



**DEVELOPPEMENT DE TECHNIQUES ANALYTIQUES POUR L'ANALYSE DU
CARBONE-14 DANS DES LIXIVIATS DE COQUES IRRADIEES**

L. Kasprzak¹, T. Suzuki-Muresan², M.A. Bahri², S. Legand³, C. Landesman², A. Abdelouas², M.B. Mokili², C. Mougel¹, S. Perrin⁴, V. Broudic⁴, C. Jégou⁴, F. Cochin⁵, S. Necib⁶

¹ Den – Service d'Etudes Analytiques et de Réactivité des Surfaces (SEARS), CEA, Université Paris-Saclay, F-91191, Gif-sur-Yvette, France

² SUBATECH, Unité Mixte de Recherche 6457, École des Mines de Nantes, CNRS/IN2P3, Université de Nantes, BP 20722, 44307 Nantes cedex 3 France

³ Den – Service d'Etudes du Comportement des Radionucléides (SECR), CEA, Université Paris-Saclay, F-91191, Gif-sur-Yvette, France

⁴ CEA, DEN, DTCD, SECM, Laboratoire d'étude des Matériaux et Procédés Actifs, F-30207 Bagnols-sur-Cèze, France

⁵ AREVA DOR/ DT/Direction Recherche Développement Produits

⁶ ANDRA - Direction Recherche et Développement - Service Colis-Matériaux, Centre de Meuse/Hte Marne, RD 960 - 55290 BURE

Communication Orale

Poster

Le carbone 14 est un radionucléide de longue durée de vie (5 730 ans) présentant un intérêt majeur, vis-à-vis de la sûreté dans la gestion des déchets nucléaires de moyenne activité et à vie longue (MA-VL). Il se retrouve dans les gaines de combustibles en alliage de zirconium principalement par l'activation neutronique de l'azote 14 qui est une impureté de l'alliage selon la réaction $^{14}\text{N}(n,p)^{14}\text{C}$. L'oxygène 17 provenant du combustible UO_2 ou $(\text{U-Pu})\text{O}_2$ et de l'eau du circuit primaire est également un précurseur majeur du carbone-14, obtenu selon la réaction $^{17}\text{O}(n,\alpha)^{14}\text{C}$. Il est présent dans la couche d'oxyde du zirconium qui se forme dans les réacteurs sur les faces internes et externes des gaines. Le relâchement du carbone 14 en milieu aqueux et sa diffusion dans le site de stockage en milieu géologique profond présenteraient un impact non négligeable sur l'environnement. En effet, le carbone 14 issu des déchets peut se présenter sous forme organique ou inorganique en phase liquide ou gazeuse. Une étude qualitative et quantitative d'inventaire et de spéciation du carbone 14 permettra de mieux appréhender son comportement pour l'évaluation de sûreté du futur centre Cigéo (Centre industriel de stockage géologique) de stockage en milieu géologique profond de déchets radioactifs.

Une telle étude est menée dans le cadre du projet Européen CAST (Carbon-14 Source Term) sur le relâchement du carbone 14 issu d'alliages de zirconium en situation de stockage géologique. Des coques, issues du traitement dans l'usine AREVA La Hague de combustibles irradiés dans un réacteur de type REP ont été lixiviées en milieu alcalin (NaOH pH 12) et désaéré (argon) en chaîne blindée dans l'installation ATALANTE (CEA Marcoule) afin de se rapprocher des conditions retenues pour le stockage (milieu cimentaire). Des méthodes de séparations chimiques et d'analyses radiologiques ont été développées dans différents laboratoires au CEA et à Subatech afin de déterminer la quantité de carbone 14 dans les lixiviats et d'étudier sa spéciation.

La quantité de carbone 14 total a été déterminée par scintillation liquide après traitement de l'échantillon par pyrolyse. Des mesures à venir par Spectrométrie de Masse par Accélération (SMA) permettront de confirmer les résultats. Une méthode analytique a été développée pour étudier la partition entre les formes organiques et inorganiques du carbone 14. Pour cela, l'échantillon est acidifié par H_3PO_4 (25%). Un courant d'azote permet de récupérer le CO_2 libéré et de le piéger, sous forme d'ions carbonates, dans des solutions de NaOH. Le carbone 14 organique restant et n'ayant pas réagi avec l'acide est analysé par pyrolyse suivie de la scintillation liquide. Les rendements

XVèmes Journées Nationales de Radiochimie et de Chimie Nucléaire

Nice, 8-9 Septembre 2016



d'extraction carbone 14 inorganique / carbone 14 organique sont de l'ordre de 100 %. Les formes chimiques du carbone 14 organique ont été analysées par chromatographie ionique à partir d'une solution préalablement décontaminée des actinides (^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Am , ^{244}Cm ...) et de certains produits de fissions (^{134}Cs , ^{137}Cs , ^{90}Sr ,...) et d'activation (^{60}Co ,...) par l'utilisation d'une résine $\text{K}_2[\text{CuFe}(\text{CN})_6]$ (AREVA/STMI) sans support organique. L'analyse montre que le carbone organique se trouve essentiellement sous forme de petites molécules de type acide carboxylique (chaîne $\text{C} \leq 5$). En sortie de chaîne chromatographique, des fractions correspondant aux différents acides carboxyliques sont collectées puis analysées par scintillation liquide. Les activités obtenues sont inférieures à la limite de détection de 0.04 Bq/mL confirmant la très faible activité en carbone 14. Des mesures par SMA seront réalisées sur ces fractions pour quantifier le carbone 14. La méthode de décontamination développée permet ainsi de minimiser la présence de radionucléides émetteurs bêta interférents lors de l'analyse par scintillation liquide dans la fenêtre du carbone 14 d'une part, et d'autre part de limiter la présence de contaminants lors de l'analyse par SMA.

Résumé à renvoyer au format pdf à l'adresse suivante : JNR-2016@unice.fr