

# La traçabilité des différentes formes d'uranium

Remo Chiappini : **CEA/DAM/DIF/DASE**  
Service Radioanalyses Chimie et Environnement

Ou

**Comment les techniques analytiques modernes permettent de connaître l'origine d'un échantillon d'uranium**

# L'uranium naturel à l'équilibre séculaire

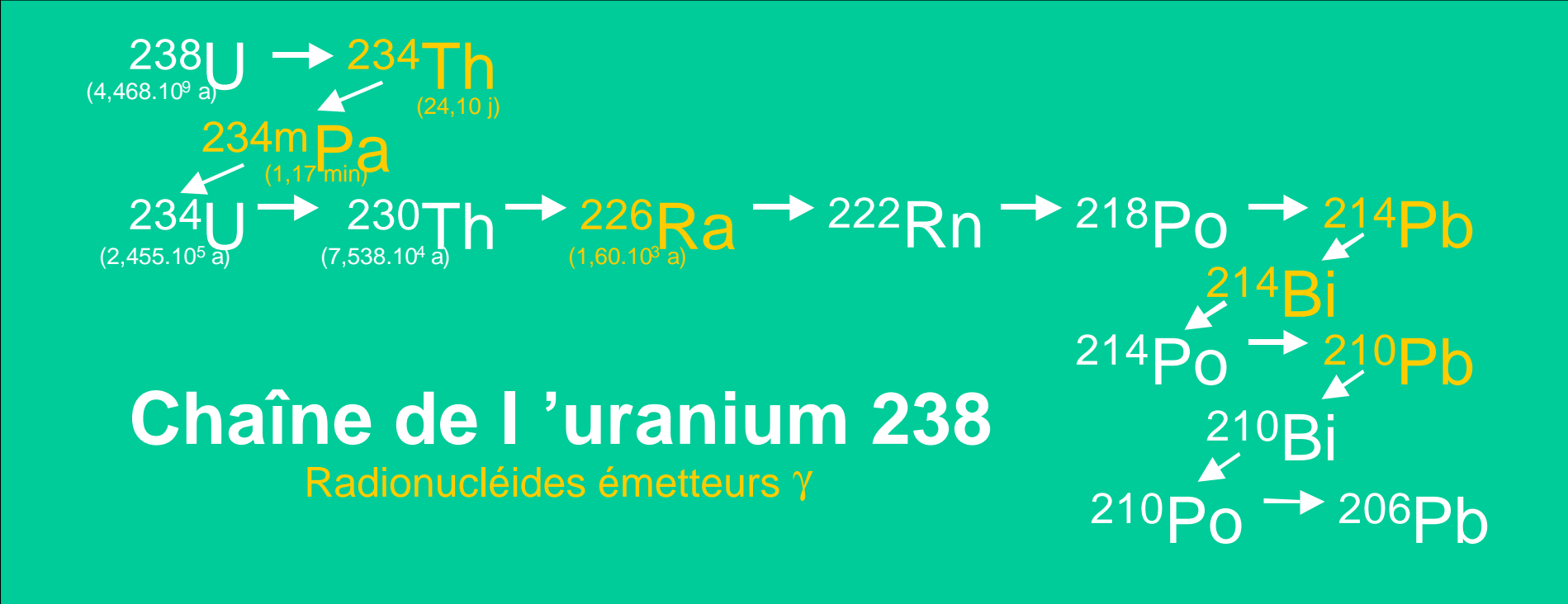


**Minerai de phosphate d'uranium**



Minerai de phosphate d'uranium naturel à l'équilibre séculaire

$$\begin{aligned}
 {}^{234}\text{U}/{}^{238}\text{U} &= 5,5 \cdot 10^{-5} \\
 {}^{235}\text{U}/{}^{238}\text{U} &= 0,725 \cdot 10^{-2} \\
 {}^{236}\text{U}/{}^{238}\text{U} &= 5 \cdot 10^{-10} \\
 {}^{239}\text{Pu}/{}^{238}\text{U} &= 3 \text{ à } 15 \cdot 10^{-12}
 \end{aligned}$$



Minerai de phosphate d'uranium  
naturel à l'équilibre séculaire



Conversion chimique

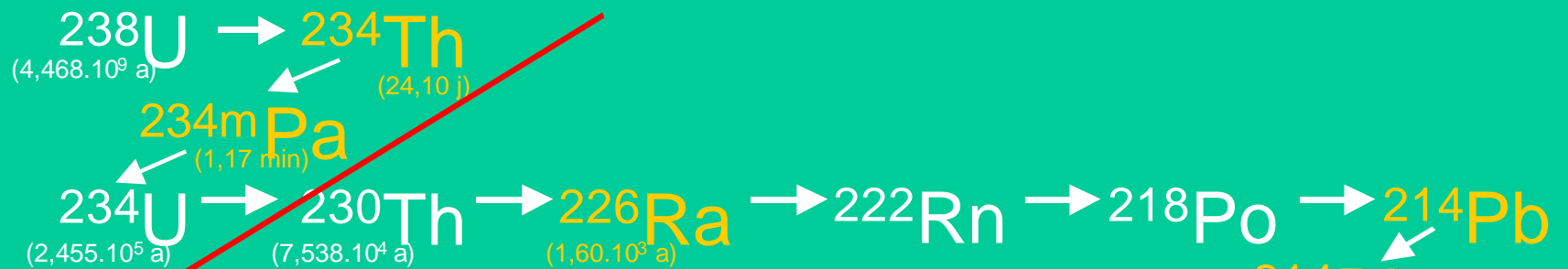
Uranium manufacturé

- Dissolution  $HNO_3$

- Purification  
*Tributylphosphate*

- Précipitation

- Calcination



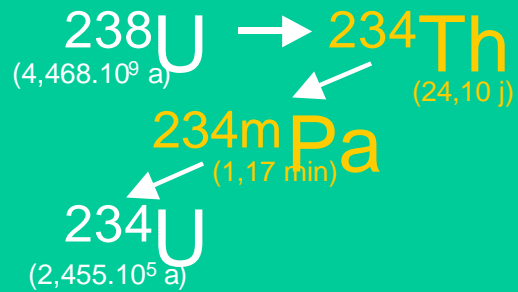
**Rupture de chaîne**  
 **$^{230}\text{Th}$  a une vie longue**

Uranium manufacturé

$$^{234}\text{U}/^{238}\text{U} = 5,5 \cdot 10^{-5}$$

$$^{235}\text{U}/^{238}\text{U} = 0,725 \cdot 10^{-2}$$

$$^{236}\text{U}/^{238}\text{U} = 5 \cdot 10^{-10}$$



**Compte tenu de leur période courte, le thorium 234 et le protactinium 234m sont à l'équilibre au terme de quelques mois**

Uranium manufacturé

$$\begin{aligned}
 {}^{234}\text{U}/{}^{238}\text{U} &= 5,5 \cdot 10^{-5} \\
 {}^{235}\text{U}/{}^{238}\text{U} &= 0,725 \cdot 10^{-2} \\
 {}^{236}\text{U}/{}^{238}\text{U} &= 5 \cdot 10^{-10}
 \end{aligned}$$

Minerai de phosphate d'uranium  
naturel à l'équilibre séculaire



↓  
conversion

Uranium manufacturé

**Combustible  
en réacteur  
de type  
UNGG**

Uranium Naturel Graphite Gaz

$^{234}\text{U}/^{238}\text{U} : 10^{-4}$

$^{235}\text{U}/^{238}\text{U} : 4 \cdot 10^{-3} \text{ à } 7 \cdot 10^{-3}$

$^{236}\text{U}/^{238}\text{U} : 3 \cdot 10^{-5} \text{ à } 3 \cdot 10^{-4}$

$^{239}\text{Pu}/^{238}\text{U} : 10^{-9} \text{ à } 10^{-8}$

$^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu} : \text{qq}\% \text{ à } 20\%$

traces de PF

Uranium appauvri

Retraitement

Combustible utilisé

Minerai de phosphate d'uranium  
naturel à l'équilibre séculaire



conversion

Uranium manufacturé

Combustible  
en réacteur  
de type  
UNGG

Uranium naturel  
Graphite Gaz

retraitement

U appauvri

Conversion  $UF_4$  et  $UF_6$   
Enrichissement par diffusion gazeuse

Uranium militaire  
très enrichi

- Isotopie uranium bien définie
- "Absence" d'uranium 236
- "Absence" de plutonium
- "Absence" de produits de fission



Minerai de phosphate d'uranium naturel à l'équilibre séculaire



conversion

Uranium manufacturé

U militaire très enrichi

Enrichissement pour REP



Combustible en réacteur de type UNGG

Uranium naturel  
Graphite Gaz

retraitement

U appauvri (UNGG)

U appauvri

$^{235}\text{U}/^{238}\text{U} < 3,5 \cdot 10^{-3}$

“Absence” de  $^{236}\text{U}$

“Absence” de Pu

“Absence” de PF

U enrichi

$^{235}\text{U}/^{238}\text{U} : 3,5 \cdot 10^{-2}$

“Absence” de  $^{236}\text{U}$

“Absence” de Pu

“Absence” de PF

Minerai de phosphate d'uranium naturel à l'équilibre séculaire



conversion

Uranium manufacturé

U militaire très enrichi

Enrichissement pour REP par Diffusion Gazeuse



U appauvri (DG)

U enrichi (DG)

Combustible en réacteur de type REP  
Réacteur à Eau Pressurisée

Combustible en réacteur de type UNGG

Uranium naturel  
Graphite Gaz

Combustible utilisé

Retraitement

Uranium de retraitement

retraitement

U appauvri (UNGG)

$^{234}\text{U}/^{238}\text{U} : 10^{-4}$   
 $^{235}\text{U}/^{238}\text{U} : 0,9 \text{ à } 1\%$   
 $^{236}\text{U}/^{238}\text{U} : 4 \cdot 10^{-3}$

$^{239}\text{Pu}/^{238}\text{U} : 10^{-9} \text{ à } 10^{-8}$   
 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu} : 40 \text{ à } 50\%$   
traces de PF

Minerai de phosphate d'uranium naturel à l'équilibre séculaire



conversion

Uranium manufacturé

U militaire très enrichi

Enrichissement pour REP par Diffusion Gazeuse



U appauvri (DG)

U enrichi (DG)

Combustible en réacteur de type REP

Réacteur à Eau Pressurisée

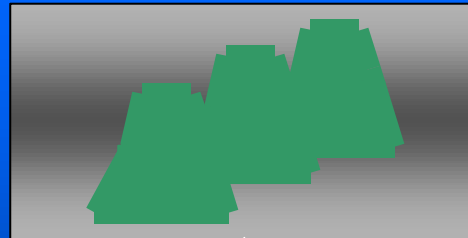
U de retraitement (REP)

Combustible en réacteur de type UNGG

Uranium naturel  
Graphite Gaz

retraitement

U appauvri (UNGG)



Enrichissement

U appauvri (R)

U enrichi (R)

$^{235}\text{U}/^{238}\text{U} < 3,5 \cdot 10^{-3}$   
 $^{236}\text{U}$ , absence PF, Pu

$^{235}\text{U}/^{238}\text{U} : 3,5 \cdot 10^{-2}$   
 $^{236}\text{U}$ , absence PF, Pu

Minerai de phosphate d'uranium naturel à l'équilibre séculaire



**1**

conversion

Uranium manufacturé

**2**

Combustible en réacteur de type UNGG

Uranium naturel  
Graphite Gaz

retraitement

U appauvri (UNGG)

**3**

U militaire très enrichi

**4**



**5**

U appauvri (DG)

**6**

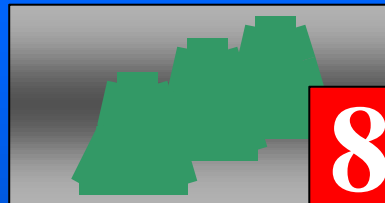
U enrichi (DG)

Enrichissement pour REP par Diffusion Gazeuse

U de retraitement (REP)

**7**

Enrichissement



**8**

U appauvri (R)

U enrichi (R)

**9**

Combustible en réacteur de type REP  
Réacteur à Eau Pressurisée

Neuf matériaux uranium avec des signatures isotopiques très caractéristiques

Minerai de phosphate d'uranium naturel à l'équilibre séculaire



**1**

conversion

Uranium manufacturé

**2**

Combustible en réacteur de type UNGG

Uranium naturel  
Graphite Gaz

retraitement

U appauvri (UNGG)

**3**

U militaire très enrichi

**4**



**5**

U appauvri (DG)

**6**

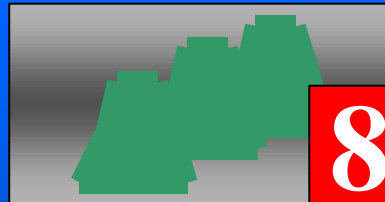
U enrichi (DG)

Enrichissement pour REP par Diffusion Gazeuse

U de retraitement (REP)

**7**

Enrichissement



**8**

U appauvri (R)

U enrichi (R)

**9**

Combustible en réacteur de type REP

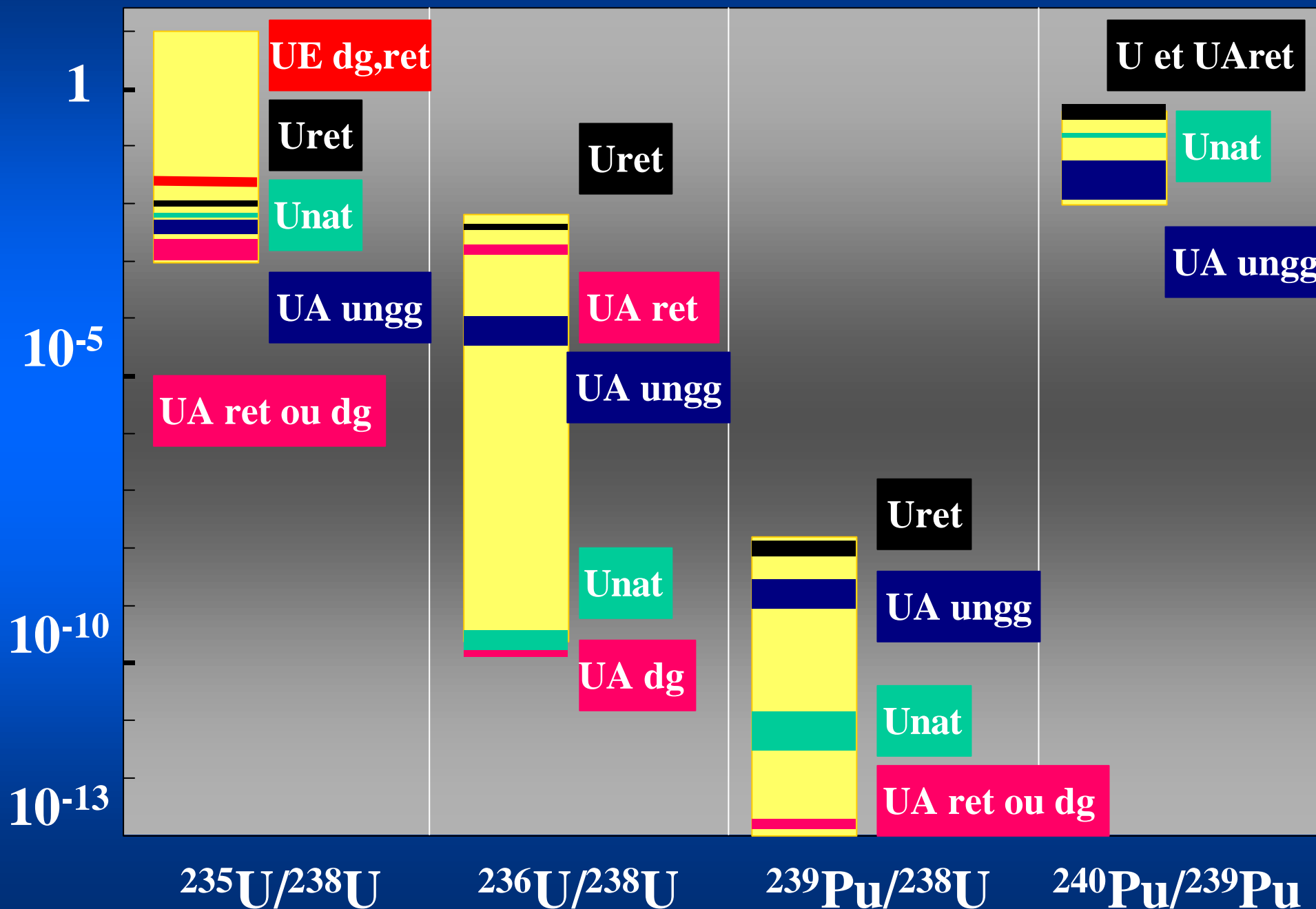
Réacteur à Eau Pressurisée

$^{234}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{236}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$  ainsi que  $^{232}\text{U}$   
 $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$  ainsi que  $^{238}\text{Pu}$  et  $^{241}\text{Pu}$

Les produits de fission ( $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{99}\text{Tc}$ ..)

Les descendants de l' $^{238}\text{U}$  et  $^{235}\text{U}$

# Les principales signatures isotopiques (rapports massiques)



**Compte tenu des signatures isotopiques souvent voisines  
et des très bas niveaux de concentrations recherchées,**

**Les techniques analytiques doivent :**

- posséder de très basses limites de détections**
- être précises et fidèles**
- être discriminantes**

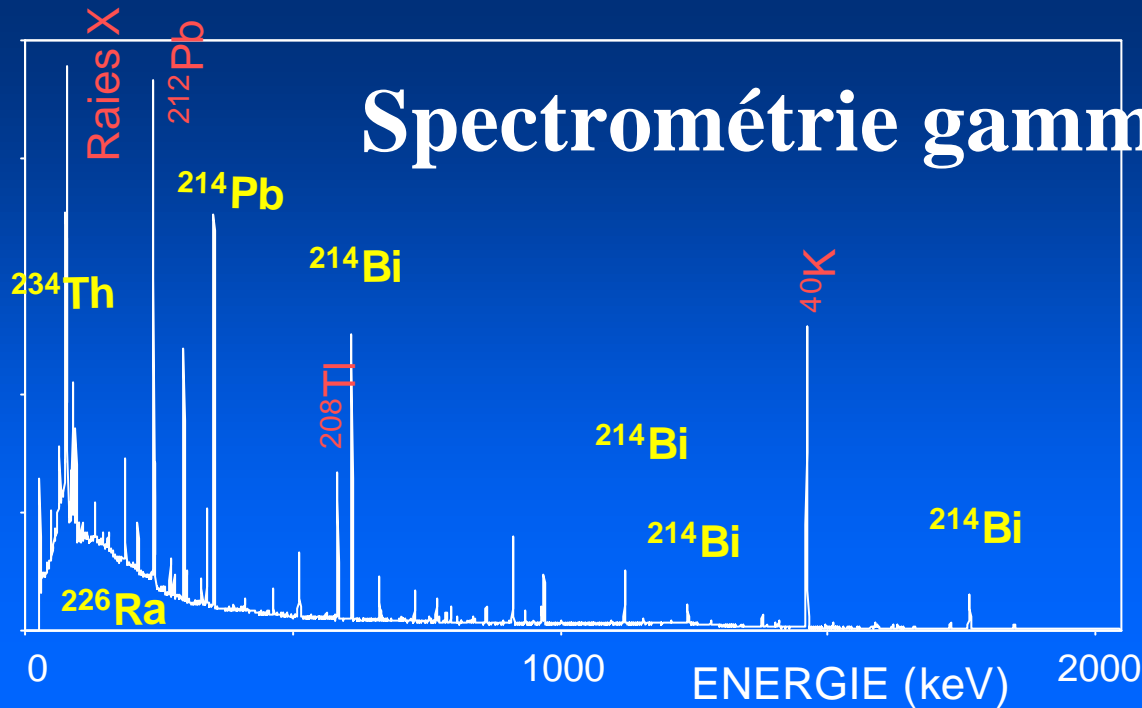
**Et l'ensemble des rapports isotopiques doit être acquis**

# Quelles sont les techniques nécessaires?

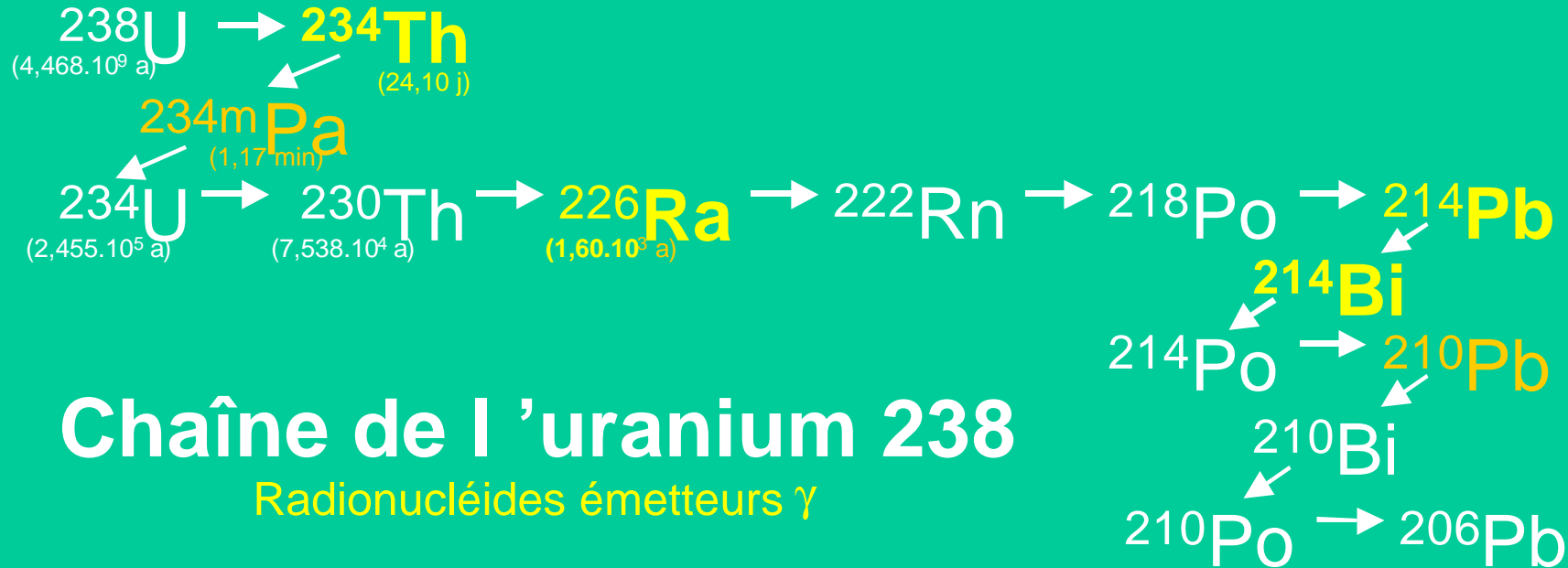
$^{234}\text{U}$	<b>alpha</b>	Spectrométrie de masse
$^{235}\text{U}$	<b>gamma</b>	Spectrométrie de masse
$^{236}\text{U}$	<b>alpha</b>	Spectrométrie de masse
$^{238}\text{U}$	<b>gamma</b>	Spectrométrie de masse
$^{239}\text{Pu}$	<b>alpha</b>	Spectrométrie de masse
$^{240}\text{Pu}$	<b>alpha</b>	Spectrométrie de masse
Descendants $^{238}\text{U}$	<b>gamma</b>	
$^{137}\text{Cs}$ , $^{60}\text{Co}$ ....	<b>gamma</b>	



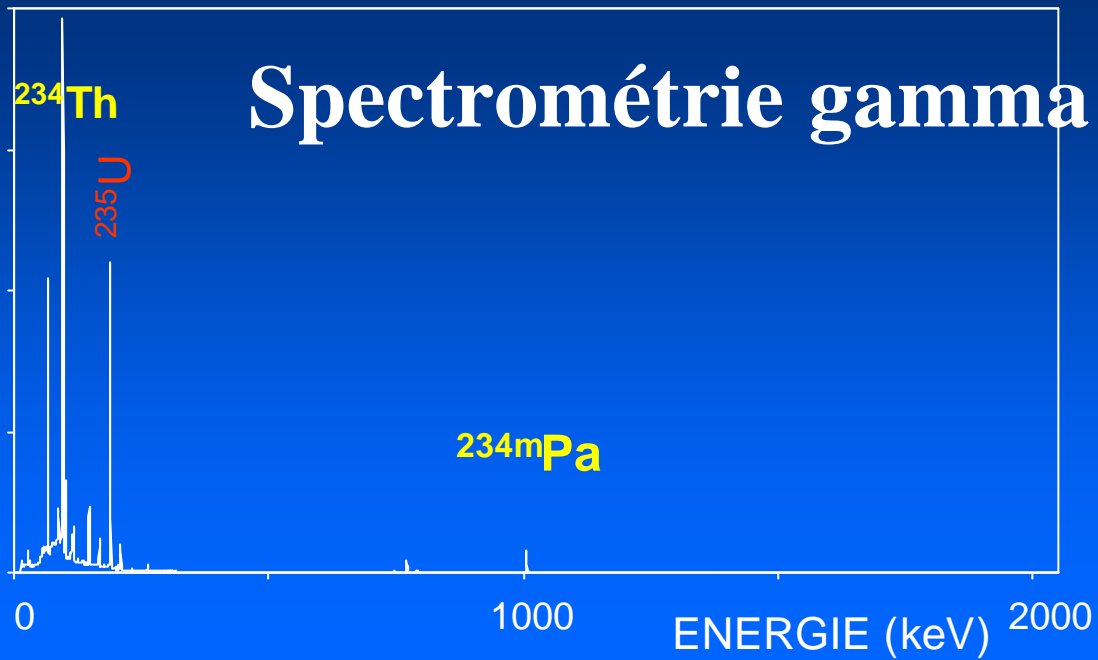
# Spectrométrie gamma



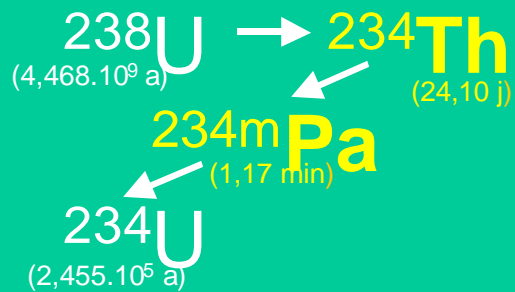
Uranium naturel

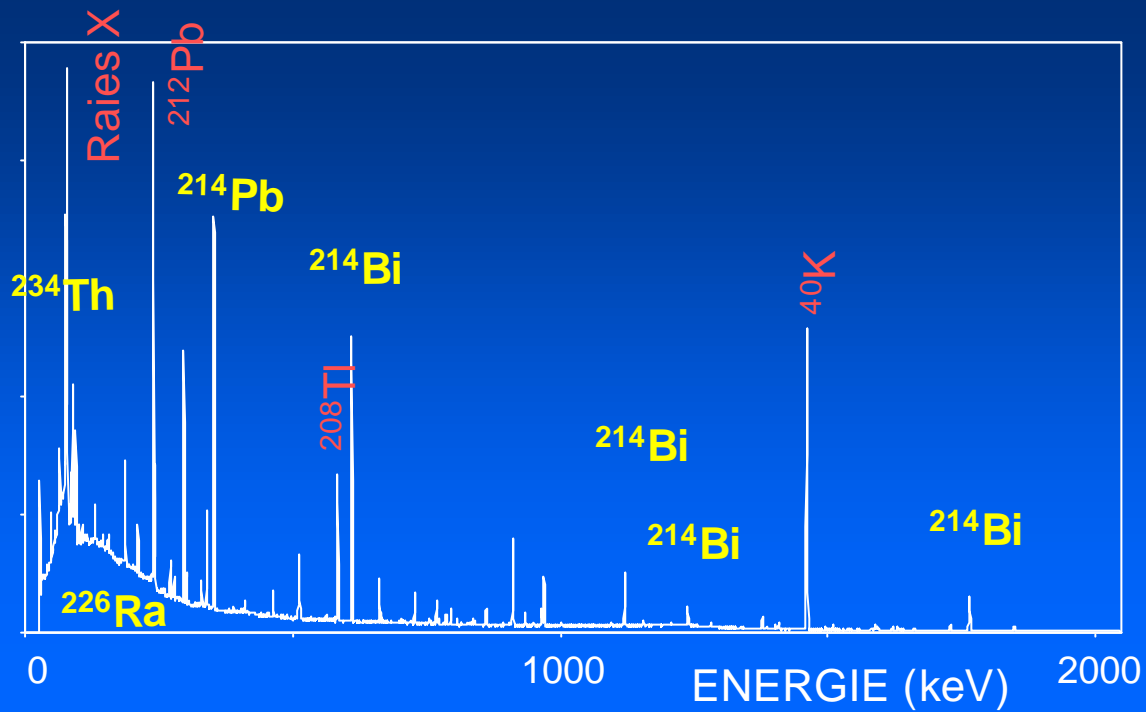


# Spectrométrie gamma

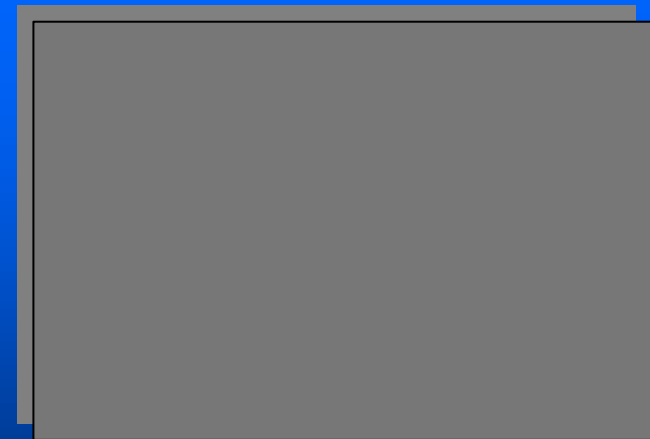
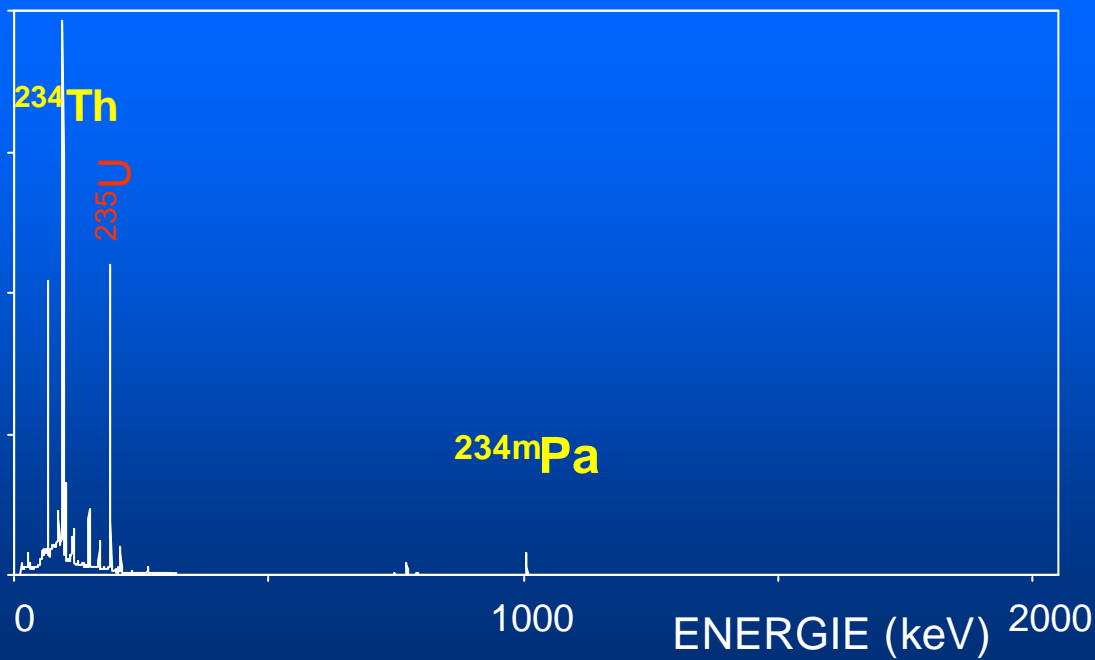


Uranium  
manufacturé





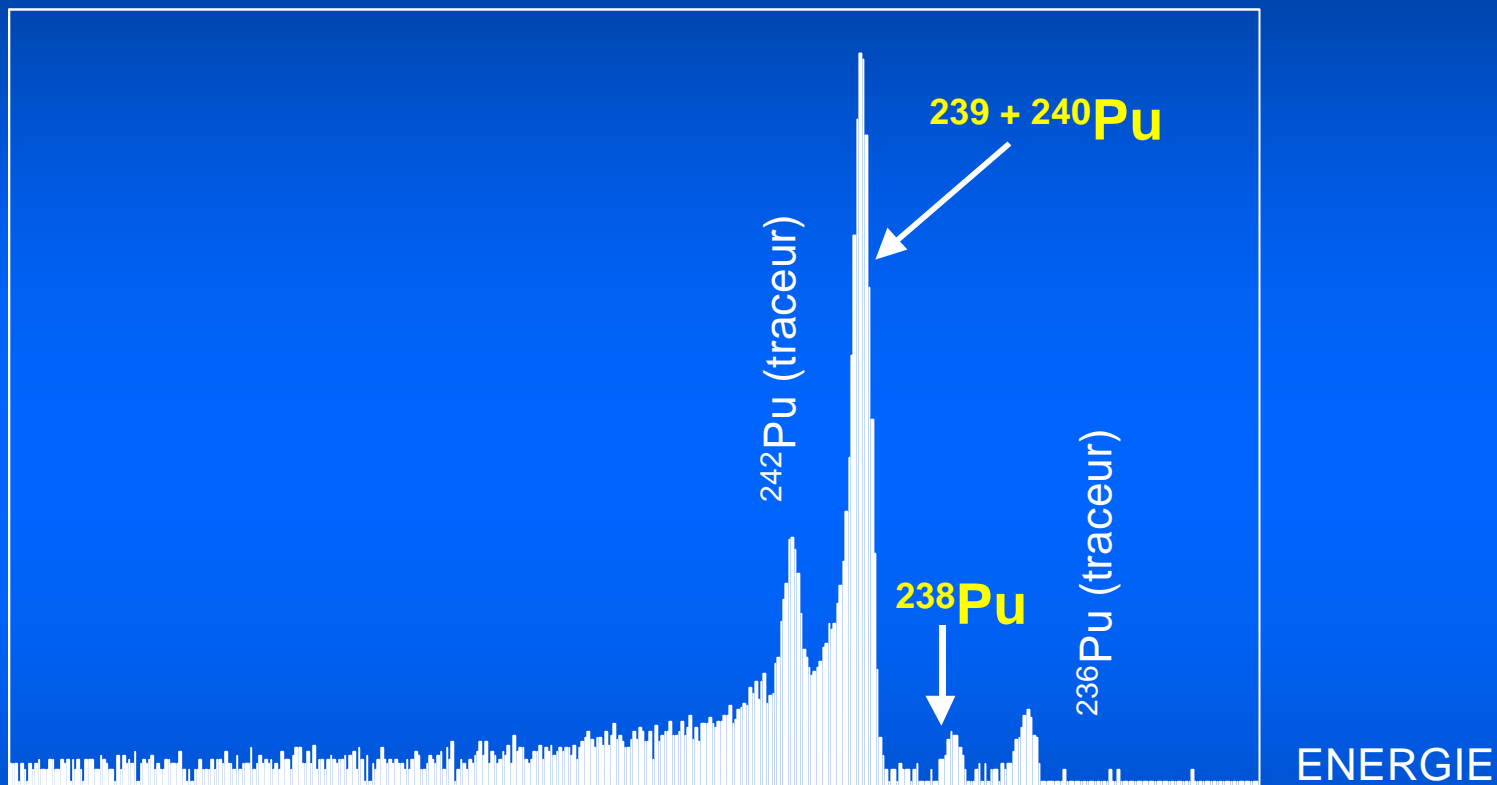
**Uranium naturel**



**Uranium  
manufacturé**

# La spectrométrie alpha

RACINE DU NOMBRE D'IMPULSIONS

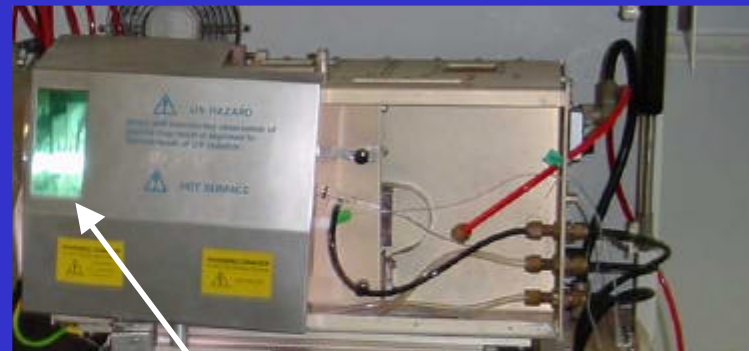


Mesure du plutonium total :  $^{239}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu}$

$^{239+240}\text{Pu}/^{238}\text{U}$  accessible,  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  inaccessible

# La spectrométrie de masse ICP-MS Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry

**Pour la mesure des radionucléides à vie longue  
Isotopes de l'uranium et du plutonium**

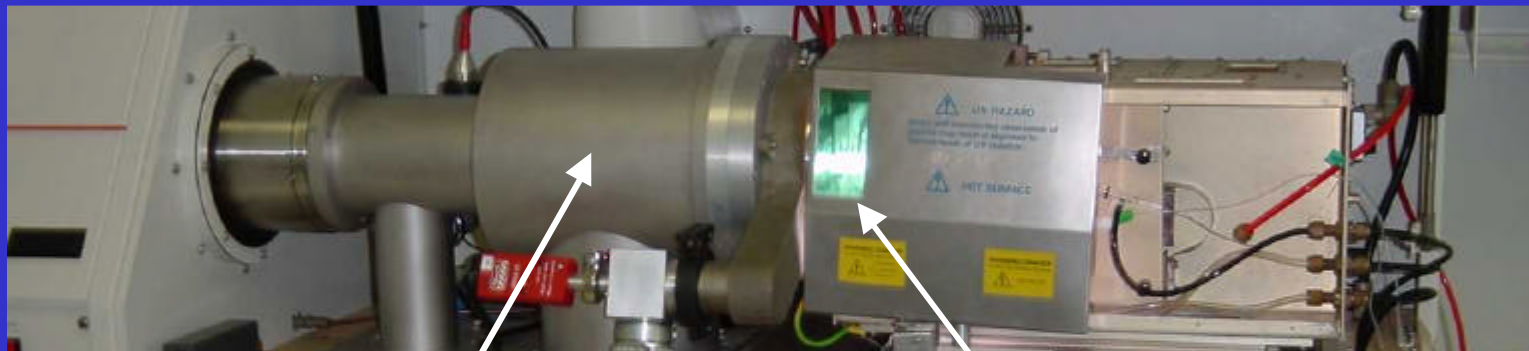


**Plasma  
7000K**

# Couplage

# La spectrométrie de masse ICP-MS Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry

**Pour la mesure des radionucléides à vie longue**



**Spectromètre de masse  
à quadripôle**

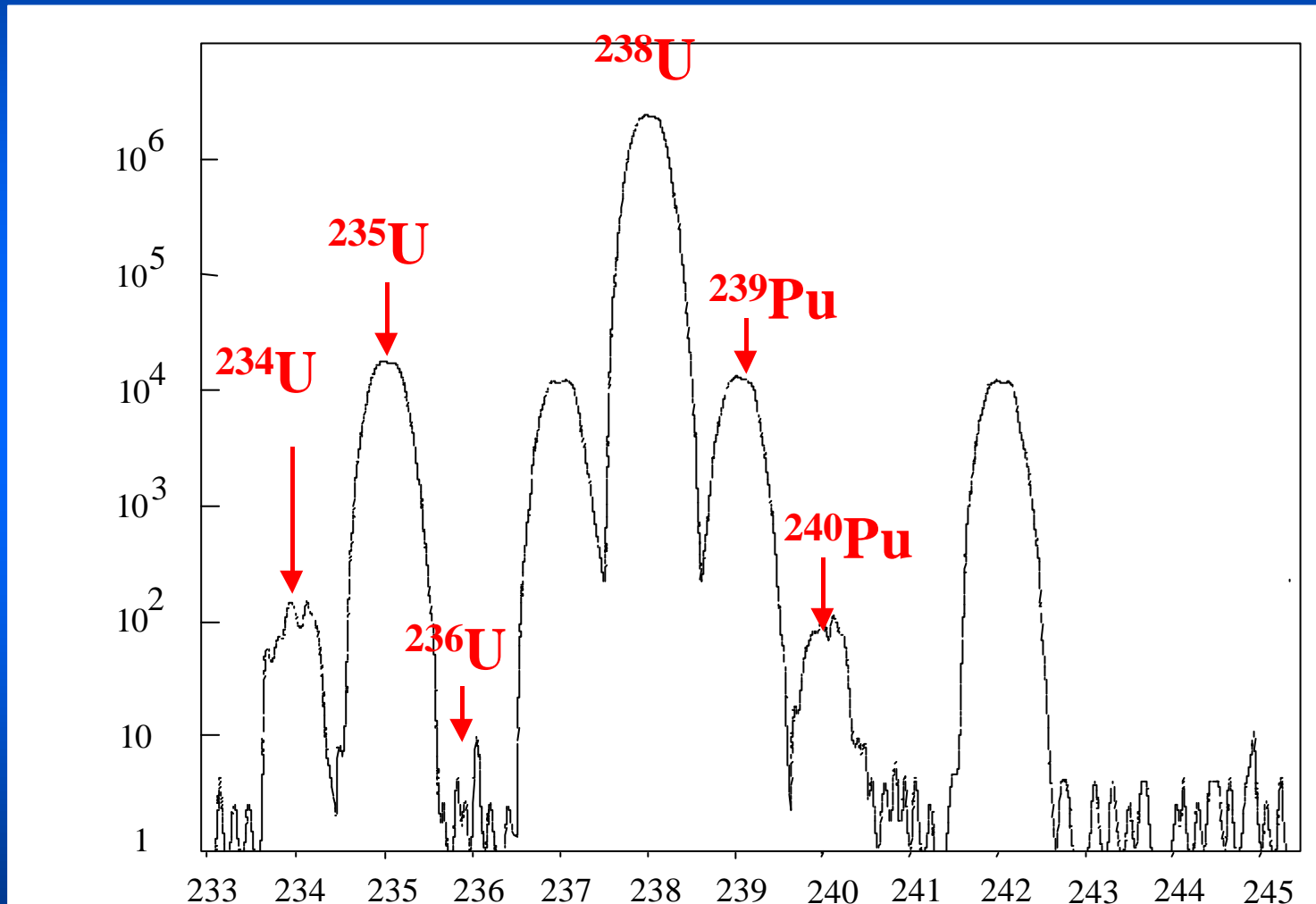
**Plasma  
7000K**

# La spectrométrie de masse ICP-MS

## Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry

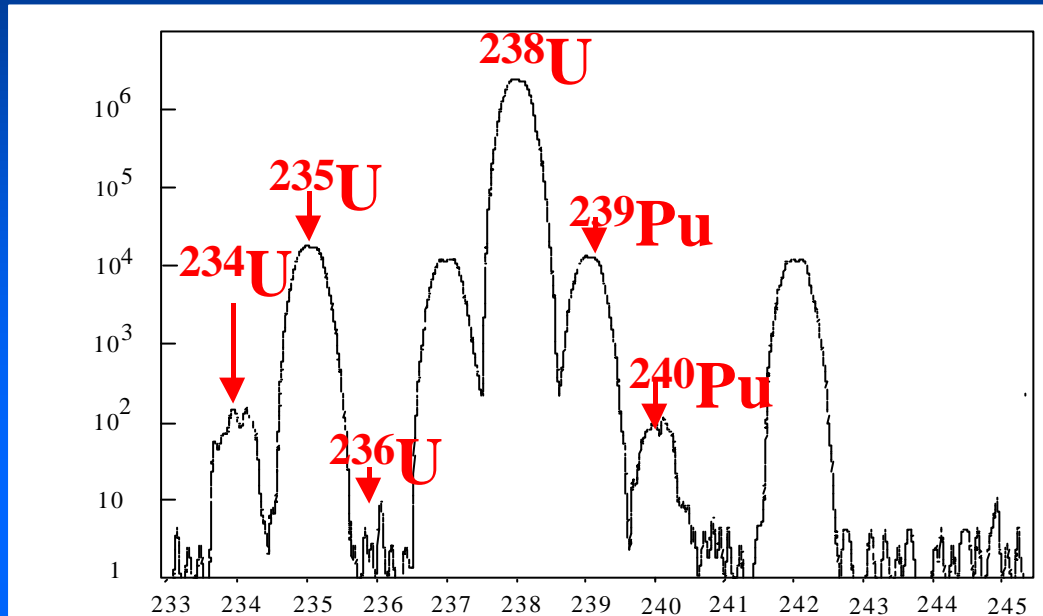


# Un spectre de masse ICP-MS





# La spectrométrie de masse ICP-MS



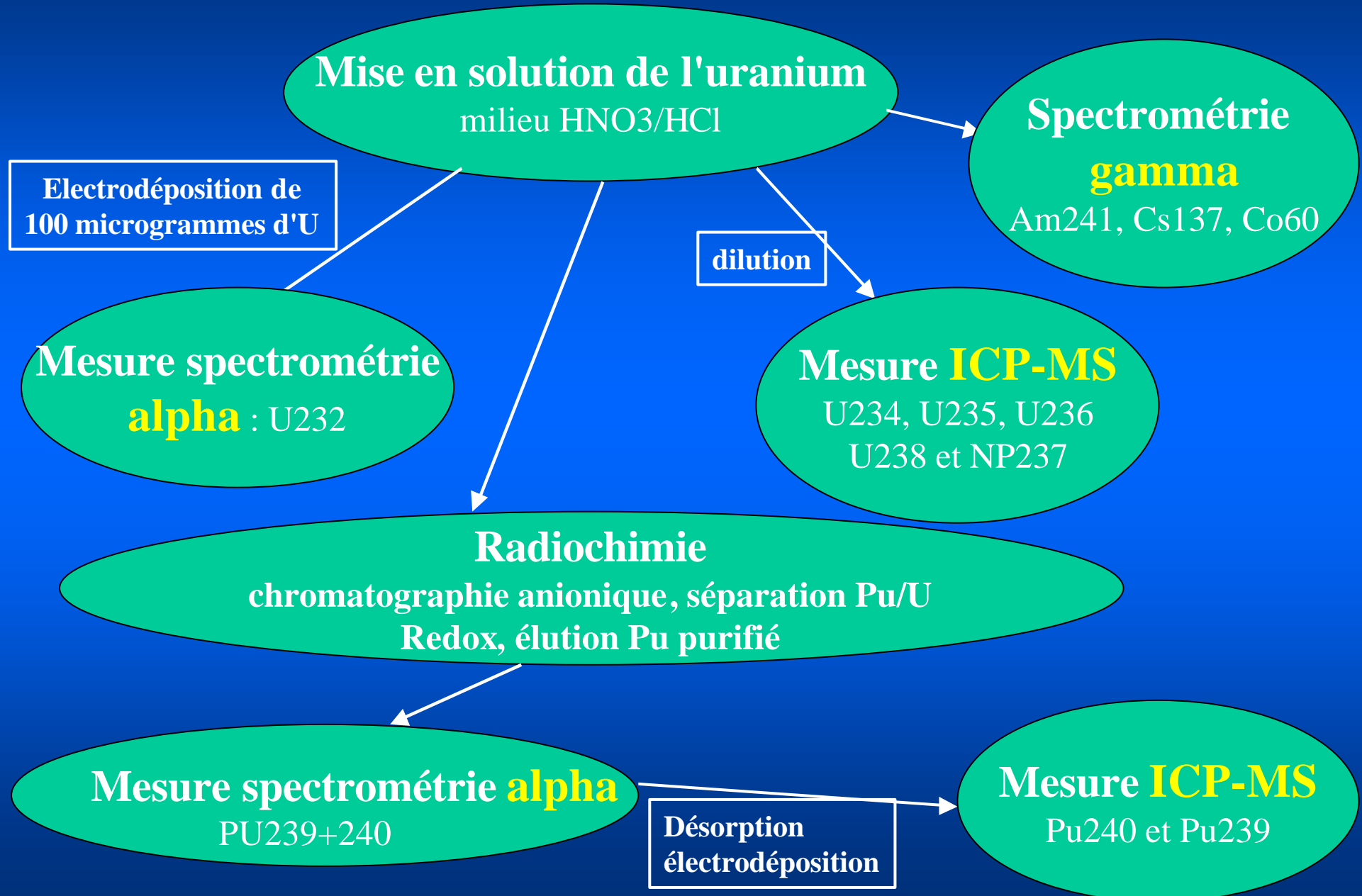
Basses limites de détection : 0,1 fg = 10<sup>-7</sup> Bq de <sup>239</sup>Pu

Mesure précise des rapports isotopique : 1%

Méthode fidèle et discriminante

**Très bonne détermination de signatures isotopiques**

# Les purifications radiochimiques



**Cette méthodologie permet de répondre à des problématiques d'actualité en cette année 2001**

## **Quelques exemples**

- Les obus flèche : origine des matériaux**
- L'uranium dans les urines : d'où vient-il?**
- La prolifération de matières nucléaires**
- L'uranium dans la géosphère : naturel ou rapporté?**