LE LAIT

REVUE GÉNÉRALE DES QUESTIONS LAITIÈRES

SOMMAIRE

MÉMOIRES ORIGINAUX :

- Ch. A. BIZOLLON et R. MORET
— Application de la spectrométrie Gamma à l'étude de la contamination radioactive du lait. 241

- DIDIER-PETIT. — Modalités nouvelles pour le stockage et le transport du lait en vrac 251

- Ch. ALAIS et P. JOLLES. — L'action de la présure sur la caséine (fin) 259

SUPPLÉMENT TECHNIQUE :

- G. GÉNIN. — L'emploi de l'acide lactique et de ses dérivés dans la fabrication des encres d'imprimerie et des produits de synthèse. 272

BIBLIOGRAPHIE ANALYTIQUE :

- 1^o Les livres 287
2^o Journaux, Revues, Sociétés savantes 294
3^o Brevets 339

BULLETIN BIBLIOGRAPHIQUE :

- 1^o Les livres 343
2^o Journaux, Revues, Sociétés savantes 345
3^o Brevets 352

DOCUMENTS ET INFORMATIONS :

- Nécrologie : Professeur Radu Vladesco 356
Y. GANDON. — La situation laitière 358
Le marché des fromages frais en Italie 361
Artisanat et Brevets d'invention 363
Exposition Industrielle de la Laiterie et des Produits alimentaires 365
Enseignement par correspondance de la Coopération agricole 366
Annuaire du froid 367
Nouvelles de Grande-Bretagne . 368

MÉMOIRES ORIGINAUX (1)

APPLICATION DE LA SPECTROMÉTRIE GAMMA A L'ÉTUDE DE LA CONTAMINATION RADIO-ACTIVE DU LAIT

par Ch.-A. BIZOLLON et R. MORET

Laboratoire de Physique Biologique de la Faculté Mixte de Médecine
et de Pharmacie de Lyon

Service Central de Protection contre les Rayonnements Ionisants

Depuis le début des explosions nucléaires expérimentales l'étude de la contamination du lait par les radio-éléments constitue

(1) Reproduction interdite sans indication de source.

l'un des soucis essentiels des différents services de protection contre les radiations ionisantes.

Il n'y a, d'ailleurs, pour s'en convaincre qu'à consulter la littérature [1 à 13]. De nombreuses techniques sont proposées à ce sujet : dans certaines, souvent les plus anciennes, on décrit un mode opératoire adapté à la mesure de la radio-activité bêta totale effectuée sur le résidu sec ou sur les cendres de lait. Ce procédé qui offre l'avantage de la simplicité et de la rapidité d'exécution ne présente pas moins un inconvénient majeur : celui de ne pas identifier les éléments responsables de la radio-activité.

C'est pourquoi différents auteurs se sont attachés à mettre au point des méthodes de dosage séparé des principaux radio-éléments, notamment ^{90}Sr - ^{90}Y , ^{137}Cs , ^{131}I , ^{106}Ru - ^{106}Rh et ^{95}Zr - ^{95}Nb . Dans chaque cas le processus suivi reste le même : on procède tout d'abord à l'isolement sélectif de l'élément, que l'on veut étudier, par précipitation chimique ou à l'aide d'échangeurs d'ions puis on compte son activité avec un détecteur approprié.

Ces méthodes, qui donnent d'excellents résultats demandent, par contre, de longues et minutieuses manipulations, ce qui les rend souvent inutilisables dans un contrôle régulier et fréquent.

Nous avons décrit dans un travail récent [2] une technique permettant la mesure, par spectrométrie gamma, de traces de radio-éléments dissous dans l'eau : cette technique s'applique parfaitement au lait dans lequel on peut, sans extraction ou concentration préalable, identifier et doser en un temps relativement court tous les radio-éléments gamma qu'il renferme.

I. — Description de l'ensemble de mesure utilisée

L'ensemble de mesure comprend (cf. fig. 1) :

— *Un compteur x à scintillations Harshaw muni d'un cristal INa(Tl) x , de 7,5 cm de diamètre et 7,5 cm de hauteur.* Ce détecteur, grâce à un guide de lumière spécial (cristal d' INa placé entre le scintillateur et le photomultiplicateur) ainsi qu'à l'emploi de matériau sélectionné, possède un mouvement propre très faible.

— *Un second compteur y muni d'un scintillateur plastique de 11 cm de diamètre et 11 cm de hauteur, dans lequel les photons gamma ne réagissent que par effet Compton.* L'utilisation de ces deux détecteurs permet de ne conserver d'un spectre gamma simple ou complexe que les impulsions qui proviennent de l'absorption totale des photons dans le cristal d' INa(Tl) .

— *Un spectromètre gamma, R.C.L., transistorisé, à 128 canaux, relié aux deux compteurs.* Ceux-ci sont ainsi constamment alimentés

en tension stabilisée mais lors d'un comptage, seules les impulsions, provenant de l'un d'entre eux, parviennent au spectromètre.

— Une bonbonne sphérique, en chlorure de polyvinyle, de 10 litres de capacité, destinée à recevoir le lait (cf. fig. 2 et 3). Elle possède à sa partie supérieure une ouverture de remplissage, à sa partie

FIGURE 1

inférieure un orifice d'évacuation. Les logements des compteurs sont constitués par des cylindres qui font saillie à l'intérieur du récipient et dont les axes alignés coïncident avec un diamètre horizontal de la bonbonne.

Par une série d'expériences préliminaires effectuées sur différentes sources de radio-éléments (^{109}Cd : énergie des photons gamma émis : 0,087 M.e.V. ; ^{137}Cs : énergie de 0,660 M.e.V. et ^{60}Co : énergie de 1,330 M.e.V.), nous avons déterminé :

- d'une part, la forme et les dimensions de la bonbonne,
- d'autre part, les positions des deux détecteurs, à savoir pour X la position B et pour Y la position C.

Dans ces conditions, l'efficacité de détection des photons au niveau des distributions Compton est la même pour les deux sondes.

— Une chambre blindée destinée à protéger l'ensemble de comptage. C'est un cube de 50 cm environ d'arêtes intérieures dont les six

FIGURE 2

FIGURE 3

faces sont constituées par l'assemblage de briques de plomb carrées (10×10 cm), à chevrons et de 5 cm d'épaisseur. Sur deux faces opposées il existe une ouverture pour le passage des logements des sondes. Sur la face supérieure, une dalle mobile située au-dessus de l'orifice de la bonbonne, permet le remplissage de celle-ci. Enfin, nous n'avons pas jugé nécessaire de tapisser les faces internes de ce blindage par des feuilles de Cd et de Cu car la source et les détecteurs sont situés loin des parois.

II. — Analyse d'un échantillon de lait. Mode opératoire

L'étude du mouvement propre des deux sondes, la connaissance des caractéristiques de notre ensemble de comptage — résolution en énergie, efficacité de détection des photons gamma — nous ont permis de préciser les grandes lignes d'un mode opératoire compatible avec le but poursuivi :

— Nous avons fixé une durée de comptage relativement courte (210 minutes), car nous pensons que l'intérêt de cette mesure dépend essentiellement de sa rapidité d'exécution et de la facilité avec laquelle on pourra la mettre en application dans le cas d'analyses en série.

Les expériences effectuées à ce sujet sur différentes sources de radio-éléments nous ont d'ailleurs montré qu'en réalisant une mesure en 210 minutes, il est possible non seulement d'identifier, mais aussi de doser, tous les radio-éléments, émetteurs gamma, présents dans le lait à des concentrations inférieures aux concentrations maximales admissibles pour les populations établies pour les eaux de boisson.

— En jouant sur le gain de l'amplificateur linéaire du spectromètre, nous avons délibérément choisi de n'enregistrer que les impulsions qui correspondent à des énergies comprises entre 0,080 et 1,650 M.e.V. C'est à l'intérieur de ces limites, que se situent les différents photons gamma émis par les radio-éléments que nous risquons de rencontrer dans le lait.

Le mode opératoire suivi pour l'analyse d'un échantillon de lait peut se résumer ainsi :

— Après avoir rempli la bonbonne du lait dont on veut mesurer la radio-activité, on place les deux sondes, reliées au spectromètre gamma, dans leur logement respectif.

— On effectue une mesure en 210 minutes, avec le détecteur à cristal INa(Tl). Le spectre (I), obtenu après déduction des impul-

sions du mouvement propre du détecteur, se compose essentiellement de raies d'absorption totale, de distributions Compton et de pics de rétrodiffusion.

— On réalise alors un deuxième comptage dans le même temps mais avec le détecteur à scintillateur plastique. Le spectre (II), une fois éliminé le mouvement propre de la sonde, comprend uniquement des distributions Compton.

— Il suffit de soustraire (II) du spectre (I) pour ne laisser subsister dans (I) que les raies d'absorption totale débarrassées de toute impulsion parasite. Leur position, leur hauteur ainsi que leur surface respective permettront d'identifier et de doser les radio-éléments présents dans le lait à condition naturellement que l'on ait procédé, au préalable, à l'étalonnage de l'ensemble de comptage à l'aide de sources d'activité connue avec précision.

III. — Résultats

Nous donnons, à titre d'exemple, les résultats obtenus sur un prélèvement de lait destiné aux consommateurs lyonnais (juin 1963).

Le spectre gamma, après suppression des distributions Compton, présente trois raies bien distinctes aux énergies de 1,460-0,660 et 0,500 M.e.V. De plus, on remarque la présence d'un pic assez important dont le sommet correspond à 0,150 M.e.V. (cf. fig. 4).

— *La raie de 1,460 M.e.V.* provient de l'absorption totale dans le cristal INa(Tl) des photons gamma émis par ^{40}K , isotope naturel de ^{39}K , élément stable, présent normalement dans le lait.

Si l'on calcule, à partir de la surface de cette raie, l'activité bêta due à ^{40}K , on constate que la valeur obtenue (1930 pC/litre de lait analysé) correspond sensiblement à celle que l'on détermine en connaissant la concentration normale du lait en potassium : 1mg de K^+ est le siège de 1,73 désintégration/minute.

Ce résultat est intéressant :

— Avec notre ensemble de comptage on peut mettre en évidence et doser en un temps relativement court (210 minutes) le potassium contenu dans le lait.

— L'efficacité de détection que nous avons déterminée sur des solutions pures de radio-éléments, s'applique bien à l'étude de mélange renfermant plusieurs nuclides. Cette conclusion constitue une vérification indirecte de notre méthode.

— *La raie de 0,660 M.e.V.* révèle la présence de ^{137}Cs dans le lait. Elle est perturbée du côté des basses énergies par des impul-

sions provenant de l'absorption totale des photons gamma de 0,620 M.e.V. émis par ^{106}Ru - ^{106}Rh . Pour déterminer exactement sa surface et connaître la concentration en ^{137}Cs , il faut, au préalable, soustraire ces impulsions. La figure 5 rend compte de cette opération. L'activité calculée pour ce radio-élément est alors de 317 pC/litre.

FIGURE 4

Spectre γ obtenu sur un échantillon de lait

- Spectre γ obtenu avec la sonde à cristal INa(Tl)
 ——— Spectre γ obtenu après déduction des distributions Compton

— La raie de 0,500 M.e.V a deux origines possibles : absorption totale dans le cristal INa(Tl) des photons gamma de 0,498 M.e.V émis par ^{103}Ru ou de ceux de 0,513 M.e.V émis par ^{106}Ru - ^{106}Rh . Nous optons pour cette dernière hypothèse : en effet, ^{103}Ru et ^{106}Ru - ^{106}Rh émettent chacun un deuxième groupe de photons gamma d'énergie très voisine (0,615 et 0,620 M.e.V) mais d'importance différente lorsqu'on les compare aux photons gamma de 0,500 M.e.V (3 p. 100 pour ^{103}Ru , au lieu de 50 p. 100 pour ^{106}Ru - ^{106}Rh).

L'asymétrie observée sur la raie de 0,660 M.e.V (^{137}Cs) est telle

qu'elle ne peut être due qu'au nombre élevé d'impulsions provenant de l'absorption des photons gamma émis par ^{106}Ru - ^{106}Rh (cf. fig. 5).

Il suffit, d'ailleurs nous l'avons vu, de retrancher ces impulsions de cette raie pour transformer celle-ci en une parfaite distribution gaussienne (fig. 5).

Dans ces conditions, l'activité apportée au lait par ^{106}Ru - ^{106}Rh est de 815 pC/litre.

FIGURE 5

Spectre γ obtenu sur un échantillon de lait

- Spectre γ obtenu après déduction des distributions Compton
- Spectre γ obtenu après élimination de la raie située à 0,620 Mev (^{106}Ru — ^{106}Rh) et des pics de retrodiffusion.

— Enfin, le pic dont le sommet correspond à une énergie de 0,150 M.e.V provient de l'accumulation dans les mêmes canaux du spectromètre gamma d'impulsions d'origines différentes :

— pic de rétrodiffusion (0,220 M.e.V) des photons gamma émis par ^{40}K ;

— pic de rétrodiffusion (0,190 M.e.V) des photons gamma émis par ^{137}Cs ;

— pic de rétrodiffusion (0,160 M.e.V) des photons gamma émis par ^{106}Ru - ^{106}Rh .

La suppression des impulsions appartenant à ces différents pics laisse subsister une nouvelle raie à 0,140 M.e.V peu impor-

tante et sur l'origine de laquelle il est difficile de se prononcer.

En conclusion, nous avons mis en évidence dans l'échantillon de lait analysé, la présence de trois radio-éléments, l'un naturel : ^{40}K , les deux autres ^{137}Cs , ^{106}Ru - ^{106}Rh , provenant certainement des retombées radio-actives. Leur activité respective, déterminée suivant le mode opératoire décrit dans cet exposé, correspond sensiblement aux valeurs obtenues actuellement par les différents laboratoires qui effectuent des mesures régulières de la radio-activité du lait.

CONCLUSION

Nous décrivons dans ce travail une méthode permettant l'identification et le dosage de traces de radio-éléments, émetteurs gamma, dissous dans le lait.

L'ensemble de comptage comprend deux sondes : l'une munie d'un cristal INa(Tl) , l'autre d'un scintillateur plastique. L'utilisation de ces deux détecteurs reliés à un spectromètre gamma à 128 canaux, permet d'obtenir même sur des mélanges de radio-éléments, des spectres simples comportant uniquement des raies d'absorption totale.

Le récipient destiné à recevoir les échantillons de lait est sphérique et possède deux logements pour les sondes. Il est placé dans une chambre blindée de 5 cm d'épaisseur.

La mesure s'effectue, en 210 minutes, pour chaque détecteur, directement sur l'échantillon liquide sans qu'il soit nécessaire de le concentrer par évaporation ou d'extraire les radio-éléments, à l'aide de réactifs appropriés. Il suffit alors de relever les spectres gamma obtenus et de l'interpréter.

Cette méthode offre l'avantage d'être simple, rapide et de se prêter à des dosages en série. Elle ne permet pas, par contre, la mesure de l'activité des émetteurs bêta purs, notamment le ^{90}Sr - ^{90}Y que l'on recherche par une technique spéciale adaptée à cet élément.

SUMMARY

In this article we describe a method permitting the identification and quantitative measurement of traces of γ emitters in milk.

The counting unit consists of two scintillating detectors, one with an INa(Tl) crystal, the other with a plastic scintillator. Both detectors are linked to a R C L-128-Channel analyser.

The measurement takes 210 minutes, directly on a liquid sample.

This method has the advantage of being simple and quick and of permitting series measurements. On the other hand, it does not permit to measure the radioactivity of pure β emitters, especially ^{90}Sr , ^{90}Y which are searched by means of a technique specially adapted to that element.

BIBLIOGRAPHIE

- [1] BERGH H. A method for the determination of very small amounts of ^{131}I in biological materials, especially in milk. (Communication faite à la Deuxième Conférence Internationale des Nations Unies sur l'Utilisation de l'Energie atomique à des fins pacifiques, Genève). Document A/Conf. 15/P./586, 1958.
- [2] C. A. BIZOLLON. Application de la Spectrométrie Gamma à l'analyse qualitative et quantitative de traces de radio-éléments dissous dans l'eau. *Thèse Doctorat en Pharmacie d'Etat*, 1963.
- [3] L. JEANMAIRE et G. MICHON. Recherche et dosage des isotopes radioactif 89 et 90 du strontium dans le lait en poudre. *Le Lait*, 1959, **39**, 369.
- [4] L. JEANMAIRE, H. FOURNIQUET et G. MICHON Dosage du césium 137 dans le lait en poudre. *Le Lait*, 1959, **39**, 593.
- [5] G. G. GALAPAJ et D. ON GARO. Une méthode de détermination de $^{90}\text{Strontium}$ dans le lait applicable aux cendres et aux produits frais. *Minerva Nucleare*, **7**, 36, 1963.
- [6] G. R. HAGEE, G. J. KARCHES et A. S. GOLDIN. Détermination of ^{131}I , ^{137}Cs and ^{140}Ba in fluid milk by gamma spectroscopy. *Talanta*, **5**, 36, 1960.
- [7] B. KAHN et G. K. MURTHY. Rapid methods for estimation fission product concentration in milk. U.S. Public Health Service Pub. n° 999-R2-March 1963.
- [8] B. KAHN, C. P. STRAUB et I. R. IONES. Radioiodine in milk of cows consuming stored feed and of cows on pasture. *Science*, **138**, 1334, 1962.
- [9] R. MERCERE, J. D. BURTON et B. O. BARTLETT. Relationships between the deposition of $^{90}\text{strontium}$ and the contamination of milk in the United Kingdom. *Nature*, **198**, 662, 1963.
- [10] P. PELLERIN, M. L. REMY et J. P. MORONI. Quelques observations sur une méthode de dosage immédiat de ^{131}I dans le lait, sur la possibilité d'en augmenter la sensibilité et sur son exploitation en série en cas d'accident nucléaire. *Rapport 94*, S.C.P.R.I.
- [11] J. SILVERMAN, D. GHOSH et R. L. BELCHER. Removal of $^{90}\text{Strontium}$ from milk. *Nature*, **198**, 780, 1963.
- [12] H. SMITH et E. L. WHITEHEAD. Rapid method for estimation of ^{131}I in milk. *Nature*, **199**, 503, 1963.
- [13] K. G. VOHRA, V. S. BHATNAGAR, U. S. MISHRA et S. RAGUPATHY. Measurement of ^{137}Cs in milk. *Health Physics*, **6**, 142, 1961.