

Mise au point d'un protocole d'extraction sélective du ^{36}Cl contenu dans le combustible nucléaire irradié

M. Peyrillous, E. Esbelin, M. Crozet, J. Randon

► **To cite this version:**

M. Peyrillous, E. Esbelin, M. Crozet, J. Randon. Mise au point d'un protocole d'extraction sélective du ^{36}Cl contenu dans le combustible nucléaire irradié. SEP 2015 - 11ème Congrès Francophone de l'AfSep sur les Sciences Séparatives et les Couplages, Mar 2015, Paris, France. cea-02506809

HAL Id: cea-02506809

<https://hal-cea.archives-ouvertes.fr/cea-02506809>

Submitted on 12 Mar 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.

Mise au point d'un protocole d'extraction sélective du ^{36}Cl contenu dans le combustible nucléaire irradié

Marlène Peyrillous^a, Eric Esbelin^a, Marielle Crozet^a, Jérôme Randon^b

^a CEA Marcoule, Direction de l'Energie Nucléaire, Département de RadioChimie et Procédés

^b Université Claude Bernard Lyon I, Institut des Sciences Analytiques

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 chlore 36. Le ^{36}Cl est un émetteur β^- issu de l'activation de l'impureté chlore 35 contenue dans l'oxyde. La teneur exacte en impureté est inconnue mais répond aux spécifications de fabrication du combustible.

L'ensemble des travaux présentés a été réalisé sur les chaînes blindées C11/C12 et CBA ainsi que le laboratoire de moyenne activité L17 de l'installation Atalante du CEA Marcoule.

Le procédé retenu de mise en solution de l'oxyde irradié est une dissolution en milieu acide nitrique concentré dans des conditions expérimentales similaires à celles utilisées pour le retraitement du combustible nucléaire irradié. Il a été vérifié préalablement que le chlore introduit sous forme de chlorure dans une solution concentré d'acide nitrique, même en présence d'un fort excès d'oxydant, n'est pas désorbé sous forme de Cl_2 gazeux.

Cette matrice initiale, hautement irradiante, est complexe. Elle contient majoritairement de l'uranium ($\sim 200 \text{ g.L}^{-1}$), du plutonium ($\sim 2 \text{ g.L}^{-1}$) ainsi que tous les produits de fissions issus de la cascade de désintégration de l'uranium (quelques g.L^{-1}). Les teneurs exactes des différents isotopes du chlore sont inconnues, et seule une estimation de leurs teneurs peut être calculée à partir des codes d'évolution (code de calcul neutronique) et d'une hypothèse sur la teneur initiale en impuretés chlore naturel. En supposant un taux d'impuretés en chlore naturel maximale (25 ppm), la teneur en chlore 36 est de l'ordre du mg.L^{-1} dans une solution de dissolution à 200 g.L^{-1} en uranium.

La technique analytique retenue pour quantifier le chlore 36 est la scintillation (liquide ou solide). Cette mesure largement employée pour l'analyse des émetteurs β n'est pas sélective, elle requiert une séparation préalable des radioéléments à analyser. Cette technique est uniquement disponible au laboratoire.

Un protocole expérimental a été développé afin d'extraire sélectivement le chlore d'une solution de dissolution du combustible nucléaire irradié. Ce protocole a été dans un premier temps testé sur une solution de dissolution diluée (uranium $\sim 40 \text{ g.L}^{-1}$) et dopée en chlore naturel. Ce chlore naturel ajouté en large excès, a le rôle d'entraîneur dans le protocole et permet de déterminer le rendement global de séparation.

Les séparations ont été réalisées en chaîne blindée au moyen de résines imprégnées d'extractants. Des mesures radiométriques par spectrométrie gamma ont permis de déterminer un facteur de décontamination de l'ordre de 10^4 Bq.L^{-1} pour les radioéléments ^{241}Am et ^{137}Cs . L'échantillon final contenant le chlore peut être transféré au laboratoire de moyenne activité (débit de dose conforme à la réglementation) en vue d'une analyse par scintillation (liquide ou solide) du chlore 36. La chromatographie ionique avec une détection conductimétrique est utilisée pour quantifier le chlore total. A partir de cette détermination, le rendement global d'extraction a pu être estimé proche de 100%. Actuellement, l'optimisation d'une détection radiométrique couplée à la chromatographie ionique est en cours. Un tel dispositif permettra à la fois la séparation ultime et la quantification du chlore 36.