

**ETUDE D'UNE METHODE DE DETECTION DU CARBONE 14 NATUREL, UTILISANT UN SCINTILLATEUR LIQUIDE - VARIATIONS RECENTES DE L'ACTIVITE NATURELLE DUES AU CARBONE 14 ARTIFICIEL (1963)**

**Sommaire :**

Parmi les différents isotopes naturels du carbone, un isotope radioactif, le carbone 14, est formé par l'action de neutrons secondaires des rayons cosmiques sur l'azote dans l'air.

Jusqu'en 1950, la concentration de cet isotope dans le carbone ordinaire est soumise à des fluctuations de faible amplitude, de l'ordre de 2 à 3 pour cent. Les mesures précises de cette concentration,  $6 \cdot 10^{-12}$  Ci/g de carbone, et de ses fluctuations sont délicates, et dans la première partie de ce rapport, on décrit une méthode de détection à grande sensibilité utilisant un scintillateur liquide.

Depuis 1950, cette activité naturelle subit des fluctuations importantes dues au carbone 14 formé lors des explosions nucléaires, et dans la seconde partie, on examine l'évolution en France de l'activité spécifique du carbone de l'atmosphère et de la biosphère.

Dans la dernière partie, on étudie l'accroissement local de l'activité du carbone de l'air aux environs du site de Saclay, accroissement provoqué par le carbone 14 rejeté sous forme de  $C^{14}O_2$  par les réacteurs refroidis partiellement à l'air extérieur.

72 pages

1963

**STUDY OF A METHOD OF DETECTION FOR NATURAL CARBON-14 USING A LIQUID SCINTILLATOR, RECENT VARIATIONS IN THE NATURAL RADIO-ACTIVITY DUE TO ARTIFICIAL CARBON-14 (1963)**

**Summary :**

Among the various natural isotopes of carbon, a radio-active isotope, carbon-14, is formed by the action of secondary neutrons from cosmic rays on nitrogen in the air.

Until 1950, the concentration of this isotope in ordinary carbon underwent weak fluctuations of about 2-3 per cent. The exact measurement of this concentration  $6 \times 10^{-12}$  Ci/gm of carbon, and of its fluctuations, are difficult and in the first part of this report a highly sensitive method is given using a liquid scintillator.

Since 1950 this natural activity has shown large fluctuations because of the carbon-14 formed during nuclear explosions, and in the second part, the evolution in France of this specific activity of carbon in the atmosphere and biosphere is examined. In the last part is studied the local increase in carbon activity in the atmosphere around the Saclay site, an increase caused by the carbon-14 given off as  $C^{14}O_2$  by the reactors cooled partially with exterior air.

72 pages

1963

**PREMIER MINISTRE  
COMMISSARIAT A  
L'ÉNERGIE ATOMIQUE**

**ETUDE D'UNE MÉTHODE DE DÉTECTION DU CARBONE 14  
NATUREL UTILISANT UN SCINTILLATEUR LIQUIDE  
VARIATIONS RÉCENTES DE L'ACTIVITÉ NATURELLE  
DUES AU CARBONE 14 ARTIFICIEL**

**par**

**Concèle LEGER**

**Rapport C.E.A. n° 2328**

**1963**

**CENTRE D'ÉTUDES  
NUCLÉAIRES DE SACLAY**



# THÈSES

PRÉSENTÉES

A LA FACULTÉ DES SCIENCES  
DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS

POUR OBTENIR

LE TITRE DE DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ

PAR

**Concèle LEGER**

PREMIÈRE THÈSE

Etude d'une méthode de détection du carbone 14 naturel  
utilisant un scintillateur liquide - Variations récentes de l'activité  
naturelle dues au carbone 14 artificiel

DEUXIÈME THÈSE

Propositions données par la Faculté

Soutenues le 19 Juin 1963 devant la Commission d'Examen

MM. TEILLAC

Président

LEFORT, (Rapport.)

LABEYRIE

} Examineur



Je prie M. Le Professeur Jean Teillac qui a bien voulu diriger ce travail, de recevoir l'expression de ma respectueuse gratitude.

Que M. Maurice Surdin trouve ici l'expression de ma reconnaissance pour l'intérêt qu'il a toujours témoigné pour ce travail.

Je tiens à exprimer ma reconnaissance à M. Jacques Labeyrie pour l'appui qu'il m'a apporté et les conseils précieux qu'il m'a donnés.

Je remercie Mme. Georgette Delibrias qui m'a constamment aidée et encouragée au cours de ce travail.

L'étude des variations récentes de l'activité naturelle dues au carbone 14 artificiel a été en partie effectuée avec le concours de Mmes Marie-Thérèse Guillier et Georgette Lequais, qu'elles veuillent trouver ici mes vifs remerciements.



L'étude de la radioactivité naturelle due au  $C^{14}$  s'est rapidement développée depuis que Libby en 1947 vérifia expérimentalement l'hypothèse selon laquelle un isotope radioactif du carbone,  $C^{14}$ , était produit dans l'atmosphère par les neutrons d'origine cosmique.

A l'heure actuelle, l'activité du carbone de l'air s'accroît sous l'effet des neutrons produits par les explosions nucléaires : elle a presque doublé depuis le début des explosions à forte puissance, c'est-à-dire depuis une dizaine d'années ; l'équilibre qui existait avant ces dernières années entre la teneur en  $C^{14}$  de l'air et celle des végétaux et animaux terrestres et marins est très fortement perturbé.

De même, des sources puissantes de neutrons comme les réacteurs nucléaires peuvent rejeter du  $C^{14}$  dans l'atmosphère environnante et produire ainsi des perturbations locales.

L'activité spécifique du carbone naturel contemporain, qui était avant les explosions nucléaires de  $6.10^{12}$  Ci/g et l'énergie maximale du rayonnement  $\beta$  du  $C^{14}$  : 155 keV, qui est une des plus faibles de tous les nuclides radioactifs, rendent les mesures particulièrement délicates.

La première partie de ce travail est consacrée au développement d'une méthode de mesure par scintillation caractérisée par une sensibilité plus grande que celle des méthodes précédemment mises au point, qui utilisaient en général le comptage du radiocarbonate sous une forme gazeuse dans un compteur Geiger-Müller ou dans un compteur proportionnel.

L'étude de l'évolution récente dans le monde de l'activité due au radiocarbonate, à la suite des essais d'explosions nucléaires, fait l'objet de la deuxième partie, on donne en particulier les résultats de cette évolution en France au cours de ces dernières années.

Enfin, dans la dernière partie on étudie une perturbation très locale, la contamination d'un site par  $C^{14}$  provenant des réacteurs nucléaires.



# I - INTRODUCTION

Parmi les éléments présents à la surface de la terre, l'un des plus importants est le carbone, élément indispensable au développement des êtres vivants. Il est très largement réparti, dans l'atmosphère sous forme de gaz carbonique, dans la biosphère sous forme de molécules organiques complexes, dans les océans sous forme de carbonates et de bicarbonates. Des échanges constants plus ou moins rapides, portant sur quelques dizaines à quelques milliers d'années, se produisent entre le réservoir atmosphérique et les autres réservoirs, l'ensemble constituant le système dit "échangeable". Le poids total du carbone contenu dans ce système est de l'ordre de  $4.10^{13}$  tonnes (Libby 1955).

Outre le système échangeable, on distingue le système sédimentaire, qui comprend les roches, les sédiments marins, les charbons et pétroles, qui contient environ  $2.10^{16}$  tonnes de carbone, mais pour lequel les échanges avec l'atmosphère sont extrêmement lents, et portent sur plusieurs millions d'années (Tableau I) (O. N. U. 1960).

La rapidité des échanges entre les réservoirs du système échangeable a permis d'envisager l'utilisation de  $C^{14}$ - isotope radioactif - comme traceur afin d'étudier le cycle du carbone dans la nature. En effet, la vie moyenne de  $C^{14}$ , qui est de 8 300 ans environ, est grande par rapport aux vitesses d'échanges considérées, et les modifications de l'activité spécifique du carbone, récemment provoquées par l'homme, peuvent contribuer à la connaissance de ce cycle.

Tableau I  
Distribution du carbone à la surface de la terre

| Réservoir                         | Quantité de carbone                         | Dimension du réservoir rapportée au réservoir atmosphérique |
|-----------------------------------|---------------------------------------------|-------------------------------------------------------------|
|                                   | (en g/cm <sup>2</sup> de surface terrestre) |                                                             |
| Atmosphère                        | 0,126                                       | 1                                                           |
| { Biosphère                       | 0,06                                        | 0,5                                                         |
| { Humus                           | 0,20                                        | 1,6                                                         |
| Océans { eaux superfi-<br>cielles | 0,18                                        | 1,5                                                         |
|                                   | 7,50                                        | 60                                                          |
| Système échangeable               | 8,06                                        |                                                             |
| Système sédimentaire              | 4 900                                       |                                                             |

## 1.1 - Isotopes du carbone

Le carbone naturel est composé de deux isotopes stables,  $C^{12}$  et  $C^{13}$ , et d'un isotope radioactif  $C^{14}$ . La valeur du rapport isotopique  $\frac{C^{13}}{C^{12}}$  est de l'ordre de 0,011, mais elle subit de légères variations suivant les réservoirs considérés, les différents processus chimiques ou biologiques d'échange entraînant de faibles effets de séparation isotopique.

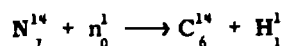
$C^{14}$  est l'isotope le moins abondant et le rapport  $\frac{C^{14}}{C^{12}}$  est de  $1,3.10^{-12}$  environ ; les séparations isotopiques intervenant lors des phénomènes d'échange affectent aussi cette valeur.

Le carbone-14 est un émetteur  $\beta$  pur, dont le rayonnement a une énergie maximale de 155 keV, et une énergie moyenne de 50 keV environ.

Sa période a été déterminée avec précision par le National Bureau of Standards en 1961, elle est égale à  $5\,760 \pm 50$  ans. Jusque là une valeur moyenne de 5 568 ans était adoptée par les différents laboratoires.

## 1. 2 - Formation de $C^{14}$ naturel

$C^{14}$  est formé par l'action des neutrons d'origine cosmique sur l'azote de l'air suivant la réaction :



Le rayonnement cosmique primaire est en grande partie constitué de protons de haute énergie, qui en entrant dans l'atmosphère, par action sur les noyaux d'oxygène ou d'azote, donnent naissance à des neutrons secondaires de moindre énergie. Ces neutrons produisent à leur tour des réactions nucléaires sur les constituants de l'atmosphère, soit lorsqu'ils sont encore animés d'une certaine énergie, soit lorsque progressivement ralentis ils ont atteint l'énergie thermique.

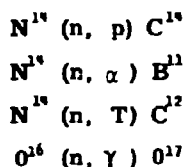
Le caractère secondaire du rayonnement neutronique est mis en évidence par la variation de l'intensité du flux de neutrons en fonction de l'altitude. Cette intensité passe par un maximum à une altitude de 15 km environ (figure 1). Elle diminue ensuite, la proportion de protons primaires dans le rayonnement cosmique décroissant suivant l'épaisseur de la couche d'air traversée ; au niveau du sol, l'intensité du flux de neutrons ne représente plus que 1 % de l'intensité maximale (Libby 1955).

Ainsi la formation du radiocarbone naturel se produira en grande partie dans la stratosphère.

On observe également une variation de l'intensité du flux neutronique d'origine cosmique, en fonction de la latitude. Cet effet est dû à l'action du champ magnétique terrestre sur les trajectoires du rayonnement primaire, les déviations les plus importantes se produisant au niveau de l'équateur, où l'intensité est ainsi quatre fois plus faible qu'au niveau des pôles.

La figure 1 montre cette variation observée à 9 km d'altitude (Libby 1955).

Parmi les réactions nucléaires que les neutrons cosmiques peuvent provoquer sur les éléments constituant l'atmosphère, les principales sont :



La section efficace de capture des neutrons thermiques pour la première de ces réactions est  $1,7 \cdot 10^{-28} \text{ cm}^2$ . Elle diminue lorsque l'énergie des neutrons croît, cependant cette réaction reste encore prédominante, les sections efficaces des réactions suivantes étant respectivement de l'ordre de 1/10, 1/100, et 1/1000 de cette valeur.  $C^{14}$  ainsi formé à partir de l'azote de l'air doit ensuite s'oxyder et séjourner dans l'atmosphère sous forme de gaz carbonique.

Si l'on suppose que l'intensité du rayonnement cosmique est restée constante depuis plusieurs milliers d'années, la vie moyenne du radiocarbone étant 8 300 ans, l'activité spécifique du carbone contenu dans le système échangeable doit être constante, à condition toutefois que  $C^{14}$  formé dans la haute atmosphère se répartisse uniformément à la surface de la terre. Libby dès 1946, évalua ainsi approximativement l'activité du carbone dans cet état d'équilibre.

Le flux de neutrons cosmiques variant beaucoup avec l'altitude et la latitude, il est difficile d'en déterminer une valeur moyenne, cependant des évaluations récentes (Craig 1957) indiquent comme valeur probable de formation de  $C^{14}$  :  $2 \pm 0,5 \text{ atomes/cm}^2/\text{s}$ .

On peut déduire de ce taux de formation et de la quantité de carbone présente à la surface de la terre :  $8,1 \text{ g/cm}^2$ , l'activité spécifique que doit présenter à l'équilibre le carbone naturel du système échangeable :

$$\frac{2 \times 60}{8,1} = 15 \text{ désintégrations/min/g. de C}$$

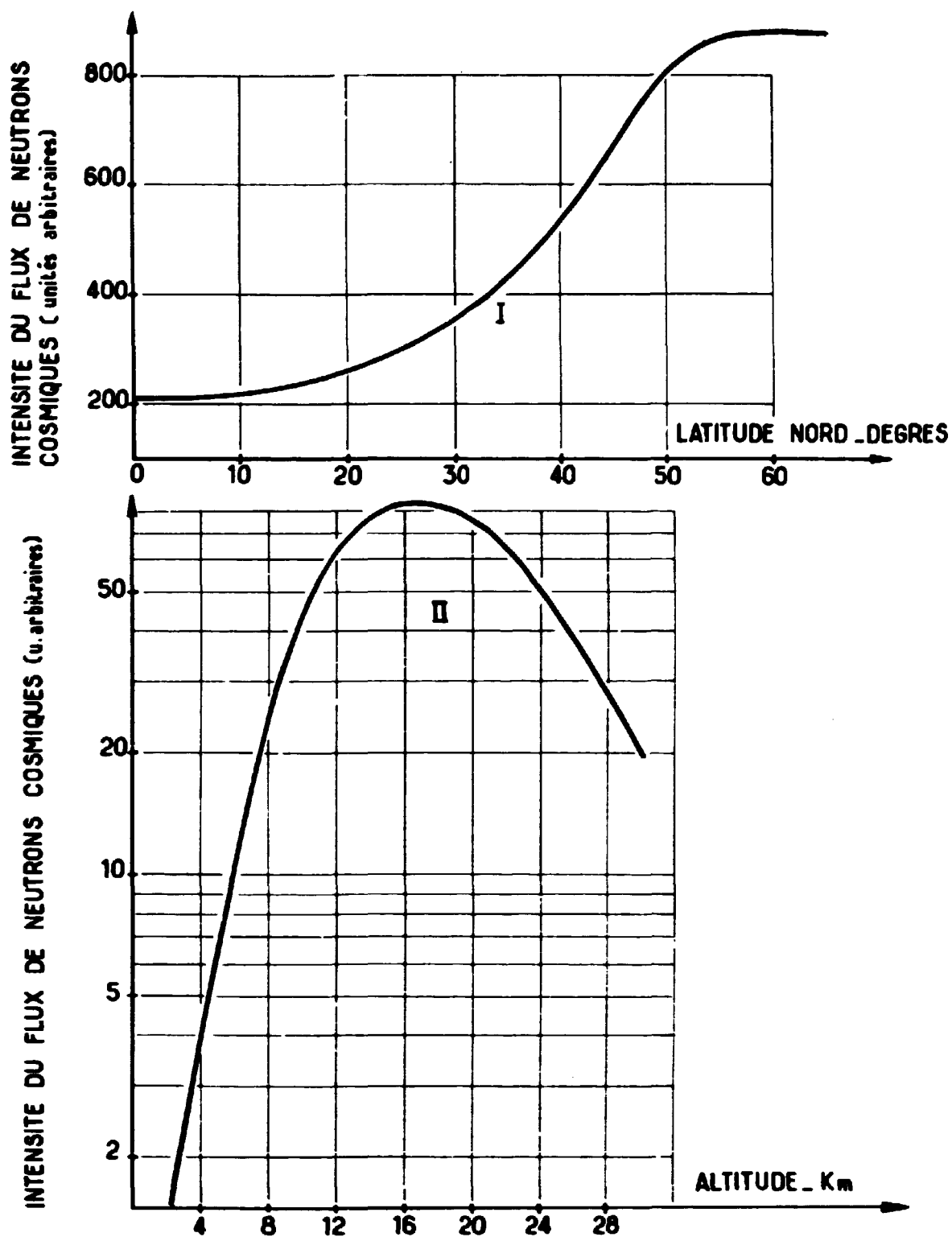


fig. 1 - Variation de l'intensité du flux de neutrons cosmiques  
 I - Suivant la latitude (d'après J.A. Simpson - Phys. Rev. 73, 1389 - 1948) ; II - Suivant l'altitude (d'après W.F. Libby - Radiocarbon Dating 1955)

### 1. 3 - Activité spécifique du carbone naturel

Les premières mesures de l'activité spécifique du carbone furent entreprises par Libby et portèrent tout d'abord sur le carbone de la biosphère contemporaine. Les résultats obtenus étant parfaitement compatibles avec la valeur prévue, le premier travail de Libby et Anderson consista à mesurer l'activité du carbone en fonction de la latitude et de l'altitude. Ils trouvèrent ainsi, malgré la variation de l'intensité du flux cosmique, une activité constante à la précision des mesures près, et en conclurent que les échanges de  $\text{CO}_2$  dans l'atmosphère étaient suffisamment rapides pour déterminer à la surface du globe une répartition homogène.

Depuis, de nombreux auteurs ont publié les valeurs, déterminées expérimentalement, de l'activité spécifique absolue du carbone contenu dans le bois, exprimées en désintégrations par minute et gramme de carbone :

|                |        |                |
|----------------|--------|----------------|
| ANDERSON-LIBBY | (1951) | $15,3 \pm 0,5$ |
| DOUGLAS        | (1952) | 14,5 à 14,8    |
| ARNOLD         | (1954) | 15,2           |
| FERGUSON       | (1955) | $12,5 \pm 0,2$ |
| HAYES          | (1955) | $13,6 \pm 0,2$ |
| SUESS          | (1955) | $14,7 \pm 0,4$ |

Ces résultats diffèrent entre eux assez notablement mais les erreurs introduites au cours de ces mesures sont difficiles à évaluer, en particulier le rendement absolu d'un appareil est rarement connu avec certitude, d'autre part des séparations isotopiques peuvent se produire au cours de la transformation chimique de l'échantillon en composé carboné utilisable.

Ces résultats sont toutefois en accord avec la valeur de 15 désintégrations/min/g de C, déduite de l'intensité du rayonnement cosmique et de la quantité de carbone contenue dans le système échangeable.

Les méthodes de détection devenant plus sensibles, on a pu maintenant observer que cette activité varie légèrement suivant la forme chimique où se trouve le carbone, et peut varier également suivant le réservoir considéré. Ceci est dû, d'une part aux séparations isotopiques se produisant au cours des phénomènes d'échange entre réservoirs, d'autre part à la rapidité même de ces échanges : Rafter (1955) a ainsi montré que l'activité du  $\text{CO}_2$  atmosphérique est supérieure de 3,73 % à l'activité du carboné contenu dans les végétaux.

### 1. 4 - "Datages"

L'une des premières applications faisant suite à ces vérifications, et développée également par Libby est la détermination de l'âge des échantillons fossiles. Tout organisme vivant puisqu'il assimile soit directement, soit indirectement le  $\text{CO}_2$  atmosphérique, doit présenter au cours de sa vie une activité en première approximation égale à celle du carbone de l'air. A sa mort, tout échange cesse et son activité va alors décroître suivant la période de  $\text{C}^{14}$ , soit 5 760 ans. De la mesure de l'activité spécifique du carbone contenu dans un fossile on pourra déduire l'âge de ce fossile, c'est-à-dire le temps écoulé depuis la mort de l'organisme.

Cette détermination repose toutefois sur une hypothèse qui jusqu'à présent n'a pas été vérifiée de façon formelle : l'activité spécifique des organismes vivants est la même depuis plusieurs dizaines de milliers d'années. Ceci implique que l'intensité du rayonnement cosmique est restée constante pendant ce même temps.

Des mesures effectuées par Libby et Ralph (1961), il ressort que l'intensité du rayonnement cosmique n'a pas dû varier durant les cinq derniers millénaires : ces mesures portent sur des échantillons dont l'âge est connu historiquement et les dates obtenues par la méthode du  $\text{C}^{14}$  sont en concordance comme le montre la figure 2.

Les résultats publiés récemment par Arnold (1960), relatifs aux activités des différents radioéléments formés par le rayonnement cosmique dans les météorites, laissent supposer que l'intensité de ce rayonnement n'a pas varié de façon significative depuis des temps très reculés, de l'ordre du million d'années. A l'heure actuelle, aucune preuve réelle n'ayant pu confirmer cette hypothèse, celle-ci est seulement considérée comme très probable.

Il faut cependant mentionner les variations de l'intensité du rayonnement cosmique qui se produisent lors des éruptions solaires, mais ces variations sont de courte durée et ne doivent pas modifier sensiblement l'activité spécifique du carbone.

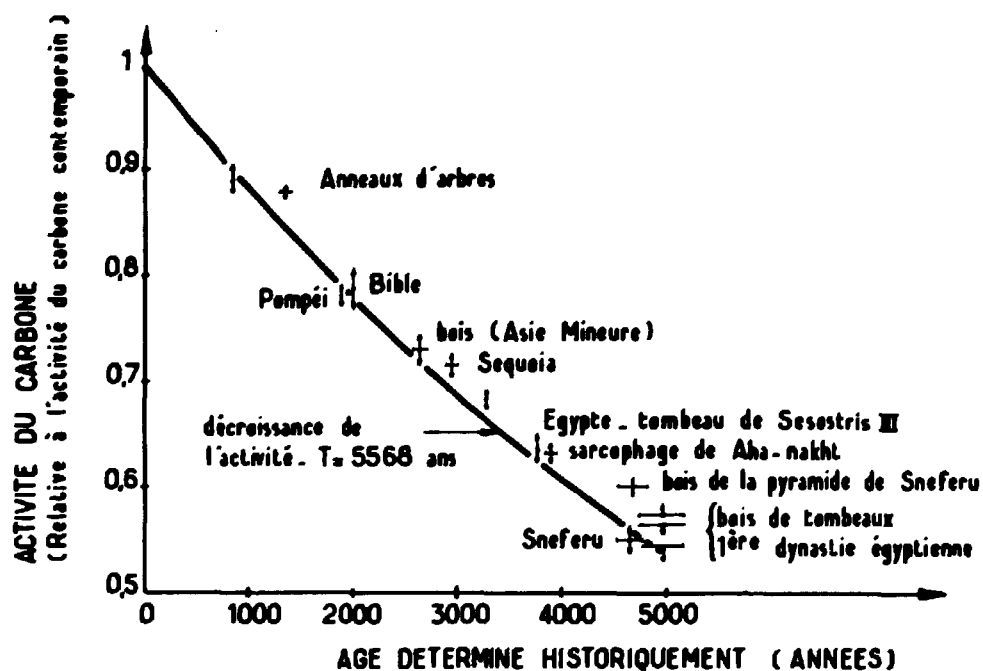


fig. 2 - Datation d'échantillons d'âge historiquement connu  
(d'après W.F. Libby - Science - 133 - 621 - 1961)

Les déterminations d'âge à l'aide de cette méthode ont en premier lieu intéressé les archéologues, ensuite les mesures plus générales de l'activité du radiocarbonate naturel se sont appliquées à diverses disciplines, telles que la géologie, l'océanographie, ou la météorologie.

Malgré les progrès réalisés depuis une dizaine d'années dans le domaine de la détection, ces mesures restent encore très délicates étant donné la faible énergie du rayonnement émis, et les faibles activités spécifiques du carbone.

Nous allons examiner brièvement les différentes méthodes qui sont actuellement utilisées puis nous traiterons plus spécialement de la mise au point d'une méthode utilisant un scintillateur liquide ainsi que des résultats obtenus.



## II - DÉVELOPPEMENT D'UNE MÉTHODE UTILISANT UN SCINTILLATEUR LIQUIDE POUR LA MESURE DE TRÈS FAIBLES CONCENTRATIONS DE CARBONE-14

Cette méthode est destinée à mesurer, en vue de "datages", les concentrations de carbone-14 comprises entre celles du carbone "contemporain" (15 désintégrations/min/g) et celles du carbone "vieux" de plusieurs dizaines de milliers d'années (aux alentours de 40 000 ans, ce qui correspond à une activité de 0,1 dés./min/g environ).

### 2. 1 - Principales méthodes utilisées

La méthode de détection la plus ancienne et aujourd'hui encore la plus employée met en oeuvre des compteurs de grand volume fonctionnant en régime proportionnel<sup>(1)</sup>.

La détection des faibles activités de  $C^{14}$  à l'aide d'un scintillateur liquide, d'une utilisation plus récente est devenue possible à la suite des progrès réalisés dans le domaine des scintillateurs et des tubes photomultiplicateurs.

#### 2. 1. 1 - Méthodes utilisant le carbone sous forme de composé gazeux dans un compteur proportionnel

Un composé gazeux contenant le carbone dont on veut mesurer l'activité est utilisé en tant que gaz de remplissage d'un compteur de volume variant de un à plusieurs litres. La pression du gaz suivant la nature chimique de ce dernier, peut varier de 1 à 10 atmosphères. Les composés utilisés généralement sont en premier lieu le gaz carbonique, puis l'acétylène et le méthane.

Les avantages présentés par cette méthode sont les suivants :

a) La synthèse chimique du composé carboné est simple, particulièrement en ce qui concerne le gaz carbonique.

b) Le rendement de détection est excellent, de l'ordre de 80 %.

c) Ce dernier avantage entraîne la possibilité d'effectuer les mesures à l'aide de faibles quantités de carbone, de l'ordre du gramme, ce qui est important en archéologie.

Par contre, un compteur de grand volume présente un mouvement propre élevé et il est indispensable de le protéger à la fois du rayonnement  $\gamma$  ambiant, à l'aide d'un important blindage de plomb, et du rayonnement cosmique par une couronne d'anti-coïncidence, ordinairement composée de compteurs G. M. de dimensions appropriées.

Deux facteurs essentiels limitent les performances de cette méthode :

- d'une part, on ne peut augmenter outre mesure le volume du compteur, ni la pression du gaz de remplissage, donc la quantité de carbone sur laquelle porte les mesures reste faible (quelques grammes au plus).

- d'autre part, la synthèse des composés gazeux où le nombre d'atomes de carbone contenus dans la molécule est supérieur à 2 est très difficile.

Le tableau II donne les caractéristiques des installations en fonctionnement dans les principaux laboratoires (Diethorn 1956).

#### 2. 1. 2 - Méthodes utilisant le carbone incorporé dans un scintillateur liquide

Développées ultérieurement elles sont presque toutes basées sur le principe suivant : le carbone échantillon est introduit sous forme de composé liquide dans un scintillateur de composition classique<sup>(2)</sup>.

(1) Les premières études de LIBBY étaient faites à l'aide d'un compteur Geiger-Muller dont la cathode était recouverte d'une couche épaisse de carbone. Ce procédé n'est guère employé à l'heure actuelle.

(2) Notons toutefois que deux auteurs ont signalé la possibilité d'utiliser un composé gazeux dissous dans le scintillateur liquide, soit le gaz carbonique, soit l'acétylène (AUDRIC 1954 - BARENDSEN 1957).

**Tableau II**  
**Caractéristiques de quelques installations utilisant le carbone**  
**sous forme de composé gazeux**

|           | Gaz                           | Volume du<br>compteur<br>(litre) | Pression<br>(atm. ) | Quantité<br>de<br>carbone<br>(g. ) | N<br>"Contemporain"<br>(impul-<br>sions/min) | B<br>Bruit de<br>fond<br>(impul-<br>sions/min) | Age<br>"limite"<br>(années) |
|-----------|-------------------------------|----------------------------------|---------------------|------------------------------------|----------------------------------------------|------------------------------------------------|-----------------------------|
| FERGUSSON | CO <sub>2</sub>               | 7,7                              | 3                   | 11,2                               | 103                                          | 14                                             | 48 700                      |
| BRANNON   | CO <sub>2</sub>               | 0,7                              | 10                  | 3,4                                | 45,2                                         | 13,5                                           | 42 500                      |
| DE VRIES  | CO <sub>2</sub>               | 0,42                             | 3                   | 0,61                               | 5,6                                          | 3,04                                           | 31 500                      |
| MOSCICKI  | CO <sub>2</sub>               | 0,4                              | 0,5                 | 0,097                              | 1,7                                          | 10,5                                           | 17 000                      |
| CRANE     | CO <sub>2</sub>               |                                  |                     |                                    | 8,5                                          | 7                                              | 31 500                      |
| SUESS     | C <sub>2</sub> H <sub>2</sub> |                                  |                     |                                    | 15,76                                        | 2,27                                           | 41 200                      |
| PRESTON   | C <sub>2</sub> H <sub>2</sub> | 2,5                              | 0,9                 | 2,2                                | 28,3                                         | 8,2                                            | 40 700                      |
| CRATHORN  | C <sub>2</sub> H <sub>2</sub> | 1,7                              | 1,66                | 2,8                                | 39                                           | 16                                             | 40 500                      |
| BURKE     | CH <sub>4</sub>               | 0,87                             | 2                   | 0,85                               | 10                                           | 4,6                                            | 34 500                      |
| FALTINGS  | C <sub>2</sub> H <sub>6</sub> |                                  | 2,7                 |                                    | 20                                           | 98                                             | 28 000                      |

Durée des mesures : 24 heures

Limite de détection :  $2\sigma$

Un photomultiplicateur permet de détecter les impulsions lumineuses produites par le rayonnement  $\beta$  de C<sup>14</sup> à l'intérieur même du scintillateur.

Ces méthodes présentent les avantages suivants :

a) On peut introduire dans un faible volume de détection une quantité importante de carbone : jusqu'à 800 g/litre de scintillateur ce qui représente environ 200 fois plus par unité de volume que dans le cas du compteur le plus favorable.

b) L'utilisation d'un faible volume de détection permet de réduire considérablement la protection contre le rayonnement extérieur et comme nous le verrons par la suite de supprimer pratiquement la protection contre le rayonnement cosmique.

c) On peut ainsi obtenir des ensembles de mesures moins complexes du point de vue électronique.

On doit cependant noter certains inconvénients :

- La principale difficulté réside dans la complexité des synthèses des composés carbonés liquides.

- A moins de précautions spéciales que nous envisagerons par la suite, le rendement de détection est de 50 % environ.

- Etant donné la grande quantité de carbone que l'on introduit dans le scintillateur, il faudra disposer d'échantillons de dimensions appréciables

Nous voyons ainsi que ces deux types de méthodes ne devraient pas être concurrents mais plutôt complémentaires, chacun s'appliquant plus spécialement à des domaines différents.

Une installation du premier type fonctionnant au Service d'Electronique Physique à Saclay depuis 1956 (Perquis - Delibrias - David) nous avons étudié un nouvel ensemble basé sur le principe de la scintillation.

## 2. 2 - Etude d'une méthode de mesure par scintillation

### 2.2.1 - Description de l'ensemble

Le but recherché est d'obtenir un ensemble aussi simple que possible, mais qui conserve cependant les avantages relatifs aux dispositifs à scintillation, énumérés ci-dessus.

Cette recherche de la simplicité a conduit à rejeter d'emblée deux procédés qui permettent de réduire le bruit de fond dû à l'émission thermique de la photocathode à la température ambiante : le refroidissement des tubes jusqu'à des températures de  $-10$  à  $-20^{\circ}\text{C}$ , et l'observation des scintillations produites dans le volume de détection à l'aide de deux photomultiplicateurs en éliminant par une méthode de coïncidence les impulsions erratiques délivrées spontanément par chacun d'entre eux.

Les diminutions du bruit de fond et par conséquent l'augmentation de sensibilité sont importantes (Bibron 1959) mais elles sont obtenues au prix d'une plus grande complexité. Elles sont nécessaires pour la réalisation d'ensembles destinés à la mesure de faibles activités de tritium, à cause de la très faible énergie (15 keV maximum) du rayonnement  $\beta$  qu'il émet. Elles ne sont pas indispensables pour le but que nous cherchons à atteindre.

L'ensemble que nous avons étudié comporte donc un seul photomultiplicateur fonctionnant à la température ambiante. Le dispositif de mesure est indiqué figure 3.

Il comprend :

- le scintillateur liquide d'un volume de  $20\text{ cm}^3$
- le photomultiplicateur type EMI 6097 B
- un préamplificateur de gain 0,5, type PA/I 1518 (standard C. E. A.)
- un amplificateur 2 MHz du standard C. E. A. (APT 21)
- un ensemble sélecteur à une bande et échelle de comptage, type SA 1 C du standard C. E. A.
- un enregistreur

La sensibilité d'un tel dispositif étant directement liée au bruit de fond de l'ensemble et à l'amplitude du signal utile, nous nous sommes attachés plus spécialement à l'étude de ces deux facteurs.

### 2.2.2 - Bruit de fond de l'ensemble

Il résulte essentiellement de trois composantes d'origines différentes :

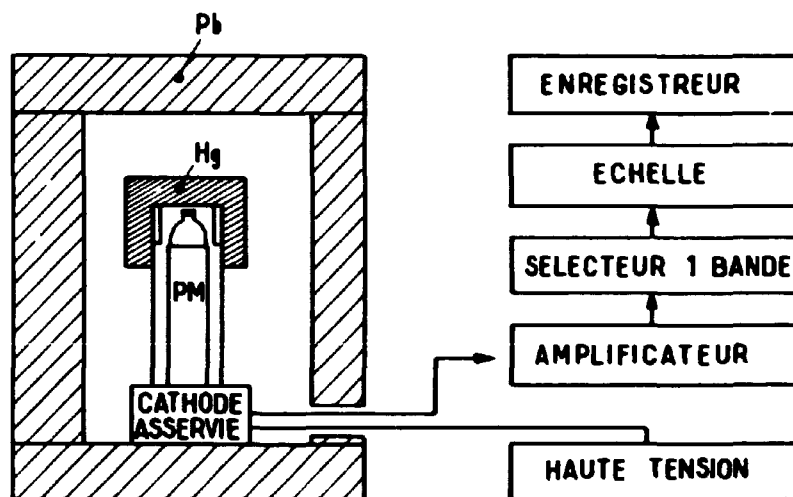


fig. 3 - Schéma de l'appareil de mesure

- bruit de fond propre au photomultiplicateur
- influence du rayonnement extérieur
- radioactivité naturelle des matériaux utilisés dans le système de détection lui-même.

## 1) Photomultiplicateur

Le bruit du dispositif de mesure (photomultiplicateur et circuits d'amplification et de comptage) a son origine dans l'émission spontanée d'électrons ou autres porteurs de charge. Des électrons sont en particulier émis par la photocathode du photomultiplicateur, et, à cause du gain de celui-ci, qui est de l'ordre de grandeur de 1 million (exprimé en charges électriques), le potentiel de l'anode du photomultiplicateur est affecté de fluctuations aléatoires. L'amplitude de ces fluctuations est de l'ordre de grandeur du million de charges élémentaires divisé par une capacité de l'ordre de grandeur de 10 pF (qui est la capacité de l'anode du photomultiplicateur et du circuit d'entrée de l'amplificateur), soit une dizaine de millivolts.

Le bruit, constitué d'impulsions ayant cette amplitude, est à un niveau d'amplitude très supérieur à celui qui est engendré par les circuits d'entrée de l'amplificateur utilisé ; nous ne parlerons donc pas davantage de ce dernier et nous étudierons en détail le bruit de fond du photomultiplicateur.

Ces impulsions ont à la sortie du préamplificateur un temps de montée (imposé par ce dernier) de l'ordre de grandeur de  $5 \cdot 10^{-9}$  s et une largeur à mi-hauteur de  $5 \cdot 10^{-7}$  s.

Elles sont observées et comptées à l'aide du dispositif de mesure cité ci-dessus.

La bande passante de l'amplificateur est de 145 kHz, entre 15 kHz et 160 kHz.

Le gain de l'amplificateur est 350 en tension ; les impulsions à l'entrée du sélecteur doivent avoir au minimum une amplitude de 5 volts, ce qui implique que les impulsions à la sortie du préamplificateur aient au minimum 15 millivolts ; par ailleurs, l'amplificateur ne supportant pas d'impulsions supérieures à 100 volts, on voit que si nous limitons le gain du P.M. de façon que les impulsions correspondant à des rayons  $\beta$  de 155 keV soient juste inférieures à cette limite supérieure, nous pourrions compter toutes les impulsions correspondant à une énergie supérieure à 20 keV.

On a ainsi, en se référant au spectre d'énergie du carbone-14 (Bibron), figure 4, la possibilité de compter environ 80 % du total des impulsions données par cet isotope dans le scintillateur.

Toute impulsion parasite comprise entre ces limites d'énergie constituera le bruit de fond. En fait, comme nous le verrons par la suite, le nombre d'impulsions parasites d'amplitude supérieure à 5 volts est tel que l'on devra diminuer notablement la largeur de la bande d'énergie.

Etant donné la grande dispersion des caractéristiques que l'on rencontre parmi les P.M. commerciaux, l'utilisation d'un seul P.M. non refroidi impose en premier lieu la sélection du tube : la figure 5 représente la distribution en amplitude des impulsions de bruit de fond à 20° C de deux P.M. EMI 6097 et montre l'importance de cette sélection. Les énergies portées en abscisse ont été déterminées à l'aide d'un scintillateur liquide particulier, dans les conditions mêmes où s'effectueraient les mesures d'activité de  $C^{14}$ . Pour tenir compte de la réponse non linéaire des scintillateurs organiques en fonction de l'énergie de la particule  $\beta$ , dans le domaine des énergies inférieures à 120 keV, l'étalonnage en énergie a été effectué d'après les résultats des travaux de Taylor (1951).

Toutefois, la sélection du P.M. étant ainsi opérée, il convient d'examiner ensuite l'influence de la tension de fonctionnement. Si le bruit de fond du P.M. est principalement dû à l'émission thermique de la photocathode lorsque de faibles différences de potentiel sont appliquées entre étages, d'autres facteurs interviennent lorsque ces différences de potentiel augmentent, avant même, pour certains P.M., d'atteindre les tensions normales de fonctionnement (environ 100 volts par étage) : par exemple sous l'effet de champs électriques plus intenses, le vide réalisé dans les tubes n'étant pas parfait, des phénomènes d'excitation et d'ionisation des molécules de gaz résiduel se produisent donnant lieu à des ions qui tombent sur la cathode ou les premières dynodes.

Il en résulte des impulsions de bruit de fond supplémentaires, dont le nombre augmente en général très vite avec la tension appliquée au P.M.

Les caractéristiques du tube que nous avons sélectionné sont indiquées figure 6. Nous avons adopté une tension de fonctionnement de 1 100 volts afin de conserver une amplification suffisante, compte tenu du gain disponible sur l'amplificateur.

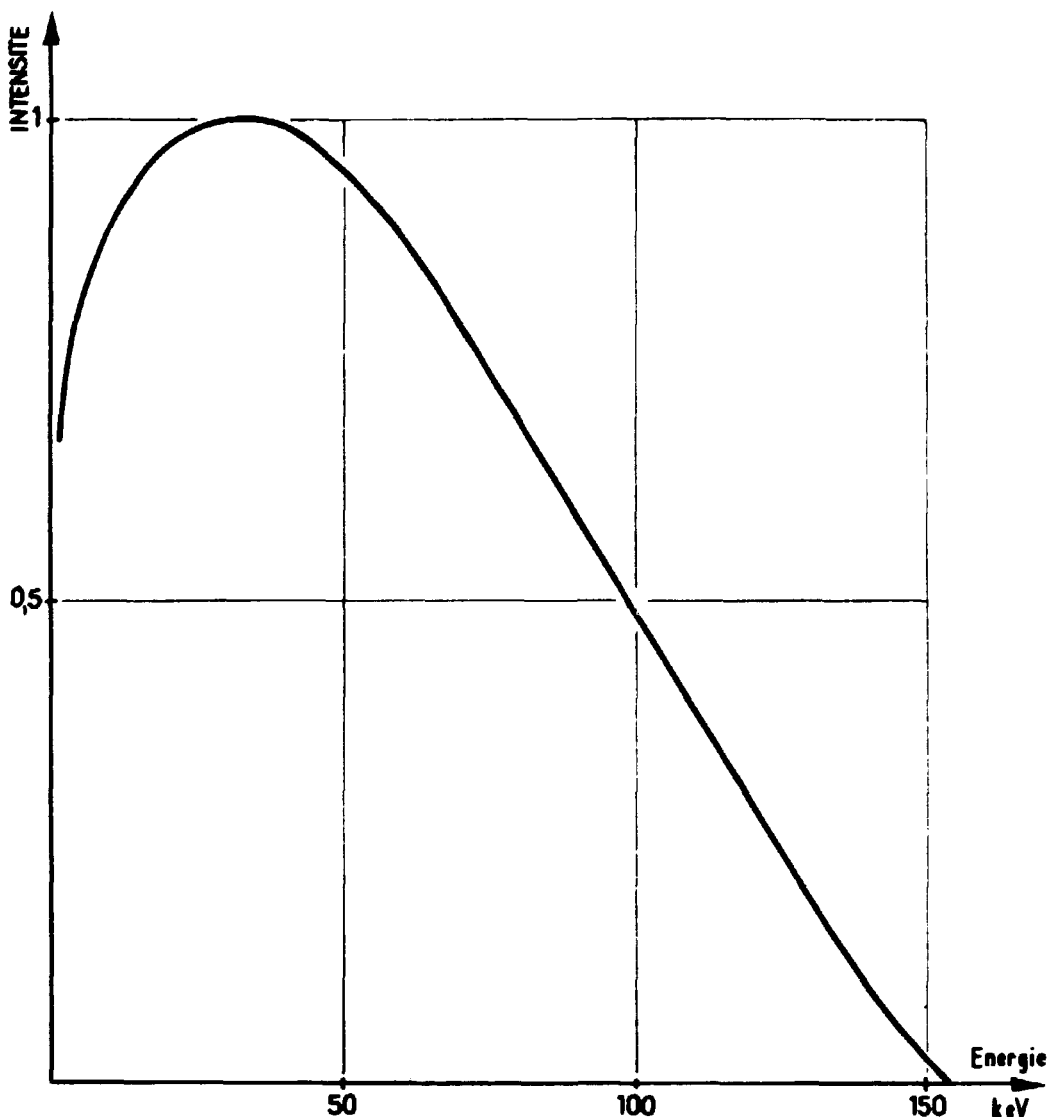


fig. 4 - Spectre d'énergie du rayonnement  $\beta$  du carbone 14  
Ce spectre a été déterminé expérimentalement à l'aide d'un scintillateur liquide marqué au  $C^{14}$ .

## 2) Influence du rayonnement extérieur

Bien que le volume de détection soit faible, de l'ordre de 20 cm<sup>3</sup>, l'influence du rayonnement extérieur sur le mouvement propre de l'ensemble est importante.

Cette activité extérieure est due à deux composantes, le rayonnement  $\gamma$  ambiant et le rayonnement cosmique.

### a) Le rayonnement $\gamma$ ambiant

Les courbes 1 et 2 de la figure 7 montrent la réduction du mouvement propre obtenue à l'aide d'une protection de plomb de 10 cm d'épaisseur. L'intérieur du château de plomb est tapissé d'une couche de 10 cm de fer destinée à atténuer le rayonnement du Ra D contenu dans le plomb.

Le mouvement propre est légèrement abaissé en entourant directement le scintillateur et la partie supérieure du tube d'une protection de mercure de 2 cm d'épaisseur - Courbe 3.

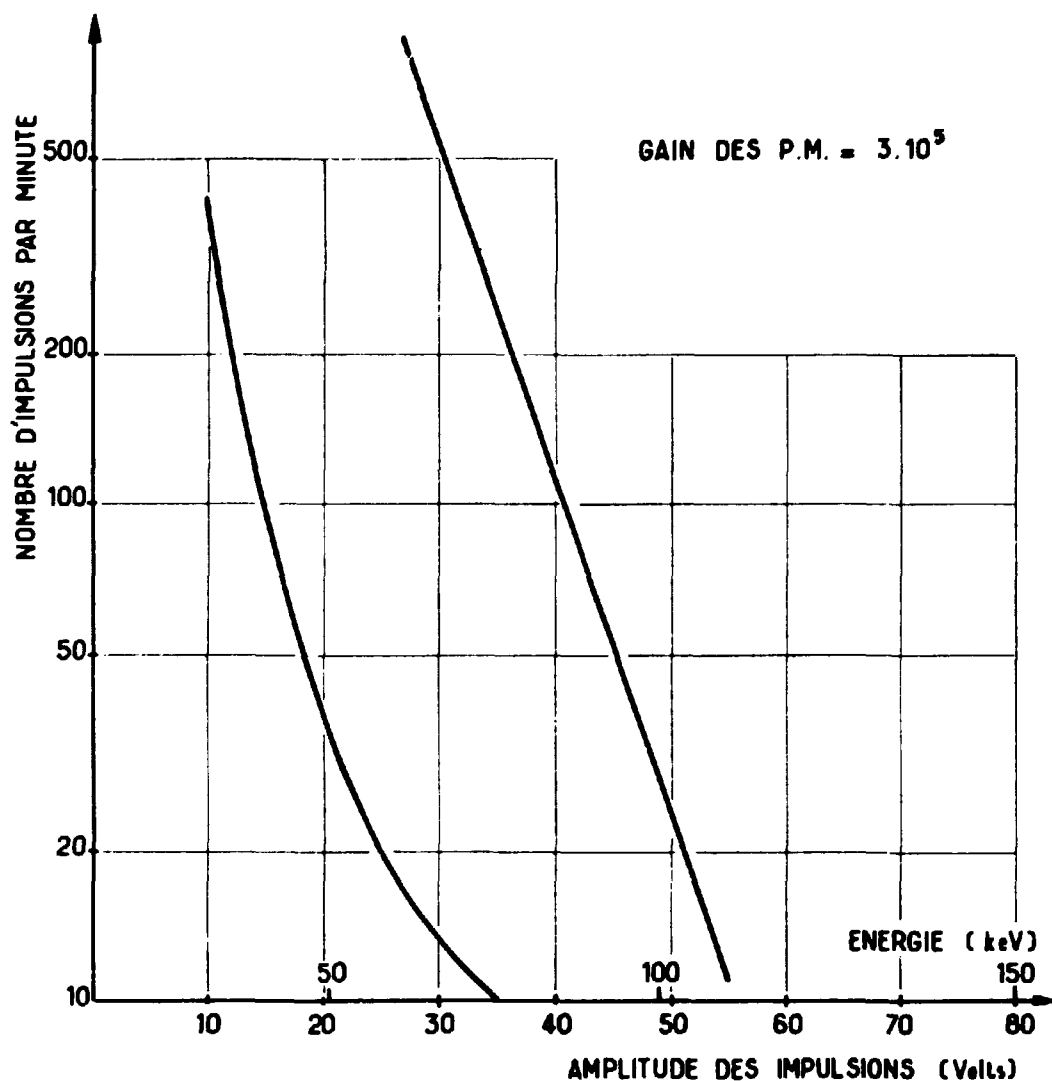


fig. 5 - Courbes de discrimination des impulsions de bruit de fond de 2 photomultiplicateurs EMI 6097.

#### b) Le rayonnement cosmique

Afin d'évaluer l'activité parasite due au rayonnement cosmique, on protège le scintillateur par un rideau horizontal de compteurs Geiger-Müller. Les impulsions délivrées simultanément par le photomultiplicateur et l'un des compteurs sont éliminées par un dispositif d'anticoïncidence. Les résultats obtenus sont indiqués sur la figure 8.

Nous n'avons pas jugé utile de conserver cette protection car elle entraîne un certain nombre d'inconvénients : groupe de compteurs Geiger-Müller, électronique supplémentaire, et d'autre part l'amélioration reste faible dans le domaine d'énergie relatif au  $C^{14}$  : on ne gagne que 2 cpm sur un bruit de fond total de 8 cpm pour un scintillateur de 20 cm<sup>3</sup>. Ces mesures ont été effectuées à l'aide d'un scintillateur liquide au paraldéhyde qui sera décrit par la suite.

#### 3) Radioactivité naturelle des matériaux à l'intérieur du système de détection

Le choix des matériaux de l'enveloppe du scintillateur est particulièrement important, comme le montre la figure 9.

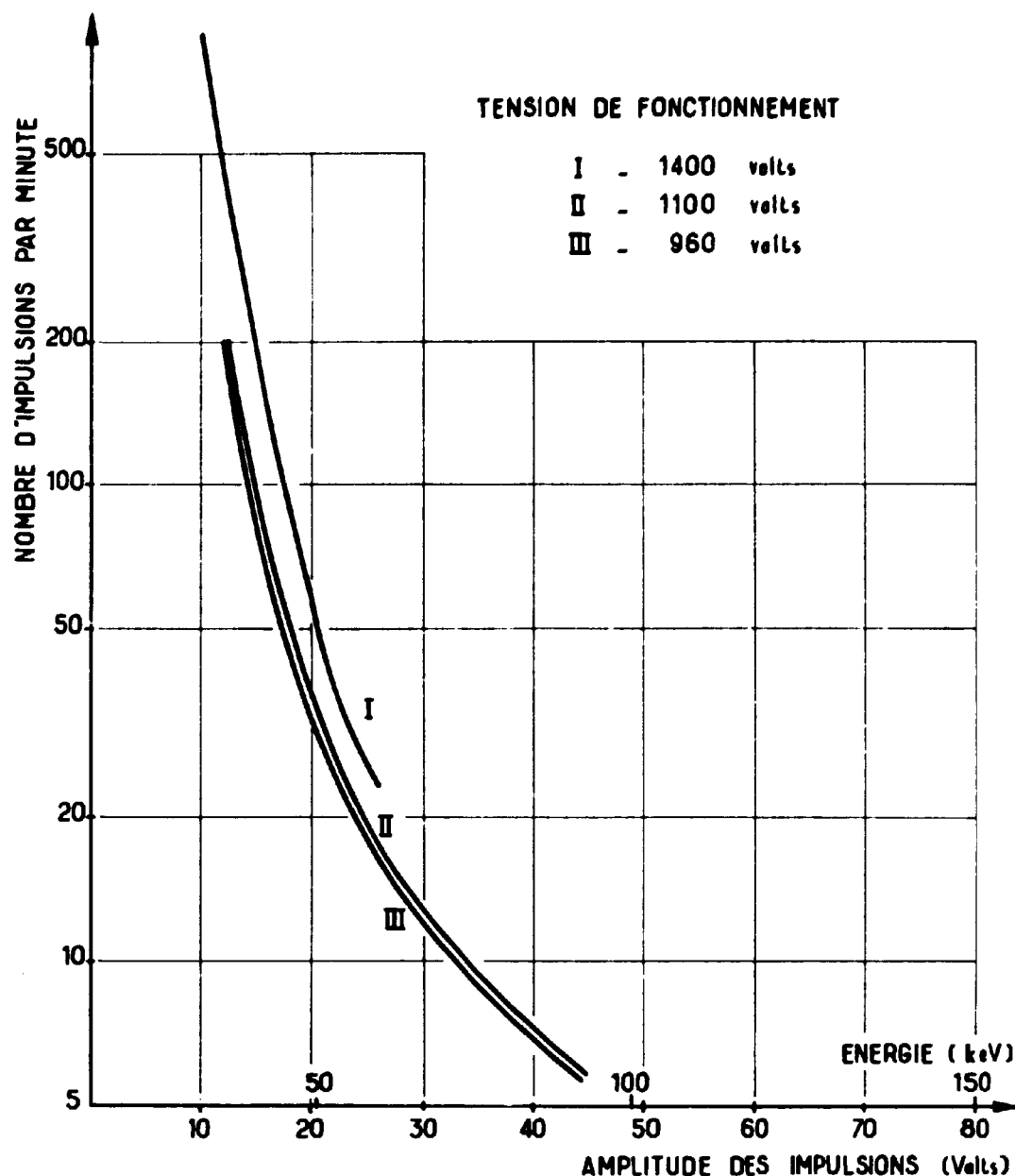


fig. 6 - Courbes de discrimination des impulsions de bruit de fond d'un P.M. sélectionné

Le verre pyrex - courbe 1 - contient une forte proportion de potassium et l'activité parasite due à l'isotope radioactif  $K^{40}$  - émetteur d'un rayonnement  $\gamma$  d'énergie 1,4 MeV - est nettement mise en évidence. Le verre "Mo" légèrement moins favorable à priori que le quartz est cependant acceptable - courbes 2 et 3 - et nous l'avons choisi en raison de son faible prix de revient.

Ainsi les courbes 2 et 3 représentent les réductions maximales d'activité que nous avons pu obtenir avec un tel dispositif.

### 2.2.3 - Etude du rendement de détection

L'ensemble scintillateur-photomultiplicateur délivre des impulsions dont l'amplitude est proportionnelle à l'énergie perdue par la particule dans le milieu scintillant ; ce milieu, si l'on veut

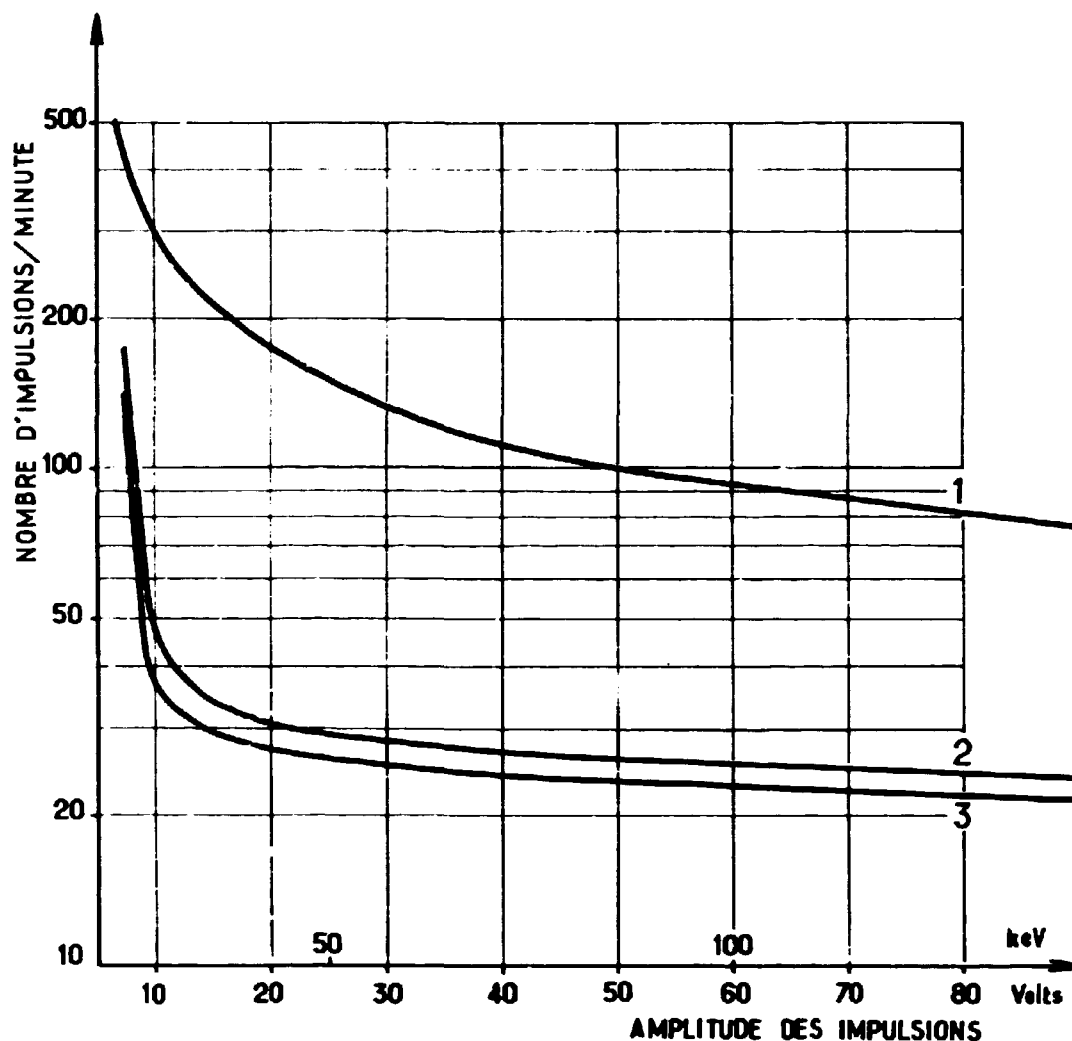


fig. 7 - Discrimination des impulsions de bruit de fond provenant d'un scintillateur liquide  
 1 - Scintillateur hors protection ; 2 - Scintillateur protégé par 10 cm Pb + 5 cm Fe ; 3 - Scintillateur protégé par 10 cm Pb + 5 cm Fe + 2 cm Hg

obtenir un rendement de détection élevé, doit présenter les caractéristiques suivantes :

- un rendement élevé de conversion de l'énergie de la particule  $\beta$  incidente en photons, ou rendement lumineux.
- un spectre d'émission correspondant à la région de sensibilité spectrale du photomultiplicateur.

La transmission de la lumière émise doit ensuite se faire dans les meilleures conditions possibles, ce qui fait intervenir la forme de la cellule, le revêtement des parois ainsi que la liaison optique entre le scintillateur et le P. M.

Nous appellerons rendement optique, le rapport entre le nombre de photons émis et le nombre de photons reçus sur la photocathode.

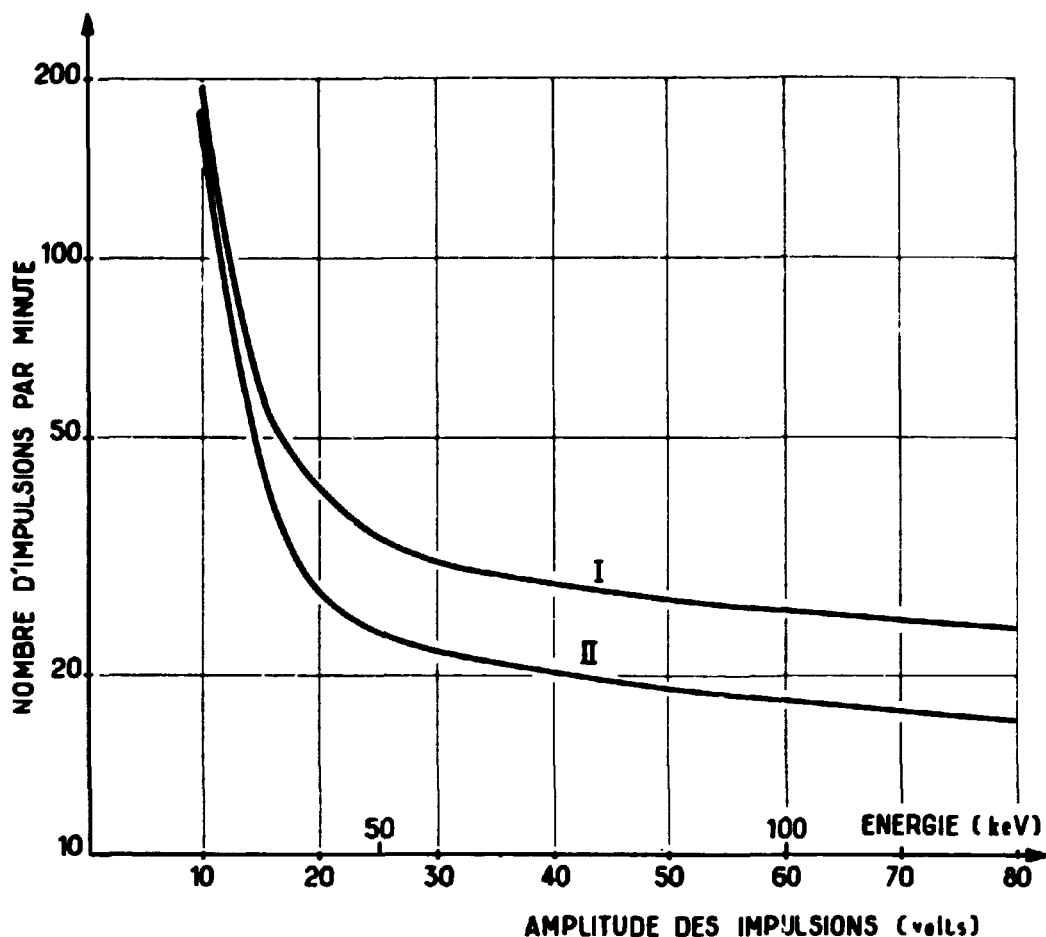


fig. 8 - Contribution du rayonnement cosmique au bruit de fond d'un scintillateur

I - Protection : Pb + Fe + Hg ; II - Protection : Pb + Fe + Hg + protection cosmique (compteurs G.M.)

Par ailleurs, le rendement quantique de la photocathode - rapport entre le nombre de photons reçus et le nombre de photoélectrons émis - a été pris en considération lors de la sélection du photomultiplicateur : la sensibilité de photocathode du tube que nous avons utilisé est de  $68 \mu A/lumen$  (pour le spectre lumineux d'une lampe à incandescence) ce qui, pour la lumière bleue émise par les scintillateurs ci-dessous, correspond à environ 10 photons pour un électron.

Les scintillateurs liquides sont depuis quelques années d'une utilisation courante et nous nous sommes inspirés des résultats obtenus par les différents auteurs (Furst-Kallmann 1955 - Hayes 1955 - Hayes 1956), en essayant de les adapter au problème particulier de la détection de  $C^{14}$ .

Un scintillateur liquide est une solution dont le solvant, qui représente la quasi totalité de la masse, transmet au soluté primaire l'énergie dissipée par la particule lors de son passage à travers le scintillateur.

Ce soluté restitue sous forme d'émission de photons visibles, l'énergie d'excitation transmise par le solvant, le spectre d'émission étant caractéristique de la nature chimique du soluté. Un soluté secondaire, bien que facultatif, est fréquemment utilisé car il permet une meilleure adaptation au domaine de sensibilité spectrale de la photocathode.

A ce scintillateur classique doit être incorporé, dans le cas qui nous intéresse,  $C^{14}$  dont on veut mesurer l'activité. On peut envisager deux façons d'incorporer le carbone :

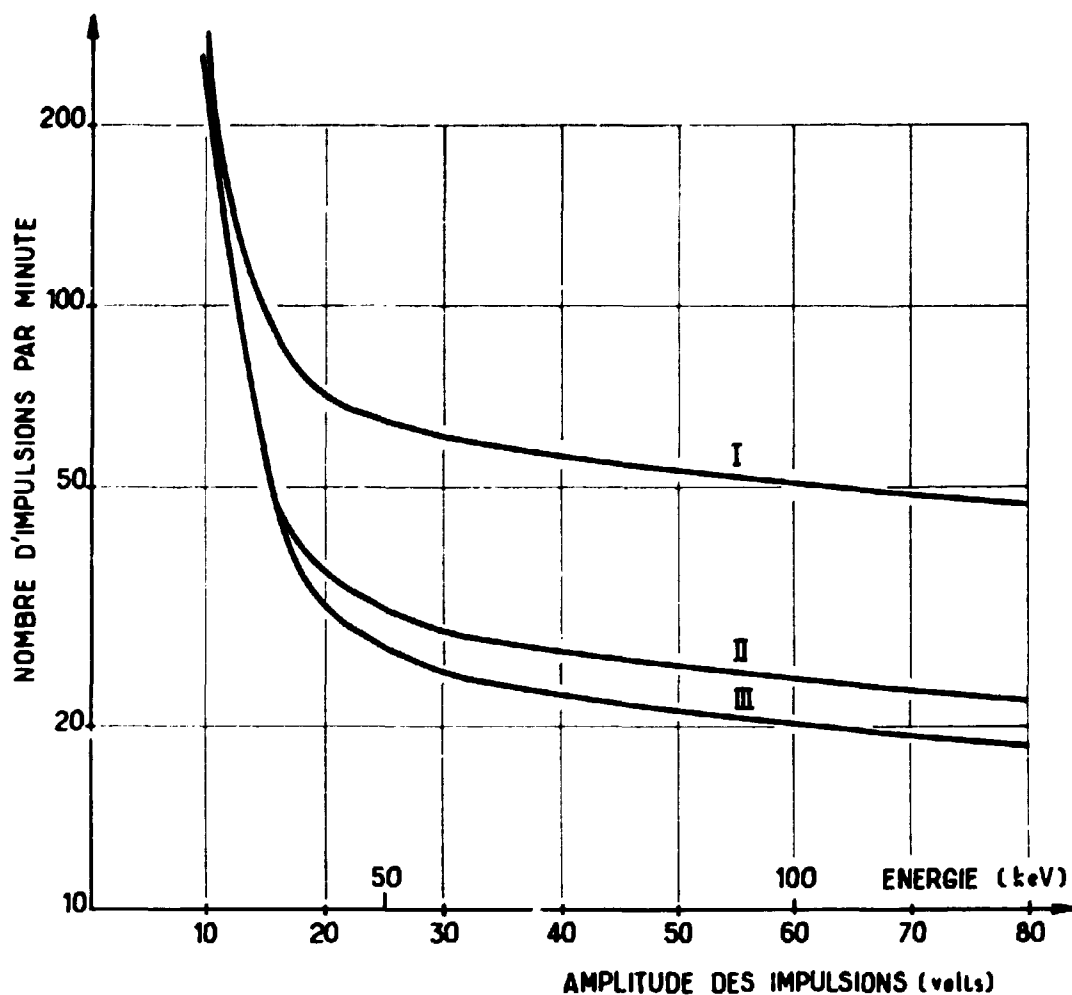


fig. 9 - Courbes de discrimination des impulsions de bruit de fond  
I - Cellule de pyrex ; II - Cellule de verre Mo ; III - Cellule de quartz

- soit utiliser le solvant lui-même en tant que composé carboné,

- soit introduire un composé étranger au liquide scintillant. Ce composé doit être miscible au solvant, contenir la plus grande quantité de carbone possible et il ne doit pas annihiler la fluorescence de la solution.

Nous avons au début de ce travail adopté cette dernière solution car les synthèses des produits utilisés en tant que solvants étaient extrêmement longues et laborieuses : notre choix, sur les conseils de L. Pichat,<sup>(1)</sup> s'est alors porté sur le paralaldéhyde.

Plus récemment, la mise au point d'une synthèse relativement simple du benzène pur, effectuée dans notre laboratoire par M. Tamers nous a permis d'envisager également la première solution.

Nous allons examiner plus particulièrement ici les caractéristiques du scintillateur au paralaldéhyde et ses conditions d'utilisation, la plupart des conclusions restant valables dans le cas des scintillateurs au benzène.

(1) L. Pichat - Section des Molécules Marquées - C.E.N. Saclay -

## 1) Scintillateur au paraldéhyde

### a) Caractéristiques du scintillateur

Des composés d'addition au scintillateur tels que l'alcool méthylique  $C^1H_3OH$ , l'alcool éthylique, ou le borate de méthyle  $B(OC^1H_3)_3$ , ont été utilisés par différents auteurs (Arnold 1954 - Pringle 1955). Le paraldéhyde présente l'avantage sur ces trois produits de renfermer un plus grand nombre d'atomes de carbone, sa formule chimique étant  $(C^1H_2C^1HO)_3$ .

Nous avons tout d'abord étudié, en fonction de sa concentration dans un scintillateur classique, l'effet inhibiteur du paraldéhyde sur le rendement lumineux. La courbe I de la figure 10 montre que ce composé éteint partiellement la fluorescence de la solution, à peu près proportionnellement à sa concentration.

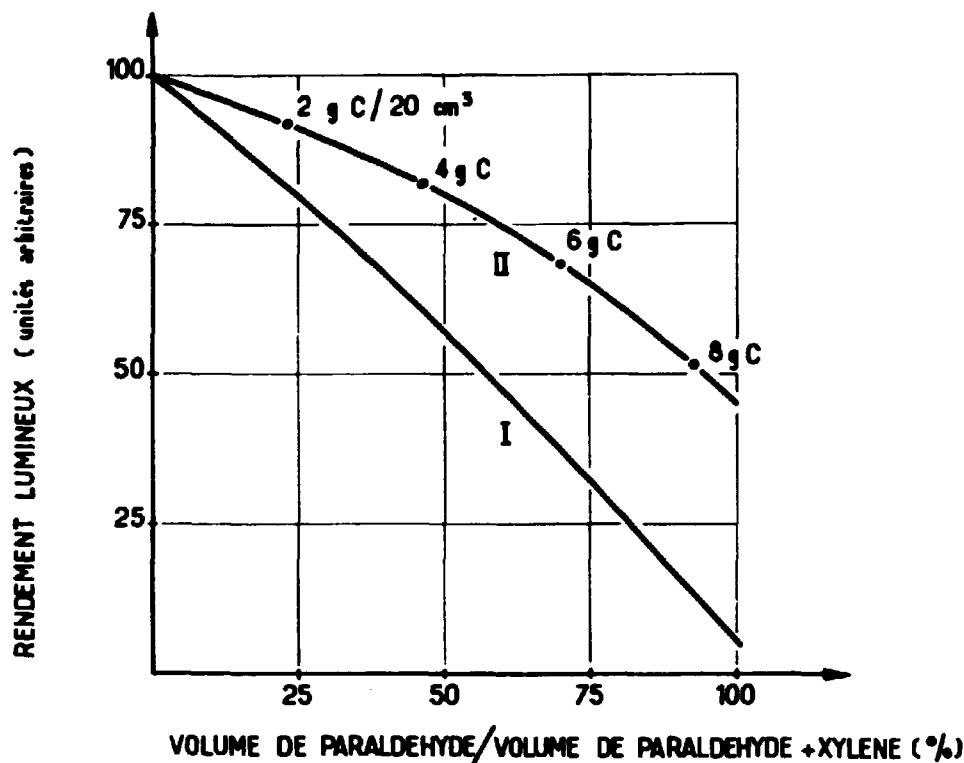


fig. 10 - Rendement lumineux d'un scintillateur au paraldéhyde  
I - Sans naphthalène ; II - Avec naphthalène (300 g/l)

Il est possible de pallier cet inconvénient par l'addition d'un solvant "intermédiaire", le naphthalène (Furst-Kallmann 1955), qui par un mécanisme encore mal connu favorise le transfert au soluté de l'énergie perdue par la particule ionisante dans le paraldéhyde. La courbe II de la figure 10 est obtenue en ajoutant aux différentes solutions une quantité de naphthalène égale à 300 g/l, quantité correspondant sensiblement à la solubilité limite à la température normale (20° C).

Le seul examen de cette courbe ne permet pas de déterminer la quantité de paraldéhyde et par suite de carbone qu'il sera judicieux d'incorporer au scintillateur. En effet le rendement de détection ne varie pas proportionnellement au rendement lumineux ; deux facteurs interviennent, la réponse non linéaire des scintillateurs organiques en fonction de l'énergie de la particule ionisante d'une part, la forme même du spectre  $\beta$  de  $C^{14}$  d'autre part : aux fortes concentrations, par exemple, on introduit davantage de carbone dans le scintillateur, mais par contre, le rendement lumineux de celui-ci ayant diminué, les rayons  $\beta$  de faible énergie qui constituent une partie importante du spectre n'émettent plus chacun assez de photons pour être comptés, et l'on perd alors plus qu'on ne gagne.

Les conditions optimales définies expérimentalement nous ont conduit à une concentration de paraldéhyde égale à 72,3 %, soit 8 g de carbone dans un volume de détection de 20 cm<sup>3</sup>, ou encore 400 g par litre de scintillateur (Leger 1957).

Ayant adopté cette solution nous avons étudié l'influence de la nature et de la concentration des autres composants du liquide scintillant en vue d'obtenir le meilleur rendement lumineux.

Nous indiquerons brièvement les résultats :

- Parmi les composés organiques courants, les solvants les plus efficaces sont le xylène et le toluène, l'utilisation du benzène étant moins favorable (la diminution du rendement est dans ce cas de 20 % environ).

- L'influence du soluté primaire est plus importante : les essais ont porté sur le terphényl, le P. P. O. (2,5 - diphenyloxazole) et le P. B. D. (2-phényl-5-(4-biphényl)-1,3,4-oxadiazole) qui émettent respectivement suivant les longueurs d'ondes moyennes de 3 600, 3 940 et 3 880 Å.

Le P. P. O. présente une valeur optimale de concentration de 4 g/l (figure 11) et bien qu'il soit moins efficace que le P. B. D. , nous l'avons cependant retenu car il est moins onéreux que ce dernier dont la concentration optimale est 10 g/l.

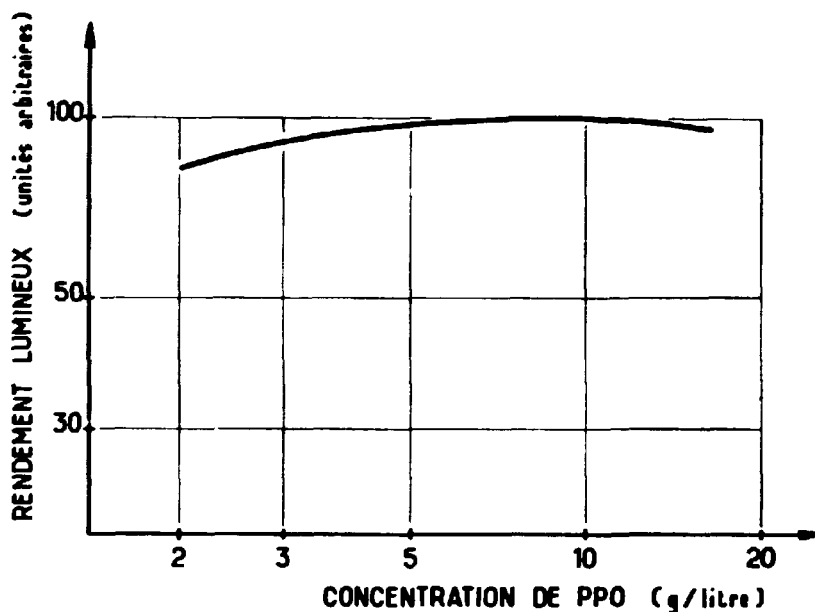


fig. 11 - Variation du rendement lumineux d'un scintillateur au paraldéhyde en fonction de la concentration du soluté primaire

Par ailleurs il est possible comme nous allons le voir d'améliorer ces caractéristiques.

- Le choix du soluté secondaire dépend en grande partie du domaine de sensibilité spectrale du photomultiplicateur utilisé. Nous avons obtenu en utilisant le P. O. P. O. P. (1,4-di-/2-(6-phényloxazolyl)/-benzène) en association avec le P. P. O. des résultats identiques à ceux donnés par le P. B. D.

Le spectre d'émission du P. O. P. O. P. présente un maximum aux environs de 4 200 Å : on voit sur la figure 12 que ce soluté est particulièrement bien adapté à la photocathode de type Cs. Sb. O. qui équipait nos photomultiplicateurs. Une valeur optimale de la concentration du P. O. P. O. P. n'a pu être mise en évidence, mais au-delà de la valeur de 0,1 g/l, l'amplitude des impulsions de sortie croît très lentement.

- Il faut enfin signaler le rôle extingueur de l'oxygène de l'air dissous dans la solution (Bowen 1953). La figure 13 montre que le rendement lumineux s'accroît de 15 % environ lorsque l'air dissous est éliminé par un barbotage d'azote à travers le scintillateur.

La possibilité de faire ainsi varier ce rendement dans une plage assez large par ajustage des concentrations, ou par barbotage plus ou moins prolongé d'azote permet d'obtenir des scintillateurs présentant exactement les mêmes caractéristiques. L'ajustage se fait en mesurant l'amplitude du pic photoélectrique du césium-137 donné par le scintillateur.

\* d'après E.M.I.

■ d'après "ORGANIC COMPOUNDS FOR LIQUID AND PLASTIC SCINTILLATION COUNTING" - Arapahoe Chemicals, Inc. Boulder, Colorado.

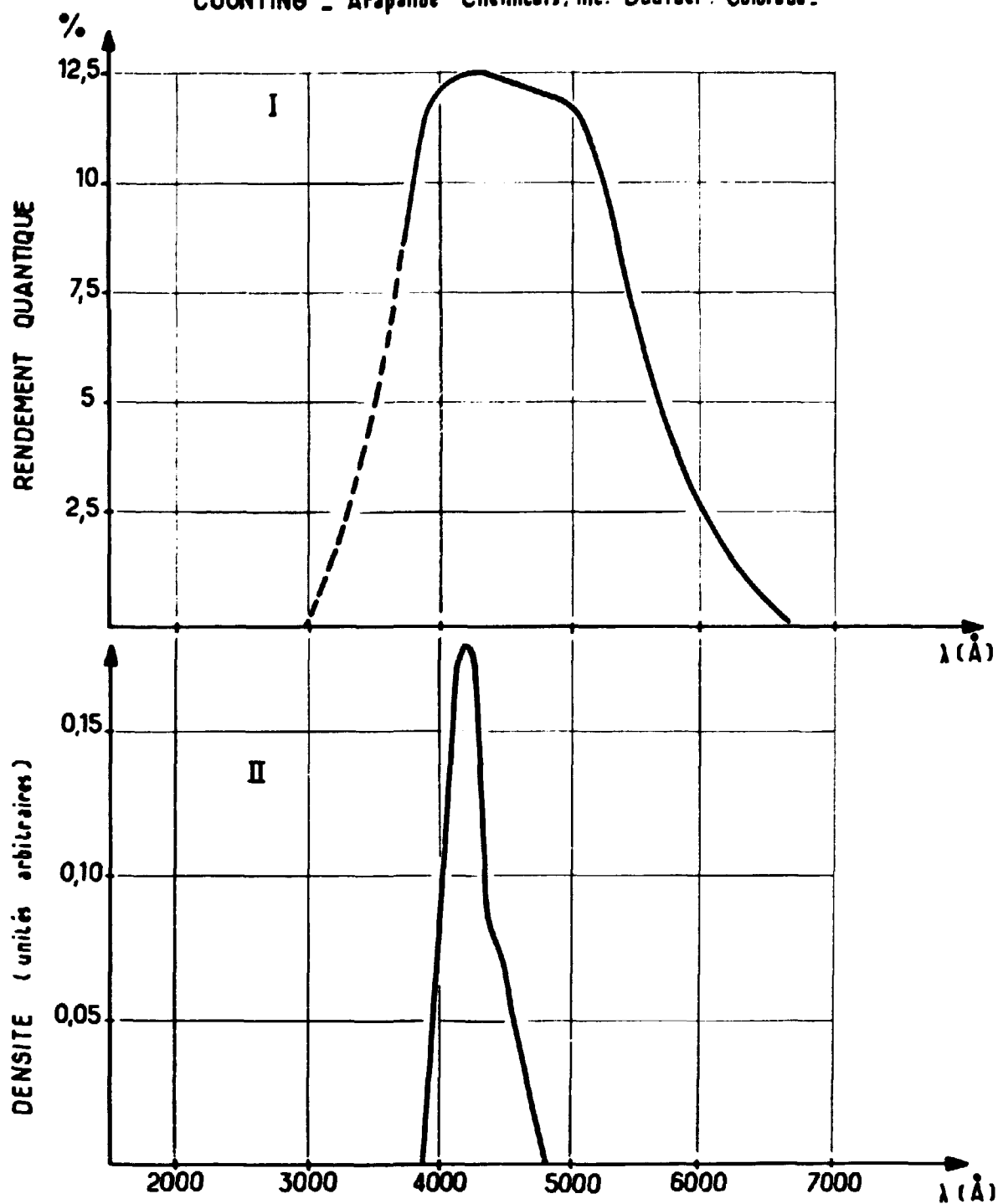


fig. 12 - I Sensibilité spectrale de photocathode - EMI 6097 -(1) ; II - Fluorescence de la solution : 0,001 M. POPOP dans le toluène(2)

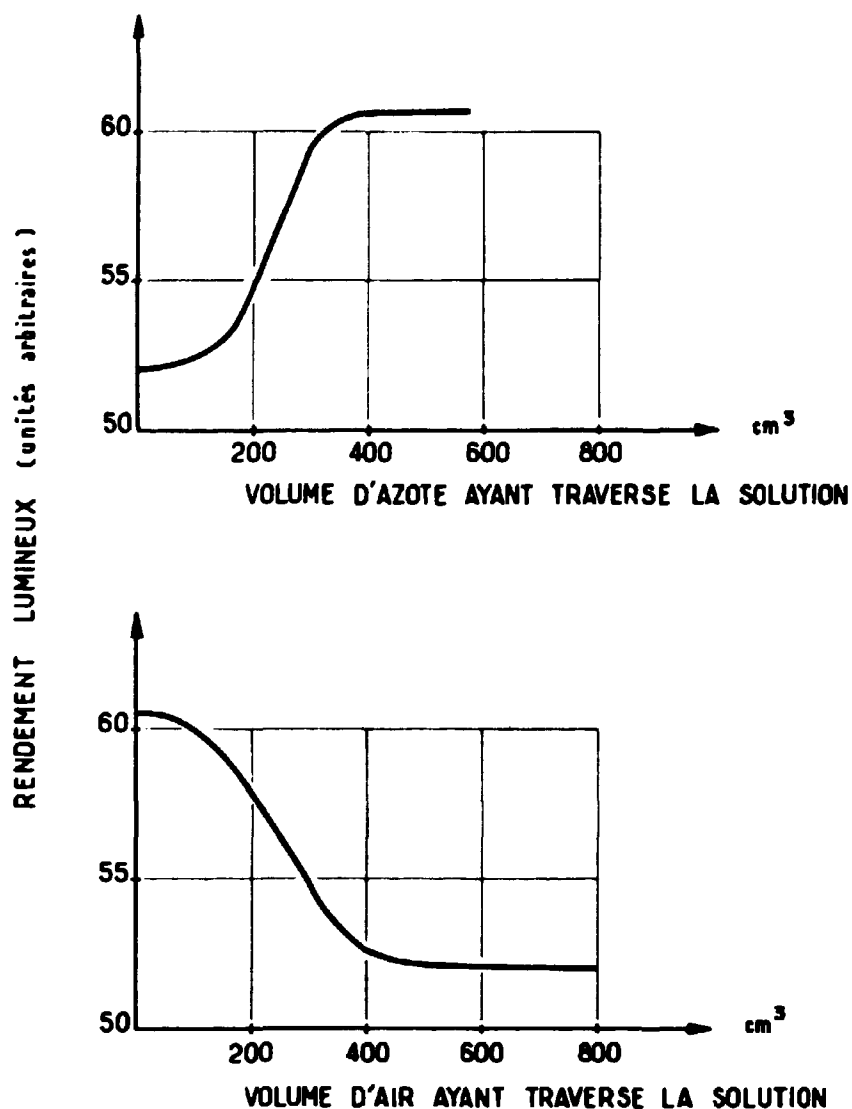


fig. 13 - Inhibition de la fluorescence par l'oxygène dissous dans un scintillateur au paraldéhyde

Tenant compte de ces différents résultats nous avons adopté un scintillateur liquide de 20 cm<sup>3</sup> dont la composition massique est la suivante :

|                |   |                         |
|----------------|---|-------------------------|
| Toluène        | : | 4,4 %                   |
| Paraldéhyde    | : | 72,3 %                  |
| Naphtalène     | : | 23,3 %                  |
| P. P. O.       | : | 4 g/litre de solution   |
| P. O. P. O. P. | : | 0,1 g/litre de solution |

#### b) Amélioration du rendement optique

Le rendement de détection dépend non seulement du rendement lumineux propre au scintillateur mais également beaucoup des conditions dans lesquelles la lumière émise est collectée sur la photocathode, c'est-à-dire de la géométrie du scintillateur, du revêtement des parois de la cellule qui le contient et du contact optique avec le P. M.

La géométrie des cellules que nous avons utilisées est proche de la demi-sphère et le diamètre de la fenêtre, 42 mm, est très voisin de celui de la photocathode.

Nous avons examiné l'influence des revêtements des parois, ceux-ci étant disposés sur la face externe de la cellule : des parois réfléchissantes réalisées soit à l'aide d'une feuille d'aluminium, soit à l'aide d'un dépôt chimique d'argent, ont donné les mêmes résultats qu'un revêtement diffusant d'oxyde de magnésium. L'amplitude de l'impulsion lumineuse arrivant sur la cathode du photomultiplicateur est ainsi accrue de 70 % par rapport à celle que donne une cellule dont on a laissé les parois transparentes.

Nous avons obtenu des résultats analogues à l'aide d'une cuve de téflon qui présentait cependant une géométrie cylindrique plus défavorable. Cette similitude s'explique par le fait que les coefficients de réflexion et de diffusion de ces différentes substances sont très voisins dans le domaine spectral d'émission du P.O.P.O.P. ; par ailleurs, l'épaisseur du scintillateur est faible et une large fraction de la lumière émise atteint directement la photocathode.

Le contact optique scintillateur-photomultiplicateur est réalisé au moyen d'huile silicone.

## 2) Scintillateur au benzène

Les résultats relatifs au scintillateur au paraldéhyde et que nous venons d'énumérer peuvent également s'appliquer dans le cas du scintillateur au benzène. Toutefois le benzène jouant simultanément le rôle de solvant et de composé carboné, l'addition de naphthalène est superflue et la composition du scintillateur devient classique :

|                |   |                         |
|----------------|---|-------------------------|
| Benzène        | : | 100 %                   |
| P. P. O.       | : | 4 g/litre de solution   |
| P. O. P. O. P. | : | 0,1 g/litre de solution |

### 2.2.4 - Synthèse des composés carbonés

Les synthèses du paraldéhyde et du benzène ayant fait l'objet de publications détaillées de la part de leurs auteurs respectifs (Pichat 1959 - Tamers 1960), nous indiquerons seulement les principales étapes qu'elles comportent.

Nous devons signaler l'importance de la purification du produit final car la présence d'impuretés, même en quantités très faibles, peut conduire selon la nature même de ces impuretés à l'inhibition de la fluorescence.

#### 1) Synthèse du paraldéhyde

Elle comporte tout d'abord la transformation du carbone de l'échantillon en carbonate de baryum, par combustion sous courant d'oxygène et précipitation du gaz carbonique produit dans une solution de baryte. Le carbonate de baryum est par action de calcium métallique en excès transformé à haute température en carbure. Cette réaction est fortement exothermique et ne peut porter que sur des quantités limitées à environ 200 grammes de carbonate. Le rendement chimique de la synthèse dépend en grande partie du rendement de cette réaction, en particulier de la pureté du calcium et de son degré de division.

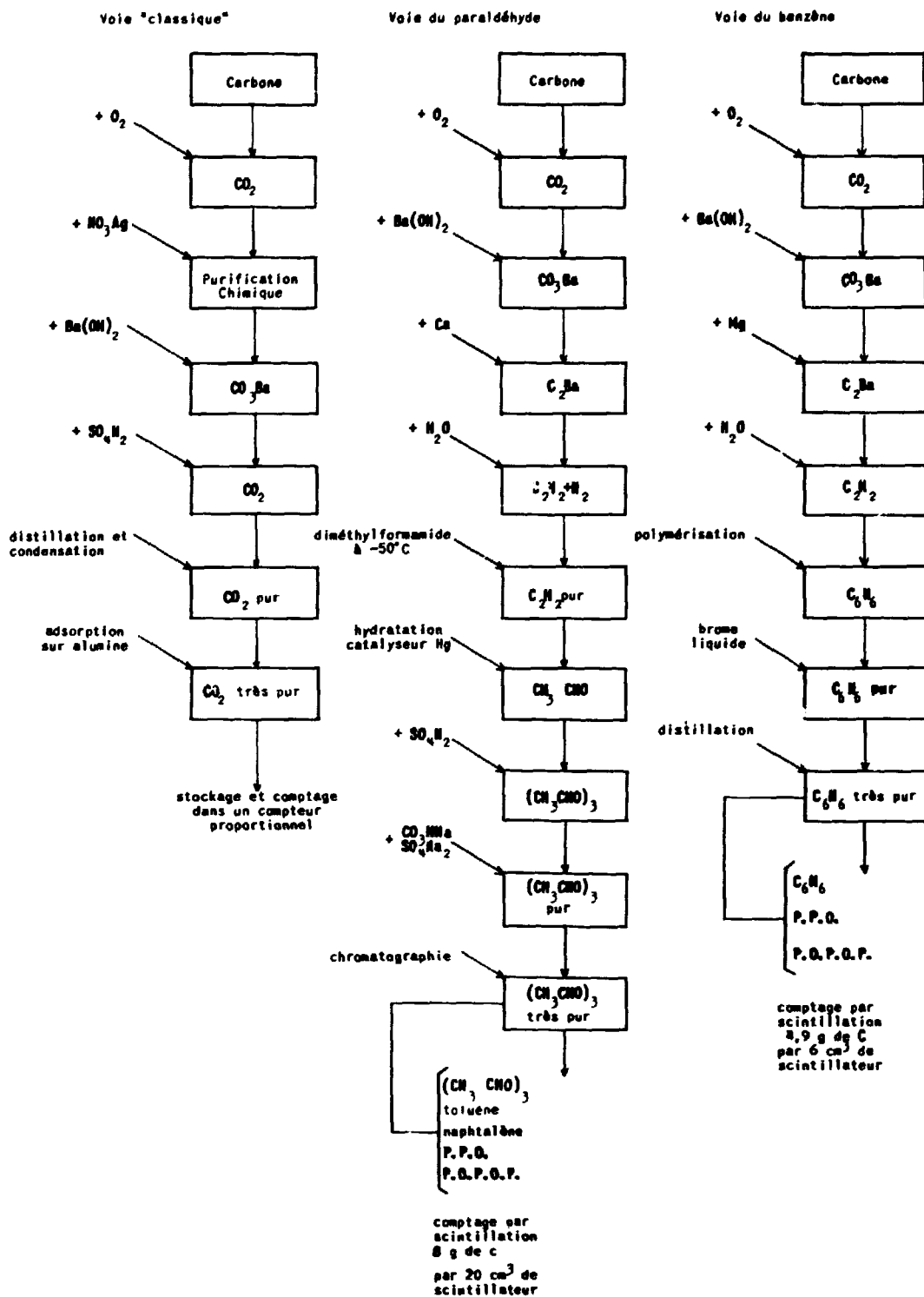
L'attaque du carbure par l'eau produit de l'acétylène et de l'hydrogène dû à la présence d'un excès de calcium ; la séparation est effectuée par dissolution de l'acétylène dans un bain de diméthylformamide refroidi à - 50° C. L'acétylène est régénéré par chauffage du bain lors de l'étape suivante, qui, par hydratation, conduit à l'acétaldéhyde.

Cette hydratation est faite à la température ambiante, en présence d'un catalyseur mercurique fixé sur résine.

L'acétaldéhyde est ensuite séparée du mélange réactionnel, et, en présence d'acide sulfurique, trimérisée en paraldéhyde : le mélange obtenu est neutralisé par addition de bicarbonate de soude, puis après décantation on effectue un lavage à l'eau jusqu'à neutralité et un séchage sur sulfate de sodium anhydre.

La purification du paraldéhyde se fait par chromatographie gazeuse : le gaz éluant est l'argon, le remplissage de la colonne est constitué de célite imprégnée d'huile silicone.

Tableau III



La figure 14 montre un exemple type des chromatogrammes ainsi obtenus.

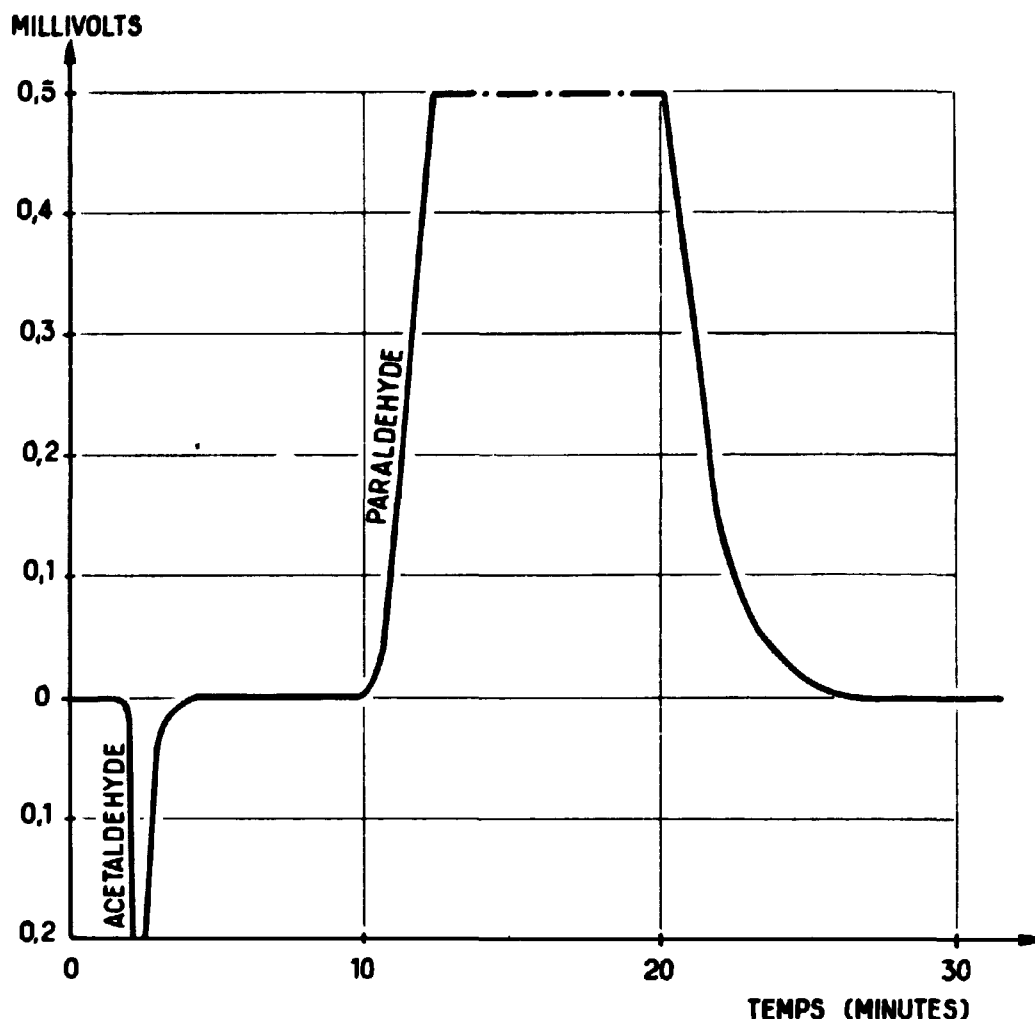


fig. 14 - Chromatogramme obtenu avec un échantillon de paralaldéhyde non purifié (gaz éluant : Argon)

Les rendements globaux des préparations que nous avons effectuées varient entre 50 et 60 %, ils dépendent surtout comme nous l'avons indiqué du rendement partiel de la transformation carbonate-carbure.

## 2) Synthèse du benzène

Les opérations préliminaires conduisant à la formation de l'acétylène sont analogues à celles que nous venons de décrire : toutefois, la transformation carbonate-carbure est réalisée à l'aide de magnésium, en proportions stoechiométriques ce qui évite la présence d'hydrogène.

La polymérisation de l'acétylène se produit à la pression atmosphérique par cyclage à travers un tube de Vycor chauffé à 600° C. Le benzène est, au fur et à mesure de sa formation, condensé dans un piège refroidi par un mélange acétone-neige carbonique.

Une première distillation grossière permet de séparer le benzène des autres hydrocarbures formés. Après une purification par addition de brome liquide, on effectue une dernière distillation.

Le rendement global de la préparation est approximativement de 30 %.

Les échantillons ainsi préparés nous ont permis d'obtenir des scintillateurs dont le rendement lumineux est comparable à celui d'un scintillateur préparé à partir de benzène commercial.

Les étapes principales de la "voie du paralaldéhyde" et de la "voie du benzène" sont résumées dans le tableau III. A titre de comparaison on a indiqué aussi les étapes de la "voie du CO<sub>2</sub>", utilisée par ailleurs dans notre laboratoire.

## 2. 3 - Résultats des mesures

### 2. 3. 1 - Conditions de fonctionnement.

Comme nous l'avons vu précédemment les appareils de l'installation de mesure se réduisent à :

- un photomultiplicateur
- un amplificateur
- un sélecteur d'amplitude d'impulsions à une bande
- une échelle de comptage

La mesure se fait à la température de 20° (±5°) C.

La figure 15 montre un exemple de la distribution (spectre intégré) des amplitudes des impulsions provenant :

- d'un scintillateur contenant du carbone très ancien sous forme de paraldéhyde - courbe I qui correspond ainsi au mouvement propre de l'installation -
- d'un scintillateur contenant du carbone contemporain (également sous forme de paraldéhyde) - Courbe II -

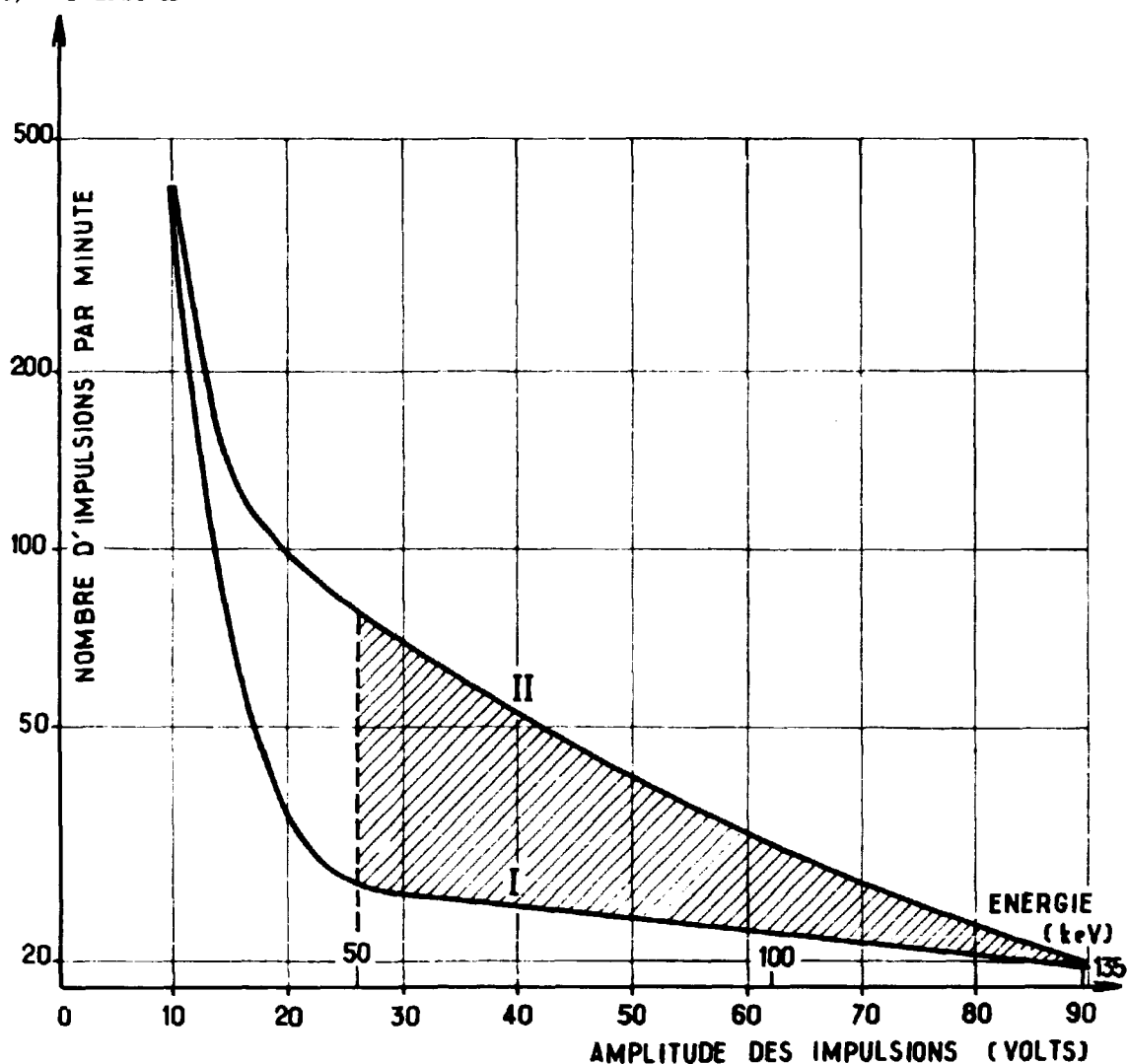


fig. 15 - Distribution en amplitude des impulsions provenant :

I - D'un scintillateur marqué au carbone ancien - II - D'un scintillateur marqué au carbone contemporain

L'examen de ces courbes fait apparaître le rôle essentiel du sélecteur à une bande. Il permet au moyen du seuil inférieur d'éliminer en majeure partie le bruit de fond thermique du P.M. et de rendre le mouvement propre de l'installation indépendant des variations de température.

Ceci entraîne évidemment une réduction importante du rendement global de détection : 55 % environ. Le seuil supérieur est déterminé en fonction de l'énergie maximale du rayonnement émis par  $C^{14}$ .

Cependant on peut remarquer qu'au-delà de 135 keV le nombre d'impulsions dû à  $C^{14}$  est extrêmement faible et ne représente plus qu'une faible fraction du bruit de fond ; comme il est préférable de conserver un mouvement propre aussi réduit que possible, nous avons adopté une bande passante d'énergie dont les limites sont : 50 keV et 135 keV.

L'étalonnage en énergie des amplitudes des impulsions est effectué par l'intermédiaire du rayonnement  $\gamma$  de  $Cs^{137}$  (362 keV).

### 2.3.2 - Précision des mesures

La précision des mesures est toujours limitée par la nature aléatoire du phénomène de désintégration, et il est nécessaire de définir la sensibilité limite d'un appareil afin d'établir des comparaisons utiles.

Soit :

B : le nombre d'impulsions/min. dû au bruit de fond

$N_0$  : le nombre d'impulsions/min. dû au carbone contemporain

N : le nombre d'impulsions/min. dû au C d'un échantillon donné

t : la durée des mesures, que nous supposerons identique dans tous les cas

T : l'âge de l'échantillon

$\lambda$  : la constante radioactive de  $C^{14}$

$\sigma$  : "l'écart statistique", tel que la probabilité de trouver le nombre exact dans l'intervalle  $(N + \sigma ; N - \sigma)$  soit de 68,2 %.

Les fluctuations statistiques relatives aux différentes mesures sont d'après la loi de Poisson :

$$\sigma_B = \frac{\sqrt{B \cdot t}}{t} = \sqrt{\frac{B}{t}}$$

$$\sigma_{N_0} = \sqrt{\sigma_{N_0+B}^2 + \sigma_B^2} = \sqrt{\frac{N_0 + 2B}{t}}$$

$$\sigma_N = \sqrt{\sigma_{N+B}^2 + \sigma_B^2} = \sqrt{\frac{N + 2B}{t}}$$

L'âge T d'un échantillon est lié à la décroissance radioactive par la formule

$$N = N_0 e^{-\lambda T}$$

ou

$$T = \frac{1}{\lambda} L \frac{N_0}{N}$$

L'âge maximal  $T_{min}$  que l'on pourra déterminer correspond au taux de comptage minimal  $N_{min}$  que l'on pourra détecter et que l'on considère généralement comme égal à  $\sigma_{N_{min}} + \sigma_B$

Ainsi

$$T_{min} = \frac{1}{\lambda} L \frac{N_0}{\sigma_{N_{min}} + \sigma_B}$$

$$T_{min} = \frac{1}{\lambda} L \frac{N_0 \sqrt{t}}{2,4 \sqrt{B}}$$

On remarque que la sensibilité d'un appareil sera d'autant plus élevée que la valeur du rapport :

$\frac{N_0}{\sqrt{B}}$  sera grande si t est fixé a priori : la valeur de t est en général fixée à 24 heures.

Sur la figure 15 indiquant les âges limites correspondant à des valeurs données de  $\frac{N_0}{\sqrt{B}}$  nous avons porté les caractéristiques relatives aux différentes installations actuelles ainsi que les caractéristiques obtenues soit par la méthode du paraldéhyde, soit par celle du benzène et que nous examinerons ci-dessous.

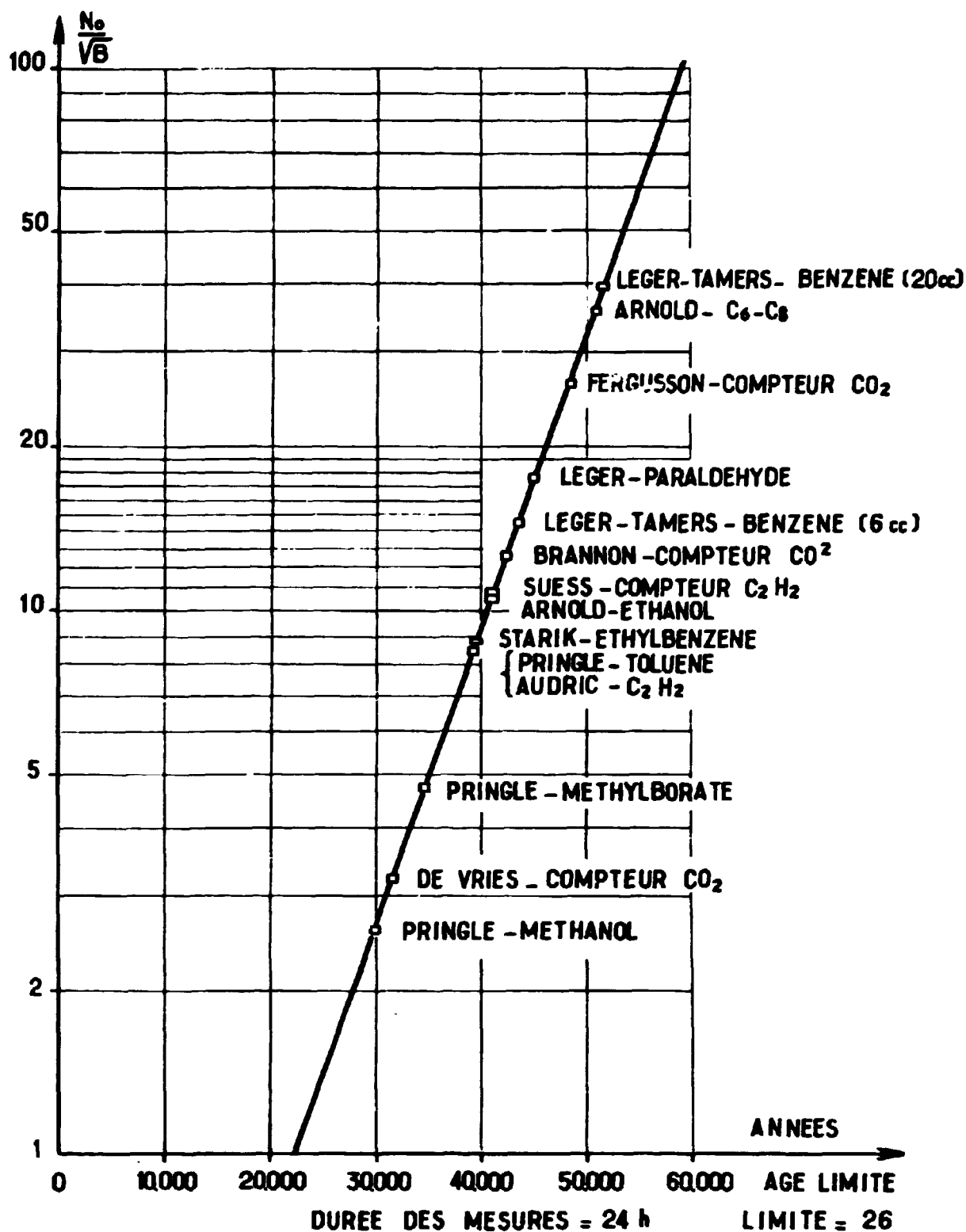


fig. 16 - Caractéristiques des différentes méthodes de détection de C<sup>14</sup>

### 2.3.3 - Résultats obtenus

#### 1) Mesures effectuées à l'aide du paraldéhyde

Le scintillateur d'un volume de 20 cm<sup>3</sup> contient une quantité de carbone égale à 8 g.

Le rayonnement de C<sup>14</sup>, détecté dans l'intervalle 50 - 135 keV, correspond à un rendement global de détection de 45 % environ.

Nous obtenons ainsi, pour 8 g de carbone incorporé à 20 cm<sup>3</sup> de scintillateur :

- partant d'un échantillon ancien : 7,5 impulsions/min.
- partant d'un échantillon contemporain<sup>(1)</sup> : 47,8 impulsions/min.

Ceci conduit à la détermination d'un "âge limite" de 45 000 ans pour un comptage de 24 heures.

#### 2) Mesures effectuées à l'aide du benzène

Les essais ont porté sur des volumes de scintillateur variables 2 - 6 - 9 - 20 - 60 et 130 cm<sup>3</sup>, afin de déterminer les conditions optimales de fonctionnement. La figure 17 représente les courbes de bruit de fond obtenues dans chacun des cas et les résultats globaux sont indiqués ci-dessous :

| Volume            | Diamètre intérieur de la cellule | Bruit de fond | Rendement de détection | "Age limite" |
|-------------------|----------------------------------|---------------|------------------------|--------------|
| 2 cm <sup>3</sup> | 15 mm                            | 7,3 cpm       | 45 % (50-135 keV)      | 32 500 ans   |
| 6 "               | 37 "                             | 4,0 "         | "                      | 43 500 "     |
| 9 "               | 37 "                             | 4,7 "         | "                      | 46 000 "     |
| 20 "              | 37 "                             | 6,2 "         | "                      | 51 500 "     |
| 60 "              | 37 "                             | 14,6 "        | "                      | 57 000 "     |
| 130 "             | 37 "                             | 21,7 "        | 25 % (63-135 keV)      | 56 500 "     |

Nous voyons d'après ces résultats que les conditions les plus favorables sont remplies dans le cas du scintillateur de 60 cm<sup>3</sup>. Toutefois, la synthèse d'une telle quantité de benzène pose un problème difficile et il est nécessaire d'adopter un compromis si l'on veut conserver une méthode utilisable : la cellule de 6 cm<sup>3</sup> présentant un bruit de fond de 4 impulsions/minute et un signal utile de 28 impulsions/minute nous a semblé la meilleure solution dans notre cas.

#### 2.4 - Détermination de la valeur absolue de l'activité spécifique du carbone contemporain

Grâce à la sensibilité de cette méthode nous avons pu déterminer la valeur absolue de l'activité spécifique du carbone contemporain correspondant à l'époque pré-atomique.

Nous avons pour ce faire, utilisé un scintillateur de 20 cm<sup>3</sup> renfermant 8 g de carbone sous forme de paraldéhyde.

Les limites inférieure et supérieure d'énergie que nous avons adoptées lors de cette mesure correspondent, compte-tenu de la réponse non-linéaire des scintillateurs organiques en fonction de l'énergie, à la fraction du spectre comprise entre 52 (±1) et 133 (±1) keV.

Dans ces conditions, le taux de comptage enregistré, déduction faite du mouvement propre, est :

$$47,86 \pm 0,24 \text{ impulsions/minute.}$$

Si l'on considère le spectre théorique d'énergie du rayonnement  $\beta$  du carbone 14 (Labeyrie, 1955) calculée d'après la méthode de J. H. Marshall, ce résultat conduit à une valeur de l'activité spécifique de :

$$13,5 \pm 0,3 \text{ désintégrations/minute/g de carbone.}$$

-----  
(1) Valeur correspondant à 1950, c'est-à-dire l'époque "pré-atomique"

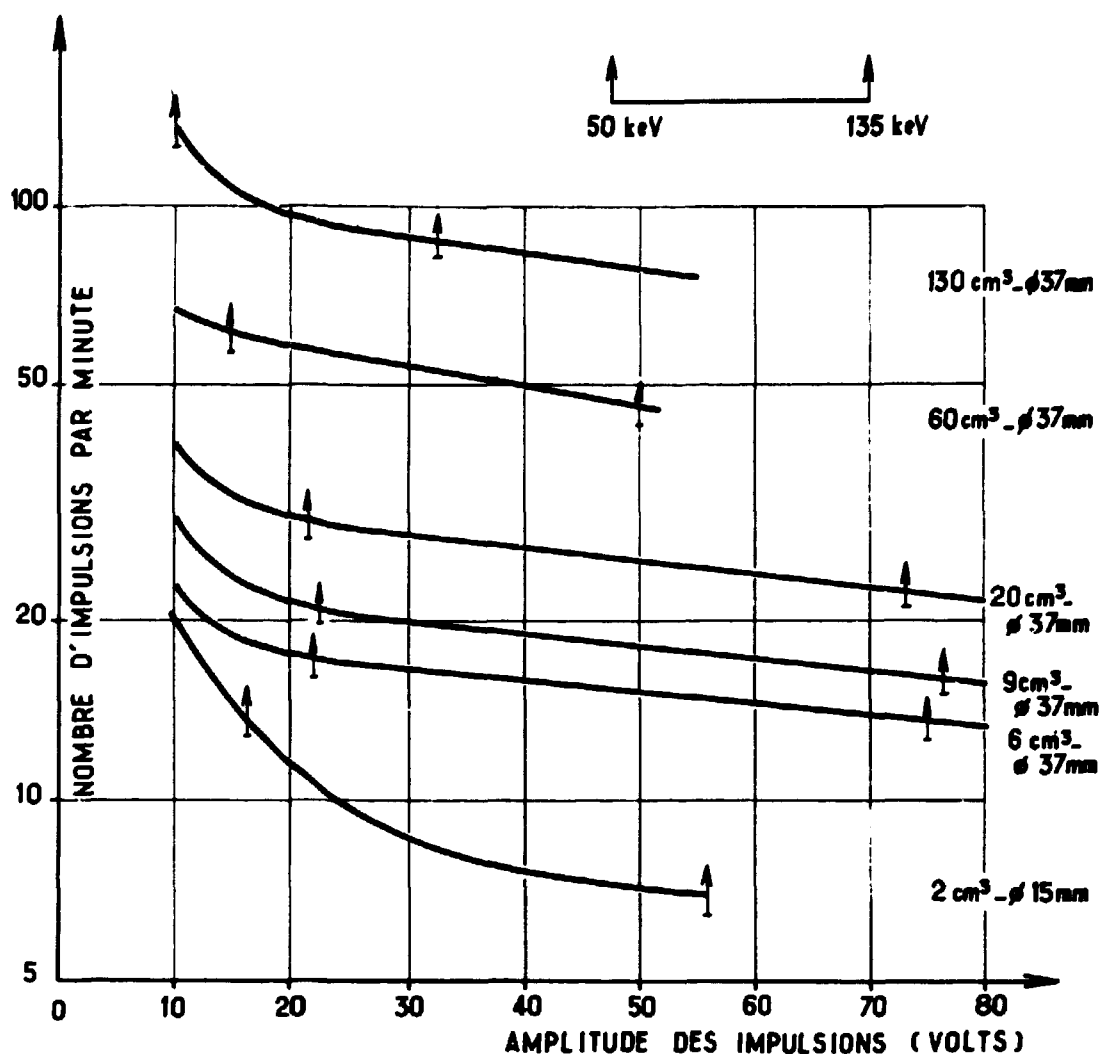


fig. 17 - Variation du bruit de fond d'un scintillateur en fonction du volume, dans le domaine d'énergie de  $C^{14}$

Si par ailleurs on considère le spectre d'énergie déterminé expérimentalement (Bibron, 1962) et indiqué sur la figure 4, nous obtenons :

$$13,0 \pm 0,3.$$

La précision de ces mesures tient compte de l'erreur statistique de comptage, de l'erreur commise sur la détermination de la fraction du spectre considérée, et de l'erreur relative à la quantité de carbone introduite dans le scintillateur.

A titre de comparaison nous rappellerons les valeurs les plus récentes qui aient été publiées à notre connaissance.

|                  |   |                |
|------------------|---|----------------|
| FERGUSSON (1955) | : | $12,5 \pm 0,2$ |
| HAYES (1955)     | : | $13,6 \pm 0,2$ |
| SUESS (1955)     | : | $14,7 \pm 0,4$ |

Les méthodes par scintillation que nous venons de décrire comptent parmi les méthodes actuelles les plus sensibles ; cependant, à cause de la complexité des synthèses chimiques, leur utilisation devrait être réservée plus spécialement à des mesures telles que la détermination d'âges très anciens par exemple ou les faibles variations de l'activité spécifique du carbone contemporain.

Ces méthodes ont été mises au point pour étudier ces variations d'activité à un moment où elles étaient très faibles. En fait, entre temps, les variations sont devenues importantes, si importantes que dans bien des cas il suffit de faire appel à la méthode "classique" du compteur proportionnel à  $\text{CO}_2$  pour les étudier : les explosions nucléaires ont pratiquement doublé, en quelques années, la quantité de carbone-14 contenue dans l'atmosphère et la biosphère.



### III - VARIATIONS RÉCENTES DE L'ACTIVITÉ SPÉCIFIQUE DU CARBONE

L'activité spécifique du carbone de la biosphère et de l'atmosphère n'est pas restée constante : ainsi que l'ont montré les mesures de plusieurs laboratoires (Willis - Tauber - Munnich - 1960) de petites fluctuations, de l'ordre de grandeur de 1 %, se sont manifestées tout au long des quatre derniers millénaires (les seuls sur lesquels ont pu porter les observations précises).

A ces fluctuations, se sont superposées les variations dues à l'influence de l'homme : "effet Suess", et explosions nucléaires.

#### 3. 1 - Diminution due au $CC_2$ rejeté par les combustions : "effet Suess"

Depuis 1890 environ, l'utilisation des pétroles et des charbons dans le monde s'est accrue de façon constante, marquant l'essor de l'ère industrielle. La combustion de ces produits libère dans l'atmosphère une quantité importante de gaz carbonique inerte. Ce phénomène tend à diminuer l'activité spécifique normale du carbone de l'air et des réservoirs du système échangeable. Cet effet reste encore faible et à l'heure actuelle, on estime que la valeur moyenne de cette diminution d'activité spécifique est de l'ordre de 2 à 3 % pour le gaz carbonique de l'air (Suess 1955 - Revelle, Suess 1957 - Brannon 1957 - Bolin 1959). On doit noter toutefois que ce phénomène peut être temporairement beaucoup plus important aux environs des gros centres industriels ou des grandes agglomérations, et les valeurs obtenues sont assez différentes suivant les lieux de prélèvement considérés.

#### 3. 2 - Augmentation due aux essais d'armes nucléaires

Cette seconde perturbation, beaucoup plus importante que la première et de sens inverse, a été provoquée par les nombreuses explosions qui se sont succédées depuis 1952.

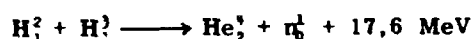
##### 3. 2. 1 - Formation de $C^{14}$ artificiel

Lors d'une explosion, les neutrons libres qui s'échappent de la boule de feu donnent lieu à des réactions nucléaires avec les constituants de l'atmosphère, et produisent en particulier des atomes de  $C^{14}$  suivant le processus déjà indiqué pour les neutrons d'origine cosmique. On admet que pour un neutron produit il y a formation d'un atome de carbone-14. On suppose que  $C^{14}$  ainsi formé passe rapidement à l'état de gaz carbonique - cependant les facteurs et la vitesse de cette oxydation sont encore mal connus - et ce gaz carbonique comme les autres gaz chauds produits monte vers la stratosphère.

La quantité de radiocarbone formée est variable suivant la puissance et la nature des engins explosifs, engins utilisant soit des réactions de fission, soit des réactions de fusion ; de plus elle varie selon que les explosions ont lieu en haute atmosphère ou à la surface de la terre : dans ce dernier cas, on considère que 50 % seulement des neutrons s'échappent vers l'atmosphère et sont susceptibles de produire  $C^{14}$ .

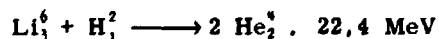
Dans le cas des réactions de fission, le nombre de neutrons libérés par l'explosion d'une bombe de puissance équivalente à une mégatonne de T.N.T. est assez bien connu. On estime que cette valeur est légèrement inférieure à  $2,2 \cdot 10^{26}$  et que  $2 \cdot 10^{26}$  atomes environ de  $C^{14}$  seront ainsi formés (O.N.U. 1960).

Pour les réactions de fusion, la valeur correspondante est plus controversée et dépend du type de réaction utilisé. Leipunsky (1957) donne une valeur probablement maximale de  $14 \cdot 10^{26}$  neutrons par mégatonne dans le cas où toute l'énergie est libérée par la réaction :

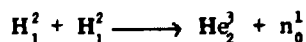


Or il semble peu probable que les engins récents de grande puissance fassent intervenir cette seule réaction, puisque l'énergie libérée par une bombe, de puissance égale à une mégatonne, correspondrait à la fusion de 70 Mégacuries de tritium.

On peut supposer que d'autres réactions sont utilisées, en particulier la réaction de fusion du lithium et du deutérium :



Dans ce cas, les neutrons sont émis par des réactions secondaires, telles que :



La quantité de neutrons produite sera alors très variable suivant le type de l'engin, et en l'absence de données précises on estime à l'heure actuelle, avec une incertitude d'un facteur 2, que  $2.10^{26}$  neutrons sont libérés par l'explosion d'une "mégatonne fusion". Si l'on adopte cette dernière valeur, à la fois pour les réactions de fission et de fusion, on peut calculer la quantité de radiocarbone artificiel qui a été introduite dans l'atmosphère de 1945 à 1962. Les renseignements sur les expériences réalisées depuis la reprise des essais en 1961 ne sont pas encore suffisants pour que l'on puisse établir un bilan précis relatif à ces derniers essais. Cependant, le tableau IV donne en mégatonnes équivalentes T.N.T., l'énergie libérée par les explosions qui ont eu lieu jusqu'en Novembre 1962 (O.N.U. 1960 - Reine 1962).

Tableau IV

| Période     | Fission |         | Fusion |         | Quantité de $\text{C}^{14}$ introduite dans l'atmosphère |       |
|-------------|---------|---------|--------|---------|----------------------------------------------------------|-------|
|             | Air     | Surface | Air    | Surface | Nombre d'atomes                                          | kg    |
| 1945 - 1951 | 0,19    | 0,57    |        |         | $0,1.10^{27}$                                            | 2     |
| 1952 - 1954 | 1       | 37      |        | 22      | 6,1 -                                                    | 142   |
| 1955 - 1956 | 5,6     | 7,5     | 5,4    | 9,5     | 3,9 -                                                    | 90    |
| 1957 - 1958 | 31      | 9       | 26     | 19      | 14,2 -                                                   | 332   |
| 1961 - 1962 | 54      |         | 216    |         | 54 -                                                     | 1 263 |

De ces données l'on peut estimer que  $78.10^{27}$  atomes de  $\text{C}^{14}$  ont été ainsi introduits dans l'atmosphère, avec une précision sur cette valeur de l'ordre d'un facteur 2. Ceci représente environ 1 830 kg de radiocarbone artificiel, apport qui est loin d'être négligeable si l'on pense qu'il y a 850 kg environ de  $\text{C}^{14}$  naturel dans l'atmosphère terrestre.

Le carbone étant un élément biologique capital il est important de savoir comment ce supplément d'activité, qui se trouve actuellement en majeure partie dans l'atmosphère, va se répartir et se diluer à la surface du globe.

### 3.2.2 - Distribution de $\text{C}^{14}$ artificiel - Echanges

Jusqu'à ces dernières années, le cycle du carbone dans la nature était très mal connu et ce n'est qu'avec le développement des mesures de radiocarbone naturel, celui-ci jouant le rôle de traceur, que l'on a pu obtenir quelques renseignements sur la dynamique de ce cycle.

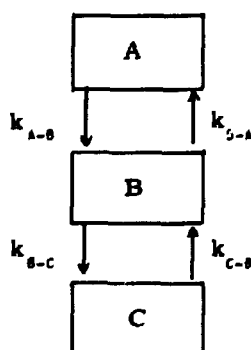
$\text{C}^{14}$  qu'il soit naturel ou artificiel est probablement formé ou injecté en grande partie dans la stratosphère. De là, il va pénétrer dans la troposphère où sous forme de  $\text{CO}_2$  il donnera lieu à des échanges d'une part avec la biosphère, d'autre part avec les océans. Le réservoir "océan" contenant environ les 95 % du carbone total de système échangeable, son rôle sera déterminant en particulier en ce qui concerne la dilution de  $\text{C}^{14}$  artificiel, et de nombreux auteurs ont tenté d'évaluer la rapidité des échanges atmosphère-océan.

L'étude mathématique d'un modèle simplifié comportant trois réservoirs a été faite par Arnold et Anderson (1957), ces trois réservoirs étant les suivants :

A - l'atmosphère comprenant l'atmosphère proprement dite  
la biosphère  
l'humus

B - les eaux superficielles des océans (jusqu'à une profondeur de 100 m)

C - les eaux profondes des océans



Au cours de cette analyse les auteurs supposent connues les quantités de carbone contenues dans chaque réservoir, ainsi que les activités spécifiques correspondantes. Deux phénomènes distincts sont à considérer lors du passage d'un atome de  $C^{14}$  d'un réservoir à l'autre :

1° - le transfert s'effectue avec une vitesse donnée qui est celle du carbone, mélange des trois isotopes  $C^{12}$ ,  $C^{13}$ ,  $C^{14}$ .

2° - une séparation isotopique peut se produire selon les processus d'échange mis en jeu.

La mesure des concentrations respectives  $\frac{C^{13}}{C^{12}}$  au spectrographe de masse permet d'effectuer la correction correspondant à cet effet puisque le facteur de séparation de  $C^{14}$  est grossièrement le double de celui de  $C^{13}$ . Les activités spécifiques ainsi corrigées ne sont plus fonction que du premier facteur.

Comme la plupart des études faites à ce sujet, celle-ci comporte deux hypothèses qui bien qu'elles ne soient pas rigoureusement exactes permettent d'obtenir une assez bonne approximation :

a) le nombre d'atomes transférés par unité de temps du réservoir A au réservoir B est uniquement proportionnel au nombre d'atomes présents en A.

b) le mélange à l'intérieur de chaque réservoir est rapide, ceci implique que la concentration est homogène à l'intérieur d'un réservoir donné.

On définit ainsi une vie moyenne  $\theta$ , vie moyenne d'une molécule de  $CO_2$  dans l'atmosphère avant son entrée dans l'océan.

Les valeurs de  $\theta$  obtenues varient évidemment selon les quantités de carbone que l'on suppose contenues dans chacun des réservoirs. En outre, les modèles choisis sont différents suivant les auteurs, Craig (1957) par exemple introduit deux réservoirs supplémentaires, la biosphère et l'humus.

Malgré cela, les estimations actuelles conduisent à des résultats assez semblables et l'on adopte généralement les valeurs moyennes suivantes (O. N. U. 1960) :

- vie moyenne d'un atome de  $C^{14}$  dans la stratosphère avant passage dans la troposphère : 5 ans.
- dans la troposphère avant passage dans la biosphère : 30 ans
- dans la troposphère avant passage dans les eaux océaniques superficielles : 5 ans
- dans les eaux superficielles avant passage dans les eaux profondes : 1 000 ans

A l'aide de ces données, et bien qu'il soit difficile de connaître avec précision la quantité de  $C^{14}$  formée lors des explosions nucléaires, Latter et Plessset (1960) ont essayé de déterminer la concentration future du radiocarbone artificiel dans le réservoir biosphérique ; ces auteurs ont alors supposé qu'il n'interviendrait pas de nouvelles explosions nucléaires au-delà de Décembre 1958.

D'après leurs résultats le niveau d'activité devait évoluer suivant quatre phases distinctes (figure 18) :

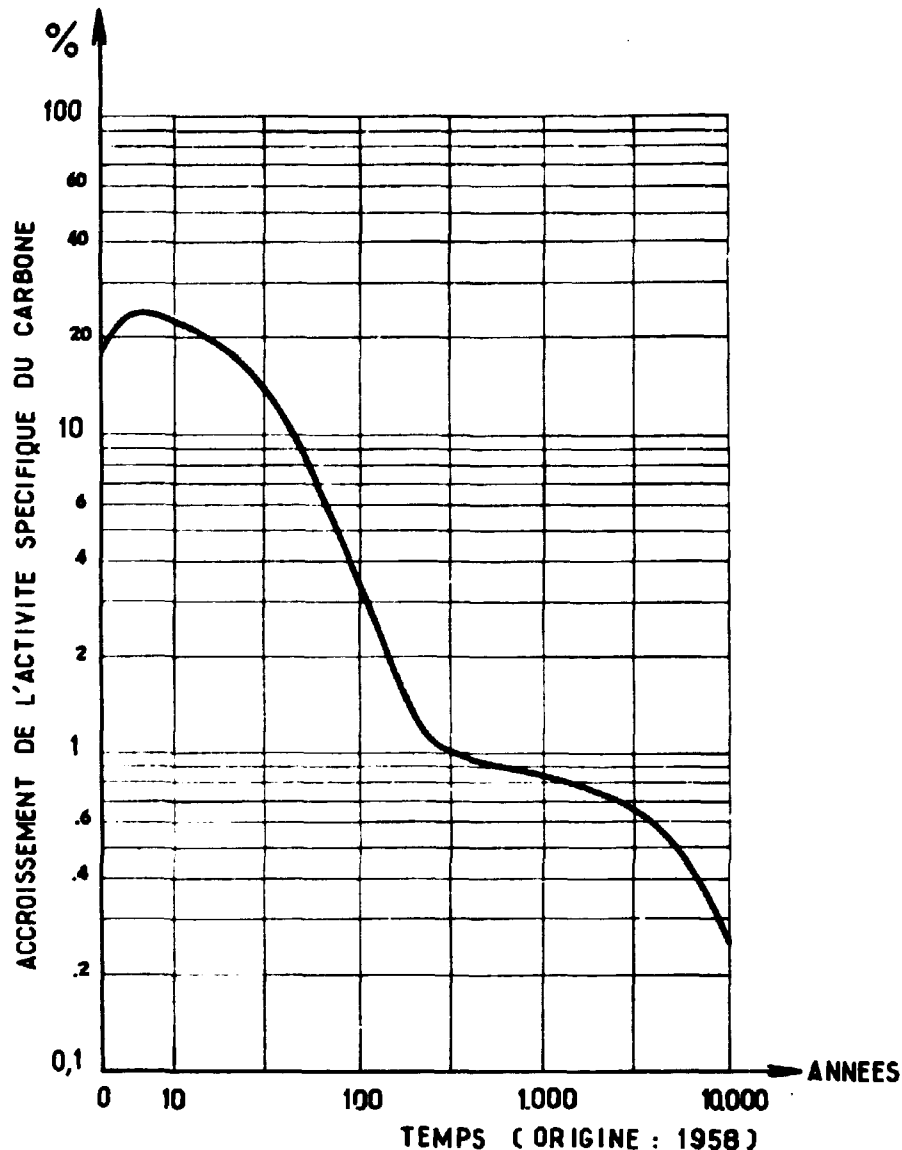


fig. 18 - Evolution théorique de l'activité du carbone de la biosphère (Cas où les explosions nucléaires auraient cessé en 1958)

a) Une augmentation continue, pendant quelques années, jusqu'à une valeur maximale de 30 à 40 % supérieure à la teneur normale, augmentation qui serait due à la rétention stratosphérique.

b) Une diminution relativement rapide s'étalant sur plusieurs années jusqu'à un niveau de 20 % environ au-dessus de la normale, et correspondant à l'établissement de l'état d'équilibre entre l'atmosphère et la biosphère d'une part, entre l'atmosphère et les eaux superficielles des océans d'autre part.

c) Une seconde diminution beaucoup plus lente se poursuivant jusqu'à l'état d'équilibre des eaux profondes : la teneur finale de la biosphère étant alors de 1 % environ au-dessus de la normale.

d) Ce résidu devait ensuite décroître suivant la période de  $C^{14}$ .

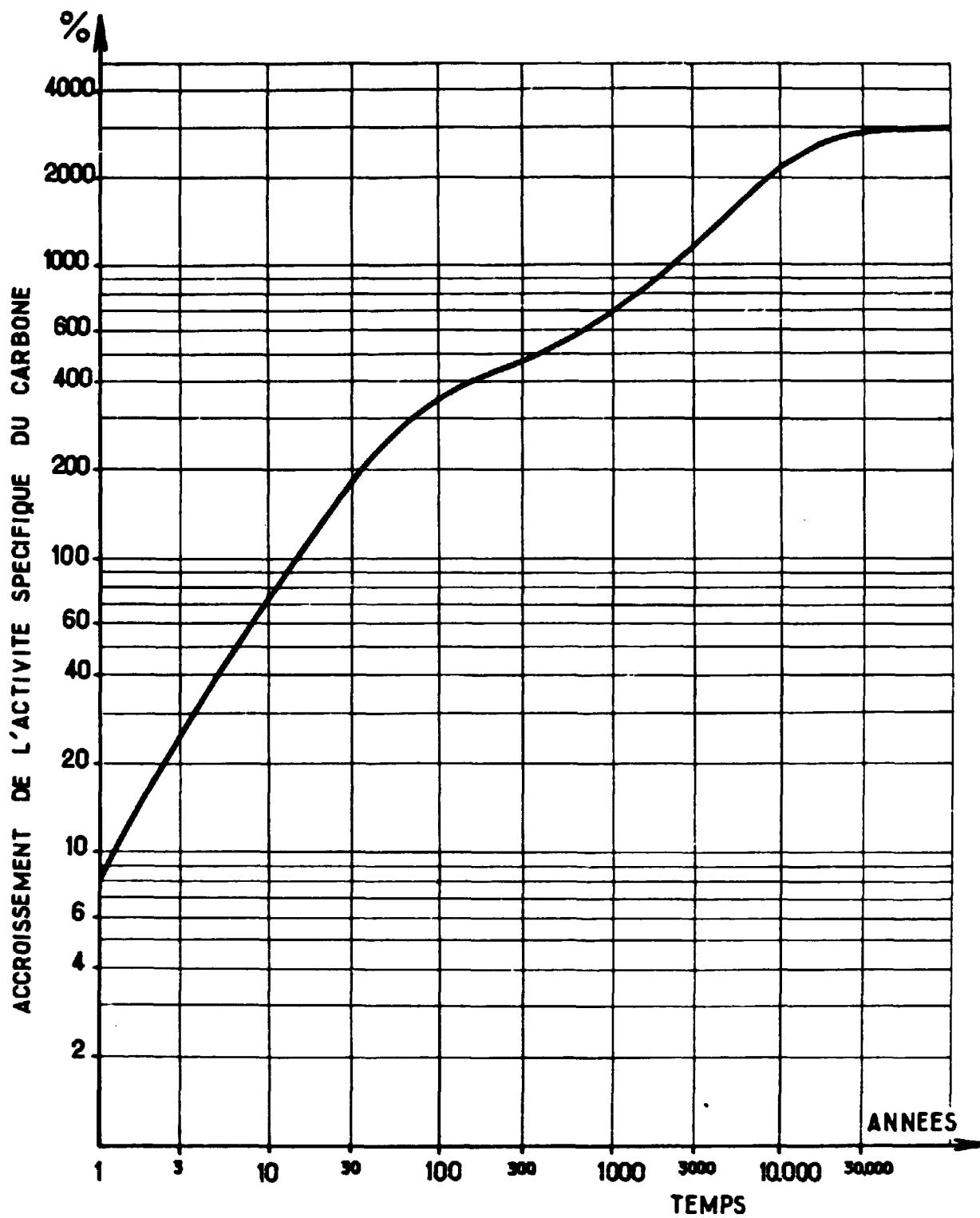


fig. 19 - Evolution théorique de l'activité du carbone de l'atmosphère et de la biosphère  
(Continuation des essais nucléaires avec formation de  $7 \cdot 10^{27}$  atomes par an en moyenne)

Or depuis 1961 les essais nucléaires ont repris à un rythme accéléré et une nouvelle analyse peut permettre d'évaluer la teneur future de l'atmosphère et de la biosphère. Elle repose sur les hypothèses suivantes (O.N.U., 1960) :

- introduction de  $C^{14}$  à raison de  $7,10^{27}$  atomes par an
- existence de deux grands réservoirs :

- 1) atmosphère + biosphère + eaux superficielles
- 2) eaux profondes des océans

Dans ces conditions la teneur de la biosphère croîtrait au cours des 100 prochaines années jusqu'à atteindre environ quatre fois la concentration de  $C^{14}$  naturel ; l'augmentation serait ensuite plus lente et pourrait conduire à une teneur égale à 30 fois la teneur naturelle (figure 19).

L'évolution réelle de cette activité est suivie depuis quelques années par de nombreux laboratoires et jusqu'en 1961, avant la reprise des essais, on pouvait établir des corrélations entre les divers résultats expérimentaux et les évaluations théoriques.

### 3.2.3 - Observations expérimentales

Les premiers essais nucléaires importants ont eu lieu de 1952 à 1954 et ce n'est qu'au cours de l'année 1955 que Rafter et Fergusson (Rafter 1957) notent une augmentation de l'activité du  $CO_2$  atmosphérique (en Nouvelle Zélande) de 2 %. Ce retard semble bien indiquer que le  $C^{14}$  injecté est stocké pendant un certain temps dans la stratosphère et diffuse peu à peu dans la troposphère.

#### 1) Mesures stratosphériques

Dès 1953 un important programme de prélèvements de  $CO_2$  stratosphérique fut mis au point par la Commission de l'Energie Atomique des Etats-Unis. Les premiers prélèvements eurent lieu en Septembre 1953. Les nombreux résultats obtenus sont consignés dans l'article de Hagemann (1959) et les auteurs ont pu ainsi tracer périodiquement les cartes de la distribution stratosphérique du radiocarbone artificiel ; ce qui leur permet d'évaluer avec une précision de l'ordre de 30 % le contenu du réservoir à une époque donnée (Tableau V). Des mesures de concentration du gaz carbonique étaient effectuées parallèlement, et aussi bien dans la troposphère que dans la stratosphère, la concentration du  $CO_2$  dans l'air s'est révélée sensiblement constante et égale en moyenne à 311 ppm.

Tableau V

|                              | Inventaire de $C^{14}$ artificiel contenu dans la stratosphère (atomes $C^{14}$ ) |
|------------------------------|-----------------------------------------------------------------------------------|
| 1 <sup>er</sup> Juillet 1955 | $8,6 \cdot 10^{27}$                                                               |
| 1 <sup>er</sup> Janvier 1956 | 8,0 -                                                                             |
| 1 <sup>er</sup> Juillet 1956 | 5,6 -                                                                             |
| 1 <sup>er</sup> Janvier 1957 | 6,6 -                                                                             |
| 1 <sup>er</sup> Juillet 1957 | 7,4 -                                                                             |
| 1 <sup>er</sup> Janvier 1958 | 6,1 -                                                                             |
| 1 <sup>er</sup> Juillet 1958 | 8,4                                                                               |

Etant donné que l'accroissement annuel de l'activité de la troposphère est bien connu, que l'on peut en déduire, connaissant la vie moyenne troposphérique de  $C^{14}$ , l'accroissement correspondant des océans, les auteurs à l'aide de ces données et de l'inventaire stratosphérique évaluent la vie moyenne d'une molécule  $C^{14} O_2$  dans la stratosphère. Cette vie moyenne serait de l'ordre de 5 ans, toutefois on doit noter que cette valeur est déterminée en supposant que la totalité du radiocarbone artificiel est injectée dans la stratosphère lors des explosions, ce qui n'est pas le cas pour des engins de faible puissance (inférieure à la mégatonne) explosant au sol. Ce temps de séjour stratosphérique est nettement supérieur à celui qui a été déterminé pour les produits de fission tels que  $Sr^{90}$  et qui est probablement inférieur à 1 an.

Cette différence peut être due au fait que  $C^{14}$ , se trouvant rapidement sous la forme gazeuse  $C^{14}O_2$ , doit se comporter identiquement aux autres gaz de l'atmosphère, alors que dans le cas de  $Sr^{90}$  des agrégats doivent probablement se former et des phénomènes de décantation intervenir.

## 2) Mesures concernant la troposphère et la biosphère

L'accroissement de l'activité à l'intérieur de ces deux réservoirs donne lieu, pour différentes raisons, aux mesures les plus nombreuses :

Seule la troposphère participe directement aux échanges avec la stratosphère, c'est un réservoir de dimensions réduites (tableau I), l'accroissement sera par conséquent plus rapidement décelable et plus sensible que dans les océans.

La matière végétale contemporaine par l'intermédiaire de la photosynthèse est en relation directe avec les variations troposphériques, en outre, le réservoir de la biosphère offre la possibilité d'une confrontation constante entre les valeurs actuelles et les valeurs pré-nucléaires.

L'évolution de l'activité est suivie régulièrement tant dans l'hémisphère Nord que dans l'hémisphère Sud, la majeure partie des explosions ayant eu lieu dans l'hémisphère Nord. Jusqu'en 1959, la troposphère Sud semble suivre avec un certain retard l'augmentation observée dans la troposphère Nord, et différents auteurs ont pu ainsi calculer les vitesses d'échange interhémisphérique : ils aboutissent à des résultats comparables et l'on peut penser que la vie moyenne d'une molécule de  $CO_2$  dans un hémisphère est inférieur à deux ans (Broecker 1959).

La figure 20 montre les variations de l'activité spécifique du carbone due à  $C^{14}$ , observées par différents laboratoires, en des points dispersés à la surface du globe.

L'évolution de l'activité en France est régulièrement suivie au Service d'Electronique Physique à Saclay. Les mesures sont effectuées à l'aide d'un compteur proportionnel à  $CO_2$  (Perquis... 1956) dont nous indiquerons brièvement les caractéristiques :

- Volume du compteur : 1,2 l
- Pression du gaz de remplissage : 74 cm de mercure
- Mouvement propre du compteur rempli de gaz carbonique de provenance "ancienne" :  $4,86 \pm 0,06$  impulsions/minute
- Taux de comptage correspondant à un remplissage de gaz carbonique de provenance contemporaine :  $10,88 \pm 0,08$  impulsions/minute

Le carbone contemporain de référence provient d'un pin Douglas dont on a prélevé les accroissements correspondant aux années 1910 à 1930, une correction relative à la décroissance de l'activité depuis cette période étant effectuée.

Nos mesures, comme celles qui sont faites actuellement dans les laboratoires de radiocarbone cités ci-dessus permettent ainsi d'obtenir les valeurs relatives de l'augmentation d'activité du  $CO_2$  atmosphérique et du carbone de la biosphère provoquée par les essais nucléaires.

Les prélèvements destinés à ces mesures sont de deux sortes :

a) Prélèvements de  $CO_2$  atmosphérique, chacun pendant une durée de 10 jours environ, effectués à la station C.N.R.S. du Val Joyeux ( $48^\circ 49' N - 2^\circ 1' E$ ), située à plus de 15 km des réacteurs de Saclay, ce qui permet d'éliminer la possibilité de contamination par ces réacteurs. En outre, cette station est au vent de la zone industrielle de Paris pendant 90 % du temps, ce qui réduit considérablement les modifications éventuelles d'activité par effet Suess. Le gaz carbonique est prélevé par passage de l'air à travers une série de solutions de baryte : la dernière solution restant toujours limpide, la collection est totale ; on évite ainsi les séparations isotopiques qui pourraient éventuellement se produire au cours des collections partielles.

b) Prélèvements de pousses annuelles de végétaux, ce qui permet d'obtenir une valeur intégrée sur plusieurs mois ; ils sont effectués loin de toute agglomération ou de tout centre industriel, afin d'éliminer toute incidence due au carbone fossile provenant des combustions, et dans une zone de végétation peu dense afin d'éviter au maximum l'influence de l'assimilation du  $CO_2$  provenant des décompositions au sol ( $44^\circ 11' N - 1^\circ 37' E$ ).

Le tableau VI indique les résultats obtenus sur les prélèvements effectués depuis 1958.

L'augmentation de l'activité, régulière jusqu'en 1959 (figure 21) atteint en 1960 pour le  $CO_2$  atmosphérique une valeur supérieure de 42 % à la teneur normale.

Tableau VI

Accroissement de l'activité spécifique du carbone, dû au carbone-14 artificiel provenant des essais nucléaires,

| Date du prélèvement | Lieu du prélèvement  | $\Delta C^{14}$ (%)           |                      |
|---------------------|----------------------|-------------------------------|----------------------|
|                     |                      | CO <sub>2</sub> atmosphérique | Carbone des végétaux |
| 1958                | 48° 37' N ; 2° 02' E |                               | 11 ± 2               |
| 1959                | 44° 11' N ; 1° 37' E |                               | 19 ± 2               |
| Mai 1960            | 48° 49' N ; 2° 01' E | 26 ± 2                        |                      |
| Novembre 1960       | 48° 49' N ; 2° 01' E | 42 ± 2                        |                      |
| 1960                | 44° 11' N ; 1° 37' E |                               | 34 ± 2               |
| Juin 1961           | 48° 49' N ; 2° 01' E | 23 ± 2                        |                      |
| Novembre 1961       | 48° 49' N ; 2° 01' E | 32 ± 2                        |                      |
| 1961                | 44° 11' N ; 1° 37' E |                               | 28 ± 2               |
| Février 1962        | 48° 49' N ; 2° 01' E | 36 ± 2                        |                      |
| Mai 1962            | 48° 49' N ; 2° 01' E | 54 ± 2                        |                      |
| Novembre 1962       | 48° 49' N ; 2° 01' E | 60 ± 2                        |                      |

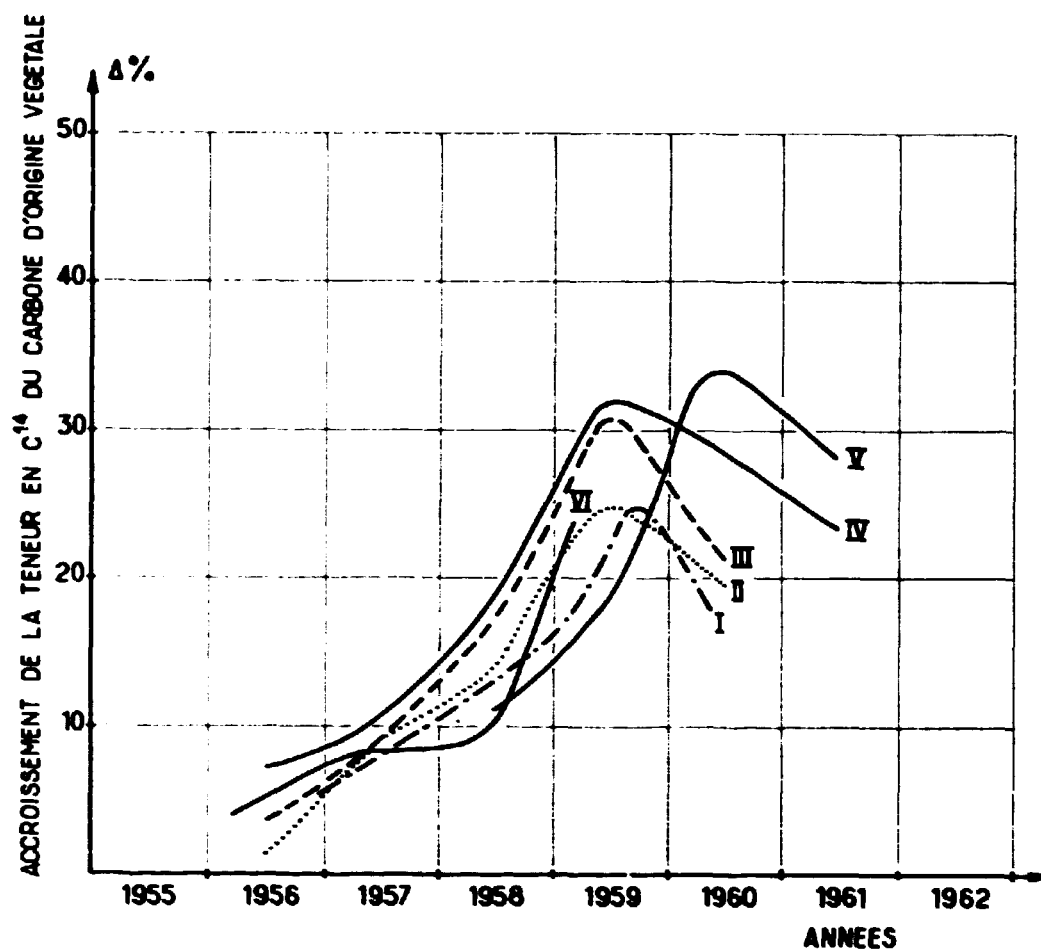


fig. 20 - Evolution de l'activité spécifique du carbone de la biosphère due aux explosions atomiques  
 I - Broecker (1960) - Hasp (1961) EU : 41° N - 73° 55' O ; II - Willis (1960) - Godwin (1961) GB : 52° 12' N - 0° 07' E ; III - Tauber (1960) - Danemark : 55° 50' N - 12° 30' E ; IV - Mc Callum (1962) - Canada : 52° 23' N - 108° 50' O ; V - Saclay - France : 44° 11' N - 1° 37' E ; VI - Kigoshi (1960) Japon.

On observe ensuite une diminution due à l'arrêt des essais nucléaires depuis les nombreuses expériences de la fin de l'année 1958.

Cette variation semblerait donc jusqu'en 1961 suivre grossièrement l'évolution indiquée figure 18 et déterminée théoriquement.

Après une période de trêve, dès le 1<sup>er</sup> Septembre 1961 de nouvelles explosions de grande puissance se succèdent : on estime que depuis cette date jusqu'au début Décembre 1962, la puissance de ces explosions correspond à 270 mégatonnes de T.N.T., alors que les essais antérieurs au 20 Novembre 1958 avaient libéré une puissance totale de 170 mégatonnes.

Parallèlement à ces nouvelles injections de  $C^{14}$  artificiel on note en Novembre 1961, une nouvelle remontée de l'activité spécifique du gaz carbonique de l'air qui se poursuit jusqu'en Novembre 1962 (date du dernier prélèvement effectué) : l'augmentation atteint alors la valeur de 60 %.

Comme on peut le constater sur la figure 21, l'activité du carbone d'origine végétale varie de façon semblable : cette deuxième série de mesures permet d'observer les variations intégrées sur le temps de végétation active (4 à 5 mois de l'année) et d'obtenir des valeurs moyennes de l'accroissement.

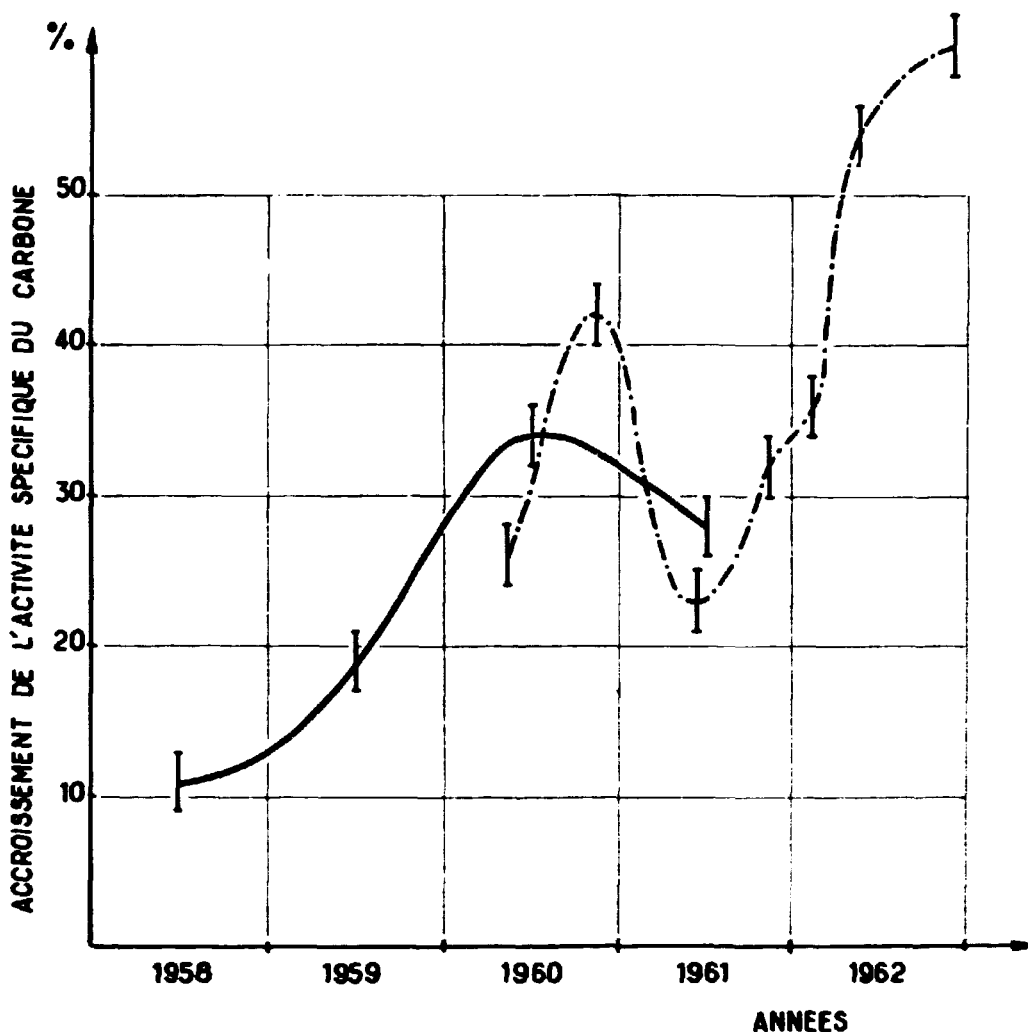


fig. 21 - Variation de l'activité spécifique du carbone en France  
 --- Carbone atmosphérique ; — Carbone d'origine végétale

Ainsi l'étude de cette perturbation de l'activité spécifique du carbone, qui dès maintenant atteint une amplitude non négligeable, présente un double intérêt. D'une part, elle permettra en utilisant le carbone-14 artificiel comme traceur de déterminer plus précisément les échanges du carbone à la surface du globe. D'autre part, comme pour toutes les retombées radioactives, il est nécessaire de suivre cette évolution par suite des dangers que pourrait comporter pour l'homme une augmentation importante de l'activité naturelle : le carbone est en effet l'un des constituants essentiels des cellules vivantes, et des conséquences, en particulier dans le domaine génétique, peuvent être attendues de ces variations.

## IV - ÉTUDE D'UNE VARIATION LOCALE DE L'ACTIVITÉ SPÉCIFIQUE : POLLUTION DES VÉGÉTAUX AUTOUR D'UN CENTRE ATOMIQUE

La distribution au niveau du sol de l'activité rejetée sous forme gazeuse par les cheminées des réacteurs nucléaires est mal connue du point de vue expérimental, jusqu'ici ce problème avait surtout été abordé de façon théorique, en basant les calculs sur le mécanisme prévu par Sutton (1947). Il a paru intéressant de déterminer cette répartition à l'aide de  $C^{14}$  rejeté par les cheminées des réacteurs tels que EL.2, refroidis par l'air extérieur.

En effet, si  $C^{14}$  produit dans le circuit de refroidissement est rapidement oxydé sous forme de  $CO_2$ , il se comportera comme les autres effluents gazeux radioactifs et subira les mêmes dilutions. Une fraction, supposée constante en fonction du temps, du gaz carbonique ainsi marqué étant directement assimilée par la végétation environnante, la mesure de l'activité spécifique du carbone contenu dans ces végétaux permettra d'évaluer autour d'un centre la pollution moyenne, intégrée sur une période de plusieurs mois.

Notre étude a porté principalement au cours de l'année 1959, sur le réacteur EL.2 et le site de Saclay, mais elle est applicable d'une façon plus générale aux réacteurs de ce type.

### 4. 1 - Formation de $C^{14}$ dans les effluents gazeux

$C^{14}$  rejeté par la cheminée d'EL.2 provient d'une part de l'activation de l'air du circuit de refroidissement secondaire du bloc pile, d'autre part de l'activation de l'azote présent sous forme d'impureté dans le gaz carbonique du circuit de refroidissement primaire du combustible (figure 22).

Deux cas sont à considérer si l'on veut évaluer la quantité de  $C^{14}$  qui peut être rejetée dans l'atmosphère pendant une période donnée :

- au cours du fonctionnement normal du réacteur on doit tenir compte du circuit ouvert de refroidissement secondaire et des fuites du circuit fermé de refroidissement primaire.

- certains incidents de fonctionnement peuvent donner lieu soit à des rejets partiels du gaz carbonique du circuit fermé, soit à la "mise en air" de ce réseau.

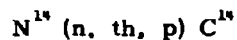
#### 4.1.1 - Cas du fonctionnement normal

##### 1) Circuit d'air

L'air assurant le refroidissement du graphite et de l'écran thermique est aspiré de l'extérieur, puis après passage dans le bloc pile est évacué par une cheminée d'une hauteur de 30 mètres.

L'activité principale ainsi rejetée est due à  $A^{14}$  formé à partir de  $A^{14}$  contenu dans l'air, et les calculs de dilution à la sortie de la cheminée sont faits le plus souvent à l'aide de cet isotope.

Bien que présentant une activité plus faible que celle de  $A^{14}$ ,  $C^{14}$  est également formé à partir de l'azote de l'air suivant la réaction :



Etant donné la longue période de  $C^{14}$  on peut négliger la décroissance de son activité tant pendant la durée de l'irradiation qu'après la sortie du réacteur. La variation du nombre de noyaux de  $C^{14}$  pendant l'intervalle de temps  $dt$  a pour expression :

$$dN_2 = N_1 \sigma \Phi dt$$

$N_2$  : nombre de noyaux de  $C^{14}/m^3$  d'air présents au temps  $t$  de l'irradiation

$N_1$  : nombre de noyaux d'azote/ $m^3$  d'air

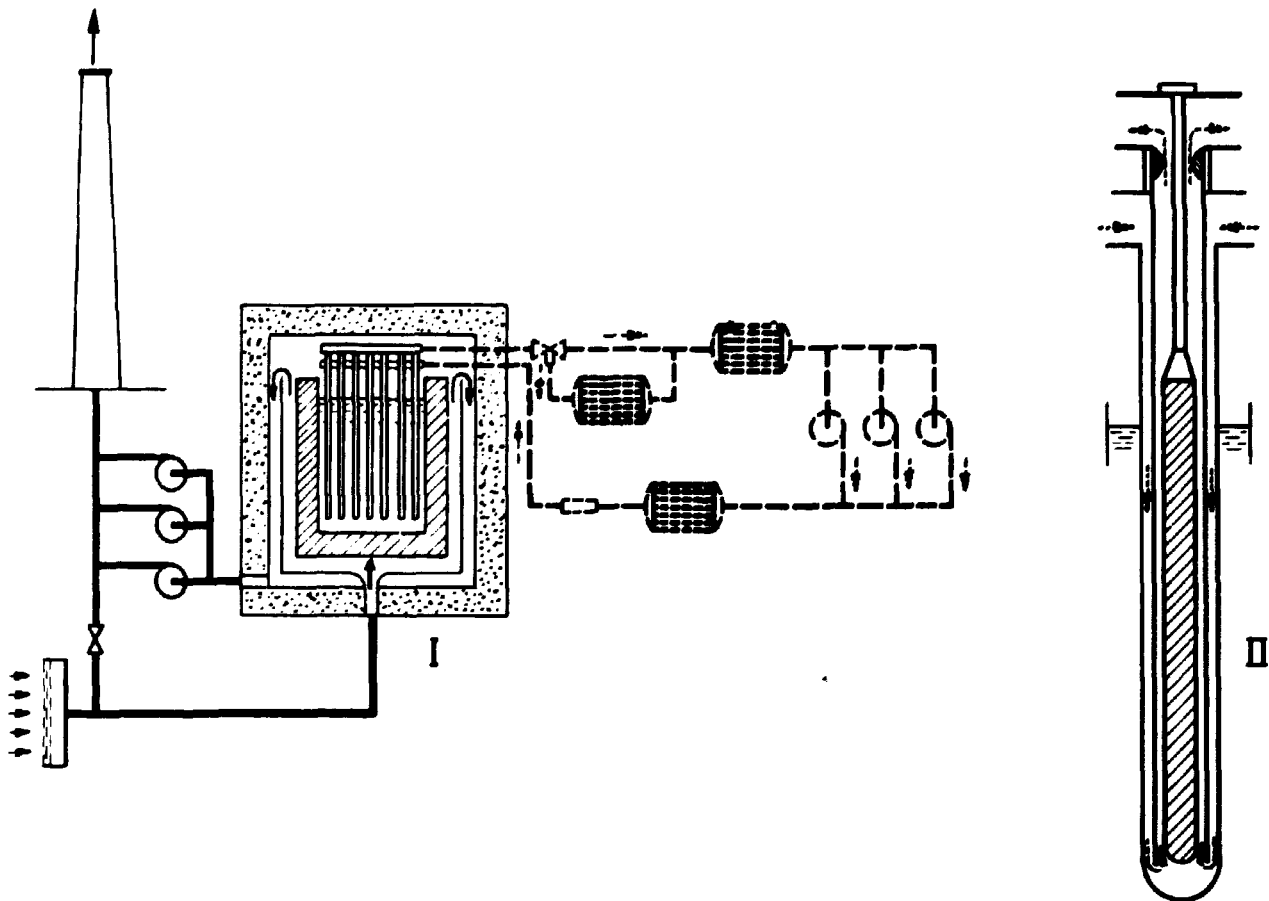


fig. 22 - I - Schéma des circuits de refroidissement (EL.2) ; II - Refroidissement d'une cellule  
 — Circuit d'air ; - - - Circuit de gaz carbonique

$\sigma$  : section efficace de la réaction

$\Phi$  : flux de neutrons thermiques

$\lambda$  : constante radioactive

$t$  : temps d'irradiation

on obtient ainsi :

$$N_2 = N_1 \sigma \Phi t$$

L'activité de l'air exprimée en curie/m<sup>3</sup> au temps  $t$  de l'irradiation est :

$$A = \frac{1}{3,7 \cdot 10^{10} \lambda N_1 \sigma \Phi t}$$

Ce calcul ne peut donner qu'une valeur approximative car la durée de l'irradiation n'est pas connue avec précision ; de même le flux de neutrons varie le long du trajet de l'effluent gazeux dans la pile. Si l'on adopte les valeurs moyennes de :

$$t = 5 \text{ s}$$

$$\Phi = 5 \cdot 10^{10} \text{ n.cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$$

les valeurs des autres paramètres étant :

$$\lambda = 4,10^{-12} \text{ s}^{-1}$$

$$\sigma = 1,7.10^{-24} \text{ cm}^2$$

$$N_1 = 4,3.10^{25} \text{ noyaux d'azote/m}^3 \text{ d'air}$$

on peut calculer l'activité de l'air en  $C^{14}$  à la sortie de la cheminée ; on trouve alors

$$2.10^{-9} \text{ curie/m}^3 \text{ d'air.}$$

## 2) Circuit de $CO_2$

L'uranium est refroidi par du gaz carbonique sous pression évoluant en circuit fermé ; ce  $CO_2$  renferme sous forme d'impureté une certaine quantité d'azote. Le gaz froid pénètre dans une cellule de combustible, refroidit le modérateur pendant sa course descendante, puis l'uranium lui-même pendant sa course ascendante. A la sortie de la pile, le gaz chaud est refroidi dans les échangeurs de température avant de commencer un nouveau cycle. Ce circuit n'étant pas parfaitement étanche, il s'établit une fuite continue de  $CO_2$  vers la cheminée ; une alimentation compensatrice de  $CO_2$  neuf permet de maintenir en permanence une pression constante dans le réseau et permet d'évaluer l'importance des fuites. La quantité de gaz ainsi éliminée par unité de temps est constante. De plus la circulation étant cyclée on peut considérer que seule une fraction du volume total du gaz contenu dans le réseau subit l'irradiation.

Si :

$N_1$  est le nombre de noyaux d'azote/ $m^3$  de  $CO_2$  T.P.N.

$N_2$  le nombre de noyaux de  $C^{14}$  formés/ $m^3$  de  $CO_2$  T.P.N.

$f$  la fraction du gaz éliminé par unité de temps

$k$  la fraction du gaz qui subit l'irradiation

la variation dans le temps  $dt$  du nombre de noyaux de  $C^{14}$  par  $m^3$  de gaz T.P.N. est :

$$dN_2 = k N_1 \sigma \Phi dt - \lambda N_2 dt - f N_2 dt$$

on obtient par intégration :

$$N_2 = \frac{1}{\lambda + f} k N_1 \sigma \Phi \left[ 1 - e^{-(\lambda+f)t} \right]$$

et l'activité exprimée en curie/ $m^3$  de  $CO_2$  T.P.N. sera :

$$A = \frac{1}{3,7.10^{10}} \cdot \frac{\lambda}{\lambda + f} \cdot k N_1 \sigma \Phi \left[ 1 - e^{-(\lambda+f)t} \right]$$

Les différentes caractéristiques relatives à EL.2 sont les suivantes :

Volume du gaz en circulation : 200  $m^3$  T.P.N.

$$f : 3.10^{-7} \text{ s}^{-1}$$

$$k : 3.10^{-2}$$

$$\Phi : 5.10^{12} \text{ n.cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$$

Azote présent en tant qu'impureté dans le  $CO_2$  : 4 000 p.p.m.

Ces quatre dernières valeurs ne sont que des valeurs moyennes approximatives.

Puisque  $\lambda \ll f$  la formule précédente peut être simplifiée :

$$A = \frac{1}{3,7.10^{10}} \cdot \frac{\lambda}{f} \cdot k N_1 \sigma \Phi \left[ 1 - e^{-ft} \right]$$

On voit que l'activité du gaz dans le réseau croîtra jusqu'à saturation avec une période apparente de  $\frac{0,693}{f}$  soit 26 jours environ. Cette activité à saturation sera de

$$2,10^{-3} \text{ curie/m}^3 \text{ de CO}_2 \text{ T.P.N.}$$

Il faut cependant noter que  $C^{14}$  peut être également formé par les deux réactions suivantes :

$$1 - C^{13} \text{ (n. th., } \gamma) C^{14} \sigma = 0,1.10^{-24} \text{ cm}^2$$

$$2 - O^{17} \text{ (n. th., } \alpha) C^{14} \sigma = 0,4.10^{-24} \text{ cm}^2$$

La proportion de  $C^{13}$  dans le carbone naturel est 1,12 % et l'activité du  $CO_2$  provenant de la réaction - 1 - peut être négligée puisqu'elle représente environ le 1/10 de l'activité due à la présence d'azote sous forme d'impureté. L'activité imputable à la réaction - 2 - sera évidemment négligeable puisque  $O^{17}$  est présent dans l'oxygène naturel dans la proportion de 0,037 %.

Si le volume du gaz circulant dans le réseau est 200 m<sup>3</sup> il s'établit une fuite d'activité qui par seconde est :

$$A_{\text{fuite}} = \frac{200}{3,7.10^{10}} \cdot \lambda \cdot k N_1 \sigma \Phi \left[ 1 - e^{-ft} \right]$$

Ainsi cette valeur, l'activation à saturation étant atteinte, ne dépend plus de l'importance de la fuite  $f$ , et l'imprécision sur ce dernier paramètre jouera uniquement sur le temps nécessaire à l'établissement de la saturation.

Si  $f = 3.10^{-7} \text{ s}^{-1}$ , ce temps sera de l'ordre de 200 jours, et la fuite en régime d'équilibre de :

$$1,2 \cdot 10^{-9} \text{ Ci/s}$$

Cette activité provenant des fuites du circuit de  $CO_2$  peut être dans certains cas, plus importante : ceci se produit notamment pendant la période de fonctionnement succédant à une mise en air du réseau. On doit alors purger le circuit de son air avant d'effectuer un nouveau remplissage de gaz carbonique et la pression résiduelle est égale au 1/10 environ de la pression atmosphérique. Il y a ainsi initialement dans le circuit une quantité d'azote voisine de 2 m<sup>3</sup>.

En conservant les mêmes notations que précédemment, on peut calculer la fuite d'activité qui sera due à cet azote résiduel :

$$(1) dN_2 = k N_2 \sigma \Phi dt - \lambda N_2 dt - f N_2 dt$$

$$(2) N_1 = N_{1,0} e^{-ft}$$

$N_{1,0}$  étant le nombre initial de noyaux d'azote résiduel.

On obtient en intégrant, étant donné  $f \ll \lambda$  :

$$N_2 = k N_{1,0} \sigma \Phi t e^{-ft}$$

La fuite d'activité due à  $C^{14}$  formé à partir de l'azote résiduel sera ainsi :

$$A_{\text{fuite}} = \frac{200}{3,7.10^{10}} \lambda \cdot f \cdot k N_{1,0} \sigma \Phi \cdot t \cdot e^{-ft}$$

La figure 23 montre la variation en fonction du temps de l'activité totale s'échappant du circuit de gaz carbonique, activité provenant à la fois de l'azote résiduel et de l'azote, impureté du gaz carbonique. La valeur maximale de la fuite sera :

$$2 \cdot 10^{-9} \text{ Ci/s}$$

La figure 23 montre que cette valeur maximale sera très souvent atteinte puisqu'elle s'établit pendant un laps de temps relativement long à la suite d'une mise en air du réseau.

Ainsi au cours du fonctionnement normal du réacteur, en tenant également compte de l'activation de l'air dans le circuit secondaire, et en supposant un débit d'air de 4 m<sup>3</sup> à la seconde, la concentration de  $C^{14}$  à la sortie de la cheminée serait :

$$2,5 \cdot 10^{-9} \text{ Ci/m}^3 \text{ d'air}$$

et l'activité rejetée de l'ordre de :

$$10^{-6} \text{ Ci/s}$$

#### 4.1.2 - Cas des rejets du $\text{CO}_2$ du circuit primaire

On peut être conduit lors de certains incidents à effectuer des rejets brutaux de gaz carbonique. Les rejets les plus fréquents sont partiels, et dans ce cas on évacue en général la moitié du gaz contenu dans le réseau. Plus rarement, on doit procéder au rejet de la totalité du gaz dans l'atmosphère. Si nous considérons ce dernier cas, qui est le plus défavorable, et si nous appliquons les résultats trouvés précédemment, l'activité rejetée sera au maximum de :

$$10^{-2} \text{ Ci}$$

c'est-à-dire égale à l'activité rejetée au cours d'une dizaine de jours de fonctionnement normal :

Ces rejets massifs se produisant rarement, nous négligerons leurs effets devant le rejet permanent.

#### 4. 2 - Mesure de l'activité de l'air rejeté par la cheminée EL.2

Si la concentration de  $\text{C}^{14}$  est effectivement de l'ordre de  $2 \text{ à } 3 \cdot 10^{-9} \text{ Ci/m}^3$  d'air, on ne peut effectuer cette mesure à l'aide des méthodes classiques : en effet les chambres d'ionisation qui sont le plus souvent utilisées pour les mesures de radioactivité  $\beta$  des gaz, ont des limites de sensibilité très inférieures à cette valeur, dans le cas de  $\text{C}^{14}$  cette limite est de l'ordre de  $10^{-6} \text{ Ci/m}^3$ . En outre, la présence de nombreux gaz radioactifs tels que  $\text{A}^{21}$  ou les gaz de fission, en concentrations souvent très importantes, rend la mesure de  $\text{C}^{14}$  encore plus délicate.

On est ainsi amené, d'une part à séparer  $\text{C}^{14}$  des autres nuclides radioactifs présents, d'autre part à utiliser une méthode de mesure à très faible niveau, commençant par une séparation du carbone de l'air contenu dans la cheminée.

Bien que les transformations chimiques intervenant après la formation du noyau de  $\text{C}^{14}$  par la réaction nucléaire  $\text{N}^{14} (n, p) \text{C}^{14}$  dans l'air soient encore mal connues, on peut supposer d'après les travaux de Pandow (1960) que seules se produisent les transformations en oxyde de carbone et gaz carbonique. Ces auteurs, après avoir irradié des échantillons d'air dans un réacteur, ont montré à l'aide d'une séparation par chromatographie que l'activité due à  $\text{C}^{14}$  formé se retrouve à moins de 1 % près, uniquement sous forme de  $\text{C}^{14}\text{O}$  et de  $\text{C}^{14}\text{O}_2$ . Les proportions respectives de ces deux gaz sont variables suivant la présence ou l'absence d'entraîneur et également suivant la présence de certaines impuretés comme  $\text{NO}_2$  par exemple.

On a donc cherché, compte tenu de ces résultats, à déterminer l'activité totale en  $\text{C}^{14}$  de l'air rejeté par la cheminée d'EL.2, sous les deux formes gazeuses détectées par Pandow :  $\text{C}^{14}\text{O}$  et  $\text{C}^{14}\text{O}_2$ .

##### 4.2.1 - Séparation de $\text{C}^{14}$ sous forme de $\text{C}^{14}\text{O}_2$

L'appareil de détection utilisé est le compteur proportionnel, de volume 1 litre, à remplissage de  $\text{CO}_2$ , déjà mentionné au chapitre III.

Les activités détectées à l'aide de cette installation sont toujours voisines de l'activité naturelle du carbone, c'est-à-dire  $10^{-12} \text{ curie/m}^3$  d'air. Afin d'éviter toute pollution éventuelle des appareils, on est donc obligé d'effectuer une dilution d'un facteur 1 000 environ, et la teneur du gaz carbonique dans l'air étant de 3/10 000, des prélèvements de 5 litres d'effluent seront suffisants. La dilution est faite à l'aide de  $\text{CO}_2$  inerte qui sert également d'entraîneur puisque la quantité de gaz carbonique utilisée est très faible.

Les prélèvements de 5 ou 10 litres de gaz sont faits à la base même de la cheminée et la séparation du gaz carbonique de l'air a lieu au laboratoire (figure 24).

Un faible courant d'argon entraîne le gaz contenu dans un réservoir de verre, à travers trois barboteurs successifs, les deux premiers contenant une solution ammoniacale à 10 %, le troisième une solution saturée de baryte. Cette dernière reste limpide pendant toute la durée de l'opération. Au préalable une quantité connue de  $\text{CO}_2$  inerte a été recueillie dans les deux barboteurs d'ammoniacale. Le débit d'argon est maintenu à une valeur faible de 6 l/heure environ, afin d'éviter les pertes éventuelles de gaz dues à un barbotage trop intense. La mesure continue de ce débit permet d'évaluer la quantité d'argon ayant traversé le réservoir et de fixer ainsi la durée de la manipulation.

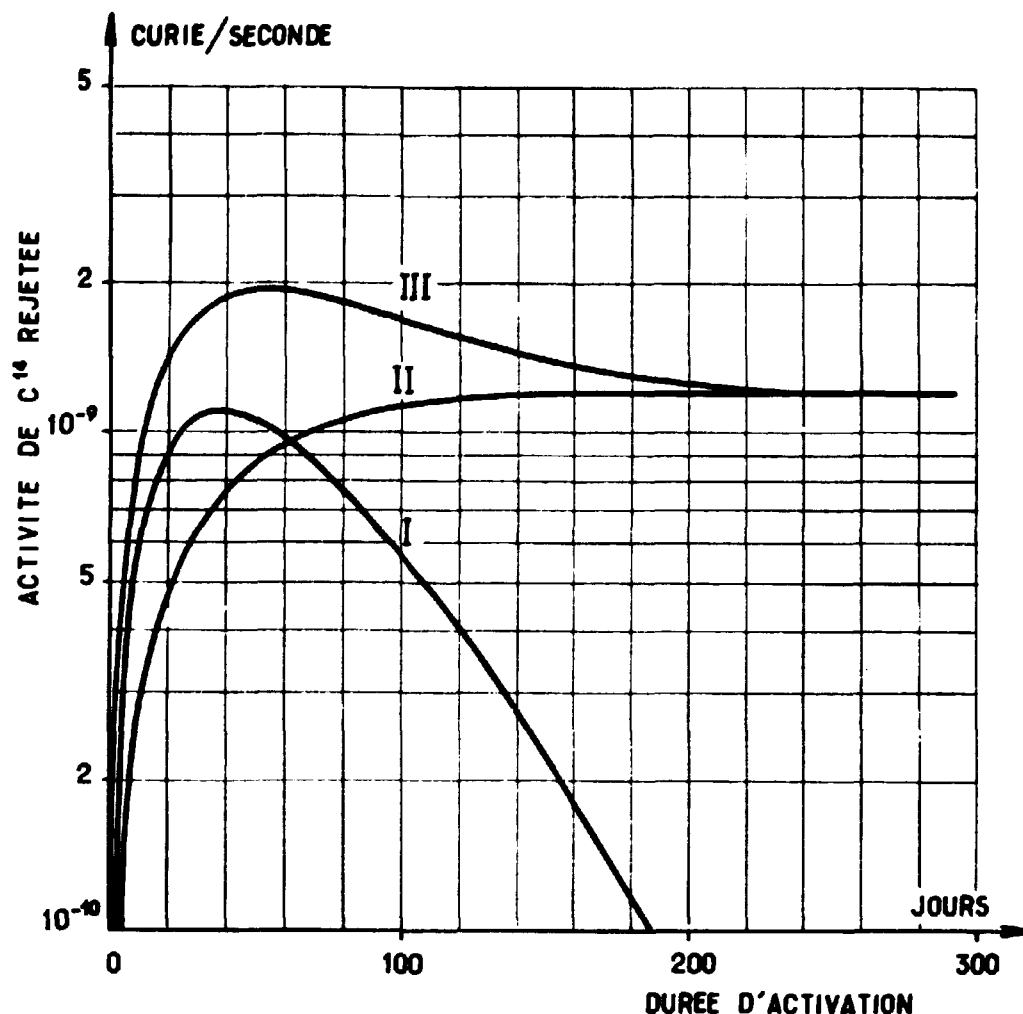


fig. 23 - Rejet de  $C^{14}$  provenant du circuit  $CO_2$  en fonctionnement continu

I - Activité due à l'azote résiduel ; II - Activité due à l'azote impurité ; III - Activité totale de fuite

Le gaz carbonique de l'air est retenu sous forme de carbonate d'ammonium soluble qui est ensuite transformé en carbonate de baryum insoluble par addition d'une solution de baryte. Le précipité est filtré, lavé, séché et le  $CO_2$  sera régénéré et purifié lors du remplissage du compteur suivant le procédé habituel.

Trois échantillons ont été ainsi prélevés à la base de la cheminée et traités suivant cette méthode, chacun d'eux correspondant à un cycle de fonctionnement différent.

Afin de vérifier que le traitement en laboratoire n'entraîne pas d'erreur significative, un quatrième prélèvement a été effectué dans des conditions différentes : l'air de la cheminée est directement aspiré à travers un système de barboteurs identique au précédent, et la séparation du gaz carbonique est faite immédiatement. On mesure dans ce cas le volume d'air total ayant traversé les solutions.

#### 4.2.2 - Séparation de $C^{14}$ sous forme de $C^{14}O$ et $C^{14}O_2$

L'oxyde de carbone, s'il est présent dans l'atmosphère de la cheminée, doit d'une part être séparé des divers constituants gazeux, d'autre part être oxydé en gaz carbonique, forme chimique sous laquelle on mesurera son activité. Or l'extraction quantitative à partir de l'air de quantités infimes d'oxyde de carbone est une opération extrêmement délicate. C'est pourquoi l'on a préféré adopter une solution intermédiaire : l'oxyde de carbone est avant extraction, transformé en gaz car-

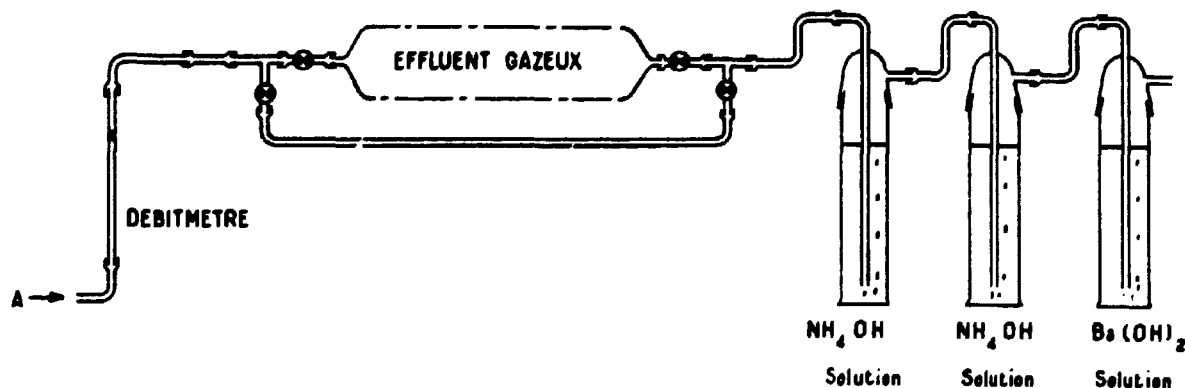


fig. 24 - Séparation du gaz carbonique

bonique et recueilli ensuite sous cette forme, au même titre que le gaz carbonique qui se trouve dans l'atmosphère de la cheminée. La mesure donne alors l'activité globale  $C^{14}O + C^{14}O_2$  et la mesure simultanée de  $C^{14}O_2$  seul permet d'obtenir par différence l'activité due à  $C^{14}O$ .

Trois prélèvements identiques aux prélèvements destinés à recueillir le  $CO_2$  ont été effectués, et le traitement de l'effluent a également lieu au laboratoire. Le schéma de l'appareil est donné figure 25.

Le courant d'argon est dans ce cas remplacé par un faible courant d'oxygène, de même débit. L'oxyde de carbone est oxydé par passage sur de l'oxyde de cuivre chauffé à  $750^\circ$ . A la sortie du four, un système de trois barboteurs permet comme précédemment de recueillir le  $CO_2$  provenant directement de l'effluent et le  $CO_2$  provenant de l'oxydation de  $CO$ . Les opérations sont ensuite identiques à celles qui ont été décrites précédemment.

#### 4.2.3 - Résultats des mesures d'activité

Les activités dues à  $C^{14}$  et relatives à ces différents prélèvements sont indiquées dans le tableau VII.

Tableau VII

| Date du prélèvement | Activité globale<br>$Ci/m^3$<br>$C^{14}O + C^{14}O_2$ | Activité<br>$Ci/m^3$<br>$C^{14}O_2$ | Activité<br>$Ci/m^3$<br>$C^{14}O$ | $\frac{C^{14}O}{C^{14}O + C^{14}O_2}$ |
|---------------------|-------------------------------------------------------|-------------------------------------|-----------------------------------|---------------------------------------|
| 13.1.61             | $2,3 \cdot 10^{-9}$                                   | $6 \cdot 10^{-10}$                  | $17 \cdot 10^{-10}$               | 75 %                                  |
| 14.2.61             | $1,4 \cdot 10^{-9}$                                   | $9 \cdot 10^{-10}$                  | $5 \cdot 10^{-10}$                | 35 %                                  |
| 14.2.61<br>direct   |                                                       | $9 \cdot 10^{-10}$                  |                                   |                                       |
| 14.4.61             | $5,3 \cdot 10^{-9}$                                   | $2,6 \cdot 10^{-9}$                 | $2,7 \cdot 10^{-9}$               | 50 %                                  |

La puissance de la pile au cours des trois premiers prélèvements était 2 200 kW. Elle était de 2 600 kW lors du dernier, et l'activité indiquée au tableau VII est l'activité ramenée à 2 200 kW. L'échantillon prélevé directement le 14.2.61 a donné le même résultat que l'échantillon traité au laboratoire.

Il ressort nettement de ces résultats qu'une fraction importante de l'activité est rejetée sous forme d'oxyde de carbone et que la transformation en  $C^{14}O_2$  de  $C^{14}$  formé par la réaction  $N^{14}(n, p)$

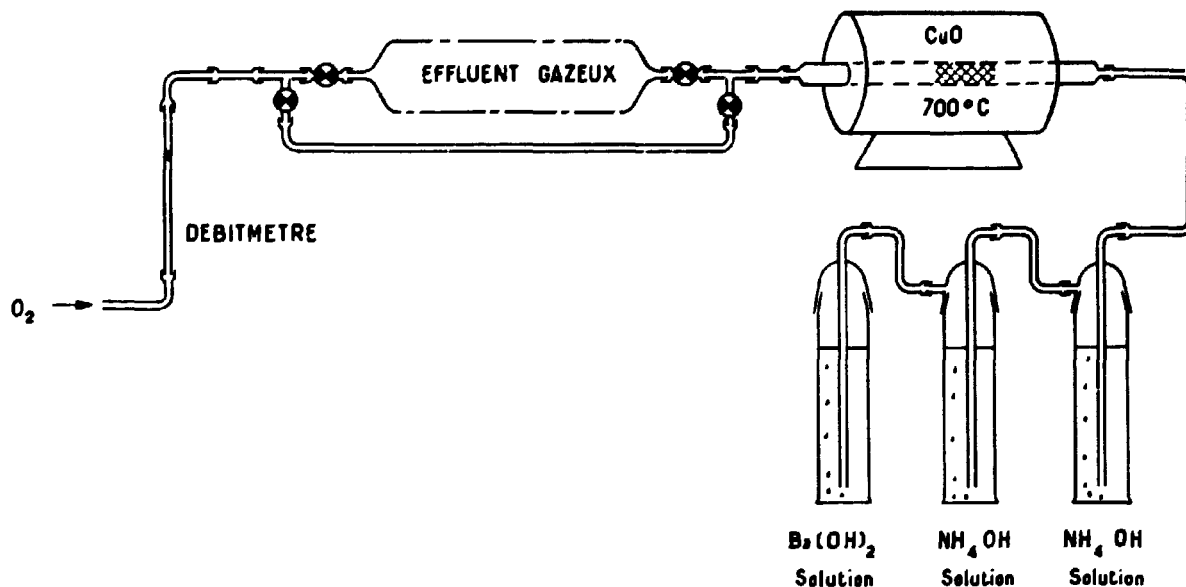


fig. 25 - Séparation du gaz carbonique et de l'oxyde de carbone

$C^{14}$  n'est pas immédiate comme on l'a longtemps supposé dans le cas du radiocarbonate naturel. On doit noter également que la fraction de l'activité présente sous forme de  $C^{14}O$  varie dans des proportions assez importantes, de 35 à 75 %. Il peut y avoir à cela plusieurs raisons : d'après les résultats de Pandow, le rapport  $\frac{C^{14}O}{C^{14}O + C^{14}O_2}$  dans un mélange d'oxygène et d'azote soumis à un flux de neutrons thermiques, peut varier entre 50 et 80 % environ suivant la nature des impuretés contenues dans ce mélange. De plus, le refroidissement secondaire du réacteur est tel qu'il existe dans le graphite des régions où l'air diffuse lentement, les temps d'activation peuvent ainsi varier ; ceci peut également expliquer que l'activité totale ramenée à une même puissance ne soit pas rigoureusement constante.

La dispersion des résultats n'est cependant pas très importante, et les activités mesurées correspondent aux déterminations faites précédemment, qui conduisaient au cours d'un fonctionnement normal aux valeurs de 2 à  $3 \cdot 10^{-9}$  curie/m<sup>3</sup> d'air.

Nous avons jusqu'à présent considéré uniquement le réacteur EL.2, or, si l'on veut étudier la pollution autour du site de Saclay on doit tenir compte également de l'activité rejetée par EL.3.

Les quantités d'argon-41 rejetées par les deux réacteurs étant sensiblement égales (Jehanno 1957 - EL.3 1958) et le temps d'activation, 5 secondes environ, étant très petit devant les périodes de  $A^{41}$  (110 minutes) et de  $C^{14}$ , on peut admettre que les quantités de radiocarbonate rejetées sont également du même ordre.  $A^{41}$  et  $C^{14}$  sont tous deux formés par l'action des neutrons thermiques sur deux éléments présents dans l'air, l'argon-40 et l'azote-14 :

$$\begin{aligned} A_{18}^{40} (n, \gamma) A_{18}^{41} ; \sigma &= 0,6 \cdot 10^{-28} \text{ cm}^2 \\ N_7^{14} (n, p) C_6^{14} ; \sigma &= 1,7 \cdot 10^{-28} \text{ cm}^2 \end{aligned}$$

On obtient ainsi, en tenant compte de l'apport dû à EL.3, une valeur totale du rejet de  $5 \cdot 10^{-9}$  curie/m<sup>3</sup> d'air.

Connaissant approximativement l'intensité de la source, il était important avant d'entreprendre l'étude expérimentale de la pollution autour du site, de procéder à une évaluation de la diffusion du rejet et de la concentration au sol pouvant en résulter.

#### 4. 3 - Examen de la diffusion de $C^{14}$ autour du site

Il est très important pour l'hygiène des populations, maintenant que les sites à réacteurs nucléaires deviennent nombreux, de connaître l'intensité moyenne de la pollution produite à long terme (quelques mois au moins) par ces réacteurs.

Nous avons adopté au cours de cette étude préalable le modèle de diffusion de Sutton, qui est à l'heure actuelle le plus souvent utilisé dans les problèmes de pollution atmosphérique.

#### 4.3.1 - Modèle théorique de diffusion de Sutton

Les phénomènes de diffusion gazeuse dans l'atmosphère sont étroitement liés d'une part aux conditions météorologiques, d'autre part à la topographie du sol : le relief et les constructions avoisinant le point d'émission peuvent constituer des obstacles à l'écoulement, qui, s'ils sont suffisamment élevés, perturberont sensiblement le comportement du panache et pourront provoquer la formation de tourbillons.

Les facteurs météorologiques jouant un rôle essentiel pour la diffusion du rejet sont principalement :

- le gradient de température
- la vitesse du vent
- sa direction

On peut schématiquement distinguer deux régimes principaux :

1° - Le régime turbulent ou régime de convection : sous l'effet de courants ascendants et descendants il se produit une diffusion intense, et des concentrations importantes pourront être atteintes très rapidement au voisinage du sol (figure 26).

2° - Le régime d'inversion de température : l'atmosphère est stable, l'écoulement est de structure laminaire ; l'air sortant de la cheminée se dilue lentement dans l'atmosphère et le nuage, suivant la vitesse du vent, peut alors s'étendre sur des distances de l'ordre du kilomètre.

Le modèle mathématique de Sutton permet, en tenant compte de différents facteurs météorologiques, l'étude approximative de la diffusion d'un rejet dans le cas du régime turbulent. Cette étude en effet ne peut être rigoureuse, car l'application du modèle suppose un relief plat dénué d'obstacles, des conditions météorologiques homogènes dans l'espace et suffisamment constantes, conditions idéales mais pratiquement jamais réalisées.

L'équation simplifiée, permettant de déterminer la concentration de l'activité au voisinage du sol et dans le lit du vent, est la suivante :

$$\chi = \frac{2 Q}{\pi C^2 \bar{u} x^{2-n}} e^{-\frac{h^2}{C^2 x^{2-n}}}$$

$\chi$  est la concentration de l'air, en curie/m<sup>3</sup>, en un point situé à la distance  $x$  (en mètres) du point d'émission,

$Q$  le débit de la source en curie/seconde,

$h$  la hauteur d'émission en mètres,

$\bar{u}$  la vitesse moyenne du vent en mètres/seconde,

$C$  un coefficient de diffusion globale,

$n$  un paramètre lié au gradient de vent et au gradient de température.

La figure 27 montre les distributions calculées de l'activité de l'air au voisinage du sol, en fonction de la distance, pour trois situations météorologiques différentes observées au cours de l'été 1959.

On voit nettement que si l'on veut obtenir une distribution moyenne, portant sur plusieurs semaines par exemple, il sera pratiquement impossible d'effectuer la sommation des différentes courbes de Sutton, l'établissement de chacune d'entre elles supposant connus au préalable les différents paramètres météorologiques nécessaires.

L'application de ce modèle présente également un autre inconvénient : on ne peut en effet prévoir les contaminations éventuelles se produisant par vent nul ou très faible. Or dans ces conditions, la concentration dans l'air au-dessus de la cheminée devient énorme :

$$\frac{k}{\bar{u}} \longrightarrow \infty \text{ si } \bar{u} \longrightarrow 0$$

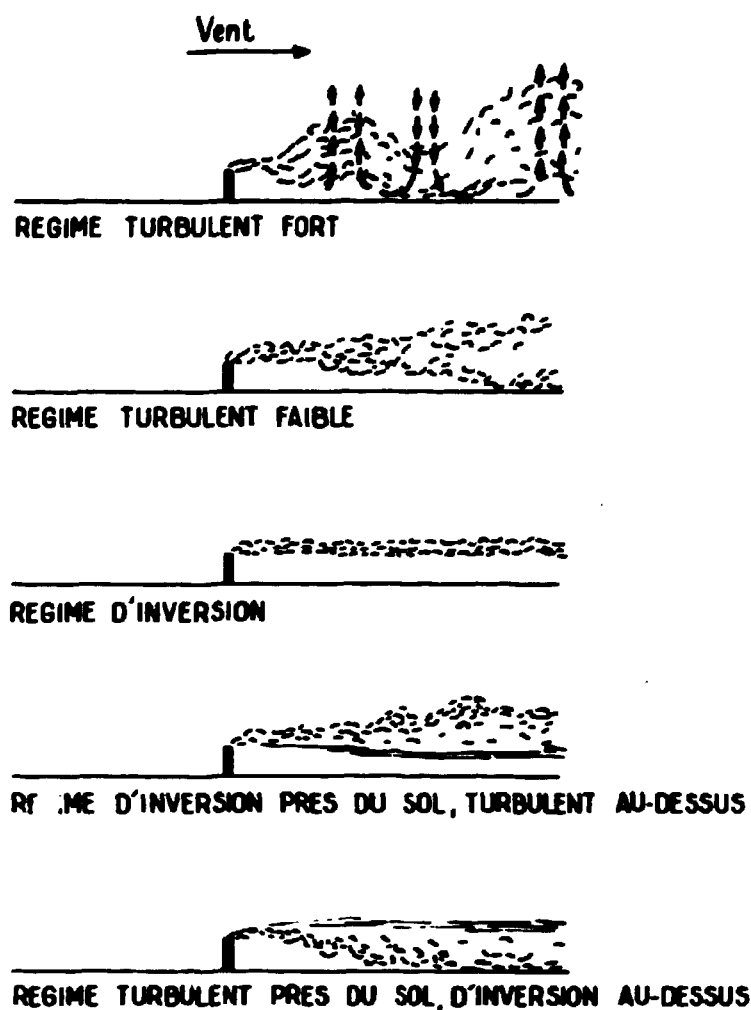


fig. 26 - Influence des conditions météorologiques sur le comportement des panaches

("∞" étant la concentration dans l'air de la cheminée) ; selon la situation météorologique, par exemple en régime de forte turbulence, le nuage à haute concentration peut couler vers le sol, et il peut y avoir risque de contamination importante au voisinage même de la source : en particulier les végétaux assimileront alors du  $\text{CO}_2$  fortement enrichi en  $\text{C}^{14}\text{O}_2$ .

C'est pourquoi, la méthode de la mesure du marquage des végétaux par le carbone-14, qui intègre les effets ci-dessus pendant plusieurs mois, nous a paru susceptible de fournir des résultats valables : on peut remarquer que  $\text{C}^{14}$  est plus approprié que les autres nuclides pour déduire de façon expérimentale cette pollution à long terme.

Si on consulte le tableau VIII, on verra en effet que les autres nuclides susceptibles d'être rejetés en permanence par une pile ont des périodes trop courtes (produits de fission) ou sont gazeux ( $\text{A}^{21}$ ).

#### 4.3.2 - Evaluation de la pollution autour du site

La mesure de cette pollution étant faite à partir de végétaux, on a examiné la répartition directionnelle des vents sur le site de Saclay, au cours de la période Mai à Septembre, période pendant laquelle la fonction chlorophyllienne est intense. La synthèse des substances organiques con-

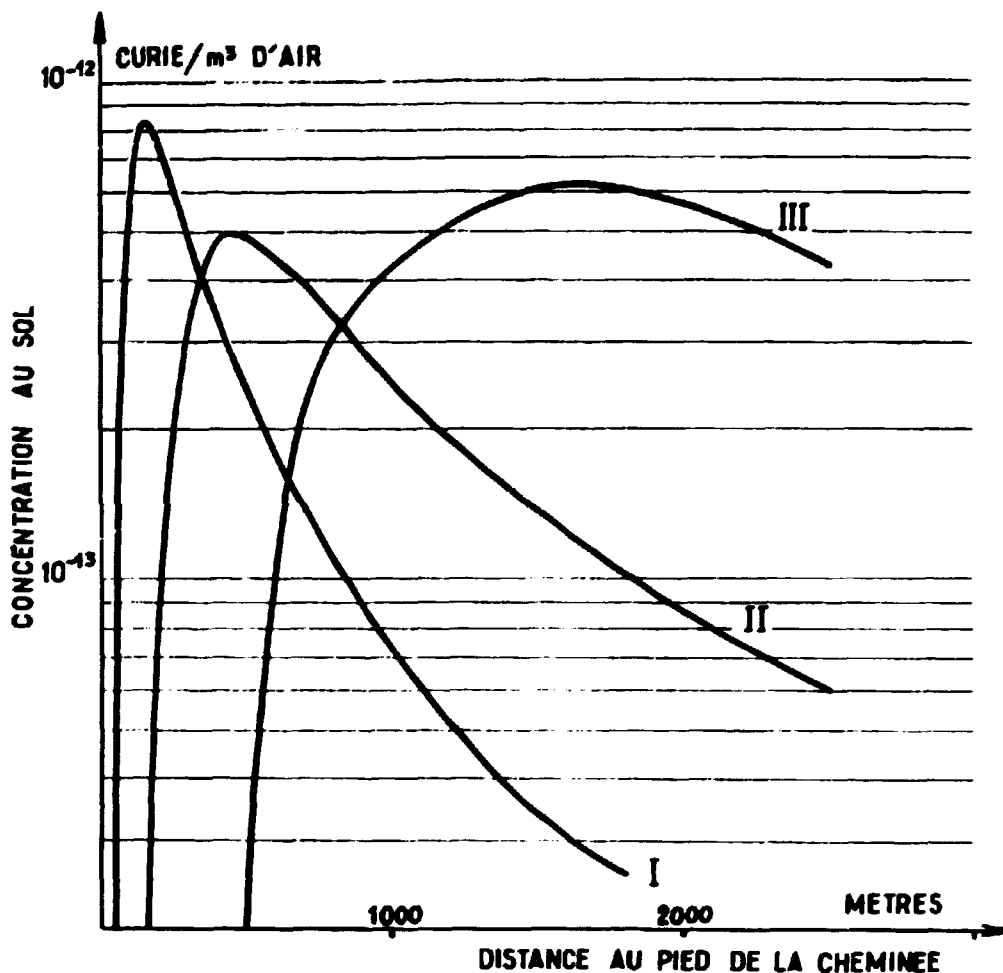


fig. 27 - Distribution de l'activité au sol d'après la formule de Sutton  
(Pour  $Q = 10^{-8}$  Ci/s. -  $h = 30$  m) ; I - Gradient thermique :  $-1^{\circ}$  C/100 m, Vitesse du vent : 3 m/s ; II - Gradient thermique :  $-0,5^{\circ}$  C/100 m, Vitesse du vent : 5 m/s ; III - Gradient thermique :  $+1,5^{\circ}$  C/100 m Vitesse du vent : 4 m/s

tenues dans les feuilles se fait alors directement à partir du gaz carbonique contenu dans l'air environnant.

Au cours de l'été 1959 (correspondant à la période des prélèvements), une direction préférentielle - vents du Nord-Est - apparaît nettement.

On a ensuite cherché, à l'aide du modèle de Sutton, à délimiter grossièrement la région où l'activité des végétaux due au carbone-14 pourrait présenter un net accroissement. N'ayant pas au cours de cette étude préliminaire de données météorologiques suffisantes on a choisi pour la détermination des paramètres  $C$ ,  $n$  et  $\bar{u}$  une situation moyenne :

$$\begin{aligned} n &= 0,25 \\ C &= 0,10 \\ \bar{u} &= 2 \text{ m/s} \\ h &= 30 \text{ m} \\ Q &= 3 \cdot 10^{-8} \text{ Ci/s } (1) \end{aligned}$$

(1) Valeur déduite des résultats expérimentaux.

Tableau VIII

| Nuclides                                             | Période               | Observations                                                         |
|------------------------------------------------------|-----------------------|----------------------------------------------------------------------|
| Produits de fission <sup>(1)</sup><br>en particulier |                       |                                                                      |
| Kr <sup>85</sup>                                     | 10,4 a                | Gaz rare                                                             |
| I <sup>131</sup>                                     | 8 j                   | } Dépôt à période<br>courte                                          |
| I <sup>132</sup>                                     | 2,3 h                 |                                                                      |
| I <sup>133</sup>                                     | 21 h                  |                                                                      |
| I <sup>135</sup>                                     | 6,7 h                 |                                                                      |
| Xe <sup>133</sup>                                    | 5,27 j                | Gaz rare                                                             |
| Xe <sup>135</sup>                                    | 9,2 h                 | Gaz rare                                                             |
| C <sup>14</sup>                                      | 5,7.10 <sup>3</sup> a | Absorbé par les plantes sous forme de C <sup>14</sup> O <sub>2</sub> |
| O <sup>19</sup>                                      | 29,4 s                | Période trop courte                                                  |
| A <sup>41</sup>                                      | 1,83 h                | Gaz rare                                                             |

(1) Il y a souvent des traces d'uranium présentes dans les circuits de refroidissement, il en résulte que des produits de fissions sont rejetés. Seuls les produits gazeux passent à travers les filtres. Ils peuvent, au dehors, redonner des descendants solides, encore radioactifs.

On obtient ainsi les valeurs suivantes correspondant d'une part à la concentration maximale d'activité, d'autre part à la distance à laquelle ce maximum peut être détecté (figure 28) :

$$\chi_{\text{max}} = \frac{2 Q}{e \pi \bar{u} h^2}$$

$$\chi_{\text{max}} = 4 \cdot 10^{-12} \text{ Ci/m}^3 \text{ d'air}$$

$$x_{\text{max}} = \left[ \frac{h}{C} \right]^{\frac{2}{2-n}}$$

$$x_{\text{max}} = 700 \text{ mètres}$$

La concentration naturelle de C<sup>14</sup> dans l'air étant 10<sup>-12</sup> Ci/m<sup>3</sup>, il est donc possible que dans les régions les plus polluées, l'activité du carbone contenu dans les végétaux soit environ 5 fois plus élevée que l'activité normale.

Il est à noter que dans ce calcul on a négligé la hauteur du panache au-dessus de la cheminée : en effet la hauteur de l'émission n'est pas égale à la hauteur de la cheminée par suite de la température et de la vitesse de sortie de l'effluent gazeux.

#### 4. 4 - Mesure de la pollution des végétaux autour de Saclay

Tenant compte des conclusions indiquées au paragraphe précédent, on a effectué au cours de l'automne 1959 un certain nombre de prélèvements de végétaux aux alentours du Centre de Saclay afin de déterminer la pollution éventuelle par C<sup>14</sup> provenant des réacteurs.

Les mesures relatives à ces prélèvements permettent de connaître l'activité moyenne du CO<sub>2</sub> atmosphérique qui a régné au voisinage du sol durant la période de Mai à Septembre. Elles consistent à comparer l'activité spécifique du carbone contenu dans les végétaux prélevés au voisinage des réacteurs à l'activité moyenne correspondante des végétaux de même nature prélevés également en 1959 en des lieux éloignés de tout centre atomique et de tout centre industriel. Il faut noter en

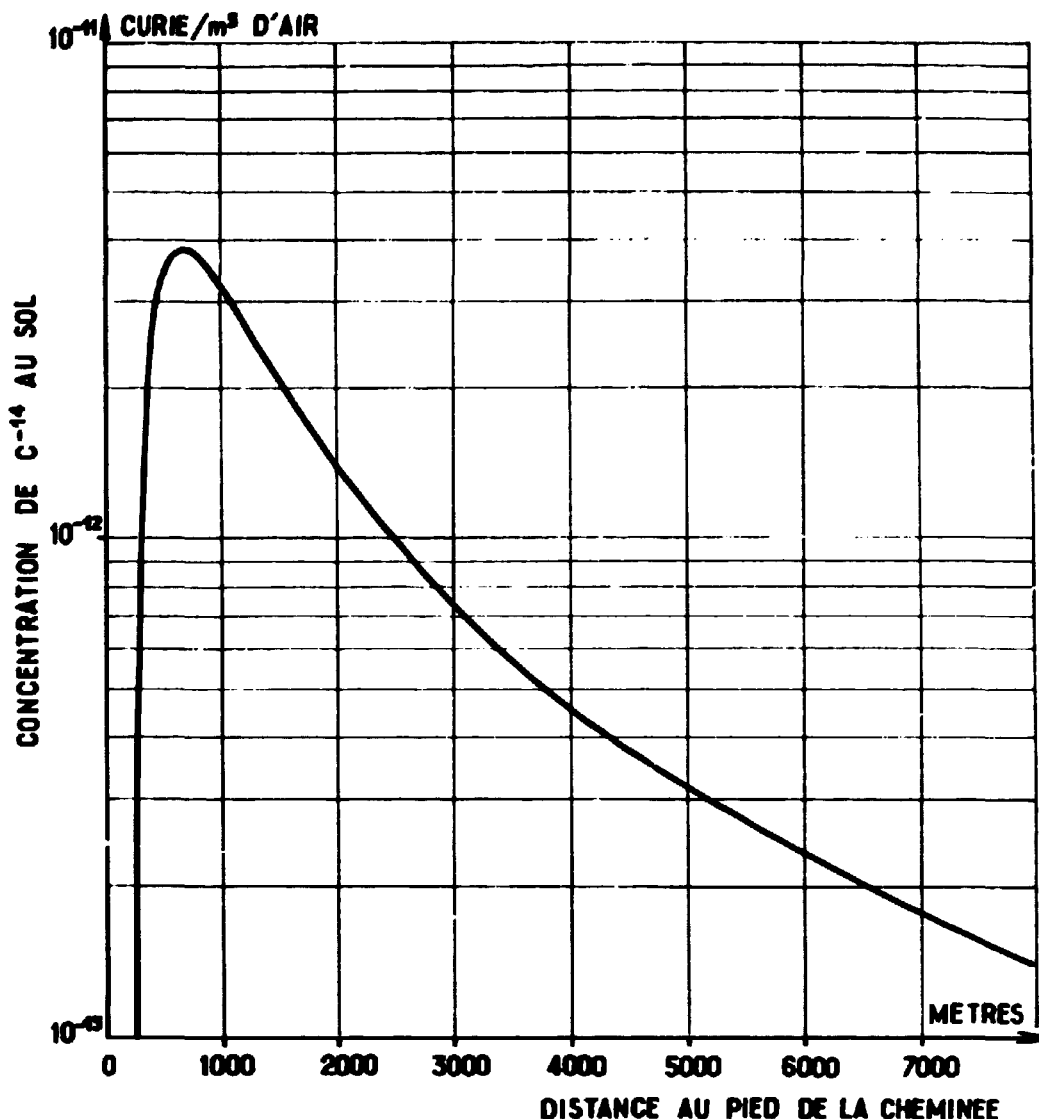


fig. 28 - Distribution - calculée d'après le modèle de Sutton - de l'activité de  $C^{14}$ , au voisinage du sol et dans le lit du vent. (Région Sud-Ouest du Centre de Saclay)  
 $Q = 3.10^{-6}$  Ci/s ;  $h = 30$  m ;  $C = 0,10$  ;  $n = 0,25$  ;  $u = 2$  m/s

effet que l'activité générale en 1959 est déjà notablement élevée par suite des précédentes explosions atomiques : l'augmentation moyenne en France est de l'ordre de 20 %.

#### 4.4.1 - Traitement des échantillons

Les points de prélèvements autour des réacteurs EL.2 et EL.3 sont répartis dans toutes les directions, les points les plus éloignés se trouvant à une distance de 4 km environ. Les échantillons choisis en fonction de la végétation locale proviennent en majeure partie de chênes<sup>(1)</sup> ainsi que l'échantillon de référence, cependant on a effectué quelques mesures sur des prélèvements d'armoise<sup>(2)</sup> en particulier à l'intérieur même du Centre.

Les échantillons servant de référence pour cette période ont été prélevés au Nord-Est de Montauban (44° 11' N - 1° 37' E), en Novembre 1959.

L'échantillon composé uniquement de feuilles est d'abord lavé en solution chlorhydrique faiblement acide afin d'éliminer un dépôt radioactif éventuel. Il est ensuite rincé à l'eau distillée et séché.

(1) Quercus

(2) Artémisia

La combustion s'effectue sous courant d'oxygène dans un tube de silice ; un four à oxyde de cuivre permet de transformer en gaz carbonique, l'oxyde de carbone qui pourrait être produit au cours de cette combustion. Le gaz carbonique est ensuite recueilli sous forme de carbonate de baryum.

Les mesures sont effectuées à l'aide du compteur proportionnel à remplissage de  $\text{CO}_2$ , déjà mentionné.

#### 4.4.2 - Résultats des mesures d'activité des végétaux

L'activité de référence, activité spécifique moyenne en France du carbone des végétaux, correspond exactement aux valeurs trouvées sur les échantillons prélevés hors de la zone d'influence des réacteurs de Saclay.

Les résultats bruts obtenus à l'aide du compteur proportionnel utilisé sont les suivants :

Carbone inerte :  $4,86 \pm 0,08$  impulsions/minute

Carbone 1959 de référence :  $11,97 \pm 0,12$  impulsions/minute

On admet que des activités spécifiques correspondant à des taux de comptage de  $11,97 \pm 0,24$  impulsions/minute sont des activités normales.

La durée des mesures est de 15 ou 24 heures, et deux mesures au minimum sont effectuées sur chacun des échantillons.

Les figures 29 et 30 montrent respectivement les résultats obtenus :

- aux environs immédiats du Centre, à partir d'échantillons de chênes,
- à l'intérieur même du Centre, à partir d'échantillons d'armoise.

Par suite de la nature différente des végétaux échantillonnés, la comparaison pouvant être sujette à caution, chacune de ces deux régions est examinée séparément.

a) Dans la région extérieure au Centre, il apparaît nettement une zone d'activité plus intense qui correspond comme prévu à la prédominance des vents de Nord-Est au cours de l'été 1959.

L'accroissement le plus important, 120 % au-dessus de la teneur normale, est détecté à une distance de 2 km environ des cheminées suivant la direction O.S.O.

La perturbation apportée par les réacteurs décroît rapidement avec la distance, et au-delà de 4 km environ, elle n'est guère plus détectée.

b) D'après les résultats indiqués figure 30 et qui concernent le site lui-même, on voit que l'augmentation maximale se situe dans cette région à proximité immédiate de la cheminée du réacteur EL.2 et atteint alors 150 %.

La valeur moyenne de l'accroissement est de 60 % environ dans la proche région O.S.O., et décroît ensuite en fonction de la distance.

#### 4. 5 - Discussion des résultats

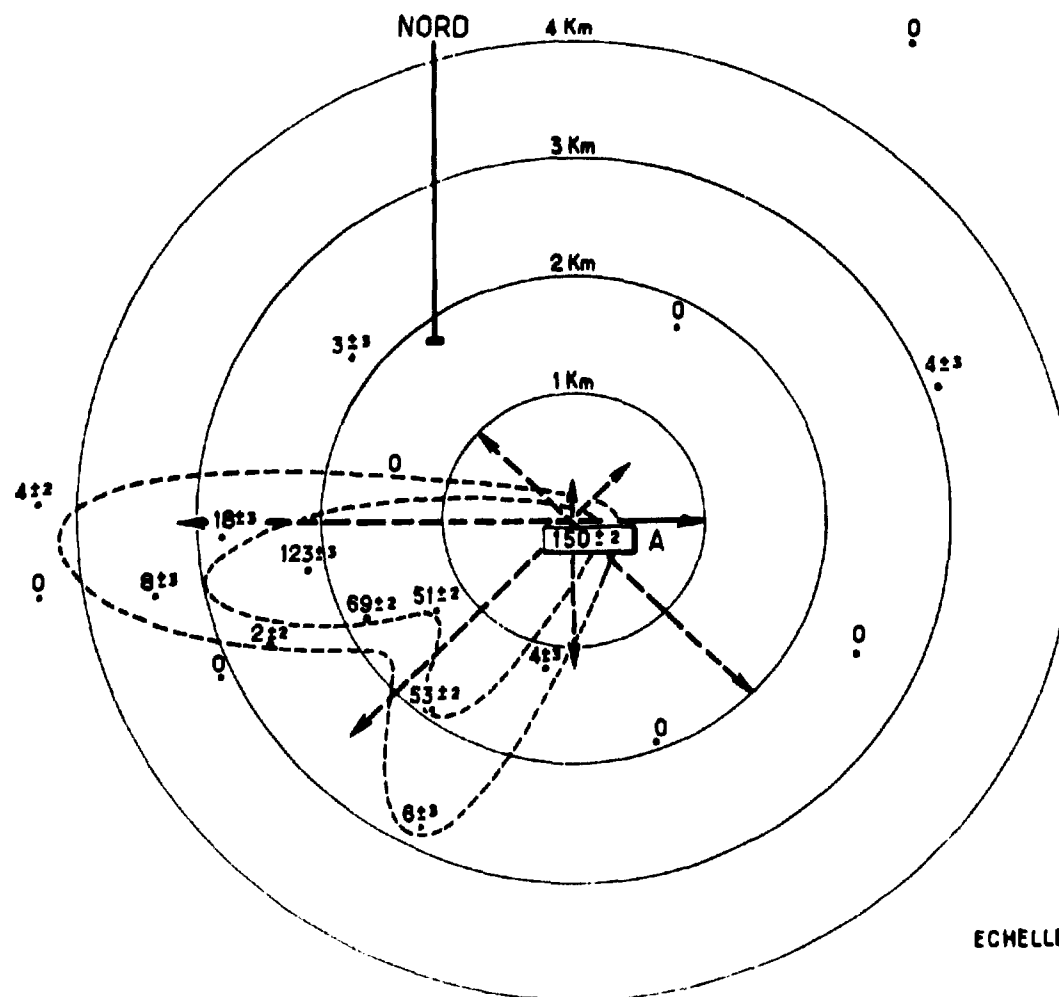
Si nous reprenons les valeurs déterminées au paragraphe 4.3.2, à l'aide du modèle de Sutton, la concentration maximale que l'on devrait détecter au voisinage du sol et dans le lit du vent est  $4.10^{-12}$  curie/ $\text{m}^3$  d'air correspondant à une émission de  $3.10^8$  Ci/s.

Cette valeur est probablement inférieure à la valeur réelle puisqu'elle est indépendante des rejets effectués pendant la période considérée, qui pour EL.2 par exemple représentent une activité totale de  $4.10^{-2}$  Ci environ, c'est-à-dire l'activité relachée au cours d'un mois de fonctionnement normal.

D'après les résultats expérimentaux indiqués figure 29, concernant les environs du Centre, à l'exception du site lui-même, l'accroissement maximal que nous ayons détecté est de 120 % au-dessus de la teneur moyenne en 1959, elle-même supérieure de 20 % à la teneur normale moyenne de l'époque pré-atomique, qui était  $1.10^{-12}$  Ci/ $\text{m}^3$ . L'activité des végétaux étant sensiblement égale à l'activité du  $\text{CO}_2$  atmosphérique (paragraphe 1.3), l'augmentation de 120 % correspond à une activité supplémentaire de l'air de  $1,4.10^{-12}$  Ci/ $\text{m}^3$ .

Si l'on tient compte des conditions suivantes relatives à la période du 15 Mai au 31 Août :

- le temps de fonctionnement diurne des réacteurs EL.2 et EL.3 représente en moyenne une fraction égale à 55/100 de la durée diurne totale,



**SACLAY**  
 Feuilles de chêne Oct. 59  
 Vents: du 16 Juin au 15 Sept. 59  
 ~ 3 à 5 m/sec sur N.E.

ECHELLE: 1/40.000

fig. 29 - Augmentation d'activité spécifique du carbone des végétaux en % autour de Saclay

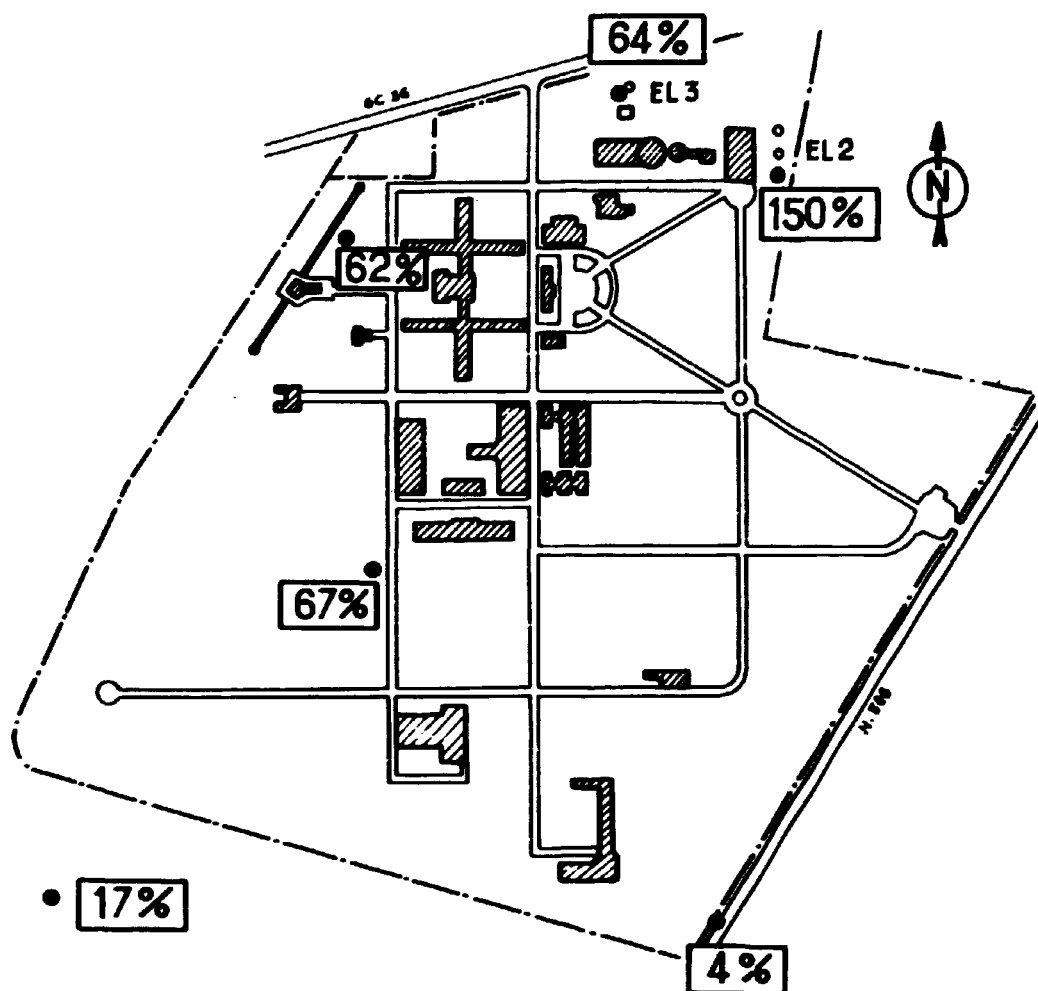


fig. 30 - Accroissement de l'activité spécifique du carbone des végétaux, à l'intérieur du centre de Saclay (armoise Oct. 1959)

- au cours de ce fonctionnement une étude sommaire du régime des vents sur le site de Saclay montre que les vents du Nord-Est (secteur de 60°) ont dominé pendant 40 % du temps.

La valeur expérimentale  $1,4 \cdot 10^{-12}$  Ci/m<sup>3</sup> bien qu'elle semble élevée n'est pas incompatible avec la valeur théorique :  $4 \cdot 10^{-12}$  Ci/m<sup>3</sup> relative à un fonctionnement continu, une direction de vent unique, une assimilation permanente du gaz carbonique par les végétaux.

Cette concentration maximale est détectée à une distance de 2 km du point d'émission et non de 700 m comme le laissait prévoir le calcul. Cette divergence est explicable, étant donné que les paramètres d'ordre météorologique C, n et  $\bar{u}$  (4.3.2) ont été choisis de façon arbitraire et que la situation réelle est extrêmement complexe.

Par contre la répartition expérimentale est en net désaccord avec la répartition déterminée à l'aide du modèle de Sutton, si l'on tient compte des valeurs obtenues à l'intérieur du site (figure 30). D'après la répartition théorique, l'activité serait très faible au pied de la cheminée, croîtrait rapidement jusqu'à une valeur maximale à une distance de l'ordre de quelques centaines de mètres environ, puis diminuerait ensuite lentement.

En réalité, la concentration maximale se situe aux abords immédiats de la cheminée du réacteur EL.2 où l'augmentation atteint 150 %.

On peut, afin de tenter d'expliquer ce dernier point, émettre une première hypothèse : par vent nul ou très faible, ce qui fut le cas fréquemment durant l'été 1959<sup>(1)</sup>, les concentrations atteintes au voisinage du sol si l'on considère qu'elles sont inversement proportionnelles à la vitesse du vent, peuvent devenir très importantes. La distribution des effluents est alors difficile à prévoir et il peut se produire de fortes contaminations à proximité même du point d'émission. En admettant que ce phénomène soit intermittent et de courte durée, il peut être susceptible de modifier la distribution calculée a priori selon la méthode de Sutton où l'on ne tient pas compte en général des vents nuls ou quasi-nuls.

Une seconde hypothèse peut être émise conjointement à la première : comme nous l'avons vu, l'application du modèle théorique suppose une situation idéale, un sol plat et dénué d'obstacles, ce qui n'est pas le cas à Saclay. Les constructions avoisinant les cheminées des réacteurs EL.2 et EL.3 forment des obstacles qui peuvent perturber sensiblement le panache, produire des rabattements vers le sol si la vitesse du vent est élevée, provoquer des accumulations, et ces différents phénomènes peuvent également conduire à des concentrations plus importantes qu'il n'était prévu au voisinage des réacteurs.

Nous devons signaler que l'étude expérimentale de Olson (1961) portant sur la contamination des environs du Centre d'Oak Ridge à l'aide de  $I^{131}$  conduit à une conclusion identique, les activités les plus élevées étant détectées à proximité immédiate des points d'émission.  $I^{131}$  a une période de 8 jours et les mesures sont effectuées à l'aide des dépôts de cet isotope sur la végétation environnante.

Les résultats que nous avons obtenus à Saclay montrent que les activités dues à  $C^{14}$ , détectées au voisinage du sol sont faibles, puisque la concentration maximale admissible dans l'air est  $10^{-6}$  Ci/m<sup>3</sup> ; cependant les conclusions que l'on peut déduire de ces résultats sont également valables pour tous les gaz radioactifs, en particulier pour  $A^{21}$  qui est produit en quantités plus importantes : la concentration de cet isotope dans l'atmosphère de la cheminée du réacteur EL.2 est  $1,8 \cdot 10^{-8}$  Ci/m<sup>3</sup>.

En résumé, les résultats de cette étude tendent à montrer que le modèle de Sutton qui peut s'appliquer dans des conditions atmosphériques bien définies, pour des intervalles de temps relativement courts, est d'une utilisation plus délicate lorsqu'il s'agit de déterminer une répartition intégrée sur plusieurs mois. Ce modèle paraît ainsi plus approprié au cas de rejets volontaires et brutaux des effluents, rejets qui sont en général de courte durée, qu'au cas du fonctionnement continu des réacteurs.

A cet égard,  $C^{14}$  semble un traceur particulièrement adapté à l'étude de la contamination d'un site, lorsque cette contamination provient de réacteurs refroidis à l'air.

-----  
(1) cf. "Résumé mensuel du temps en France" - Direction de la Météorologie Nationale



## V - CONCLUSION

Le carbone 14 naturel, présent dans l'atmosphère sous forme de composé gazeux -  $C^{14}O_2$  - semble un nuclide particulièrement bien approprié au domaine des recherches géophysiques.

Sa concentration dans le carbone ordinaire est très faible,  $6.10^{-12}$  Ci/g, et la mesure des te-neurs naturelles et de leurs fluctuations est un problème délicat. Ceci nous a conduit à étudier plus spécialement une méthode de détection à grande sensibilité supérieure à celle des méthodes utilisées pour le datage archéologique. Cette méthode est décrite dans la première partie de ce travail.

Le dispositif utilisé comprend un scintillateur liquide et un seul photomultiplicateur sélectionné fonctionnant à la température ambiante. Le principal avantage de cette méthode est la possibilité d'incorporer au scintillateur des quantités de carbone importantes, pouvant aller jusqu'à 8 g/10 cm<sup>3</sup>. La comparaison des résultats obtenus avec ceux des différentes méthodes actuellement connues, montre que celle-ci se classe parmi les plus sensibles.

L'utilisation du paralaldéhyde en tant que composé carboné introduit dans un scintillateur de 20 cm<sup>3</sup>, permet de détecter des activités spécifiques égales à  $3.10^{-14}$  Ci/g de carbone, correspondant à une limite de "datage" de 45 000 ans (La durée de la mesure est 24 heures, la limite de détec-tion :  $2\sigma$ ). Le benzène jouant simultanément le rôle de solvant et de composé marqué permet, avec un volume de détection de 10 cm<sup>3</sup>, d'obtenir des résultats sensiblement identiques.

Si jusqu'en 1950, les fluctuations de l'activité naturelle du carbone restent faibles, de l'ordre de 2 à 3 %, depuis cette date au contraire, cette activité subit des modifications importantes pro-voquées, soit par les explosions nucléaires - elles s'étendent alors à l'échelle du globe - soit par le développement des industries nucléaires - auquel cas, ces modifications restent localisées aux alentours des sites de ces industries.

Nous avons tenté dans les deuxième et troisième parties de ce travail de montrer l'intérêt que présente l'étude de cette double pollution par le radioc carbone d'origine artificielle pour résoudre des problèmes de circulation et de diffusion atmosphérique.

Nous avons étudié l'évolution en France de l'activité spécifique du carbone de la troposphère et de la biosphère, due aux essais d'armes nucléaires : l'accroissement de cette activité se pour-suit régulièrement de 1954 jusqu'en 1960 ; il atteint en Octobre 1960 une valeur égale à 42 % de l'activité pré-atomique. A partir de 1960, les essais ayant momentanément cessé depuis Décembre 1958, l'activité décroît et passe par un minimum au cours de l'été 1961. On observe ensuite une nouvelle augmentation provoquée par les nouvelles séries d'explosions de grande puissance qui se succèdent depuis le 1<sup>er</sup> Septembre 1961.

En Novembre 1962, l'accroissement est 60 %, correspondant à un apport total de 500 kg en-viron de C-14 dans l'atmosphère terrestre. Or, la puissance libérée par les explosions jusqu'à cette date est équivalente à 440 mégatonnes de TNT et l'on peut supposer que la quantité totale de C-14 injectée dans l'atmosphère est de l'ordre de 1 800 kg. On en déduit qu'une fraction importante reste ainsi stockée dans la stratosphère.

On voit, en outre, que la notion "d'activité spécifique du carbone moderne" n'a plus aucun sens à l'heure actuelle : elle varie de façon mesurable d'un mois à l'autre. Remarquons que la poursuite de l'étude des modifications de l'activité du carbone à la surface de la terre devrait permettre de préciser les hypothèses actuelles concernant les mécanismes et les vitesses d'échange du carbone entre la stratosphère et la troposphère, entre la troposphère et les océans. En outre, la compa-raison entre les mesures effectuées par les différents laboratoires, mesures correspondant à des prélèvements largement dispersés à la surface du globe, pourra fournir, lorsque les résultats seront suffisamment nombreux, des renseignements intéressants concernant les mouvements de l'atmosphère.

Par ailleurs, nous avons étudié l'accroissement local de l'activité du carbone de l'air au voisinage d'un site où se trouvaient des réacteurs nucléaires (Les réacteurs EL. 2 et EL. 3).

Cette étude a été menée en mesurant l'accroissement de la teneur des végétaux en carbone-14, à différentes distances du site.

Parmi les différents nuclides rejetés par les cheminées des réacteurs, le carbone 14 en effet, en raison de son assimilation par les végétaux sous forme de  $\text{CO}_2$ , est un traceur intéressant permettant de déterminer expérimentalement la répartition de la pollution, intégrée pendant le printemps et l'été, qui correspondent à la période d'assimilation chlorophyllienne des végétaux.

Les résultats obtenus montrent qu'à un rejet continu de  $3 \cdot 10^{-8}$  Ci/s correspond au voisinage du sol une activité maximale de l'ordre de  $10^{-12}$  Ci/m<sup>3</sup> d'air.

La zone de perturbation se trouve sous la direction préférentielle des vents pendant la période considérée et s'étend jusqu'à une distance de 4 km environ du point d'émission. L'accroissement maximum contrairement à la répartition prévue par l'application de la loi de Sutton habituellement utilisée pour ce genre de prévisions, est détecté à proximité même de la cheminée du réacteur EL.2. Ceci peut s'interpréter si l'on considère que les concentrations au sol sont inversement proportionnelles à la vitesse du vent : il en résulte que par vent nul ou quasi-nul des concentrations très fortes peuvent se produire au voisinage des réacteurs modifiant ainsi, même si cette situation est peu fréquente la distribution calculée à priori selon la méthode de Sutton où l'on ne tient pas compte des vents nuls ou très faibles.

La méthode d'analyse de la concentration de végétaux en carbone 14 semble donc donner une représentation plus réelle de la pollution d'un site nucléaire et des risques éventuels de contamination auxquels sont exposés ceux qui y vivent.

## BIBLIOGRAPHIE

- ANDERSON E.C., LIBBY W.F. - (1951) *Physical Review*. 81, 64
- ARNOLD J.R. - (1954) *Science* 119, 155
- ARNOLD J.R., ANDERSON E.C. - (1957) *Tellus* IX, 1, 28
- ARNOLD J.R. - (1960) American Geophysical Union Meeting - Washington
- AUDRIC B.N., LONG J.V.P. - (1954) Radioisotopes Conference. Oxford Physics and Industrial Applications, 134
- BARENDSEN G.W. - (1957) *R.S.I.* 28, 6, 430
- BIBRON R. - (1959) *L'onde Electrique*, 382, 40
- BIBRON R. - Communication personnelle
- BOLIN B., ERIKSSON E. - (1959) The Rossby Memorial Volume (130-142) The Rockefeller Institute Press N.Y.
- BOWEN E.J. - (1953) *Fluorescence of Solutions*. Longmans Grenn et Cie, Londres
- BRANNON H.R. - et al. (1957) *Trans. Am. Geophys. Union*. 38, 643
- BROECKER W.S., WALTON A. - (1959) *Science* 130, 309
- BROECKER W.S., OLSON E.A. - (1960) *Science* 131, 712
- CRAIG H. - (1957) *Tellus* IX, 1, 1
- DIETHORN W. - (1956) Thèse NYO. 6628
- DOUGLAS D.L. - (1952) *Gen. Elec. Rev.* 55, 16
- La Pile EL.3 - (1958) C.E.A. Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay
- FERGUSON G.J. - (1955) *Nucleonics* 13, 1, 18
- FÜRST M., KALLMANN H. - (1955) *Phys. Rev.* 97, 3, 583
- GODWIN H., WILLIS E.H. - (1961) *Radiocarbon* 3, 77
- HAGEMANN F. - et al. (1959) *Science* 130, 542
- HASP (1961) DASA 1300 - 5, 165
- HAYES F.N. - et al. (1955) International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy Report - (1955) *Nucleonics* 13, 12, 38 - (1955) *Nucleonics* 14, 1, 42
- JEHANNO C., LALLEMANT C. - (1957) "Mesures de l'Argon 41 rejeté par la cheminée de P.2." Rapport S.E.P. (C.E.A.)
- KIGOSHI K. - (1960) A/AC. 82/G/L.391 (O.N.U.)
- LABEYRIE J. - (1955) *L'Onde Electrique*, XXXV, 344, 1085
- LATTER A.L., PLESSET M.S. - (1960) *Proc. Nat. Acad. Sci.* 46, 232
- LEGER C., PICHAT L. - (1957) *C.R. Acad. Sci.* 244, 190
- LEIPUNSKY O.I. - (1957) *Atomnaya Energiia* 3, 530
- LIBBY W.F. - (1955) *Radiocarbon Dating* - The University of Chicago Press - (1961) *Science* 139, 621

Mc CALLUM K.J., WITTENBERG J. - (1962) Radiocarbon 4, 71  
 OLSON J.S. - (1961) O.R.N.L. 3181  
 O.N.U. - (1960) Rapport A/AC.82/R.105  
 PANDOW M., Mac KAY C., WOLFGANG R. - (1960) J. of Inorg. and Nucl. Chemistry 14, 3/4, 153  
 PERQUIS M.T., DELIBRIAS G., DAVID B. (1956), BIST - 11 (C.E.N. Saclay)  
 PICHAT L., CLEMENT J., BARET C. - (1959) Bull. Soc. Chim. de France, 329  
 PRINGLE R.W. - et al. (1955) R.S.I. 26, 9, 859  
 RAFTER T.A. - (1955) N.Z.J. Sci. Tech. B.37,20  
 RAFTER T.A., FERGUSSON G.J. - (1957) N.Z.J. Sci. Tech. B 38, 8, 872  
 REINE P. - (1962) Conférence Société de radioprotection (6-7 Déc. 1962)  
 REVELLE R., SUESS H.E. - (1957) Tellus 9, 18  
 SUESS H.E. - (1955) Science 122, 415  
 SUTTON O.G. - (1947) Quart. J. Roy. Meteorol. Soc. 73, 426  
 TAMERS M.A. - (1960) Science 132, 3428, 668  
 TAUBER H. - (1960) Conference on the use of radioisotopes in the physical Sciences and Industry -  
 Copenhagen (Septembre 1960)  
 TAYLOR C.J. - et al (1951) Phys. Rev. 84, 5, 1034  
 WILLIS E.H., TAUBER H., MUNNICH K.O. - (1960) Radiocarbon Suppl. 2.  
 WILLIS E.H. - (1960) Nature 185, 552

## TABLE DES MATIÈRES

|                                                                                                                                                 | Pages         |
|-------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|---------------|
| <b>I - INTRODUCTION.....</b>                                                                                                                    | <b>7</b>      |
| 1. 1 - Isotopes du carbone.....                                                                                                                 | 7             |
| 1. 2 - Formation de C <sup>14</sup> naturel.....                                                                                                | 8             |
| 1. 3 - Activité spécifique du carbone.....                                                                                                      | 10            |
| 1. 4 - Application à la détermination d'âge.....                                                                                                | 10            |
| <br><b>II - DEVELOPPEMENT D'UNE METHODE UTILISANT UN SCINTILLATEUR LIQUIDE POUR LA MESURE DE TRES FAIBLES CONCENTRATIONS DE CARBONE-14.....</b> | <br><b>13</b> |
| 2. 1 - Principales méthodes utilisées.....                                                                                                      | 13            |
| 2.1.1 - Méthodes utilisant le carbone sous forme de composé gazeux dans un compteur proportionnel.....                                          | 13            |
| 2.1.2 - Méthodes utilisant le carbone incorporé dans un scintillateur liquide.....                                                              | 13            |
| 2. 2 - Etude de la nouvelle méthode.....                                                                                                        | 15            |
| 2.2.1 - Description de l'ensemble.....                                                                                                          | 15            |
| 2.2.2 - Bruit de fond.....                                                                                                                      | 15            |
| 1 - Photomultiplicateur.....                                                                                                                    | 16            |
| 2 - Influence du rayonnement extérieur.....                                                                                                     | 17            |
| 3 - Radioactivité naturelle des matériaux à l'intérieur du système de détection.....                                                            | 18            |
| 2.2.3 - Rendement de détection.....                                                                                                             | 19            |
| 1 - Scintillateur au paraldéhyde.....                                                                                                           | 23            |
| a) caractéristiques du scintillateur.....                                                                                                       | 23            |
| b) amélioration du rendement optique.....                                                                                                       | 26            |
| 2 - Scintillateur au benzène.....                                                                                                               | 27            |
| 2.2.4 - Synthèse des composés carbonés.....                                                                                                     | 27            |
| 1 - Paraldéhyde.....                                                                                                                            | 27            |
| 2 - Benzène.....                                                                                                                                | 29            |
| 2. 3 - Résultats des mesures.....                                                                                                               | 30            |
| 2.3.1 - Conditions de fonctionnement.....                                                                                                       | 30            |
| 2.3.2 - Précision des mesures.....                                                                                                              | 31            |
| 2.3.3 - Résultats obtenus.....                                                                                                                  | 33            |
| 2. 4 - Détermination de la valeur absolue de l'activité spécifique du carbone contemporain.....                                                 | 33            |

|                                                                                                                         | Pages |
|-------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-------|
| III - VARIATIONS RECENTES DE L'ACTIVITE SPECIFIQUE DU CARBONE.....                                                      | 37    |
| 3. 1 - "Effet Suess" : diminution de l'activité due au CO <sub>2</sub> rejeté par les combustions                       | 37    |
| 3. 2 - Augmentation de l'activité due aux essais d'armes nucléaires.....                                                | 37    |
| 3.2.1 - Formation de C <sup>14</sup> artificiel.....                                                                    | 37    |
| 3.2.2 - Distribution de C <sup>14</sup> artificiel.....                                                                 | 38    |
| 3.2.3 - Observations expérimentales.....                                                                                | 42    |
| IV - ETUDE D'UNE VARIATION LOCALE DE L'ACTIVITE SPECIFIQUE : POLLUTION DES<br>VEGETAUX AUTOUR D'UN CENTRE ATOMIQUE..... | 47    |
| 4. 1 - Formation de C <sup>14</sup> dans les effluents gazeux.....                                                      | 47    |
| 4.1.1 - Cas du fonctionnement normal.....                                                                               | 47    |
| 4.1.2 - Cas des rejets de CO <sub>2</sub> du circuit primaire.....                                                      | 51    |
| 4. 2 - Mesure de l'activité de l'atmosphère de la cheminée EL.2.....                                                    | 51    |
| 4.2.1 - Séparation de C <sup>14</sup> sous forme de C <sup>14</sup> O <sub>2</sub> .....                                | 51    |
| 4.2.2 - Séparation de C <sup>14</sup> sous forme de C <sup>14</sup> O <sub>2</sub> et C <sup>14</sup> O.....            | 52    |
| 4.2.3 - Résultats des mesures d'activité.....                                                                           | 53    |
| 4. 3 - Examen de la diffusion de C <sup>14</sup> autour du site.....                                                    | 54    |
| 4.3.1 - Modèle théorique de diffusion de Sutton.....                                                                    | 55    |
| 4.3.2 - Evaluation de la pollution autour du site.....                                                                  | 56    |
| 4. 4 - Mesure de la pollution des végétaux autour de Saclay.....                                                        | 58    |
| 4.4.1 - Traitement des échantillons.....                                                                                | 59    |
| 4.4.2 - Résultats des mesures.....                                                                                      | 60    |
| 4. 5 - Discussion .....                                                                                                 | 60    |
| V - CONCLUSION .....                                                                                                    | 65    |

**FIN**