

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

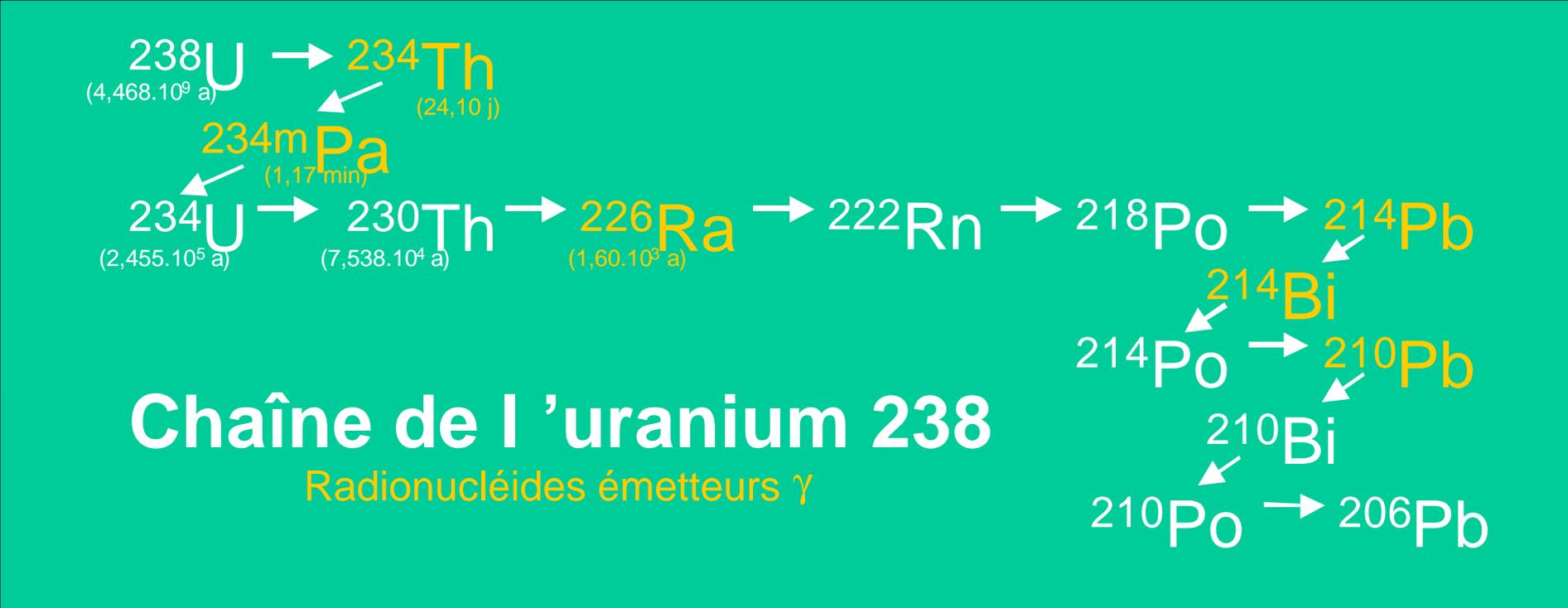


Minerai de phosphate d'uranium



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

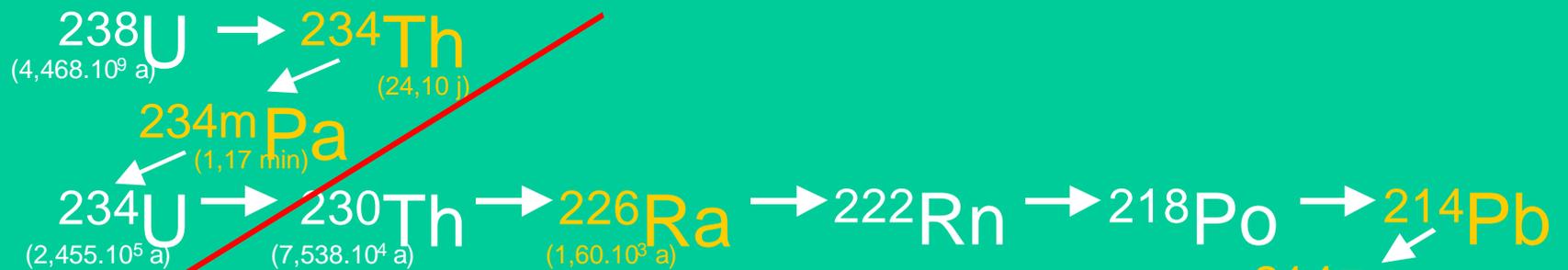
Uranium manufacturé

- Dissolution HNO_3

- Purification
Tributylphosphate

- Précipitation

- Calcination



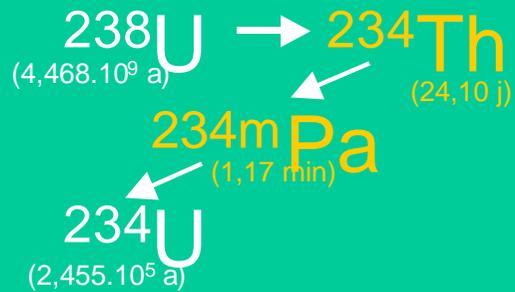
Rupture de chaîne
 ^{230}Th a une vie longue

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}U

“Absence” de Pu

“Absence” de PF

U enrichi

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

“Absence” de ^{236}U

“Absence” de Pu

“Absence” de PF

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



conversion

Uranium manufacturé

Enrichissement pour REP par Diffusion Gazeuse



U militaire très enrichi

U appauvri (DG)

U enrichi (DG)

Combustible en réacteur de type UNGG

Uranium naturel
Graphite Gaz

retraitement

U appauvri (UNGG)

Combustible en réacteur de type REP
Réacteur à Eau Pressurisée

Combustible utilisé

Retraitement

Uranium de retraitement

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

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

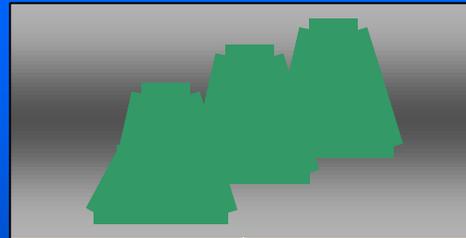
Uranium naturel
Graphite Gaz

retraitement

U appauvri (UNGG)

U de retraitement (REP)

Combustible en réacteur de type REP
Réacteur à Eau Pressurisée



Enrichissement

U appauvri (R)

U enrichi (R)

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

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

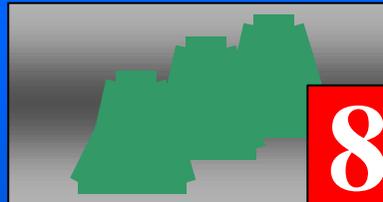
U enrichi (DG)

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

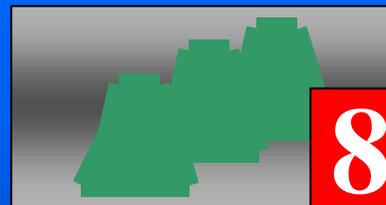
U de retraitement (REP)

7

Combustible en réacteur de type REP

Réacteur à Eau Pressurisée

Enrichissement



8

U appauvri (R)

U enrichi (R)

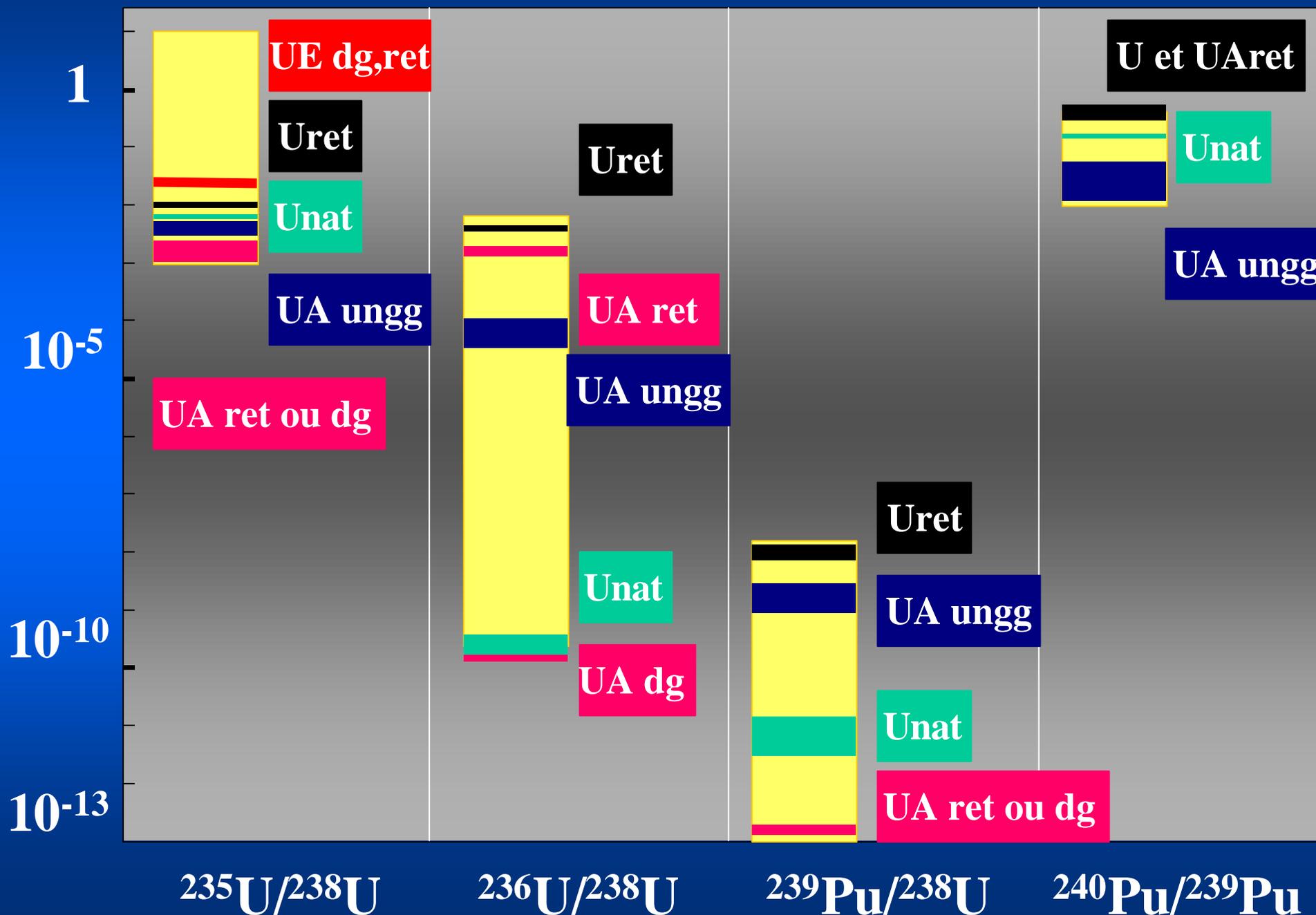
9

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

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

Les descendants de l' ^{238}U et ^{235}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 :

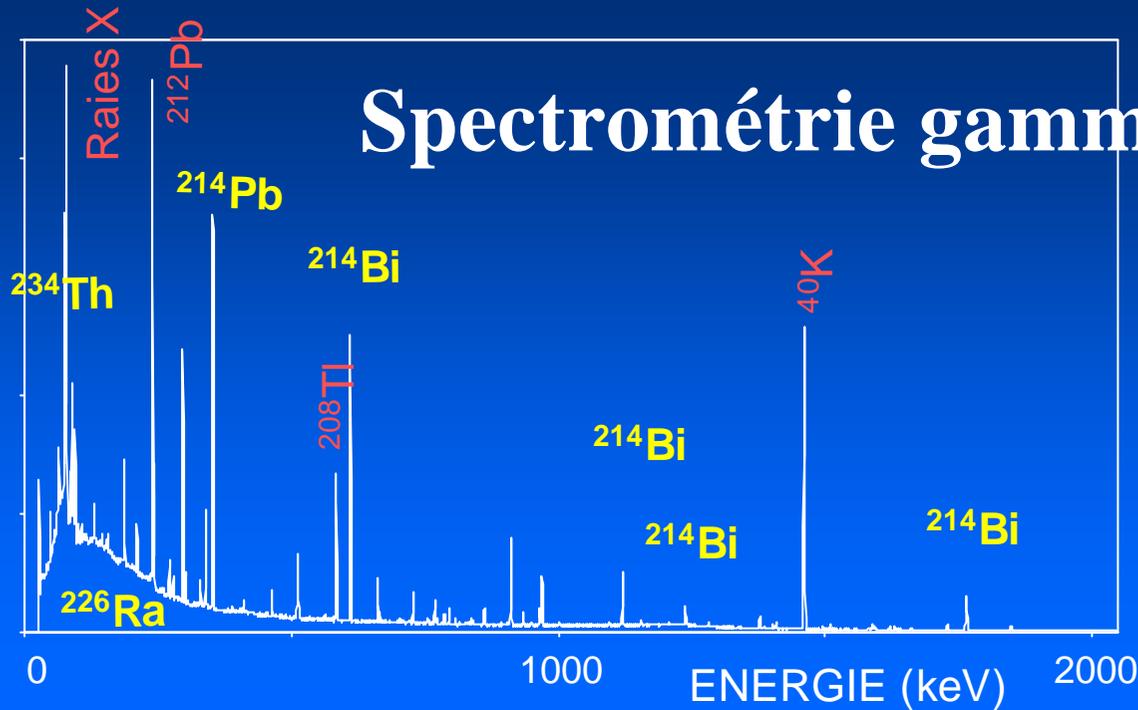
- posséder de très basses limites de détections**
- être précises et fidèles**
- être discriminantes**

Et l'ensemble des rapports isotopiques doit être acquis

Quelles sont les techniques nécessaires?

^{234}U	alpha	Spectrométrie de masse
^{235}U	gamma	Spectrométrie de masse
^{236}U	alpha	Spectrométrie de masse
^{238}U	gamma	Spectrométrie de masse
^{239}Pu	alpha	Spectrométrie de masse
^{240}Pu	alpha	Spectrométrie de masse
Descendants ^{238}U	gamma	
^{137}Cs , ^{60}Co	gamma	

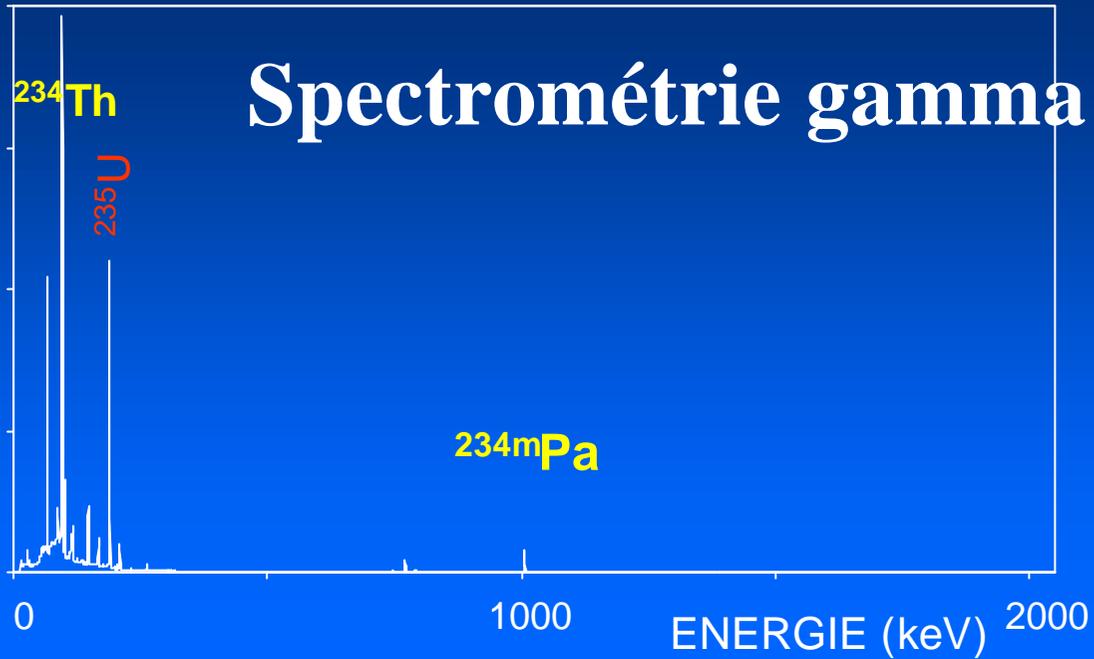
Spectrométrie gamma



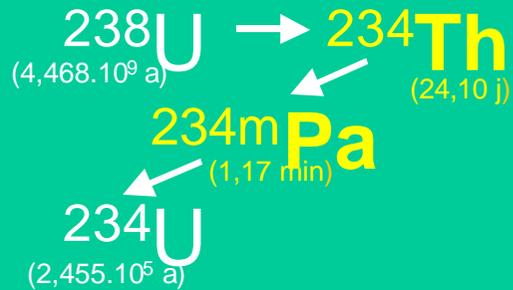
Uranium naturel

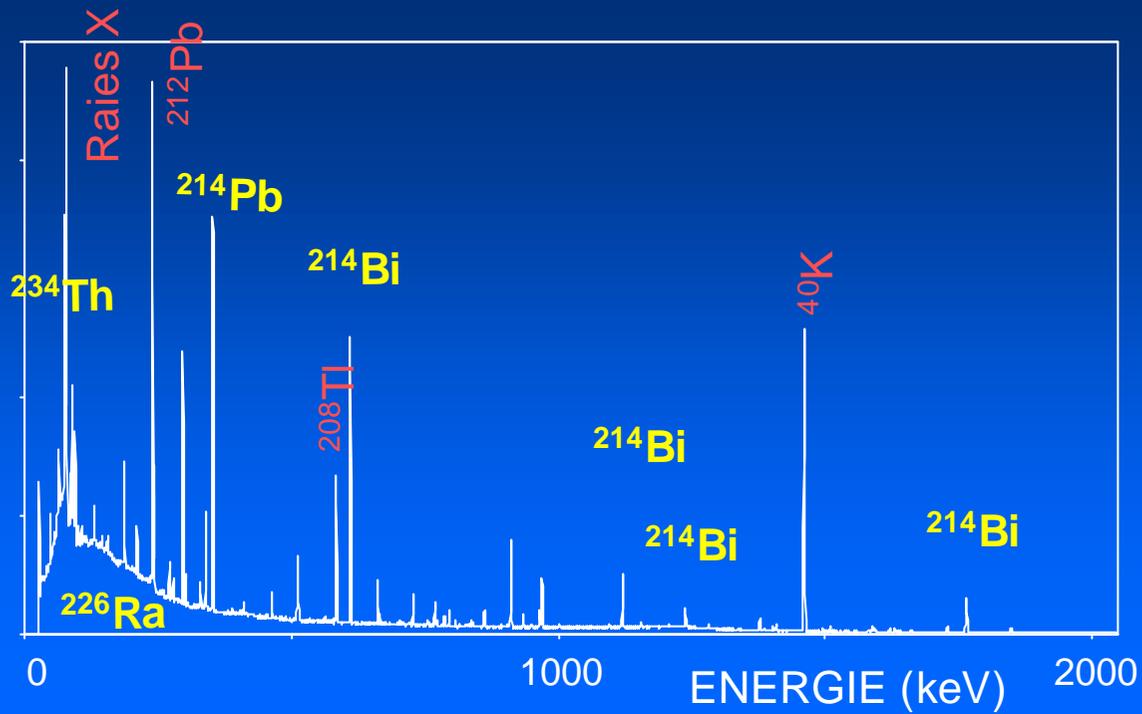


Spectrométrie gamma

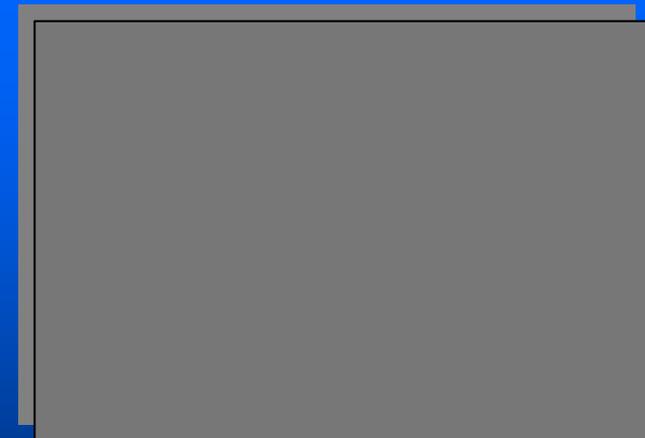
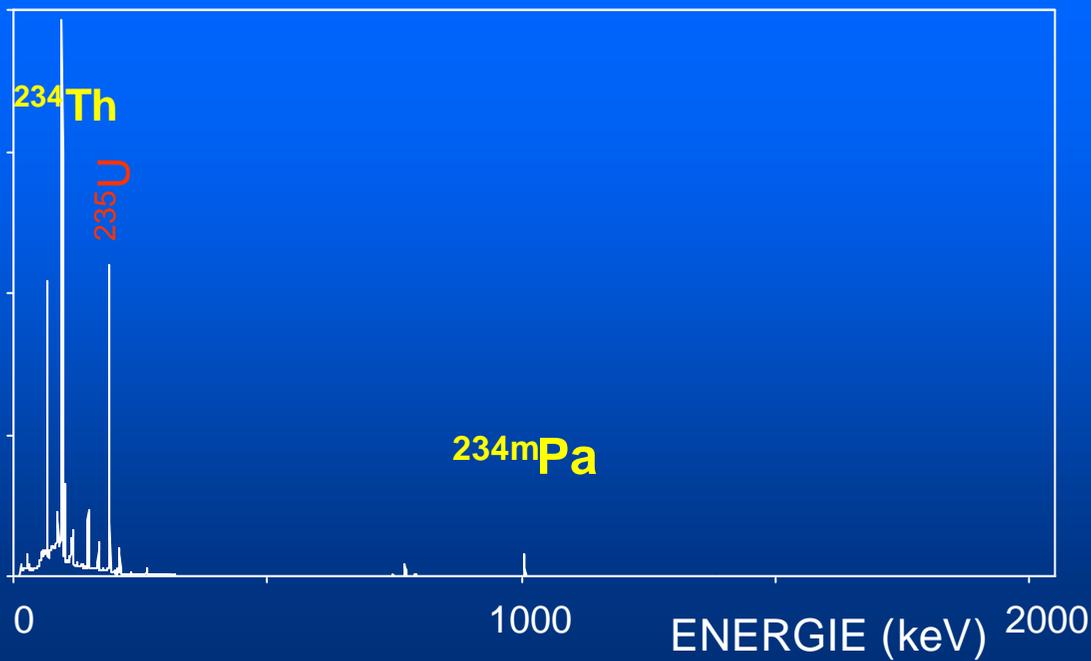


Uranium
manufacturé





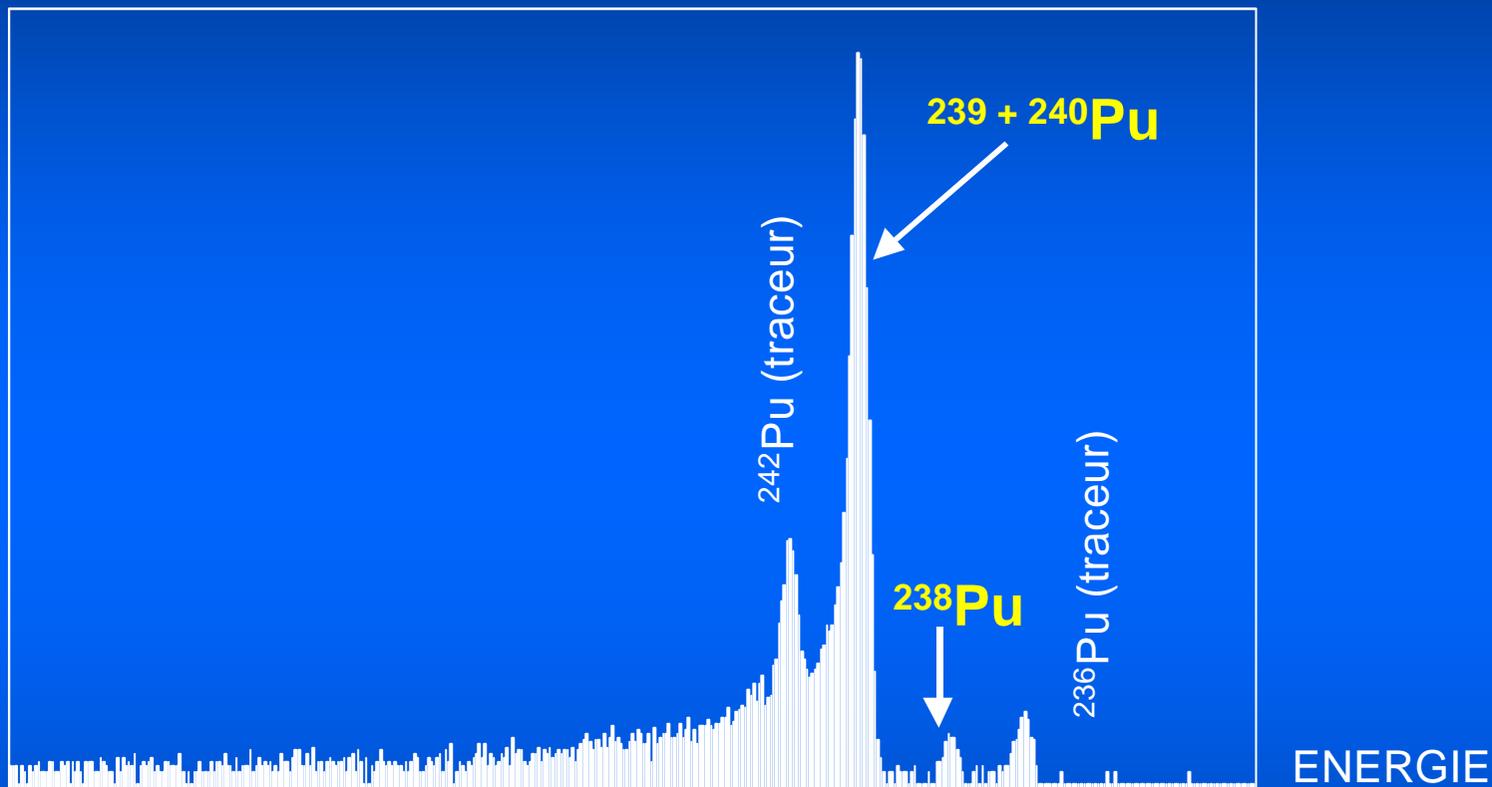
Uranium naturel



**Uranium
manufacturé**

La spectrométrie alpha

RACINE DU NOMBRE D'IMPULSIONS

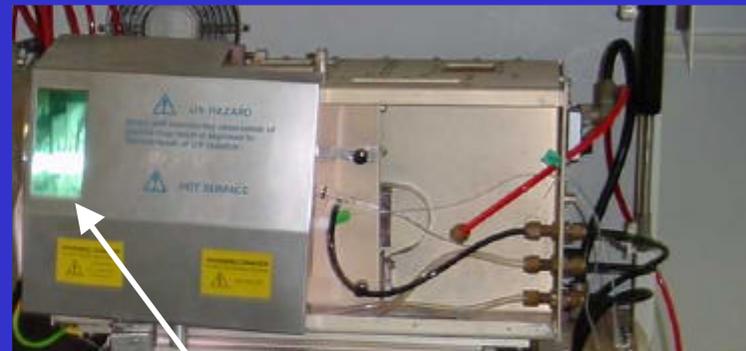


Mesure du plutonium total : $^{239}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu}$

$^{239+240}\text{Pu}/^{238}\text{U}$ 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**

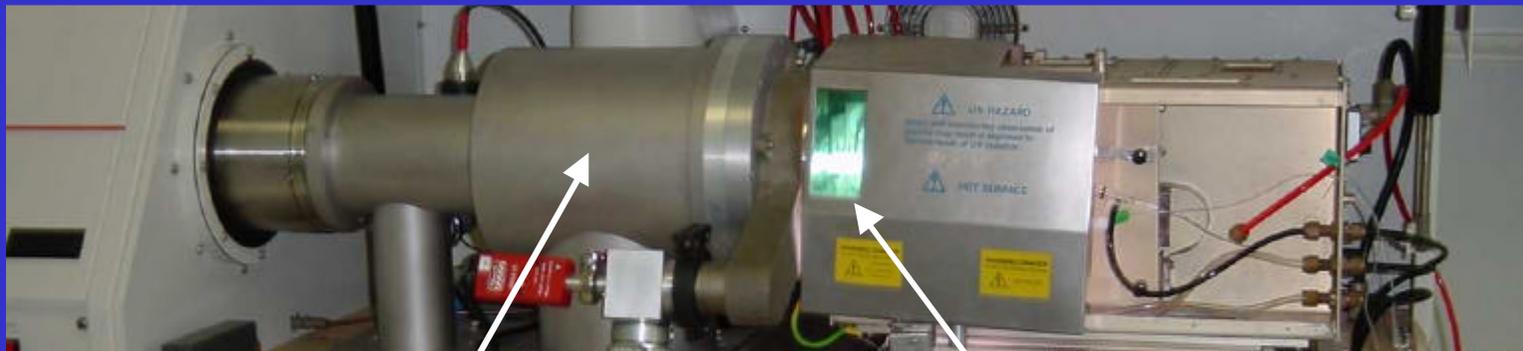


**Plasma
7000K**

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**

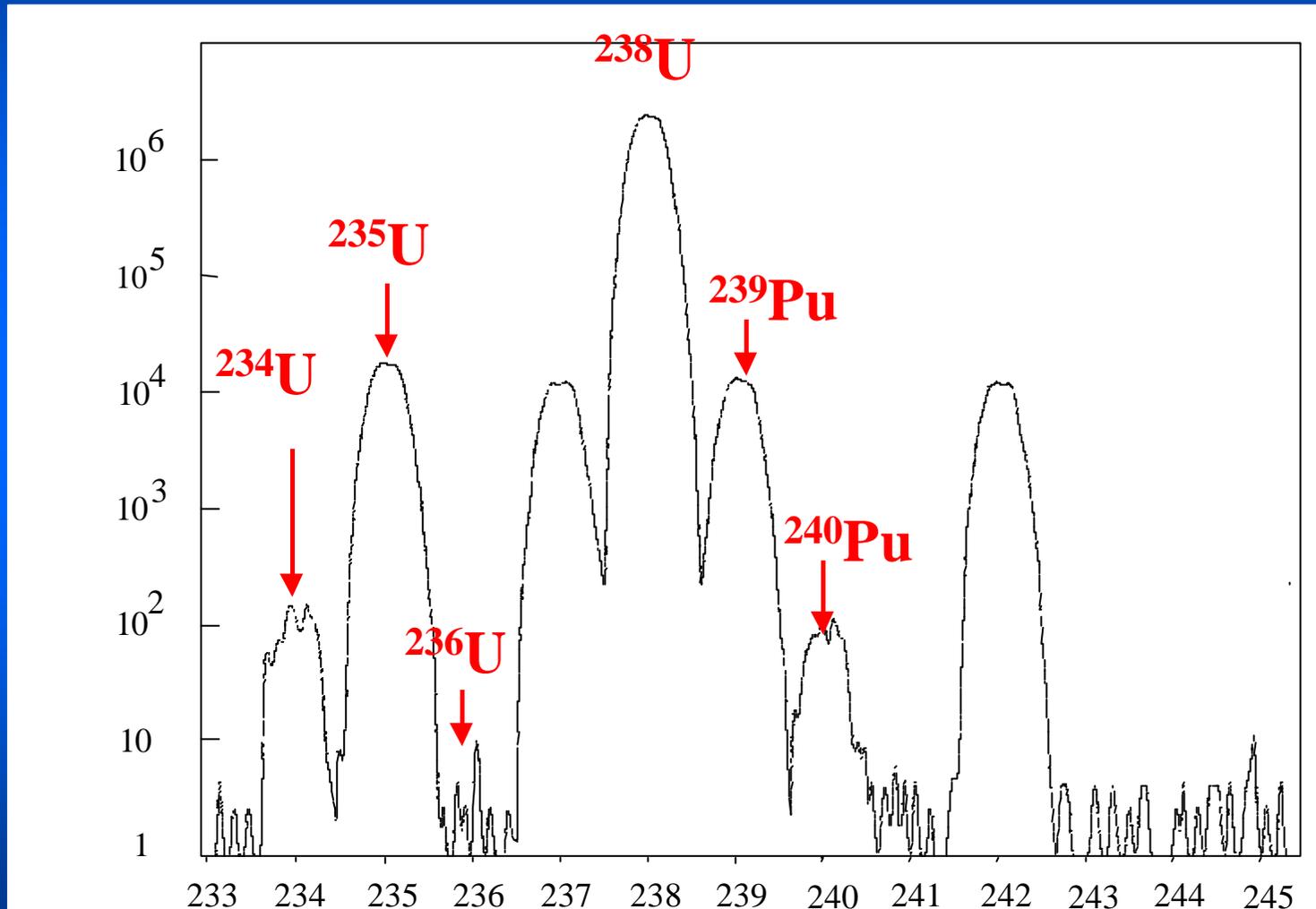
**Plasma
7000K**

La spectrométrie de masse ICP-MS

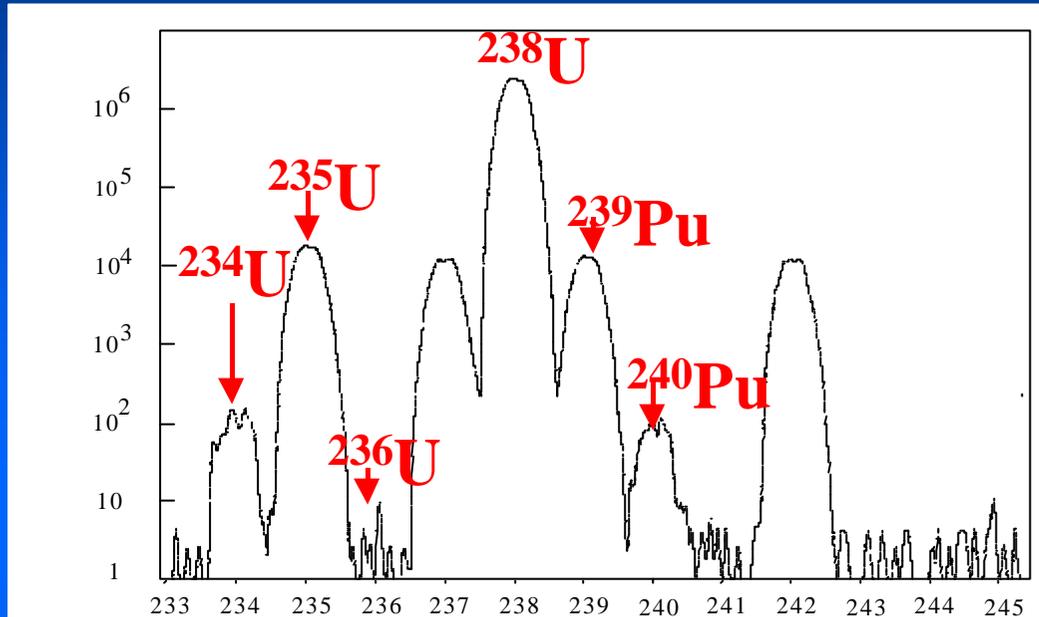
Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry



Un spectre de masse ICP-MS



La spectrométrie de masse ICP-MS



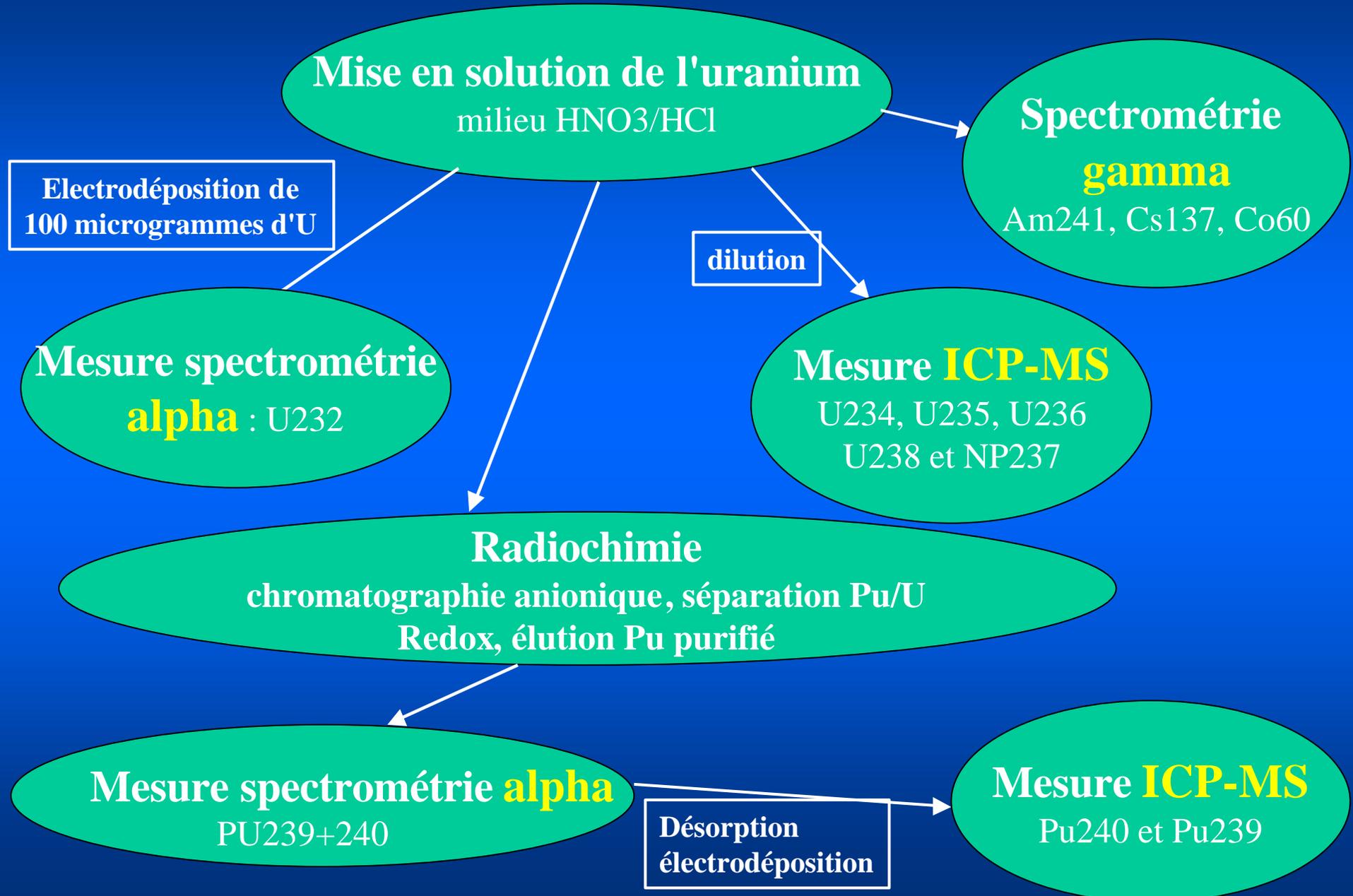
Basses limites de détection : 0,1 fg = 10⁻⁷ Bq de ²³⁹Pu

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?**