



DIFFUSION RESTREINTE



Rapport d'analyse N° DR 10 CEA/DEN/CAD/DEC/SA3C/LARC CRA  
du 06/07/2011

Nature des échantillons: oxydes d'uranium U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>

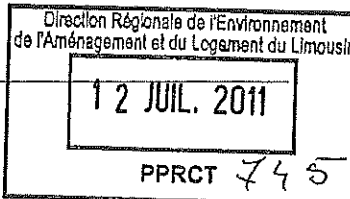
Analyses demandées: <sup>232</sup>U, <sup>237</sup>Np, <sup>238</sup>Pu, <sup>239+240</sup>Pu, <sup>241</sup>Pu, <sup>242</sup>Cm, <sup>243+244</sup>Cm, isotopie U, spectrométrie  
gamma (PF)

Formulée par: G. CHABROL (AREVA NC, Bessines), D. BERGOT (DREAL Limousin)

Recus: 28 janvier 2011

EOTP: A-CONTA-03-06-02

N° de contrat: PP-5H53-10-046 (30066464 du 26/01/11 pour AREVA NC)



## Introduction

Ce document présente les analyses réalisées par le Laboratoire d'Analyses Radiochimiques et Chimiques (DEC/SA3C/LARC) sur 5 prélèvements de poudre d'oxyde d'uranium. Les prélèvements ont été faits par AREVA sur le site de Pierrelatte.

## Préparation des échantillons (localisation : laboratoires du bâtiment 152)

Les analyses demandées nécessitent une mise en solution des échantillons. Ces derniers ont été minéralisés (prise d'essai d'environ 1 g) par une attaque acide oxydante et à chaud (mélange d'acides nitrique, chlorhydrique et perchlorique) en réacteur ouvert. Un protocole « sans échantillon » permet de s'assurer de l'absence d'éventuelle pollution significative. Le volume d'attaque final est de l'ordre de 50 mL.

## Méthodes d'analyses

Les mesures ont été réalisées au bâtiment 152. L'ensemble des réactifs utilisés est de qualité « pour analyses ».

### ➤ Détermination de l'activité $\gamma$ par spectrométrie $\gamma$ : méthode analytique MA 014 indice B

Une spectrométrie gamma est réalisée en géométrie normalisée sur la solution d'attaque.

*Equipement de mesure*: fournisseur Canberra, chaîne de spectrométrie gamma C-2 détecteur GC5019, N° série b 9801, chaîne D-1 détecteur GC4019-7500SL-RDC-LB, N° série b 880001

*Référence de la source étalon*: 9ML01ELME[20] N°761814/3, CERCA LEA France

### ➤ Détermination de l'activité des émetteurs $\alpha$ par spectrométrie $\alpha$ avec détecteur semi-conducteur et <sup>241</sup>Pu en scintillation liquide: méthode analytique LARC MA 005 indice A

Un traceur isotopique est ajouté (<sup>242</sup>Pu et <sup>243</sup>Am/<sup>239</sup>Np) à une aliquote des solutions d'attaque. Des séparations par chromatographies anionique et d'extraction permettent d'isoler les éléments

Commissariat à l'énergie atomique

Centre de Cadarache - Bâtiment 152 - 13108 St-Paul lez Durance Cedex - France

Tél : 33 - 4 42 25 73 55 - Fax : 33 - 4 42 25 32 84 - maite.beriaux@cea.fr

Etablissement public à caractère industriel et commercial

R.C.S. PARIS B 775 685 019

La reproduction de ce rapport n'est autorisée qu'avec l'accord du laboratoire. Il comporte 4 pages. Le présent rapport ne concerne que les échantillons soumis à l'analyse.

## DIFFUSION RESTREINTE

U, Pu, Am, Cm et Np. Les actinides sont ensuite électrodéposés sur un support inox et font l'objet d'une mesure par spectrométrie alpha. Les temps de mesure sont de 15 heures. Une spectrométrie gamma (cf méthode décrite au point précédent) permet la mesure de  $^{239}\text{Np}$ . Pour finir,  $^{241}\text{Pu}$  électrodéposé est repris en solution pour mesure en scintillation liquide.

*Référence des solutions de traceur:  $^{242}\text{Pu}$ , PRP10020-94/242/34 et  $^{243}\text{Am}+^{239}\text{Np}$ , ATP10050-95/243/37, AEA Technology,*

*Equipements de mesure : fournisseur Eurisys Mesures, chambres 2 et 3,  $\Sigma$ Silena  $\alpha$  quatre série n°71  
fournisseur Perkin Elmer, modèle QUANTULUS ultra bas bruit de fond,  
(réf 22) N° série 2200277*

- Détermination de l'isotopie précise de l'uranium par mesure en ICP-MS/MC : méthode dérivée de la méthode LARC MA 046 indice A

L'analyse est faite sur la solution d'attaque, pour deux prises d'essais ainsi que pour les « blancs » correspondants.

*Référence des solutions de traceur: Matériaux de référence Uranium NBS U-005 et U-010.*

*Equipements de mesure : fournisseur Thermo Electron, modèle NEPTUNE.*

### Bibliographie :

Valeurs d'activité massique utilisées pour les calculs (guide pratique Radionucléides & Radioprotection, D. Delacroix/JP Guerre/P. Leblanc, EDP Sciences, 2004) :

	Bq/g
$^{232}\text{U}$	$8,14 \cdot 10^{+11}$
$^{237}\text{Np}$	$5,22 \cdot 10^{+07}$
$^{238}\text{Pu}$	$6,34 \cdot 10^{+11}$
$^{241}\text{Pu}$	$3,81 \cdot 10^{+12}$
$^{241}\text{Am}$	$1,27 \cdot 10^{+11}$
$^{242}\text{Cm}$	$1,22 \cdot 10^{+14}$
$^{134}\text{Cs}$	$4,77 \cdot 10^{+13}$
$^{137}\text{Cs}$	$3,20 \cdot 10^{+12}$
$^{154}\text{Eu}$	$1,00 \cdot 10^{+13}$

### Résultats :

Identification échantillon	N°LARC	% massique			
		$^{234}\text{U}$	$^{235}\text{U}$	$^{236}\text{U}$	$^{238}\text{U}$
W10991A1 pt prélev. DV70S1	C049976	(0,00161 ± 0,00008)	(0,3313 ± 0,0007)	< 0,00020	(99,6670 ± 0,0007)
W10991B1 pt prélev. DV70S2	C049977	(0,00161 ± 0,00009)	(0,3315 ± 0,0007)	< 0,00020	(99,6667 ± 0,0007)
W10991C1 pt prélev. DV P40	C049978	(0,00161 ± 0,00012)	(0,3313 ± 0,0007)	< 0,00020	(99,6669 ± 0,0007)
W10991D1 pt prélev. DV P80	C049979	(0,00159 ± 0,00012)	(0,3313 ± 0,0007)	< 0,00020	(99,6669 ± 0,0007)
W10991E1 pt prélev. DV P120	C049980	(0,00165 ± 0,00009)	(0,3316 ± 0,0007)	< 0,00020	(99,6667 ± 0,0007)

**Tableau 1 : Isotopie massique de l'uranium dans  $\text{U}_3\text{O}_8$**

*Les incertitudes sont données pour un intervalle de confiance de 95% (K=2)*

La reproduction de ce rapport n'est autorisée que sous sa forme intégrale. Il comporte 4 pages. Sa reproduction partielle n'est autorisée qu'avec l'accord du Laboratoire. Le présent rapport ne concerne que les échantillons soumis à l'analyse.

# DIFFUSION RESTREINTE

Ref client	W10991A1 pt prélev. DV70S1			W10991B1 pt prélev. DV70S2			W10991C1 pt prélev. DV P40		
N° LARC	C049976			C049977			C049978		
	Bq/g	ppm (µg/g)	Date de mesure	Bq/g	ppm (µg/g)	Date de mesure	Bq/g	ppm (µg/g)	Date de mesure
<sup>232</sup> U	< 13	< 2 10 <sup>-5</sup>	18/03/11	< 18	< 3 10 <sup>-5</sup>	8/04/11	< 15	< 2 10 <sup>-5</sup>	4/04/11
<sup>237</sup> Np	< 0,3	< 6 10 <sup>-3</sup>	29/03/11	< 0,14	< 3 10 <sup>-3</sup>	8/04/11	< 0,18	< 4 10 <sup>-3</sup>	8/04/11
<sup>238</sup> Pu	< 0,01	< 2 10 <sup>-8</sup>	29/03/11	< 0,02	< 3 10 <sup>-8</sup>	8/04/11	< 0,02	< 3 10 <sup>-8</sup>	8/04/11
<sup>239-240</sup> Pu	< 0,02	-	29/03/11	< 0,03	-	8/04/11	< 0,02	-	8/04/11
<sup>241</sup> Pu	< 54	< 2 10 <sup>-5</sup>	12/05/11	< 250	< 7 10 <sup>-5</sup>	12/05/11	< 100	< 3 10 <sup>-5</sup>	12/05/11
<sup>241</sup> Am	< 0,05	< 4 10 <sup>-7</sup>	28/03/11	< 0,04	< 3 10 <sup>-7</sup>	06/04/11	< 0,04	< 3 10 <sup>-7</sup>	06/04/11
<sup>242</sup> Cm	< 0,02	< 9 10 <sup>-11</sup>	28/03/11	< 0,02	< 1 10 <sup>-10</sup>	06/04/11	< 0,02	< 1 10 <sup>-10</sup>	06/04/11
<sup>243+244</sup> Cm	< 0,01	-	28/03/11	< 0,01	-	06/04/11	< 0,01	-	06/04/11
<sup>134</sup> Cs	< 12	< 3 10 <sup>-7</sup>	14/03/11	< 11	< 3 10 <sup>-7</sup>	31/03/11	< 10	< 3 10 <sup>-7</sup>	31/03/11
<sup>137</sup> Cs	< 11	< 4 10 <sup>-6</sup>	14/03/11	< 14	< 4 10 <sup>-6</sup>	31/03/11	< 14	< 4 10 <sup>-6</sup>	31/03/11
<sup>154</sup> Eu	< 21	< 3 10 <sup>-6</sup>	14/03/11	< 17	< 2 10 <sup>-6</sup>	31/03/11	< 19	< 2 10 <sup>-6</sup>	31/03/11

Ref client	W10991D1 pt prélev. DV P80			W10991E1 pt prélev. DV P120		
N° LARC	C049979			C049980		
	Bq/g	ppm (µg/g)	Date de mesure	Bq/g	ppm (µg/g)	Date de mesure
<sup>232</sup> U	< 19	< 3 10 <sup>-5</sup>	02/05/11	< 17	< 3 10 <sup>-5</sup>	2/05/11
<sup>237</sup> Np	< 0,20	< 4 10 <sup>-3</sup>	04/05/11	< 0,29	< 6 10 <sup>-3</sup>	27/04/11
<sup>238</sup> Pu	< 0,02	< 3 10 <sup>-8</sup>	04/05/11	< 0,02	< 3 10 <sup>-8</sup>	27/04/11
<sup>239-240</sup> Pu	< 0,03	-	04/05/11	< 0,05	-	27/04/11
<sup>241</sup> Pu	< 67	< 2 10 <sup>-5</sup>	12/05/11	< 1660	< 5 10 <sup>-4</sup>	12/05/11
<sup>241</sup> Am	< 0,04	< 3 10 <sup>-7</sup>	06/04/11	< 0,06	< 5 10 <sup>-7</sup>	26/04/11
<sup>242</sup> Cm	< 0,02	< 1 10 <sup>-10</sup>	06/04/11	< 0,02	< 1 10 <sup>-10</sup>	26/04/11
<sup>243+244</sup> Cm	< 0,01	-	06/04/11	< 0,01	-	26/04/11
<sup>134</sup> Cs	< 11	< 3 10 <sup>-7</sup>	27/04/11	< 10	< 3 10 <sup>-7</sup>	28/04/11
<sup>137</sup> Cs	< 14	< 4 10 <sup>-6</sup>	27/04/11	< 12	< 4 10 <sup>-6</sup>	28/04/11
<sup>154</sup> Eu	< 17	< 2 10 <sup>-6</sup>	27/04/11	< 18	< 2 10 <sup>-6</sup>	28/04/11

**Tableaux 2 : recherche de transuraniens et produits de fission en traces dans U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>**

Les résultats sont données à la date de mesure

*Remarque : l'équivalent en ppm d'un mélange ne peut être calculé (cas de <sup>239+240</sup>Pu et <sup>243+244</sup>Cm)*

Les résultats sont exprimés en Bq/g ou ppm à la date de mesure. Ils sont tous inférieurs aux limites de détection.

**Analystes :**

C. Point (minéralisation, γ, α, scintillation liquide)  
F. Adam, N. Arnal (MC ICP-MS)

La reproduction de ce rapport n'est autorisée que sous sa forme intégrale. Il comporte 4 pages. Sa reproduction partielle n'est autorisée qu'avec l'accord du Laboratoire. Le présent rapport ne concerne que les échantillons soumis à l'analyse.

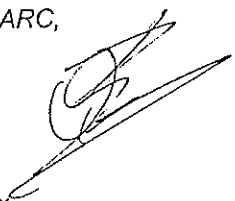
Responsables techniques :

M. Bertaux (radiochimie)

A. Labet (isotopie)

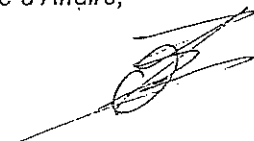
*Le Chef du LARC,*

M. Bertaux



*Le Chargé d'Affaire,*

M. Bertaux



Copies : SA3C

LARC : M. Bertaux, A. Labet

SFCG : S. Roulland

La reproduction de ce rapport n'est autorisée que sous sa forme intégrale. Il comporte 4 pages. Sa reproduction partielle n'est autorisée qu'avec l'accord du Laboratoire. Le présent rapport ne concerne que les échantillons soumis à l'analyse.