

**COMMISSARIAT A L'ENERGIE ATOMIQUE**

FR 8302896

8.11

**DOSAGE SELECTIF DU PLUTONIUM  
ET DE TRANSPLUTONIENS (Am, Cm)  
DANS LES CENDRES DE MATIERES FECALES***par**Jean F. ALLADA, Monique VERRY,  
Marie-Louise DABURON, Lucien JEANMAIRE***INSTITUT DE PROTECTION ET DE SURETE NUCLEAIRE****DEPARTEMENT DE PROTECTION****Centre d'Etudes Nucléaires de Fontenay-aux-Roses****Rapport CEA-R-5214****1983****SERVICE DE DOCUMENTATION**

**PLAN DE CLASSIFICATION DES RAPPORTS ET BIBLIOGRAPHIES CEA**  
(Classification du système international de documentation nucléaire SIDON/INIS)

A 11	Physique théorique	C 30	Utilisation des traceurs dans les sciences de la vie
A 12	Physique atomique et moléculaire	C 40	Sciences de la vie : autres études
A 13	Physique de l'état condensé	C 50	Radioprotection et environnement
A 14	Physique des plasmas et réactions thermonucléaires		
A 15	Astrophysique, cosmologie et rayonnements cosmiques	D 10	Isotopes et source de rayonnements
A 16	Conversion directe d'énergie	D 20	Applications des isotopes et des rayonnements
A 17	Physique des basses températures		
A 20	Physique des hautes énergies	E 11	Thermodynamique et mécanique des fluides
A 30	Physique neutronique et physique nucléaire	E 12	Cryogéale
		E 13	Installations pilotes et laboratoires
B 11	Analyse chimique et isotopique	E 14	Explosions nucléaires
B 12	Chimie minérale, chimie organique et physico-chimie	E 15	Installations pour manipulation de matériaux radioactifs
B 13	Radiochimie et chimie nucléaire	E 16	Accélérateurs
B 14	Chimie sous rayonnement	E 17	Essais des matériaux
B 15	Corrosion	E 20	Réacteurs nucléaires (en général)
B 16	Traitement du combustible	E 30	Réacteurs nucléaires (types)
B 21	Métaux et alliages (production et fabrication)	E 40	Instrumentation
B 22	Métaux et alliages (structure et propriétés physiques)	E 50	Effluents et déchets radioactifs
B 23	Céramiques et ciments		
B 24	Matières plastiques et autres matériaux	F 10	Economie
B 25	Effets des rayonnements sur les propriétés physiques des matériaux	F 20	Législation nucléaire
B 30	Sciences de la terre	F 30	Documentation nucléaire
		F 40	Sauvegarde et contrôle
C 10	Action de l'irradiation externe en biologie	F 50	Méthodes mathématiques et codes de calcul
C 20	Action des radioisotopes et leur cinétique	F 60	Divers

Rapport CEA-R-5214

*Cote-matière de ce rapport : B.11*

**DESCRIPTION-MATIERE (mots clefs extraits du thesaurus SIDON/INIS)**

<i>en français</i>	<i>en anglais</i>
ANALYSE CHIMIQUE QUANTITATIVE	QUANTITATIVE CHEMICAL ANALYSIS
PERFORMANCE	PERFORMANCE
RENDEMENT	EFFICIENCY
SPECTROSCOPIE ALPHA	ALPHA SPECTROSCOPY
RADIOACTIVITE NATURELLE	NATURAL RADIOACTIVITY
FECES	FECES
PLUTONIUM	PLUTONIUM
AMERICIUM	AMERICIUM
CURIUM	CURIUM

- Rapport CEA-R-5214 -

Centre d'Etudes Nucléaires de Fontenay-aux-Roses  
Institut de Protection et de Sureté Nucléaire  
Département de Protection

**DOSAGE SELECTIF DU PLUTONIUM ET DE TRANSPLUTONIENS (Am, Cm)  
DANS LES CENDRES DE MATIERES FECALES**

par

Jean BALLADA\*, Monique VERRY\*  
Marie-Louise DABURON\*\*, Lucien JEANMAIRE

\* Radiochimie  
\*\* Spectrométrie alpha

- Février 1983 -

RAPPORT CEA-R-5214 - Jean BALLADA, Monique VERRY, Marie-Louise DABURON  
Lucien JEANMAIRE.

DOSAGE SELECTIF DU PLUTONIUM ET DE TRANSPUTONIENS (Am, Cm) DANS LES  
CENDRES DE MATIERES FECALES.

Sommaire. - La technique permet de doser sélectivement dans les cendres  
de matières fécales, les principaux transplutoniens du cycle du combusti-  
ble.

Les radioéléments naturels (U, Ra, Th et leurs isotopes) normalement  
présents dans l'alimentation humaine sont éliminés.

La séparation du plutonium s'effectue de façon classique au moyen d'une  
résine échangeuse d'ions. Après avoir éliminé l'U et le Th gênants, le  
mélange Am-Cm est recueilli sur un filtre millipore permettant la  
spectrométrie  $\alpha$  (ou le comptage global).

Les rendements obtenus sont  $\approx$  95% ( $\sigma = 4$ ) pour le Pu et de 81.7%  
( $\sigma = 6,2$ ) pour Am-Cm.

1983

Commissariat à l'Energie Atomique - France

27 p.

RAPPORT CEA-R-5214 - Jean BALLADA, Monique VERRY, Marie-Louise DABURON  
Lucien JEANMAIRE.

SELECTIVE DETERMINATION OF PLUTONIUM AND TRANSPUTONIC ELEMENTS (Am,  
Cm) IN FECES ASHES.

Summary. - A technique has been developed for the selective determina-  
tion of the main transplutonic elements of the fuel cycle in feces  
ashes. The natural elements (U, Ra, Th and their isotopes) usually  
present in the human diet, are eliminated. Plutonium separation is  
carried out in a classical way by ion exchange resin. After elimination  
of U and Th, Am-Cm are collected on a millipore filter for  $\alpha$  spectro-  
metry or global counting. Yields are 95% ( $\sigma = 4$ ) for Pu and 81.7%  
( $\sigma = 6,2$ ) for Am-Cm.

1983

Commissariat à l'Energie Atomique - France

27 p.

## INTRODUCTION

Dans un précédent rapport (1), nous avons décrit une technique de dosage global des radioéléments émetteurs  $\alpha$ ,

Cette méthode se termine par un dépôt sur filtre millipore des isotopes du plutonium et des transplutoniciens mais également du thorium naturel.

Le procédé que nous présentons permet l'élimination du thorium et le dosage sélectif des isotopes du plutonium et des transuraniens majeurs du cycle du combustible (américium, curium, ...).

### I. OBJET ET DOMAINE D'APPLICATION

La présence normale de thorium dans les cendres de matières fécales à un niveau d'activité moyen de 0,5 pCi par gramme, augmente non seulement le seuil de détection pour les plutonium et transplutoniciens mais encore masque la présence de quelques-uns d'entre eux dont l'énergie d'émission  $\alpha$  est très proche de celle de certains des descendants du thorium. Le tableau I montre ces interférences auxquelles s'ajoutent celle du  $^{238}\text{Pu}$  avec  $^{241}\text{Am}$  et celle du  $^{238}\text{Pu}$  avec  $^{244}\text{Cm}$ . La terme énergie moyenne a été utilisé pour rendre compte de la résolution expérimentale qui était au moins 1% sur les échantillons réels. Nous avons donc cherché à rendre la méthode d'analyse plus sélective et plus sensible.

Ainsi, la technique met à profit la séparation du plutonium sur résine échangeuse d'ions pour éliminer également la majeure partie du thorium (environ 70 %). L'élimination est achevée par deux extractions au trioctyl-phosphine oxyde (T.O.P.O.).

On obtient par ce procédé une amélioration essentielle de la qualité des résultats : certitude dans la détermination qualitative et augmentation de la sensibilité.

TABLEAU I

Energie moyenne du pic sur le spectre $\alpha$ en MeV	Eléments "possibles" correspondant à cette énergie	
5,75	$^{224}_{Ra}$	5,68
	$^{236}_{Pu}$	5,76
	$^{244}_{Cm}$	5,81
5,45	$^{228}_{Th}$	5,42
	$^{238}_{Pu}$	5,49
	$^{241}_{Am}$	5,48
6,1	$^{212}_{Bi}$	6,05
	$^{242}_{Cm}$	6,11

## II. PRINCIPE

Les matières fécales sont minéralisées à sec. Après mise en solution acide des cendres, les radioéléments sont entraînés globalement avec un précipité de phosphate de fer.

A partir de ce précipité, le plutonium (environ 95 %) et le thorium (environ 70 %) sont fixés sur colonne de résine échangeuse d'ions (anionique) en milieu nitrique concentré.

Les logarithmes des coefficients de partage de Pu IV et Th IV sont respectivement de 4 et 2,5 en milieu nitrique 8 M (d'après SUCHANAN et coll. (3)).

Dans les solutions nitriques de fixation et de lavage, l'élimination du thorium est achevée par extraction au T.O.P.O. (le facteur de décontamination est de 100 pour une extraction d'après Dalle Site et coll. (5)). On peut ensuite entraîner et séparer l'américium et le curium.

On obtient trois fractions :

- 1°) fraction plutonium et éventuellement neptunium ;
- 2°) fraction thorium incomplète ;
- 3°) fraction américium-curium.

### III. MATERIEL

- Verreries et matériel courant de laboratoire (balance au 1/10 de mg, four, etc...).
- Sacs de polyéthylène destinés à recueillir les matières fécales.
- Capsules de silice ou de platine de 15 cm de diamètre et 3 cm de hauteur.
- Capsules de téfion de 100 à 200 cm<sup>3</sup>
- Filtres en fibre de verre G.F.A. Whatman, Ø 9 cm
- Filtres millipore HAWP, diamètre 47 mm et porosité 0,2 - 0,45 et 5 µm.
- Appareil de filtration millipore de 250 cm<sup>3</sup>, référence XX 1004700. Cet appareil est facilement adaptable sur une fiole à vide de 1 litre.
- Bain-marie, susceptible de recevoir des pots à centrifuger de 100 cm<sup>3</sup> (pour centrifugeur JOUAN).
- pHmètre au 1/10 d'unité pH.
- Agitateur magnétique avec barreaux magnétiques téfionnés (longueur 4 cm et 2 cm).
- Bague de verre de 40 mm de diamètre intérieur, 3 mm d'épaisseur et 1 cm de hauteur.
- Ensemble de mesure  $\alpha$  avec détecteur au ZnS activé à l'argent.
- Ensemble de spectrométrie  $\alpha$  :
  - . chambre à grille NU 14 B de chez NUMELEC
  - . analyseur d'amplitude.
- Cercles de 50 mm de diamètre découpés dans des protège-documents de matière plastique (VYNAN). Ces cercles sont garnis d'éti-quettes auto-collantes double-face afin de permettre la fixation des filtres millipore sur lesquels sont déposées les sources à mesurer. D'autres porte-sources peuvent être utilisés. Cependant celui-ci, de réalisation simple, a donné satisfaction au point de vue bruit de fond.

#### IV. REACTIFS

- Acide chlorhydrique RP Normapur d 1,19
- Acide chlorhydrique RF Normapur 9 M
- Acide chlorhydrique RP Normapur 1/3
- Acide chlorhydrique RP Normapur 0,2 M
  
- Acide nitrique RP Normapur d 1,33
- Acide nitrique RP Normapur 8 M
- Acide nitrique RP Normapur 1/3
- Acide nitrique RP Normapur 1/100
  
- Acide fluorhydrique RP Normapur 40 % d 1,13
- Ammoniaque RP Normapur 20 % d 0,92
- Ammoniaque RP Normapur 1/5

- Solution de nitrate d'argent à 1 % dans l'acide nitrique à 1 %.
- Xylène pur pour analyse
- Trioctyl-phosphine oxyde (T.O.P.O.) (Eastmann Kodak).

Faire une solution à 7,5 % de T.O.P.O. dans le xylène. Cette solution est équilibrée par deux agitations successives de 10 minutes au contact d'un volume égal de  $\text{HNO}_3$  1/3.

- Nitrite de sodium RP Normapur
- Solution de calcium à 40 mg de  $\text{Ca}^{++}$  par centimètre cube préparée

ainsi : dans un béccher de 2 l

- .  $\text{CO}_3\text{Ca}$  RP Normapur 100 g
- .  $\text{H}_2\text{O}$  200  $\text{cm}^3$
- .  $\text{HCl}$ , d 1,19 qsp dissoudre, puis 10  $\text{cm}^3$  en excès
- .  $\text{H}_2\text{O}$  qsp 1000  $\text{cm}^3$ .
- Solution à 0,5  $\text{mg.cm}^{-3}$  de fer ( $\text{Fe}^{+++}$ )

- Acide oxalique R.P. solution à 10 % dans l'eau
- Acide orthophosphorique RP Normapur 85 % d 1,70
- Hydroxylammonium chlorure Normapur
- Résine Dowex I x 2. 50-100 Mesh.

Préparer une colonne avec cette résine :

- . diamètre intérieur de la colonne 1,2 cm
- . hauteur de résine 10 cm environ

Laver la résine en passant 250  $\text{cm}^3$  de  $\text{HNO}_3$  8 M pour la mettre sous forme  $\text{NO}_3^-$  et contrôler qu'il n'y a plus d'ions  $\text{Cl}^-$  dans le liquide de sortie de colonne, à l'aide de la solution de nitrate d'argent..



## V. MODE OPERATOIRE (voir ANNEXE)

### PREPARATION DES CENDRES

- 1 - Recueillir les matières fécales dans un sac de polyéthylène.
- 2 - Mettre le sac ouvert dans une capsule de silice ou de platine <sup>(\*)</sup>
- 3 - Porter au four à 200 C pendant une journée et élever progressivement la température jusqu'à 700° C.
- 4 - Maintenir cette température une journée ou une nuit.
- 5 - Recueillir les cendres et les peser.

### ATTAQUE DES CENDRES

- 6 - Dans un bécher de 250 cm<sup>3</sup>, mettre 5 grammes de cendres. Celles-ci peuvent contenir de la silice qui provient soit de l'attaque de la capsule soit d'un médicament à base de silice absorbé par le sujet. Pour insolubiliser une grande partie de cette silice, reprendre les cendres avec 50 cm<sup>3</sup> de HCl concentré (d : 1.19) et évaporer à sec sur plaque chauffante. Refaire une fois cette opération.

Ajouter alors 150 cm<sup>3</sup> de HNO<sub>3</sub> 1/3. Couvrir avec un verre de montre et faire bouillir 30 minutes en évitant l'évaporation.

- 7 - Filtrer à chaud sur filtre G.F.A. et rincer avec quelques centimètres cubes d'eau.
- 8 - Porter le filtre G.F.A. et son contenu dans une capsule de téflon. Ajouter 30 cm<sup>3</sup> de HF et 2 à 3 cm<sup>3</sup> de HNO<sub>3</sub> R.P, aller à sec. Refaire une fois cette opération.
- 9 - Reprendre le résidu avec 30 cm<sup>3</sup> de HNO<sub>3</sub> 1/3 ; chauffer, filtrer sur filtre G.F.A. ; rincer avec quelques centimètres cubes d'eau et joindre ce liquide de filtration au filtrat initial obtenu en 7.

### PRECIPITATION DU PHOSPHATE DE FER POUR ENTRAÎNER LES RADIOELEMENTS

- 10 - Porter le bécher contenant les filtrats sur un agitateur magnétique (barreau de 4 cm) et agiter constamment.
- 11 - Ajouter de l'ammoniaque concentrée et, quand le précipité formé au

---

(\*) La platine est d'un prix plus élevé mais évite la formation de silicates au contact de certaines cendres, à température élevée. La présence d'un excès de silice gêne la suite des opérations (colmatage de la résine échangeuse d'ions) rendant alors nécessaire son élimination.

contact de l'ammoniaque ne se redissout plus que lentement, ajouter de l'ammoniaque diluée au 1/5, goutte à goutte jusqu'à pH 4 (ne pas aller au-delà) et continuer l'agitation pendant 5 minutes après ajustement du pH.

- 12 - Recueillir le précipité de phosphate par centrifugation et rejeter le liquide surnageant (centrifugation 10 minutes à 3 500 tours par minute).

#### SEPARATION DU PLUTONIUM ET ELIMINATION D'UNE PARTIE DU THORIUM SELON HENRY (2)

- 13 - Reprendre le culot de phosphate de fer avec 100 cm<sup>3</sup> de HNO<sub>3</sub> 8 M et ajouter 200 mg de NaNO<sub>2</sub> en agitant. Laisser en contact 10 minutes puis chasser les vapeurs nitreuses en portant à 70° C et en agitant la solution (barreau magnétique de 4 cm).
- 14 - Laisser refroidir et passer sur la colonne de résine à raison de 1 à 2 cm<sup>3</sup> à la minute.
- 15 - Laver cette colonne avec 120 cm<sup>3</sup> de HNO<sub>3</sub> 8 M. Joindre ce liquide de lavage à la solution nitrique précédente. L'américium, le curium, le fer, l'uranium, le radium, une partie de thorium (environ 30 %) passent avec les solutions nitriques 8 M de fixation et de lavage.
- 16 - Laver ensuite avec 80 cm<sup>3</sup> de HCl 9 M pour éliminer la fraction de thorium fixée. Cette fraction éventuellement évaporée contient environ 70 % de thorium. Elle ne présente que très peu de résidu pondéral. Si le thorium n'est pas recherché, éliminer cette fraction.
- 17 - Eluer le plutonium avec 80 cm<sup>3</sup> de HCl 0,2 M contenant 0,8 g de chlorhydrate d'hydroxylamine (hydroxylammonium chlorure). Ne pas dépasser un débit de 1 cm<sup>3</sup> à la minute.
- 18 - Evaporer cette solution additionnée de quelques centimètres cubes de HNO<sub>3</sub> RP et porter le résidu d'évaporation quantitativement sur un verre de montre de 4 cm de diamètre. Calciner légèrement le verre de montre sur la flamme d'un bec Bunsen. Ce résidu représente la fraction plutonium dont on mesurera l'activité.

#### ELIMINATION DU THORIUM ET EVENTUELLEMENT DU PLUTONIUM QUI SUBSISTENT DANS LES PHASES NITRIQUES

- 19 - Evaporer la solution nitrique obtenue en 15 et arrêter quand il reste environ 5 cm<sup>3</sup> dans le bécher.

- 20 - Ajouter 20 cm<sup>3</sup> de HNO<sub>3</sub> 1/3. Chauffer légèrement pour dissoudre. La solution peut présenter un léger louche sans inconvénient pour la suite des opérations.
- 21 - Porter quantitativement dans une ampoule à décanter de 100 cm<sup>3</sup> en rinçant avec HNO<sub>3</sub> 1/3 pour obtenir un volume de 40 cm<sup>3</sup>. Extraire à deux reprises différentes le thorium. Utiliser pour cela 20 cm<sup>3</sup> de solution de T.O.P.O. dans le xylène pour chaque extraction soit 40 cm<sup>3</sup> en tout.
- 22 - Après élimination des solutions de T.O.P.O., laver la solution nitrique à trois reprises, avec 20 cm<sup>3</sup> de xylène (60 cm<sup>3</sup> en tout). Éliminer le xylène de lavage. Évaporer à sec sans surchauffer. Reprendre avec 15 cm<sup>3</sup> de HCl au 1/3.

#### ELIMINATION DU FER

- 23 - Ajouter 100 mg de calcium ( 2,5 cm<sup>3</sup> de la solution) et porter quantitativement dans un pot à centrifuger de 100 cm<sup>3</sup> en rinçant avec quelques centimètres cubes d'eau.
- 24 - Ajouter successivement :
- . 3 centimètres cubes d'ammoniaque RP. Mélanger
  - . 30 centimètres cubes de solution d'acide oxalique à 10 %. Mélanger.
  - . 2 centimètres cubes d'ammoniaque RP *en surface* puis mélanger.
- L'oxalate de calcium précipite et entraîne les radioéléments tels Am, Cm, ...
- L'uranium (UVI) éventuellement présent n'est pas entraîné.
- 25 - Attendre 10 minutes puis centrifuger pendant 10 min à 3 500 tours par minute, rejeter le surnageant.
- 26 - Ajouter 15 cm<sup>3</sup> de HCl 1/3 sur le culot de centrifugation. Dissocier celui-ci à l'aide d'un petit agitateur de verre. Porter le pot de centrifugation au bain-marie bouillant pour dissoudre. Exceptionnellement, la dissolution peut être lente ; ajouter alors quelques fractions de 0,1 cm<sup>3</sup> de HCl concentré sans dépasser 0,3 cm<sup>3</sup> en tout. Laisser refroidir après dissolution.
- 27 - Ajouter successivement :
- . 3 cm<sup>3</sup> d'ammoniaque RP et mélanger.
  - . 20 cm<sup>3</sup> de la solution d'acide oxalique à 10 %. Mélanger.
  - . 2 cm<sup>3</sup> d'ammoniaque RP en surface, puis mélanger.
- L'oxalate de calcium reprécipite.

- 28 - Après 10 minutes, centrifuger (cf. 25).  
29 - Refaire les opérations 26 - 27 - 28 (*purification de l'oxalate*).

#### ELIMINATION DU CALCIUM

- 30 - Porter le tube à centrifuger contenant l'oxalate dans un bécber de 250 cm<sup>3</sup> et mettre le bécber au four préalablement chauffé à 120° C. Laisser 1/2 heure puis monter progressivement la température à 500° C. Laisser une heure trente. L'oxalate est transformé en carbonate.
- 31 - Reprendre le résidu de carbonate avec 10 cm<sup>3</sup> de HNO<sub>3</sub> RP d 1,33. Porter quantitativement dans un bécber de 250 cm<sup>3</sup> et compléter à 100 cm<sup>3</sup> en rinçant le tube avec de l'eau distillée. Ajouter 2 grammes de chlorhydrate d'hydroxylamine et 0.2 cm<sup>3</sup> de H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub>. Couvrir avec un verre de montre et porter à ébullition modérée pendant 20 minutes en prenant soin d'éviter l'évaporation. Laisser refroidir et filtrer sous vide sur un filtre millipore de 5 µm afin d'éliminer les impuretés en suspension. Ajouter 0,5 mg de fer (Fe<sup>+++</sup>) dans le filtrat.
- 32 - Recueillir ce filtrat et ajouter 100 cm<sup>3</sup> d'eau distillée. Ajuster le pH à 5 avec de l'ammoniaque et en agitant (barreau de 2 cm). On se sert d'ammoniaque diluée au 1/5 quand on approche de pH 5. Si on dépasse cette valeur, réacidifier par addition de HNO<sub>3</sub> et réajuster à 5 (x).
- 33 - Avec un filtre millipore de 0,2 µm ou de 0,45 µm de porosité (xx) filtrer la solution à pH 5. Rincer trois fois avec 10 cm<sup>3</sup> d'eau.
- 34 - Sécher le filtre jusqu'à poids constant, à l'aide d'une lampe à infrarouges, placée à 10 cm de distance. Cette opération demande environ 10 min. Le filtre est maintenu plat avec une bague de verre.
- 35 - Après dessiccation, mettre le filtre sur son support.

---

(x) On peut avoir un précipité relativement important à pH 5. Ceci se produit avec un excès de calcium (si on a effectué la précipitation du phosphate de fer du début de la technique trop au-dessus de pH 4). Dans ce cas, on peut redissoudre avec HNO<sub>3</sub>, compléter à 400 ml avec de l'eau distillée et tenter une nouvelle mise à pH 5.

(xx) La filtration est plus rapide avec le filtre de 0,45 µm mais la qualité du spectre semble moins bonne qu'avec le filtre de 0,2 µm de porosité. Le très léger précipité obtenu doit s'enfoncer plus facilement dans un filtre de 0,45 µm.

## MESURE

Elle est effectuée soit par comptage global soit par spectrométrie alpha.

## 36 - Comptage global

Le filtre ou le verre de montre sont placés dans le compteur.

L'activité  $\alpha$  totale est calculée après soustraction du bruit de fond de l'installation.

## 37 - Spectrométrie

Il est recommandé d'utiliser un analyseur d'amplitude comportant au moins 800 canaux afin de pouvoir explorer la gamme 0 à 9 MeV avec une définition suffisante compte tenu de la résolution du détecteur (0,8 % à 5,5 MeV).

Fraction Pu - Il s'agit d'un dépôt sur verre de montre qui est généralement - pour ne pas dire systématiquement - de très faible épaisseur. Les spectres sont donc bien résolus et la détermination de chacun des isotopes de Pu ( $^{239+240}$ , 238, 236) ne pose pas de difficulté.

Fraction Am - Cm - Le support est ici un filtre millipore. Le poids réduit du précipité et sa répartition sur une surface importante donnent ici aussi, une résolution satisfaisante (Ce spectre est toutefois moins bon que sur le verre de montre car le précipité pénètre à l'intérieur du filtre).

Sensibilité - Le bruit de fond entre 4 et 6 MeV est de 0,015 c/min. Au niveau de chacun des pics précités ( $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$ , 242 et  $^{244}\text{Cm}$ ), il est de l'ordre de 0,002 c/min conduisant à des seuils de détection très bas pour ces éléments.

La purge de la chambre avant la mesure, même lorsque l'opération est répétée deux ou trois fois, n'est pas toujours suffisante pour obtenir un bruit de fond aussi faible que celui annoncé ci-dessus. Le spectre de la figure 1 montre la présence des radioéléments caractéristiques des dépôts actifs à vie longue du  $^{222}\text{Rn}$  (c'est-à-dire le  $^{218}\text{Po}$  à 6 MeV et le  $^{214}\text{Po}$  à 7,69 MeV) et du  $^{220}\text{Rn}$  (c'est-à-dire le  $^{212}\text{Bi}$  à 6,05 MeV et le  $^{212}\text{Po}$  à 8,78 MeV). Pour supprimer cet inconvénient, on annule le comptage des premières heures et on recommence la mesure sans avoir ouvert la chambre. Ainsi, par combinaison entre balayage et décroissance, on arrive à éliminer ces éléments gênants.

Dans le cas de la figure 1, le bruit de fond entre 4 et 6 MeV est cinq fois plus élevé que la valeur indiquée ci-dessus.

## VI. RESULTATS

Le rendement a été déterminé sur des cendres de matières fécales non contaminées dans lesquelles nous avons ajouté des radionucléides. Pour le plutonium, le rendement moyen est de 95 % (écart-type = 4 sur huit analyses). Pour l'américium et le curium mélangés, le rendement moyen est de 81,7% (écart-type = 6,2 sur huit analyses). Le plutonium non fixé sur résine est éliminé lors de l'extraction au T.O.P.O.

## VII. DISCUSSION

### VII.1. - POIDS DU DEPOT

Sur les filtres millipore, il est le plus souvent compris entre 1,5 et 2,5 mg. Toutefois pour deux analyses sur les huit réalisées, nous avons obtenu des poids supérieurs (4,7 et 6,2 mg), ce qui conduit à des dépôts de 0,1 à 0,6 mg par centimètre carré.

### VII.2. - ELIMINATION DU THORIUM

Deux cas de contamination humaine par un mélange de transuraniens à bas niveau d'activité ont été étudiés : cas I et II.

Les spectres de la figure 2 ont été obtenus lors de l'analyse fécale dans le cas n° I.

- Les spectres 2.1, 2.2 et 2.3 correspondent respectivement aux fractions Pu, Am - Cm et Th, obtenues à partir de la technique sélective sur une première prise d'essai.

Fraction Pu - Le spectre met en évidence un mélange de  $^{239+240}\text{Pu}$  et de  $^{238}\text{Pu}$  à parties égales. L'activité est très faible, de l'ordre de 0,05 pCi pour 3,6 g de cendres.

Fraction Am - Cm - Les pics de  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{244}\text{Cm}$  et  $^{242}\text{Cm}$  sont bien séparés. Les activités sont respectivement de l'ordre de 0,6, 0,25 et 0,15 pCi pour 3,6 g de cendres. Il n'y a pas de thorium.

Fraction Th - Il s'agit d'un spectre pur de thorium. La mesure ayant été faite tardivement après la séparation chimique, le  $^{228}\text{Th}$  est presque à l'équilibre avec ses descendants.

- Le spectre 2.4 est celui du précipité sur millipore obtenu par la technique alpha totale globale sur une seconde prise d'essai. Il y a addition des trois spectres précédents avec impossibilité de séparer, ni même de détecter, les radionucléides artificiels dans le bruit de fond naturel important dû au thorium.

Pour le cas n° II, seule la technique sélective a été utilisée pour l'analyse fécale. Les conclusions sont semblables à celles obtenues pour le prélèvement précédent :

Fraction Pu - Spectre 3.1. L'activité est plus élevée que dans le cas précédent : 4 pCi pour 2.4 g de cendres dont 25 % de  $^{238}\text{Pu}$ .

Fraction Am - Cm - Spectre 3.2. L'activité du mélange est faible : 0,6 pCi pour 2,4 g de cendres. Les pourcentages sont de l'ordre de 75 % de  $^{241}\text{Am}$ , 25 % de  $^{242}\text{Cm}$  et 2,5 % de  $^{244}\text{Cm}$ . Un prélèvement de poussières inhalées a confirmé la présence de  $^{244}\text{Cm}$  et l'ordre de grandeur des pourcentages. Le thorium a été éliminé.

Fraction Th - Figure 3.3.

### VII.3. - ELIMINATION DE L'URANIUM

Les matières fécales humaines, sauf régime alimentaire particulier, ne contiennent que des traces d'uranium. Afin de rendre l'essai plus démonstratif, nous avons utilisé des cendres fécales de porc riches en cet élément. La teneur en  $^{238}\text{U}$ , déterminée par spectrométrie gamma et fluorescence X, est de l'ordre de 10 pCi/gramme de cendres.

Le spectre 1 de la figure 4 est celui du précipité sur millipore obtenu par la technique alpha globale. On remarque un pic très important dû au  $^{230}\text{Th}$  (3 pCi par gramme) et des pics très faibles dus à des traces de  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{228}\text{Th}$  et  $^{238}\text{U}$ . La teneur en uranium au départ étant trois fois supérieure à celle du  $^{230}\text{Th}$ , le spectre confirme bien l'efficacité de la technique alpha globale pour l'élimination de l'uranium (à mieux que 95 %).

Dans le cas de la technique sélective, la purification de l'uranium est encore plus poussée. En effet, l'uranium n'est même plus visible sur le spectre 2.

On remarquera, sur ce même spectre, la purification à 95 % du  $^{230}\text{Th}$ .

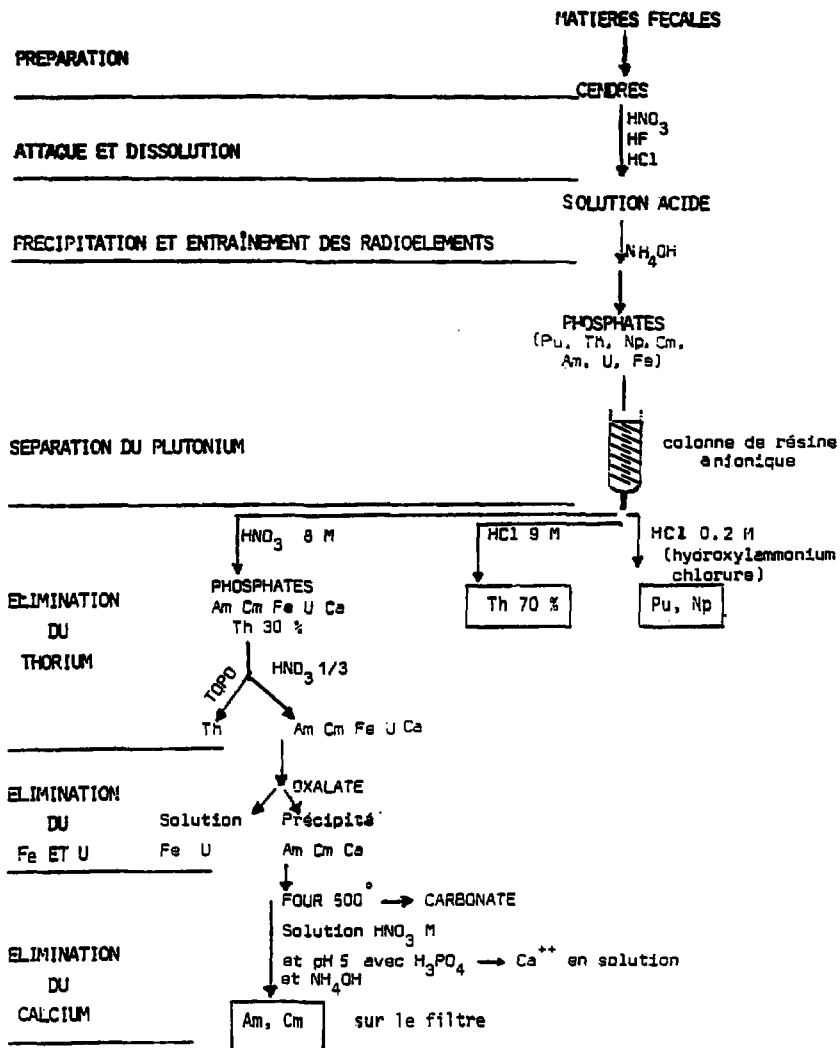
#### REFERENCES

- (1) BALLADA J., DABURON M.L., VERRY M., JEANMAIRE L.  
Détermination analytique des radioéléments émetteurs de particules  $\alpha$  (Pu, Am, Cm, ...) dans les cendres de matières fécales.  
Rapport C E A -R-5103, 1981.
- (2) HENRY Ph.  
Métabolisme et toxicologie du plutonium 239.  
Rapport C E A -R-2381, 1963.
- (3) BUCHANAN R.F. et FARIS J.P.  
Adsorption of the elements from nitric acid by anion-exchange  
ins:Radioisotopes in the physical sciences and industry,  
Copenhagen, Sept. 1960. VIENNE:AIEA, 1962, vol. 2, 361-371.
- (4) EAKINS J.O., GOMM P.J.  
The determination of gross alpha activity in urine by adsorption  
on glass fibre filter paper.  
AERE-R-5474, 1967.
- (5) DELLE SITE A., SANTORI G., TESTA C.  
The determination of plutonium and americium in fecal samples by  
extraction chromatography.  
CNEN/RT-PROT-76/6, 1976.



ANNEXE

SCHEMA DU MODE OPERATOIRE



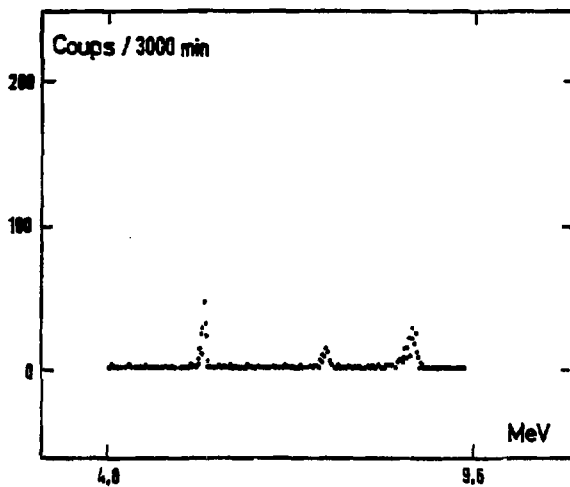


Fig. 1 - SPECTRE de BRUIT de FOND de la CHAMBRE à GRILLE, MONTRANT les DEPÔTS ACTIFS du  $^{220}\text{Rn}$  et du  $^{222}\text{Rn}$

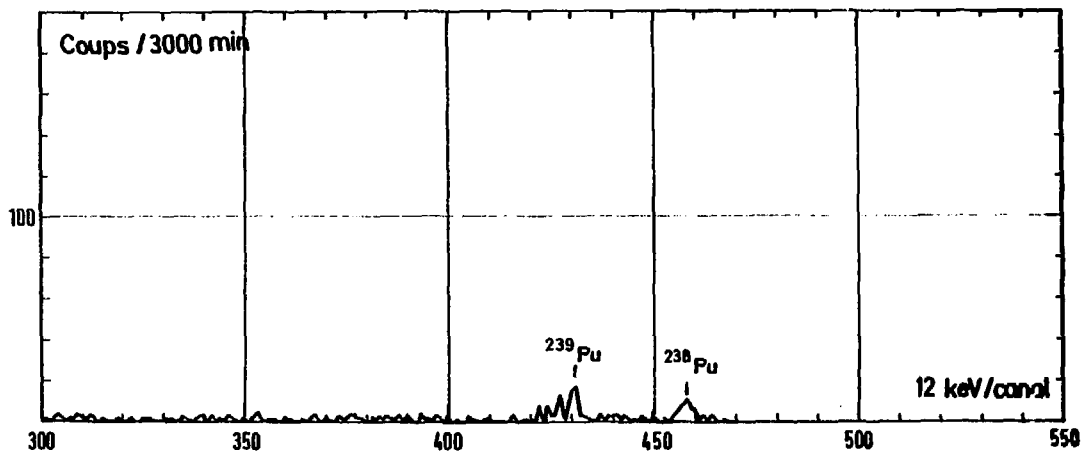


Fig. 2 - 1 - cas I

Matières fécales humaines : PE = 3,6 g  
Fraction Pu sur verre de montre

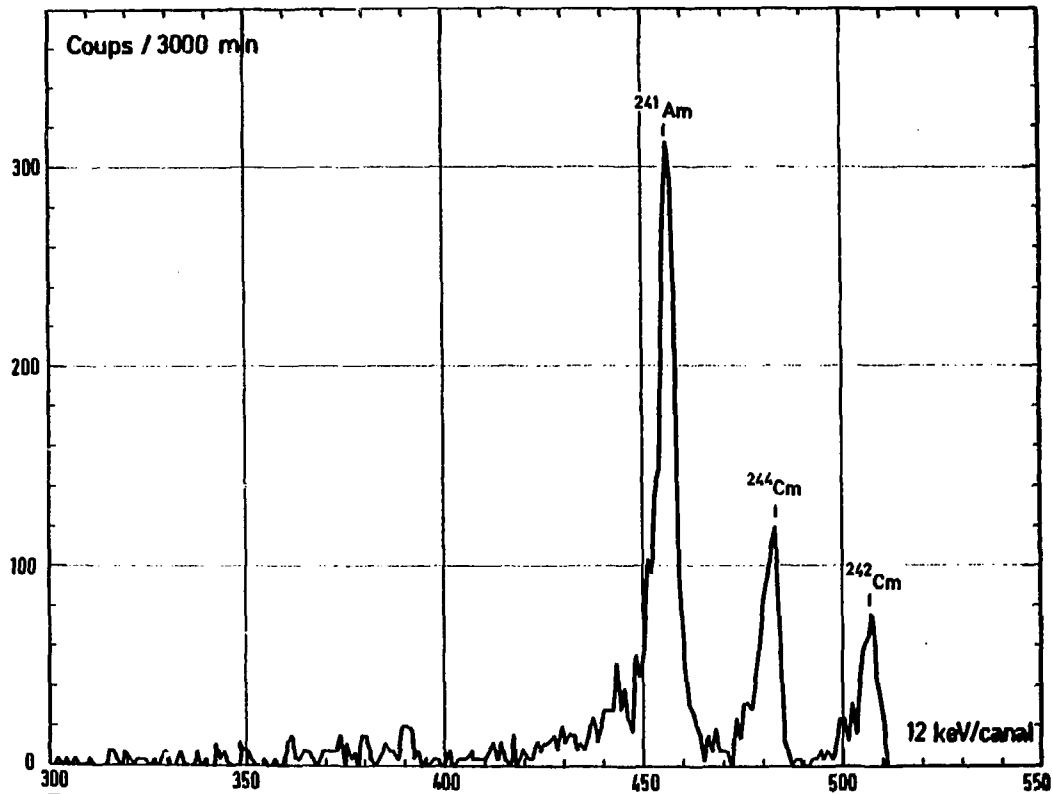


Fig. 2 - 2 - cas I

Matières fécales humaines : PE = 3,6 g  
Fraction Am - Cm sur millipore : poids du dépôt 1,5 mg

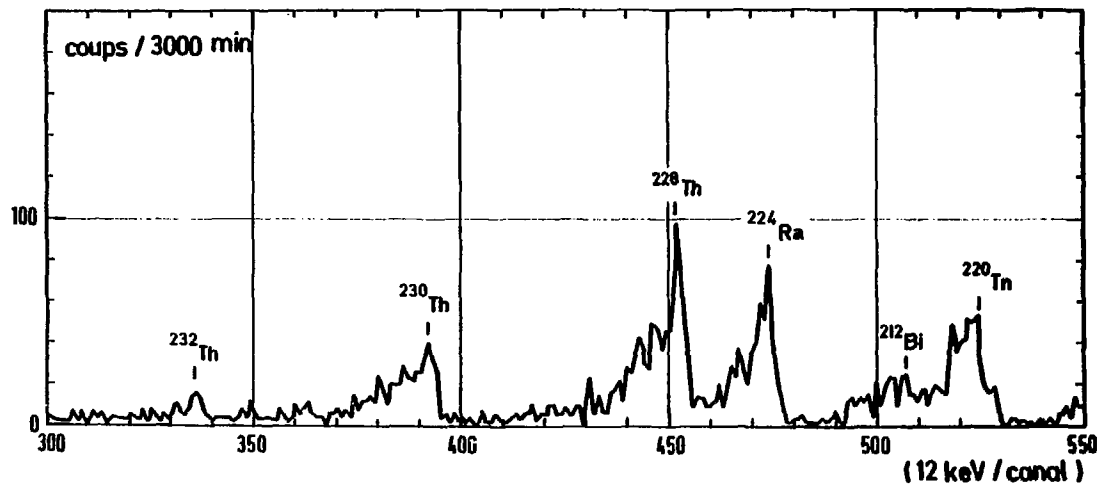


Fig. 2.3 - cas 1

Matières fécales humaines : PE = 3,6 g  
Fraction Th sur verre de montre

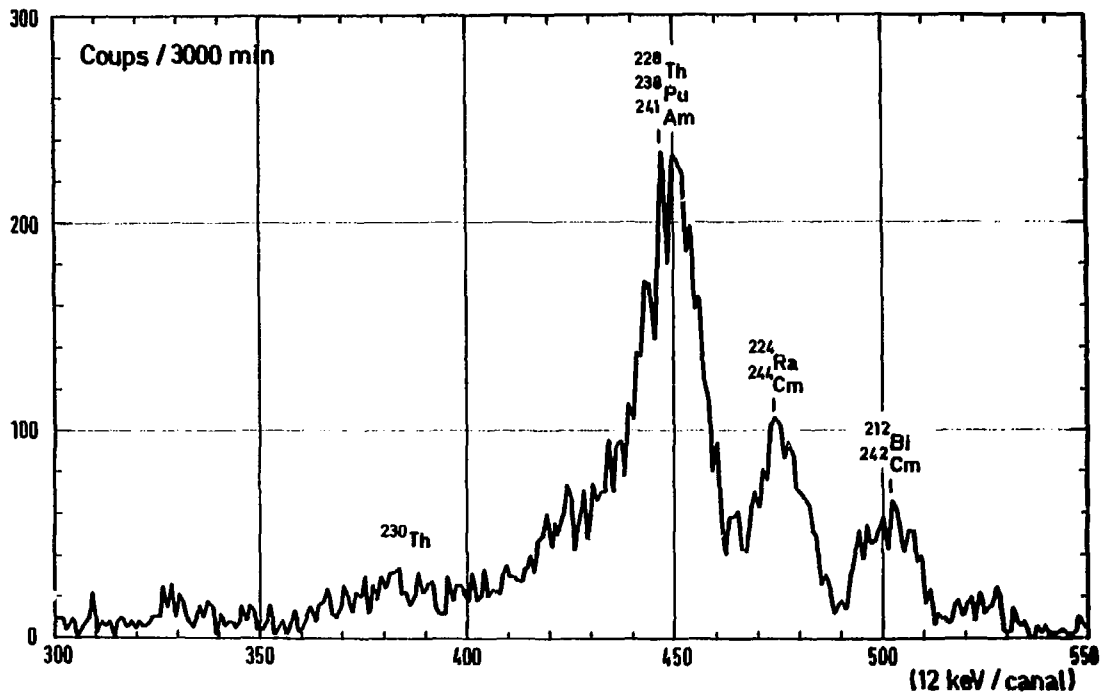


Fig. 2.4 - cas I

Matières fécales humaines : PE = 3,6 g  
Alpha totaux sur millipore

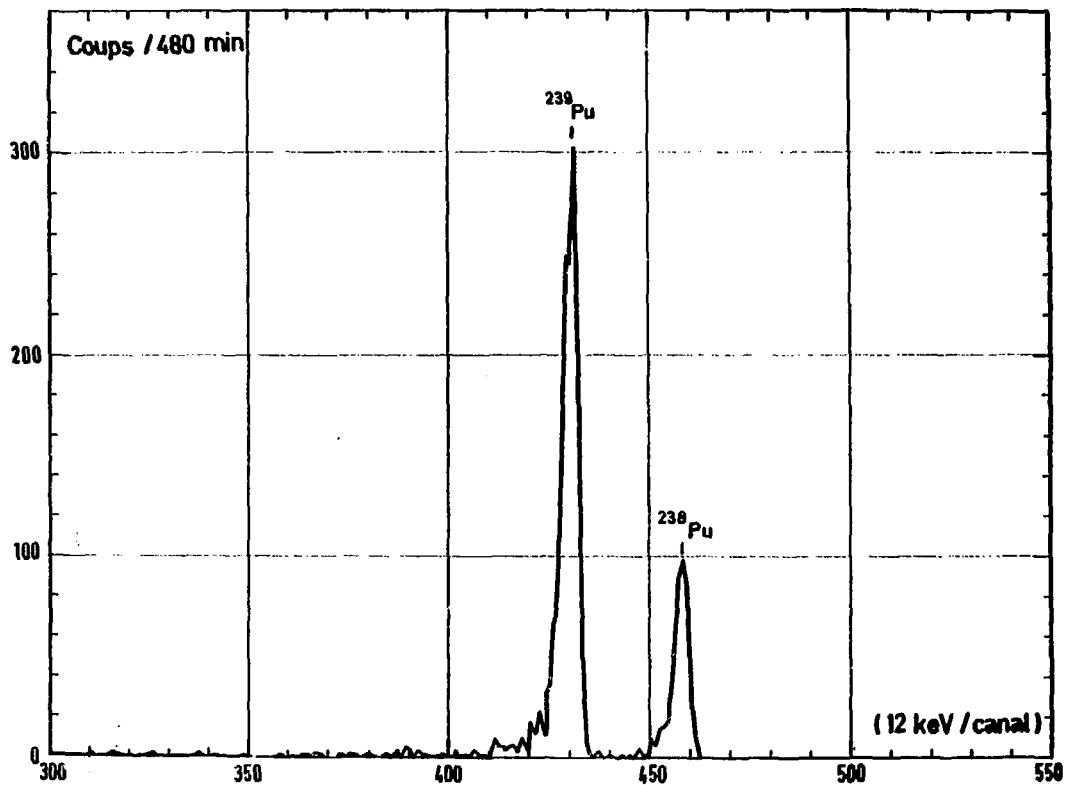


Fig. 3.1 - cas II

Matières fécales humaines  
Fraction Pu sur verre de montre

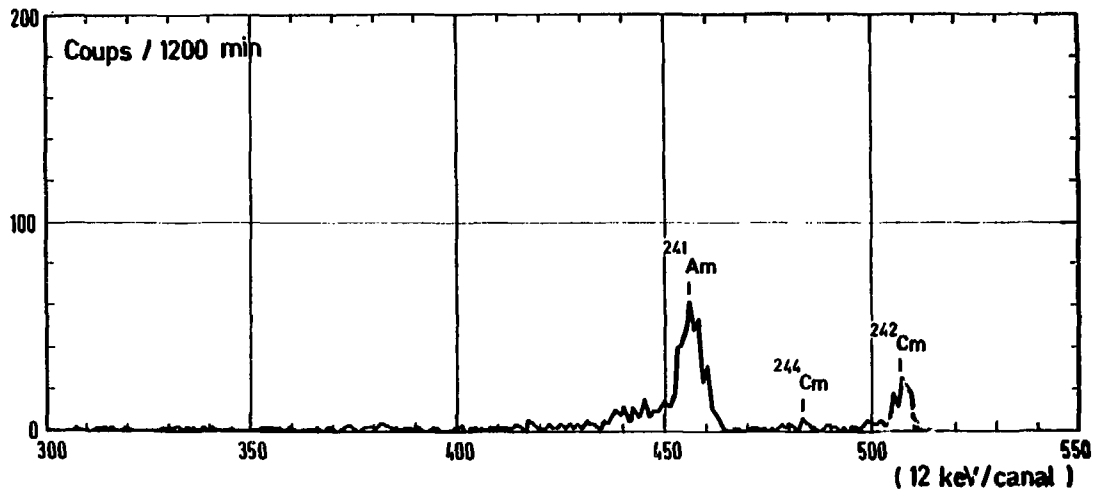


Fig. 3 - 2 \_ cas II

Matières fécales humaines

Fraction Am - Cm sur millipore : poids du dépôt 1,1 mg



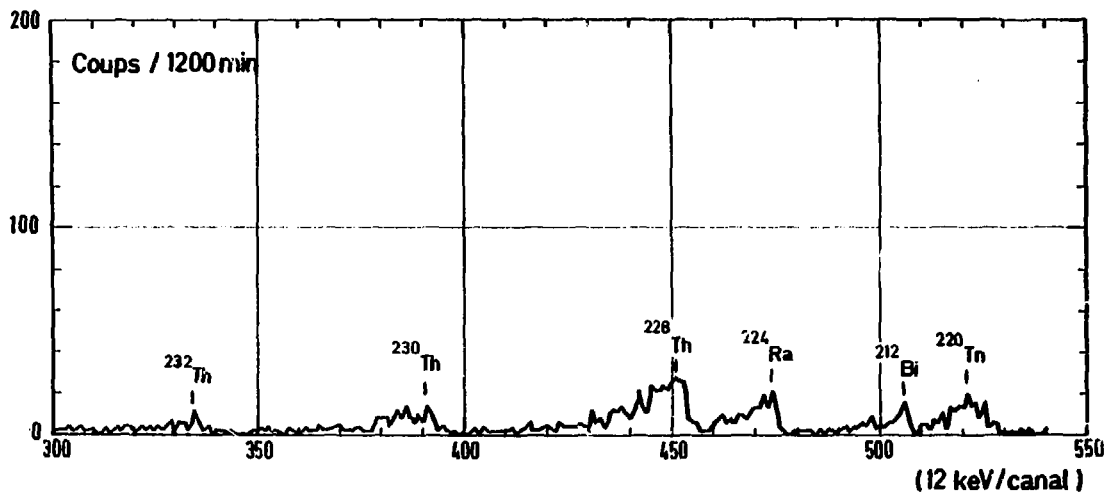


Fig. 3-3 - cas II

Matières fécales humaines  
Fraction Th sur verre de montre

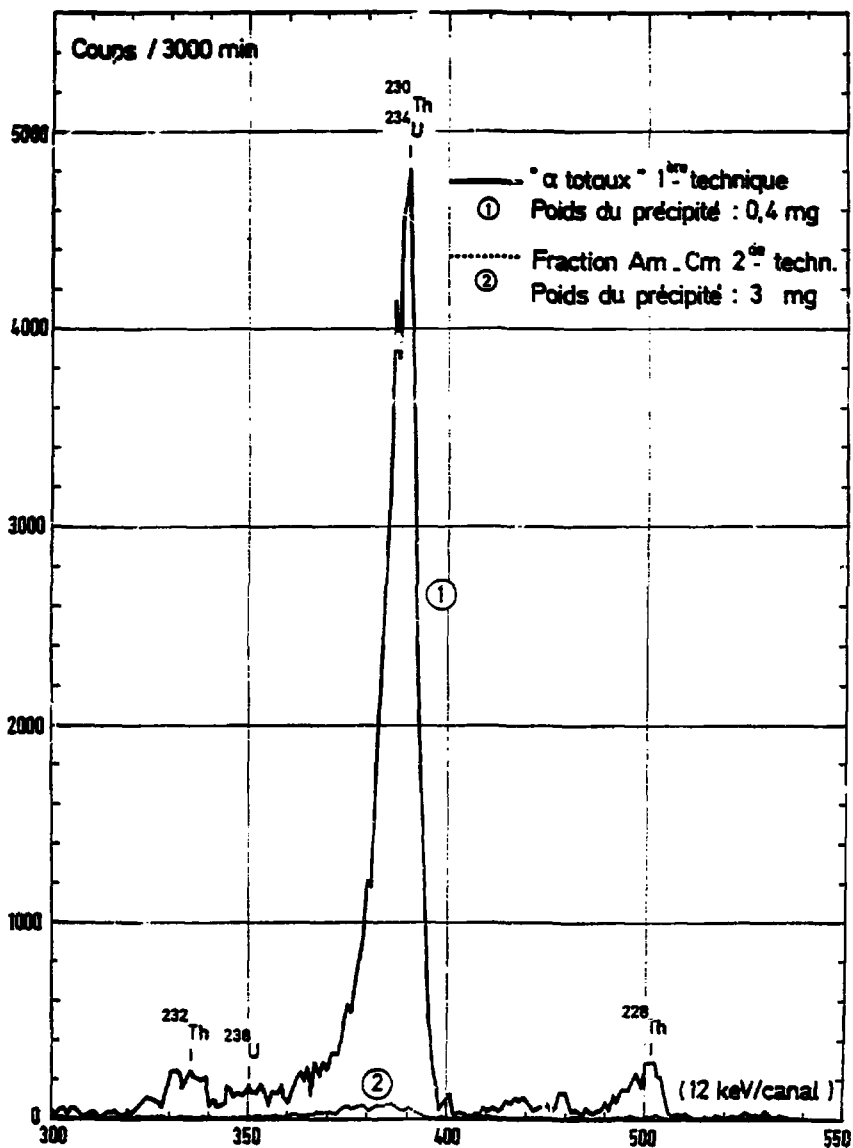


Fig. 4 -

Cendres fécales de porc : PE = 5 g

*Achevé d'imprimer  
par  
le CEA, Service de Documentation, Saclay  
Février 1983*

**DEPOT LEGAL**  
*1er trimestre 1983*

ISSN 0429 - 3460

*La diffusion des rapports et bibliographies du Commissariat à l'Énergie Atomique est assurée par le Service de Documentation, CEN-Saclay, 91191 Gif-sur-Yvette Cédex, (France)*

*Reports and bibliographies of the Commissariat à l'Énergie Atomique are available from the Service de Documentation, CEN-Saclay, 91191 Gif-sur-Yvette Cédex, (France)*



---

*Edité par*

*le Service de Documentation*

*Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay*

---

*91191 GIF-sur-YVETTE Cédex (France)*

