

CONTRÔLE DE L'ENRICHISSEMENT DE L'URANIUM EN URANIUM 235 AVEC LES TRACES LAISSÉES PAR LES PARTICULES ALPHA DANS LE NITRATE DE CELLULOSE*

A.-M. CHAPUIS**, H. FRANÇOIS**, N. NICODÈME-GÉRARD***
(manuscrit reçu le 20 juin 1969)

Le nitrate de cellulose permet d'enregistrer le passage de particules α . On peut donc mesurer l'activité spécifique d'une source radioactive épaisse. Nous utilisons cette propriété pour mesurer le taux d'enrichissement en uranium 235 d'un échantillon d'uranium métallique. Pour faciliter la mesure et s'affranchir du dénombrement des traces sur le microscope optique, les échantillons sont révélés dans un bain spécial et le nombre de traces α par unité de surface est évalué en fonction des altérations du pouvoir réflecteur de l'échantillon.

Les moyens et le temps nécessaires pour une mesure sont, ainsi que le prix de revient, très réduits.

La protection auprès des installations de conditionnement et de stockage des matériaux fissiles demande un contrôle simple et rapide de l'enrichissement de ces produits en uranium 235 .

Parmi toutes les méthodes possibles, nous avons choisi la mesure de l'activité alpha de l'échantillon. Cette technique fut déjà recommandée. Dans ce cas le détecteur alpha est soit une jonction, soit un scintillateur au sulfure de zinc associé à un photomultiplicateur nécessairement protégés de la lumière. Nous préférons utiliser un détecteur ionographique insensible à la lumière, aux particules β et aux rayonnements électromagnétiques.

1. PRINCIPE DE LA DÉTERMINATION DE L'ENRICHISSEMENT EN URANIUM 235

Nous nous limitons au cas de combustible nucléaire ne contenant que de l'uranium comme matériau fissile. Cet uranium comprend les trois isotopes

* Ce travail a été réalisé au Centre d'Etudes Nucléaires de Fontenay-aux-Roses, en collaboration avec les Laboratoires de Recherches de la Société Kodak-Pathé.

** Service Technique d'Etudes de Protection, Centre d'Etudes Nucléaires de Fontenay-aux-Roses (Hauts de Seine).

*** Laboratoire Central des Industries Electriques, Fontenay-aux-Roses.

de masse atomique 234, 235 et 238 et leurs produits de filiation (tableau I). Or, l'enrichissement en uranium 235 s'accompagne d'un enrichissement en uranium 234. L'activité alpha du mélange est due en grande partie à celle de l'uranium 234 dont la période est plus courte que celle des autres isotopes. La mesure de cette activité peut donner une excellente valeur de l'enrichissement (tableau II, fig. 1).

TABLEAU I

CARACTÉRISTIQUES RADIOACTIVES DES ISOTOPES DE L'URANIUM
ET DE LEURS DESCENDANTS

| Isotope | Période | Energie (MeV) | | | Conversion interne |
|---|----------------------------|-------------------------|---|---------------------------------------|--------------------|
| | | α | β | γ | |
| Chaîne de l'uranium 238 et 234 $^{238}\text{U} \rightarrow ^{234}\text{Th} \rightarrow ^{234\text{m}}\text{Pa} \rightarrow ^{234}\text{U} \rightarrow ^{230}\text{Th} \rightarrow$ | | | | | |
| ^{238}U | $4,51 \cdot 10^9 \text{a}$ | 4,2 100 % | | 0,048 ~ 0 % | 23 % |
| ^{235}U | $7,1 \cdot 10^8 \text{a}$ | 4,18 à 4,56 100 % | | 0,095 9 % 0,143 12 % 0,185 55 % | |
| ^{234}U | $2,48 \cdot 10^6 \text{a}$ | 4,72 28 % 4,77 72 % | | 0,051 ~ 0 % | 28 % |
| $^{234\text{m}}\text{Pa}$ | 1,18 mn | | IT 1 % 0,58 1 % 1,50 9 % 2,31 90 % | 0,75 1,00 1,84 | |
| ^{231}Pa | $3,4 \cdot 10^4 \text{a}$ | 4,66 à 5,05 100 % | | 0,027 0,295 | |
| ^{231}Th | 25,6 h | | 0,134 20 % 0,22 33 % 0,3 39 % | 0,025 13 % 0,084 11 % | |
| ^{230}Th | $8 \cdot 10^4 \text{a}$ | 4,61 24 % 4,68 76 % | | 0,067 0,6 % | 24 % |

TABLEAU II

 VARIATION DE L'ACTIVITÉ α
 EN FONCTION DE L'ENRICHISSEMENT DE L'URANIUM

E = Pourcentage d'uranium 235 dans le mélange (masse)
 M = Masse d'un isotope de l'uranium dans 1 g du mélange
 N = Nombre de particules α émises par seconde par un isotope (pour 1 g du mélange)
 A = Activité totale : nombre de particules α émises par seconde et par gramme du mélange.

| E % | M (g) | | | N ($10^4 \cdot \alpha \cdot s^{-1} \cdot g^{-1}$) | | | $\alpha \cdot s^{-1} \cdot g^{-1}$ $\times 10^4$ |
|--------|----------------|---------------|-------|---|-------|------|---|
| | 234 | 235 | 238 | 234 | 235 | 238 | |
| 0,7 | 5,8 10^{-5} | 7,1 10^{-3} | 0,993 | 1,32 | 0,061 | 1,32 | 2,7 |
| 1 | 8,9 10^{-5} | 10^{-2} | 0,99 | 2,04 | 0,08 | 1,30 | 3,42 |
| 2 | 1,97 10^{-4} | 2 10^{-2} | 0,98 | 4,5 | 0,16 | 1,29 | 5,95 |
| 5 | 5,24 10^{-4} | 5 10^{-2} | 0,95 | 12 | 0,4 | 1,24 | 13,6 |
| 10 | 1,07 10^{-3} | 10^{-1} | 0,899 | 24,5 | 0,8 | 1,2 | 26,5 |
| 20 | 2,15 10^{-3} | 2 10^{-1} | 0,798 | 49,5 | 1,6 | 1,05 | 52,1 |
| 50 | 5,24 10^{-3} | 5 10^{-1} | 0,495 | 120 | 4 | 0,6 | 124 |
| 90 | 9,76 10^{-3} | 9 10^{-1} | 0,090 | 224 | 7 | 0,1 | 231 |
| 95 | 1,03 10^{-2} | 9,5 10^{-1} | 0,04 | 238 | 7,5 | 0,05 | 245 |

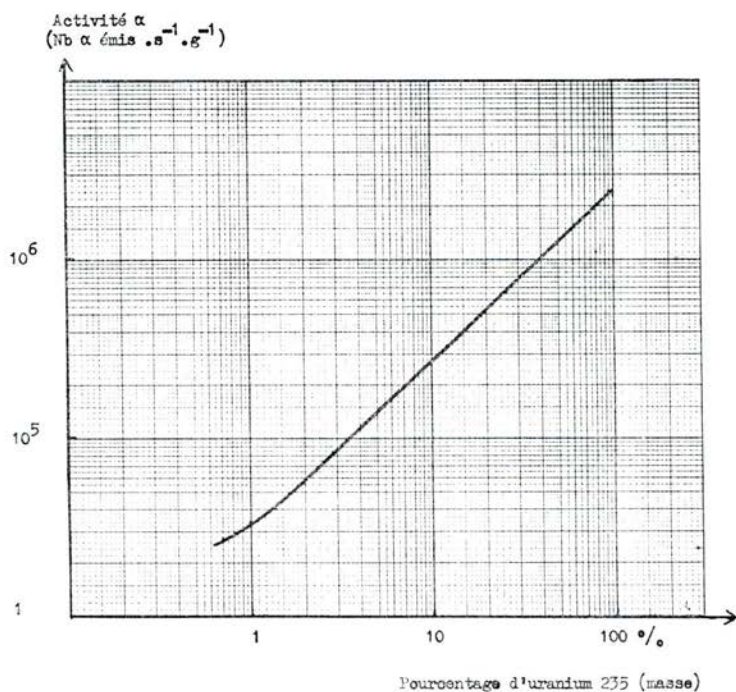


FIG. 1. — Variation de l'activité alpha en fonction de l'enrichissement en uranium 235.

2. DÉTECTEUR IONOGRAPHIQUE

Dans un grand nombre d'isolants, les particules lourdes chargées produisent le long de leur trajectoire, des défauts permanents qui apparaissent sous forme de traces continues. Il est possible d'agrandir le diamètre de ces traces à l'aide de réactifs chimiques qui attaquent préférentiellement les régions endommagées, donnant naissance à des trous visibles au microscope optique.

Ces matériaux parmi lesquels on trouve des minéraux naturels, des verres, des matières plastiques ne présentent pas tous la même sensibilité. La formation des traces est liée au type et à l'énergie de la particule incidente. On peut caractériser chaque solide détecteur par un taux d'ionisation critique $\left(\frac{dI}{dx}\right)_c$. Une particule dont le taux d'ionisation est inférieur à cette valeur critique ne laisse pas de trace visible [1]. Cette valeur $\left(\frac{dI}{dx}\right)_c$ ne dépend pas uniquement de la nature du détecteur mais aussi de sa pureté, du réactif chimique utilisé et des conditions de l'attaque.

Nous utilisons le nitrate de cellulose. Ce matériau semble être actuellement le détecteur le plus sensible. Il permet de matérialiser le passage de particules α ayant une énergie comprise entre quelques centaines de keV et quelques MeV. Les bornes E_1 et E_2 de cet intervalle d'énergie sont définies en fonction du taux d'ionisation des particules α dans le nitrate de cellulose (fig. 2).

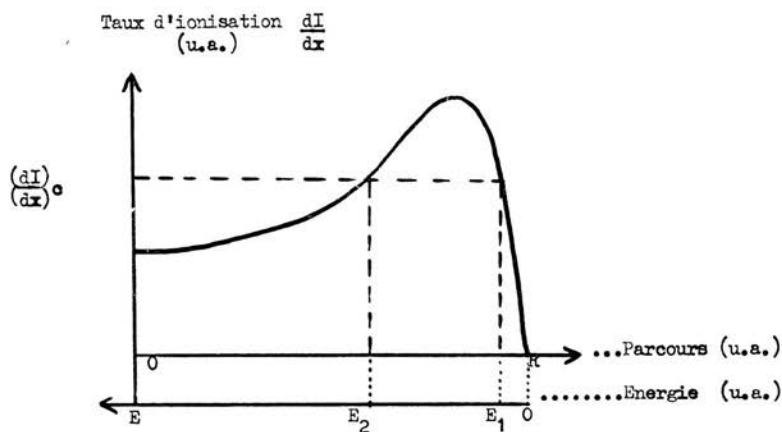


FIG. 2. — Variation du taux d'ionisation d'une particule alpha en fonction de son parcours.

Les traces sont mises en évidence par attaque avec de la potasse ou de la soude environ 6 N. La température du bain est comprise entre 55 et 75° C et la durée d'attaque entre 2 et 20 minutes. Les valeurs de ces paramètres sont choisies en fonction du diamètre et de l'aspect des traces qu'on veut obtenir.

3. DÉTERMINATION DE L'ACTIVITÉ SPÉCIFIQUE D'UNE SOURCE ÉPAISSE

Considérons une source épaisse, homogène, de particules α en contact avec le détecteur (fig. 3). Pour qu'une particule issue d'un point M de cette source et pénétrant en A dans le détecteur donne naissance à une trace visible, il faut que son énergie, en A, soit comprise entre E_1 et E_2 ; c'est-à-dire que la distance MA soit comprise entre $R - R_2$ et $R - R_1$ (fig. 4).

- R = parcours dans la source d'une particule d'énergie E,
- R_1 = parcours dans la source d'une particule d'énergie E_1 .

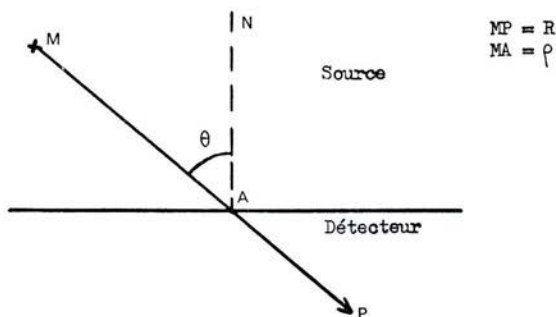


FIG. 3. — Détection d'une particule alpha émise par une source épaisse.

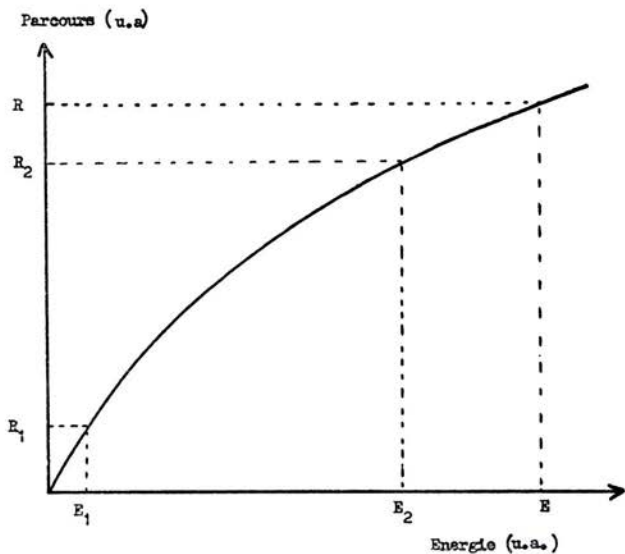


FIG. 4. — Relation parcours-énergie des particules alpha.

De plus, il faut que sa trajectoire fasse avec la normale au détecteur un angle θ inférieur à l'angle limite θ_e . En effet, le réactif chimique détruit lentement le nitrate de cellulose, même lorsqu'il n'y a pas eu passage de particules chargées. Cette vitesse d'attaque, perpendiculaire à la surface du détecteur, n'est pas négligeable devant la vitesse d'attaque le long de la trajectoire d'une particule. Le cosinus de l'angle limite θ_e , est égal au rapport des deux vitesses d'attaque. Pour toute trajectoire telle que $\theta > \theta_e$ le détecteur est détruit avant que ne se forme la « trace » [1].

Calculons le nombre T de traces enregistrées par unité de surface du détecteur :

Soit ρ la distance entre un point M de la source et le point A du détecteur et Ω l'angle solide engendré par la rotation de AM autour de la normale AN au détecteur (fig. 3)

$$\Omega = 2 \pi (1 - \cos \theta)$$

Le nombre N de particules émises par l'élément de volume compris entre ρ et $\rho + d\rho$ et entre Ω et $\Omega + d\Omega$ est :

$$N = C \cdot \rho^2 \cdot d\rho \cdot d\Omega$$

$$N = C \cdot \rho^2 \cdot d\rho \cdot \sin\theta \cdot d\theta$$

$$C = \text{activité volumique de la source.}$$

Le nombre dN de particules émises par cet élément de volume et pénétrant dans l'élément de surface dS du détecteur situé autour du point A est :

$$dN = N \cdot \frac{dS \cdot \cos\theta}{4 \pi \rho^2}$$

$$dN = \frac{C}{4 \pi} \cdot dS \cdot d\rho \cdot \cos\theta \cdot \sin\theta \cdot d\theta$$

En tenant compte des conditions imposées par le nitrate de cellulose, l'intégration de l'équation précédente fournit :

$$E < E_1 \quad T = 0$$

$$E_1 < E < E_2 \quad T = \frac{C}{8 \pi} (R - R_1) \sin^2 \theta_e$$

$$E > E_2 \quad T = \frac{C}{8 \pi} (R_2 - R_1) \sin^2 \theta_e$$

On constate que pour les particules d'énergie supérieure à E_2 le nombre de traces enregistrées est indépendant de l'énergie.

Le calcul de l'activité spécifique d'une source épaisse à partir du nombre de traces enregistrées nécessite donc la connaissance :

- de la relation parcours-énergie des particules α dans cette source,
- des bornes E_1 et E_2 du nitrate de cellulose,
- de l'angle limite θ_e .

Ces données ne sont pas toujours connues avec une précision suffisante. Pour notre problème, nous avons préféré étalonner directement le détecteur

à l'aide d'échantillons métalliques d'uranium d'enrichissement connu. La figure 5 montre la variation de l'activité spécifique α et du nombre de traces enregistrées par unité de surface et de temps en fonction du taux d'enrichissement de l'uranium.

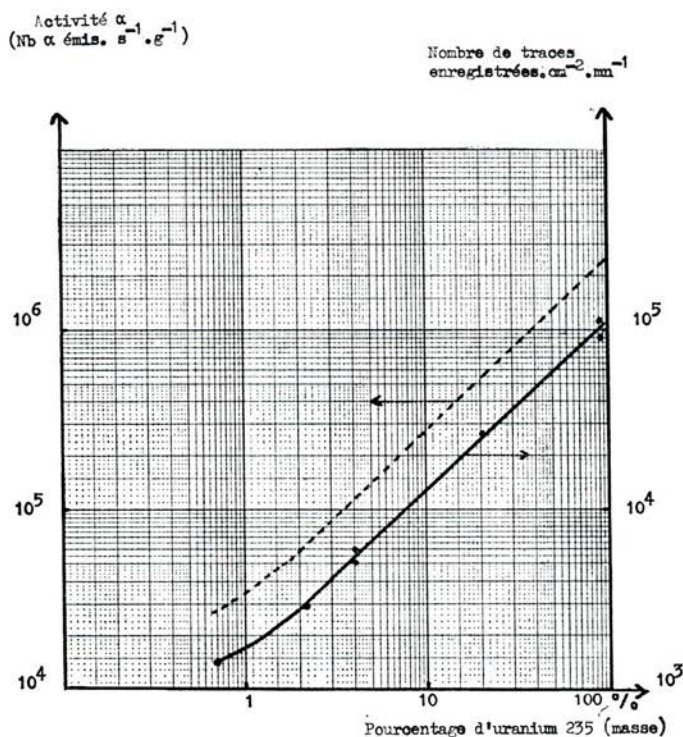


FIG. 5. — Variation de l'activité alpha et du nombre de traces enregistrées en fonction de l'enrichissement en uranium 235.

4. PROCÉDÉ DE LECTURE

Pratiquement l'utilisation d'un détecteur ionographique présente de nombreux avantages, mais il est nécessaire de dénombrer les traces. Ce comptage qui s'effectue habituellement au microscope optique est long et fastidieux. On peut faciliter ce travail en utilisant un système de comptage automatique de traces. Outre son prix élevé cet appareillage a le défaut de mal différencier les traces des irrégularités et des défauts de surface du détecteur.

Nous préférons évaluer le nombre de traces révélées, par la variation du pouvoir diffusant de la surface du détecteur après irradiation et attaque chimique. Ce procédé nous impose : d'une part l'élimination des défauts de surface et d'autre part l'augmentation du pouvoir de diffusion du détecteur par agrandissement du diamètre des traces.

On utilise successivement deux solutions (VX 007 et VX 008) mises au point par les Laboratoires de la Société Kodak-Pathé [2]. La première, à base de potasse, révèle les traces, la seconde régularise le contour des traces et supprime les défauts superficiels. Ce traitement est appliqué sur le nitrate de cellulose CA 8015 qui est sur le point d'être commercialisé par la Société Kodak-Pathé. Ce produit a été spécialement étudié pour cette application. Il présente des caractéristiques détectrices constantes, une très bonne sensibilité et un état de surface convenable. Dans le cas précis d'une source épaisse d'uranium, nous constatons que le nombre de traces enregistrées dans ce nitrate est 1,6 fois plus élevé que celui obtenu avec un nitrate de cellulose de fabrication courante*.

Pour la lecture nous utilisons un densitomètre Baldwin fonctionnant par réflexion. Nous caractérisons la variation du pouvoir de diffusion par la différence Δ des densités optiques mesurées sur les zones non irradiées et irradiées du détecteur, placé au contact d'un verre noir de densité optique élevée. La figure 6 représente la variation de cette différence Δ en fonction du temps d'irradiation, pour une source donnée et pour différentes conditions d'attaque chimique du détecteur.

Nous définissons ainsi les conditions de l'attaque chimique appropriée à notre problème :

- Première solution à 75° C pendant 20 minutes,
- Deuxième solution à 75° C pendant 8 minutes.

Et nous déterminons la durée d'exposition du détecteur au contact de l'uranium métallique qui permette de mesurer un taux d'enrichissement compris entre 1 et 99 p. cent (fig. 7, page 212).

5. EVALUATION DU TAUX D'ENRICHISSEMENT DANS LE CAS DES COMPOSÉS ET DES ALLIAGES D'URANIUM

Soit un composé $U_x V_y$ dont la molécule contient x atomes d'uranium et y atomes de l'élément V (de masse atomique M).

Pour l'uranium nous désignons par :

- d la densité,
- A la masse atomique (~ 235),
- C l'activité volumique,
- R le parcours d'une particule α .

Pour le composé nous désignons par :

- d' la densité,
- A' la masse moléculaire = $xA + yM$,
- C' l'activité volumique,
- R' le parcours d'une particule α .

* Nitrate - Film - Poudrerie de Bergerac.

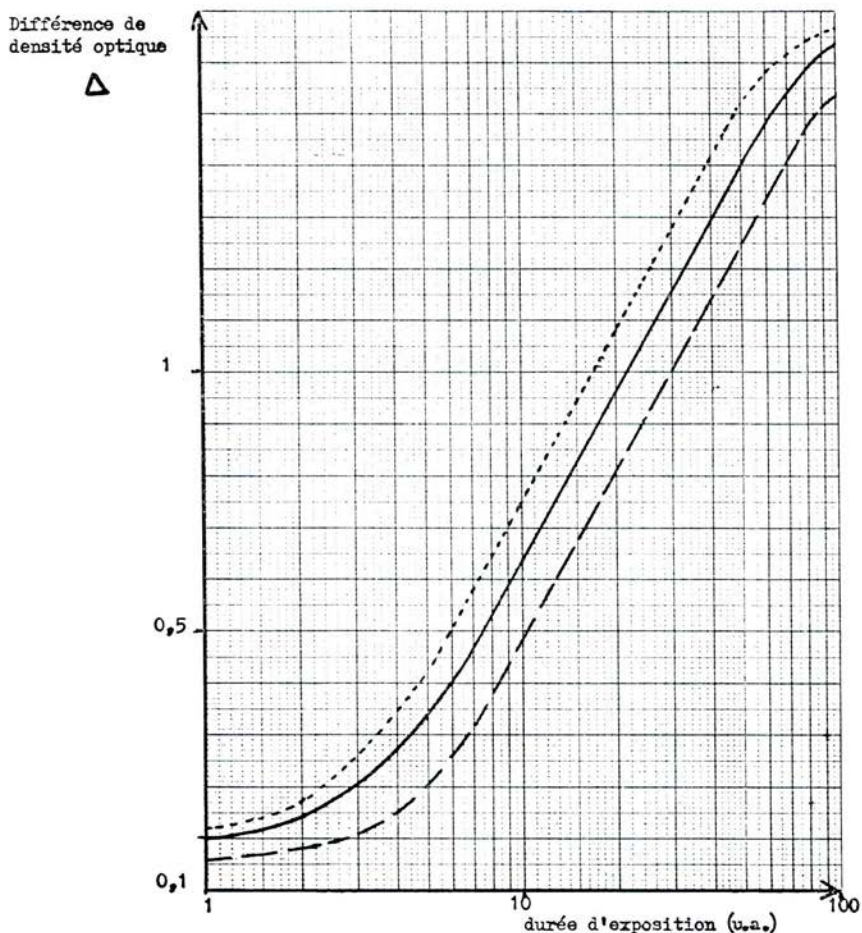


FIG. 6. — Variation de la différence de densité optique en fonction de la durée d'exposition à une source alpha.

| Courbe | 1 ^{re} solution | 2 ^e solution | diamètre moyen des traces |
|-------------|--------------------------|-------------------------|---------------------------|
| ----- | 20 mn | 8 mn | 28 |
| ————— | 15 mn | 8 mn | 22 |
| - · - · - · | 10 mn | 10 mn | 18 |

Nous avons vu que le nombre T de traces enregistrées est proportionnel au produit de l'activité volumique de la source par la différence $R_2 - R_1$ des parcours des particules α dont l'énergie correspond aux seuils de détection du nitrate de cellulose. Le rapport du nombre de traces enregistrées dans le composé et dans l'uranium est donc :

$$\frac{T'}{T} = \frac{C'}{C} \frac{R'_2 - R'_1}{R_2 - R_1}$$

$$\frac{C'}{C} = \frac{x \, d'A}{dA'}$$

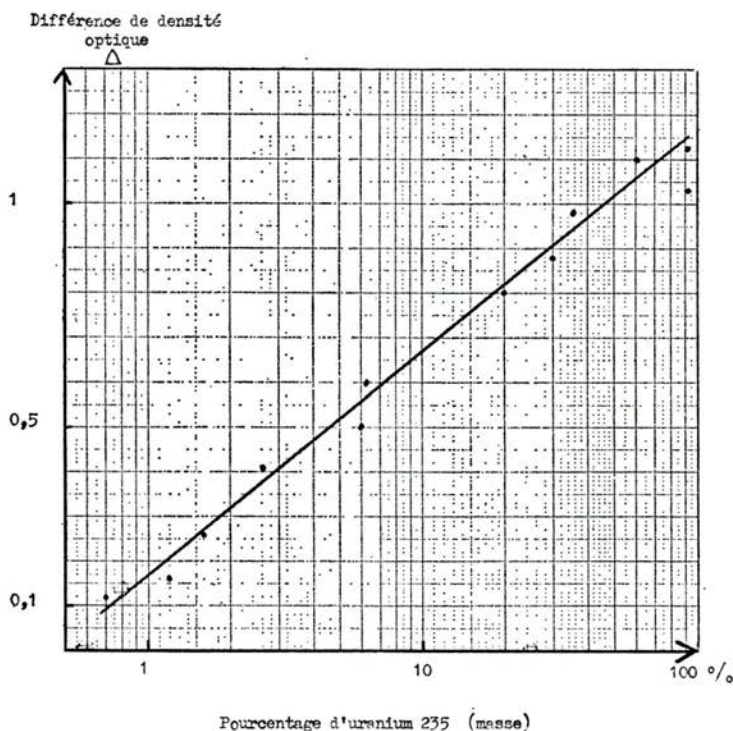


FIG. 7. — Variation de la différence de densité optique en fonction de l'enrichissement de l'uranium (durée d'irradiation 3 mn).

Pour calculer le rapport $\frac{R'_2 - R'_1}{R_2 - R_1}$ nous utilisons la formule empirique de Bragg-Kleeman (valable à 15 p. cent près) :

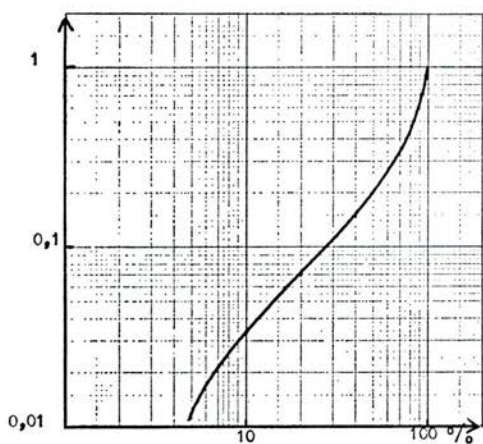
$$\frac{R'_2 - R'_1}{R_2 - R_1} = \frac{d}{d'} \frac{\frac{x}{x+y} \sqrt{A} + \frac{y}{x+y} \sqrt{M}}{\sqrt{A}}$$

D'où nous tirons :

$$\frac{T'}{T} = \frac{x \sqrt{A} (x \sqrt{A} + y \sqrt{M})}{(xA + yM) (x + y)}$$

Cette formule est également valable dans le cas des alliages. Le tableau III donne ce rapport $K = \frac{T'}{T}$ du nombre de traces enregistrées pour quelques composés et alliages d'uranium. La figure 8 représente, dans le cas d'un alliage uranium-aluminium, la variation du rapport K en fonction du poids d'uranium dans le mélange (en p. cent).

$$K = \frac{\text{Nb traces alliage}}{\text{Nb traces uranium}}$$



Pourcentage d'uranium dans l'alliage (masse)

FIG. 8. — Variation du nombre de traces enregistrées dans le cas d'alliage uranium-aluminium.

TABLEAU III

| Composé ou alliage | K |
|--|-------|
| UO ₂ | 0,445 |
| U C | 0,583 |
| UC ₂ | 0,44 |
| U — Al (26 p. cent d'uranium, en poids) | 0,093 |

Pour mesurer le taux d'enrichissement d'un composé ou d'un alliage, on peut conserver la durée d'exposition choisie pour l'uranium métallique et utiliser

la courbe d'étalonnage correspondant à l'échantillon à mesurer (fig. 9) ; il est plus commode cependant de diviser le temps d'exposition par le rapport K et d'utiliser toujours la courbe d'étalonnage de l'uranium métallique.

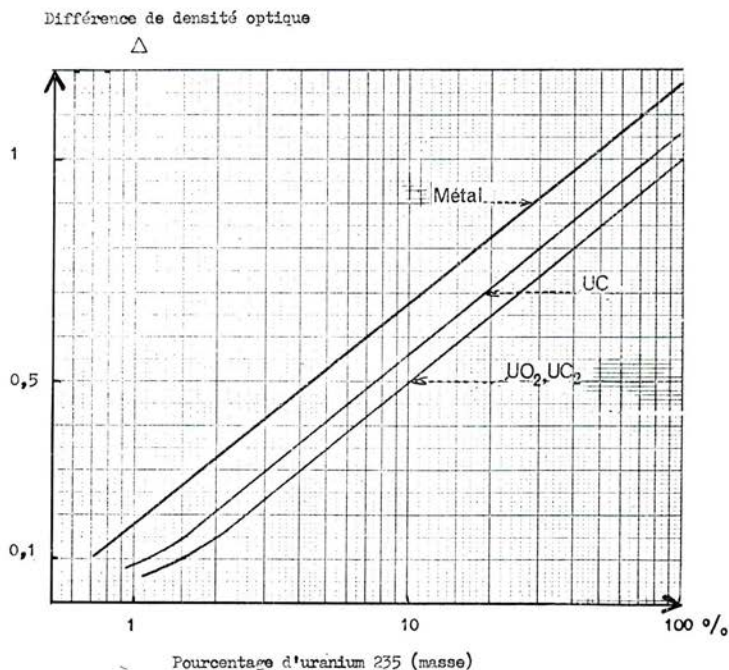


FIG. 9. — Variation de la différence de densité optique en fonction de l'enrichissement de l'uranium (durée d'irradiation 3 mn).

CONCLUSION

L'utilisation d'un détecteur ionographique présente de nombreux avantages pour la mesure du taux d'enrichissement de l'uranium. On constate que le dénombrement des traces enregistrées est une mesure précise de la concentration en uranium 235. Pour évaluer ce nombre de traces et lorsqu'une grande précision n'est pas indispensable, il est possible d'utiliser la variation du pouvoir diffusant de la surface du détecteur après attaque chimique. C'est ce que nous proposons pour le contrôle rapide du taux d'enrichissement d'un échantillon.

BIBLIOGRAPHIE

- [1] MONNIN M., Rapport P.N.C.F. 68-RI 9, Laboratoire de Physique Nucléaire de la Faculté des Sciences de Clermont-Ferrand (1968).
- [2] Brevet français déposé le 5 mars 1968 sous le n° 142.344 par la Société Kodak-Pathé.