coefficients λ_{ij} en résolvant ce système de 2(n-1) équations pour lequel un programme de calcul électronique pourrait être établi si le nombre des mesures le justifiait.

La courbe de distribution des valeurs actuellement déterminées, représentée figure 2 page 63 et schématisée figure 2 bis, suggère un découpage de la troposphère en 3 cellules limitées par les plans verticaux longitudinaux des latitudes correspondant aux points inflexionnels de la courbe et pour lesquelles on peut estimer une concentration moyenne. Ces 3 cellules sont approximativement constituées par les troposphères Nord et Sud et la troposphère intertropicale (voir figure 5 page 63)

En passant aux différences finies ΔN_i sur un an (1964), en prenant pour les $c_i(t)$ des valeurs moyennes C_i , et en négligeant la décroissance radioactive qui ne représente que quelques pourcents nous obtenons :

$$\Delta N_i = \beta M_i \Delta C_i = E_i - \lambda_{ij} \beta M_i C_j + \lambda_{ji} \beta M_j C_j$$

Comme, par hypothèse, la cellule nord seule contient les sources, E_N est égal à $\sum \beta M_i \Delta C_i$.

On a ainsi pour les 3 cellules Nord (N), Intertropicale (I) et Sud (S) :

$$\begin{cases} M_N \Delta C_N = (M_N \Delta C_N + M_I \Delta C_I + M_S \Delta C_S) - \lambda_{NI} M_N C_N + \lambda_{IN} M_I C_I \\ M_I \Delta C_I = \lambda_{NI} M_N C_N - \lambda_{IN} M_I C_I + \lambda_{SI} M_S C_S - \lambda_{IS} M_I C_I \\ M_S \Delta C_S = \lambda_{SI} M_S C_S - \lambda_{IS} M_I C_I \end{cases}$$

La 3e équation est la somme des 2 premières.

Pour déterminer les 4 inconnues λ_{NI} , λ_{IN} , λ_{IS} , λ_{SI} en fonction de M_N , M_I , M_S et des paramètres expérimentaux C_N , C_I , C_S et ΔC_N , ΔC_I , ΔC_S , nous adjoignons les équations de conservation de masse dans chaque cellule soit :

$$\begin{cases} \lambda_{NI} M_N = \lambda_{IN} M_I \\ \lambda_{SI} M_S = \lambda_{IS} M_I \end{cases}$$

Les données que nous possédons nous permettent de chiffrer ces paramètres sauf les deux derniers ΔC_I et ΔC_S qui correspondent à des stations telles que Dakar et Kerguelen pour lesquelles nous n'avons pas de prélèvements sur une année. Pour estimer ces valeurs nous faisons l'hypothèse que la variation relative de la concentration dans les cellules (I) et (S) suit celle de la cellule source (N) avec des retards respectifs ψ_I et ψ_S fonction des durées de séjour $\tau_{NI} = 1/\lambda_{NI}$ et $\tau_{IS} = 1/\lambda_{IS}$ et tels que

$$\psi_I = \frac{\tau_{NI} + \tau_{IS}}{2} \quad \text{et} \quad \psi_S = \frac{\tau_{NI} + \tau_{SI}}{2} + \tau_{IS}$$

* Cette probabilité est égale à l'inverse de la durée de séjour. La durée de séjour de molécules dans un espace déterminé est le temps après lequel le nombre des molécules initialement présentes dans cet espace a diminué d'un facteur "e".

Application numérique avec les données actuellement disponibles

On lit sur le tableau de la figure 1 que $M_I \approx 3M_N = 3M_S$

Les valeurs moyennes des concentrations dans chaque cellule pourraient être obtenues avec une estimation bien meilleure si nous disposions d'un plus grand nombre de mesures.

Nous prenons $C_N = 19$ en tenant compte de l'importance probable des rejets russes dans la partie de la troposphère nord pour laquelle nous n'avons pas de mesure; nous prenons $C_I = 17$ et $C_S = 15$, car nous estimons que les valeurs polaires sont dues à des injections stratosphériques qui contaminent fortement la partie polaire de la troposphère à cause de sa faible masse.

On voit sur la figure 3 que $\Delta C_N = 0$ en 1964 et en ajustant par répétition les valeurs ψ_I et ψ_S on prend pour ΔC_I et ΔC_S les valeurs respectives 1 et 3 qui correspondent à $\psi_I = 14$ mois et $\psi_S = 30$ mois.

Avec ces valeurs numériques le système des 4 équations devient :

$$\begin{cases} (1) M_N \Delta C_N = (M_N \Delta C_N + M_I \Delta C_I + M_S \Delta C_S) - \lambda_{NI} M_N C_N + \lambda_{IN} M_I C_I \\ (2) M_S \Delta C_S = \lambda_{IS} M_I C_I - \lambda_{SI} M_S C_S \\ (3) \lambda_{NI} M_N = \lambda_{IN} M_I \\ (4) \lambda_{IS} M_I = \lambda_{SI} M_S \end{cases}$$

En remplaçant les termes connus

$$M_I = 3M_N = 3M_S = 3(a); \text{ (mais "a" disparaît)}$$

$$C_N = 19 \quad C_I = 17 \quad C_S = 15$$

$$\Delta C_N = 0 \quad \Delta C_I = 1 \quad \Delta C_S = 3$$

$$\text{On obtient (1) } 0 = (0+3+3) - 19\lambda_{NI} + 3 \times 17\lambda_{IN}$$

$$(2) 3 = 3 \times 17\lambda_{IS} - 15\lambda_{SI}$$

$$\lambda_{NI} = 3\lambda_{IN}$$

$$3\lambda_{IS} = \lambda_{SI}$$

Les valeurs des λ sont donc :

$$\lambda_{IN} = 1 \text{ an}^{-1} \quad \tau_{IN} = 1 \text{ an}$$

$$\lambda_{NI} = 3 \text{ an}^{-1} \quad \text{soit} \quad \tau_{NI} = 1/3 \text{ an} = 4 \text{ mois}$$

$$\lambda_{IS} = 1/2 \text{ an}^{-1} \quad \tau_{IS} = 2 \text{ ans}$$

$$\lambda_{SI} = 3/2 \text{ an}^{-1} \quad \tau_{SI} = 2/3 \text{ an} = 8 \text{ mois}$$

$\tau_{NI} = 4$ mois signifie qu'après 4 mois il ne reste plus dans la cellule N que $1/e$ des molécules initialement présentes et qui sont passées dans la cellule I.

Comme la cellule N a une masse de $5 \cdot 10^{18} \times \frac{16,3}{100}$ et qu'il en est passé $(1-1/e)$ à travers la surface de séparation des deux cellules (front tropical) on peut dire que : en 4 mois une masse $5 \cdot 10^{18} \times \frac{16,3}{100} \times \frac{e-1}{e} \approx 5 \cdot 10^{17}$ kg a traversé le front subtropical.

Ainsi les valeurs des concentrations en Kr-85 actuellement disponibles permettent d'avancer les estimations suivantes :

Les durées moyennes de séjour dans les cellules Nord et Sud sont

$\tau_{NI} = 4$ mois et $\tau_{SI} = 8$ mois respectivement.

AUTREMENT DIT, LES MASSES D'AIR QUI TRAVERSENT PAR AN DANS LES DEUX SENS LA SURFACE DE SEPARATION DES CELLULES NORD ET SUD ET DE LA CELLULE INTERTROPICALE SONT RESPECTIVEMENT EGALES A $\frac{3}{10}$ ET $\frac{3}{20}$ DE LA MASSE TOTALE DE L'ATMOSPHERE.

Les durées de séjour dans la cellule intertropicale en ce qui concerne les échanges avec les cellules Nord et Sud sont respectivement de 1 an et 2 ans.

En première approximation, nous avons seulement considéré la diffusion troposphérique horizontale du krypton -85 à partir de la zone des sources principales terrestres. Mais pour expliquer les valeurs de la concentration observées en Terre Adélie nous sommes amenés à considérer qu'elles sont perturbées par des injections stratosphériques. Toutefois il faut remarquer que la troposphère polaire représente une petite partie de l'atmosphère de l'ordre du pourcent (voir figure 1 et tableau page 63) qu'elle est moins importante en masse que la stratosphère polaire et qu'une injection d'air stratosphérique contaminé par du Kr-85 d'origine explosive suffit pour augmenter notablement les valeurs de la concentration en Kr-85 de l'air troposphérique sans "vider" sensiblement la stratosphère.

L'importance des valeurs relevées fin 1964 est confirmée en 1965 et 1966 (voir fig. 4 page 63) mais la tendance à l'égalisation avec les valeurs stratosphériques et troposphérique Nord se confirme actuellement puisqu'il n'y a pratiquement plus d'explosion nucléaire.

On observe un phénomène analogue de remontée des valeurs dans la troposphère polaire sur la distribution des aérosols en fonction de la latitude - [B1- 6 et figure page 52]

Toutefois, à cause du petit nombre de mesures sur le Kr-85 actuellement disponible, un bilan des injections stratosphériques dans la troposphère polaire antarctique ne peut être établi.

A l'avenir nous pensons qu'on devrait voir apparaître la prépondérance des valeurs troposphériques nord mais il est possible que, tout en restant inférieures à ces dernières, les valeurs polaires australes restent supérieures aux valeurs observées aux moyennes latitudes sud. On en concluerait que le transfert de la troposphère nord à la troposphère polaire sud, via la stratosphère, se ferait avec un coefficient de dilution plus faible et plus rapidement que par le transit à travers l'immense réservoir intertropical.

Une troisième éventualité qui paraît surprenante se traduirait par des valeurs polaires australes supérieures à celles observées dans la troposphère nord. Il faudrait alors admettre qu'une grande partie du krypton-85 produit au niveau du sol passe plus facilement et plus rapidement dans la stratosphère qu'il ne diffuse dans la troposphère et qu'il y a ensuite passage de la contamination de la stratosphère au niveau du sol polaire austral.

IV - 2 - Interprétation des mesures des prélèvements stratosphériques

L'étude de la concentration en Kr-85 ne peut actuellement apporter aucune contribution à celle de la circulation stratosphérique car les données sont trop peu nombreuses pour estimer un gradient de temps et le gradient d'espace est très faible (il va augmenter à l'avenir.)

Mais le bilan du Kr-85 stratosphérique peut être interprété.

Quoiqu'il y ait actuellement tendance à l'égalisation des valeurs de la concentration en Kr-85, nous avons vu que celles des dernières années concernant la stratosphère nord étaient alors supérieures à celles de la troposphère nord. C'était les explosions atomiques aériennes de forte puissance qui avaient ainsi contaminé la stratosphère. Dans ces conditions les échanges entre stratosphère et troposphère ne pouvaient que tendre à diminuer la concentration stratosphérique en krypton-85 (voir remarque page 70)

A titre indicatif, car une simple transposition n'est pas possible, signalons que vers la fin 1964, date à laquelle nous effectuons une évaluation pour le krypton-85 stratosphérique, on retrouvait dans la troposphère une quantité de $^{14}\text{CO}_2$ d'origine explosive environ 3 fois supérieure à celle qui se trouvait dans la stratosphère.

Donc le bilan du krypton-85 d'origine explosive à partir des valeurs stratosphériques ne peut donner qu'une valeur inférieure aux quantités réellement produites par les explosions atomiques. Pourtant ce bilan conduit à environ $1,8 \cdot 10^{26}$ atomes* de krypton-85 alors que celui déduit des données retenues par le Comité scientifique de l'O. N. U. [Bn-2 et page 56] pour la totalité des explosions conduit seulement à environ $0,6 \cdot 10^{26}$ atomes de krypton-85 d'origine explosive en fin 1964 (voir courbe "E" de la page 60).

* Pour 23 désintégrations par minute et par cm^3 observées dans le krypton stratosphérique en fin 1964 on obtient $\approx 25 \text{ d.mn}^{-1} \text{ kg}$ d'air stratosphérique soit $25 \times 1 \cdot 10^{18}$ désintégrations par minute dans toute la stratosphère ($1 \cdot 10^{18} \text{ kg}$) Cette activité du Kr-85 correspond à ($A = \lambda N$)

$$25 \times 1 \cdot 10^{18} \times \frac{10,4 \times 0,5 \cdot 10^6}{0,7} \text{ atomes soit } \approx 1,8 \cdot 10^{26} \text{ atomes de Kr-85}$$

On est donc conduit à supposer :

- Soit une sous-estimation des puissances explosives développées par fission : Les valeurs adoptées sont essentiellement basées sur le Sr-90 et peuvent être entachées d'une erreur importante.
- Soit un rendement de fission du Kr-85 nettement supérieur dans le cas des explosions à celui déterminé en pile ($\rho = 0,293$ % pour l'U-235) et qui pourrait même dépasser celui obtenu dans le cas de fission d'U-235 avec des neutrons de 14 MeV ($\rho = 0,42$ %).
- Soit une conjugaison des faits précédents.

Par ailleurs, le gradient vertical établi à partir des prélèvements effectués fin octobre 1967 (voir figure page 49) montre que les valeurs stratosphériques n'ont guère changé depuis 1964. Les valeurs troposphériques ont augmenté de 30 % environ pendant cette période et la répartition du krypton-85 en fonction de l'altitude est actuellement quasi homogène.

Remarque : D'après M. J. LABEYRIE, il pourrait y avoir une alimentation de la stratosphère en krypton-85 par le processus suivant :

Par un effet de tunnel thermique à travers la troposphère, les effluents gazeux des usines de traitement de combustibles irradiés entreraient dans la stratosphère à cause de l'ascendance qui correspond aux sources chaudes que constituent les continents (où se trouvent les usines).

V - PROSPECTIVE DU KRYPTON-85

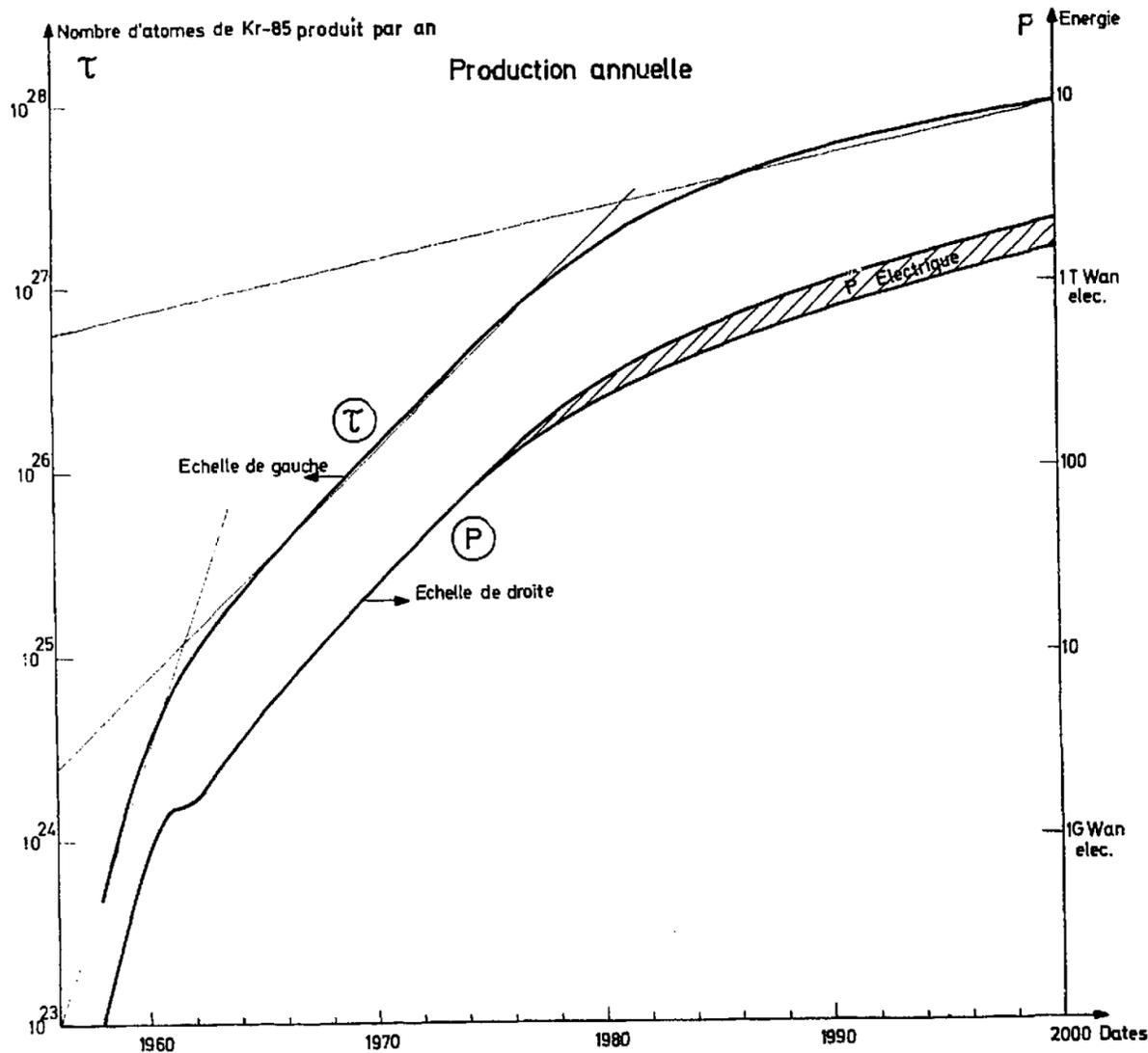
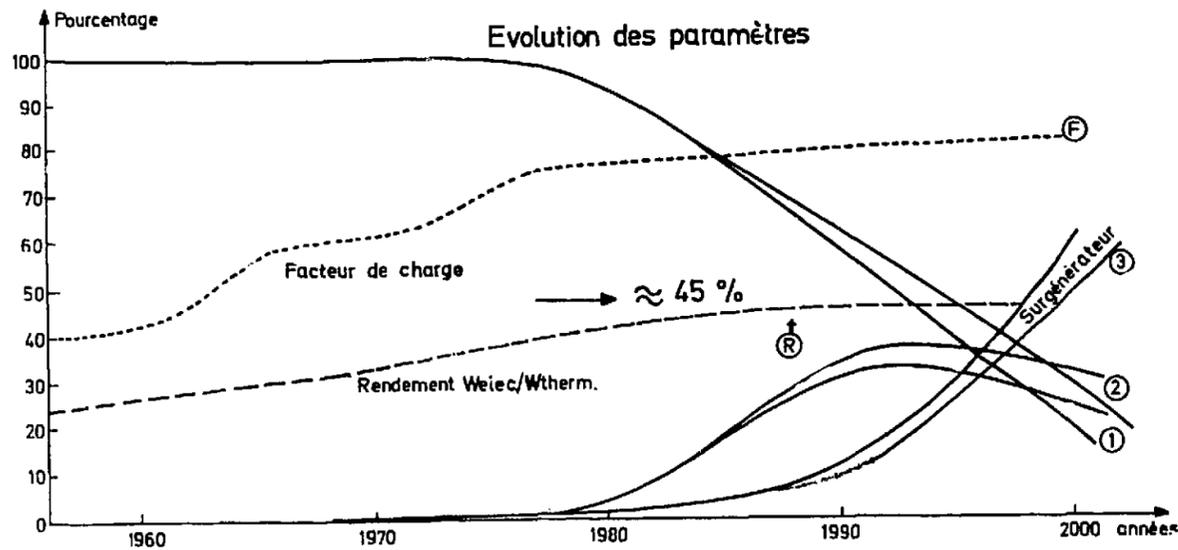
V - 1. Production future de krypton-85.

L'apport dû aux centrales nucléaires est continu et proportionnel à l'énergie produite ; il va en augmentant de telle sorte que, négligeable au départ et encore actuellement, son rôle va devenir prépondérant (et même inquiétant) du point de vue nuisance. Les données correspondant à cet apport font l'objet de l'annexe [E].

Comme les prévisions des programmes mondiaux d'énergie nucléaire ne concernent que la puissance électrique installée, pour évaluer la production de Kr-85 nous avons été amenés à faire des estimations. Ces estimations portent sur l'évolution du rendement thermique, celle de la répartition des catégories de réacteurs à terre, du facteur de charge et enfin sur une évaluation des centrales mobiles (essentiellement marines).

Nous avons cherché à cerner les valeurs les plus probables. On peut considérer que ces estimations chiffrées pour l'avenir sont bien téméraires. Si on remarque que les valeurs avancées sont parfaitement acceptables avec éventuellement un léger ajustement de l'axe des temps il s'ensuit que les conclusions, qui ne sont pas impératives sur les dates, demeurent valables.

Les conclusions de l'annexe [E] sur l'estimation de la production de Kr-85 par les centrales nucléaires dans les années à venir se résument par le graphique suivant.



Pour des commodités de calcul nous avons assimilé la courbe du taux de production à une fonction exponentielle.

$$\begin{aligned} \tau &= 2 \cdot 10^{23} e^t && \text{jusqu'en 1962} && \text{avec } t = 0 \text{ en 1957} \\ \tau &= 1,2 \cdot 10^{25} e^{0,285(t-5)} && \text{de 1963 à 1980} && \text{avec } t = 0 \text{ en 1957} \\ \tau &= 3,5 \cdot 10^{27} e^{0,13(t-25)} && \text{de 1981 à 2 000} && \text{avec } t = 0 \text{ en 1957} \end{aligned}$$

La probabilité de disparition d'un atome est $\lambda = \frac{0,693}{T} \approx 0,07 \text{ an}^{-1}$; celle de N atomes est λN .

Donc la variation dN du nombre d'atomes de Kr-85 est :

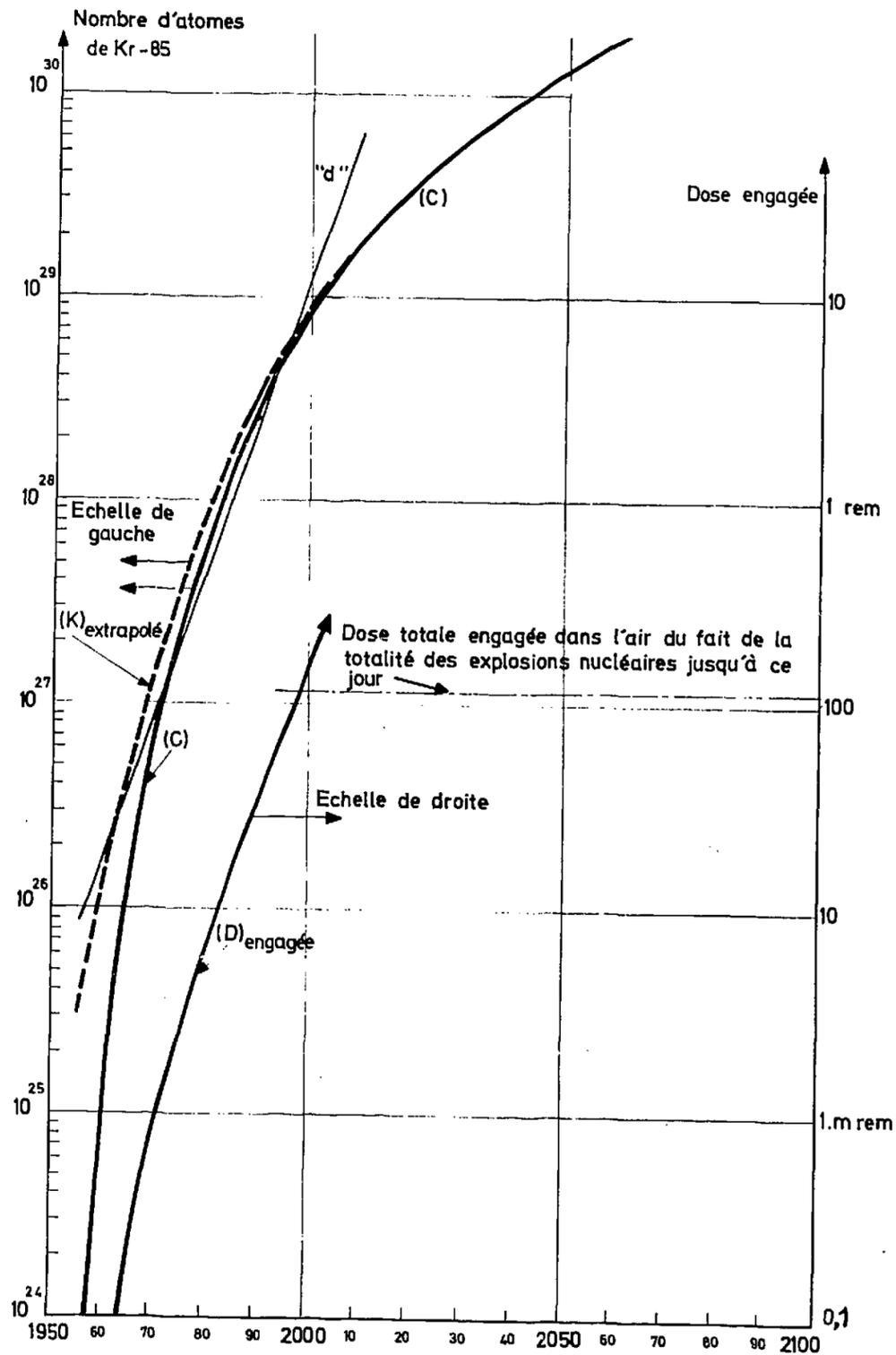
$$dN = \tau dt - \lambda N dt = (\tau - \lambda N) dt$$

L'intégrale de cette équation donne pour N :

$$\begin{aligned} N &= \frac{2 \cdot 10^{13}}{1+0,07} (e^t - e^{-0,07t}) && \text{jusqu'en 1962} && \text{avec } t = 0 \text{ en 1957} \\ N &= 2,75 \cdot 10^{25} e^{-0,07(t-5)} + \frac{1,2 \cdot 10^{25}}{0,285+0,07} [e^{0,285(t-5)} - e^{-0,07(t-5)}] && \text{de 1963 à 1980} && \text{avec } t = 0 \text{ en 1957} \\ N &= 1,4 \cdot 10^{28} e^{-0,07(t-25)} + \frac{3,5 \cdot 10^{27}}{0,13+0,07} [e^{0,13(t-25)} - e^{-0,07(t-25)}] && \text{de 1981 à 2 000} && \text{avec } t = 0 \text{ en 1957} \end{aligned}$$

Les calculs qui en résultent conduisent à la courbe "C" de la figure suivante (page 74). La courbe "C" représente le nombre total d'atomes de Kr-85 produit par les centrales nucléaires en fonction du temps. La courbe "K" représente le nombre total d'atomes de Kr-85 en fonction du temps.

Si actuellement, l'apport dû aux centrales ne représente que le $\approx 1/3$ du total, on peut supposer qu'en 1980 il en représentera déjà les 2/3 et qu'à partir de l'an 2 000 et même avant, il constituera la quasi-totalité (Les piles uniquement plutonigènes qui représentent encore le plus gros apport disparaîtront probablement au fur et à mesure de l'apparition des réacteurs surgénérateurs à neutrons rapides).



V - 2. Conséquence du rejet du Kr-85 dans l'atmosphère.

Pour évaluer les conséquences du rejet dans l'atmosphère du krypton-85 on utilise la notion de "dose engagée" ainsi définie :

" La dose engagée est l'intégrale dans un temps infini du débit de dose moyen pour la population mondiale, résultant d'une pratique déterminée."

Pour le Kr-85 un débit de dose de 5 rem/an correspond à une concentration de $3 \cdot 10^{-6}$ Ci/m³ d'air. Ainsi, dans l'hypothèse de la répartition uniforme dont nous avons montré la validité, l'existence de $4 \cdot 10^{28}$ atomes de Kr-85 dans l'atmosphère correspond à un débit de dose de 1 mrem/an.

De 1960 à 2000 on peut admettre la fonction $N = 2,4 \cdot 10^{26} e^{0,18t}$ ($t = 0$ en 1960) pour représenter le nombre d'atomes de Kr-85 existants (droite "d" de la figure page 74). Ceci correspond à un débit de dose $I = 0,56 \cdot 10^{-2} e^{0,18t}$ (en mrem).

A la date t_1 la dose engagée est :

$$\int_0^{t_1} I(t) dt + I_1(t_1) \int_{t_1}^{\infty} e^{-(t-t_1)} dt$$

L'application de cette formule se traduit par la courbe "D" de la figure page 69.

Ainsi pour 1967 ($t = 7$) on trouve

$$D. \text{eng.} = 0,56 \cdot 10^{-2} \int_0^7 e^{0,18t} dt + 0,56 \cdot 10^{-2} e^{0,18 \times 7} \int_0^{\infty} e^{-0,07t} dt$$

$$D. \text{eng.} = 0,56 \cdot 10^{-2} \left[\frac{e^{1,26} - 1}{0,18} + \frac{e^{1,26}}{0,07} \right] = 0,36 \text{ mrem}$$

En 1980 on trouve $D_{eng} = 4$ mrem par un calcul analogue. C'est en 1998 qu'on atteint les 104 mrem qui représentent la "dose engagée totale dans l'air" résultant de tous les essais nucléaires effectués jusqu'en décembre 1962 [Bn-2 page 50] .

Quoique les effets biologiques d'une pareille dose ne soient pas particulièrement évidents, leur possibilité a fait écrire tant d'articles et a provoqué une telle levée de boucliers... que nous avons pris cette valeur de référence pour attirer l'attention sur une source de nuisance, encore très discrète mais qu'une croissance quasi-exponentielle amènera bientôt au même niveau et bien au delà.

Ainsi la nécessité d'intervenir paraît-elle évidente :

S'il n'est pas encore nécessaire de changer radicalement de politique envers le Kr-85, il serait souhaitable de commencer, le plus tôt possible, dans les pays qui en ont la possibilité, d'appliquer des solutions convenables en regard de l'hygiène atomique à l'échelle du monde.

V - 3. Solution proposée pour l'élimination du Kr-85 et des effluents radioactifs gazeux.

L'accroissement de la concentration du Kr-85 impose dans un proche avenir l'arrêt de son rejet dans l'atmosphère. Les solutions envisagées par les services de traitement des combustibles irradiés consistent essentiellement à séparer le Kr-85 des effluents gazeux soit par distillation fractionnée à la suite de la liquéfaction des effluents, soit par passage des effluents sur tamis moléculaire ou charbon actif avec adsorption sélective du Kr, soit par passage sur des colonnes d'extraction par solvant (type kerosène) [Bb-5]. Mais le Kr-85 est dilué dans l'atmosphère des cellules de dissolution et on est amené à traiter des volumes importants de gaz actifs très riches en vapeurs nitreuses ou nitriques. * La mise en oeuvre des méthodes de séparation est assortie de nombreux problèmes qui, sans être insurmontables, sont délicats. De plus, séparer n'est pas éliminer : il faut ensuite stocker les gaz séparés des effluents et dont le volume est plus important que celui du seul Kr-85.

* Si l'on voulait séparer le Kr-85 et le Xe-133 il conviendrait de dégazer les barreaux irradiés (par percement mécanique du gainage) dans une "enceinte étanche" de petit volume. Toutefois même dans ces conditions le volume des effluents de ces cellules de travail serait nettement supérieur à celui des seuls produits de fission gazeux qui est très faible.

Ainsi l'élimination par rejet souterrain apparaît - elle particulièrement séduisante. De plus, celle-ci peut s'étendre aux contaminants gazeux, volatils et atmosphériques échappés d'un coeur de réacteur, sur le même site, dans le cas, très peu probable, d'un accident majeur.

- Le stockage souterrain de gaz.

Dès le début du problème des déchets radioactifs on a songé au stockage souterrain mais essentiellement pour les liquides et solides. Si, dans ce cas, certaines questions ne sont pas résolues il n'en est pas de même pour les gaz. En effet, dans plusieurs pays, dont la France, on a créé et mis en service des réservoirs de gaz souterrains, étanches et de capacités considérables (quelques centaines de Mm^3). On bénéficie actuellement d'une expérience de plusieurs années [Bc-5] et les techniques acquises peuvent notamment être exploitées pour le stockage des effluents gazeux.

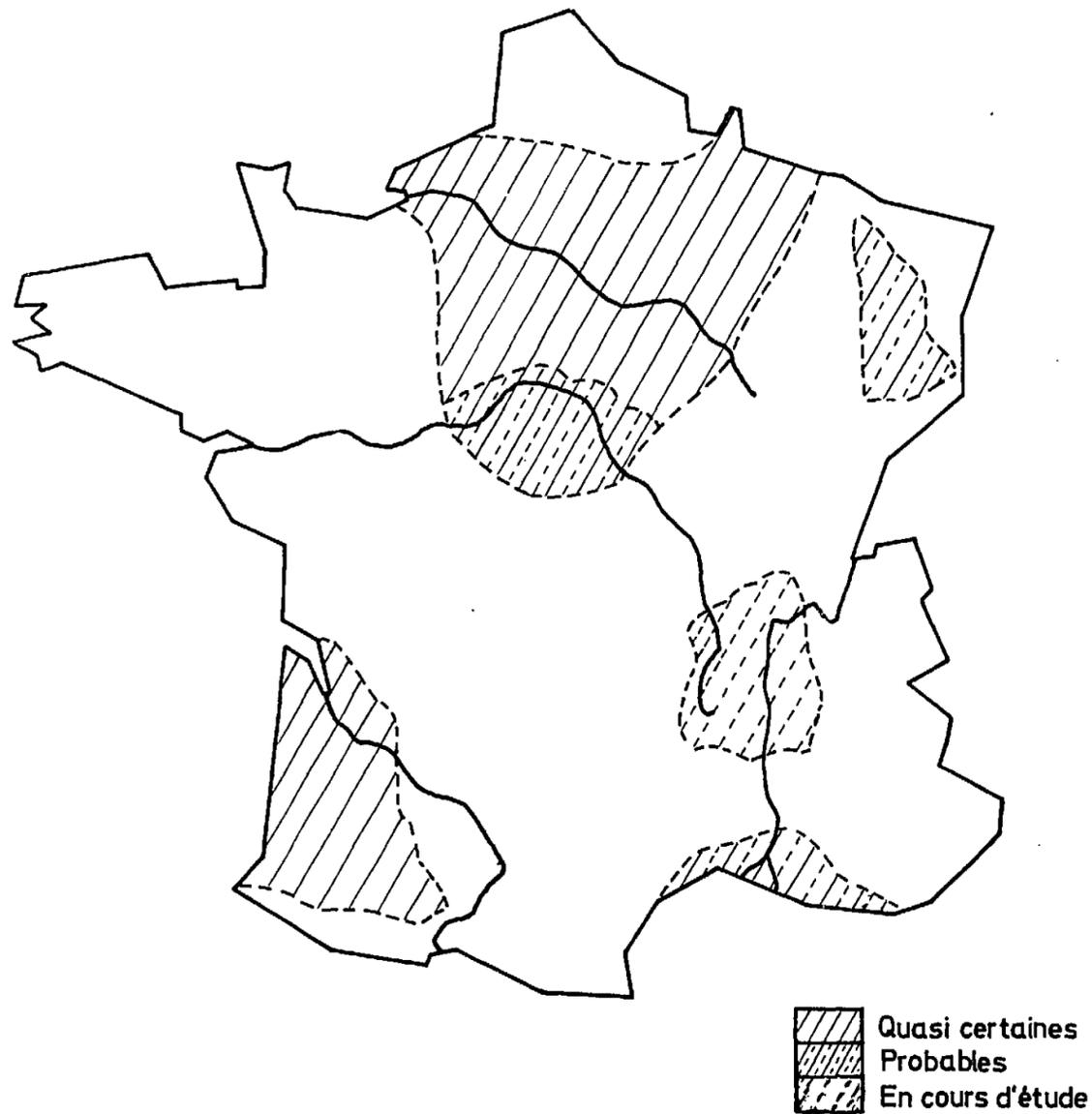
Nous avons étudié ce problème en liaison avec les spécialistes du Département des réservoirs souterrains de la Direction des études et techniques nouvelles de "Gaz de France" ^{et} avec ceux de l'Institut Français du Pétrole.

Caractéristiques du réservoir.

Nous n'envisageons ici que la possibilité de stockage en nappe aquifère profonde [Annexe G] car les configurations géologiques requises dans ce cas sont suffisamment répandues en France (figure page 78) pour que ne soient pas introduites de conditions trop restrictives dans le choix du site nucléaire envisagé.

Par ailleurs l'étanchéité rigoureuse n'est pas impérative comme pour le stockage du gaz combustible. Ainsi l'exigence d'une couverture parfaitement imperméable a fait abandonner au Gaz de France des structures qui pourraient être utilisées. En effet, alors qu'on rejette actuellement en totalité certains effluents, une fuite de quelques 10^{-4} , non admise par le Gaz de France, peut être acceptable car elle s'applique à des gaz qui ont séjourné dans le réservoir et dont la radioactivité a fortement décru par le temps, mais aussi à la suite de phénomènes d'adsorption, de dissolution et de fixation.

Possibilité de stockage souterrain de grands volumes
d'effluents radioactifs gazeux



Il est fréquent de trouver une structure géologique en couches et par suite de disposer sur un même site de plusieurs réservoirs superposés (exemple [Bt-3]) dont l'utilisation idéale est schématisée sur la figure suivante, page 80.

En voici la légende :

Le site nucléaire à proximité d'une rivière comprend notamment des réacteurs de puissance et une usine de traitement de combustibles irradiés.

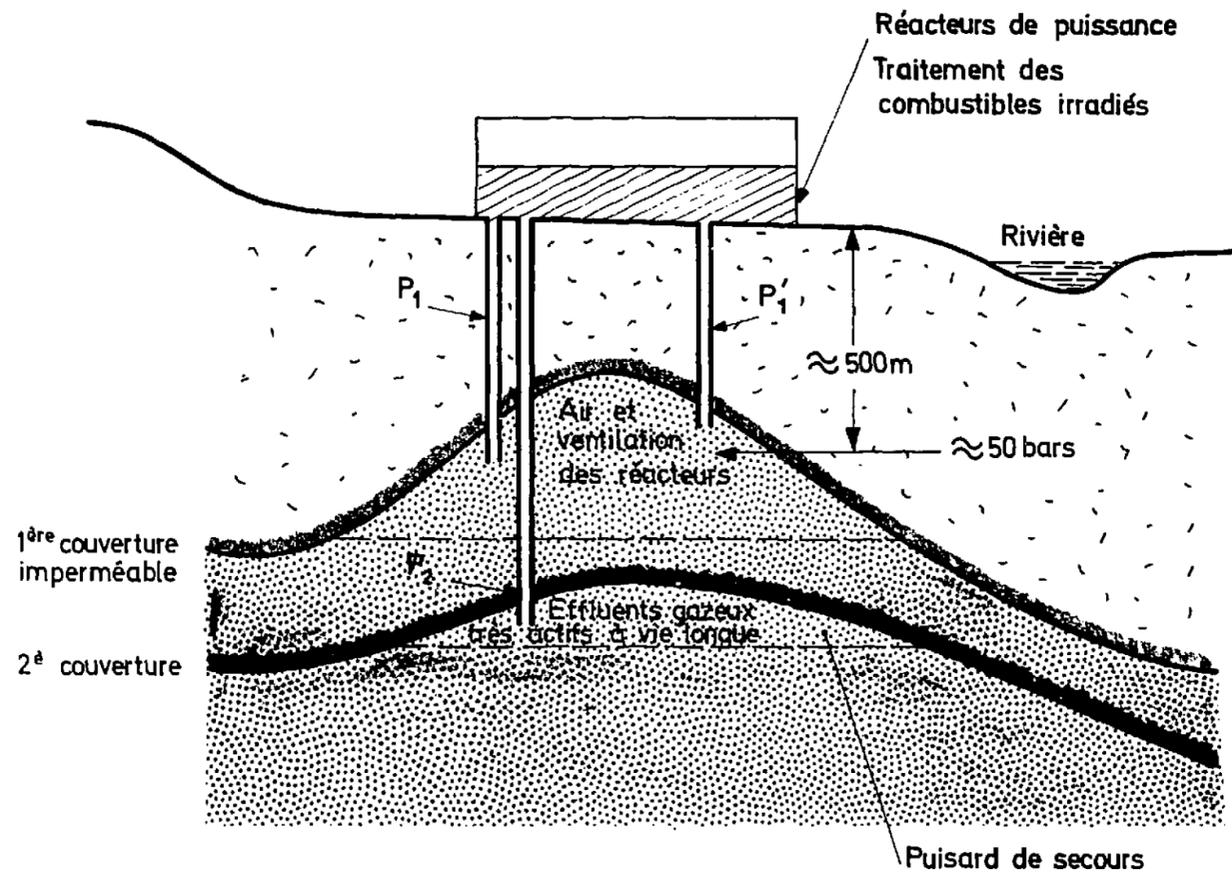
Le réservoir supérieur reçoit en permanence par un puits P_1 (figure annexe G.3) l'air de refroidissement des réacteurs (débit de 10^1 à $60\ 000\ m^3/h$), habituellement rejeté par une cheminée, qui est essentiellement contaminé en Ar-41 ($T = 110$ minutes).

Ce réservoir peut également être utilisé comme appoint énergétique à la manière des réservoirs hydrauliques de haute altitude. En effet lorsque l'énergie électrique nucléaire représentera une part importante de la consommation elle devra se plier aux fluctuations de la demande. Aux heures creuses de consommation le réservoir R_1 peut recevoir en plus de l'air de ventilation, de l'air prélevé dans l'atmosphère et comprimé en utilisant l'énergie excédentaire. On dispose ainsi d'une réserve énergétique et, aux heures de pointe, l'air est éjecté par P_1 dans des turbines à air (on signale la réversibilité de type de compresseurs qui peuvent ainsi fonctionner en turbines). [Bp-3]

Evidemment c'est alors de l'air très pur qui sort des turbines car la durée de séjour et de transit de l'air de refroidissement, qui peut atteindre plusieurs semaines, est suffisante pour que l'Ar-41 soit devenu inoffensif. De plus il y aurait probablement fixation dans le sable aquifère de toutes les autres impuretés radioactives contenues dans l'air de ventilation des réacteurs (C-14, traces d'I-131...etc..).

Nous pensons qu'on peut négliger la possibilité de contamination en radon de l'air éjecté des turbines car ce gaz ne doit pas exister dans les structures géologiques considérées.

Le réservoir inférieur R_2 possède une double couverture. On y injecte les effluents gazeux très radioactifs (contenant notamment le Kr-85) qu'ils soient produits sur place ou amenés d'autres installations. Ce réservoir peut servir de puisard de détresse dans l'éventualité d'une fusion de cœur de réacteur sur le site même. On estime alors à quelques $10^5\ m^3$ le volume de gaz, air, vapeur d'eau... etc. contenant quelques 10^5 Ci de Kr-85 et d'I-131 [Bc-6] La "bulle" formée par les effluents permanents sert de contrôle d'étanchéité et permet un gros débit instantané en cas d'accident de contamination.



- Couche imperméable (argile)
- Structure aquifère
- Sable d'où le gaz a chassé l'eau

- Site nucléaire

REMARQUES :

Le débit des puits dépend d'un grand nombre de facteurs :
pression différentielle maximale à l'interface, caractéristiques de la crépine, non entraînement de l'eau, du sable... etc

L'expérience conduit à prendre des ordres de grandeurs, valables en moyenne, mais les écarts peuvent atteindre des facteurs de plusieurs unités.

Pour des tubes couramment utilisés (7") et pour des pressions de ≈ 50 bars, soit par ≈ 500 m de fond, on peut admettre des débits par seconde de quelques m^3 TPN, ce qui équivaut à une puissance de 0,5 MW, aux pertes de charge près estimées à $\approx 10\%$.

On voit donc que, même avec plusieurs têtes et des pressions d'une centaine de bars, la récupération ne peut porter que sur une puissance de l'ordre de la dizaine de MW.

CONCLUSION

C'est la première fois, à notre connaissance, qu'on étudie la répartition mondiale d'un gaz rare radioactif dont les avantages comme traceur sont indéniables malgré les difficultés de mesure. Aussi ne disposons-nous que d'un nombre limité de mesures, une quarantaine, qui suffit cependant pour démontrer l'intérêt du krypton-85 comme traceur et pour avancer une estimation des transferts. En effet, ce traceur nous a permis d'étudier la circulation troposphérique méridienne à l'échelle de l'année et les valeurs des transferts ont pu être établies sans utiliser les paramètres météorologiques tels que les composantes des vitesses moyennes des vents repris dans la plupart des études sur la circulation.

- En ce qui concerne la circulation troposphérique méridienne, les résultats des prélèvements effectués fin 1964 du 47° N au 62° S de latitude, mettent en évidence et permettent de chiffrer la perméabilité des barrières de diffusion subtropicales. Avec les données actuellement disponibles sur le krypton-85, les estimations des durées de séjour dans les troposphères Nord et Sud sont respectivement de 4 et 8 mois, ce qui correspond à une masse de $5 \cdot 10^{17}$ kg (soit 1/10 de la masse de l'atmosphère) qui traverse les barrières de diffusion Nord et Sud, en 4 et 8 mois respectivement.

- Les valeurs de la concentration du Kr-85 dans la troposphère polaire antarctique sont supérieures à celles prévisibles dans le cas de la seule diffusion troposphérique. Ceci s'explique par des injections en provenance de la stratosphère polaire contaminée par le Kr-85 d'origine explosive. Le petit nombre de nos mesures ne nous permet pas d'évaluer l'importance de ces injections qui, tout en étant très modestes, peuvent fortement augmenter la concentration troposphérique car la troposphère polaire ne représente qu'une fraction d'atmosphère de l'ordre du pourcent.

- Les valeurs des concentrations stratosphériques en Kr-85 qui, en 1964 sont encore supérieures aux valeurs troposphériques, conduisent à estimer, soit que le bilan "fission" des explosions nucléaires adopté par le Comité Scientifique des Nations Unies est trop faible, soit que le rendement de fission du Kr-85 dans les explosions est supérieur à la valeur expérimentale déterminée en piles, soit une composition de ces deux effets.

- D'autre part, le gradient vertical établi à partir de prélèvements effectués fin octobre 1967 montre que les valeurs stratosphériques n'ont guère changé depuis 1964. Les valeurs troposphériques ont augmenté de 30 % environ pendant cette période et la répartition du Kr-85 en fonction de l'altitude est actuellement quasi-homogène.

Une étude plus poussée de la répartition du Kr-85 et de l'évolution de la concentration en des lieux judicieusement choisis permettraient d'améliorer l'estimation des échanges que nous avons faite.

Mais chaque résultat implique une série d'opérations et de mesures qui demande 15 jours en moyenne. Si cette étude s'inscrivait dans un programme on pourrait par exemple effectuer des prélèvements mensuels sur une quinzaine de mois dans des stations fixes implantées au Spitzberg, en France, à Dakar, à la Réunion, à Kerguelen, et en Terre-Adélie complétés par des prélèvements en altitude. Avec les techniques actuelles ceci conduit à environ 10 000 heures de traitements et de mesures pour cette période de 15 mois.

Par ailleurs nous avons calculé qu'avant l'an 2000, les conséquences du rejet pur et simple dans l'atmosphère du Kr-85 par les usines de traitement des combustibles irradiés, se traduiraient par une "dose engagée" dans l'air égale à celle résultant de la totalité des explosions nucléaires effectuées jusqu'à ce jour. Nous pensons ainsi attirer l'attention sur la nécessité d'éliminer le Kr-85 des effluents gazeux des usines de traitement de combustibles irradiés.

- Plusieurs études ont été menées sur la séparation du krypton des effluents gazeux ; non seulement leur mise en oeuvre pose quelques difficultés mais encore la séparation ne résoud pas le problème de l'élimination. En liaison avec les spécialistes du stockage souterrain de "Gaz de France" nous avons abordé le problème de l'élimination des produits de fission gazeux et notamment du Kr-85 par injection dans les nappes aquifères profondes dont l'exploitation pour le stockage du gaz combustible s'est relevée très sûre. L'installation qui en résulte apporte par ailleurs sur le site nucléaire une solution en cas d'accident "dit majeur" c'est-à-dire de fusion de coeur de réacteur dont la probabilité, faible, n'est pas nulle. Une adaptation du procédé qui fait l'objet d'un brevet pris par le C.E.A. permet non seulement l'assainissement de la totalité des effluents gazeux mais encore une modulation de l'énergie électrique d'origine nucléaire en fonction des besoins de la consommation.

BIBLIOGRAPHIE (Avec analyse éventuelle).

par ordre alphabétique.

- Ba-1 S. AMIEL et L. WINSBERG.
J. Of Nucl. Eng. 5, n° 1-5 O.51, 1967
A possible geochemical application of Kr-85
Les mesures du Kr-85 dissous dans l'eau de ruissellement des sites uranifères se soldent par un résultat négatif. Ce résultat nous semble-t-il s'explique par le fait que le krypton-85 est mort avant de quitter le minerai au sein duquel il se forme et que par ailleurs sa production est très faible.
- Ba-2 ANTROPOFF and FRAUENHOF.
Zect. angew ; chem. 46-23 (1963)
Sous 3 Torr on faisait jaillir l'étincelle dans un mélange C1, Kr.
Après piègeage à - 190°C et évaporation du Kr en excès on recueille un composé rouge ou incolore suivant les manipulations.
- Ba-3 AUBEON R., CHAMPEIX L. et REISS J.
Séparation et dosage du krypton et du xénon par chromatographie en phase gazeuse. Application aux gaz de fission.
J. Chromatog. 6, 1961.
- Ba-4 ACKLEY R.D. et al.
The disposal of radioactive fission gases by adsorption
T.I.D. 7593, 1961.

- Bb-1 M. B. BOLIN
The general circulation of the atmosphere as deduced with the aid of tracers.
Note technique n° 68. Organisation Météorologique internationale, n° 169, TP 83 - Genève (pages 27 à 56).
Excellente revue; mais les conclusions ne sont pas très bien dégagées car on ne prend pas position.
- Bb-2 BIERI R., KOIDE M. et al.
Dt of Sc. Univ. of California.
Concentration des gaz dans l'eau. Science-146, p. 1035 à 37 - 1964. On donne les valeurs suivantes pour le Kr dissous dans l'eau de mer (en 10^{-8}) à 46 m de profondeur (7) à 93 m (4,8) à 189 m (5) à 462 m (3,7) à 1 039 m (2,6) à 3 065 m (6) à 3 467 m (7,4).
La valeur que nous avons retenue est calculée avec les données de Handbook of chemistry pour 15° et une pression partielle atmosphérique de $1,14 \cdot 10^{-6}$ atm.
- Bb-3 BOURGEOIS M. et BERTHORY G.
Séparation du Kr-85 des effluents gazeux du traitement des combustibles irradiés.
Note CEA - DMCN/D.P. n° 355, nov. 1963.
- Bb-4 BRESSON H. et DONAT G.
Recherche de structures géologiques pour le stockage souterrain de gaz en nappe aquifère profonde. Communication au congrès 1963 de l'Association technique de l'Industrie du Gaz en France.

- Bc-1 G. A. COOK,
The rare gases. Interscience Publishers (1961) (p. 55; tome I).
- Bc-1a G. A. COOK,
The rare gases. Interscience Publishers (1961) p. 64, tome I).
On avance une valeur de quelques 10^{-4} d'après KLAPIN et al. Bul. Acad. Sc. URSS 61-297 (1948).
- Bc-2 CHLECK and al.
Nucleonics 17, 130-133, sept. 1959.
Préparation : l'hydroquinone à 185°C sous 60 bars de Kr, refroidissement lent en 3 jours. Le taux d'échappement de krypton des clathrates ainsi obtenus est très faible.
- Bc-3 CHLECK D. et al.
Development of Kr-85 as a universal tracer.
Parametrics Inc. Waltham 54. Mass. USA
Ce contrat d'études passé avec l'A.E.C. a donné lieu à un bon nombre de rapports parmi lesquels nous avons plus particulièrement examiné les rapports TID 19.366, 1962, TID 17.765, 1962, et CONF. 651.706.
Isotopes system Dev. Engeron, 1965, Nous pouvons communiquer les textes photographiés à partir de microfilms aux personnes susceptibles d'être intéressées.
- Bc-4 COLEMAN J. et LIBERAU R.
Nuclear power production and estimated Kr-85 levels.
Rad. Health date nov. 66 (7 pages).
Cet article constitue une excellente approche concernant l'estimation du rôle à venir du Kr-85.
- Bc-5 COLOMA M.
Problèmes généraux d'utilisation du réservoir et conditionnement des puits dans le stockage souterrain de gaz de cokerie de Beynes Association technique de l'industrie du Gaz en France - Juin 1962.
- Bc-6 CLELSCH A. et al.
Progress in the USA toward deep-well disposal of liquid and gaseous radioactive wastes.
Communication au congrès de l'A. I. E. A. à Vienne, 29 Mai 1967.
- Bc-7 CHESSELET R.
Etude des concentrations isotopiques du Kr-85 dans les eaux océaniques (travaux en cours).

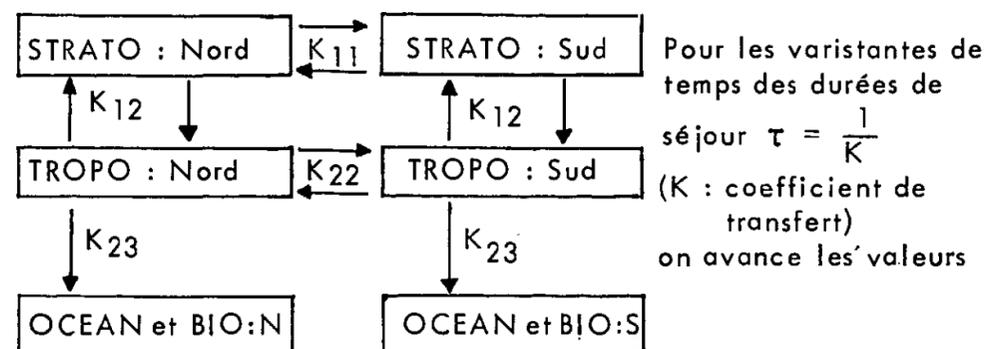
- Bd-1 G. DELIBRIAS et al.
B.I.S.T. 1959, n° 30, complété par J. Mec. et phys. atm. 1960, II, 7 et par B.I.S.T. 1961 n° 54.
A la suite des résultats des mesures du Kr-85 atmosphérique en France on esquisse le bilan total le concernant et on suggère l'analogie probable de son comportement et de celui du C-14 artificiel.
On suggère son utilisation possible comme traceur.
- Bd-2 DURST G., CROSLY A. and DAVIS N.
Horizontal diffusion in atmosphere as determined by geotropic trajectories.
J. Fluid. Mech. 6, 401, 1959.
- Bd-3 DENECKE B.
Nucl. Sc. Eng. 28p. 305-6. May 1967.
- Bf-1 FLYGARE et al.
A method for the collection and identification of radioactive Xe and Kr.
TID.7593 - 1961 (8 pages)
Cet appareil de contrôle piège le Kr et Xe aux alentours des usines de traitement. La mesure se fait pour lecture du débit de dose au contact du tamis. On trouverait des valeurs allant jusqu'à plusieurs R/h. L'identification se faisait ensuite au spectromètre gamma.
- Bg-1 GLÜKAUF and KITT.
Proc. Roy. Soc., London A. 234-537, 1956
- Bg-2 GRINBERG B. et LE GALIC Y.
Caractéristiques fondamentales d'un laboratoire de mesure de très faibles activités.
International J. of Applied rad. and isotopes, 1961, vol. 12, p. 104-117.
- Bg-3 GOUSSEV N.G. et al.
A propos de l'argumentation de l'établissement des normes des gaz radioactifs inertes. Institut de Biophysique de l'URSS. Communication en français au colloque de Rome 1967 de l'I.R.P.A.

- Bh-1 H.H. HYMAN,
Noble gas compounds.
Pour préparer K_2F_4 on fait passer le mélange stoechiométrique sous une dizaine de Torr avec un débit de 125 ml/h dans une chambre à étincelles maintenue à $\approx 190^\circ\text{C}$ (700 à 2 200 volts avec $R \approx 30 \cdot 10^{-3} \Omega$).
- Bk-1 KUNIKIKO KIGOSHI
Après avoir présenté l'appareil de mesure (un compteur de volume très faible, quelques cc, rempli à $\approx 1/3$ d'atmosphère) on reprend l'idée que le krypton-85 ne provient pas des seules explosions et qu'il peut être utilisé comme traceur.
- Bk-2 KALKSTEIN M.I.
Rh-102 high altitude traces experiment
Science vol. 137 - august. 1962.
Dans la conclusion on propose un modèle commenté de transport et de distribution des débris radioactifs dans la stratosphère en 7 points.
(1) : montée vers 100 km d'altitude. (2) : étalement : \approx quelques semaines. (3) : passage à 80 km par diffusion verticale au niveau de la stabilité de la température \approx de quelques mois. (4) : brassage vertical entre ce niveau et 55 km ; autre plage de stabilité en température : \approx quelques semaines à quelques mois. (5) : En hiver échange entre 55 km et la basse stratosphère (20 km) ou hautes altitudes. (6) : Brassage horizontal à ce niveau aux latitudes extratropicales : quelques semaines à quelques mois. (7) : très faible mélange en direction et à l'intérieur des latitudes intertropicales.

- Bl-1 LERMER
J. Inorg. Nucl. Chim. 25, p. 757, juillet 1963.
La plupart des tables donnent 10,4 ans. LERMER a effectué ses mesures sur une période de 10 ans environ mais les résultats qui conduisent à 10,7 ans pour la période du Kr-85 n'ont pas encore été analysés et homologués par les grands organismes, N.B.S., etc....
- Bl-2 W.W. LARENCHIK
Global noe Vypadenie Produktov Yadernykh
Vzryvov Atomizdat, Moskv, 1965
Traduction A.E.C. tr.-6666 (TID-4500)
Ce document de 170 pages sur le problème des retombées dues aux explosions est pratiquement un résumé très concis de l'ensemble des données qui figurent dans les rapports du comité scientifique des Nations Unies pour l'étude des effets des radiations ionisantes avec quelques données complémentaires.
- Bl-3 LABEYRIE J.
Génie Atomique, tome II, page III-7.
Presses Universitaires, Paris, 1963.
- Bl-4 LABEYRIE J. et GIMENEZ
Nuovo cimento, 1952, 9, 169.
- Bl-5 LAMBERT
Etude du comportement des aérosols radioactifs artificiels.
Applications à quelques problèmes de circulation atmosphérique.
On estime à 3 ans le temps nécessaire à l'homogénéisation de l'ensemble de la stratosphère par diffusion méridienne.
- Bl-6 LAMBERT et al.
CR. Acad. Sc. Paris p 3857 - 3860 - t.261 - 8 novembre 1965
- Bl-7 LABEYRIE J., LAMBERT G., NGUYEN-BA-CUONG, ARDOUIN B
Résultats des mesures de la radioactivité des retombées en France et en divers points du monde (sous presse)
- Bl-3 LAL D.-RAMA
Characteristic of global tropospheric Mixing based on man-made C-14, H.3 and Sr -90. J of geoph Research juin 1966.

- Bm-1 MARINI T.
Eléments de statistique applicables aux études de validité des mesures de radioactivité atmosphérique. Note C.E.A. N.626 (1967).
- Bm-2 MOGHIMI
Etude au moyen de circuits électroniques de certaines fluctuations dans les mesures de radioactivité à bas niveau.
Thèse Paris -(1964).
- Bm-3 MOREL P. et al.
Campagne de vols Pacifique I
Note CNRS, 1966.
- Bm-4 Colloque de l'AIEA, Monaco, 1967
Datation par la radioactivité et méthodes de comptage des faibles activités. Notamment parmi les communications concernant les installations de comptage à bas niveau, celle de H. OESCHGER et celle de G. DELIBRIAS et J.L. RAPAIRE.
- Bm-5 MILTON M.R.
Procédé de fabrication de matières absorbantes synthétiques.
Brevet d'invention n° 1.117.776 délivré le 5.3.56. Service de la Propriété Industrielle.

- Bn-1 Nucleonics, november 1960 (p. 147 à 210).
Ce manuel de soixante pages intitulé "Reference data Manual" rassemble des données particulièrement intéressantes dans le domaine nucléaire ; les rendements de fissions sont donnés page 203, le schéma de filiation page 205.
- Bn-2 Nations-Unies - Rapport du Comité Scientifique pour l'étude des effets des radiations ionisantes - 19^e session - supplément n°14, 1964 (p.50). Avec un recul de quelques années ce document qui existe en français fait le point en 8 pages sur la radioactivité d'origine nucléaire. Il est accompagné de plus d'une centaine de pages d'annexes fort intéressantes.
- Bn-3 NYDAL Reidar.
On the transfer of radiocarbon in nature.
Colloque de Monaco - 2 -10 mars 1967 organisé par l'A.I.E.A.



$$\tau_{11} = 3 \text{ à } 5 \text{ ans}$$

$$\tau_{12} = 3,5 \pm 0,8 \text{ ans}$$

$$\tau_{22} = 7 \pm 2 \text{ mois}$$

$$\tau_{23} = 4,5 \pm 1 \text{ ans}$$

- Bo-1 OSTROWSKI, J. ELEN,
Nucleonics 10-67-8 (1965)
"On the contamination of atmospheric krypton by Kr-85"
On conclue sur l'impropriété du krypton comme gaz de remplissage des compteurs.

- Bp-1 R. PANNETIER,
Vade mecum du technicien. 2 tomes Ed. Maisonneuve 1966.
Cet ouvrage contient la plupart des données figurant dans la fiche signalétique du Kr. Il est d'une utilité permanente pour tout expérimentateur du domaine nucléaire.
- Bp-2 POWELL
J. Chem. Soc. 300 (1950)
60 ml d'une solution aqueuse saturée avec 2 g. en excès d'hydroquinone chauffée à 95° (pour dissoudre l'hydroquinone) pendant 12 heures sous 20 bars de krypton. On obtient des cristaux de clathrates à 15 % en poids de Kr.
- Bp-3 R. PANNETIER
Procédé d'épuration des effluents industriels gazeux et de stockage d'énergie. Brevet PV. 130.875 du 4.12.1967 au nom du C.E.A.
- Br-1 ROULLEAU et TROCHON
Météorologie générale.
Gauthiers Villars, 1958, (Tome II, p. 84).
- Br-2 ROETHER et al.
Le Kr-85 atmosphérique - Compte rendu de la Conférence internationale sur la pollution radioactive des milieux gazeux, Saclay, 12-16 nov. 1963.
- Br-3 RAFTER T.A.
CARBON-14 VARIATIONS IN NATURE
New-Zealand Journal of Science Vol. 8 n° 4. Décembre 1965.
- Bs-1 SCHAFER et SESNY
Res. Lab. Linde-Unions Carbide, 1956.
- Bs-2 S.E.S.R. Elimination de déchets radioactifs dans des structures géologiques profondes (p.III-36) - note interne, Saclay, 1966.

- Bt-1 TROFINO, ANM. KASANKIN
Traduction CNRS de la revue russe "Radiochimie", t.VIII, n°6,
1966. Composés clathrates du p-crésol avec Kr et Rn.
- Bt-2 Tables statistiques - Institut de statistiques de l'Université de Paris,
1959. Petit recueil de 17 tables accompagnées d'exemples d'abaques
et groupées en table des lois fondamentales (1 à 4). Tables pour le
contrôle de fabrication (5 à 10), Tables pour les tests fondamentaux
dérivés de la loi normale (11 à 17).
Indispensable pour la pratique des statistiques
- Bt-3 TOCHE J.
Reconnaissance de la structure de St-Illiers. Communication au
Congrès 1965 de l'Association technique de l'Industrie du Gaz,
en France.
- Bv-1 H. DE VRIES
Appl. Sc. Res. B5 1956, p. 387.
A la fin de l'article "Purification of CO₂ for use in a proportionnal
counter for C-14 age measurements" l'auteur signale avoir effec-
tué une mesure sur le krypton atmosphérique de mars 1955; il
annonce 25 000 d.p.m. par mole soit $\approx 1 \text{ d.mn}^{-1} \cdot \text{cm}^{-3}$ de Kr.
- Bv-2 VESSEREAU
Méthodes statistiques en biologie et en agronomie, Boillière, 1960
Excellent manuel d'initiation et d'application à la portée de tout
expérimentateur.
- Bv-3 VASSY E.
Physique de l'atmosphère, Gauthiers Villars, 1956 (p. 31 et 32).
- Bw-1 WALLER
Nature 186, 429, 1960.

Manuscrit reçu le 3 juillet 1968

ANNEXES

LES APPAREILS UTILISES POUR LES PRELEVEMENTS.- Prélèvements au niveau du sol.

On comprime l'air prélevé à 200 bars dans des bouteilles métalliques de 25 litres en utilisant les groupes autonomes compresseurs qui sont construits pour remplir les bouteilles de plongée sous-marine. Nous avons utilisé les types "Alizé", "Cyclone" et "Ouragan" qui effectuent le prélèvement respectivement en 6 heures, 2 heures, et trois quarts d'heure.

- Prélèvements en vol sur le réseau d'"Air-France".

Le Boeing "Château de Kerjean" d'Air-France circule par rotation sur les longues lignes à partir d'Orly. Un compresseur type Walter Kidd (voir figure suivante) très compact, très léger mais qui a eu plusieurs pannes, a été logé dans l'espace libre de la cavité du train d'atterrissage. Il envoie l'air dans une bouteille légère qui supporte 250 bars. Mais pour des raisons de sécurité et de durée de l'opération, au lieu de procéder à un échange de bouteilles, l'air d'un prélèvement est transvasé en 2 ou 3 minutes dans une vessie de latex de quelques m³ placée dans une caisse capitonnée montée sur remorque. L'air est ensuite recomprimé dans une bouteille standard (25 l. à 200 bars) sur la base d'Orly (Direction du Matériel). Les instructions sont données au pilote qui remplit une feuille de prélèvement (modèle ci-joint).

FICHE DE PRELEVEMENT N° 2/66

DONNEES POUR LE PNT
A remplir par DM, UH ou DM, LR

IDENTIFICATION DU PRELEVEMENT
A remplir par le PNT.

DONNEES PRELEVEMENT :

- Etape (a - b) ANC. HAM
- Date prévue (d) 04.06.66
- Lieu moyen du prélèvement
- Durée approximative du prélèvement : 1 h 00
- Arrêt compresseur pour une pression de : 1 500 PSI

TRAVAUX à exécuter par l'escale de (a) HAM Vol n° 271

- Vérifier le niveau d'huile compresseur
- Vider complètement la bouteille droite

TRAVAUX à exécuter par l'escale de (b) ANC Vol n° 271

- Accrocher "l'étiquette d'interdiction" sur la bouteille droite

- NOTA :
- 1° - Procédure d'exécution en escale donnée par circulaire DM, LK N° 82.344
 - 2° - Pour utilisation du compresseur se reporter à la note TU N° 12.12
 - 3° - Le lieu moyen du prélèvement est donné par SACLAY ou DM, UF.

DESTINATAIRES : C. E. A.
D/M/UH

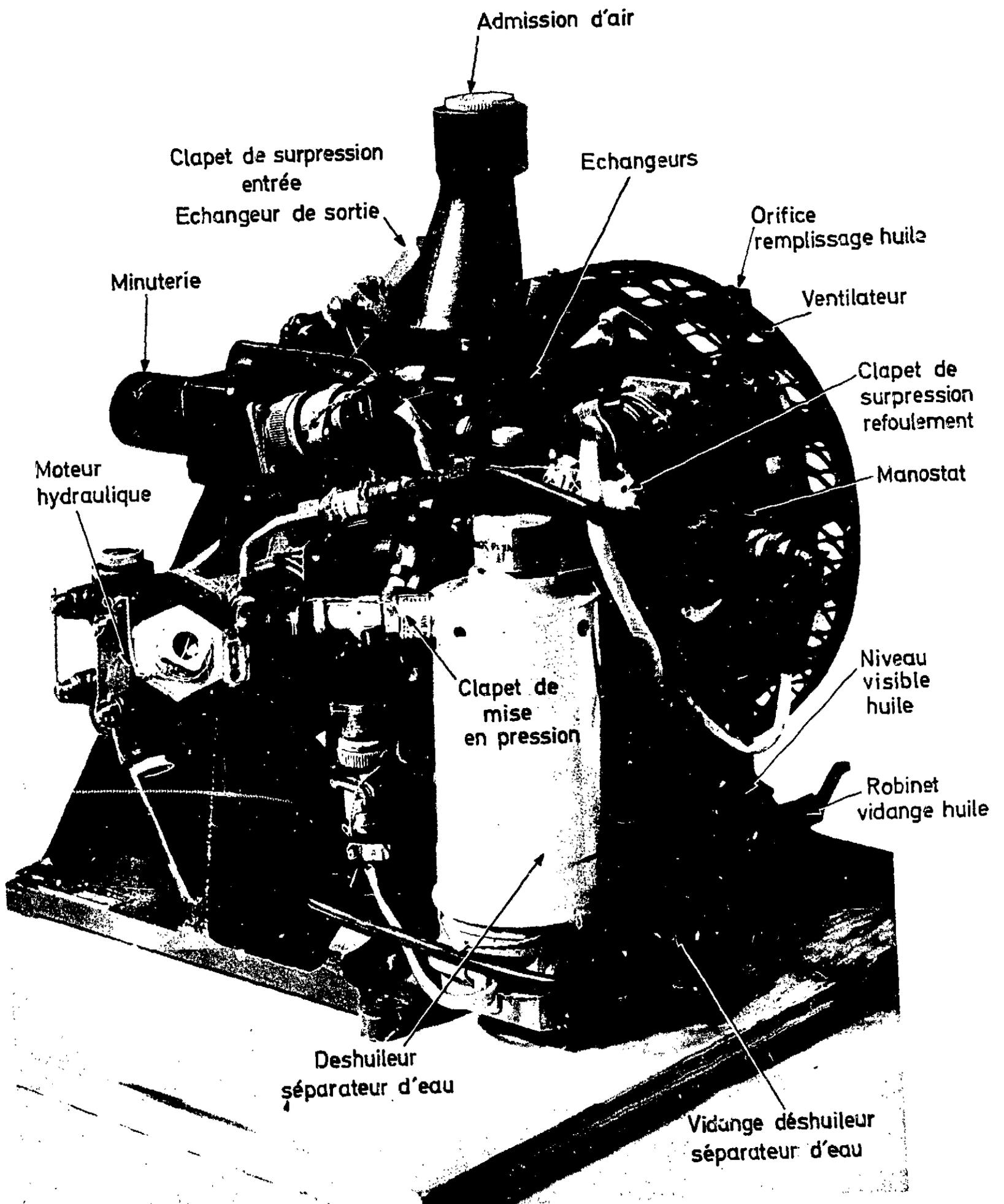
- Date du prélèvement 4.06.66
- Heure TU du début du prélèvement 23 h 40
- Coordonnées du lieu de début du prélèvement
- Longitude 130° 30' W
- Latitude 75° 35' N
- Heure TU d'arrêt du prélèvement 00h 45
- Coordonnées du lieu d'arrêt du prélèvement
- Longitude 77° W
- Latitude 83° N
- Pression bouteille droite à l'arrêt du prélèvement 1550 psi
- Altitude avion moyenne lors du prélèvement 37.000 ft
- Température extérieure moyenne lors du prélèvement -45° 50'
- Vent, force moyenne 50 Kts
- Vent, direction moyenne 310°
- En cas d'anomalie en cours de prélèvement en mentionner causes présumées

A REMPLIR PAR DM, LR APRES TRANSVASEMENT.

- Pression bouteille droite lue avant transvasement 1600 psi
- Complément d'huile : VISA :

TRANSFERT dans B-25 n° A 1506 67-6-66

ANNEXE CE N° 1154



DISPOSITIF DE PIEGEAGE DE GAZ A HAUTE ALTITUDE.

BREVET AMERICAIN DEPOSE LE 21.9.1966 PAR LE C.E.A.

(MM. GIZOUARN, PANNETIER, PERROUD).

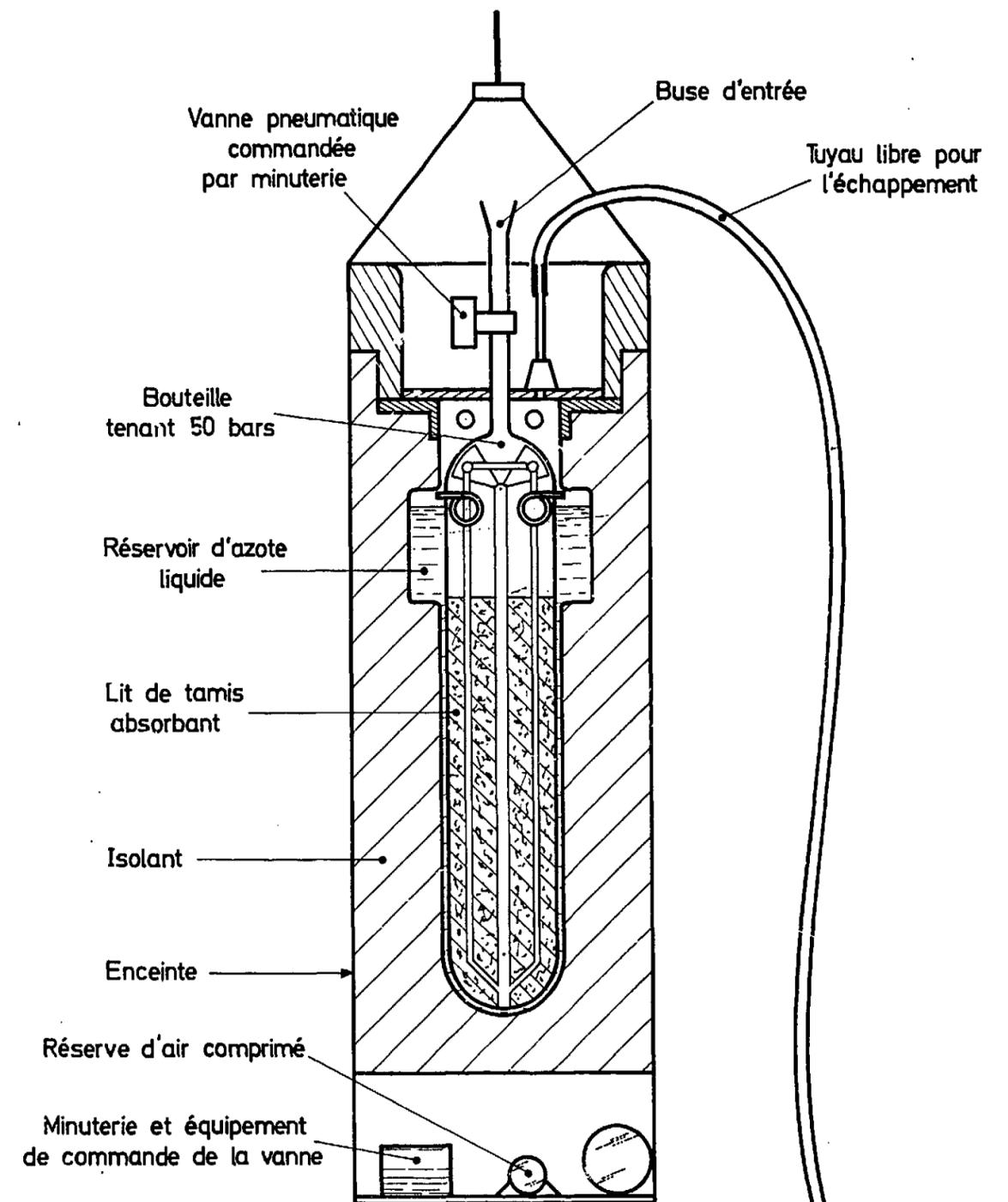
Ce dispositif est conçu pour être emmené par ballon.

Une version pour le prélèvement total d'un à deux m^3 d'air T.P.N. utilise le cryopompage complété par un piégeage global sur tamis 13 X.

L'appareil représenté sur la figure suivante a été conçu réalisé et fabriqué à la Section d'application de la physique du C.E.N. de GRENOBLE.

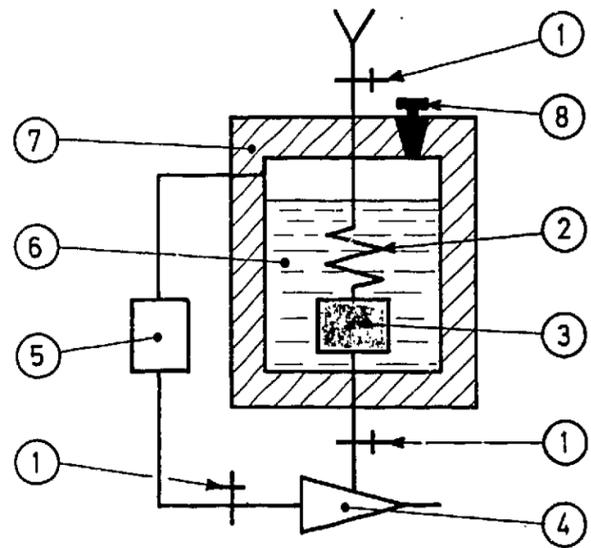
Une fois la vanne d'entrée ouverte la vitesse de pompage n'est limitée que par la section de la buse d'entrée et la totalité de l'air qui entre dans le piège y reste emprisonné. La vanne est refermée bien avant d'atteindre la saturation du tamis.

Le tamis utilisé n'introduirait une certaine sélectivité qu'en séparant les gaz à la désorption en fonction du temps. Mais si on désorbe un temps suffisant et dans les mêmes conditions notamment de température que lors de la préparation du piège on récupère fidèlement la totalité des gaz qui sont entrés dans l'appareil.



Une autre version est adaptée pour le piégeage sélectif du krypton sur tamis 5A. Le principe de fonctionnement est le suivant :

Schéma de principe.



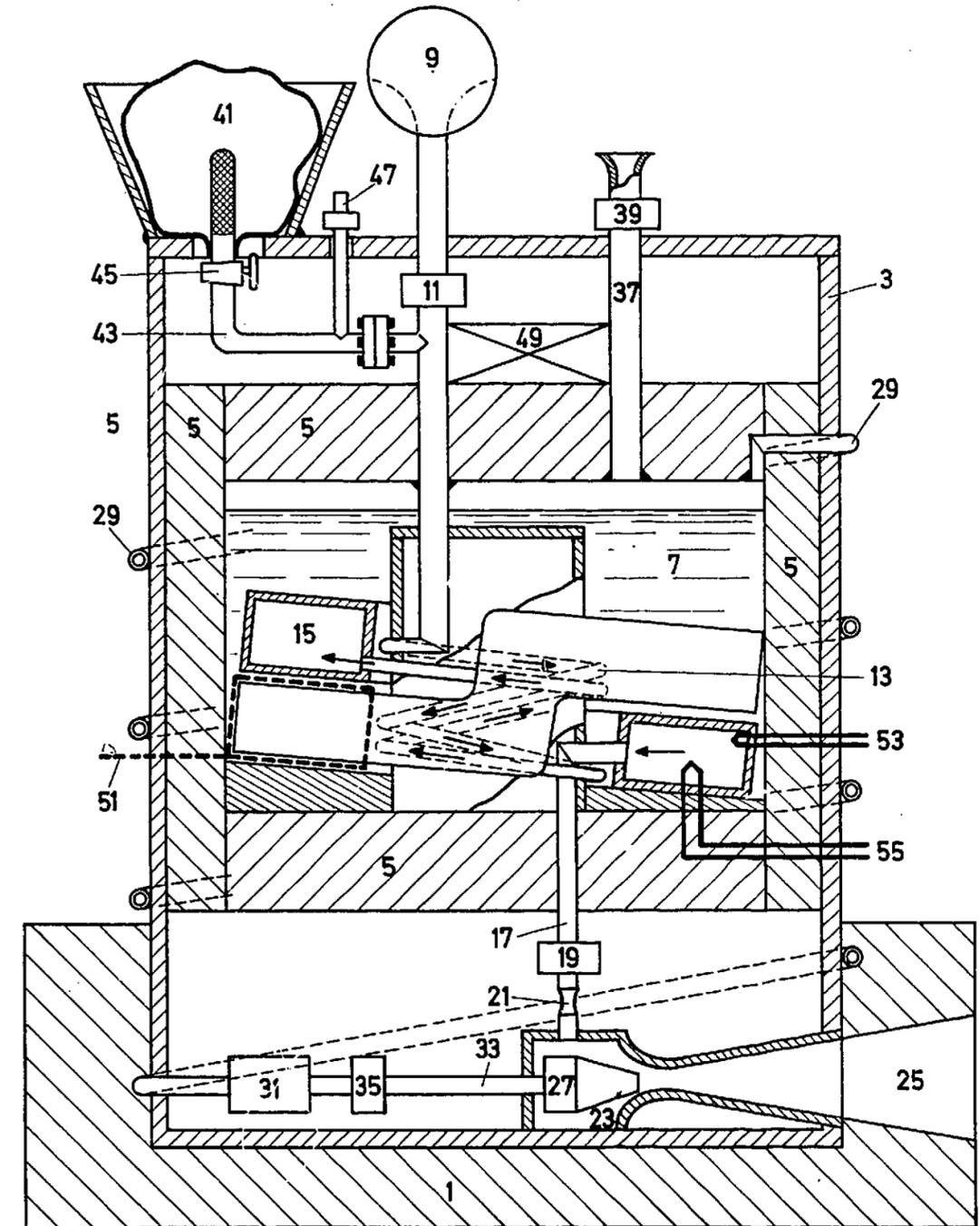
- (1) vannes
- (2) échangeur thermique
- (3) tamis moléculaire Linde 5 Å
- (4) trompe motrice
- (5) détendeur
- (6) azote liquide
- (7) isolant thermique (polystyrène)
- (8) bouchon taré

L'azote gazeux provenant de l'évaporation de l'azote liquide passe dans une trompe qui aspire l'air. Cet air passe dans l'azote liquide et provoque une évaporation surabondante pour alimenter la trompe (environ 1 kg d'air passant évapore 1 kg d'azote et il suffit d'un demi kila de gaz à la trompe pour faire circuler 1 ka d'air)

Au passage à travers la cartouche de tamis 5 A le krypton est piégé en quasi totalité avec une faible quantité des autres composants de l'air (2 à 3 %).

Légende de la figure suivante

- 1 - socle servant d'amortisseur à l'atterrissage avec parachute.
- 3 - enveloppe,
- 5 - isolant thermique
- 7 - récipient d'azote maintenu à 1 bar, soit à -196 (ainsi on se trouve au-dessous de la température de liquéfaction de l'oxygène à la pression extérieure qui est déjà de -200°C à l'altitude de 16 km).
- 9 - bouche d'aspiration
- 11 et 19 - vannes à double effet télécommandées.
- 13 - serpentin
- 15 - cartouche de tamis : double tore à section rectangulaire, incliné pour éviter des espaces de fuite de l'air qui doit passer sur les tamis moléculaires



- 21 - col sònique
- 23 - 25 - 27 - détails de la trompe
- 29 - serpentín d'alimentation de la trompe, peint en noir pour absorber le rayonnement solaire
- 31 - détendeur.
- 35 - vanne à simple effet
- 37 - remplissage du réservoir d'azote avec bouchon taré à 1 bar (39)
- 41 - ballon d'expansion : 11 et 19 sont refermés après piégeage. Avant la récupération le gaz piégé peut désorber si la réserve d'azote liquide est épuisée. Avec 41 on évite de faire un ensemble qui doit tenir des pressions de quelques dizaines de bars.
- 45 - 47 - vanne pour la récupération du prélèvement.
- 49 - commande
- 51 - cordon chauffant pour désorption et régénération des tamis.
- 53 - 55 - thermocouples de contrôle réglés pour 350 °C.

Une version de cet appareil pourrait être utilisée pour des prélèvements sélectifs au niveau du sol. Il conviendrait seulement de prévoir une enceinte d'azote liquide qui supporte 3 à 4 bars pour se trouver au-dessus de la température de liquéfaction de l'oxygène. (L'emploi de l'oxygène liquide comme réfrigérant doit être exclu à cause du danger et aussi des difficultés d'approvisionnement en campagne). Toutefois on est tenté de préférer un aspirateur à la trompe dans ce cas car le problème d'énergie ne se pose pas au sol. Exemple : appareil américain de prélèvement par piégeage sélectif du krypton au niveau du sol [Bf-1]

EXEMPLE.

A titre d'illustration de prélèvement stratosphérique voici quelques données concernant un prélèvement effectué le 25 octobre 1967.

- poids de l'appareillage expérimental avec plein d'azote liquide, protection anti-choc...etc. 110 kg.
- Afin d'éviter l'impulsion au moment du lancement on utilise un ballon auxiliaire qui annule ce poids sur le câble du ballon porteur. Le ballon auxiliaire est gonflé avec 126 kg d'hydrogène.

- Le poids total du lancement avec parachute, et appareillage de poursuite est de 140 kg. Le ballon porteur a un volume de 13 000 m³ ; il est gonflé avec 258 kg d'hydrogène.

- Vitesse du vent au sol : 1 m/s

Caractéristiques du vol :

- lancement à 10 h 12 TU. d'Aire sur l'Adour.

- durée de la montée au plafond de 15 m/s

(à l'altitude de 30 000 m environ)

1 h 15

durée du plafonnement

1 h 53

- la descente est suivie au radar

0 h 46

La poursuite s'arrête quand l'expérience descend au-dessous de 5 000 m.

- récupération au sol vers 15 h TU.

sur les collines de la Croix-Falgarde près de Toulouse.

Le 25 Octobre à 0 h le radiosondage vertical fait apparaître une couche de stabilité entre 11 400 et 12 900 m où la température est de -67°C.

PRELEVEMENT PAR BALLON CAPTEUR

BREVET FRANCAIS N° 96 182 DEPOSE PAR LE C. E. A.

ET LE C. N. E. S. -(ETENDU A TOUS LES PAYS Y
COMPRIS LES U.S.A.)

(MM. MADIER, PANNETIER, REGIPA)

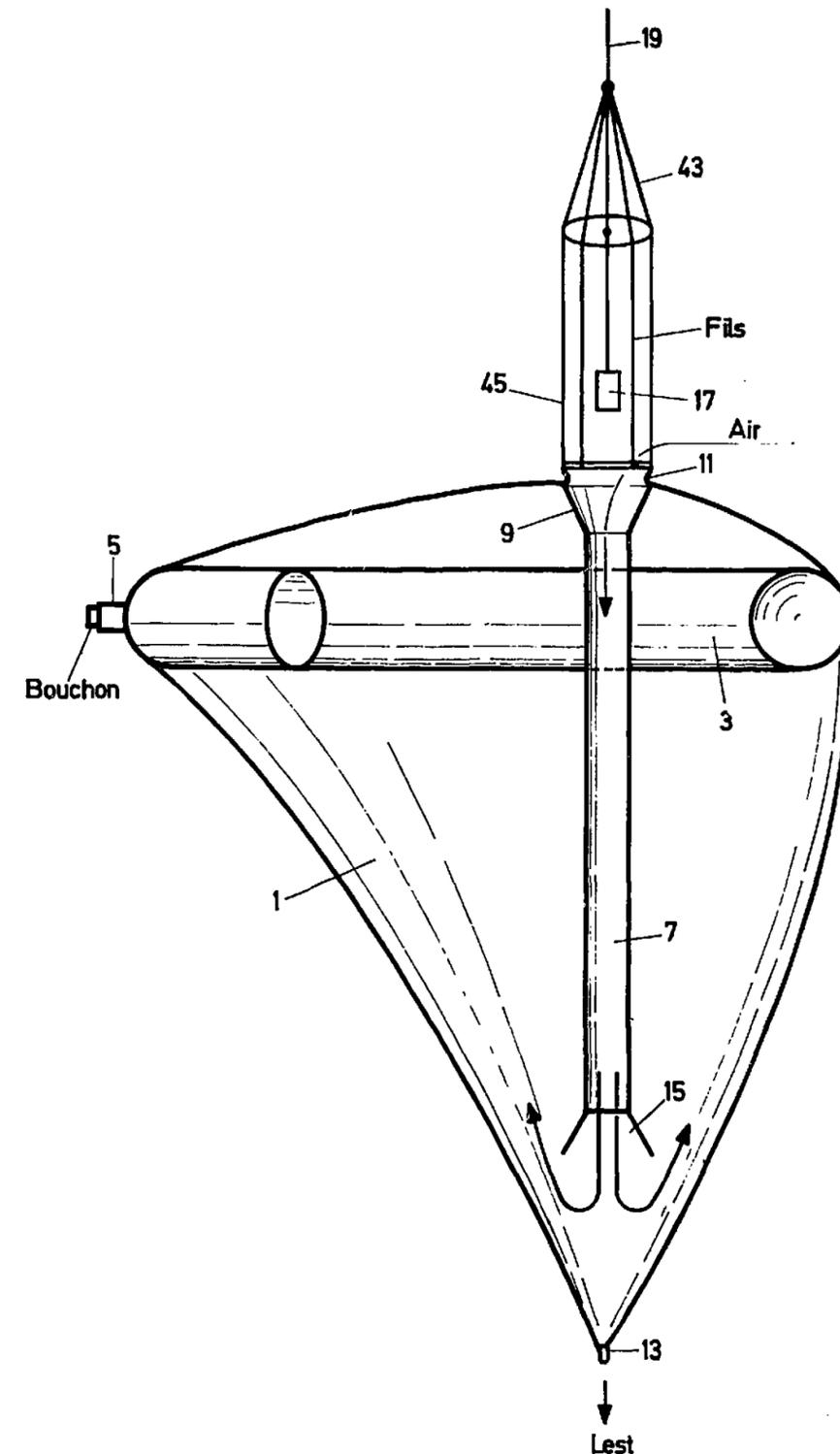
Plusieurs considérations dont en particulier les difficultés de récupération pour un vol de longue durée nous ont conduit à concevoir un système de prélèvements de courte durée, plus d'une centaine de m³ en quelques minutes, en s'appuyant sur la technologie des enveloppes acquise au Centre National des Etudes Spatiales - Division Ballons.

L'inhalation se fait dans un ballon-nasse ou ballon-captteur (figure suivante).

Au départ le ballon est vide, la crépine (15) est retroussée par la bouche d'entrée et l'obture ; elle est maintenue par une corde attachée au sectionneur télécommandé (17). Le raidisseur pneumatique (3) presque vide au départ contient cependant le volume qui lui donnera une surpression de plusieurs dizaines de millibars à l'altitude du prélèvement.

Au plafond le sectionneur libère la crépine tirée par le lest (13). L'air entre par la crépine en suivant la manche (7) et le ballon prend sa forme tétraédrique de structure. Quand le ballon-nasse est séparé du ballon porteur (19) il descend et la moindre surpression sur ses flancs aplatit la manche (7). L'air est emprisonné d'où le nom de ballon-nasse.

Quatre de ces ballons d'un volume de 300 m³ environ ont été lancés et ont parfaitement fonctionné au remplissage. Malheureusement le matériau actuel n'est pas suffisamment résistant pour le retour au sol ; aussi la mise au point de ce ballon-captteur continue. L'utilisation de vinyl avec armement de fil vinyl en quadrillage centrimétrique qui est actuellement envisagé pour les prochaines fabrications devrait permettre le retour au sol sans dommage.



L'ADSORBANT "TAMIS MOLECULAIRE"
ET
L'ABSORBANT "UZYRIT"
UTILISES POUR LA PREPARATION DES ECHANTILLONS.

B-1. LES TAMIS MOLECULAIRES (zéolithe).

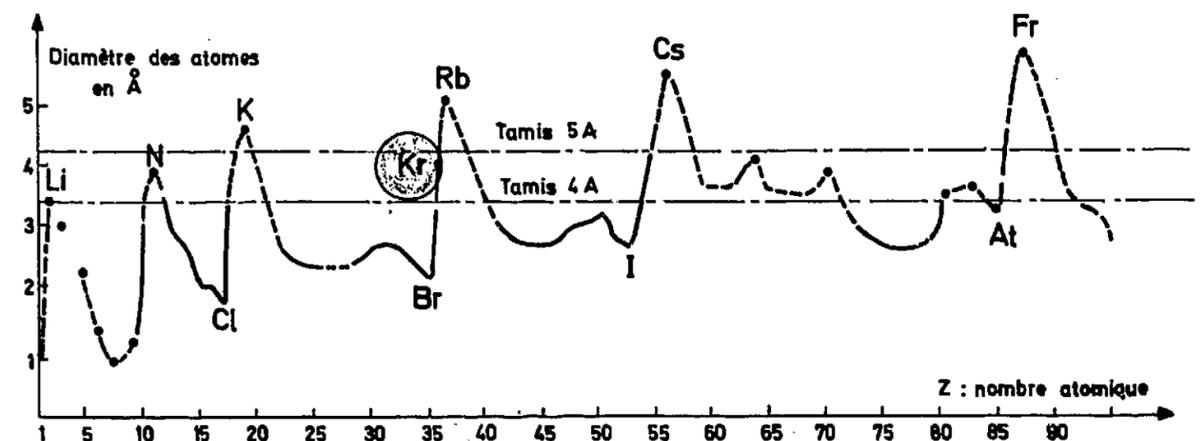
La zéolithe artificielle est un édifice à 3 dimensions de tétraèdres de SiO_2 et AlO_4 . L'électrovalence de tétraèdre contenant Al est équilibrée par l'inclusion dans le cristal d'un cation alcalin ou alcalino-terreux. Les espaces entre les tétraèdres sont occupés par des molécules d'eau [Bm-4].

On active la zéolithe par chauffage à 600°C environ, dans l'air, dans un gaz choisi, ou mieux, sous vide. On crée ainsi des canaux intersticiels par élimination de l'eau d'hydratation et qui n'acceptent pas de molécules plus grosses que leurs dimensions appelées mailles du tamis et qui sont par exemple de

3,5 Å pour la zéolithe type 4 A - $\text{Na}_{12} \left[(\text{AlO}_2)_{12} (\text{SiO}_2)_{12} \right] 27\text{H}_2\text{O}$ et de
4,2 Å pour la zéolithe type 5 A - $\text{Ca}_{12} \left[(\text{AlO}_2)_{12} (\text{SiO}_2)_{12} \right] 27\text{H}_2\text{O}$

que nous avons choisie par le krypton, diamètre atomique = diamètre moléculaire = 4,0 Å.

Graphique des valeurs des diamètres atomiques.



Cette action essentielle de tamisage caractérise les zéolithes par rapport aux autres adsorbants dont l'action sélective est fondée principalement sur le point d'ébullition et la température critique des adsorbats. Ceci est intéressant dans notre cas pour piéger le moins possible N_2 et O_2 avec le Kr.

Adsorbant	Température d'activation °C	Poids % adsorbé à -196°C	
		Oxygène à 7 mm Hg	Azote à 100 mm Hg
Charbon de bois	300	44	40
Gel de silice	175	19,9	24,9
Zéolithe sodique artificielle	350	24,1	0,6

Influence de quelques facteurs sur le comportement des zéolithes.

La zéolithe artificielle voit changer ses caractéristiques de tamisage, en particulier sa sélectivité, avec les variations de température. A la température de l'air liquide, soit environ -196°C, il y a adsorption de O_2 mais non sensiblement de N_2 . Aux températures plus hautes (-75° et plus) il y a adsorption de N_2 en plus grande quantité que de O_2 .

Adsorbant	Pression mm Hg	Températ. °C	Poids % adsorbé	Pression mm Hg	Températ. °C	Poids % adsorbé
O_2	100	-196	24,8	750	-75	4,8
N_2	700	-196	0,6	750	-75	10,6

Les zéolithes artificielles obtenues par échanges de Ca avec Mg ont des pores plus larges que ceux de la zéolithe sodique ; aussi, en plus des molécules absorbées par la zéolithe sodique, elle absorbent des molécules plus grosses. Ainsi à la température de l'air liquide, elles adsorbent la plupart des constituants de l'air (type 13 X).

Les résultats suivants sont donnés pour une zéolithe de 85 % de Ca obtenue à partir d'une zéolithe sodique.

Adsorbant	Température °C	Pression mm Hg	Poids % adsorbé sur CaA
Oxygène	-196	100	30,7
Azote	-196	700	23,9
Krypton	-196	0,007	15,2

Utilisations particulièrement intéressantes des adsorbants type tamis.

La capacité d'adsorption des zéolithes est encore élevée même quand la matière soumise à adsorption est en très faible concentration au sein d'un mélange.

On peut mettre à profit la forte adsorption de l'eau par la zéolithe à basse pression pour exclure l'eau d'un mélange ou au contraire pour la piéger quand elle se trouve à l'état de trace (prélèvements stratosphériques de vapeur d'eau).

D'autre part, à température ordinaire, la capacité d'adsorption de la zéolithe est beaucoup plus élevée pour CO_2 que pour CO , O_2 , N_2 , H_2 , CH_4 et Kr, mais il n'est pas retenu s'il y a de la vapeur d'eau.

Adsorbant	Températ. °C	Pression mm Hg	Poids % d'adsorbant				
			Na ₂ A	CaA	MgA	charbon	gel de silice
H_2O	25	0,02	12,5	13,7	-	0,4	0,7
	25	0,1	21,0	20,3	-	-	2,2
	25	4,5	25,3	27,3	29,8	2,7	11,4
	25		28,9	32,0	33,3	24,1	42,2
CO_2	25	1,6	5,9	5,9	5,3	0,5	0,5
	25	50	15,0	19,5	15,0	0,5	0,5
	25	730	18,9	24,4	22,2	10,0	4,6

Désorption et régénération (activation).

Pour désorber un adsorbat à partir de la zéolithe, on a recours généralement à une élévation de température ou à un abaissement de pression, de la pression partielle ou de la concentration de l'adsorbat en contact avec l'adsorbant, ou à une association de ces moyens ; mais ces conditions varient avec l'adsorbat. Un autre procédé consiste à déplacer l'adsorbat par adsorption d'un autre adsorbat plus fortement retenu : ainsi CH_4 déplace Kr.

La température et la pression d'activation de l'adsorbant influencent les caractéristiques de tamisage moléculaire de la zéolithe.

Température d'activation - Pression < 0,01 mm Hg	Poids % de O_2 adsorbé sur Na_2 à - 196° C sous 13 mm Hg
150 °C	0,3
350 °C	20,8

L'échantillon de zéolithe activé à la température la plus faible n'adsorbe par l'oxygène alors que l'échantillon activé à la température la plus élevée l'adsorbe. Ceci a lieu bien que les 2 échantillons adsorbent plus de 24 % en poids d'eau à 25°C sous 24 mm de pression de vapeur d'eau.

Aussi,

l'ensemble des propriétés précitées, bon piégeage du Kr même sous faible pression partielle, bon effet de tamisage pour éliminer le plus possible O_2 et N_2 ... etc a conduit au choix du tamis 5A pour le banc d'enrichissement en Kr ; la désorption se fait jusqu'à 150°C et la régénération à 350°C.

REMARQUES :

- Prix des tamis moléculaires \approx 30 F. le kg H.T.
- Nous ne donnons pas d'isothermes car ils dépendent beaucoup des conditions expérimentales. Dans la pratique, seules les tendances doivent être connues.

B-II - ABSORBANT UZYRIT (nombre égal d'atomes de Zr et de Ti). (soit Zr - Ti)

(C'est à la demande du C.E.A. qu'UGINE a mis au point la fabrication de l'alliage équi-atomique Zr - Ti)

Le zirconium et le titane sont deux métaux qui présentent chacun une grande affinité pour les gaz tels que l'oxygène, l'azote et, dans certaines conditions, l'hydrogène. Cependant l'alliage équi-moléculaire a une affinité bien plus grande (par exemple l'oxydation de Zr conduit à une couche protectrice d'oxyde alors que celle du Zr-Ti concerne toute la masse car l'oxyde de Zr-Ti est pulvérulent).

L'alliage UZYRIT se présente parfois sous forme de fils ou de tôle mais le plus souvent sous forme de copeaux : par exemple les copeaux d'UZYRIT-10 de densité 1, ceux d'UZYRIT-25 de densité 1,5 et ceux d'UZYRIT-50 de densité 2.

Les copeaux les plus fins, c'est-à-dire UZYRIT-10, absorbent le plus rapidement. Notre expérience limitée à l'utilisation de l'uzyrit pour l'isolement des gaz rares dans une enceinte a donné les résultats suivants :

Caractéristiques :

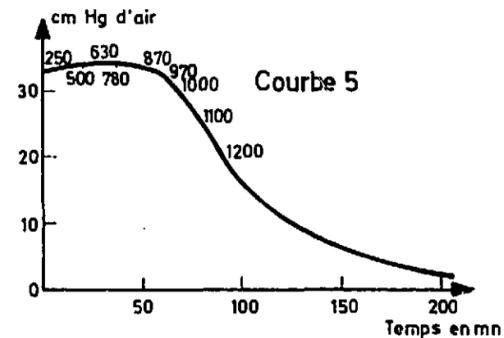
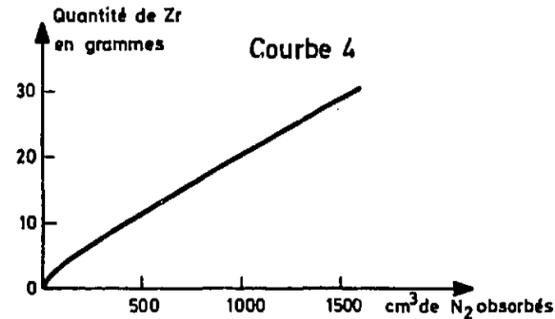
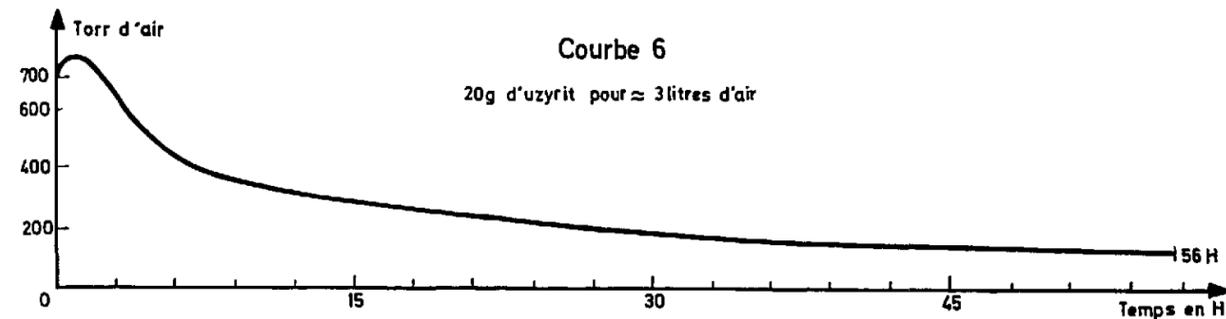
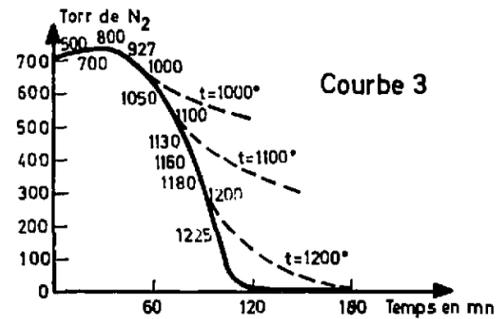
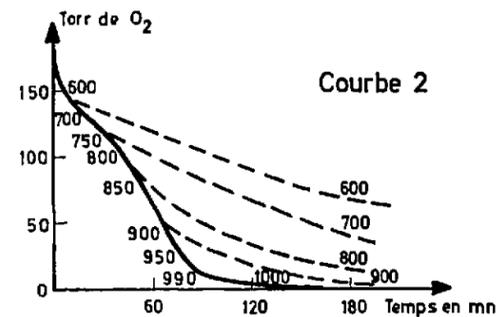
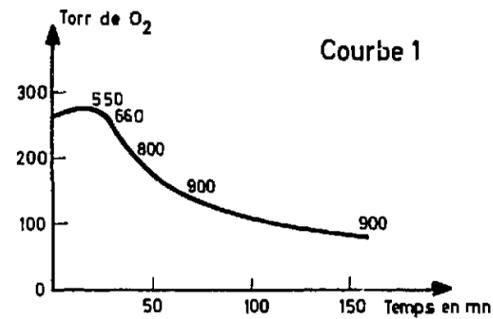
Enceinte : volume 1 litre + 3 volumes d'expansion auxiliaires de 1 litre chacun - partie chaude de l'enceinte : tube en pythagoras situé au milieu et dont le volume pouvant être porté à 1 200 °C est de \approx 100 cm³. Les lectures de températures se font avec un pyromètre Leboeuf et thermocouple Platine-Platine rhodié, les lectures de pression avec un manomètre à mercure.

Une série des résultats que nous avons obtenus avec des gaz purs est traduite par les courbes suivantes :

Légende .

Courbe n°1 - On a placé 2 g d'uzyrit et un excès d' O_2 . La quantité d' O_2 absorbée est stoechiométrique.

Courbe n°2 - On introduit 360 mm d' O_2 soit \approx 2 g pour 10 g d'uzyrit, à 500° et on monte en température. Après une absorption quasi - instantanée au début on voit que la vitesse d'absorption décroît mais que cette vitesse est fonction de la température. Les courbes en tirets figurent l'absorption isotherme.



Courbe n° 3 - Absorption de N_2 en fonction de la température. La partie quasi-rectiligne de $1000^\circ C$ à $1250^\circ C$ représente l'alignement des points inflexionnels des courbes d'absorption à température constante.

Courbe n° 4 - La quantité d'azote absorbée est plus petite que la quantité stoechiométrique. Cette courbe représente les quantités minimales d'uzyril qu'il faut pratiquement prévoir (absorption moins de 6 heures) car en fait l'absorption se prolongerait longtemps mais de plus en plus faible.

Courbe n° 5 - Cette absorption représente celle de 690 cm^3 d'air par 28 g d'uzyril lors d'une montée en température jusqu'à 1200° . Il y a un résidu de $\approx 1\%$ de la pression initiale qui correspond à la présence de l'argon non absorbé.

Courbe n° 6 - Cette courbe représente l'absorption de près de 3 litres d'air par 20 g d'uzyril. Quoique faible après quelques heures elle se prolonge longtemps.

Pour le traitement de nos échantillons nous montons en température jusqu'à $1100^\circ - 1150^\circ$ et même $1200^\circ C$. Mais l'absorption est très capricieuse. Elle varie de quelques heures à une journée. L'aspect de l'uzyril usé est également changeant. Il y a toujours des copeaux qui ont l'aspect terne du zinc oxydé ; parfois il y a des copeaux à l'aspect bleu-noir, bleu de nuit, mordoré et même violet, des copeaux dorés (comme des copeaux de bronze), des copeaux d'un beau noir velouté (dépôt de carbone) (figure couleur). Mais il est vrai que l'analyse spectrométrique de nos échantillons ne révélait pas toujours la même composition. Toutefois le reliquat gazeux comprend uniquement des gaz rares.

Précautions.

Si on porte l'uzyril à $600^\circ C$, dans l'air, il y a auto-combustion de l'alliage : le métal se consume entièrement, sans flamme, hors de toute source de chaleur (cette combustion porte l'alliage à $1000^\circ C$). Il faut donc éviter toute entrée d'air intempestive sur des copeaux chauds.

Il faut éviter la formation de l'eutectique Zr-Fe à $934^\circ C$ si on utilise du fer.

ANALYSE STATISTIQUE D'UNE MESURE DE RADIOACTIVITEDU KRYPTON-85 - PRECISION DE LA MESURE.

- Nous avons consulté les documents spécialisés [Bt-2, Bv-2, Bm-1, Bm-2]

Nous enregistrons un nombre "N" de fois, au moins une centaine, le nombre x_i d'impulsions observées sur une période de 10 minutes. Ce nombre x_i est de l'ordre de quelques centaines et par suite la loi de distribution supposée, s'il s'agit bien d'une expression de mesure radioactive, est une loi de POISSON sensiblement symétrique ; cette loi de distribution peut alors être assimilée à une loi de GAUSS particulière dont la variance est égale à la moyenne. La valeur moyenne des nombres d'impulsions par unité de temps est distribuée suivant une loi de GAUSS de moyenne vraie x^* estimée par la valeur expérimentale $\bar{x} = \frac{\sum x_i}{N}$ qui est aussi égale à la variance.

Exemple :

Nous prenons comme exemple une mesure des moins favorables car elle a donné un comptage faible.

Cette mesure a été effectuée en ≈ 1100 minutes et s'est traduite par 107 mesures partielles imprimées par une machine toutes les 10 minutes.

Nous prenons les 100 dernières qui figurent dans l'ordre d'apparition sur le graphique n°1 et dans la 2ème colonne du tableau 1.

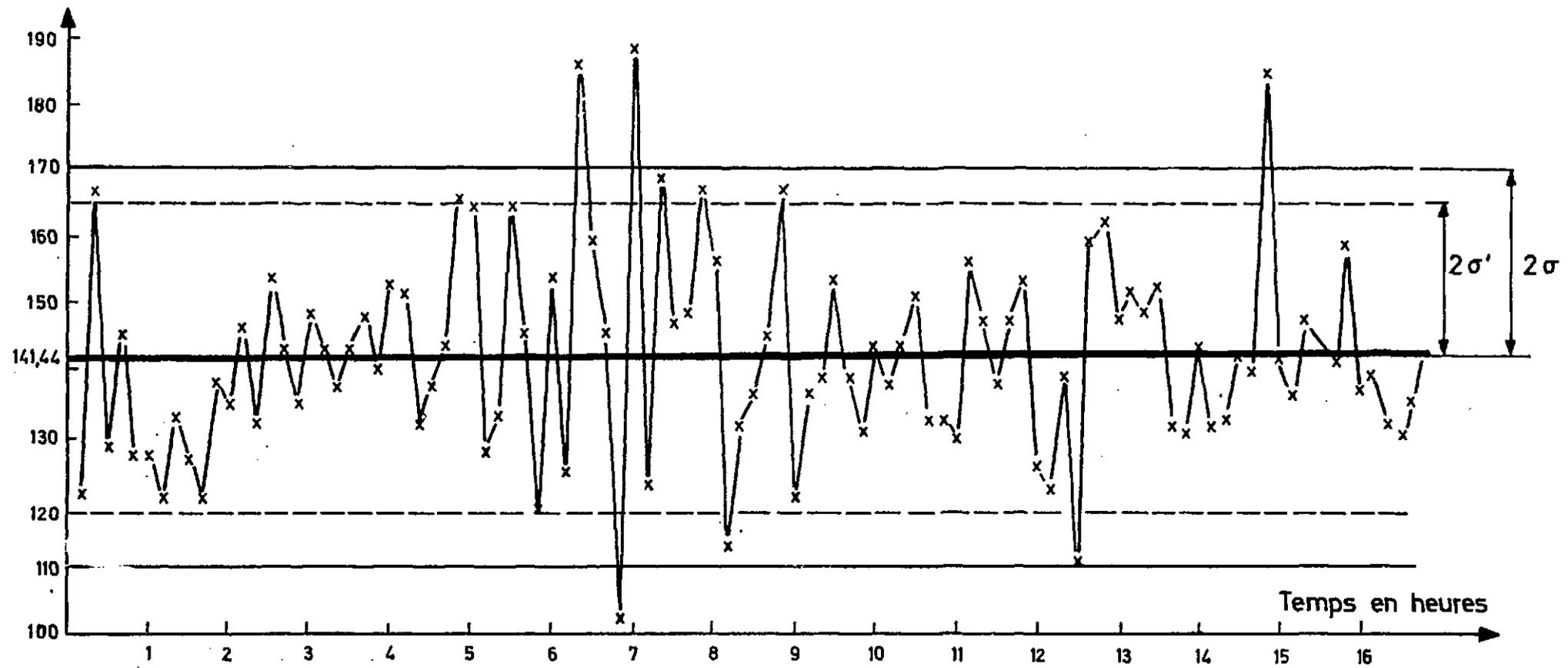
Dans ce tableau on a calculé la valeur $\bar{x} = \frac{\sum x_i}{N}$ qui donne sur cet exemple $\bar{x} = 141,44$.

On a calculé également la variance en utilisant l'expression

$$\sigma^2 = \frac{\sum (x_i - \bar{x})^2}{N-1}$$

valable pour toutes les lois de distribution. On obtient de cette façon pour la valeur $\sigma = 15,6$ au lieu de $\sigma' = \sqrt{141,44} \approx 12$, écart-type estimé en admettant une loi de distribution gaussienne. On voit sur le graphique n°1 que l'estimation expérimentale σ épouse mieux que celle de σ' la distribution observée mais la différence de ces estimations n'est pas suffisante pour qu'on puisse envisager un écart significatif à la loi de distribution supposée.

Tout de même nous allons procéder à quelques vérifications.



Graphique n° I

Tableau 1

Echantillon n° 18.613

Rang	x_i	x_i^2	Rang	x_i	x_i^2	Rang	x_i	x_i^2
1	121	14 650	36	153	23 450	66	129	16 650
2	167	27 880	37	124	15 380	67	161	25 530
3	128	16 380	38	186	34 600	68	147	21 620
4	145	21 020	39	159	25 300	69	137	18 770
5	127	16 120	40	145	21 020	70	147	21 620
6	127	16 120	41	102	10 400	71	153	23 450
7	120	14 400	42	188	35 350	72	125	15 620
8	133	17 700	43	122	14 890	73	121	14 630
9	126	15 880	44	169	28 600	74	139	19 330
10	120	14 400	45	147	21 620	75	111	12 320
11	138	19 050	46	148	21 200	76	158	25 300
12	134	17 980	47	167	27 880	77	162	26 150
13	146	21 320	48	156	24 350	78	147	21 620
14	132	17 420	49	113	12 780	79	151	22 800
15	153	23 450	50	131	17 180	80	148	21 900
16	143	20 450	51	136	18 500	81	152	23 100
17	135	18 250	52	145	21 020	82	131	17 180
18	148	21 900	53	167	27 880	83	130	16 900
19	143	20 450	54	120	14 400	84	143	20 450
20	137	18 770	55	136	18 500	85	131	17 180
21	143	20 450	56	138	19 050	86	132	17 420
22	146	21 320	57	153	23 450	87	142	20 150
23	140	19 620	58	138	19 050	88	129	16 650
24	153	23 450	59	130	16 900	89	154	33 850
25	151	22 800	60	143	20 450	90	141	19 880
26	131	17 180	61	137	18 770	91	135	18 250
27	137	18 770	62	143	20 450	92	147	21 620
28	143	20 450	63	151	22 800	93	144	20 730
29	166	27 550	64	132	17 420	94	141	19 880
30	164	26 900	65	132	17 420	95	158	24 950
31	127	16 120				96	136	18 500
32	133	17 700				97	139	19 330
33	164	26 900				98	131	17 180
34	145	21 020				99	129	16 650
35	118	13 930				100	135	18 250

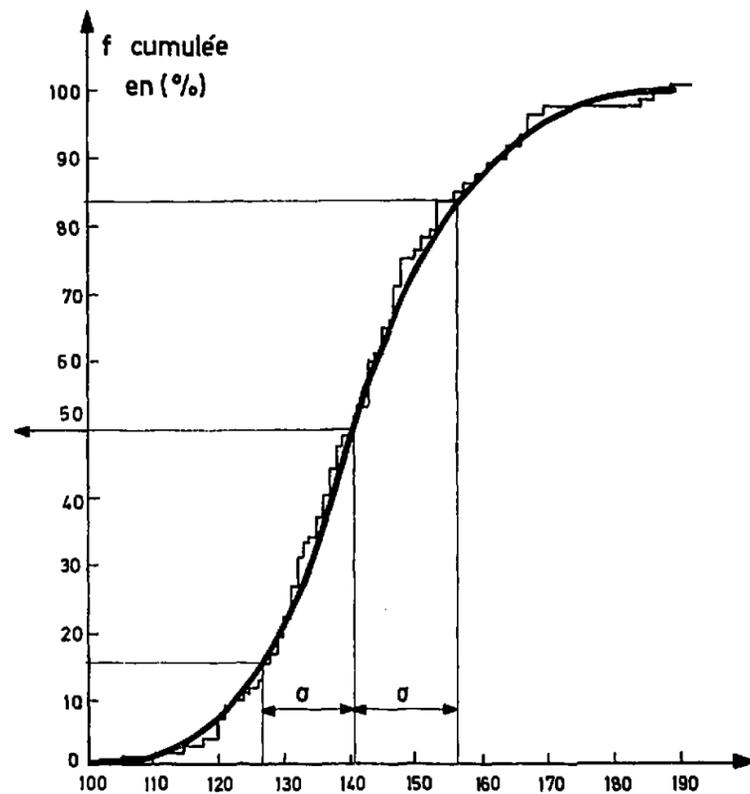
$$\Sigma x_i = 141,44$$

$$\bar{x} = \frac{\Sigma x_i}{N} = 141,44$$

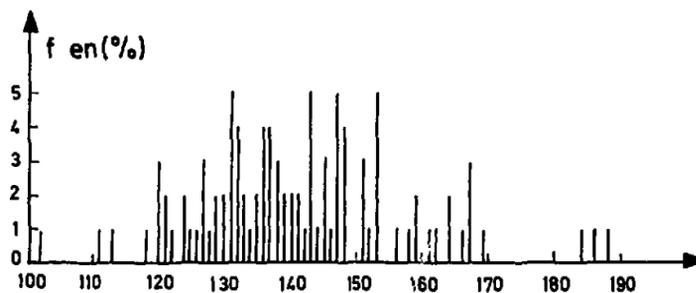
$$\Sigma x_i^2 = 2 024.360$$

$$\sigma^2 = \frac{\Sigma (x_i - \bar{x})^2}{N-1} = \frac{\Sigma x_i^2 - N\bar{x}^2}{N-1} = \frac{2.023.860 - 2.000.527}{99} = 237,1$$

$$\sigma = 15,4$$



graph.2b. Histogramme cumulé



graph. 2a _ Histogramme individuel

Nous pouvons ranger les résultats : une première méthode pour ranger les individus de valeurs différentes consiste à dresser l'histogramme.

Le graphique 2a représente l'histogramme des fréquences individuelles des valeurs et le graphique 2b l'histogramme cumulé (fréquence des valeurs \leq).

Droite de HENRY.

Par anamorphose on transforme la fonction de répartition de telle sorte qu'elle soit une droite appelée "Droite de Henry" dans le cas d'une loi normale. Sous cette forme il est facile de vérifier si la répartition observée suit bien une répartition gaussienne.

Les valeurs observées et leur fréquence cumulée sont reportées sur un graphique gaucho-arithmétique (graphique n°3) qui permet de lire la valeur centrale ≈ 141 (ordonnée 0,50) et l'écart-type correspondant (ordonnée 0,16 et 0,84 : intervalle 0,68) qu'on peut également retrouver sur l'histogramme (graphique 2b).

REMARQUES :

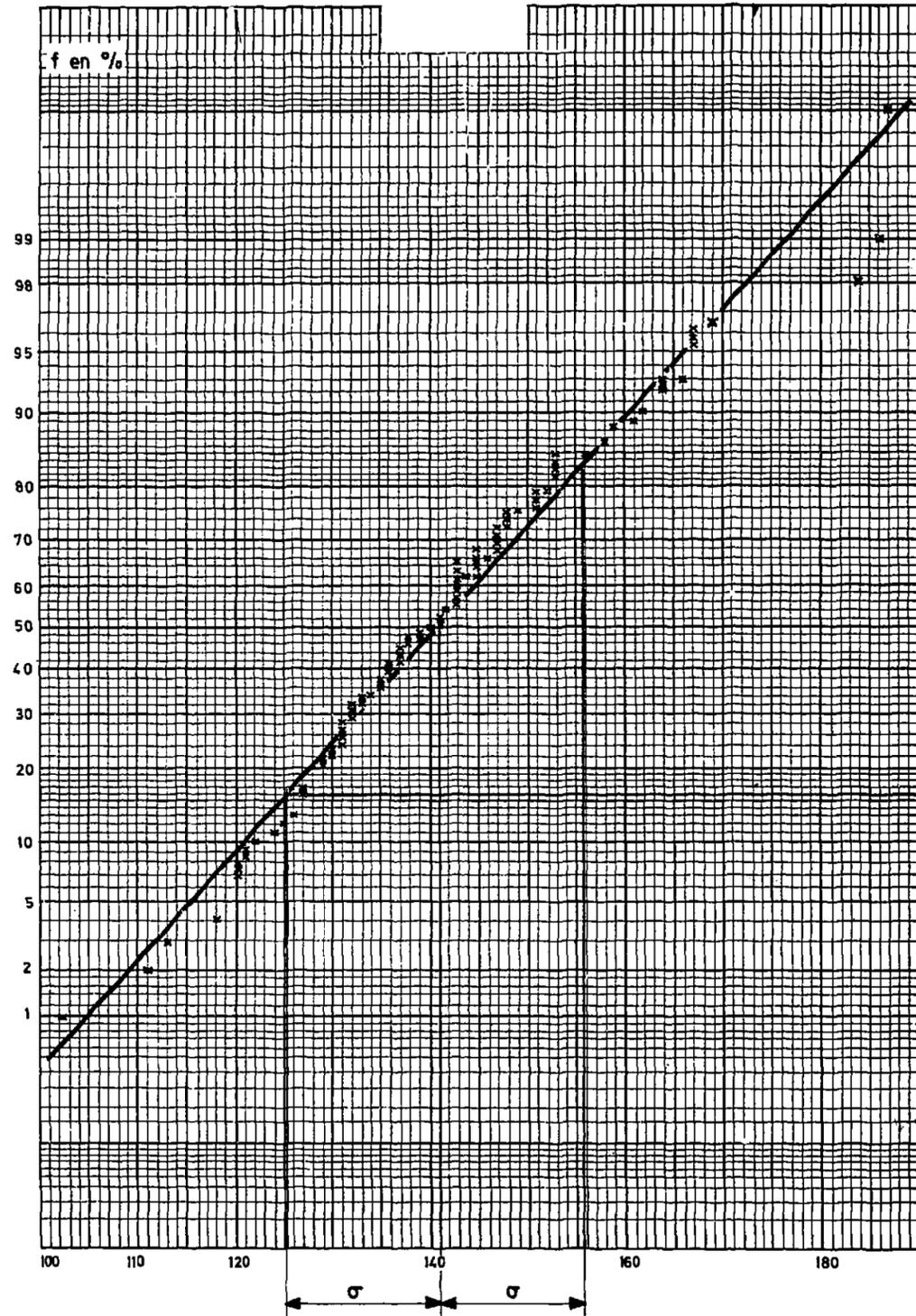
1) La fréquence 100 % n'existe pas sur la papier gradué aussi pour le dernier point on majore arbitrairement de 1 la population, étant entendu que les cas extrêmes ne sont pas pris en considération.

2) Nous ne sommes pas absolument à l'abri d'impulsions parasites malgré les précautions prises et il nous arrive de supprimer dans une série une ou deux valeurs que nous considérons comme aberrantes non statistiquement mais physiquement, électroniquement ; nous les remplaçons par les deux suivantes prises sur notre série de mesures.

Sur le graphique n°3 on voit que l'écart des mesures à une loi nominale (droite de Henry) est faible.

Cette méthode de la droite de Henry ne peut être considérée que comme une vérification rapide de normalité mais pour avoir la certitude de la normalité il faut avoir recours à un test plus précis, par exemple celui de χ^2 .

Mais auparavant nous allons grouper les résultats par classe. C'est ce que l'on fait quand l'échantillon comporte plus d'une cinquantaine d'individus. On adopte généralement un nombre de classes $\approx 5 \lg N$, soit ici $5 \lg 100 = 10$ classes qui apparaissent sur les histogrammes, par classe et cumulé, du graphique n°4 et dans le tableau n°2.



Graphique n° 3

Dans le cas du groupement par classe on trouve pour la variance :

$$\sigma^2 = \frac{\sum x_i^2 y_i}{\sum y_i - 1} - \frac{(\sum x_i y_i)^2}{\sum y_i (y_i - 1)} = 233,5 \text{ et pour } \sigma = 15,3$$

Tableau 2.

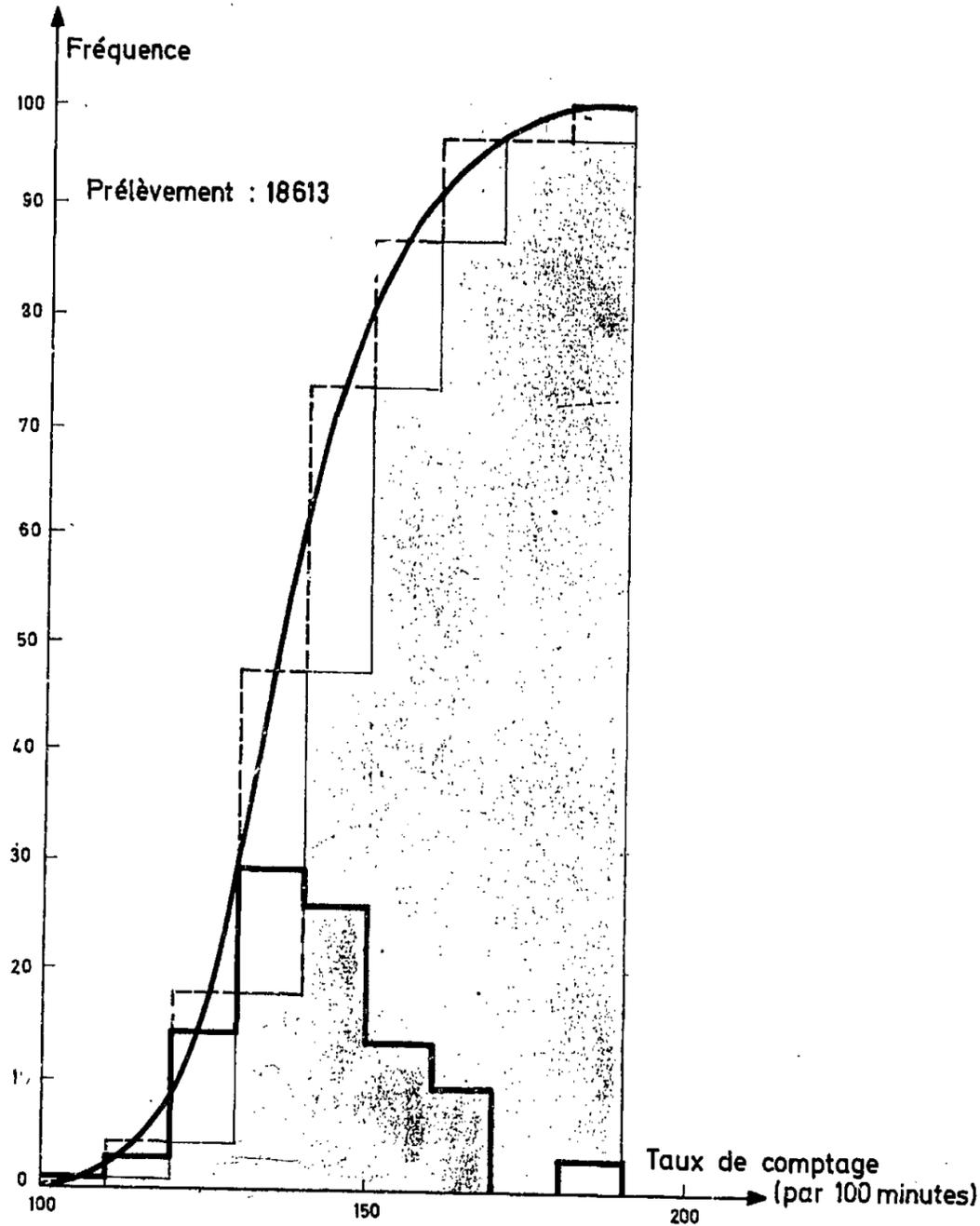
Classe	Intervalle	Valeur moyenne x_i	Effectif		Valeur pondérée $x_i y_i$	$x_i^2 y_i$
			obs. y_i	théor.		
1	$x_i \leq 102$		0	0,5	0	0
2	$102 < x_i \leq 112$	106,5	2	2,11	213	22.684,50
3	$112 < x_i \leq 122$	119,00	7	7,59	833	99.117,00
4	$122 < x_i \leq 132$	128,12	18	16,56	2.308	295.926,66
5	$132 < x_i \leq 142$	136,12	25	24,68	3.403	463.216,25
6	$142 < x_i \leq 152$	145,88	26	24,05	3.793	553.305,22
7	$152 < x_i \leq 162$	155,45	11	15,54	1.710	265.811,70
8	$162 < x_i \leq 172$	165,75	8	6,68	1.326	219.784,48
9	$172 < x_i \leq 182$	0	0	1,89	0	0
10	$182 < x_i \leq 192$	186,00	3	0,34	558	103.788,00

$$\sum x_i y_i = 14.144$$

$$\sum x_i^2 y_i = 2.023.643,81$$

$$(\sum x_i y_i)^2 = 2.000.618,40$$

Les effectifs théoriques des classes dans l'hypothèse de normalité s'obtiennent en multipliant l'effectif total N de l'échantillon par les probabilités données par la table n°1 en fonction de l'intervalle réduit de classe.



Graphique n°4

Exemple : effectif théorique de la classe 122-132

$$\text{Variables réduites } U = \frac{x_i - \bar{x}}{\sigma} \quad U_{122} = \frac{122 - 141,44}{15,3} = -1,270$$

$$U_{132} = \frac{132 - 141,44}{15,3} = -0,620$$

La fréquence cumulée pour

$$U = -1,270 \text{ est } F(-1,270) = 1 - F(1,270) = 1 - 0,8980$$

$$F(-1,270) = 0,1020 \quad F(1,270) = 0,8980 \text{ est lu sur la table n°1}$$

et celle pour $U = -0,620$ est $F(-0,620) = 1 - F(0,620) = 1 - 0,7324$

$$F(-0,620) = 0,2676.$$

Donc l'effectif théorique de la classe 122-132 est :

$$(0,2676 - 0,1020) \times 100 = 16,56.$$

Cette valeur est inscrite dans la 5^{ème} colonne du tableau 2 où l'on constate une légère différence pour les classes supérieures entre l'effectif observé et l'effectif théorique.

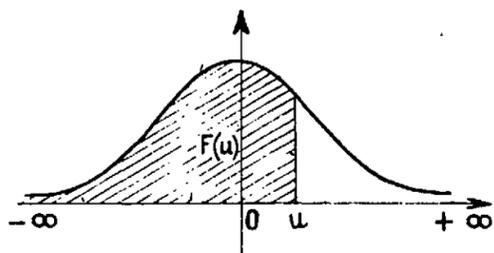
Test de χ^2 .

Ces écarts sont-ils explicables par les seules fluctuations d'échantillonnage ? La réponse est donnée par le test de χ^2 , somme des carrés spécifiques des écarts entre effectif observé N_i et effectif théorique N'_i .

$$\chi^2_{\text{obs}} = \frac{\sum (N_i - N'_i)^2}{N'_i}$$

Si la valeur effectivement trouvée χ^2_{obs} dépasse la valeur théorique χ^2 correspondant à un seuil de signification α , on conclut qu'il y a écart significatif entre la distribution théorique et celle observée.

TABLE N°1 FONCTION DE REPARTITION DE LA LOI NORMALE REDUITE (Probabilité de trouver une valeur inférieure à u)



u	0,00	0,01	0,02	0,03	0,04	0,05	0,06	0,07	0,08	0,09
0,0	0,5000	0,5040	0,5080	0,5120	0,5160	0,5199	0,5239	0,5279	0,5319	0,5359
0,1	0,5398	0,5438	0,5478	0,5517	0,5557	0,5596	0,5636	0,5675	0,5714	0,5753
0,2	0,5793	0,5832	0,5871	0,5910	0,5948	0,5987	0,6026	0,6064	0,6103	0,6141
0,3	0,6179	0,6217	0,6255	0,6293	0,6331	0,6368	0,6406	0,6443	0,6480	0,6517
0,4	0,6554	0,6591	0,6628	0,6664	0,6700	0,6736	0,6772	0,6808	0,6844	0,6879
0,5	0,6915	0,6950	0,6985	0,7019	0,7054	0,7088	0,7123	0,7157	0,7190	0,7224
0,6	0,7257	0,7290	0,7324	0,7357	0,7389	0,7422	0,7454	0,7486	0,7517	0,7549
0,7	0,7580	0,7611	0,7642	0,7673	0,7704	0,7734	0,7764	0,7794	0,7823	0,7852
0,8	0,7881	0,7910	0,7939	0,7967	0,7995	0,8023	0,8051	0,8078	0,8106	0,8133
0,9	0,8159	0,8186	0,8212	0,8238	0,8264	0,8289	0,8315	0,8340	0,8365	0,8389
1,0	0,8413	0,8438	0,8461	0,8485	0,8508	0,8531	0,8554	0,8577	0,8599	0,8621
1,1	0,8643	0,8665	0,8686	0,8708	0,8729	0,8749	0,8770	0,8790	0,8810	0,8830
1,2	0,8849	0,8869	0,8888	0,8907	0,8925	0,8944	0,8962	0,8980	0,8997	0,9015
1,3	0,9032	0,9049	0,9066	0,9082	0,9099	0,9115	0,9131	0,9147	0,9162	0,9177
1,4	0,9192	0,9207	0,9222	0,9236	0,9251	0,9265	0,9279	0,9292	0,9306	0,9319
1,5	0,9332	0,9345	0,9357	0,9370	0,9382	0,9394	0,9406	0,9418	0,9429	0,9441
1,6	0,9452	0,9463	0,9474	0,9484	0,9495	0,9505	0,9515	0,9525	0,9535	0,9545
1,7	0,9554	0,9564	0,9573	0,9582	0,9591	0,9599	0,9608	0,9616	0,9625	0,9633
1,8	0,9641	0,9649	0,9656	0,9664	0,9671	0,9678	0,9686	0,9693	0,9699	0,9706
1,9	0,9713	0,9719	0,9726	0,9732	0,9738	0,9744	0,9750	0,9756	0,9761	0,9767
2,0	0,9772	0,9779	0,9783	0,9788	0,9793	0,9798	0,9803	0,9808	0,9812	0,9817
2,1	0,9821	0,9826	0,9830	0,9834	0,9838	0,9842	0,9846	0,9850	0,9854	0,9857
2,2	0,9861	0,9864	0,9868	0,9871	0,9875	0,9878	0,9881	0,9884	0,9887	0,9890
2,3	0,9893	0,9896	0,9898	0,9901	0,9904	0,9906	0,9909	0,9911	0,9913	0,9916
2,4	0,9918	0,9920	0,9922	0,9925	0,9927	0,9929	0,9931	0,9932	0,9934	0,9936
2,5	0,9938	0,9940	0,9941	0,9943	0,9945	0,9946	0,9948	0,9949	0,9951	0,9952
2,6	0,9953	0,9955	0,9956	0,9957	0,9959	0,9960	0,9961	0,9962	0,9963	0,9964
2,7	0,9965	0,9966	0,9967	0,9968	0,9969	0,9970	0,9971	0,9972	0,9973	0,9974
2,8	0,9974	0,9975	0,9976	0,9977	0,9977	0,9978	0,9979	0,9979	0,9980	0,9981
2,9	0,9981	0,9982	0,9982	0,9983	0,9984	0,9984	0,9985	0,9985	0,9986	0,9986

Table pour les grandes valeurs de u

u	3,0	3,1	3,2	3,3	3,4	3,5	3,6	3,8	4,0	4,5
F(u)	0,99865	0,99904	0,99931	0,99952	0,99966	0,99976	0,999841	0,999928	0,999968	0,999997

Nota - La table donne les valeurs de F(u) pour u positif. Lorsque u est négatif il faut prendre le complément à l'unité de la valeur lue dans la table.

Exemple . pour u = 1,37 F(u) = 0,9147
pour u = - 1,37 F(u) = 0,0853

Si $\chi^2_{obs.} < \chi^2_{théor.}$ on conclut qu'il n'y a pas désaccord.

Exemple :

Pour avoir une approximation suffisante il faut que les effectifs théoriques des classes soient ≥ 5 ; aussi nous groupons les classes extrêmes ce qui ramène à r = 6 le nombre des classes ; d'où le tableau 3 qui donne 2,22 pour le $\chi^2_{obs.}$

Tableau 3

Classe	Effectif observé N_i	Effectif théorique N'_i	$(N_i - N'_i)^2$	$\frac{(N_i - N'_i)^2}{N'_i}$
1 à 3	9	10,20	1,44	0,1411
4	18	16,56	2,073	0,1252
5	25	24,08	0,102	0,0041
6	26	24,05	3,802	0,1581
7	11	15,54	20,610	1,3263
8 à 10	11	8,91	4,368	0,4902

$$\chi^2_{obs} = \frac{\sum (N_i - N'_i)^2}{N'_i} = 2,2450$$

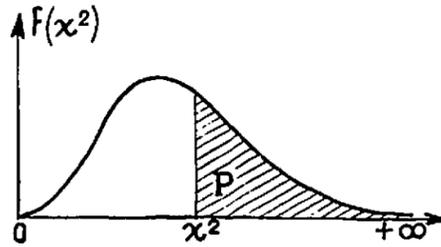
Ensuite la table n°2 donne la valeur du χ^2 théorique en fonction du nombre de degrés de liberté ($v = r - 3$ dans le cas d'une distribution normale) et du seuil de signification α [ou probabilité que $P(\chi^2_{th} > \chi^2_{\alpha}) = \alpha$].

On a ici $v = 6 - 3 = 3$ degrés de liberté et par exemple pour le seuil de signification $\alpha = 0,05$ la valeur du χ^2 théorique, $\chi^2_{\alpha} = 7,81$; soit $P(\chi^2 > 7,81) = 0,05$. Le χ^2 observé (2,24) est bien plus petit que le $\chi^2_{\alpha} = 7,81$. Le χ^2 observé correspond à peu près à un $\chi^2_{0,55}$ donc voisin de la médiane.

TABLE N°2

TABLE DE DISTRIBUTION DE χ^2
(Loi de K. Pearson)

Valeurs de χ^2 ayant la probabilité P d'être dépassées



ν	0,990	0,975	0,950	0,900	0,100	0,050	0,025	0,010	0,001
1	0,0002	0,0010	0,0039	0,0158	2,71	3,84	5,02	6,63	10,83
2	0,02	0,05	0,10	0,21	4,61	5,99	7,38	9,21	13,82
3	0,12	0,22	0,35	0,58	6,25	7,81	9,35	11,34	16,27
4	0,30	0,48	0,71	1,06	7,78	9,49	11,14	13,28	18,47
5	0,55	0,83	1,15	1,61	9,24	11,07	12,83	15,09	20,52
6	0,87	1,24	1,64	2,20	10,64	12,59	14,45	16,81	22,46
7	1,24	1,69	2,17	2,83	12,02	14,07	16,01	18,47	24,32
8	1,65	2,18	2,73	3,49	13,36	15,51	17,53	20,09	26,13
9	2,09	2,70	3,33	4,17	14,68	16,92	19,02	21,67	27,88
10	2,56	3,25	3,94	4,87	15,99	18,31	20,48	23,21	29,59
11	3,05	3,82	4,57	5,58	17,27	19,67	21,92	24,72	31,26
12	3,57	4,40	5,23	6,30	18,55	21,03	23,34	26,22	32,91
13	4,11	5,01	5,89	7,04	19,81	22,36	24,74	27,69	34,53
14	4,66	5,63	6,57	7,79	21,06	23,68	26,12	29,14	36,12
15	5,23	6,26	7,26	8,55	22,31	25,00	27,49	30,58	37,70
16	5,81	6,91	7,96	9,31	23,54	26,30	28,84	32,00	39,25
17	6,41	7,56	8,67	10,08	24,77	27,59	30,19	33,41	40,79
18	7,01	8,23	9,39	10,86	25,99	28,87	31,53	34,80	42,31
19	7,63	8,91	10,12	11,65	27,20	30,14	32,85	36,19	43,82
20	8,26	9,59	10,85	12,44	28,41	31,41	34,17	37,57	45,32
21	8,90	10,28	11,59	13,24	29,61	32,67	35,48	38,93	46,80
22	9,54	10,98	12,34	14,04	30,81	33,92	36,78	40,29	48,27
23	10,20	11,69	13,09	14,85	32,01	35,17	38,08	41,64	49,73
24	10,86	12,40	13,85	15,66	33,20	36,41	39,37	42,98	51,18
25	11,52	13,12	14,61	16,47	34,38	37,65	40,65	44,31	52,62
26	12,20	13,84	15,38	17,29	35,56	38,88	41,92	45,64	54,05
27	12,88	14,57	16,15	18,11	36,74	40,11	43,19	46,96	55,48
28	13,57	15,31	16,93	18,94	37,92	41,34	44,46	48,28	56,89
29	14,26	16,05	17,71	19,77	39,09	42,56	45,72	49,59	58,30
30	14,95	16,79	18,49	20,60	40,26	43,77	46,98	50,89	59,70

Lorsque $\nu > 30$ on peut admettre que la quantité $\sqrt{2\chi^2} - \sqrt{2\nu - 1}$ suit la loi normale réduite.

Exemple

Calculer la valeur de χ^2 correspondant à une probabilité $P = 0,10$ de dépassement lorsque $\nu = 41$. La Table 2-2 donne, pour $P = 0,10$, $u = 1,2816$. D'où :

$$\chi^2 = \frac{[u + \sqrt{2\nu - 1}]^2}{2} = \frac{1}{2} [1,2816 + \sqrt{82 - 1}]^2 = \frac{1}{2} (10,2816)^2 = 52,85$$

Dans notre cas le test de χ^2 est hautement significatif et ne rejette pas l'hypothèse, celle d'une loi de POISSON assimilable à une loi de GAUSS.

Le même test de χ^2 appliqué avec l'hypothèse de la distribution de POISSON conduit également à une réponse hautement significative.

On accepte donc l'hypothèse :

PRECISION DE LA MESURE.

L'hypothèse d'une loi de POISSON assimilable à une loi de GAUSS étant acceptée l'abaque universel de comptage radioactif donne immédiatement les éléments de détermination de la précision.

Exemple :

Nous avons un taux de comptage C_2 de l'échantillon, $C_2 = 14,14$ impulsions par minute et un taux de comptage C_1 du bruit de fond, $C_1 = 3,99$ i/mn.

Pour $C_2/C_1 \approx 3,5$ en suivant le cheminement indiqué on lit qu'on a un pourcentage d'erreur probable de 5% pour la quasi-certitude si on compte $\approx 12\ 000$ impulsions pour l'échantillon et $\approx 1\ 600$ pour le bruit de fond.

Or, on compte 14 144 impulsions pour l'échantillon et plus de 1 600 pour le bruit de fond : le pourcentage d'erreur probable est donc légèrement meilleur que 5% (=4,7%). Soit :

$$\text{Prob} \left[(14,14 - 3,99) \frac{95}{100} < \text{valeur vraie} < (14,14 - 3,99) \frac{105}{100} \right] = 0,998$$

Comme cet échantillon est un des moins peuplés, nous pouvons dire que toutes nos mesures sont données avec une erreur < 5% pour la quasi-certitude.

Remarque :

Nous lisons sur l'abaque que la précision correspond à 5% pour la quasi-certitude (Prob = 0,998) (point A) est de $\approx 1,6\%$ pour (point B) la Probabilité = 0,68 dont on se sert souvent parce que elle correspond à l'écart-type; mais cette habitude risque d'introduire des idées fallacieuses sur la précision des mesures.

COMPTAGE en RADIOACTIVITE

MODL D'EMPLOI

Abaque de G. BALLOT
Centre d'Etudes nucléaires de Saclay

Cet abaque donne le pourcentage d'erreur (V) de probabilité 0,998 sur la valeur estimée du taux net C = C2 - C1 lorsque la somme des temps de comptage t1 + t2 est minimum, dans le cas d'une loi de Poisson sensiblement symétrique, c'est-à-dire pour des nombres N1 et N2 supérieurs à 100

NOTATIONS

C1 = N1/t1 : taux de comptage du bruit de fond de l'appareil de mesure; N1 impulsions comptées pendant un temps t1 (généralement en minutes).
C2 = N2/t2 : taux de comptage du bruit de fond associé au corps radioactif étudié; N2 impulsions comptées pendant un temps t2.
C = C2 - C1 : taux de comptage net estimé
V : pourcentage d'erreur probable sur la valeur estimée C.
R = C2/C1 : rapport des taux
N1 ex : N1 expérimental (noté N1 ex)
N1 th : N1 théorique (noté N1 th)
N1 th est fixé par l'abaque en fonction de R, N2 et est tel que la somme t1 + t2 est minimum à V fixé.

I. — ERREUR PROBABLE (V) SUR LA VALEUR DU TAUX NET ESTIMÉ (C)

Soient les valeurs expérimentales : N1 = 1 302 ; t1 = 30 mn d'où C1 = 50 c/mn; N2 = 3 120 ; t2 = 40 mn d'où C2 = 78 c/mn. Le taux net est : C = C2 - C1 = 78 - 50 = 28 c/mn. Pour déterminer l'erreur en pourcentage de C : 1° Calculer le rapport R = C2/C1 = 1,56; 2° Pointer 1,56 sur la droite en N1 (échelle du rapport R) et mener la verticale jusqu'à la courbe en N2; 3° Effectuer d'abord une translation horizontale à partir de ce point, puis à 45° (cheminement tracé en vert), noter l'intersection avec la verticale d'abscisse : N2 = 3 120 (lue sur l'échelle inférieure) et soit l'ordonnée : V = 20% (échelle V à 45°). Le taux net C est estimé à 20% près : C = 28 c/mn ± 5,6 c/mn, avec la probabilité 0,998. On écrit : Prob (22,4 c/mn < C < 33,6 c/mn) = 0,998. L'intervalle ainsi défini a une probabilité 0,998 (quasi-certitude) de recouvrir la vraie valeur C. On ignore, si le bruit de fond C1 a été déterminé à l'aide de N1 th impulsions donné par l'abaque (nombre théorique noté N1 th, nombre expérimental noté N1 ex).

II. — CONTROLE DU BRUIT DE FOND (C1)

Pointer R = 1,56 sur la droite en N1, faire une translation horizontale, puis à 45°, prendre l'intersection avec l'horizontale de cote V = 20%, et lire en abscisse N1 th = 1 600. Si N1 ex diffère de N1 th opérer suivant le paragraphe III.

III. — VARIATION DE (V) EN FONCTION DE L'ÉCART : (N1 th - N1 ex) (suivre sur graphique de correction)

1° N1 ex = N1 th : si les nombres sont égaux ou peu différents à ± 0,1 N1 th près, prendre la valeur V lue sur l'abaque principal.
2° N1 ex < N1 th : si les nombres sont très différents calculer dV/V à l'aide du graphique de correction dont les courbes en trait plein sont graduées en p = N1 ex / N1 th. Soient les valeurs expérimentales R = 1,56; N1 ex = 1 300; N2 = 3 120. L'abaque donne V = 20% pour N1 th = 1 600. Calculer dV/V : intersection de la courbe p = 1 300/1 600 = 0,8 avec la verticale d'abscisse : R = 1,56 soit dV/V = 5%. La valeur corrigée est V' = V + dV = 0,20 + 0,05 = 0,25 ou V' = 25%.
NOTE : dV toujours positif si N1 ex < N1 th.
3° t1 = t2 : si les temps de comptage sont égaux ou très voisins calculer dV/V en utilisant la courbe en trait discontinu. Soient les valeurs expérimentales : R = 1,56; N1 = 2 000; t1 = 40 mn; N2 = 3 120; t2 = 40 mn. Prendre l'intersection de la verticale : R = 1,56 avec la courbe en tirets t2 = t1 et lire dV/V = 5%. La valeur V corrigée est V' = 0,20 - 0,05 = 0,15 ou V' = 15%.
NOTE : dV toujours négatif si N1 ex > N1 th.

Remarque : La précision sur C est peu améliorée par N1 ex > N1 th, elle est maximum pour t1 = t2.

IV. — CHANGEMENT DE PROBABILITÉ : (1-u)

Pointer sur la droite de probabilité 0,998 la cote V = 20%, mener la verticale en ce point (ligne pointillée verte), prendre l'intersection avec la droite de probabilité choisie : V (0,998) = 20%, donne V (0,68) = 6,3%.

V. — MAXIMUM DU POURCENTAGE D'ERREUR ADMISSIBLE (Vm) :

V est limité supérieurement par la condition C1 significativement différent de C2 (C ≠ 0) le réseau de droites 1-u : 0,998; 0,98; 0,95, etc., tracé en tirets en deca de la verticale d'abscisse 100 (échelle des nombres) donne Vm en fonction de la probabilité. Vm (0,998) = 90%; Vm (0,95) = 60%; Vm (0,68) = 30%.

VI. — SEUIL D'UN TAUX DE COMPTAGE ESTIMÉ (Cs) :

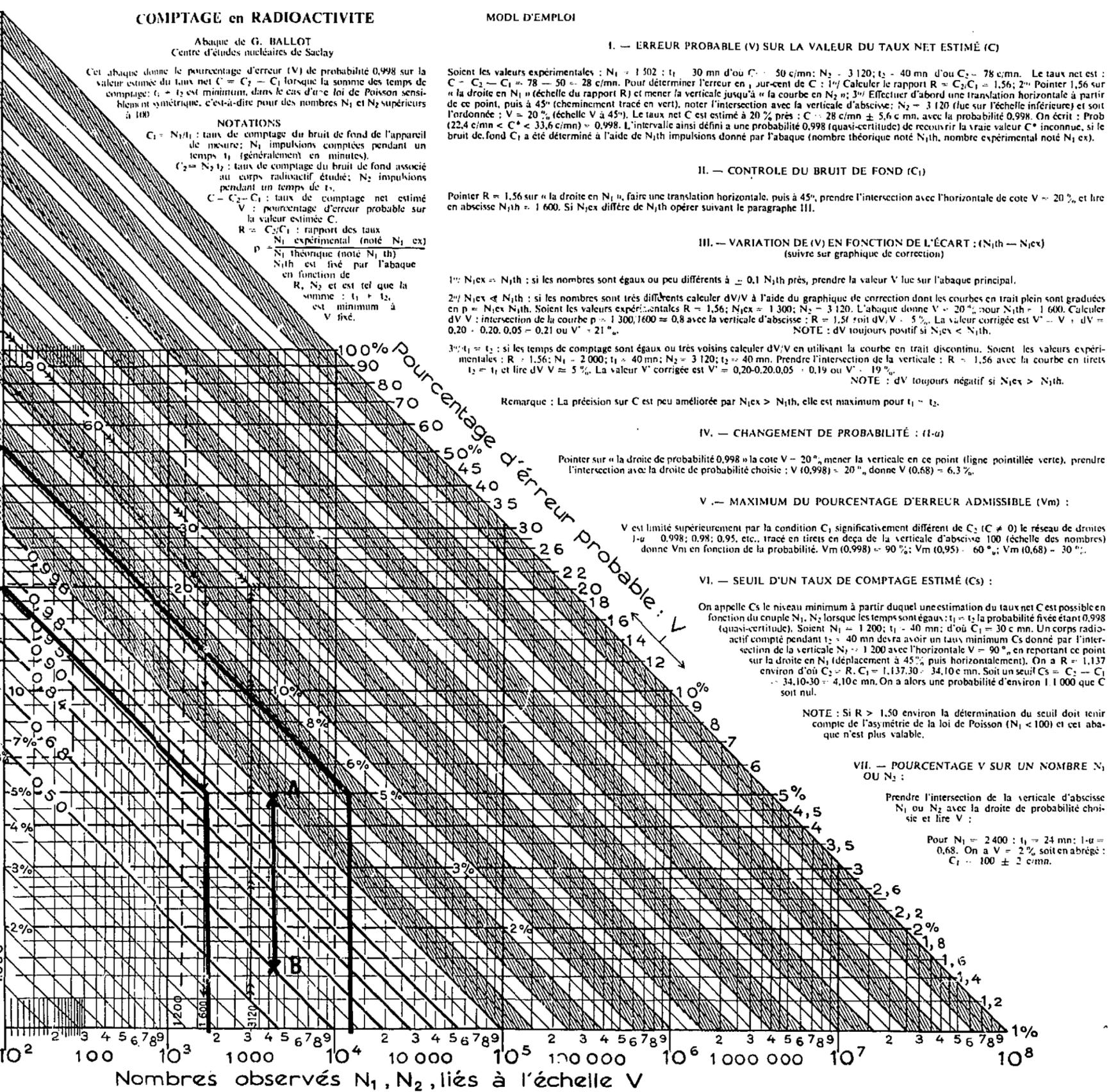
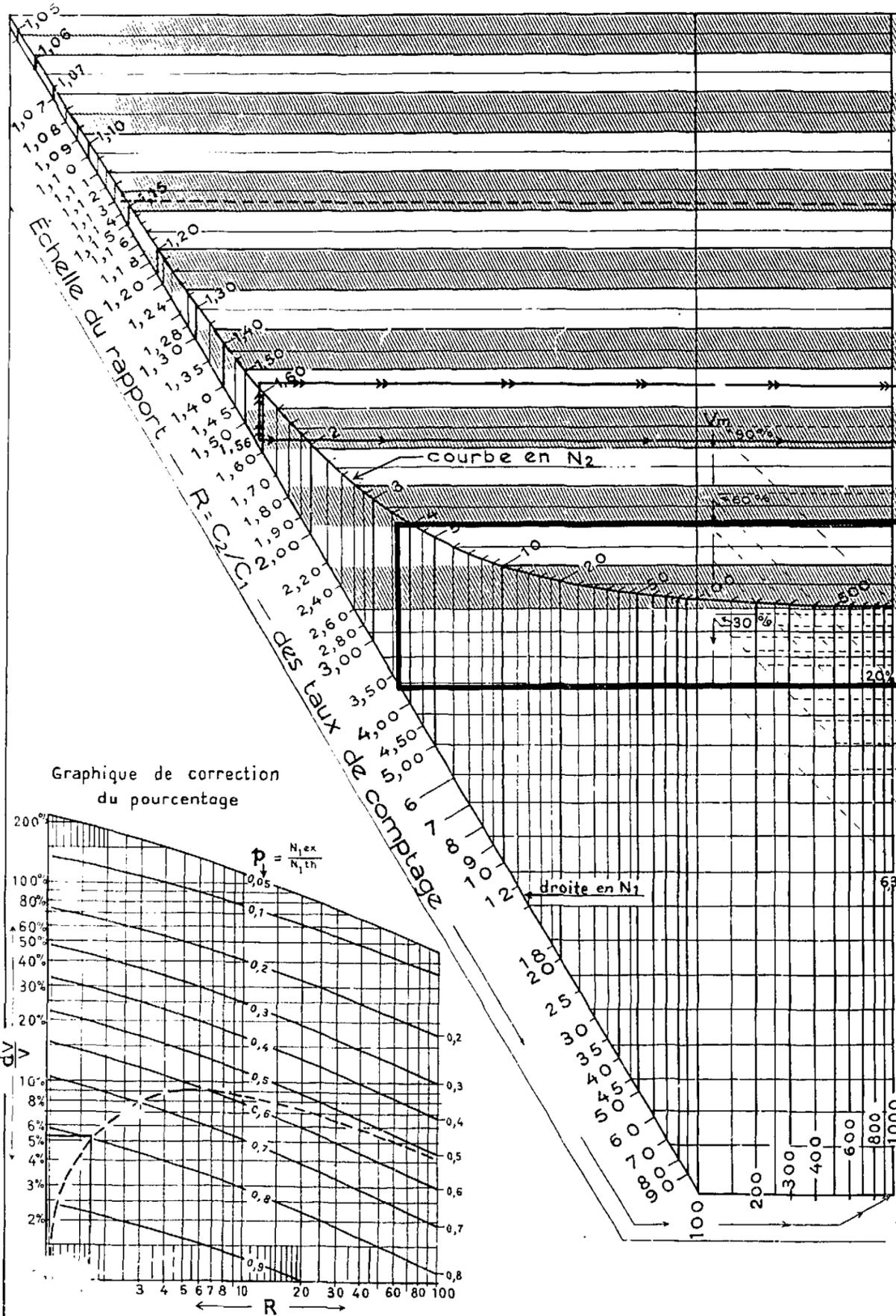
On appelle Cs le niveau minimum à partir duquel une estimation du taux net C est possible en fonction du couple N1, N2 lorsque les temps sont égaux : t1 = t2 la probabilité fixée étant 0,998 (quasi-certitude). Soient N1 = 1 200; t1 = 40 mn; d'où C1 = 30 c/mn. Un corps radioactif compté pendant t2 = 40 mn devra avoir un taux minimum Cs donné par l'intersection de la verticale N2 = 1 200 avec l'horizontale V = 90%, en reportant ce point sur la droite en N1 (déplacement à 45° puis horizontalement). On a R = 1,137 environ d'où C2 = R.C1 = 1,137.30 = 34,10 c/mn. Soit un seuil Cs = C2 - C1 = 34,10 - 30 = 4,10 c/mn. On a alors une probabilité d'environ 1 1 000 que C soit nul.

NOTE : Si R > 1,50 environ la détermination du seuil doit tenir compte de l'asymétrie de la loi de Poisson (N1 < 100) et cet abaque n'est plus valable.

VII. — POURCENTAGE V SUR UN NOMBRE N1 OU N2 :

Prendre l'intersection de la verticale d'abscisse N1 ou N2 avec la droite de probabilité choisie et lire V :

Pour N1 = 2 400 ; t1 = 24 mn; 1-u = 0,68. On a V = 2% soit abrégé : C1 = 100 ± 2 c/mn.

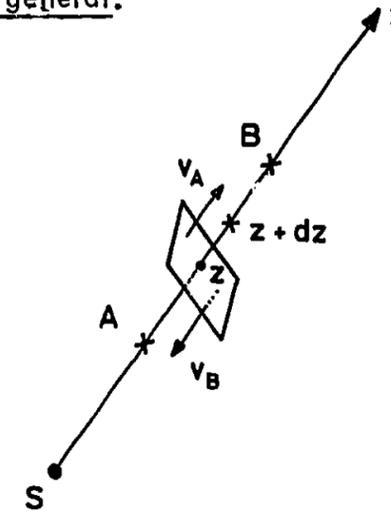


Remarque : pour étendre le champ d'utilisation à un pourcentage < 1% on peut multiplier par 10^3 l'échelle des nombres observés et diviser par 10^3 l'échelle des pourcentages.
Exemple : pour N1 = 10^3 et 1-u = 0,90 quelle est la valeur de V ? On lit V = 6%, pour N1 = 10^3. Donc V = 0,06% pour N1 = 10^3 x 10^3.

DIFFUSION GAZEUSE ; HOMOGENEITE D'UN MELANGE GAZEUX.

(Application à la dilution de quelques cm^3 de Kr dans une trentaine de litres d'Ar).

Cas général.



Soit les deux gaz A et B.

p_A la pression partielle du gaz A (en atm).

C_A la concentration partielle du gaz A (en moles/ cm^3).

z distance dans la direction de diffusion (en cm)

ρ masse volumique (g/cm^3)

v vitesse (en cm/s).

M masse molaire en g
 N nombre de molécules diffusables (en $\text{L}^{-2}\text{T}^{-1})(\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1})$
 \mathcal{D} diffusivité ou coefficient interdifférentiel (en L^2T^{-1})
 β coefficient qui dépend des unités.

On a la variation de pression partielle le long de z qui diminue depuis la source S et dépend de

$$- \frac{dp_A}{dz} = \beta C_A C_B (v_A - v_B) \text{ avec } C = \frac{\rho}{M} \text{ et } N = \frac{\rho}{M} v \text{ on a}$$

$$- \frac{dp_A}{dz} = \beta \left(N_A \frac{\rho_B}{M_B} - N_B \frac{\rho_A}{M_A} \right) \text{ mais en admettant } pv = RT$$

$$\text{soit } \frac{\rho}{RT} = \frac{\rho}{M}$$

$$- \frac{dp_A}{dz} = \beta \frac{1}{RT} (N_A \rho_B - N_B \rho_A) \text{ en introduisant } \mathcal{D} = \frac{R^2 T^2}{p} \text{ (} p = p_A + p_B \text{)}$$

$$\text{On a } - \frac{dp_A}{dz} = \frac{RT}{\mathcal{D} p} (N_A \rho - N_A \rho_A - N_B \rho_A)$$

Dans notre cas l'enceinte étant remplie d'argon (gaz B) et le volume de krypton (gaz A) à diffuser étant petit on peut prendre

$$N_B \approx 0 \quad \text{car l'argon est en équilibre et } p_A = \epsilon \quad \text{soit } p \approx p_B$$

donc on a

$$-\frac{dp_A}{dz} = \frac{RT}{\mathcal{D}} N_A \quad \text{mais } N_A = \frac{p_A}{M_A} v_A = \frac{p_A}{RT} v_A$$

et par suite

$$-\frac{dp_A}{dz} = \frac{p_A v_A}{\mathcal{D}} \quad \text{qui donne } -\frac{dp_A}{p_A} = \frac{1}{\mathcal{D}} \left(\frac{dz}{dt}\right) dz$$

$$\text{ou } -\frac{dp_A}{p_A} = \frac{1}{\mathcal{D}} \left(\frac{dz}{dt}\right)^2 dt$$

Pour le krypton on a :

$$-\frac{dp}{p} = \frac{1}{\mathcal{D}} \left(\frac{dz}{dt}\right)^2 dt$$

$$\text{ou } -\frac{dp}{p} = \frac{1}{\mathcal{D}} \left(\frac{dz}{dt}\right) dz$$

Pour le calcul de la diffusivité la formule de Gilliland donne

$$\mathcal{D} = 0,0043 \frac{T^{3/2}}{p (l_A^{1/3} + l_B^{1/3})^2} \left(\frac{1}{M_A} + \frac{1}{M_B} \right)^{1/2}$$

avec

\mathcal{D} en cm^2/s

p en atm

M en g

T en $^\circ\text{K}$

l_A et l_B volume molaire, en cm^3/mole , des liquides A et B à leur température d'ébullition.

$$\text{On a } T = 300^\circ\text{K} \quad p = 1$$

$$\text{densité du Kr à l'état liquide : } 2,155 \text{ g/cm}^3 \quad M_A = 84$$

$$\text{donc } l_A = 84/2,15 = 39,0$$

$$\text{densité de l'Ar liquide : } 1,41 \text{ g/cm}^3 \quad M_B = 40$$

$$\text{donc } l_B = 40/1,41 = 28,5$$

$$\mathcal{D} = 0,0043 \frac{300^{3/2}}{1 (28,5^{1/3} + 39,0^{1/3})^2} \left(\frac{1}{40} + \frac{1}{84} \right)^{1/2} \approx 0,12 \text{ cm}^2/\text{s}$$

On adjoint l'équation de conservation de la matière $d(pv) = 0$ soit

$$0 = pdv + vdp = (pdz + zdp) \quad \text{qui donne } \frac{dp}{p} = -\frac{dz}{z}$$

$$\text{à l'équation } -\frac{dp}{p} = \frac{1}{\mathcal{D}} \frac{dz}{dt} dz \quad \text{et on tire}$$

$$zdz = \mathcal{D} dt \quad \text{qui donne } \frac{1}{2} (z - z_0)^2 = \mathcal{D} (t - t_0)$$

Donc pour parcourir 1 m par diffusion ^{en milieu infini} il faut le temps

$$t = \frac{1}{0,12} \frac{100^2}{2} = \frac{10^5}{2,4} \text{ secondes} \approx 11 \text{ h } 30$$

Ainsi dans le cas théorique d'une diffusion plane en milieu infini, la vitesse de propagation du front est de l'ordre de $\approx 0,1 \text{ m/h}$.

- Et pour obtenir un mélange à 90 % dans un cylindre?

On peut utiliser le graphique suivant [Bc-1 page 204] en prenant pour coefficient de diffusion la valeur moyenne des self-coefficients des gaz considérés, divisée par la pression (en atmosphères) et multipliée par le rapport des températures absolues à la puissance 1,7.

Voici quelques valeurs de self-coefficients à 25°C (soit $\approx 300^\circ\text{K}$) et 1 atmosphère [Bc-1 page 204] : He (1,7) - Ne (0,5) - Ar(0,18) - Kr (0,09) - Xe (0,06) - CO₂ (0,1) - Cl₂ (0,05) - H₂ (1,3) - HCl (0,12) - N₂ (0,2) - O₂ (0,2).

Dans notre exemple : le Kr (< 1 %) diffuse à 25°C dans l'Ar-CH₄ à la pression normale ; on a

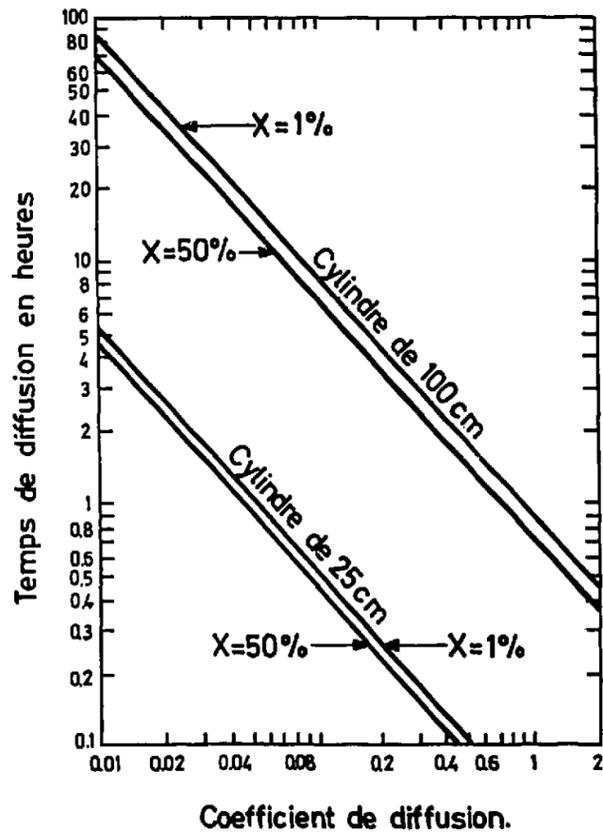
$$D = \frac{1}{2} (0,18 + 0,09) = 0,135$$

(si on était à 100° et à 5 atmosphères on aurait

$$D = \frac{1}{2} (0,2 + 0,1) \times \left(\frac{273 + 100}{300} \right)^{1,7} \times \frac{1}{5} \approx 0,0432$$

Pour $D = 0,135$ on lit qu'il faut attendre ≈ 8 heures pour obtenir un mélange homogène à 90 % dans un tube cylindrique de 1 mètre de long.

Comme de plus la forme de notre enceinte n'est pas simple c'est au moins 24 heures qu'il faut attendre pour obtenir un mélange quasi-homogène.



Graphique donnant les durées requises pour obtenir par diffusion un mélange homogène à 90 % de 2 gaz.

- à la même concentration
 $X_1 = X_2 = 50\%$
- à des concentrations différentes
 $X_1 = 99\% \quad X_2 = 1\%$

Application : Préparation d'une source par dilution gazeuse.

La source étalon de Kr-85 dont nous disposons a une activité de 5,43 μCi soit $5,43 \times 3,7 \cdot 10^4 = 2,01 \cdot 10^5$ désintégrations par seconde. Cette activité est trop élevée pour notre étalonnage et nous devons effectuer une dilution d'un facteur 10^4 à 10^5 .

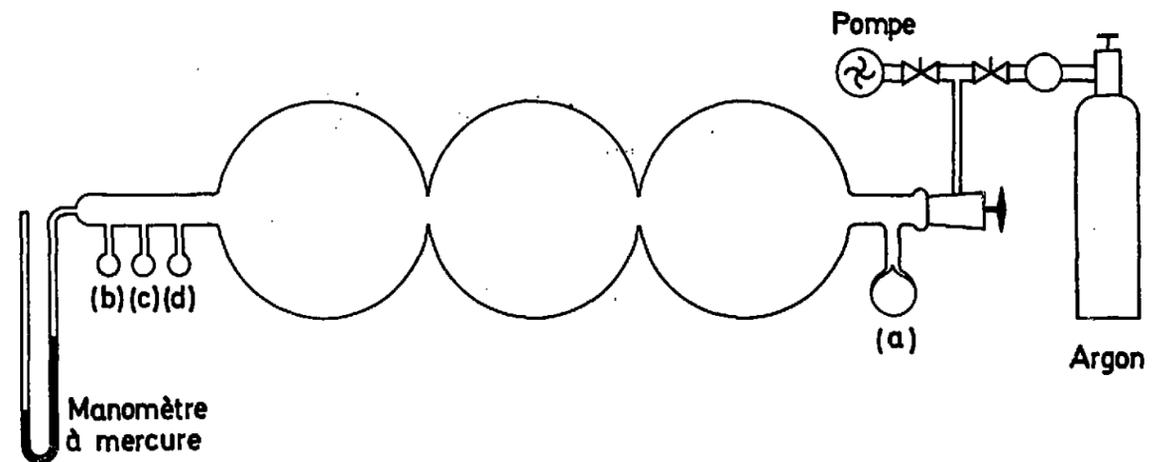
Nous avons opté pour une dilution volumétrique du krypton par diffusion dans l'argon (90 %) - méthane (10 %).

En effet une première expérience avec diffusion dans le vide avait fait apparaître un "inhomogénéité" dans la répartition d'une faible quantité de gaz (un genre de piégeage sélectif, sur les graisses peut-être).

Un autre échec dû à un trop grand empressement nous a conduit à évaluer le temps de diffusion dans notre enceinte, d'où le calcul précédent.

Banc de dilution.

Pour effectuer la dilution en une seule opération (une dilution en cascade augmenterait notablement l'imprécision) on a fabriqué le banc représenté sur la figure suivante en prenant soin de placer les ampoules-filles à l'opposé de l'ampoule-mère. Le volume des ampoules est déterminé par pesée au mercure (voie des robinets comprise) celui de l'enceinte en utilisant la loi ($pV = Cte$) à partir d'un volume étalon.



Mode opératoire.

On fait le vide dans l'enceinte, on rince à l'argon ; on fait à nouveau le vide ; on attend pour vérifier s'il n'y a pas de fuite (ces opérations peuvent se faire sur quelques jours).

L'enceinte, les ampoules-filles et les clés des robinets étant vides on ferme ces dernières, et on remplit l'enceinte en argon puis on ouvre l'ampoule-étalon (cassure franche de la queue du cochon)

On attend au moins 24 heures pour que la diffusion soit complète avant de remplir les ampoules-étalons secondaires.

LE KRYPTON-85 PRODUIT PAR LES CENTRALES NUCLEAIRES.

Comme les seules données disponibles dans la littérature concernent la puissance électrique installée, pour évaluer le taux de production de Kr-85 il faut estimer la nature du combustible dont dépend le rendement de fission, le facteur de charge et le rendement électrique (W électrique/W thermique).

- Estimation jusqu'en 1967.

Au début, pour des raisons politiques, on ne communiquait pas les chiffres ou même on avançait de faux chiffres concernant les réacteurs de puissance. Maintenant "Nucleonics Week" publie tous les trimestres un tableau des centrales. Nous avons repris en le complétant celui de Mars 1967 (Tableau 1).

Le Service Central Nucléaire de l'EdF a bien voulu nous communiquer le tableau qu'il a établi sur les centrales mises en service dans le monde. Nous l'avons complété par l'estimation des rendements (Tableau 2). Il faut remarquer que les centrales n'entrent vraiment dans le bilan énergétique que 6 mois après le démarrage en moyenne.

Le facteur de charge s'élève : parti de $\approx 40\%$ il oscille autour de 60% pour les années 1966-1967 (déterminé sur plusieurs mois il donne des fluctuations inférieures à 2% autour de 60%).

Puissance installée en fonction du temps.

On peut prendre les équations suivantes qui traduisent bien les valeurs données dans les tableaux précédents.

- du début à 1960-1961.

$$P_{\text{installée}} \text{ (en GW}_{\text{el}}) = 0,1 e^{0,8 t} \quad t = 0 \text{ en } 1958.$$

- de 1960-1961 à 1967 et probablement jusque vers 1972-1973.

$$P_{\text{installée}} \text{ (en GW}_{\text{el}}) = 0,5 e^{0,3 t} \quad t = 0 \text{ en } 1958.$$

L'intégrale de cette fonction en tenant compte des conditions précédentes donne bien $\approx 1,4 \cdot 10^8$ MWel.h pour l'énergie totale électrique produite jusqu'en 1967 (soit $1,18 \cdot 10^8$: Tableau 1 + U.R.S.S.).

Le seul combustible pratiquement utilisé dans les réacteurs est l'U-235 de l'uranium naturel plus ou moins enrichi quoiqu'une partie difficilement chiffrable du Pu-239 formé dans les barreaux subissent la fission. Il arrive que dans quelques barreaux du réseau la proportion des noyaux U-235 et de Pu-239 fissionnés soit voisine de l'unité mais seulement quelque temps sur quelques barreaux. Aussi dans l'ensemble l'estimation simple peut être admise.

TABLEAU 1.

Energie Electrique d'origine nucléaire (état en mars 1967).

Colonne ① . Puissance nominale en MW électriques
Colonne ② . Energie réellement fournie pendant le mois de mars 1967 en MW_e·h (le facteur de charge ou rapport avec l'énergie nominale est à peu près constant dans l'ensemble et égal à ≈ 60 %).
Colonne ③ . Energie totale fournie depuis la mise en service en MW_e·h

U.S.A.	①	②	③
Shippingport	100	63 915	2 911 113
Dresden	210	0	6 648 993
Yankee	185	74 924	6 634 730
Indian Point	292	194 750	4 585 205
Big Rock Point	75	52 092	1 002 502
Humboldt Bay	70	27 059	1 097 461
Saxton	4,3	0	60 622
Eikriver	22	17 604	392 675
Piqua	11,4	0	70 660
Parr	17	0	212 216
Idaho, EBR-2	20	0	77 323
Rincon, BONNUS	16,5	0	55 865
Hanford, NPR	800	275 800	1 815 887
Sioux Falls	58	910	30 680
Fermi	69,5	0	1 170
Total.....	≈ 1 951	707 054	25 597 102

GRANDE-BRETAGNE.

Calder Hall (4 unités)	219)	289 072	26 341 091
Chapelcross (4 unités)	228)		
Berkeley (2 unités)	334,4	234 202	8 762 668
Bradwell (2 unités)	374,1	238 977	10 633 283
Hunterston (2 unités)	360	239 756	7 097 919
Hinkley Point (2 unités)	664,1	421 216	7 912 976
Trawsfynydd (2 unités)	584,8	318 365	4 521 770
Dungeness-A (2 unités)	576,6	319 868	4 778 645
Sizewell (2 unités)	652,5	328 873	2 257 613
Windscale, AGR	41	22 855	928 236
Dounreay, DFR	13,5	1 260	193 566
Total.....	4 043	2 414 444	73 409 767

FRANCE

Marcoule (G-1-2-3)	85	49 717	3 156 771
Chinon (EDF-1-2-3)	750	166 295	2 149 968
Total.....	835	216 012	5 306 739

ITALIE

Latina	210	147 726	5 254 661
Garigliano	160	85 232	2 797 846
E.Fermi (Trino)	252	181 372	3 277 069
Total.....	622	414 330	11 329 576

BELGIQUE

Mol, BR-3	11,4	6 297	128 169
-----------	------	-------	---------

CANADA

Rolphton, NPD	22	1 977	653 565
---------------	----	-------	---------

ALLEMAGNE DE L'OUEST

Gundremmingen	237	26 542	264 641
Kahl	15	10 744	531 283
MZFR	50	2 392	147 101
Total.....	302	39 678	943 025

JAPON

Tokio JPDR	12,5	0	81 417
Tokio JAPCo-1	169	74 357	566 700
Total.....	≈ 181	74 357	648 117

SUEDE

Agesta, R-3/Adam	10	7 473	86 932
------------------	----	-------	--------

U.R.S.S.

1 550 (sous toutes réserves)

TOTAL GENERAL	9 532	3 381 622	118 102 992
		+ URSS	+ URSS

130

- E.3 -

TABLEAU 2 (établi en Mars 1967).

Puissances nominales, en MW électriques, par pays, avec année de mise en service.
Le rendement "R" représente le rendement moyen : rapport de l'énergie électrique recueillie à l'énergie thermique. (La puissance installée en 1966 correspond à la puissance en service en 1967).

R = $\frac{W \text{ électrique}}{W \text{ thermique}}$	0,25		0,26		0,27		0,28		0,29		0,30		0,31		0,32	
	PAYS	1957	1958	1959	1960	1961	1962	1963	1964	1965	1966	1967	1968	1969	1970	1971
U.S.A.	100		210	185		393	916	58		69	958	1 140	3 661	5 735	10 970	8 296
Gde BRETAGNE		219	228			723	41	360	1 826	652	716		1 200	1 320	250	1 320
FRANCE			40	40			83		220	500	203	500			1 055	
ITALIE							210	421							35	
R.F.A.					15				50	237	240	308		170		
CANADA						22								500	750	500
JAPON							12			169			322	340	400	
BELGIQUE					11						133					
SUEDE								10						200	400	
SUISSE											7		350		306	
ESPAGNE											153		440		500	
INDE												307	200			200
U.R.S.S. (1)				600			340		50	560			350	50		
Autres (1)										70		150		137		400
Total par année	100	219	478	825	15	1 149	1 602	849	2 146	2 257	2 410	2 405	6 723	8 652	14 266	10 716
Cumulée	100	319	797	1 622	1 637	2 786	4 388	5 237	7 383	9 640	12 050	14 455	21 178	29 830	44 101	54 817
MW thermiques	400	1 230	3 070	6 240	6 060	10 300	15 690	18 700	24 450	33 200	40 010	48 400	68 200	96 300	138 000	171 500

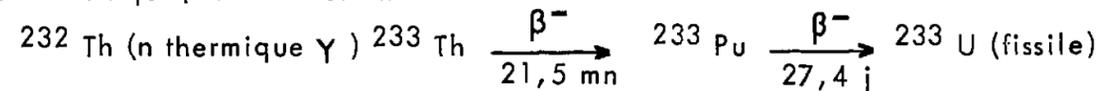
(1) Renseignements communiqués sous toutes réserves.

131

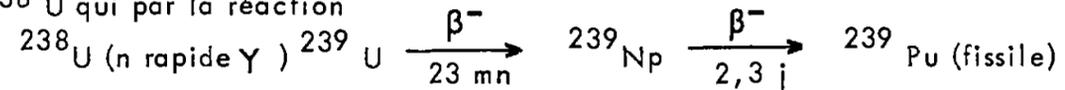
- Estimations des centrales à venir.

• Les réacteurs actuels font du "gâchis" de combustible dit-on souvent, puisqu'il suffit d'un neutron par fission pour entretenir la chaîne alors qu'il s'en produit plus de deux en moyenne. Aussi pense-t-on à utiliser les neutrons disponibles pour fabriquer des combustibles fissiles à partir de matériaux dits fertiles. Lorsque pour 100 fissions du combustible utilisé on réussit à provoquer plus de 100 réactions nucléaires conduisant à des noyaux fissiles dans le matériau fertile on a un réacteur surgénérateur. Les deux matériaux fertiles utilisés sont :

- le ^{232}Th qui par la réaction



- ^{238}U qui par la réaction



Alors que la première réaction ne requiert que des neutrons thermiques la deuxième, pour avoir une probabilité intéressante, requiert des neutrons de quelques centaines de keV au moins.

Les difficultés technologiques à vaincre pour cette dernière famille (forte densité énergétique) conduisent à penser que la famille Th-232, U-233 assumera le relais entre réacteurs confirmés et surgénérateurs rapides. L'hypothèse * la plus probable de répartition entre les trois familles de réacteurs classés d'après le combustible fissile est représentée sur le graphique de la page E-6.

Pour une production de $1 \text{ MW}_{\text{th,an}}$

Le combustible U-235 donne $2,93 \cdot 10^{21}$ atomes de Kr-85 soit 167 Ci ①
 Le combustible U-233 donne $5,8 \cdot 10^{21}$ atomes de Kr-85 soit 330 Ci ②
 Le combustible Pu-239 donne $1,27 \cdot 10^{21}$ atomes de Kr-85 soit 72 Ci ③

• Le facteur de charge \textcircled{F} augmente avec la maîtrise acquise dans l'exploitation ; toutefois il est limité autour de 80 % non techniquement mais parce que, quand l'électricité nucléaire couvrira une part importante des besoins, elle sera soumise aux fluctuations de la consommation. Toutefois la valeur de ce facteur peut être améliorée par le procédé de stockage d'énergie [voir page 79 et Bp-3] .

* Il paraît que la fission de U-233 libèrerait moins de neutrons que celle de U-235. Comme par ailleurs le temps requis pour devenir autonome est de l'ordre d'une décennie, cette famille serait moins intéressante. De toute façon les conclusions qualitatives de cette étude restent valables.

• Le rendement ($W_{\text{el}}/W_{\text{therm}}$) déduit du principe de Carnot est essentiellement lié au progrès de la métallurgie du gainage des barreaux (température maximale) et du transfert des calories (un des meilleurs fluides actuellement : Na fondu et aussi la vapeur d'eau sèche) mais il semble que 44 % en 1980 apparaît comme un maximum si on utilise les turbines comme intermédiaire, car les autres moyens de fabriquer l'électricité avec de fortes puissances sont encore hypothétiques.

• Des estimations de la puissance future installée sont faites par plusieurs organismes (Conférences internationales sur l'énergie : la dernière à Tokyo 1967). Toutes sont plus ou moins fondées sur l'estimation de l'énergie thermique, liée à l'accroissement de la population.

Un Comité créé par l'Agence Européenne pour l'Énergie Nucléaire étudie l'avenir à long terme de l'énergie nucléaire en Europe Occidentale.

Une généralisation chiffrée à l'échelle du monde des prévisions U.S. a été avancée par Coleman et Liberace [Bc-4] .

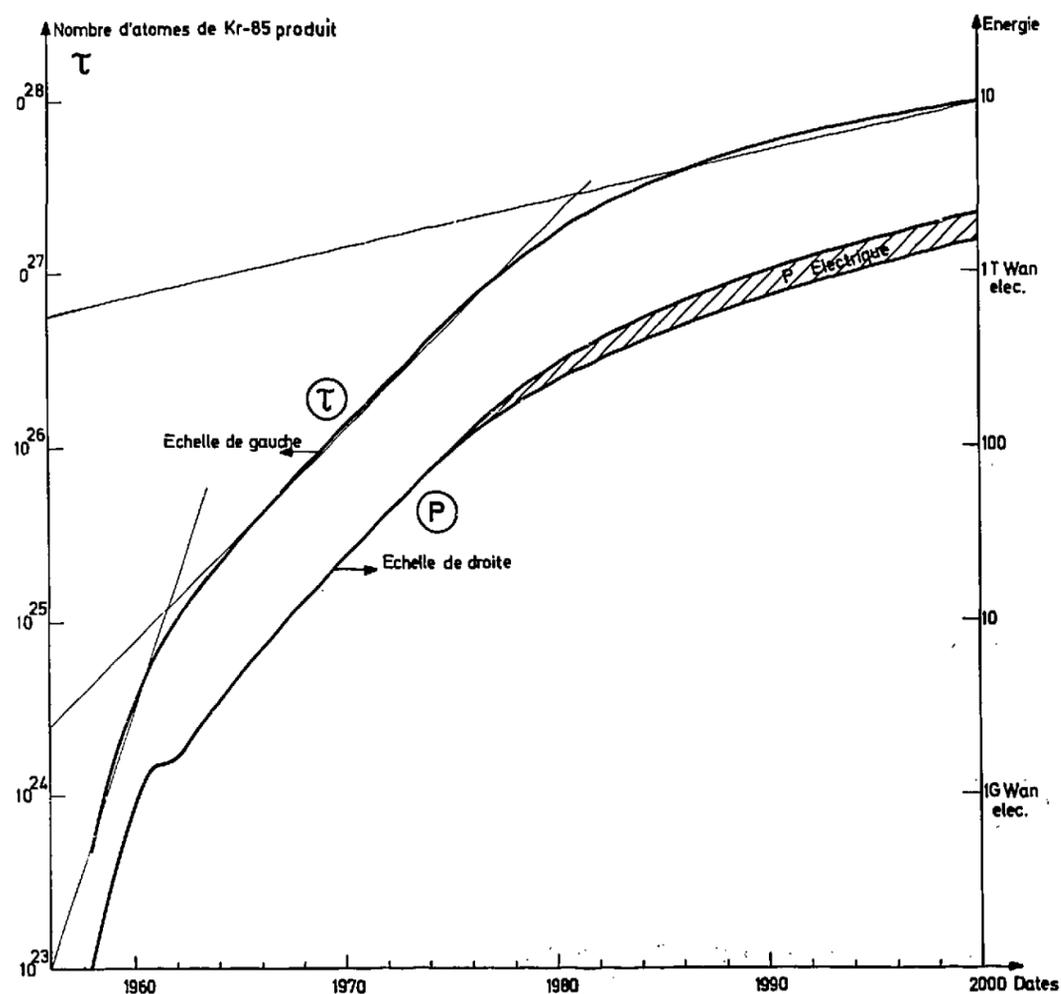
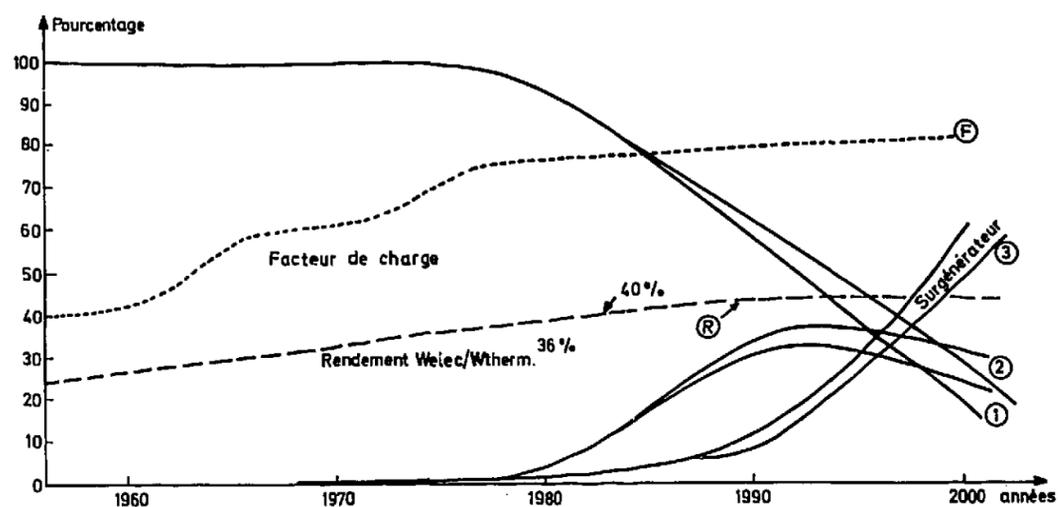
Une note de la Direction des Programmes du C.E.A. rédigée par des personnes qui font partie des différents Comités nationaux et internationaux s'occupant de cette question, annonce les prévisions de puissance électrique nucléaire installée jusqu'en l'an 2000.

Un rapport de 1966 de l'O.C.D.E. donne (page 65) un tableau jusqu'en 1980, des chiffres jusqu'en 1985 sur l'évaluation de l'accroissement de la production des centrales nucléaires et toute une bibliographie sur cette question (Rapport de la Commission consultative pour la production de l'énergie nucléaire etc....).

Les chiffres qui découlent de cet ensemble donne la courbe \textcircled{P} de la figure suivante qui représente la puissance nucléaire installée à terre dans le monde.

Il conviendrait d'ajouter les valeurs correspondant aux centrales marines. Mais quoi qu'on puisse parler actuellement de quelques 150 unités essentiellement militaires de 40 à 50 MW chacune, il est probable que celles en service ne représentent que $\approx 1/10$, ce qui apparaît comme négligeable. Par ailleurs les estimations sur l'utilisation de l'énergie nucléaire pour la flotte marchande sont faibles.

De la courbe \textcircled{P} pondérée par les facteurs estimés rendement "R", famille de réacteurs dont rendement de fission "P", facteur de charge "F" on déduit la courbe du taux de production annuelle \textcircled{Q} de krypton-85 qu'on peut identifier à celle du taux de rejet dans l'atmosphère de krypton-85.



PROPOSITION POUR UNE AUGMENTATION DE LA VALEUR
DE LA CONCENTRATION MAXIMALE ADMISSIBLE DU
KRYPTON-85.

(Communication à la Société Française de Radioprotection).

1 - Calcul conventionnel de la C.M.A. du Kr-85.

Le krypton n'agit que par irradiation externe et si on considère que l'organe critique est l'organisme tout entier, la concentration maximale admissible, C.M.A., est celle qui correspond pour un travailleur à une dose absorbée de 5 rem par an.

La méthode de calcul utilisée consiste à considérer que le milieu est en équilibre, donc que l'énergie absorbée par unité (de volume ou de masse) est égale à l'énergie émise.

Pour 100 désintégrations de Kr-85 il y a approximativement

99 émissions β de 0,67 MeV maximum soit $\frac{0,67}{3}$ MeV en moyenne.

1 émission β de 0,15 MeV maximum soit $\frac{0,15}{3}$ MeV en moyenne.

1 émission γ associée de 0,52 MeV.

correspondant à l'énergie moyenne émise par désintégration

$$\frac{(0,223 \times 99) + (0,05 \times 1) + (0,52 \times 1)}{100} = 0,225 \text{ MeV}$$

Pour une concentration C (en $\mu\text{Ci}/\text{cm}^3$) de Kr-85 dans l'air nous avons :

$$C \times 3,7 \cdot 10^4 \text{ d.s.}^{-1} \cdot \text{cm}^{-3} \quad (\text{désintégrations par seconde et par cm}^3).$$

$$C \times 3,7 \cdot 10^4 \times 0,225 \text{ MeV s}^{-1} \cdot \text{cm}^{-3} \text{ d'air}$$

$$C \times 3,7 \cdot 10^4 \times 0,225 \times 1,6 \cdot 10^{-6} \text{ erg s}^{-1} \cdot \text{cm}^{-3} \text{ d'air.}$$

$$C \times 3,7 \cdot 10^4 \times 0,225 \times 1,6 \cdot 10^{-6} \times \frac{1}{1,2 \cdot 10^{-3}} \text{ erg s}^{-1} \text{ g}^{-1} \text{ d'air}$$

$$(1 \text{ cm}^3 \text{ d'air à } 20^\circ\text{C} \approx 1,2 \cdot 10^{-3} \text{ g})$$

$$C \times 3,7 \cdot 10^4 \times 0,225 \times 1,6 \cdot 10^{-6} \times \frac{1}{1,2 \cdot 10^{-3}} \times \frac{1}{100} \text{ rad s}^{-1}$$

$$(\text{puisque } 1 \text{ rad} = 100 \text{ erg/g})$$

$$C \times 3,7 \cdot 10^4 \times 0,225 \times 1,6 \cdot 10^{-6} \times \frac{1}{1,2 \cdot 10^{-3}} \times \frac{1}{100} \times 3,16 \cdot 10^7 \text{ rad an}^{-1}$$

$$\text{idem -} \quad = C \times 3,97 \cdot 10^6 \text{ rad an}^{-1}$$

pour un milieu infini : au sol il faut prendre un angle solide de 2π seulement soit :

$$C \times 3,97 \cdot 10^6 \times \frac{2\pi}{4\pi} = C \times 1,98 \cdot 10^6 \text{ rem. an}^{-1}$$

Dans le cas des β la dose équivalente du point de vue biologique, exprimée en rem, est égale à la dose absorbée exprimée en rad. Donc on doit avoir pour la C.M.A. :

$$C \times 1,98 \cdot 10^6 = 5 \text{ rem an}^{-1} \text{ soit } C = \frac{5}{1,98 \cdot 10^6} \approx 3 \cdot 10^{-6} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$$

C'est la valeur donnée par la Commission Internationale de Protection Radiologique.

2 - Réserve et proposition de révision.

Etant donné le parcours des β de 0,67 MeV dans le corps (une fraction de mm en moyenne) il semblerait normal de considérer comme organe critique, non l'organisme dans son ensemble, mais seulement la peau. Le calcul se conduit de la même façon, toutefois dans ce cas on considère un angle solide de 2π non à cause du sol mais parce qu'un seul côté de la peau est irradié. On aboutit à une C.M.A. 6 fois plus forte puisqu'on admet alors 30 rem/an. Le Service d'Hygiène Atomique et de radiopathologie du C.E.A. compétent pour la détermination des normes radiobiologiques a retenu cette remarque *.

Par ailleurs à partir de valeurs expérimentales mesurées avec une chambre d'ionisation pour la mesure des doses d'irradiation dues aux β , Goussev [Bg-3] obtient pour la C.M.A. du Kr-85 une valeur 10 fois moins restrictive que celle adoptée en France et par la C.I.P.R.

Naturellement nous nous en tenons à la valeur officielle Kr-85 : C.M.A. travailleurs, exposition permanente :

$$3 \cdot 10^{-6} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3 \text{ d'air.}$$

* Après avoir examiné l'incidence possible sur la C.M.A. du Kr dissous dans le sang et de celui présent dans les poumons ; mais les valeurs sont bien moins restrictives.

LE STOCKAGE SOUTERRAIN DE GAZ EN NAPPE AQUIFERE PROFONDE.

Pour certains cette "profondeur" correspond à un niveau où les eaux salées ne peuvent contaminer l'eau des nappes fréatiques, pour d'autres cette profondeur varie selon les lieux de 300 à 1 000 mètres. Les profondeurs plus grandes posent des problèmes de forage et de compression.

Les pressions d'utilisation des réservoirs correspondent à peu près à leur profondeur équivalente en eau, soit \approx 1 bar par 10 mètres.

Les conditions géologiques requises sont :

- un anticlinal en forme de cloche à fermeture suffisante (la fermeture est la hauteur utile de la "cloche" qui va du sommet du dôme au plan interface eau-gaz correspondant à la ligne de fuite la plus haute).
- une formation pouvant servir de réservoir c'est-à-dire permettant au gaz injecté de déplacer l'eau. Cette qualité de la roche réservoir est caractérisée par la porosité (exprimée en pourcentage des volumes vides utilisables par rapport au volume total de l'échantillon de roche) et la perméabilité qui traduit la facilité avec laquelle les fluides circulent dans la roche (elle se mesure en darcy (D) et millidarcy (mD) et limite le débit des injections.
- une formation imperméable susceptible de constituer une couverture étanche au-dessus du réservoir et d'empêcher le gaz de migrer verticalement.

Cette dernière condition est à l'origine du manque de confiance qu'on attribue généralement à cette méthode de stockage notamment par rapport aux gisements épuisés d'hydrocarbure qui, eux, ont fait leur preuve d'étanchéité. On doit trouver pour la couverture des perméabilités $\leq 0,1$ mD ce qui correspond généralement à des argiles, marnes ou calcaires compacts. Dans ce dernier cas il faut mettre en évidence les failles éventuelles (le test de l'analyse chimique des eaux de part et d'autre de la couverture pourra être positif). De plus, dans le cas de couvertures plastiques l'emploi de coulis appropriés permettrait d'obtenir son imperméabilisation, tout au moins pour des colmatages localisés.

A titre d'exemple, à la suite d'une reconnaissance d'une structure réservoir, voici les premières conclusions concernant le site de Saint-Illiers.

" Le réservoir séquanien, d'une épaisseur totale de 100 m environ, comporte
 " à sa partie supérieure, une couche de 25 à 27 m de sable très fin dont les
 " caractéristiques étaient assez semblables sur tous les forages du réservoir,
 " la profondeur de ce niveau au sommet de la structure est de l'ordre de 480 m.

" La couverture, épaisse de 175 m environ, est constituée par des niveaux
 " marneux et marno-calcaires possédant des perméabilités généralement
 " inférieures à 0,1 mdarcy. La couverture est donc épaisse et de bonne qualité.

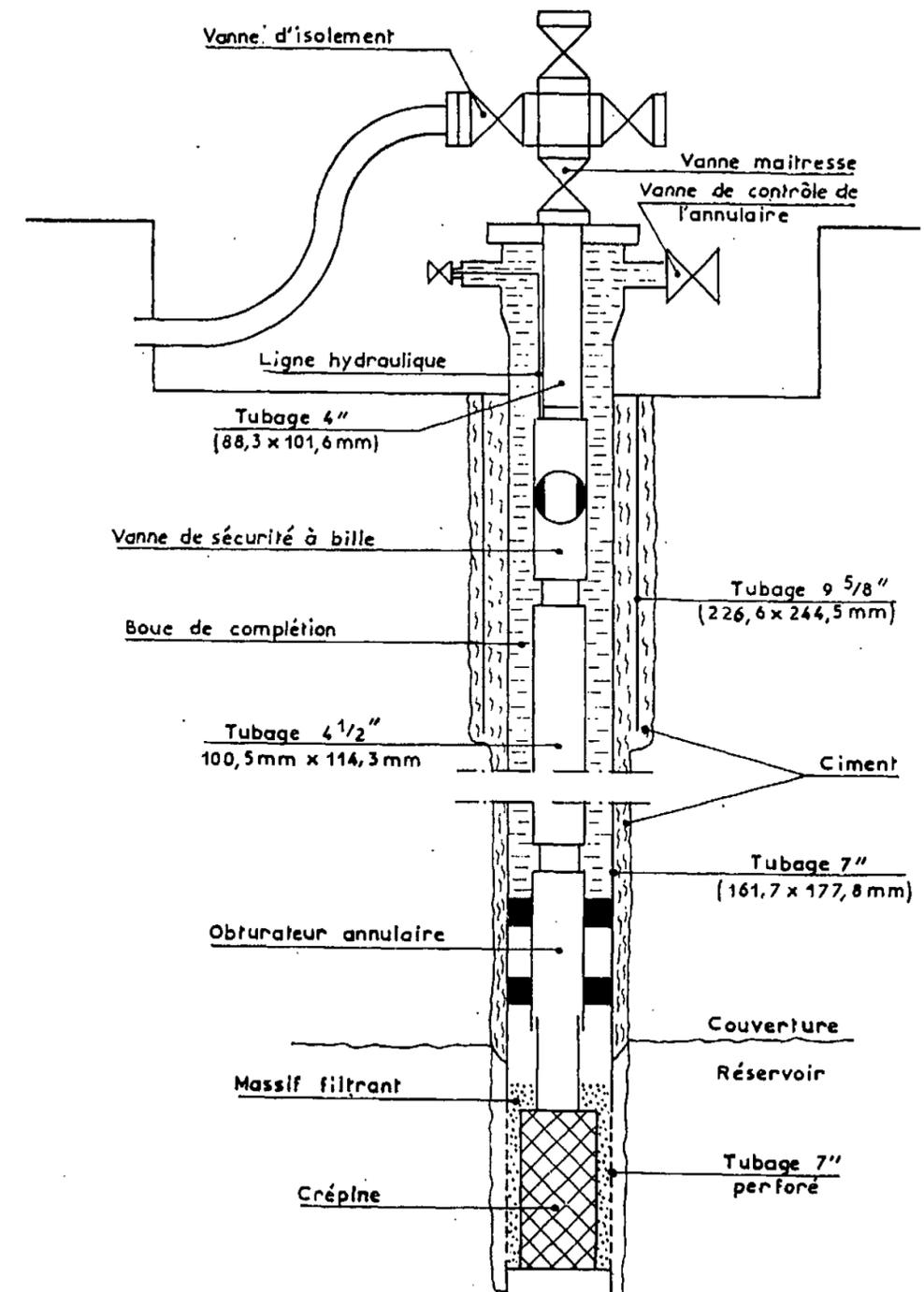
" Les hypothèses suivantes étaient alors retenues :

	Assurée	Probable
Fermeture	60 m	100 m
Surface	2,4 km ²	4 km ²
Volume stockable	500.10 ⁶ m ³	1.000.10 ⁶ m ³
Porosité totale	30 %	
Perméabilité	Variant de 1 à 3 darcys	

Pour l'exploitation de ce réservoir on est conduit à supposer
 UN VOLUME DE STOCKAGE DE QUELQUES CENTAINES DE MILLIONS DE M³
 AVEC DES MOUVEMENTS DE POINTE DE QUELQUES MILLIONS DE M³ PAR
 JOUR.

" On doit signaler, en outre, la présence à 150 m au-dessous du réservoir
 " séquanien, d'un second réservoir d'une dizaine de mètres d'épaisseur dans
 " un niveau rauracien ; la mise en service de ce réservoir, de capacité
 " toutefois beaucoup plus faible, pourrait augmenter la capacité totale ou
 " permettre de stocker un gaz de caractéristiques différentes".

C'est un site de ce type qui est considéré pour le projet d'exploitation
 dans le domaine nucléaire pages 76 et suivantes.



— Saint-Illiers. Coupe schématique d'un puits d'exploitation.

Reconnaissance d'un site : Prévisions budgétaires.

Des études préalables peuvent être menées à partir de forages pétroliers stériles.

Nous avons signalé que des réservoirs dont la capacité ou les caractéristiques d'étanchéité sont insuffisantes pour le Gaz de France, peuvent convenir pour le C.E.A. Exemple : quelques dizaines de milliers de m³ ou de faibles fuites.

(La mise en exploitation d'un réservoir de quelques milliers de m³ par 150 mètres de profondeur est estimé à $\approx 10^6$ F [Bs-2 p. III.36] aux U.S.A.).

Pour une recherche nouvelle qu'il semble souhaitable et logique de mener avec le conseil technique du Gaz de France, le coût total dépendra des connaissances déjà acquises dans la zone considérée (nous disposons du jeu des cartes portant l'implantation des forages et dressées par la Direction des Carburants). A titre d'exemple on peut envisager :

- une étude géologique sur document et sur terrain dont le coût est relativement faible.
- une campagne de sondages légers de reconnaissance ou une campagne sismique destinée à mettre en évidence une structure favorable. Coût 1 à 1,5.10⁶ F. En cas d'insuccès il faut étendre les travaux à d'autres zones.
- un forage avec étude des réservoirs.

Le coût $\approx 0,8.10^6$ F. par 1 000 mètres de profondeur.

$\approx 1,5.10^6$ F. par 2 000 mètres de profondeur.

- ce forage d'étude sera ultérieurement utilisé pour l'injection. Le coût de l'équipement complémentaire doit être relativement faible.
- un puits supplémentaire d'un prix légèrement inférieur doit être prévu pour le contrôle ou le soutirage.

Réglementation

Légalement, d'après les dispositions de l'article 40 de la loi n° 64.1245 du 16.12.1964 paru au J.O. du 18.12.1964 page 11 260, un accord préalable est nécessaire

" Toutes installations permettant de prélever des eaux souterraines à des fins
 " non domestiques sont portées à la connaissance et soumises à la surveillance
 " de l'Administration dans les conditions définies par décret en Conseil d'Etat.
 " Tout déversement ou rejet d'eaux usées ou déchets de toute nature dans les
 " puits, forages ou galeries de captage désaffectées fait l'objet d'une détério-
 " ration et est soumis, sans préjudice de dédit des tiers, à la surveillance de
 " l'Administration".

BANC d'ESSAI :**Reconstitution des conditions physiques de la haute atmosphère.**

Les prélèvements à haute altitude se font généralement (U.S.A. - U.R.S.S.) en refoulant de l'air dans une enceinte étanche par un ventilateur. Ceci nécessite l'utilisation d'une source d'énergie, électrique en général (Danger : l'hydrogène qui s'échappe par la chaussette de trop plein du ballon porteur. Inconvénient : poids).

Banc haute atmosphère.

Nous avons cherché d'autres solutions et pour cela nous avons d'abord réalisé un banc recréant les conditions de la haute atmosphère (-50°C , quelques Torr, en prenant la précaution d'éliminer CO_2 et H_2O en tête (voir figure 5 Ab).

Le CO_2 est piégé sur de la chaux sodée en excès (A) et H_2O est retenu sur de l'actigel (B). La réfrigération se fait dans un serpentin (D) convenablement immergé dans de la neige carbonique noyée dans l'acétone (-80°C).

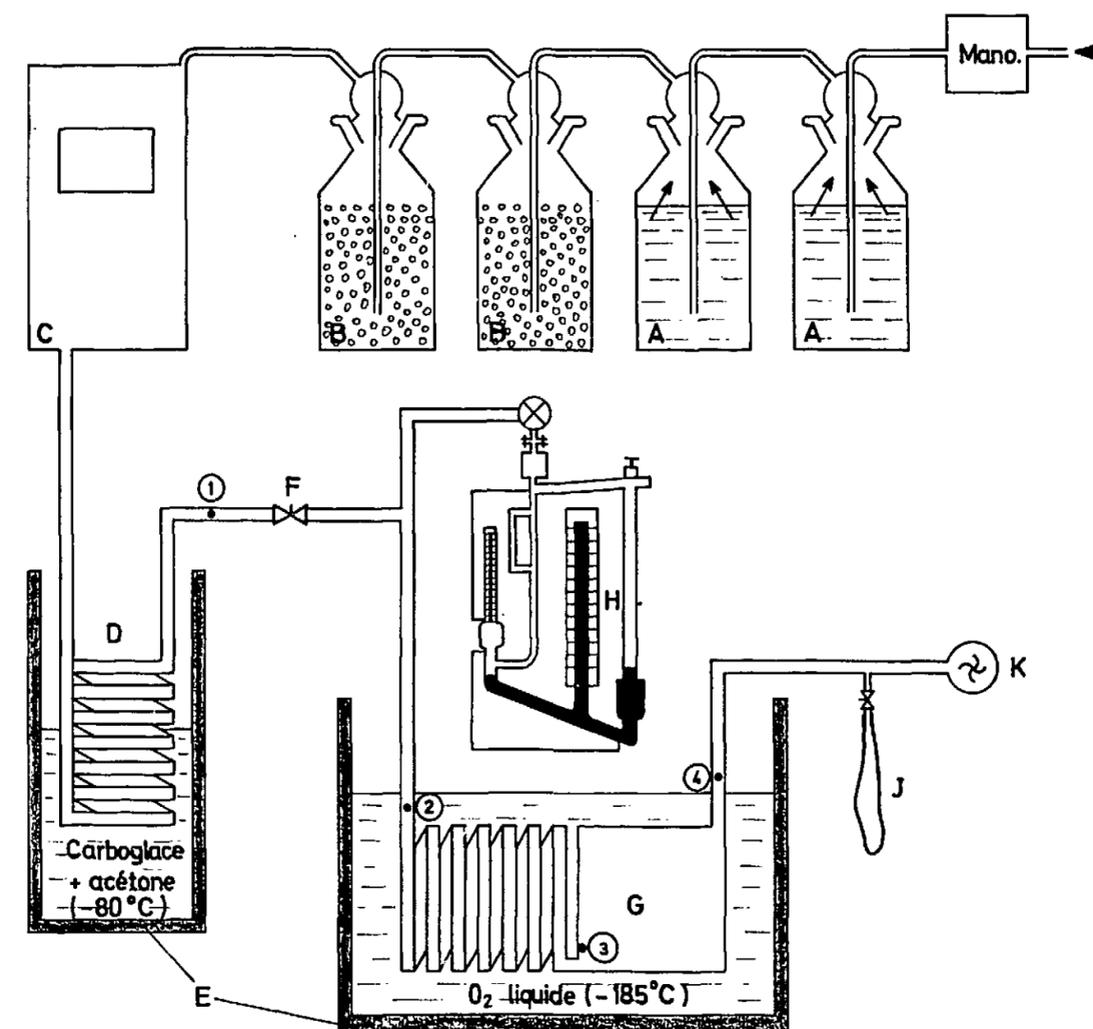
Les pressions de quelques Torr sont obtenues par une fuite contrôlée par la vanne (F) avec un pompage par une grosse pompe à palette (K). Le débit est d'une trentaine de grammes d'air par minute.

- Les vannes sont des vannes C.E.A.-E.S.U.
- La mesure de pression se fait par Jauge de Mac Leod (H).
- Les températures sont connues grâce à une série de thermocouples chromel-alumel compensés au cuivre-constantan piqués le long du parcours (figures 3 Ab et 4 Ab).

Leur scellement à l'araldite ne nous a pas donné d'ennuis car nous étions en régime dynamique (en effet le scellement à l'araldite ne tient pas parfaitement le vide quand il est plongé dans l'air liquide, N_2 ou O_2).

Le piégeage se faisait sur le tamis 5A de la cartouche (G) placée dans de l'oxygène liquide avec lequel nous n'avons eu aucun problème car la régénération des tamis se faisait à $300^\circ C$ dans un bain de glycérine.

Nous avons été amenés à prévoir pour le système autonome de prélèvement par piégeage sélectif une quantité de 2 kg de tamis pour un débit de quelques dizaines de grammes d'air par minute.



- A - Piège à CO_2 : chaux sodée
- B - Piège à H_2O : actigel
- C - Compteur débitmètre - 20 g/mn
- D - Refroidissement contrôlé du flux d'air
- E - Récipient en polystyrène expansé
- F - Fuite contrôlée → quelques Torr
- G - Cartouche garnie de tamis 5A
- H - Jauge de Mac Leod
- J - Vessie d'expansion
- K - Pompe à palettes
- ①②③④ - Thermocouples

LE MAINTIEN DU VIDE SECONDAIRE.

Tantôt plein, tantôt vide, le banc comporte plusieurs rodages et robinets. Aussi ne peut-on espérer un vide meilleur que quelques 10^{-6} Torr.

Taux de dégazage q_u de quelques matériaux ($\text{Pa} \cdot \text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{m}^{-2}$ à 25 °C)		
Matériau	Après 1h.	Après 10 h
Cuivre poli	$4,7 \cdot 10^{-6}$	$4,8 \cdot 10^{-7}$
Acier inox poli	$5,8 \cdot 10^{-6}$	$5,8 \cdot 10^{-7}$
Verre pyrex	$1 \cdot 10^{-5}$	$7,5 \cdot 10^{-7}$
Araldite	$1,6 \cdot 10^{-3}$	$4,7 \cdot 10^{-4}$
Caoutchouc silicone	$3,4 \cdot 10^{-2}$	

Tension de vapeur d'une bonne graisse à vide :
 10^{-7} Torr à température ordinaire

10^{-3} Torr à 200 °C

(mais après quelques dizaines d'heures sous vide. Au début, il y a des gaz occlus).

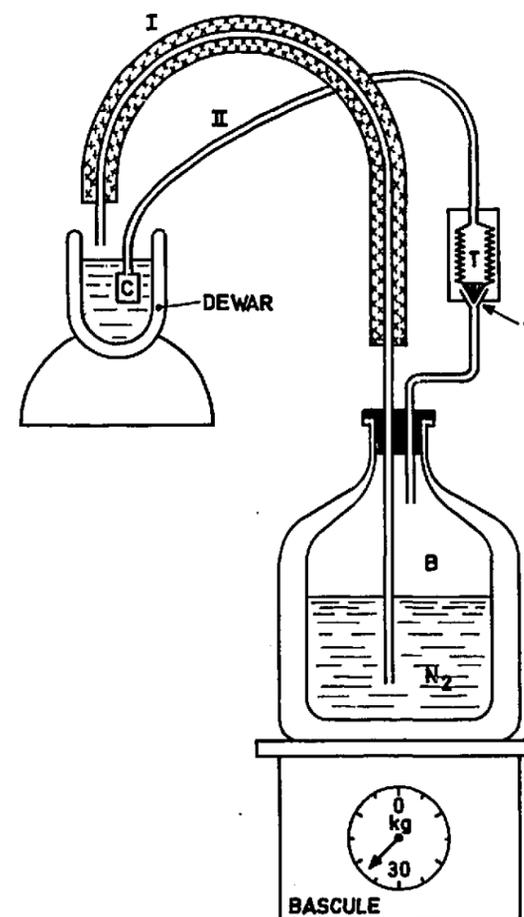
Comme après un certain temps (de l'ordre du mois) le maniement des robinets devient difficile à cause du durcissement des graisses il faut les regraisser afin d'éviter des ruptures de verre. Pendant un certain temps on observe lors du contrôle à "l'homoflux" une lueur bleue qui ne doit pas inquiéter. Pour le vide primaire nous avons utilisé des pompes à palettes BAUDOIN.

Pour le vide secondaire nous avons d'abord utilisé des pompes à diffusion de vapeur de mercure puis une pompe à diffusion de vapeur d'huile.

L'utilisation d'une alimentation continue en azote liquide s'est posée, impérative pour le premier type de pompe, avantageuse pour le deuxième.

Système d'alimentation continue en azote liquide.

L'azote liquide est livrée en bonbonnes isolantes de 25 litres. Nous prenons une de celles qui "fument" le moins et nous la plaçons sur une bascule qui indique la consommation et la réserve. L'asservissement du remplissage est constitué par un système mécanique simple efficace et sans panne après une modification à la suite d'un incident.



Le tube hermétique (partie II de la figure) est rempli d'argon entre 1,2 et 1,5 bar absolu, le poinçon fermant la valve. Quand l'extrémité constituée par une cartouche "C" est dans l'azote liquide il y a cryopompage et l'extrémité T constituée par un boudin tombac se relève. La valve V est ouverte, les vapeurs d'azote s'échappent dans l'atmosphère. Quand le niveau baisse dans le dewar la cartouche "C" émerge; l'argon redevient gazeux, la valve se ferme, la pression monte dans la bonbonne et l'azote liquide monte dans le syphon et s'écoule dans le dewar jusqu'au niveau de la cartouche.

Un incident : le tuyau qui relie "C" et "T" étant très fin et le point de solidification assez proche du point de liquéfaction pour l'A, une nuit le tuyau s'est fermé par un bouchon d'argon solide, la vanne est restée fermée, l'azote a débordé, gelé l'eau des circuits qui se trouvaient au-dessous, d'où éclatement des canalisations, inondation, etc... Nous avons pris un tuyau de section plus grande et l'oxygène au lieu de l'argon ($t_{liq} = -186^\circ$, $t_{sol} = -216^\circ\text{C}$).

Depuis le système a fonctionné sans une seule défaillance.

Par ailleurs nous avons doublé les pompes à diffusion de vapeur de mercure (en verre) par une pompe (récupérée) à diffusion de vapeur d'huile. Il nous est arrivé l'incident suivant : nous avons prêté une pompe primaire... On nous la rend et par hasard on l'a branché sur le primaire de pompe à diffusion. Comme pendant le prêt les bornes du triphasé avaient été modifiées la pompe a tourné à l'envers et ce ne sont que les odeurs d'huile de pompe à palette vaporisée dans la chaufferette de la pompe secondaire qui nous ont alarmés. Il a fallu tout démonter, nettoyer, refaire les joints métalliques et en profiter pour mieux refroidir la sortie du primaire car le joint torique de caoutchouc avait été vulcanisé.

Nous avons utilisé :

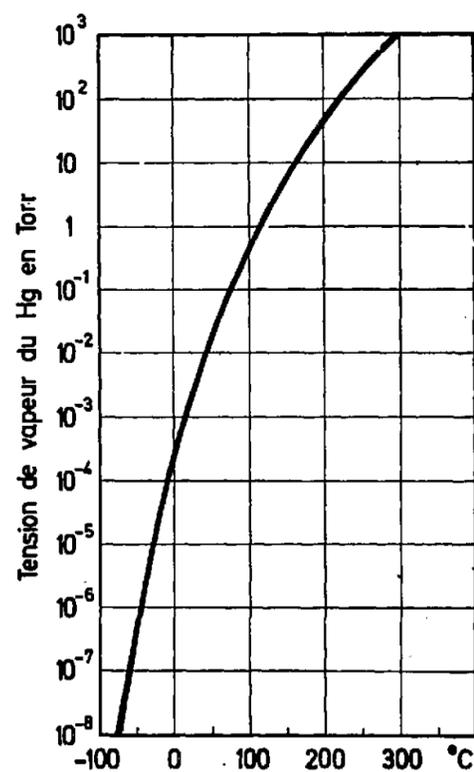
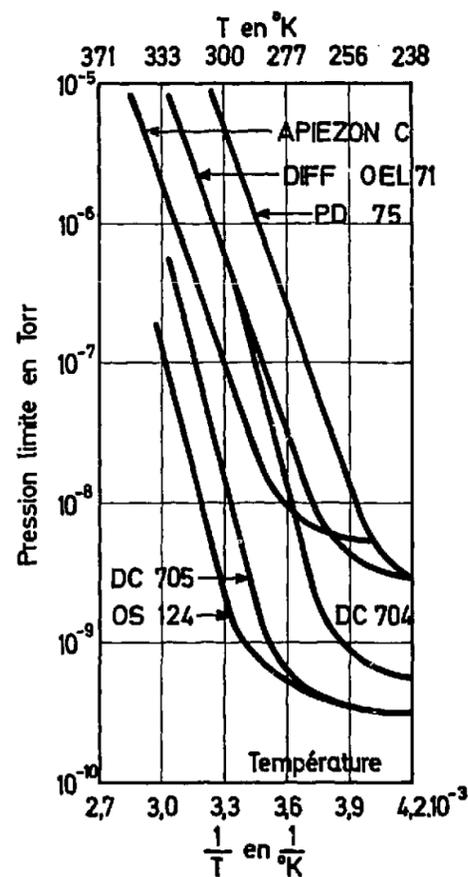
l'indium pour les joints froids

Le cuivre recuit pour les joints plus chaud ; (l'or est excellent).

Avantages des pompes à diffusion de vapeur d'huile.

La tension de vapeur du mercure à la température ordinaire ne permet pas un vide meilleur que celui des pompes primaires (danc ne pas oublier d'isoler les manomètres à mercure quand on fait le vide secondaire. Par contre la tension de vapeur des huiles ne dépasse guère 10^{-6} Torr à la température ordinaire (figures suivantes).

Aussi quoique nous utilisons le piège à azote liquide dans la pompe secondaire à diffusion de vapeur d'huile, un défaut d'alimentation en azote n'est pas grave alors que dans celles "type mercure" il y a pollution des canalisations par le mercure qui ensuite empêche de descendre au-dessous de 10^{-3} Torr.



GENESE D'UNE MESURE DE RADIOACTIVITE SPECIFIQUE DU KRYPTON.

Un prélèvement polaire est demandé à AIR FRANCE.

Il est commandé par la "régulation" qui affecte le "Château de KERJEAN" à la ligne et remet au commandant de bord la fiche ci-jointe, partie de gauche remplie.

Le prélèvement exécuté, le pilote remplit la partie droite. L'équipe qui à ORLY effectue le transversement émerge en bas à droite après vérification sur le compresseur. Nous sommes avertis par téléphone et allons à ORLY comprimer l'air prélevé à 200 bars dans une bouteille de 25 l. qui est ensuite transportée et montée sur le banc d'enrichissement où elle est traitée parfois par moitié comme dans l'exemple actuel.

FICHE DE PRELEVEMENT N° 2/66

DONNEES POUR LE PNT

A remplir par DM, UH ou DM, LR

IDENTIFICATION DU PRELEVEMENT

A remplir par le PNT.

DONNEES PRELEVEMENT :

- Etape (a - b) : *ANC. HAM*
- Date prévue (d) : *04-06-66*
- Lieu moyen du prélèvement : *63°N - 12°W*
- Durée approximative du prélèvement : 1 h 00
- Arrêt compresseur pour une pression de : 1 500 PSI

TRAVAUX à exécuter par l'escale de (a). *ANC. Vol n° 27/.*

- Vérifier le niveau d'huile compresseur
- Vider complètement la bouteille droite

TRAVAUX à exécuter par l'escale de (b). *HAM. Vol n° 27/.*

- Accrocher "l'étiquette d'interdiction" sur la bouteille droite

- NOTA : 1° - Procédure d'exécution en escale donnée par circulaire DM, LK N° 82.344
- 2° - Pour utilisation du compresseur se reporter à la note TU N° 12.12
- 3° - Le lieu moyen du prélèvement est donné par SACLAY ou DM, UF.

DESTINATAIRES : C. E. A.
D/M/ UH

- Date du prélèvement : *4-06-66*
- Heure TU du début du prélèvement : *4-06-66*
- Coordonnées du lieu de début du prélèvement Longitude *130° 30' W*
Latitude *75° 35' N*
- Heure TU d'arrêt du prélèvement *00h45*
- Coordonnées du lieu d'arrêt du prélèvement Longitude *77W*
Latitude *83N*
- Pression bouteille droite à l'arrêt du prélèvement *1550 PSI*
- Altitude avion moyenne lors du prélèvement *37.000ft*
- Température extérieure moyenne lors du prélèvement *-45,5°C*
- Vent, force moyenne *50 W/S*
- Vent, direction moyenne *310°*
- En cas d'anomalie en cours de prélèvement, en mentionner causes présumées

Et.

A REMPLIR PAR DM, LR APRES TRANSVASEMENT

- Pression bouteille droite lue avant transvasement *1800psi*
- Complément d'huile : VISA :

TRANSFERT dans B-25 n° *A-1506 1.7-6-66*

ANNEXE CE N° 1154 C

Page : 5/5

Sur le banc d'enrichissement les opérations décrites dans le texte sont ainsi effectuées.

Manipulation	débit gazeux (l/h)	Volume traité	Balayage N ₂
1			
1	≈ 700	1 610	10 à 30 l/h
2	≈ 30	163	21 à 10 l/h
3	≈ 10	5,5	0,51 à 15 l/h
4	Récupération	Remplissage d'une B1 bouteille 2,9 l	

Un échantillon du gaz récupéré permet d'en déterminer la composition en spectrométrie de masse. En % volumiques elle est :

Kr	Xe	CO ₂	CH ₄	N ₂	O ₂	Ar	non identifié
0,1	0,01	15,2	0,14	78,2	6	0,3	non identifié

Cette bouteille B1 qui contient les 2,9 l. de gaz ainsi récupérés est montée sur le banc de séparation du Kr où les opérations sont les suivantes :

- Lundi : on remplit à moitié le tube pythagoras d'uzyrit propre de façon que la masse d'uzyrit se trouve répartie dans la partie chaude du four. Le tube est ensuite placé sur le banc supérieur.
- 17 h : on met en place la bouteille B1 contenant le gaz à traiter sur le banc supérieur ; on ouvre le robinet reliant l'enceinte et la bouteille, cette dernière restant fermée. On fait le vide dans toute l'enceinte et on la laisse ainsi toute la nuit afin de détecter toute fuite éventuelle. On porte pendant ce temps le four à ≈ 500°C (température à laquelle l'uzyrit n'absorbe pas l'air).
- Mardi : On détend la bouteille dans l'enceinte supérieure à 550° (l'enceinte faisant avec la bouteille métal, 1 913 cc). Le manomètre à mercure relié au banc indique une pression de 588 mm. On porte alors le four à 1 200 °
- 12 h : 530 mm.
- 14 h : Le four est à 1 200 °. Le manomètre marque 261 mm
- 15 h : 201 mm
- 16 h : 163 mm
- 17 h : 126 mm

Mercredi 9h.30 : Le manomètre indique ≈ 0 mm : tout a donc été absorbé par l'uzyrit (à part le krypton). On introduit 15 mm d'Ar-CH₄ afin de suivre le piègeage au manomètre.

On met en place le piège à charbon actif et on le plonge dans un Dewar rempli d'azote liquide ; au bout de 10 minutes, on ouvre le robinet reliant le piège et l'enceinte supérieure : en 2 à 3 minutes, le manomètre redescend à 0 mm. On referme le robinet.

10 h. : On transporte le piège sur le banc inférieur ; on fait le vide dans l'enceinte inférieure. Pendant l'absorption, on a fait le vide dans le compteur.

14 h. : On laisse le piège se détendre dans le manomètre (on chauffe un peu) ; pendant ce temps, on rince le reste de l'enceinte inférieure avec de l'Ar-CH₄.

Une fois le piège détendu, le manomètre indique 432 mm : lorsqu'on met le compteur en communication, le manomètre marque 26 mm. On rince le piège à l'Ar-CH₄ et on finit de remplir le compteur avec ce gaz jusqu'à une pression de 740 mm. On ferme alors le robinet du compteur.

Le compteur est enlevé du banc de remplissage ; les zones de passage de la H.T. sont passées au méthylal et essuyées avec de l'ouate aseptisée : le compteur est monté sur le banc de mesure. La haute tension appliquée, on fait d'abord des mesures toutes les minutes pour voir s'il n'y a rien d'anormal. De toutes façons ces premiers résultats sont faibles et il faut attendre une bonne 1/2 heure pour parvenir à l'équilibre.

17 h : On passe alors en comptage de 10 minutes avec enregistrement des résultats ; ceci permet d'avoir le lendemain vers 10 heures une centaine de mesures : on déterminera la valeur cherchée et sa variance qui seront soumises aux tests (Annexe Ag).

Jeudi : Le comptage terminé, à titre de contrôle on trace rapidement le palier du compteur (seulement de 2 800 à 3 800 V par 100 V en faisant 2 ou 3 mesures de 10 minutes chaque fois). Tandis qu'on détermine la valeur de la radioactivité de l'échantillon qui est de 32,9 c/mn. Après correction du mouvement propre et du rendement du compteur on obtient pour l'activité due au Kr-85 $R = 36,12$ c/mn avec une précision au moins égale à 5 %. Dès que le compteur est enlevé de l'installation de comptage on prélève un échantillon de son contenu pour l'analyser par spectrométrie de masse puis on le vide et on le place sous vide secondaire jusqu'au prochain remplissage.

La composition de l'échantillon ne sera connue que quelques jours plus tard ; elle sera la suivante :

$$\frac{\text{CH}_4}{\text{Ar}} = 11,72 \% \quad \frac{\text{N}_2}{\text{Ar}} = 0,036 \% \quad \frac{\text{O}_2}{\text{Ar}} = 0,007 \% \quad \frac{\text{Xe}}{\text{Ar}} = 0,015 \%$$

$$\frac{\text{Kr}}{\text{Ar}} = 0,186 \%$$

On peut alors à partir du volume du compteur 1 175 cm³ déterminer le volume d'argon soit :

$$1\,175 \left(\frac{100}{100 + 11,72 + 0,18 + \dots} \right) \times \frac{740}{760} \times \frac{273}{293} = 950 \text{ cm}^3 \text{ d'argon}$$

Le volume de krypton est donc :

$$V = 950 \times \frac{0,186}{100} = 1,77 \text{ cm}^3 \text{ à } 5 \% \text{ près.}$$

L'activité spécifique à la date de la mesure du krypton de l'échantillon est donc :

$$A_t = \frac{R}{V} = \frac{36,12}{1,77} = 20,62 \text{ désintégrations mn}^{-1} \text{ cm}^{-3} \text{ de Kr.}$$

avec une erreur maximale de $\frac{\Delta A_t}{A_t} = \frac{\Delta R}{R} + \frac{\Delta V}{V}$ soit 5 % + 5 % =

10 % et une erreur probable de $\sqrt{(5/100)^2 + (5/100)^2} \approx 7 \%$

A la date du prélèvement, 16,5 mois plus tôt, cette activité A_0 était de :

$$A_t = A_0 e^{-\lambda t} \quad A_0 = A_t e^{\lambda t} \approx A_t (1 + \lambda t)$$

soit $20,62 \left(1 + \frac{16,5 \times 0,7}{10,4 \times 12} \right) = 22,58 \text{ des. mn}^{-1} \text{ cm}^{-3} \text{ de Kr.}$

Le résultat est donc $22,58 \pm 10 \%$

Durée du traitement d'un prélèvement.

	en une fois	par moitié
Prélèvement, transfert, transport	1 j.	1 j.
Enrichissement	2	4
Séparation	2	3
Comptage	1	1 à 2
	6 jours	10 à 11 jours

Par suite des ratés, incidents de toutes sortes (pannes de four, ruptures de tube, entrées d'air, pannes d'électronique, etc...) approvisionnements... il faut compter le double soit ≈ 15 jours de prélèvement donnant un résultat.

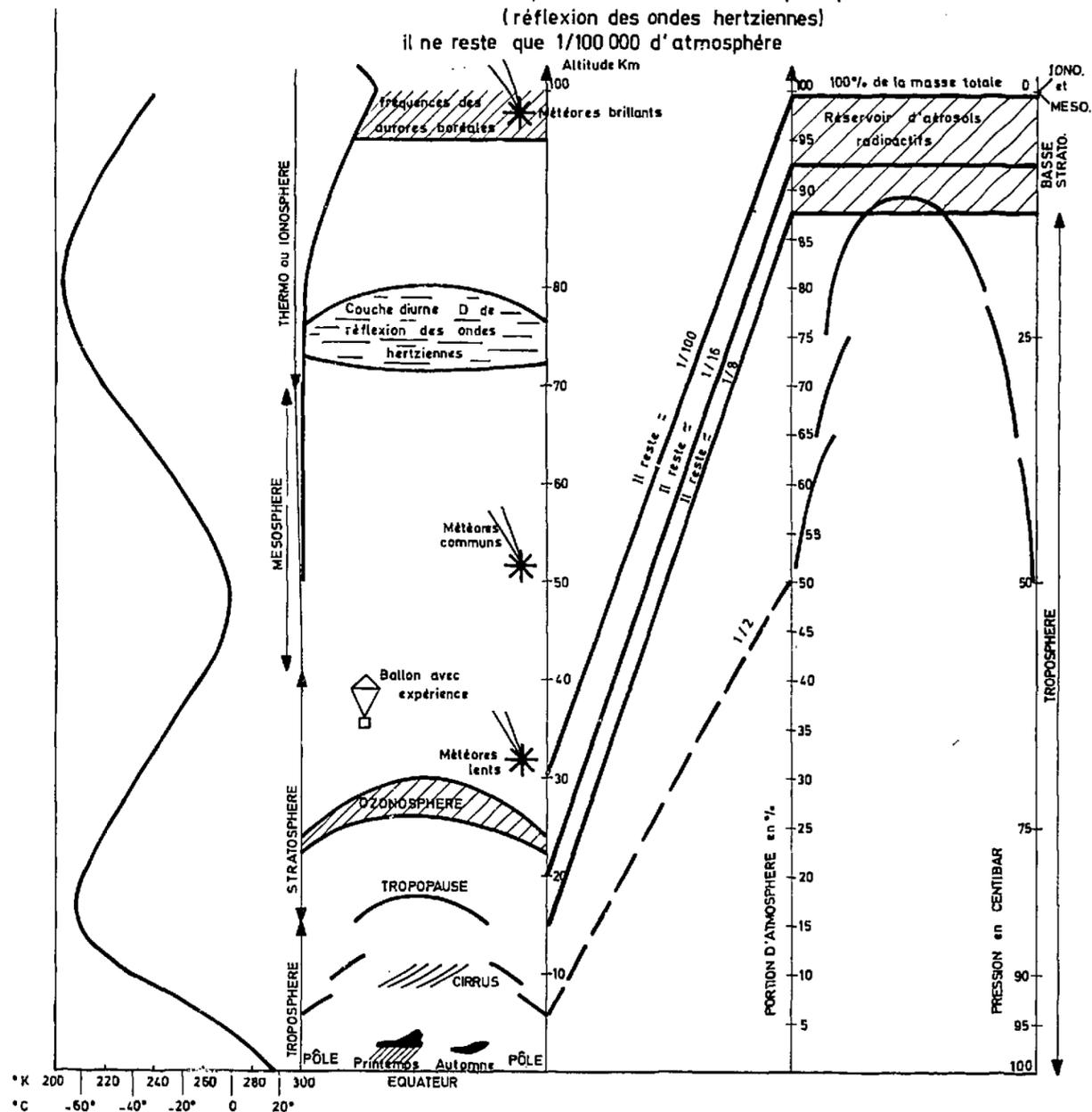
GENERALITES SUR L'ATMOSPHERE.

Dimensions. La distance à laquelle la force centrifuge deviendrait supérieure à celle de gravitation est de $\approx 35\ 000$ km mais à cause des vitesses d'agitation les particules peuvent bien avant acquérir des vitesses suffisantes (critiques) pour que, ne rencontrant pas d'autres molécules, elles puissent s'échapper. Ainsi, de l'hélium s'échappe, mais il en provient de la croûte terrestre et sa concentration atmosphérique reste constante. En fait on considère 1 000 km comme une limite (altitude des aurores boréales les plus élevées).

Pression. La pression suit de près la loi $p = p_0 \exp(-gh/RT)$ en fonction de l'altitude h . L'épaisseur moitié de l'atmosphère est $\approx 5,6$ km et devient plus faible en altitude où les températures sont basses. Aussi en retenant la valeur approchée 5 on évalue mentalement la pression. A 20 km par exemple, soit 4 épaisseurs-moitié ($p \approx \frac{1}{2^4}$ atm = $1/16 \approx 60$ mb).

Masse \approx égale à la surface de terre en $\text{cm}^2 \times 1 \text{ kg/cm}^2$ soit $\approx 5 \cdot 10^{18}$ kg.

Au delà de 100 Km : on ne trouve que les couches "F" ionosphériques (réflexion des ondes hertziennes) il ne reste que 1/100 000 d'atmosphère



Température. La température intervient pour l'évaluation de la masse spécifique mais à haute altitude la pression est si faible que la température ambiante n'a presque plus de sens et c'est le rayonnement qui est prépondérant. Exemple : à 30 km d'altitude quoique l'on soit à -40°C il suffit qu'un objet soit peint en noir pour que, le jour, il s'échauffe jusqu'à plus de 100°C .

Les courbes de température en fonction de l'altitude sont très variées. Les valeurs données sur la figure précédente sont considérées comme les plus probables [Bv-3].

Stratification et turbulence. Les conditions requises pour certains phénomènes (magnétisme, densité moléculaire, rayonnement, etc...) conduisent à localiser ces phénomènes dans des couches ou strates bien déterminées. D'où la terminologie, préconisée par l'Union Internationale de Géophysique et utilisée pour la figure précédente. En fait ces couches sont limitées par des sphéroïdes et certaines ne constituent qu'une faible proportion massique de l'atmosphère. La partie la plus importante en masse et pour la météorologie, la navigation aérienne, la climatologie, les transferts d'énergie... comprend essentiellement la troposphère dont le caractère dominant est la turbulence.

Proportions. La troposphère, près de 4/5 de l'atmosphère, représente, avec la basse stratosphère (jusqu'à 30 km) les 99 % de l'atmosphère. La basse stratosphère a pris une grande importance avec les explosions nucléaires : si les aérosols lourds descendent par gravité en constituant les retombées locales, les aérosols légers sont injectés dans la stratosphère et, s'y trouvant en quasi-équilibre, y séjournent ; la basse stratosphère constitue ainsi un réservoir de radioactivité qui ne se vide que très lentement.

Mais nous pensons que pour des raisons diverses (nouveau, quantité des mesures, psychologie, caractéristiques des éléments radioactifs, etc...) l'étude de la stratosphère a conduit à surestimer momentanément son rôle dans les problèmes d'échanges et de transferts.

COMPOSES DU KRYPTON

(Aucun de ces composés n'a pu être utilisé en vue de la séparation du krypton de nos prélèvements).

Les Clathrates.

Ce terme (probablement dérivé de to clasp : étreindre) désigne une forme de composé moléculaire telle qu'un des composants (qu'on pourrait appeler geôlier) possédant une structure cristalline cage (ou geôle) peut enfermer et retenir dans certaines conditions un certain nombre d'atomes de l'autre composant (qui est prisonnier). Caractéristiques :

- les forces agissantes sont celles de Van der Waals.
- les dimensions du "prisonnier" doivent convenir.
- à la différence du piégeage par les tamis moléculaires on peut parler de composés stoechiométriques parce qu'à chaque maille constituée d'un nombre défini "m" de molécules "G" du geôlier il correspond un nombre défini "n" de geôles qui peuvent loger un maximum de prisonniers nP. On peut écrire la formule $x P, mG$ avec $0 < x \leq n$.

Il existe plusieurs clathrates de Kr mais le seul quasiment stable dans les conditions normales est celui d'hydroquinone préparé d'abord par POWELL [Bp-2]. Celui préparé par CHLECH et ZIEGLER [Bc-2] avec du Kr-85 d'une activité de 3 Ci/g sert à préparer des sources β .

Les Hydrates.

Un hydrate de Kr qui est un clathrate formé de mailles comprenant 46 molécules d'eau qui possèdent 8 cages (6 de 5,9 Å et 2 de 5,2 Å) où peuvent se loger les atomes de Kr (4,0 Å).

Sa formule est donc $x\text{Kr}, 46\text{H}_2\text{O}$ avec $0 < x \leq 8$, soit à saturation : Kr. 5,75 H_2O .

Une préparation des hydrates de gaz rares à basse température et haute pression est commentée par M. WALLER [Bw-1].

Il est intéressant de remarquer que les énergies mises en jeu pour la formation des cristaux de glace d'hydrates de Kr, déduction faite de l'énergie de formation de la glace, soit 5,6 kcal mole⁻¹ de Kr, 5,75 H_2O , et pour l'adsorption sur charbon actif, soit 5,3 kcal mole⁻¹ de Kr, sont du même ordre [Bc-1a].

Les Halogénures.

Dès 1933 on déclare la formation de chlorures de Kr [Ba-2].

Une préparation du tétrafluorure de krypton, solide blanc formé de magnifiques cristaux qui se décomposent au-dessus de -30°C, est commentée par H. H. HYMAN [Bh-1].

D'autres halogénures ont été signalés.

L'insertion. (appellation française proposée).

Ce procédé, baptisé par l'inventeur américain "encapsulation" [Bs-1] consiste à faire entrer "par force" des molécules de gaz dans des cavités du tamis plus petites que les molécules, à la température ambiante. On chauffe la zéolithe de 200°C à 500°C, par exemple en présence du gaz à insérer sous une pression de quelques milliers de bars (probablement que les cavités sont agrandies d'une part et que l'énergie des molécules gazeuses est suffisante pour vaincre la barrière de potentiel des ouvertures). On refroidit ensuite en maintenant la pression. Le pourcentage en poids du Kr inséré dans la zéolithe 5A atteint 30 % après retour aux conditions ordinaires et n'a guère varié après 3 mois. On peut le déloger soit en chauffant soit en le déplaçant par des molécules plus fortement adsorbées telles que H_2O .

On peut ainsi préparer des sources de krypton-85 (analogie avec les clathrates d'hydroquinone).

Le Kr-85 : TRACEUR UNIVERSEL.

Les kryptonates-85 : leurs applications comme détecteurs de traces.

Les sources de Kr-85 préparées par insertion forcée de Kr-85 dans les mailles des tamis moléculaires présentent une extrême sensibilité aux traces de vapeur d'eau dont les molécules déplacent le Kr-85.... qu'il suffit de mesurer soit dans le flux de gaz dont on veut contrôler l'absence d'eau, soit par diminution de l'activité de la source.

On peut ainsi contrôler la présence de traces d'eau nettement inférieures au p.p.m. Nous envisageons ce procédé pour des mesures de vapeur d'eau et de tritium en altitude.

On a alors essayé d'étendre la méthode d'insertion à d'autres structures que celles des tamis et on est parvenu (à haute température et haute pression) à insérer du krypton dans un grand nombre de corps qu'on a baptisé kryptonates (kryptonates de bore, de carbone (sous plusieurs formes) de cuivre, de plomb, magnésium.... etc.).

Par cette méthode d'insertion on est arrivé à "marquer" un grand nombre de matériaux au Kr-85 ; d'où le nombre de publications sur le sujet "Kr-85, traceur universel".

Exemples :

Etude de l'oxydation par des traces d'oxygène.
Etude des surfaces (usure,....) [Bc-2]

LE CHOIX D'UN SUJET DANS LE DOMAINE DES SCIENCES
APPLIQUEES

"Une réussite réside moins souvent dans l'adresse
et l'intelligence à résoudre les problèmes que dans
la finesse, l'art et l'analyse de leur choix."

Il est fréquent d'entendre dire à qui désire faire de la recherche qu'il y a profusion de sujets. En effet dans toute réalisation on est limité à un moment ou un autre par l'absence de données ; on souhaiterait donc que soit étudié le problème qui fournirait les résultats désirés. En fait, ce problème peut n'être que documentaire, ou d'élémentaire technologie, ou ne pourrait, au contraire, avoir des chances d'être résolu que par un travail d'équipe pendant une décennie. Aussi l'option pour un sujet ne sera confirmée qu'après un examen d'une durée de 1 à 2 mois qui, dans le domaine des sciences appliquées, doit consister à dresser un plan chiffré et daté d'études, ^{de} montages, d'expérimentations et de fournitures. Ce premier programme qui généralement fera sourire une fois le travail terminé,

permet d'avoir une vue d'ensemble et de se rendre compte de l'originalité du problème et de ses possibilités de résolution tant du point de vue matériel et financier que de celui des connaissances.

Si l'entreprise paraît sans issue ou trop hasardeuse il faut

l'abandonner et remettre un mémoire justificatif à la personne qui l'a suggérée.

Si le sujet est adopté il est recommandé de rédiger une fiche d'étude sur une

seule page et d'en faire un tirage d'une ou deux dizaines (1 exemplaire ci-joint).

Ceci permet de situer une question dans son contexte général quand on est amené

à en parler avec les diverses personnes qu'on consulte ou auxquelles

on demande une contribution. Naturellement le texte de cette fiche évolue au fur

et à mesure des travaux.

Dès que possible on rédige l'historique de ce qui a été fait et

publié concernant le sujet. On détermine ainsi la plateforme de départ essentiel-

lement appuyée sur une recherche bibliographique. Ce travail bibliographique

ne prend ensuite que peu de temps car on est familiarisé avec certains documents

tels que le Nuclear Science Abstracts et les bulletins signalétiques du C.N.R.S. ;

de plus, on suit régulièrement 2 ou 3 revues sélectionnées. On se procure une co-

pie des textes particulièrement intéressants, mais tous les articles qui ont attiré

l'attention seront notés avec une appréciation et éventuellement une analyse.

En effet, il arrive souvent que l'objectif initial se modifie et qu'un article

prenne de l'intérêt ; par ailleurs on peut signaler ces documents à des collègues

susceptibles d'être intéressés, à charge de revanche. L'oeuvre qui en résulte

est profitable à tous.

a) Motif de l'étude

Par note du 18 Mai 1962 le Chef du Service Chimie du Plutonium posait le problème du piégeage du Kr-85 qui se dégage lors de la dissolution des combustibles irradiés dans les usines de traitement.

Vue l'importance de ce gaz de fission :

rendement de fission : 0,3 %	Période 10,3 ans	C.M.A. $3 \cdot 10^{-6}$ $\mu\text{Ci/cm}^3$
émetteur β 0,15 MeV (0,65 %) et 0,67 (99,35 %)		
γ 0,52 MeV (0,65 %)		

Le rejet dans l'atmosphère ne peut être envisagé que dans l'hypothèse d'une répartition homogène.

S'il n'en était pas ainsi, le piégeage du Kr devrait être prévu pour les prochaines installations.

Les résultats de cette étude auront comme intérêt connexe d'apporter des précisions sur les grands mouvements de l'atmosphère, le Kr-85 étant alors considéré comme traceur.

b) Programme de l'étude

Le Krypton étant dans l'atmosphère à une concentration de $\approx 1 \cdot 10^{-6}$, l'activité due au Kr-85 est $\approx 5 \cdot 10^{-12}$ Ci par m^3 d'air (soit $\approx 0,2$ désintégration. $\text{S}^{-1} \text{m}^{-3}$). Il est nécessaire de prélever un grand volume d'air pour effectuer la séparation du Kr-85 et son comptage.

Nous avons pris 5m^3 T.P.N. soit environ 6,5 kg d'air.

Ces échantillons sont alors traités par l'Air Liquide qui après quelques essais, est arrivé à apporter un facteur de réduction de 2500. L'Air Liquide livre une bouteille de 2 litres dans laquelle il garantit les 99,5 % du Kr initialement contenu dans les 5m^3 , le complément étant constitué d'azote et d'oxygène dans la proportion habituelle.

Pour effectuer des mesures avec des compteurs proportionnels, il faut séparer le Kr de l'oxygène et de l'azote mais on peut conserver l'Argon qui servira d'ailleurs de gaz de remplissage du compteur.

A cette fin nous avons monté un banc qui, par absorption sur des copeaux de Zirconium, nous permet de récupérer par piégeage sur charbon actif le Kr et l'A.

Le comptage s'effectue alors sur un ensemble compteur proportionnel à très bas niveau (blindage, couronne anti-cosmique ...).

c) Programme de prélèvements

1°/ - Des prélèvements :

Par un appareil d'Air France qui, circulant par rotation, peut effectuer des opérations sur "le plus long réseau aérien du monde" à l'altitude de 12.000 m. L'équipement est monté sur un boeing double flux.

2°/ - Des prélèvements sur commande, en des lieux et à des altitudes déterminés, soit par un ensemble de prélèvement breveté autonome soit par un système de ballon qui se remplit à l'altitude désirée (jusqu'à 40 km).

3°/ - Des prélèvements au sol dans les stations de contrôle déjà existantes et en mer sur bateau. Equipement : un ensemble compresseur avec bouteilles.

d) Inventaire des sources du Kr-85

Etude bibliographique cherchant à rassembler les données sur les émissions du Kr-85, date, lieu et grandeur.

e) Solution proposée pour l'élimination du Kr-85

Comme tout système de piégeage est compliqué lorsqu'il s'agit de gaz rares, la solution envisagée consiste à installer les usines de traitement de combustibles irradiés sur un site de structure géologique convenable pour le stockage souterrain de gaz en nappes aquifères profondes. Les capacités de telles nappes sont de l'ordre du Km^3 ou Gm^3 et les débits peuvent atteindre quelques m^3/s , par tête.

FIN