

CEA - 1704 - COHEN P., GAILLEDREAU C.

ADSORPTION DES PRODUITS DE FISSION SUR DES VASES  
DE MEDITERRANEE (1960) .

Sommaire. - On a mesuré les coefficients de partage dans l'eau de mer de quelques produits de fission à longue période sur des échantillons de vase prélevés en Méditerranée.

Les valeurs trouvées sont élevées.

Le comportement de ces isotopes radioactifs est discuté.

CEA - 1704 - COHEN P., GAILLEDREAU C.

ADSORPTION OF FISSION PRODUCTS ON MEDITERRANEAN MUD. (1960).

Summary. - Partition coefficients of some fission products have been measured in sea water on mud taken from the bottom of the Mediterranean sea.

A discussion follows on the behaviour of these radioisotopes.

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

**ADSORPTION DES PRODUITS DE FISSION**  
**SUR DES VASES DE MEDITERRANEE**

par

**Pierre COHEN et Claude GAILLEDREAU**

**Rapport CEA N° 1704**

**CENTRE D'ÉTUDES**  
**NUCLÉAIRES DE SACLAY**  
**SERVICE DE DOCUMENTATION**  
**Boite postale n° 2 - Gif-sur-Yvette (S.-et-O.)**

Rapport C. E. A. n° 1704 -

Service de Contrôle des Radiations  
et de Génie Radioactif

ADSORPTION DES PRODUITS DE FISSION  
SUR DES VASES DE MEDITERRANEE

par

Pierre COHEN et Claude GAILLEDREAU

1960

## TABLE des MATIERES

1 - Introduction

2 - Capacité d'échange d'ions

3 - Coefficients de partage

3-a Méthode

3-b Coefficient de partage du Sr : radioélément  $\text{Sr}^{90}$ ,

3-c Coefficient de partage de l'yttrium : radioélément  $\text{Y}^{90}$ ,

3-d Coefficient de partage du césium : radioélément  $\text{Cs}^{137}$ ,

3-e Coefficient de partage du cérium : radioélément  $\text{Ce}^{144}$ .

4 - Reversibilité de l'adsorption des produits de fission par l'eau de mer

4-a Césium : radioélément  $\text{Cs}^{137}$

4-b Cérium : radioélément  $\text{Ce}^{144}$

4-c Strontium : radioélément  $\text{Sr}^{90}$

5 - Conclusions

6 - Bibliographie.

## I - INTRODUCTION -

Il s'est pratiquement établi un équilibre, défini au sein des océans, entre les quantités de matière qui y sont amenées et celles qui se déposent par sédimentation. Ces sédiments sont essentiellement constitués, dans les fonds marins profonds, par du carbonate de calcium et des minéraux argileux (1); ils sont donc susceptibles d'adsorber les radioéléments provenant du rejet en mer de résidus radioactifs. C'est pourquoi nous avons mesuré les coefficients de partage des radioéléments suivants :  $Cs^{137}$  ,  $Ce^{144}$  ,  $Sr^{90}$  ,  $Y^{90}$  , sur 4 échantillons de vase prélevés en Méditerranée aux profondeurs et coordonnées suivantes (2) :

1 - 330 m 7° 11'E - 43° 32'N	3 - 2.000 m 7° 36'E - 43° 16'N
2 - 1.750 m 7° 23'E - 43° 25'N	4 - 2.500 m 8° 11'E - 42° 55'N

## II - CAPACITE D'ECHANGE D'IONS -

Elle est mesurée sur les quatre échantillons par la méthode suivante :

- a) Saturation en Na du sédiment par une solution 0,5 N d'acétate de sodium à pH = 7 un seul bain de 30 ml pour 3 g.
- b) Lavages
  - un lavage à l'eau distillée : 30 ml.
  - lavages successifs par 30 ml d'alcool jusqu'à déflocula-

tion des éléments argileux - refloculation par concentration de l'alcool au bain-marie. Ce dernier bain de lavage ne contient plus de Na pratiquement.

c) Elution du Na adsorbé par  $\text{CH}_3\text{-CO}_2\text{-NH}_4$  1 N ; le Na élué est dosé au spectrographe de flamme.

1er bain .....	8,2 meq/100 g
2ème bain .....	1,0 "
3ème bain .....	0,2 "
4ème bain .....	négligeable

-----

Capacité totale d'échan- ge .....	9,4 meq/100 g*
--------------------------------------	----------------

### III - COEFFICIENTS DE PARTAGE -

#### a) Méthode

Ils sont déterminés par la méthode d'agitation.

La solution est constituée par de l'eau de mer, prélevée en Méditerranée, contaminée avec le radioélément à étudier. L'échantillon de vase est mis à agiter avec cette solution dont l'équilibre des ions macrocomposants reste inchangé. Le radioélément se partage entre liquide et suspension et son coefficient de partage est déterminé par la relation :

---

\* Le sodium représente 43 % de la capacité d'échange.

$$\left(\frac{q}{C}\right)_T = \left(\frac{C_{OT} - C_T}{C_T}\right) \frac{V}{m} \quad (1)$$

$q_T$  concentration en traceur dans le sédiment à l'équilibre,

$C_{OT}, C_T$  concentration initiale et à l'équilibre du traceur dans l'eau,

$V$  volume de solution,

$m$  masse de sédiment.

b) Coefficient de partage du Sr : radioélément Sr<sup>90</sup>

$$V = 20 \text{ ml}$$

$$m = 2 \text{ g}$$

Sédiment	$(q/C)_{Sr}$ après	
	2 h. d'agitation	24 h. d'agitation
- 330 m	2,0	2,0
- 1.750 m	2,0 2,7	2,0 2,5
- 2.000 m	2,3 3,2	1,8 2,0
- 2.500 m	2,6 2,6	2,6 2,6

$$\text{moyenne } (q/C)_{Sr} = 2,3$$

Il n'apparaît pas de différence reproductible, ni avec la profondeur du prélèvement, ni en fonction du temps d'agitation. Aussi prend-on la moyenne des résultats.

c) Coefficient de partage de l'yttrium : radioélément  $Y^{90}$

$$V = 20 \text{ ml}$$

$$m = 2 \text{ g}$$

$(q/C)_Y$  est mesuré après deux heures d'agitation.

sédiment	$(q/C)_Y$
- 330 m	8,0
- 1.750 m	7,1 6,9
- 2.000 m	7,0 7,0
- 2.500 m	7,7 7,4

d) Coefficient de partage du césium : radioélément  $Cs^{137}$

1)  $V = 20 \text{ ml}$

$$m = 2 \text{ g}$$

Sédiment	$(q/C)_{Cs}$ après	
	2 h. d'agitation	24 h. d'agitation
- 330 m	330 286	300 366
- 1.750 m	275 264	325 415
- 2.000 m	264 275	356 366
- 2.500 m	318 200	395 455
moyenne	246	372

2)  $V = 20 \text{ ml}$

$m = 0,2 \text{ g}$

Sédiment	$(q/C)_{Cs}$ après	
	2 h. d'agitation	24 h. d'agitation
- 330 m	250 284	385 424
- 1.750 m	277 260	310 300
- 2.000 m	315 380	355 370
- 2.500 m	334 325	386 375
moyenne	300	363

Il apparaît que :

- le temps nécessaire pour atteindre l'équilibre est supérieur à 2 h.
- le coefficient de partage est indépendant du rapport  $V/m$  pour  $10 < \frac{V}{m} < 100$

e) Coefficient de partage du cérium : radioélément  $Ce^{144}$

Sédiment	$(q/C)_{Ce}$ après	
	2 h. d'agitation	48 h. d'agitation
- 330 m	12 600	45 900
	12 600	36 900
- 1.750 m	11 700	49 400
	11 550	44 400
- 2.000 m	11 350	51 700
	11 800	58 800
- 2.500 m	10 800	67 900
	15 610	67 900
moyenne	12 100	53 000

IV - REVERSIBILITE DE L'ADSORPTION DES PRODUITS DE FISSION PAR L'EAU DE MER -

Les échantillons de sédiments contaminés obtenus lors des essais précédents sont repris par de l'eau de mer inactive. La quantité d'élément marqué Sr, Cs ou Ce contenue dans le système est celle qui est adsorbée plus celle qui reste dans la fraction de liquide et qu'on ne peut éliminer par centrifugation.

Si l'adsorption sur le sédiment est réversible le coefficient de partage obtenu doit être le même que précédemment; on le détermine par la relation :

$$q_{0T} - q_T = C_T \frac{V}{m}$$

d'où

$$\left(\frac{q}{c}\right)_T = \left(\frac{q_0}{c}\right)_T - \frac{V}{m} \quad (2)$$

On admet que  $q_{0T}$ , concentration initiale dans le sédiment, comprend aussi l'activité du liquide résiduel des essais.

L'erreur commise est négligeable, et ne justifierait pas un lavage du sédiment à l'eau pure, susceptible d'entraîner une défloculation des éléments argileux, d'où des difficultés opératoires.

a) Césium : radioélément Cs<sup>137</sup>

Sédiment	(q/c) <sub>Cs</sub> 70 h	% élué
- 330 m	278 277	100
- 1.750 m	268 265	100
- 2.000 m	695	50
- 2.500 m	655	50

Sur les sédiments les plus profonds, la réversibilité du Césium ne paraît pas totale. Une étude minéralogique plus

approfondie pourra peut être permettre d'expliquer ces différences. Notons toutefois que l'échantillon de vase n° 4 est jaune tandis que les autres sont bleus.

b) Cérium : radioélément Ce<sup>144</sup>

$$V/m = 100$$

Temps d'agitation : 70 heures.

Sédiment	(q/C) saturation	(q/C) élution	%
- 330 m	30 700	24 400	~ 100
- 1.750 m	30 000	31 100	~ 100
- 2.000 m	31 400	33 200	~ 100
- 2.500 m	37 600	25 500	~ 100

Les résultats semblent plus dispersés pour le cérium que pour les autres éléments : ceci provient d'erreurs de comptage car l'activité à l'équilibre dans la solution est toujours très faible en raison de l'adsorption importante du cérium.

c) Strontium : radioélément Sr<sup>90</sup>

En raison du faible coefficient de partage du Sr<sup>90</sup> la méthode définie par l'équation (2) n'est pas utilisable ici; la différence  $\frac{q_0}{C_T} - \frac{V}{m}$  est très inférieure à la valeur de chacun de ces termes.

La méthode utilisée a consisté à épuiser par des bains successifs des échantillons ayant adsorbé une quantité mesurée de Sr<sup>90</sup>.

Sédiment	Sr adsorbé cpm/g	Sr élué cpm/g	% élué
- 330 m	2 515	2 220	88
- 1.750 m	2 725	2 250	83
- 2.000 m	2 128	2 111	99
- 2.500 m	2 094	2 090	99

#### V - CONCLUSIONS -

1 - Comme cela était prévisible, étant donné la nature même des éléments qui constituent les sédiments de grande profondeur, les coefficients de partage des produits de fission sont élevés.

2 - Les valeurs des coefficients de partage du Cs et du Sr, mesurés à l'aide des traceurs, sont du même ordre que celles que l'on peut calculer à partir des teneurs (3) en Cs et Sr stables qui ont été déterminés sur certains sédiments.

3 - Le rapport des coefficients de partage du Cs et du Sr est égal à l'inverse du rapport des coefficients de transfert. En effet le rapport des coefficients de transfert du Sr et du Cs est (4) de :

$$\frac{7,2}{0,05} = 145 \quad \text{tandis que l'on a :}$$

$$\frac{\left(\frac{q}{C}\right)_s}{\left(\frac{q}{C}\right)_{Sr}} = \frac{350}{2,5} = 140$$

4 - Il est apparu une différence importante entre le comportement du Ce et celui de l'Y vis-à-vis des échantillons de vase étudiés. La teneur en  $CO_3Ca$  des sédiments pourrait en être cause. Cette suggestion (5) semble se trouver confirmée par l'expérience car lorsque l'on déduit le  $CO_3Ca$  le coefficient de partage du Ce retrouve une valeur voisine de celle de l'Y.

5 - Les données numériques obtenues ne permettent pas toutefois, sans études complémentaires, d'apprécier si la présence de sédiments capables de fixer les produits de fission constitue un facteur favorable ou non dans le choix d'un point de rejet en mer d'effluents radioactifs. Néanmoins, dans les cas où le retour vers l'homme de ces sédiments contaminés ne constituerait qu'un risque négligeable, la présence de sédiments à forte capacité d'échange d'ions, au voisinage du point de rejet des effluents, pourrait alors être considérée comme bénéfique, puisque la radioactivité de l'eau de mer, au voisinage, serait alors diminuée.

Manuscrit reçu le 27 septembre 1960

BIBLIOGRAPHIE

- (1) Etude minéralogique préliminaire communiquée par M. BOURCART, Professeur à la Sorbonne.
- (2) Prélèvements effectués par le Centre de Recherches et d'Etudes Océanographiques.
- (3) RANKAMA et SAHAMA . Geochemistry, pp. 440 et 482
- (4) RANKAMA et SAHAMA . Geochemistry, p. 295.
- (5) Communication orale faite par M. SANDRA - Museum d'Histoire Naturelle - Paris.

**FIN**