Séminaire CETAMA
Echantillonnage et caractérisation III
«Du prélèvement à l'analyse»
17 au 19 novembre 2015
Montpellier

DEVELOPPEMENT DE NOUVELLES METHODES EN VUE DE LA QUANTIFICATION DE RADIONUCLEIDES DIFFICILEMENT MESURABLES DANS DES DECHETS NUCLEAIRES ET AMELIORATION DES LIMITES DE DÉTECTION

C. Gautier[1], R. Brennetot[1], C. Colin[1], P. Deloffre[1], J.P. Degros[1], P. Fichet[1], M. Giuliani[1], T. Grangeon[1], S. Guégan[1], E. Laporte[1], P. Perret[1], A. Masset[1], J. Roger[1], H. Plouzennec[1]

celine.gautier@cea.fr

1) CEA, Direction de l'Energie Nucléaire, DEN/DANS/DPC/SEARS/LASE, Laboratoire en Soutien aux Exploitants, PC 171, F-91191 Gif-sur-Yvette, France

Au sein du CEA Saclay, le Laboratoire d'Analyse en Soutien aux Exploitants (LASE) situé au bâtiment 459 est spécialisé dans l'analyse de Radionucléides difficilement mesurables dans les déchets nucléaires de faible et moyenne activité. Une vingtaine de modes opératoires existent au laboratoire pour analyser les différents Radionucléides, tels que le ^{3}H, le ^{14}C, le ^{36}Cl, le ^{63}Ni, le ^{108m}Ag ou l'^{129}I. En constante évolution, ces protocoles peuvent être appliqués à de nombreux types de matériaux (solides, liquides, boues) et l'utilisation de traceurs permet de suivre les mises en solution et les multiples étapes des séparations radiochimiques indispensables pour la mesure de ces émetteurs. Après une brève présentation générale de la méthodologie d'analyse des Radionucléides difficilement mesurables, quelques exemples seront présentés.

En tant qu'émetteurs bêta, le ^{3}H et le ^{14}C sont mesurés au laboratoire par scintillation liquide après une étape de pyrolyse permettant d'éliminer les interférents. Le LASE s'est récemment doté de deux fours à pyrolyse multi-tubes afin d'accroître sa capacité d'analyses du ^{3}H et du ^{14}C face à l'accroissement des demandes liées aux démantèlements des installations nucléaires. Ce nouveau protocole est en cours de validation à partir de la préparation de bétons dopés en ^{3}H et ^{14}C et d'une comparaison avec un laboratoire partenaire.

En tant qu'émetteur bêta, le ^{36}Cl est analysé au laboratoire par scintillation liquide après un protocole radiochimique basé sur la synthèse organique d'une molécule marquée au ^{36}Cl. En raison de la limite maximale d'acceptabilité peu élevée (5 Bq/g)

au centre de l'Aube pour le ^{36}Cl, le LASE s'est orienté vers la spectrométrie de masse par accélérateur (SMA) comme technique alternative de détection. La SMA a été récemment appliquée avec succès à l'analyse d'échantillons d'aciers activés permettant de quantifier des teneurs en ^{36}Cl de l'ordre de 10^{-3} Bq/g. L'^{129}I contenu dans des bitumes a aussi été analysé par SMA.

En raison de l'évolution des réglementations dans le domaine des risques chimiques et notamment de la directive REACH, des composés, tels que le chloroforme, doivent être progressivement éliminés des modes opératoires. La méthode de référence du ^{63}Ni est basée sur une extraction liquide-liquide avec du chloroforme. Le LASE a ainsi développé un protocole alternatif reposant sur une purification du ^{63}Ni par résine d'extraction chromatographique dite résine Ni. Ce mode opératoire permet d'atteindre une sélectivité et une efficacité équivalentes à celles du mode opératoire de référence.

Récemment, le LASE a également mis au point une méthode d'analyse du ^{126}Sn dans les déchets nucléaires. Après purification, le ^{126}Sn peut être détecté par ICP-MS Q à des teneurs de l'ordre de 10^{-1} Bq/g.

Afin de vérifier l'homogénéité des échantillons et d'éviter leurs mises en solution fastidieuses, le LASE développe aussi des mesures par spectrométrie gamma sur solides. Cette technique permet d'atteindre une meilleure représentativité et de diminuer les limites de détection d'un facteur 1 à 100.