

CEA

D.C.C. **CEA-RT-DSA -- 09**

D.S.D. _____

Service : SEP
Section : SAED

FR 9100 818

Réf. : R.T. DS .D. n° 09

Date : Septembre 1990

Equipe :

Tâche n°

NOMBRE DE PAGES

Document : 19

Annexes :

tableaux : 5

figures : 5

RAPPORT TECHNIQUE

**DETERMINATION DU PLUTONIUM 241
DANS LES SOLUTIONS DE DECHETS NUCLEAIRES**

A. RAYMOND J.B. BILCOT C. POLETIKO

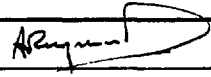
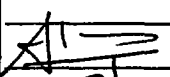
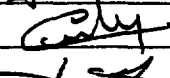
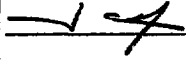
DS D. n° 9

F.A. 6740-31

F.D.P.

NOM et VISA

Date

	NOM et VISA	Date
Auteur	A. RAYMOND 	25.9.90
Chef de Section..	A. HERES 	25-9-90
Chef de Service..	C. COURTOIS 	1-10-90
Chef du DS D ..	J.C. MOUGNIOT 	11-10-90



DIFFUSION

SIEGEDPg
DT/DgVSACLAYDCC
DCC/RSD - M. BAUDIN
DCC/D Pro - M. LEFEVRE
DCC - M. BUFFEREAU
DOCCADARACHEDSD - M. MOUGNIOT
- M. SAAS/SECI*
/SECI/CIDD
/SEP - M. COURTOIS
/SEP/SAED
/SEP/SETED
/SER*FONTENAY AUX ROSESANDRA - M. NOUGUIER
- Mme LEVELLUT

DCC/SPR/CETAMA

COGEMA/La HagueService Laboratoires
SED - M. BOUDRYCOGEMA/Marcoule

Service Laboratoires

COGEMA/Vélizy

SMO - M. LAURENT

ENREGISTREMENT CIDD

FDP	Edition N° Date	Révision N°	Fiche CEA N°	Objectif N°
			6740	31

CLASSE DOC :

0

TYPE DOC :

R.T

CODE CHAPITRE

005

Résumé :

L'importance de la détermination du plutonium 241 dans les déchets nucléaires est mise en relief par les longues périodes et les grandes énergies de certains de ses descendants. C'est pourquoi nous proposons dans ce rapport deux méthodes de dosage, chacune d'elle utilisant la scintillation liquide comme technique de mesure :

- Une méthode complète, utilisable dans tous les cas, faisant intervenir une extraction sélective du plutonium sur résine anionique et permettant la mesure simultanée de l'isotope 241 et de la somme des autres isotopes de cet élément.
- Une méthode simplifiée, utilisable dans les cas où l'activité alpha est supérieure à l'activité bêta/gamma, faisant intervenir une extraction liquide-liquide par la TTA.

L'utilisation de ces méthodes est illustrée par leur application à l'analyse de 4 types de déchets différents :

- Enrobés ciment.
- Enrobés bitumineux.
- Cendres d'incinération.
- Lixiviation d'enrobés de cendres d'incinération.

Dans ces quatre exemples les activités en ^{241}Pu égalent ou dépassent les sommes des activités des isotopes de plutonium émetteurs alpha. Les rendements de séparation, mesurés à partir de ^{239}Pu ou d'un traceur de ^{236}Pu , sont compris entre 90 et 99 %.

Mots clés : Plutonium 241 - Scintillation liquide - Emetteurs alpha - Déchets nucléaires - Stockage.

SOMMAIRE

I. INTRODUCTION

II. PARTIE EXPERIMENTALE

II.1. SCINTILLATION LIQUIDE

II.2. SEPARATION CHIMIQUE DU PLUTONIUM

II.2.1. Procédure complète

II.2.2. Procédure simplifiée

II.3. LIMITES DE DETECTION

II.3.1. Limites de détection théoriques

II.3.2. Limites de détection pratiques

III. EXEMPLES D'APPLICATION

III.1. ENROBES BETON

III.2. CENDRES D'INCINERATEUR

III.3. LIXIVIATION D'ENROBES DE CENDRES D'INCINERATION

III.4. ENROBES BITUMINEUX

IV. CONCLUSION

BIBLIOGRAPHIE

I. INTRODUCTION

Le plutonium 241 dans les réacteurs nucléaires est produit par activation :

- de l'uranium 238 dans les combustibles uranium.
- du plutonium 240 dans les combustibles mixtes U-Pu.

Lors du retraitement cet isotope n'est pas distinct des émetteurs alpha que sont les isotopes 238, 239, 240 et 242 du plutonium.

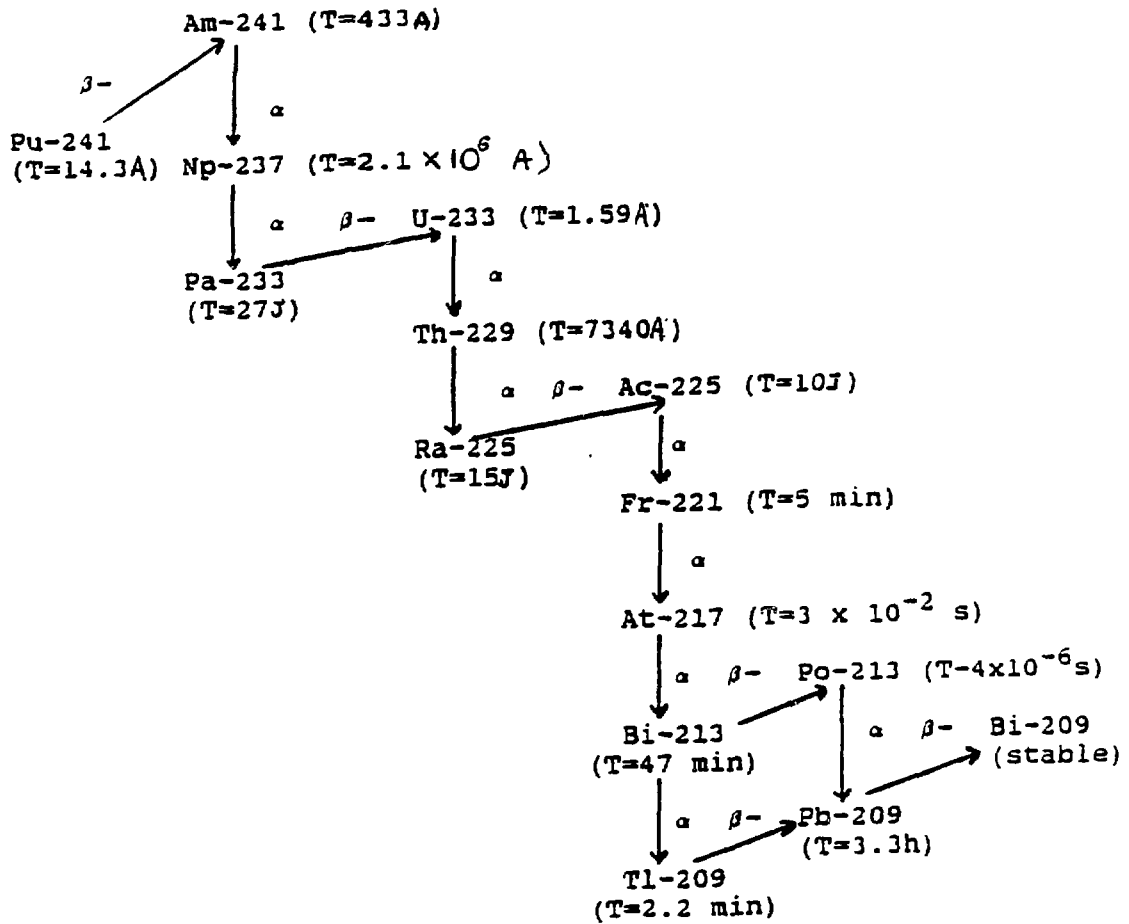
Cependant sa courte période (14 ans) et sa descendance (^{241}Am) font que cet élément présente, au niveau du stockage des déchets, un problème à long terme. La production de cet isotope est la plus abondante des transuraniens ; CLINE [1] a calculé le pourcentage en activité dans une centrale REP de 1000 MW électriques :

^{238}Pu	:	2,9 %	^{239}Pu	:	0,3 %	^{240}Pu	:	0,4 %
^{241}Pu	:	81,4 %	^{241}Am	:	0,13 %	^{243}Am	:	0,01 %
^{242}Cm	:	12,7 %	^{244}Cm	:	2,1 %			

D'autres auteurs ([2] et [3]) ont calculé les rapports massiques du plutonium correspondants aux rapports d'activité donnés ci-dessus :

^{238}Pu	:	1,8 %	^{239}Pu	:	58,2 %	^{240}Pu	:	22,7 %
^{241}Pu	:	12,3 %	^{242}Pu	:	5 %			

Le plutonium 241 peut non seulement s'activer à son tour mais également décroître selon le schéma de la figure 1. C'est cette décroissance qui se produit lors du stockage de déchets nucléaires :

FIGURE 1 : DESCENDANCE DE ^{241}Pu

Les longues périodes de ^{237}Np et de ^{229}Th d'une part et les courtes périodes de tous les descendants de ce dernier d'autre part impliquent un équilibre radioactif, et, donc, une émission simultanée de tous les alpha et bêta, ce qui produit, à long terme, une énergie considérable pouvant agir sur les matrices d'enrobés. Certains de ces descendants (^{213}Po par exemple) sont en effet des émetteurs alpha de haute énergie.

D'autres part, lorsque ^{241}Pu décroît, son premier descendant, ^{241}Am , va croître pendant 72 ans avant de commencer lui-même à décroître en générant la longue liste d'isotopes représentée dans la figure 1.

Cependant, en dépit de l'importance de ^{241}Pu , cet isotope est rarement quantifié en raison principalement de sa difficulté de détection, elle-même liée à son schéma de décroissance (figure 2):

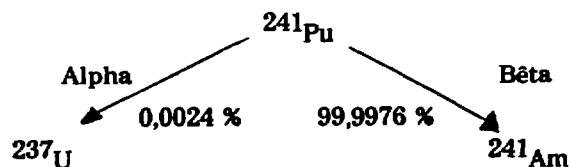


FIGURE 2 : SCHEMA DE DECROISSANCE DE ^{241}Pu

^{241}Pu n'émet pas de rayonnement gamma et son rayonnement alpha est de très faible intensité (0,0024 %). Il s'agit essentiellement d'un émetteur bêta mais de très faible énergie (20,8 KeV), valeur comparable à celle du tritium (18,6 KeV).

A partir de ces considérations, 4 méthodes différentes de dosage peuvent être envisagées :

- Mesure, par spectrométrie gamma, de son descendant à l'équilibre, ^{237}U . Compte tenu de la faible probabilité de cette transition, seules les solutions riches en ^{241}Pu pourront être analysées ainsi.
- Mesure par spectrométrie alpha de son descendant le plus important, ^{241}Am . Mais en raison de la période de ^{241}Pu (14,3 ans) il sera nécessaire d'effectuer deux déterminations séparées par un minimum de 2 années de recroissance.
- Mesure par spectrométrie de masse à thermo-ionisation. Cette méthode très précise ne peut être appliquée qu'à des concentrations élevées, de l'ordre de 10^8Bq/l .
- Séparation chimique spécifique et comptage par scintillation liquide.

En raison de sa sensibilité et de sa relative rapidité, c'est cette dernière procédure que nous avons choisi de développer.

II. PARTIE EXPERIMENTALE

II.1. SCINTILLATION LIQUIDE

Compte tenu des données nucléaires de ^{241}Pu (bêta mou) il est nécessaire d'avoir recours à la scintillation liquide pour la mesure de cet isotope. Cette technique est abondamment utilisée pour la mesure d'autres radionucléides tels que : ^3H , ^{14}C , ^{63}Ni .; il est, pour cela, indispensable d'isoler spécifiquement chaque radioélément puisque nous sommes en présence d'un continuum d'énergie qui peut être interféré par d'autres émetteurs bêta, X ou gamma. En outre ce type de rayonnement est sensible à quelques facteurs susceptibles d'en affaiblir les effets ; il s'agit essentiellement de la coloration ou de la présence de certains agents chimiques dans l'échantillon (apparition du "quenching").

L'analyse par scintillation liquide d'un mélange d'isotopes de plutonium conduit à l'obtention d'une courbe intensité = f(énergie) telle que celle représentée par la figure 3.

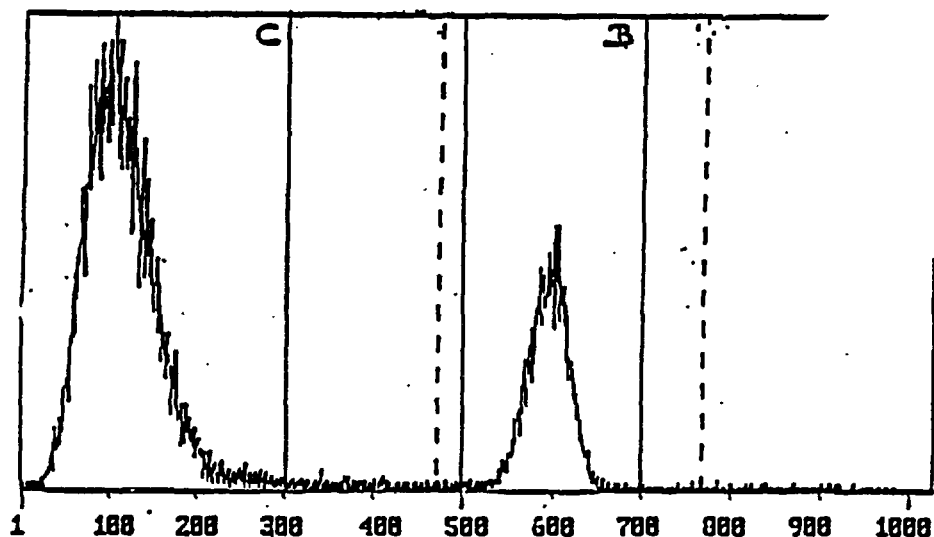


FIGURE 3 : VISUALISATION DU SPECTRE OBTENU PAR L'ANALYSE D'ISOTOPES DE PLUTONIUM PAR SCINTILLATION LIQUIDE

Le spectre peut être divisé en trois parties :

Canaux 1 à 300 : ^{241}Pu (fenêtre C)

Canaux 500 à 700 : émetteurs alpha (fenêtre B) ; la scintillation liquide n'a pas une résolution suffisante pour permettre une distinction entre les différents isotopes concernés.

Canaux 1 à 1000 : Totalité du spectre (fenêtre A).

Le comptage de chaque partie du spectre est assuré au moyen de fenêtres où, après un réglage correct, nous devons obtenir :

A = totalité du spectre

B = fenêtre haute énergie correspondant aux isotopes de plutonium émetteurs alpha

C = fenêtre basse énergie correspondant au ^{241}Pu

Nota : En effectuant la sommation du nombre de coups des fenêtres B + C on doit obtenir, aux incertitudes de mesures près, une valeur sensiblement égale au nombre de coups de la fenêtre A. On vérifie par ce moyen :

- si les fenêtres sont bien réglées,
- l'absence d'autres émetteurs bêta que ^{241}Pu .

Pour l'analyse quantitative de ^{241}Pu , la première opération consiste à étalonner l'appareillage en établissant une courbe d'efficacité (ou courbe de quenching) à partir d'une solution étalon de tritium à laquelle on ajoute des quantités croissantes de chloroforme, agent quenchant. Le tritium a été choisi d'une part en raison de son énergie d'émission très proche de celle de ^{241}Pu et d'autre part à cause de l'inexistence de solution étalon de celui-ci. La figure 4 représente la courbe de quenching ainsi obtenue.

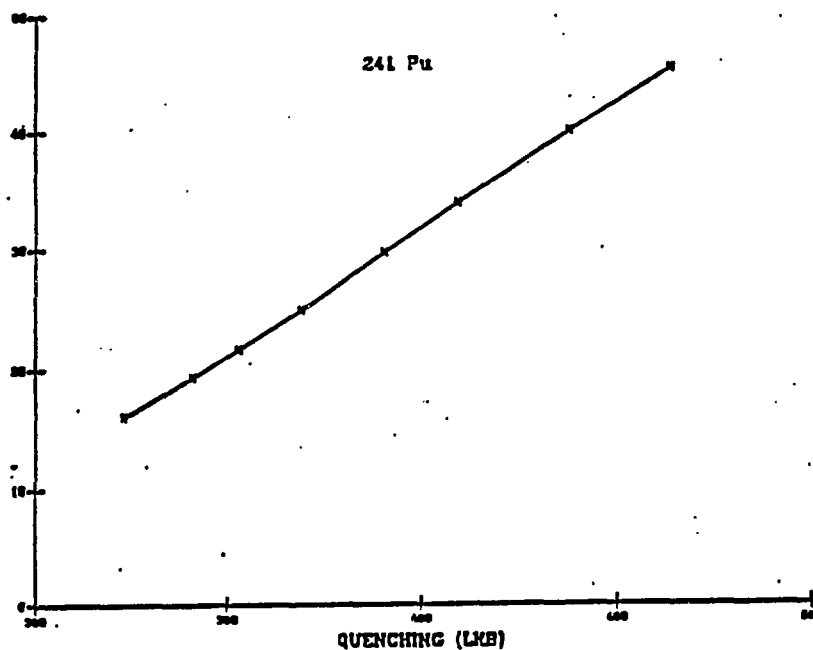


FIGURE 4 : COURBE DE QUENCHING UTILISEE
POUR LE DOSAGE DE ^{241}Pu

Les valeurs indiquées en abscisse sont données par le logiciel de l'appareil utilisé (modèle 1219 de LKB) : il s'agit d'unités arbitraires caractérisant l'importance du quenching lui-même mesuré grâce à une source externe de radium 226.

Comme on peut le voir sur la figure 4, les efficacités de comptage sont comprises entre 15 et 45 %.

Dans le but de vérifier l'étalonnage précédent, nous avons compté par scintillation liquide plusieurs dilutions d'une solution de nitrate de plutonium préalablement analysée par spectrométrie de masse à thermo-ionisation, technique pouvant être considérée comme méthode de référence. Les résultats sont donnés dans le tableau 1.

Echantillons	^{241}Pu (Bq/ech)		Echantillons	^{241}Pu (Bq/ech)	
	TIMS (1) (+/- 1%)	L.S.C. (2) (+/- 5%)		TIMS (1) (+/- 1%)	L.S.C. (2) (+/- 5%)
1	949	1060	5	47,4	54,4
2	474	527	6	23,7	26,2
3	237	262	7	11,9	13,9
4	119	139	8	2,4	2,7

(1) : Spectrométrie de masse à thermo-ionisation après séparation Pu/Am (méthode de référence).

(2) : Scintillation liquide

TABLEAU 1 : COMPARAISON DES RESULTATS DU DOSAGE DE ^{241}Pu OBTENUS PAR SPECTROMETRIE DE MASSE ET PAR SCINTILLATION LIQUIDE

On peut ainsi constater sur ce tableau l'excellente corrélation existant entre les résultats donnés par les deux méthodes (coefficient de corrélation : 0,99997) mais aussi le fait que les résultats donnés par la scintillation liquide avec étalonnage tritium sont toujours supérieurs d'environ 10 % aux valeurs de référence. Une probable explication peut être avancée : l'énergie bêta de ^{241}Pu est légèrement supérieure à celle du tritium, d'où un rendement de détection un peu meilleur que celui donné par la courbe d'étalonnage tritium, ce qui conduirait donc à des résultats un peu surestimés. Les activités réelles en ^{241}Pu sont donc déduites des valeurs données par l'étalonnage tritium après application de l'équation de régression calculée d'après les résultats du tableau 1 :

$$\text{Act. } ^{241}\text{Pu} = \text{act. } ^3\text{H} \times 0,897 - 0,74.$$

Les activités étant exprimées en Bq (formule utilisable au dessus de 10 Bq/échantillon).

En ce qui concerne le pic des émetteurs α (fenêtre B de la figure 3) le rendement de comptage est dans tous les cas supérieur à 95 % en raison de la grande énergie de leur rayonnement ; dans ces conditions aucune courbe de quenching n'est nécessaire pour déterminer l'activité α totale.

En pratique, les mesures par scintillation liquide sont effectuées de la façon suivante : après extraction sélective du plutonium (voir paragraphe II.2), les solutions à doser sont évaporées à sec et les résidus sont redissous dans 1 ml d'acide nitrique 0,1 N, puis mélangés à des aliquotes de 14 ml de liquide scintillant (LUMAGEL).

II.2. SEPARATION CHIMIQUE DU PLUTONIUM

Cette opération est à effectuer chaque fois que des émetteurs β sont présents car leur spectre de scintillation liquide peut interférer avec ceux du ^{241}Pu et des alphas totaux. En particulier, les présences de tritium, de ^{55}Fe , de ^{54}Mn , de ^{59}Ni ou de ^{65}Zn (cette liste n'étant nullement exhaustive) empêchent tout dosage de ^{241}Pu .

En fonction du rapport des activités α d'une part et β d'autre part, deux procédures ont été utilisées :

II.2.1. Procédure complète

Cette méthode adaptée à partir de celle proposée par Hands et Conway [4], est utilisable dans tous les cas, et en particulier dans ceux où l'activité α est faible en comparaison de l'activité β . Les étapes sont les suivantes :

- Mesures par spectrométrie α de la solution de départ (effluents acidifiés, solutions d'attaque acide de déchets solides) de façon à connaître les différents transuraniens présents et leur niveau d'activité.
- Ajout de 20 Bq de ^{236}Pu (traceur) dans chaque prise d'essai de façon à évaluer le rendement de séparation.
- Ajout de 5,6 mg de Fe III (sous forme de chlorure) jouant le rôle d'entraîneur.
- Précipitation par l'ammoniaque à pH 10.

Les éléments transuraniens coprécipitent avec l'entraîneur. La phase insoluble est séparée par centrifugation puis filtration, en général à 0,45 microns. Cette opération permet une très bonne décontamination en produits de fission ou d'activation [5] qui restent en solution.

- Centrifugation, élimination du surnageant et dissolution du précipité par 10 ml d'acide chlorhydrique 9N.
- Réduction du plutonium à la valence III par 0,5 ml d'une solution à 350 g/l de chlorhydrate d'hydroxylamine.
- Oxydation à la valence IV par 0,5 ml de nitrite de sodium (200 g/l).
- Passage sur colonne anionique (6 à 7 cm de résine BIORAD AG1 x 8 sous forme chlorure), rinçage avec 10 ml d'acide chlorhydrique 9N, élimination du fer avec 20 ml d'acide nitrique 7N et élution sélective du Pu avec 25 ml de chlorhydrate d'hydroxylamine (17,5 g/l) en milieu HCL 1,2 N.
- Analyse par spectrométrie α d'une aliquote de la solution de Pu de façon à calculer le rendement de la séparation par la mesure du traceur (^{236}Pu).
- Mesure du ^{241}Pu par scintillation liquide sur une autre aliquote de la solution de Pu et calcul de son activité en tenant compte du rendement de séparation.

II.2.2. Procédure simplifiée

Lorsque l'activité alpha de l'échantillon est suffisamment élevée (> 1000 Bq/l) et si les émetteurs gamma ou bêta purs ne sont pas présents à fortes concentrations conduisant à la présence d'interférences (par entraînement mécanique au cours de la séparation), lors des mesures par scintillation liquide, une procédure simplifiée peut être mise en oeuvre.

Les étapes de cette méthode, adaptée à partir de la procédure de Moore et Hudgens [6], sont les suivantes :

- Spectrométrie alpha, ajout de ^{236}Pu traceur et cycle de valence de Pu : même mode opératoire que pour la méthode complète.

- Extraction sélective par la TTA (thényltrifluoro-acétone) en solution dans le xylène (120 g/l) et équilibrée par l'acide nitrique 1N. Un minimum de 2 extractions est utilisé. Les phases organiques sont ramenées par évaporation à 10 ml, puis lavées avec un volume égal d'acide nitrique 1N.
- Réextraction du plutonium avec 20 ml d'acide nitrique 10 N.
- Analyses du traceur par spectrométrie α et du ^{241}Pu par scintillation liquide (cf. par. II.2.1.) et calcul de l'activité de ce dernier en tenant compte du rendement de séparation.

II.3. LIMITES DE DETECTION

II.3.1. Limites de détection théoriques

On applique la relation suivante ([7]) :

$$LD = \frac{4}{t \times R} \left[1 + \sqrt{1 + 2Bt} \right]$$

où t = temps de comptage (en secondes)

R = rendement de mesure

B = bruit de fond (en impulsions par secondes)

LD = limite de détection en Bq avec une probabilité de 97,5 %.

Résultats :

- ^{241}Pu : t = 900 sec. B = 0,53 cps R = 0.45

\Rightarrow LD = 0,32 Bq

- Alphas totaux : t = 900 sec B = 0,15 cps R = 1

\Rightarrow LD = 0,08 Bq

II.3.2. Limites de détection pratiques

- Effluents liquides

En considérant que la prise d'essai pour la scintillation liquide (1 ml) correspond à 1 ml d'effluent de départ et avec un rendement radiochimique de 90 % on obtient :

$$LD ({}^{241}\text{Pu}) = 0,36 \text{ Bq/ml}$$

$$LD (\alpha) = 0,09 \text{ Bq/ml}$$

- Déchets solides

En considérant une prise d'essai de 5 g mise en solution dans 100 ml et un rendement radiochimique de 90 % on obtient :

$$LD ({}^{241}\text{Pu}) = 7,2 \text{ Bq/g}$$

$$LD (\alpha) = 1,8 \text{ Bq/g}$$

III. EXEMPLES D'APPLICATIONS

III.1. ENROBE BETON

Après mise en solution d'une aliquote d'échantillon (5g) par attaque nitrique / chlorhydrique / fluorhydrique, la procédure complète a été mise en oeuvre. ${}^{239}\text{Pu}$, déjà présent dans l'échantillon comme l'a montré une spectrométrie alpha préalable, a été utilisé comme traceur pour mesurer le rendement chimique de la séparation du Pu. Celui-ci a été de 90 %.

Les résultats sont dans le tableau 2.

	Spectrométrie α avant séparation du Pu (KBq/g)	Spectrométrie α après séparation du Pu (KBq/g)	Scintillation liquide après séparation du Pu (KBq/g)
${}^{239} + {}^{240}\text{Pu}$	2,2	2,0	-
${}^{238}\text{Pu} + {}^{241}\text{Am}$	34,6	-	-
${}^{238}\text{Pu}$	-	1,8	-
${}^{241}\text{Pu}$	-	-	6,8
${}^{238} + {}^{239} + {}^{240}\text{Pu}$	-	3,8	4,0

TABLEAU 2 : DOSAGE DU ${}^{241}\text{Pu}$ ET DES AUTRES ISOTOPES
DU PLUTONIUM DANS UN ECHANTILLON D'ENROBE

Comme on peut le voir dans le tableau 2, l'activité mesurée en ^{241}Pu est ici égale à 1,7 fois l'activité correspondant à la somme des autres isotopes du plutonium émetteurs alpha.

III.2. CENDRES D'INCINERATEUR

Une aliquote de cendres (0,5 g) prélevée dans un incinérateur de déchets alpha à été mise en solution par un mélange d'acides nitrique et chlorhydrique.

En l'absence d'émetteurs bêta-gamma, comme l'a révélé une spectrométrie préalable, la procédure simplifiée (extraction à la TTA) a été utilisée. Le rendement radiochimique (95 %) a été calculé sur le pic $^{239+240}\text{Pu}$ grâce à deux spectrométries α effectuées avant et après la séparation. Les résultats sont dans le tableau 3.

	Spectrométrie α avant séparation du Pu (MBq/g)	Spectrométrie α après séparation du Pu (MBq/g)	Scintillation liquide après séparation du Pu (MBq/g)
$^{239} + ^{240}\text{Pu}$	40,4	38,4	-
$^{238}\text{Pu} + ^{241}\text{Am}$	17,5	-	-
^{238}Pu	-	6,9	-
^{241}Pu	-	-	820
$^{238+239+240}\text{Pu}$	-	45,3	47,3

**TABLEAU 3 : DOSAGE DE ^{241}Pu ET DES AUTRES ISOTOPES DU Pu
DANS UN ECHANTILLON DE CENDRES D'INCINERATEUR**

Comme on peut le voir dans le tableau 3, l'activité en ^{241}Pu est très importante dans ce type d'échantillon, environ 17 fois supérieure à la somme des autres isotopes.

III.3. LIXIVIATION D'ENROBES DE CENDRES D'INCINERATEUR

Avec ce type d'échantillon il convient d'analyser non seulement le liquide lui-même mais aussi la poche de vinyle utilisée pour récupérer la fraction de l'activité qui autrement se déposerait sur les parois des pots de lixiviation. Ces poches sont solubilisées par attaque sulfurique/perchlorique. Comme il n'y avait que du plutonium dans ces échantillons, aucune séparation n'a été effectuée avant le comptage par scintillation liquide. On trouvera dans le tableau 4 les résultats des 3 premières séquences de lixiviation pour 3 matrices d'enrobage, le ciment, les polymères et un mélange des deux.

Séquence/fraction	Polymères		Ciment		Polymères + Ciment	
	Total α	^{241}Pu	Total α	^{241}Pu	Total α	^{241}Pu
1/ Soluble	3850	2930	12	15	112	96
1 / Insoluble	2590	2290	280	250	1930	1370
2 / Soluble	2020	1670	25	13	63	61
2 / Insoluble	2100	1990	29	26	920	850
3 / Soluble	3790	2910	9	7	92	88
3 / Insoluble	1880	1650	4	3,9	210	190

TABLEAU 4 : DOSAGE DE ^{241}Pu ET DE L'ENSEMBLE DES AUTRES ISOTOPES DU PLUTONIUM DANS LES 3 PREMIERES SEQUENCES DE LIXIVIATION DE 3 ENROBES DE CENDRES D'INCINERATEUR (Bq)

Ce tableau montre que les activités de ^{241}Pu et de l'ensemble des isotopes de Pu émetteurs α sont étroitement corrélées : Ce résultat était attendu car un test de lixiviation ne conduit pas à une modification de la composition isotopique des éléments.

On peut également observer dans ce tableau que la fraction de l'activité sous forme insoluble est équivalente à celle sous forme soluble et même prépondérante dans le cas de la matrice mixte ciment + polymères.

III.4. ENROBES BITUMINEUX

Deux échantillons d'enrobés bitumeux (origine STEL de Marcoule) de masses respectives 0,3 et 0,7g, ont été mis en solution par un mélange d'acides nitrique et perchlorique. Comme on peut le voir dans le tableau 5 ci-dessous, l'activité $\beta \gamma$ de ces échantillons était relativement élevée, justifiant ainsi la mise en oeuvre de la procédure de séparation complète. Un traceur de ^{236}Pu a permis de calculer les rendements de séparation : 99 % pour l'échantillon n°1 et 94,5 % pour l'échantillon n°2.

Le tableau 5 récapitule les activités trouvées dans ces 2 échantillons pour ^{241}Pu et les principaux autres radioéléments présents.

Radionucléides	Echantillon n° 1 (KBq/g)	Echantillon n° 2 (KBq/g)
^{106}Ru	650	740
^{134}Cs	206	216
^{137}Cs	1210	1380
^{144}Ce	1100	970
$^{243/244}\text{Cm}$	2,3	18
^{242}Cm	20	19,5
$^{238}\text{Pu} + ^{241}\text{Am}$	22	210
$^{238}\text{Pu}^*$	12,7	116
$^{241}\text{Pu}^*$	12	48

* Mesurés après séparation du Pu par scintillation liquide (^{241}Pu) et spectrométrie α (^{238}Pu).

TABLEAU 5 : ANALYSES RADIOCHIMIQUES DE DEUX ECHANTILLONS D'ENROBES BITUMINEUX

L'importance relative des émetteurs $\beta\gamma$ dans l'échantillon n°1 est illustrée par la figure 5 où l'on peut voir les spectres de scintillation liquide obtenus directement à partir de la solution d'attaque (courbe A) et des phases Pu (courbe B) et Am (courbe C) après séparation sur résine anionique.

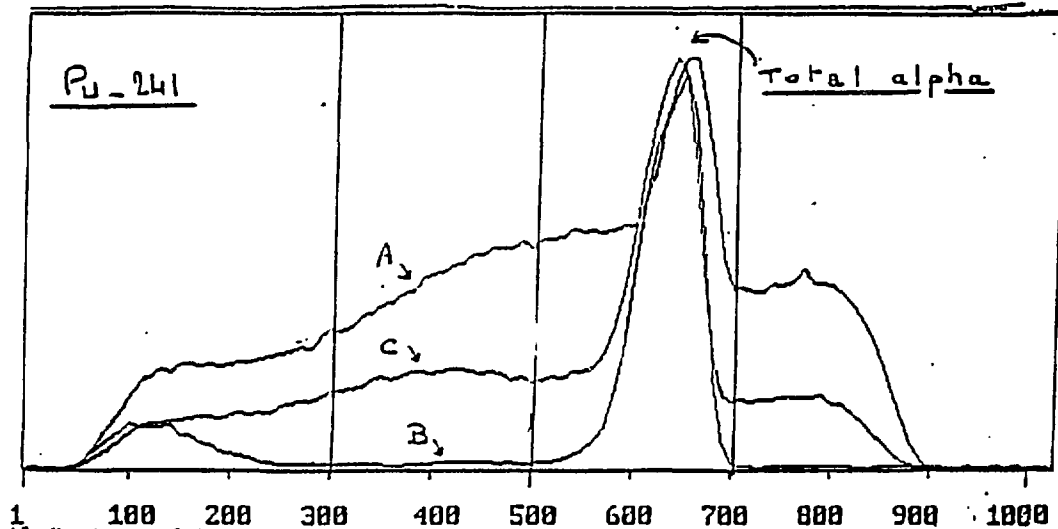


FIGURE 5 : SPECTRES DE SCINTILLATION LIQUIDE D'UN ECHANTILLON D'ENROBE BITUMINEUX OBTENUS AVANT (COURBE A) ET APRES (COURBE B : PHASE Pu ; COURBE C : PHASE Am) SEPARATION PU/AM SUR RESINE ANIONIQUE

On peut observer sur la figure 5 que la courbe B permet, grâce à un retour à la ligne de base, une bonne intégration des pics correspondants à ^{241}Pu et aux α totaux. Si on la rapproche de la courbe A obtenue sur la solution d'attaque on voit que l'on a eu une bonne séparation vis à vis des nombreux émetteurs β interférants qui empêchent tout retour à la ligne de base entre les canaux 50 et 900 (courbe A). Notons que la phase Am contient également le reliquat d'activité β γ non éliminé lors de la précipitation à l'ammoniaque, ce qui explique le non-retour à la ligne de base observé de part et d'autre du pic des émetteurs α sur la courbe C.

IV. CONCLUSION

Les longues périodes et les hautes énergies de certains de ses descendants mettent en relief l'intérêt de mesurer ^{241}Pu dans les déchets nucléaires destinés à être stockés, intérêt renforcé par les activités relativement importantes souvent rencontrées pour ce radioélément.

Les deux méthodes proposées, basées sur des mesures par scintillation liquide, permettent de quantifier non seulement ^{241}Pu mais aussi l'activité α due à l'ensemble des autres isotopes du plutonium.

Enfin les limites de détection obtenues aussi bien pour ^{241}Pu que pour la totalité de l'activité α sont largement compatibles avec les normes ANDRA d'acceptabilité pour un stockage de déchets enrobés en surface (respectivement 4,7 Ci/t et 0,1 Ci/t [8]).

BIBLIOGRAPHIE

- [1] CLINE J.F., HETZER D.C.
Study of transuranic concentration levels in solid radioactive wastes from commercial power reactors. Palo Alto (USA) 1978, rapport EPRI NP 631.

- [2] Rapport SEN N°200 - Catalogue déchet J. PINEL

- [3] Dossier passerelle DERDCA/DRDD - Février 1987
BECC/BUO3 (indice B).

- [4] HANDS G.C., CONWAY B.O.B
Simultaneous determinations of plutonium alpha - and beta -activity in liquid effluents and environmental samples.
Analyst 102 (1977), 934-937.

- [5] A. RAYMOND, D. REVY, C. POLETIKO
Dosage du fer 55 dans les solutions de déchets nucléaires.
Rapport technique DRDD 88-205.

- [6] MOORE F.L., HUDGENS JR., J.E.
Separation and determination of plutonium by liquid-liquid extraction
Analytical Chemistry 29 (1957), 1767-9.

- [7] Groupe de travail "Techniques analytiques", rapport CEA-R-5201 (1983).

- [8] Spécification ANDRA STP 111 A (1987).