

---

---

**Technologie du combustible nucléaire —  
Détermination de la teneur isotopique et  
des concentrations en matériaux  
nucléaires de l'uranium et du plutonium  
dans une solution d'acide nitrique par  
spectrométrie de masse à  
thermoionisation**

iTeh STANDARD PREVIEW  
(standards.iteh.ai)

*Nuclear fuel technology — Determination of the isotopic and elemental  
uranium and plutonium concentrations of nuclear materials in nitric acid  
solutions by thermal-ionization mass spectrometry*

[https://standards.iteh.ai/catalog/standards/sist/6836d986-f769-423b-aa91-  
b3aef02b834d/iso-8299-2005](https://standards.iteh.ai/catalog/standards/sist/6836d986-f769-423b-aa91-b3aef02b834d/iso-8299-2005)



**PDF – Exonération de responsabilité**

Le présent fichier PDF peut contenir des polices de caractères intégrées. Conformément aux conditions de licence d'Adobe, ce fichier peut être imprimé ou visualisé, mais ne doit pas être modifié à moins que l'ordinateur employé à cet effet ne bénéficie d'une licence autorisant l'utilisation de ces polices et que celles-ci y soient installées. Lors du téléchargement de ce fichier, les parties concernées acceptent de fait la responsabilité de ne pas enfreindre les conditions de licence d'Adobe. Le Secrétariat central de l'ISO décline toute responsabilité en la matière.

Adobe est une marque déposée d'Adobe Systems Incorporated.

Les détails relatifs aux produits logiciels utilisés pour la création du présent fichier PDF sont disponibles dans la rubrique General Info du fichier; les paramètres de création PDF ont été optimisés pour l'impression. Toutes les mesures ont été prises pour garantir l'exploitation de ce fichier par les comités membres de l'ISO. Dans le cas peu probable où surviendrait un problème d'utilisation, veuillez en informer le Secrétariat central à l'adresse donnée ci-dessous.

**iTeh STANDARD PREVIEW**  
**(standards.iteh.ai)**

[ISO 8299:2005](https://standards.iteh.ai/catalog/standards/sist/6836d986-f769-423b-aa91-b3aef02b834d/iso-8299-2005)

<https://standards.iteh.ai/catalog/standards/sist/6836d986-f769-423b-aa91-b3aef02b834d/iso-8299-2005>

© ISO 2005

Droits de reproduction réservés. Sauf prescription différente, aucune partie de cette publication ne peut être reproduite ni utilisée sous quelque forme que ce soit et par aucun procédé, électronique ou mécanique, y compris la photocopie et les microfilms, sans l'accord écrit de l'ISO à l'adresse ci-après ou du comité membre de l'ISO dans le pays du demandeur.

ISO copyright office  
Case postale 56 • CH-1211 Geneva 20  
Tel. + 41 22 749 01 11  
Fax. + 41 22 749 09 47  
E-mail [copyright@iso.org](mailto:copyright@iso.org)  
Web [www.iso.org](http://www.iso.org)

Publié en Suisse

## Sommaire

Page

Avant-propos .....	iv
1 <b>Domaine d'application</b> .....	1
2 <b>Références normatives</b> .....	1
3 <b>Principe de la méthode</b> .....	1
4 <b>Réactifs pour le traitement chimique</b> .....	2
5 <b>Appareillage pour le traitement chimique</b> .....	4
6 <b>Appareillage pour spectrométrie de masse</b> .....	4
7 <b>Préparation chimique</b> .....	5
8 <b>Préparation des filaments</b> .....	7
9 <b>Étalonnage de l'instrument</b> .....	8
10 <b>Mesurage isotopique de spectrométrie de masse</b> .....	10
11 <b>Calcul des résultats</b> .....	11
12 <b>Blancs</b> .....	14
13 <b>Contrôle qualité</b> .....	14
14 <b>Répétitivité des mesures</b> .....	14
15 <b>Justesse de la méthode</b> .....	15
16 <b>Interférences</b> .....	15
<b>Annexe A (normative) Préparation et étalonnage des solutions de traceur</b> .....	17
<b>Bibliographie</b> .....	23

## Avant-propos

L'ISO (Organisation internationale de normalisation) est une fédération mondiale d'organismes nationaux de normalisation (comités membres de l'ISO). L'élaboration des Normes internationales est en général confiée aux comités techniques de l'ISO. Chaque comité membre intéressé par une étude a le droit de faire partie du comité technique créé à cet effet. Les organisations internationales, gouvernementales et non gouvernementales, en liaison avec l'ISO participent également aux travaux. L'ISO collabore étroitement avec la Commission électrotechnique internationale (CEI) en ce qui concerne la normalisation électrotechnique.

Les Normes internationales sont rédigées conformément aux règles données dans les Directives ISO/CEI, Partie 2.

La tâche principale des comités techniques est d'élaborer les Normes internationales. Les projets de Normes internationales adoptés par les comités techniques sont soumis aux comités membres pour vote. Leur publication comme Normes internationales requiert l'approbation de 75 % au moins des comités membres votants.

L'attention est appelée sur le fait que certains des éléments du présent document peuvent faire l'objet de droits de propriété intellectuelle ou de droits analogues. L'ISO ne saurait être tenue pour responsable de ne pas avoir identifié de tels droits de propriété et averti de leur existence.

L'ISO 8299 a été élaborée par le comité technique ISO/TC 85, *Énergie nucléaire*, sous-comité SC 5, *Technologie du combustible nucléaire*. (standards.iteh.ai)

Cette deuxième édition annule et remplace la première édition (ISO 8299:1993), qui a fait l'objet d'une révision technique.

<https://standards.iteh.ai/catalog/standards/sist/6836d986-f769-423b-aa91-b3aef02b834d/iso-8299-2005>

# Technologie du combustible nucléaire — Détermination de la teneur isotopique et des concentrations en matériaux nucléaires de l'uranium et du plutonium dans une solution d'acide nitrique par spectrométrie de masse à thermoionisation

## 1 Domaine d'application

La présente Norme internationale spécifie une méthode pour mesurer la composition isotopique et la concentration de l'uranium et du plutonium dans les solutions d'entrée de combustibles irradiés de réacteurs de type graphite gaz et de type à eau légère (à eau bouillante ou à eau pressurisée), dans les produits finis des usines de retraitement et dans les produits d'entrée et de sortie des usines de fabrication des combustibles MOX ou à uranium. La méthode est applicable à d'autres combustibles, mais la séparation chimique et la solution de traceur isotopique doivent, si nécessaire être adaptées pour chacun des types de combustible.

## 2 Références normatives

Les documents de référence suivants sont indispensables pour l'application du présent document. Pour les références datées, seule l'édition citée s'applique. Pour les références non datées, la dernière édition du document de référence s'applique (y compris les éventuels amendements).

ISO 10980:1995, *Vérification du titre des solutions de référence utilisées pour la mesure des concentrations*

ISO 11483, *Préparation des sources de plutonium et détermination du rapport isotopique  $^{238}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  par spectrométrie alpha*

## 3 Principe de la méthode

La méthode décrite est basée sur le mesurage de rapports isotopiques par spectrométrie de masse à thermoionisation (TIMS). Le mesurage TIMS impose la séparation des éléments à analyser des autres éléments. Deux méthodes de séparation de l'uranium et du plutonium par résines échangeuses d'ions sont décrites dans l'Article 7. D'autres méthodes de séparation sont utilisables à condition qu'elles conduisent à une séparation de qualité similaire. L'ISO 15366 est un exemple de méthode alternative adaptée.

La méthode décrite est constituée de deux mesurages TIMS séparés.

- Un mesurage est fait pour déterminer la composition isotopique de l'élément. (L'abondance de l'isotope  $^{238}\text{Pu}$  est déterminée en combinant la spectrométrie de masse suivant la présente méthode et la spectrométrie alpha décrite dans l'ISO 11483, si les interférences de l'isobare  $^{238}\text{U}$  ne sont pas éliminées par la séparation chimique).
- Un second mesurage est fait sur un mélange de l'échantillon avec un traceur constitué d'isotopes artificiellement enrichis de l'élément à mesurer. Cette méthode de mesurage de la concentration d'un élément est appelée «spectrométrie de masse par dilution isotopique». Le traceur peut contenir un isotope déjà présent dans l'échantillon ou pas. Quand des traceurs  $^{233}\text{U}$  et  $^{244}\text{Pu}$  sont utilisés, cela élimine la nécessité de faire un mesurage isotopique de l'échantillon non tracé pour déterminer la concentration en uranium et en plutonium. Comme généralement on est conduit à mesurer à la fois la composition isotopique et la concentration de l'élément, il est courant d'utiliser les solutions de traceurs

les moins chers tels que  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$  et  $^{235}\text{U}$ . Dans la méthode IDMS, des mesurages précis des masses des échantillons et traceurs qui sont mélangés doivent être réalisés. La composition isotopique et la concentration du traceur doivent être connues ou mesurées précisément. Les calculs IDMS sont décrits en 11.6.

La méthode IDMS comprend les étapes suivantes:

- dilution massique, si la dilution précède le traçage;
- prise d'échantillon et addition massique de traceur;
- chimie d'ajustement de valence et d'échange isotopique pour obtenir un mélange isotopiquement équilibré;
- purification/séparation chimique;
- chargement de l'échantillon sur les filaments et oxydation;
- mesurage des rapports isotopiques par TIMS sur les fractions tracées et non tracées.

Cette norme décrit deux méthodes de mesurage par TIMS.

- 1) Mesurages par évaporation totale (TE), avec multicollecteurs Faraday. Cette méthode consomme la totalité de l'échantillon. Chacun des courants d'ions des isotopes est collecté du début à la fin de l'émission des ions. Il y a plusieurs avantages à cette méthode et elle permet des mesurages précis de petits échantillons et est facilement adaptée à des mesures automatiques.
- 2) Mesurages conventionnels avec multicollecteurs Faraday. Dans la méthode conventionnelle, l'ionisation de l'échantillon est optimisée pour produire faisceau d'ion permanent d'intensité stable. Les données sont collectées par blocs contenant habituellement 10 séries (balayages) de mesurages. Cette méthode est recommandée quand il n'y a qu'un seul collecteur ou quand il y a possibilité de normaliser des rapports inconnus par rapport à des rapports connus dans l'échantillon. Dans le cas d'échantillons nucléaires ceci est principalement le cas quand un double traceur a été utilisé, comme par exemple un traceur uranium  $^{233}\text{U}/^{236}\text{U}$ . Dans ce cas il est possible d'analyser l'échantillon plus précisément qu'avec la méthode d'évaporation totale. Autrement la méthode d'évaporation totale permet normalement d'obtenir une meilleure précision et justesse. Avec la méthode conventionnelle il est possible de calculer la précision interne de la mesure comme estimation de la qualité du mesurage. La méthode d'évaporation totale s'appuie presque entièrement sur des mesurages séparés de matériaux de référence pour dériver la précision et la justesse externe des mesures.

## 4 Réactifs pour le traitement chimique

Les solutions listées ci-dessous sont préparées avec des réactifs de qualité pour analyse, à moins qu'il ne soit spécifié autrement.

### 4.1 Traceurs et matériaux de référence

**4.1.1 Solution étalon de référence uranium**, préparée à partir d'uranium naturel métal pur avec une concentration élémentaire certifiée à 0,05 % ( $2\sigma$ ) ou mieux, tel que NBL-CRM-112A (ex NBS-960D), EC-101, CEA-MU-2, JEARI-U4. Consulter l'Annexe A et l'ISO 10980 pour la préparation et la validation de cette solution.

**4.1.2 Solution étalon de référence de plutonium**, préparée à partir:

- de plutonium métal avec une concentration élémentaire certifiée à 0,05 % ( $2\sigma$ ) ou mieux, tel que NBL-CRM-126, EC-201, CEA-MP-2 ou NBS-949, avec une abondance isotopique en  $^{239}\text{Pu}$  de 97 % ou plus, connue aussi à 0,05 % ( $2\sigma$ ) ou mieux, si du  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{242}\text{Pu}$  ou  $^{244}\text{Pu}$  est utilisé comme traceur isotopique;

— d'une solution de plutonium étalon certifiée enrichie en isotope  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{242}\text{Pu}$  ou  $^{244}\text{Pu}$  lorsque du plutonium enrichi à 97 % est utilisé comme traceur.

Voir l'Annexe A et l'ISO 10980 pour la préparation et la validation de cette solution.

**4.1.3 Traceur uranium de composition isotopique et composition chimique certifiées**, tels que IRMM-040, IRMM-041, IRMM-042, NBL-CRM-111A (ex NBS-955), NBL-CRM-135 ou NBL-CRM-U930D.

**4.1.4 Traceur plutonium de composition isotopique et composition chimique certifiées**, tels que IRMM-041, IRMM-043, IRMM-044, IRMM-049, NBL-CRM-130 (nitrate de  $^{242}\text{Pu}$ ), NBL-CRM-131 (nitrate de  $^{244}\text{Pu}$ , ex NBS 996), NBL-CRM-144 (mélange de nitrate de  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{242}\text{Pu}$  et  $^{244}\text{Pu}$ ), NBL-CRM-126 (métal enrichi à 97 % en  $^{239}\text{Pu}$ ), ou CEA-MP-2 (métal enrichi à 97 % en  $^{239}\text{Pu}$ ).

**4.1.5 Traceur mixte uranium/plutonium en solution de compositions isotopiques et chimiques certifiées**, tel que IRMM-046 (traceur mixte  $^{233}\text{U}/^{242}\text{Pu}$ ).

**4.1.6 Traceur sec de grande taille de compositions isotopiques et chimiques certifiées (LSD)**, tel que IRMM-1027, contenant environ 50 mg de  $^{235}\text{U}$  enrichi à 20% et 1 mg ou 2 mg de  $^{239}\text{Pu}$  enrichi à 97 %.

**4.1.7 Traceur mixte uranium/plutonium**, contenant de 0,2 mg/g à 0,3 mg/g de  $^{235}\text{U}$  et de 1  $\mu\text{g/g}$  à 2  $\mu\text{g/g}$  de  $^{242}\text{Pu}$  dans l'acide nitrique, 7 mol/l, préparée à partir de matériaux de référence certifiés tels que NBL-CRM-135 ou NBL-CRM-U930D, et IRMM-049 ou NBL-CRM-130.

NOTE Si les traceurs certifiés 4.1.3, 4.1.4, 4.1.5, 4.1.6 ou 4.1.7 ne sont pas disponibles, les traceurs souhaités peuvent être préparés et normalisés en suivant l'ISO 10980. Les modes opératoires sont décrits à l'Annexe A.

**4.1.8 Matériaux de référence certifiés**, qui couvrent la gamme isotopique d'intérêt et sont certifiés à 0,1 % ou mieux pour les isotopes majeurs, tels que IRMM-290, NBL-CRM-128, NBL-CRM-137 (ex NBS-947), NBL-CRM-144, NBL-CRM-122, CEA-MIRF-01, AEAT-UK-Pu3 pour le plutonium, et IRMM-072, IRMM-199, NBL-CRM-117, NBL-CRM-U005A à NBL-CRM-U930D, CEA-MIRF-02, AEAT-UK-U2 pour l'uranium.

## 4.2 Autres réactifs chimiques

**4.2.1 Solutions d'acide nitrique**,  $c(\text{HNO}_3) = 0,3 \text{ mol/l}$ , 1 mol/l, 3 mol/l, 4 mol/l, 7 mol/l.

**4.2.2 Sulfate ferreux**,  $c(\text{FeSO}_4) = 0,2 \text{ mol/l}$ , dans l'acide amidosulfurique,  $c(\text{NH}_2\text{SO}_3\text{H}) = 0,2 \text{ mol/l}$ , et acide sulfurique,  $c(\text{H}_2\text{SO}_4) = 1 \text{ mol/l}$ , fraîchement préparé.

**4.2.3 Nitrite de sodium**,  $c(\text{NaNO}_2) = 0,7 \text{ mol/l}$ , fraîchement préparé.

**4.2.4 Nitrate d'hydroxylamine**,  $c(\text{NH}_2\text{OH}) = 0,019 \text{ mol/l}$ , dans l'acide nitrique, 0,3 mol/l.

**4.2.5 Nitrate d'argent.**

**4.2.6 Résine bille échangeuse d'ions de qualité analytique**, polystyrène d'ammonium quaternaire anionique, avec 4 % de réticulation et une granulométrie de 100/200 mesh, conditionnée dans une solution d'acide nitrique 7 mol/l.

EXEMPLE Quand on part d'une résine sous forme chlorhydrique, suivre par exemple le mode opératoire suivant.

Dans un becher de 1 000 ml, laver 500 ml de résine, successivement:

- deux fois, avec 500 ml d'eau;
- deux fois, avec 500 ml d'acide nitrique, 0,3 mol/l (4.2.1);
- deux fois, avec 500 ml d'acide nitrique, 4 mol/l (4.2.1);

- cinq fois, avec 500 ml d'acide nitrique 7 mol/l (4.2.1), jusqu'à ce que un échantillon du surnageant ne présente plus de précipité de chlorure après ajout de nitrate d'argent (4.2.5).

Stocker la résine dans un flacon conique fermé hermétiquement. Utiliser la résine dans l'espace de quelques jours. La résine peut être stockée pour une période d'un mois à la condition qu'elle soit rincée à l'eau après son traitement. Au-delà de cette période laver la résine inutilisée et la jeter.

Une méthode alternative qualifiée peut être utilisée et impliquer des Normes nationales ou internationales, un mode opératoire spécifique d'une usine ou l'utilisation de résine commerciale convertie en nitrate, à condition qu'il soit démontré qu'elle donne des résultats équivalents.

**AVERTISSEMENT — Il convient que la résine soit rincée à l'eau après utilisation pour séparation car le stockage de la résine pour plus de quelques jours en acide nitrique 7 mol/l peut conduire à une décomposition explosive.**

**4.2.7 Acide fluorhydrique**,  $c(\text{HF}) = 0,01 \text{ mol/l}$ .

**4.2.8 Nitrate d'aluminium**,  $c[\text{Al}(\text{NO}_3)_3] = 0,004 \text{ mol/l}$ .

## 5 Appareillage pour le traitement chimique

**5.1 Cellules blindées équipées de télémanipulateurs ou de pinces**, pour réaliser à distance les préparations chimiques sur des solutions hautement radioactives.

**5.2 Boîtes à gants**, pour la manipulation de solutions diluées de combustibles irradiés ou de petits échantillons de plutonium exempts de produits de fission.

**5.3 Balance analytique**, avec une précision de 0,1 mg, installée dans une cellule blindée ou une boîte à gants.

[ISO 8299:2005](https://standards.iteh.ai/catalog/standards/sist/6836d986-f769-423b-aa91-)

<https://standards.iteh.ai/catalog/standards/sist/6836d986-f769-423b-aa91->

**5.4 Banc de pipetage**, à embout jetable, installé dans une cellule blindée ou une boîte à gants.

**5.5 Plaque chauffante**, avec système de condensation des vapeurs en boîte à gants, pour porter à sec des solutions diluées.

**5.6 Colonnes chromatographiques jetables**, avec un diamètre intérieur d'environ 4 mm, 45 mm de hauteur, et une capacité de 10 ml pour l'entonnoir supérieur. Des colonnes de dimension différentes peuvent être utilisées à condition que les volumes d'éluant soient correctement adaptés.

**5.7 Matériels courants de laboratoire**, pipettes et récipients plastiques jetables, plaques chauffantes, flacons et bechers.

## 6 Appareillage pour spectrométrie de masse

**6.1 Spectromètre de masse à thermoionisation (TIMS)**, piloté par ordinateur, conçu pour des mesurages précis de composition isotopique ayant au moins les caractéristiques suivantes.

### 6.1.1 Caractéristiques générales

- Étendue de masse: 10 à 280 unités de masse atomique.
- Résolution: > 380 à 1 % de la hauteur du pic, il convient de mesurer cette résolution aux masses 235 et 238 de l'uranium.



- Planéité du sommet du pic: changement relatif inférieur à  $10^{-4}$  du signal pour un changement de  $\pm 0,025$  unité de masse avec un collecteur à coupelle faraday; inférieure à  $10^{-3}$  avec un collecteur à multiplicateur d'électrons.
- Sensibilité en abondance:  $< 5 \times 10^{-6}$  à la masse 237, relativement à la masse 238.
- Sensibilité et transmission:  $> 1$  ion collecté pour 500 atomes d'uranium sur le filament de l'échantillon.

**6.1.2 Source d'ions**, source à thermoionisation avec assemblage à simple, double ou triple filaments.

**6.1.3 Pyromètre**, un pyromètre optique ou infrarouge est recommandé pour mesurer la température du filament d'ionisation.

**6.1.4 Vide**, il convient que la capacité de production de vide soit inférieure à  $5 \times 10^{-5}$  Pa dans la chambre de la source d'ion et inférieure à  $5 \times 10^{-6}$  Pa dans l'analyseur.

**6.1.5 Système de détection**, un ensemble multicollecteur Faraday comportant un minimum de 6 collecteurs, qui peuvent analyser à la fois les isotopes 233, 234, 235, 236, 238 de l'uranium et les isotopes 238, 239, 240, 241, 242, 244 du plutonium. Il est également recommandé que l'instrument soit équipé d'un détecteur à multiplicateur d'électrons secondaires (SEM) ou d'un détecteur Daly. Ce détecteur peut être utilisé pendant des mesurages automatiques avec la méthode évaporation totale pour focaliser les faisceaux d'ions, mais aussi pour les cas particuliers où l'échantillon est trop petit pour une analyse normale sur les collecteurs Faraday. Ce détecteur est aussi important pour faire des mesurages de blanc de filament, etc.

**6.2 Système de préchauffage et de dégazage de filament**, pour le nettoyage des filaments avant dépôt.

**6.3 Appareil de préparation des filaments**, pour le dépôt des échantillons sur les filaments nettoyés et assurant un séchage et une oxydation reproductibles des échantillons sans contamination croisée.

ISO 8299:2005

## 7 Préparation chimique

### 7.1 Sous échantillonnage et traçage

Deux procédures alternatives sont décrites ci-après.

#### 7.1.1 Sous-échantillonnage et traçage après dilution

La procédure s'applique aux solutions contenant du plutonium dont l'abondance en isotope 239 est de 85 % ou plus, tel que rencontré par exemple dans les solutions de combustibles à uranium naturel irradiés dans les réacteurs graphite-gaz.

- a) Peser à  $\pm 0,1$  mg près environ 2 ml d'échantillon de la solution concentrée de combustible, contenant entre 0,5 g et 0,6 g d'uranium et entre 4 mg et 6 mg de plutonium, dans un flacon de 100 ml taré. Enregistrer la masse  $m_1$  de l'échantillon. Prendre pendant la pesée les précautions nécessaires pour éviter l'évaporation de l'échantillon.
- b) Diluer à 100 ml avec de l'acide nitrique, 7 mol/l (4.2.1), mesurer et enregistrer la masse  $m_2$  à 10 mg près, et bien mélanger.
- c) Dans un autre flacon de 100 ml taré, transférer 5 ml de la solution précédente, peser à  $\pm 0,1$  mg près, et enregistrer la masse  $m'_1$  de l'aliquote.

- d) Diluer à 100 ml avec de l'acide nitrique, 7 mol/l (4.2.1), pour obtenir une solution contenant de 0,2 mg à 0,3 mg d'uranium et de 2 µg à 3 µg de plutonium par millilitre. Mesurer et enregistrer la masse  $m'_2$  de la solution diluée à 10 mg près, et bien mélanger. Calculer le facteur de dilution  $F$  selon l'Équation (1):

$$F = \frac{m_2 \cdot m'_2}{m_1 \cdot m'_1} \quad (1)$$

- e) Pipeter 1 ml ou 2 ml de la solution diluée de l'échantillon dans un becher jetable de 60 ml et utiliser cet aliquote pour la détermination de la composition isotopique de l'uranium et du plutonium de l'échantillon.
- f) Peser 1 ml ou 2 ml de la solution de traceur (4.1.7) et 1 ml ou 2 ml de la solution diluée de l'échantillon  $\pm 0,1$  mg dans un becher jetable taré de 60 ml. Enregistrer respectivement les masses  $m_S$  et  $m_C$  des aliquotes du traceur et de l'échantillon dilué.
- g) Pencher et faire tourner le becher soigneusement pour mouiller la paroi interne et assurer que tout le liquide est quantitativement mélangé. Utiliser ce mélange pour la détermination des concentrations en uranium et plutonium.

### 7.1.2 Traçage avant dilution

Cette procédure s'applique aux solutions contenant du plutonium ayant une abondance en isotope 239 inférieure à 85 % comme rencontré par exemple dans les solutions de combustibles des réacteurs à eau légère.

- a) Peser 1 ml ou 2 ml de l'échantillon de la solution concentrée de combustible à  $\pm 0,1$  mg près dans un flacon contenant un traceur sec de grande taille (4.1.6) et ajouter 7 ml d'acide nitrique, 7 mol/l (4.2.1). Enregistrer la masse  $m_C$  de l'aliquote de l'échantillon et la masse  $m_S$  de la solution de traceur préalablement introduite dans le flacon et séchée pour préparer le traceur sec de grande taille.
- b) Chauffer à 90 °C pendant environ 30 min pour redissoudre quantitativement le traceur sec.
- NOTE Un temps de dissolution plus long peut être nécessaire si le traceur sec de grande taille contient un ou des matériaux de liaison autres que l'acide nitrique.
- c) Laisser la solution de l'échantillon tracé refroidir à 30 °C au moins, bien mélanger, pipeter une aliquote de 50 µl et la transférer dans un becher jetable de 5 ml à 60 ml. Utiliser cette aliquote pour déterminer les concentrations d'uranium et de plutonium. Dans ce cas le facteur de dilution,  $F$ , est égal à 1.
- d) Pipeter encore 1 ml de la solution de l'échantillon de combustible concentré dans un flacon vide de 10 ml, ajouter 7 ml d'acide nitrique, 7 mol/l (4.2.1), bien mélanger et pipeter 100 µl de la solution diluée dans un becher jetable de 5 ml à 60 ml. Utiliser cette aliquote pour la détermination des compositions isotopiques de l'uranium et du plutonium de l'échantillon.

## 7.2 Ajustement de valence chimique et échange isotopique

S'il y a un risque de présence de plutonium polymère dans l'échantillon ou dans le traceur, il est conseillé d'ajouter de l'acide fluorhydrique (4.2.7) et mettre à reflux les aliquotes, puis complexer l'excès d'acide fluorhydrique avec des ions  $Al^{3+}$  avant le traitement.

Un cycle redox est réalisé pour assurer que tous les isotopes du plutonium sont à la valence quatre avant que la séparation par échange ionique soit entreprise.

- a) Ajouter 0,1 ml de solution de sulfate ferreux (4.2.2) à chaque aliquote.
- b) Mélanger et attendre 15 min pour une réduction complète de tout le plutonium en Pu(III) ou Pu(IV).
- c) Ajouter 0,1 ml de solution de nitrite de sodium (4.2.3) et mélanger 10 min pour réoxyder tout le plutonium à la valence quatre.

### 7.3 Séparation par échange ionique

- a) Remplir une colonne chromatographique (5.6) avec une suspension de résine échangeuse d'ions (4.2.6) en acide nitrique, 7 mol/l (4.2.1), pour obtenir un lit de résine d'environ 40 mm de hauteur. Vérifier que l'acide s'écoule à travers la colonne avec un débit compris entre 0,2 ml/min et 0,5 ml/min, après décantation de la résine.
- b) Transférer une aliquote d'échantillon sur la colonne.
- c) Ajouter 7,5 ml d'acide nitrique, 7 mol/l (4.2.1), soit 15 fois le volume du lit de résine, sur la colonne pour enlever les produits de fission et l'américium, et jeter ces effluents.
- d) Continuer l'élution avec 1,5 ml d'acide nitrique, 7 mol/l (4.2.1), soit 3 fois le volume du lit de résine, et recueillir la fraction dans un becher de 25 ml pour le mesurage de l'uranium.
- e) Éliminer la traîne d'uranium avec 30 ml d'acide nitrique, 7 mol/l (4.2.1), soit 60 fois le volume du lit de résine, et jeter cette solution.
- f) Ajouter 1,5 ml de nitrate d'hydroxylamine en solution (4.2.4), soit 3 fois le volume du lit de résine, et jeter ces effluents qui ne devraient contenir que très peu de plutonium.
- g) Éluer le plutonium avec à nouveau 3 ml de nitrate d'hydroxylamine en solution (4.2.4), soit 6 fois le volume du lit de résine, et recueillir le plutonium élué dans un becher de 25 ml.

NOTE La procédure indiquée ci-dessus permet de recueillir environ 15 % de la quantité initiale d'uranium et 80 % du plutonium.

iTeh STANDARD PREVIEW

### 7.4 Traitements répétés (standards.iteh.ai)

- a) Répéter les étapes 7.1 à 7.3 pour obtenir des doubles fractions séparées non tracées et tracées d'uranium et de plutonium. <https://standards.iteh.ai/catalog/standards/sist/6836d986-f769-423b-aa91-b3aef02b834d/iso-8299-2005>
- b) Évaporer jusqu'à sec toutes les fractions recueillies d'uranium et de plutonium et les redissoudre avec une quantité appropriée d'acide nitrique, 0,3 mol/l (4.2.1) ou 4 mol/l (4.2.1), pour obtenir les concentrations suivantes: 40 µg/ml à 1 000 µg/ml d'uranium, et 10 µg/ml à 100 µg/ml de plutonium.
- c) Transférer chaque fraction dans un flacon en polyéthylène à usage unique, le fermer hermétiquement et le transférer au laboratoire de spectrométrie de masse.

## 8 Préparation des filaments

### 8.1 Dégazage des filaments

Il est recommandé de purifier les filaments, particulièrement le filament d'ionisation, avant usage en les dégazant dans une chambre à vide (6.2). La quantité résiduelle des impuretés peut être contrôlée en chargeant dans le spectromètre de masse des filaments dégazés sans dépôt, qui sont chauffés à la température normale de fonctionnement.

### 8.2 Dépôt classique de l'échantillon

Monter un filament propre sur l'appareil de préparation de filament (6.3). L'échantillon dans l'acide nitrique est déposé, goutte à goutte, sur le filament à l'aide d'une pipette. Il convient que la taille de la goutte soit aussi petite que possible, mais avec une quantité de produit suffisante pour le mesurage. Une taille de goutte dans la gamme de 0,2 µl à 1,0 µl contenant de 20 ng à 200 ng U ou de 5 ng à 50 ng Pu doit être favorisée pour la technique d'évaporation totale. En appliquant un faible courant dans le filament on sèche la solution déposée. Quand l'échantillon est sec le courant peut être augmenté lentement pour oxyder l'échantillon. En fonction de la température, l'échantillon peut former différents oxydes sur le filament. Quand on utilise la méthode