

Mise au point d'un protocole d'extraction sélective du chlore contenu dans le combustible nucléaire irradié

M. Peyrillous, E. Esbelin, M. Crozet, J. Randon, M.-H. Garnier

▶ **To cite this version:**

M. Peyrillous, E. Esbelin, M. Crozet, J. Randon, M.-H. Garnier. Mise au point d'un protocole d'extraction sélective du chlore contenu dans le combustible nucléaire irradié. 15èmes Journées Scientifiques de Marcoule (JSM - 2015), Jun 2015, Marcoule, France. cea-02492546

HAL Id: cea-02492546

https://cea.hal.science/cea-02492546

Submitted on 27 Feb 2020

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Analyse de ^{14}C, ^{129}I, ^{36}Cl dans le combustible nucléaire irradié

Nom, Prénom : Peyrillous, Marlène
Responsable CEA : E. Esbelin et M. Crozet
Directeur universitaire : Jérôme Randon
Laboratoire d'accueil : DRCP/SERA/LED
Date de début de thèse : 15/10/2012

Contrat : CEA (CTBU)
Organisme co-financeur : non
Université d'inscription : Université Lyon 1
Ecole doctorale : Chimie de Lyon
Master : Analyse et contrôle (Villeurbanne)

I. Contexte

Dans le contexte général du recyclage des combustibles nucléaires usés, plusieurs isotopes présentent un intérêt particulier dans le cadre de la veille sur les émetteurs β-γ, parmi eux, le carbone 14, le chlore 36 et l'iode 129.
Ces Radio-Nucléides à Vie Longue (RNVL) sont présents dans les différents flux générés à l'usine de retraitement et restent actuellement difficilement mesurables.
Les travaux antérieurs, réalisés au CEA, ont permis de mesurer le carbone 14 dans l'oxyde grâce à un protocole basé sur une fusion alcaline du combustible nucléaire irradié suivie d'une analyse par scintillation liquide d'une solution sodique (piège des gaz émis lors de la fusion). L'iode 129 est quant à lui mesuré directement par spectrométrie X (ou scintillation liquide) après la dissolution nitrique du combustible irradié. La méthode d'analyse du carbone 14 dans la solution sodique est relativement longue (plus de 2 jours) car des étapes de purification sont nécessaires, la mesure de l'iode est plus rapide. La technique de scintillation liquide utilisée jusqu'à présent devient de moins en moins compatible vis-à-vis de la gestion des déchets nucléaires car elle génère de grands volumes d'effluents liquides organiques contaminés difficilement retraitables. Le chlore 36 n'est jusqu'alors pas mesuré dans l'oxyde irradié.
L'objectif de cette thèse est de développer une nouvelle méthode de mesure, dans le combustible irradié, plus directe pour ces trois radio-isotopes. Les deux voies sont :

1) l'optimisation d'une méthode de mesure (séparation, analyse et détection) des trois isotopes, afin de réaliser l'analyse par scintillation solide;
2) l'extraction sélective du ^{36}Cl contenu dans le combustible irradié.

II. Expérimentations

1. La scintillation solide

Les tests de performance réalisés sur les cellules de scintillation solide du fabricant ont mis en évidence des phénomènes de dispersion qui génèrent une augmentation de la limite de détection. L'objectif est de développer une nouvelle cellule optimisée pour réduire ces phénomènes de dispersion.

Les premiers travaux concernent la dispersion due aux volumes morts importants (200-1000 µL) de la cellule de scintillation solide. La géométrie de la cellule a donc été optimisée en réduisant les diamètres internes des tubes et le nombre de connexion de la cellule (volumes morts).

La dispersion du système de détection jointe au temps de passage des radioéléments (imposé par le débit de la chromatographie ionique) dans la cellule de scintillation solide entrainent une augmentation de la limite de détection. Une étude est menée pour retenir intégralement chaque radioélément dans la cellule afin de s'affranchir de cette dispersion. Deux voies ont été explorées :

1. le mélange homogène de résine chromatographique avec le solide scintillant ;

Document propriété du CEA – Reproduction et diffusion externes au CEA soumises à l'autorisation de l'émetteur

2. le greffage d'un groupement amine quaternaire sur la surface du solide scintillant.

Le solide scintillant retenu et adapté aux émetteurs β de faibles énergies, tels que ^{14}C et ^{129}I, a l'inconvénient d'adsorber les molécules polaires. Ces particules scintillantes même silanisées adsorbent les carbonates. Un greffage efficace pourrait limiter ce phénomène.

2. L'extraction sélective du chlore 36

Une voie d'extraction des chlorures contenus dans une solution de dissolution en milieu acide nitrique de combustible nucléaire irradié a été testée. Des développements en amont ont été réalisés en laboratoire inactif puis en boîte à gants et enfin en haute activité. Le protocole développé a été testé sur la chaîne blindée CBA de l'installation Atalante.

Une solution de dissolution de combustible nucléaire irradié en milieu acide nitrique a été dopée en chlore naturel (utilisé comme entraineur). La solution ainsi obtenue a été purifiée et extraite sur des résines sélectives avant d'être analysée par chromatographie ionique en vue d'une analyse par scintillation solide. Cet essai est un succès, l'extraction des chlorures introduits préalablement est quantitative et les échantillons obtenus sont suffisamment décontaminés pour être transférés en boites à gants (chromatographie ionique couplée à la scintillation solide).

Cet essai a été renouvelé pour confirmer les premiers résultats avec une solution de dissolution de combustible nucléaire irradié plus proche des conditions de dissolution classique (200 g/L d'oxyde d'uranium, de plutonium et les produits de fission).

Une dissolution de combustible nucléaire irradié en milieu acide nitrique dédiée à l'extraction sélective du chlore 36 a également été réalisée. Les étapes de séparation ont été menées sur la chaîne blindée et l'analyse du chlore total a permis de confirmer un bon rendement d'extraction. La mesure par scintillation solide permettra de quantifier le chlore 36.

Document propriété du CEA – Reproduction et diffusion externes au CEA soumises à l'autorisation de l'émetteur