

M E M O I R E

présenté

AU CONSERVATOIRE NATIONAL DES ARTS ET METIERS

pour obtenir

LE DIPLOME D' INGENIEUR C. N. A. M.

Spécialité : PHYSIQUE NUCLEAIRE

par

Bernard N E N S

Sujet : ANALYSE ISOTOPIQUE DE L'URANIUM A L'AIDE D'UN
QUANTOMETRE FABRY-PEROT

Soutenu le 14 janvier 1969 devant la Commission du Jury

MM. MARTELLY

Président

FOURNIER)

BOITEUX)

PLATZER)

GERSTENKORN)

Examineurs

~~100~~
100

CARLIER 0146118431

MEMOIRE

présenté

CARTOY

0169088975

AU CONSERVATOIRE NATIONAL DES ARTS ET METIERS

pour obtenir

département des Petits
practeurs

LE DIPLOME D'INGENIEUR C.N.A.M.

Spécialité : PHYSIQUE NUCLEAIRE

service clients

Parc de la raie blanche

1-7 no

par

Bernard N E N S

par monnet

92298 Châtigny
Mallat

Sujet : ANALYSE ISOTOPIQUE DE L'URANIUM A L'AIDE D'UN
QUANTOMETRE FABRY-PEROT *redex*

Soutenu le 14 janvier 1969 devant la Commission du Jury

MM. MARTELLY

Président

FOURNIER)

BOITEUX)

PLATZER)

GERSTENKORN)

Examineurs

0169086000

J'exprime ma vive gratitude à Monsieur HURE, Chef des Services d'Etudes Chimiques et d'Analyse et à Monsieur PLATZER, Chef du Service d'Etudes Analytiques au COMMISSARIAT A L'ENERGIE ATOMIQUE qui m'ont permis d'effectuer le travail exposé dans le présent mémoire, au Laboratoire Aimé COTTON (C.N.R.S. ORSAY) dont je tiens à remercier le Directeur, Monsieur le Professeur CHABBAL, d'avoir bien voulu m'accueillir.

Je remercie Monsieur le Professeur FOURNIER et Monsieur le Professeur MARTELLY de m'avoir donné conseils et encouragements.

Mes remerciements s'adressent également à M. GERSTENKORN qui, tout au long de ce travail, m'a apporté un concours précieux.

Je suis très heureux de dire ma reconnaissance aux chercheurs et techniciens du Laboratoire Aimé COTTON auprès de qui j'ai trouvé une aide amicale, et plus spécialement à Monsieur BEN MENA.

I - INTRODUCTION

La proportion des divers isotopes d'un élément peut être modifiée par utilisation de méthodes "d'enrichissement".

La modification du rapport d'abondance isotopique permet la réussite d'expériences de physique nucléaire liée à la séparation plus ou moins complète d'un isotope particulier.

Les rapports d'abondance isotopique peuvent être déterminés par spectrométrie de masse, par spectroscopie optique ou par utilisation des constantes radioactives.

La spectrométrie de masse est la méthode la plus généralement utilisée. Toutefois, dans certains cas, l'emploi de la spectroscopie optique peut être recommandé car celle-ci demande un appareillage moins complexe et réduit la durée des déterminations. De plus, les effets de "mémoire" sont inexistantes.

La spectroscopie optique utilise l'existence des déplacements isotopiques dans les spectres de raies et dans les spectres de bandes.

Le but de ce mémoire est d'utiliser le déplacement isotopique relatif à la raie 5027 Å du spectre de l'Uranium pour effectuer des mesures d'abondance précises de l'isotope 235. Toutes les abondances possibles pourront être déterminées, même celles inférieures à 0,71 % (Uranium naturel).

II - DEPLACEMENT ISOTOPIQUE DANS LE SPECTRE DE L'URANIUM

a) Origine du déplacement isotopique

Deux causes distinctes sont responsables de ce phénomène : l'effet de masse résultant de l'entraînement du noyau par l'électron optique autour du centre de gravité commun et l'effet de volume (ou effet de champ) résultant de la différence des potentiels nucléaires agissant sur les couches électroniques.

L'effet de masse affecte toutes les raies, mais n'est sensible ou mesurable que dans le cas des éléments légers.

Ainsi l'écart $\Delta \sigma$ donné par deux isotopes de masse M_1 et M_2 pour une raie de nombre d'onde σ est

$$\Delta \sigma = \sigma m \left(\frac{1}{M_1} - \frac{1}{M_2} \right) \sim \sigma \frac{m}{m_p} \left(\frac{A_2 - A_1}{A_1 A_2} \right)$$

en désignant par

m la masse de l'électron

m_p la masse du proton

A le nombre de masse de l'isotope

Pour les éléments lourds, la variation du champ nucléaire d'un isotope à l'autre est responsable de l'effet isotopique observé.

Le champ nucléaire diffère du champ coulombien à une distance du centre du noyau d'autant plus grande que l'isotope est plus lourd et ce seront les électrons s qui s'approchent le plus du noyau qui seront surtout responsables de cet effet de volume.

Il en résulte que l'isotope le plus lourd a la longueur d'onde la plus grande ; au contraire, l'effet de masse intervenant pour les éléments légers est tel que l'isotope le plus léger a la longueur d'onde la plus grande.

La théorie de l'effet isotopique a fait l'objet de nombreux écrits, en particulier ceux de KOPFERMANN [1] et de IONESCO-PALLAS [2].

b) Choix de la raie d'Uranium utilisée

La raie $\lambda = 5027 \text{ \AA}$ du spectre d'arc de l'uranium a été retenue car c'est une raie intense, relativement bien isolée dans un spectre très dense, qui présente un déplacement isotopique de $0,12 \text{ \AA}$ entre les composantes relatives à U^{235} et U^{238} .

Ce choix a été guidé par les travaux d'ANDERSON [3], de GERSTENKORN [4] et de BEN MENA [5].

En effet, si l'on veut déterminer des rapports d'abondance isotopique de l'ordre de l'abondance naturelle, il faut utiliser une raie d'analyse telle que la composante relative à l'uranium 235 ne soit pas perturbée par une raie parasite, même très faible.

Cette recherche s'imposait car la raie $\lambda = 4244 \text{ \AA}$, utilisée auparavant, présentait cet inconvénient, comme l'a montré T. LEE (6), auteur de nombreux travaux sur l'analyse isotopique de l'Uranium par spectrométrie d'émission.

La figure 1 montre un enregistrement de la raie $\lambda = 5027 \text{ \AA}$, obtenu avec un étalon interférentiel FABRY-PEROT ayant un intervalle spectral libre de $1360 \text{ milli kaiser (mK)}$, dans le cas de l'uranium naturel. (+)

La raie A relative à l'isotope 238 a pour longueur d'onde $\lambda = 5027,385 \text{ \AA}$ et la raie a relative à l'isotope 235 $\lambda = 5027,282 \text{ \AA}$.

Les raies A et a sont des composantes isotopiques homologues.

La raie a de l'isotope impair 235 a une largeur à mi-hauteur plus grande que la raie A de l'isotope pair 238, par suite de l'influence de la structure hyperfine.

La figure 2 donne le schéma des transitions relatif à la raie 5027 \AA [$5 f^3 6 d 7 s^2$, ($^5 [6] - 19.855, 5$)] pour ces deux isotopes et explique l'élargissement observé.

Cet élargissement n'est pas très important et ne s'oppose pas à des mesures relatives d'abondance.

(+) $1 \text{ kaiser} = 1 \text{ cm}^{-1}$

A 5027,509 Å, on observe une raie B due à l'isotope 238 et ayant une intensité proche de celle de a, dans le cas de l'uranium naturel. La position de ces trois raies est schématisée sur la figure 3.

c) Pouvoir de résolution nécessaire

Le pouvoir de résolution effectif à employer pour séparer les composantes isotopiques indiquées précédemment et permettre leur utilisation en vue de la détermination des abondances est de l'ordre de 500.000. On travaillera donc à haute résolution.

L'instrument utilisé jusqu'à présent était le spectromètre FABRY-PEROT photoélectrique car :

" A résolution donnée, le flux lumineux qu'il transmet au récepteur peut être des dizaines de fois plus élevé que celui transmis par les appareils classiques à prisme ou à réseau". [14]

Nous allons, dans un premier temps, rappeler brièvement son principe, puis décrire plus longuement la quantomètre FABRY-PEROT photoélectrique utilisé pour accomplir le travail présenté dans ce mémoire.

III - SPECTROMETRES FABRY-PEROT

Plusieurs travaux de dosage isotopique de l'Uranium ont été faits à l'aide d'un spectromètre F. P [8 à 13]. Un appareil interférométrique photoélectrique, connu sous le nom d'HYPEAC [15], permettant d'obtenir une haute résolution et un flux lumineux élevé, a été employé [12] [13]

a) L'Hypeac

Le spectromètre comprend essentiellement un monochromateur à réseau de type EBERT-FASTIE et un interféromètre FABRY-PEROT constitué par deux lames de quartz séparées par trois cales en silice fondue, d'égale épaisseur à $\lambda/20$ près.

La figure 4 donne le schéma optique de cet appareil. Les deux méthodes possibles pour déterminer les rapports d'abondance

isotopique de l'Uranium sont : soit la mesure des hauteurs des pics correspondant aux deux isotopes, soit la mesure des aires des composantes

La première méthode permet de faire des mesures relatives d'abondance alors que la seconde méthode permet de faire des mesures absolues.

L'Hypeac nécessite une source très stable car les raies ne sont pas enregistrées simultanément. Un circuit de référence sert à vérifier la stabilité de l'émission et à faire les corrections nécessaires.

De plus, le remplacement d'une source par une autre demande un temps assez long.

Vouloir faire des analyses isotopiques de l'Uranium avec précision et dans des délais raisonnables semble donc difficile avec cet appareil à moins d'envisager des modifications telles que le remplacement de la cathode creuse unique par une tétracathode avec un système de fixation rapide et précis.

Dans cette multi-cathode (figure 5), les différentes sources se trouvent dans des conditions de travail très semblables.

b) Quantomètre FABRY-PEROT :

Cet appareil a été conçu au laboratoire Aimé Cotton (CNRS Orsay) [5]. Ses éléments constitutifs essentiels avaient été testés avec satisfaction, mais il importait, pour le travail que nous envisagions, de réaliser un montage présentant toute garantie de stabilité et une grande facilité d'accès aux réglages.

Ainsi, la réalisation initiale destinée à montrer le bien fondé du principe de l'appareillage a dû subir une refonte complète pour répondre aux impératifs sévères d'une utilisation pratique et continue.

Notre effort a surtout porté sur le positionnement de la multicathode qui doit être d'un accès facile afin d'obtenir le changement rapide des sources à étudier et l'ajustement précis de l'intervalle anode-cathode et sur la mise en place des miroirs permettant de confondre exactement tous les faisceaux issus des sources.

Initialement, le renvoi s'effectuait à partir d'un miroir tournant

commun perpendiculaire : le faisceau lumineux issu d'une source était envoyé horizontalement sur ce miroir par le miroir à 45° placé au dessus de la fenêtre de la source et la réflexion s'effectuait aussi horizontalement. Ce système de renvoi a été éliminé car les angles de réflexion sur ce miroir commun n'étaient pas identiques selon la place des sources ($\frac{\pi}{8}$ pour les deux sources les plus proches de l'appareil et $(\frac{\pi}{8} + \frac{\pi}{2})$ pour les deux autres), ce qui introduisait des polarisations de transmission et de réflexion de la lame séparatrice et conduisait à une valeur du rapport $\frac{R}{T}$ plus grande de 16 % environ pour les sources présentant l'angle d'incidence le plus élevé.

Les avantages du quantomètre sur l'Hypeac sont la simultanéité de mesure des intensités des composantes isotopiques et une plus grande luminosité.

Par contre, il n'est conçu que pour l'utilisation de la raie 5027 Å de l'Uranium.

b. 1 - Principe

Deux récepteurs sont placés après des étalons Fabry-Perot mis en parallèle et réglés chacun sur une composante isotopique.

Les deux FABRY-PEROT sont précédés d'un monochromateur commun constitué par l'association d'un filtre interférentiel et d'un FABRY-PEROT de très faible épaisseur.

Les signaux fournis par les récepteurs sont envoyés sur des circuits d'intégration et l'on mesure les tensions aux bornes de ces intégrateurs. Le schémo optique est donné figure 6.

b. 2 - Les sources

La multi-cathode employée comporte quatre pots cathodiques en Aluminium (fig. 7) contenant chacun 10 mg d'oxyde d'Uranium. Le gaz porteur utilisé est le Néon.

Un jeu de quatre miroirs fixes et un miroir tournant central permettent la sélection de la cathode à étudier. Les quatre trajets lumineux doivent être rigoureusement semblables (distances et angles de réflexion sur les miroirs sont nécessairement identiques).

A partir du miroir tournant central, les faisceaux lumineux issus des quatre cathodes ont donc des trajets confondus (fig. 8).

Ce réglage optique, long à effectuer lors du montage de l'appareil, est fait une fois pour toutes. Il est pratiquement indéréglable.

Le refroidissement de la lampe est réalisé avec de l'azote liquide ce qui minimise le dégazage en cours de fonctionnement et, par suite, assure une très grande stabilité de l'émission.

L'étanchéité au vide entre la lampe et les cathodes est obtenue avec des joints d'indium. La mise en place de nouveaux pots se fait en fin de journée, ce qui permet un pompage dans la lampe pendant la nuit et un démarrage facile des nouvelles sources le lendemain. Après une journée de fonctionnement, il suffit de conserver la tétracathode refroidie durant la nuit pour obtenir rapidement son démarrage le jour suivant.

Une lampe en verre avec cathode creuse en Uranium massif est placée en permanence à proximité de cette tétracathode et sert

pourquoi?

Comment est assuré l'indéréglabilité?

.../...



aux réglages optiques de l'appareil pendant le temps nécessaire à la mise en route des quatre sources à étudier. Cette lampe est refroidie par une circulation d'eau froide et son fonctionnement ne pose aucun problème.

Le gain de temps obtenu par l'emploi de cette source auxiliaire est important, car il est ainsi possible d'effectuer les réglages des FABRY-PEROT pendant la mise en régime de fonctionnement optimum des sources.

b. 3 - Le monochromateur

Il est constitué par l'association d'un filtre interférentiel et d'un interféromètre FABRY-PEROT de très faible épaisseur.

- le filtre interférentiel : le filtre "GRUBB PARSONS" utilisé a un maximum de transmission à 5030 Å et fournit une bande passante de 9 Å de largeur à mi-hauteur avec une transparence de 32%. Le maximum de transmission est ajusté sur la raie 5027 Å de l'Uranium en inclinant le filtre de quelques degrés par rapport à la normale au faisceau.

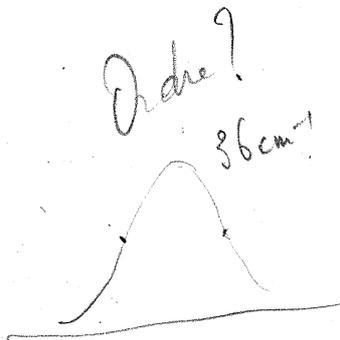
- Le FABRY-PEROT monochromateur : le spectre de l'Uranium étant très dense, on place un FABRY-PEROT à la suite du filtre interférentiel afin de réduire la bande passante obtenue.

Ce FABRY-PEROT doit être très stable, ce qui impose un étalon à cales optiquement collées dans une enceinte thermostatée.

Les deux lames sont distantes de 0,165 mm et comportent une revêtement diélectrique de 7 couches.

Un circuit de contrôle est obtenu par introduction d'une lame à faces parallèles mince après le monochromateur. Il permet de positionner la bande passante par rapport à la raie d'analyse, en début de manipulation.

Le déplacement de la bande passante fournie par ce monochromateur est très faible d'un jour à l'autre et par conséquent,



$$\Delta G = 30 \text{ cm}^{-1}$$
$$S_0 = 1 \text{ cm}^{-1}$$
$$0,25 \text{ Å}$$

négligeable pendant une série de déterminations.

b. 4 - Les spectromètres résolvents

Une lame à faces parallèles divise le faisceau principal en deux faisceaux d'analyse sur lesquels on place deux FABRY-PEROT résolvents ayant un intervalle spectral libre de 1360 mK ($e=3,676$ mm) [4]. Toute la surface des FABRY-PEROT est utilisée, cette étendue maximum étant permise par la nature du monochromateur employé.

b. 5 - Les récepteurs

Ce sont des photomultiplicateurs RCA 1 P 21 placés dans des boîtiers étanches contenant de l'hydrogène sous pression et refroidis avec de l'azote liquide afin de rendre négligeable les courants d'obscurité.

Les photomultiplicateurs retenus ont une grande sensibilité et peuvent être utilisés d'une façon satisfaisante après une heure seulement de refroidissement.

b. 6 Le système optique de conjugaison

Ainsi que sur l'Hypeac, les FABRY-PEROT sont conjugués avec les fenêtres de la multi-cathode ; les sources étant conjuguées avec les diaphragmes isolateurs et les récepteurs.

b. 7 Le système intégrateur

L'intégration sur les deux canaux est simultanée. Sa mise en route et son arrêt sont commandés par des relais agissant sur un obturateur placé devant le diaphragme précédant le filtre interférentiel. Quand un des deux signaux atteint l'amplitude permise par l'enregistreur, il agit sur un relais commandant la fermeture de l'obturateur. Les charges sont conservées pendant 10 secondes environ, ce qui a l'avantage de mettre en évidence l'absence de courant d'obscurité et de lumière parasite, qui serait intégré dans le cas contraire.

Les capacités sont ensuite déchargées et court-circuitées et le zéro de charge enregistré pendant 10 secondes environ.

Une nouvelle intégration sera faite par mise en service des capacités et ouverture simultanée de l'obturateur. (fig. 9 et 10)

Ce système intégrateur permet de faire un grand nombre de mesures successives, en l'absence d'opérateur. L'estimation visuelle de la reproductibilité est immédiate.

La fig. 11 montre une série d'intégrations effectuées sur une cathode laissée en place.

Le temps pendant lequel les capacités sont court-circuitées et l'obturateur fermé est suffisant pour mettre en position une autre source de la multi-cathode.

IV - RESULTATS -

a) Essais préliminaires :

Ces essais avaient pour but de tester le quantomètre et de mettre au point un mode opératoire de dosage.

De nombreux essais montrèrent que 10 mg d'oxyde d'Uranium placés dans une cathode creuse en aluminium permettent de travailler pendant au moins trente heures, à condition de ne pas utiliser de courant de décharge supérieur à 50 mA.

Une source étalon peut donc être laissée en place sur la multi-cathode et servir pour plusieurs dosages.

Le temps d'intégration des signaux est ajusté entre une et trois minutes, en faisant varier la valeur des tensions aux bornes des photomultiplicateurs et la valeur des capacités de charge.

Les conditions de travail jugées satisfaisantes sont :

intensité de décharge	de l'ordre de 30 mA
tension aux bornes des récepteurs	$650 < V < 950$ volts
capacité d'intégration	0,047 0,22 et 1 μ F

Quant à la tension aux bornes du P. M. de référence, elle est fournie par une alimentation indépendante. Cela permet de comparer les luminances des sources à tout moment et de suivre leur évolution au cours du temps.

Le premier essai fut de mettre 10 mg du même échantillon d'oxyde d'Uranium naturel dans chaque pot de la tétracathode afin de

déterminer la reproductibilité de la méthode.

Les rapports d'intensité des signaux relatifs à U^{235} et à U^{238} ne sont évidemment pas égaux aux rapports théoriques d'intensité correspondant à l'abondance isotopique car nous utilisons deux raies ayant des largeurs différentes et deux récepteurs n'ayant pas, à priori, la même sensibilité.

Ce premier essai ne donna pas des rapports d'intensité des signaux égaux pour les quatre sources. Les différences obtenues pouvaient provenir des conditions d'excitation qui n'auraient pas été rigoureusement identiques et il importait de déterminer quantitativement l'influence de celles-ci pour mettre au point un mode opératoire de dosage satisfaisant.

Bien que la pression de gaz porteur (Néon) soit identique pour les quatre sources, il est difficile d'obtenir des luminances égales pour des courants d'alimentation sensiblement égaux (conditions de fonctionnement voisines). Cette difficulté résulte de différences non contrôlables dans la fabrication des sources telle que la répartition de l'oxyde sur les parois.

Des dépôts électrolytiques de l'ordre du milligramme d'oxyde ont été essayés, mais n'ont pas permis de résoudre ce problème. Au contraire, les écarts de luminance, à courants égaux, sont plus importants alors qu'avec le dépôt pesé de 10 mg d'oxyde. A cela, s'ajoute une très grande diminution de la luminance.

Les modes de travail possibles sont l'égalité de luminance ou l'égalité de courant d'alimentation des sources.

Nous allons indiquer les résultats obtenus dans l'un et l'autre cas avec de l'Uranium naturel et les enseignements que nous en avons tirés.

a. 1. Utilisation des raies a et A :

Ces deux raies sont des raies homologues.

Si l'on désigne par I_a et I_A les intensités des raies émises par la source (I_A de l'ordre de $100 I_a$), on mesure, après intégration, des elongations h_a et h_A telles que :

$$h_a = k I_a$$

$$h_A = k' I_A$$

Les facteurs k et k' faisant intervenir le facteur de séparation de luminance introduit par la lame de verre à faces parallèles, les transmissions des Fabry-Perot résolvants, la sensibilité des photomultiplicateurs dans leurs conditions d'emploi (tension aux bornes des dynodes) et la valeur des capacités de charge.

Appelons ρ le rapport des elongations h_a et h_A qui peuvent être rendues voisines par ajustement des facteurs k et k'

$$\rho = \frac{h_a}{h_A} = \frac{k I_a}{k' I_A}$$

Ces deux elongations sont proportionnelles aux nombres d'atomes émetteurs d' U^{235} et d' U^{238} , mais les facteurs de proportionnalité importent peu car nous ne ferons que des mesures relatives d'abondance isotopique.

Utilisons une séparatrice réfléchissant environ 80% de l'intensité incidente et en transmettant 10% environ, ce qui nous permet d'envoyer sur le FP_a l'intensité $0,8 I_a$ et sur le FP_A l'intensité $0,1 I_A$ seulement.

A priori, il semble préférable de travailler avec des sources de luminance égale plutôt qu'avec des sources ayant des courants d'alimentation égaux car ainsi on obtient des temps d'intégration identiques pour les différentes sources.

De très nombreux essais faits à luminance égale avec 10 mg du même échantillon d' U_3O_8 naturel dans les quatre sources ont donné des rapports ρ pouvant différer de 8% alors que des essais à intensité de courant égale ne donnaient que 6%.

Les différences observées étaient toujours plus faibles à intensité de courant égale qu'à luminance égale, ce qui peut s'interpréter par l'existence d'un phénomène d'auto-absorption non négligeable sur le raie A, en relation avec les conditions de fonctionnement des sources. Ces différences étaient liées aux pots cathodiques.

Donnons un exemple des résultats obtenus.

- en travaillant à luminance égale, c'est-à-dire avec

luminance égale

$$i_1 = 29 \text{ mA} \quad i_2 = 32 \text{ mA} \quad i_3 = 34 \text{ mA} \quad i_4 = 29,5 \text{ mA}$$

on obtient les valeurs moyennes

$$P_1 = 0,784 \quad P_2 = 0,852 \quad P_3 = 0,828 \quad P_4 = 0,800$$

donc un P moyen de 0,816 et des écarts extrêmes de l'ordre de $\pm 4\%$.

- en travaillant avec ces mêmes sources à intensité égale, ^{de courant} $i = 35 \text{ mA}$, on obtient

$$P_1 = 0,785 \quad P_2 = 0,828 \quad P_3 = 0,816 \quad P_4 = 0,792$$

donc un P moyen de 0,805 et des écarts extrêmes de l'ordre de $\pm 3\%$.

Ces écarts sont trop importants pour permettre la détermination précise des abondances isotopiques.

Nous avons alors décidé d'utiliser la raie B qui n'est pas homologue de la raie a mais dont l'intensité est voisine de celle de a pour l'abondance naturelle.

a. 2. Utilisation des raies a et B :

La séparatrice précédente a été remplacée par une nouvelle séparatrice réfléchissant environ autant de lumière qu'elle en transmet.

Les essais faits avec les raies a et A ont été repris avec a et B et nous avons obtenu des rapports $P' = \frac{k I_a}{k' I_B}$ beaucoup plus voisins pour les quatre sources et ceci quelque soit le mode de travail choisi.

De plus, nous avons constaté qu'une variation importante de luminance ne se répercute pas sur P' .

Les écarts observés sont de l'ordre de $\pm 1\%$ seulement et se conservent en passant d'un mode de travail à un autre, comme le montrent les tableaux I et II.

Le tableau I rassemble les résultats à luminance égale (au début des mesures) et le tableau II ceux à intensité de courant égale.

- Dans le cas I, le photomultiplicateur de référence donne au début des mesures

$l_1 = 195,0 \text{ mm}$	pour	$i_1 = 41,5 \text{ mA}$
$l_2 = 194,1 \text{ mm}$		$i_2 = 46 \text{ mA}$
$l_3 = 194,3 \text{ mm}$		$i_3 = 31 \text{ mA}$
$l_4 = 195,5 \text{ mm}$		$i_4 = 39 \text{ mA}$

luminance égale

et à la fin des mesures, trois heures plus tard

$l_1 = 167$ mm	pour	$i_1 = 41$ mA
$l_2 = 129,5$ mm		$i_2 = 45$ mA
$l_3 = 169$ mm		$i_3 = 30,5$ mA
$l_4 = 166$ mm		$i_4 = 39$ mA

La chute de luminance de la cathode 2 est de l'ordre de 20% par rapport aux trois autres, mais ne modifie nullement \bar{p}' .

Les valeurs moyennes de \bar{p}' sont :

$\bar{p}'_1 = 0,7246$	avec $\sigma_m t = 0,0079$	soit	1,09 %
$\bar{p}'_2 = 0,7365$	" = 0,0087	"	1,18 %
$\bar{p}'_3 = 0,7364$	" = 0,0088	"	1,20 %
$\bar{p}'_4 = 0,7319$	" = 0,0080	"	1,09 %

σ_m désignant l'écart moyen et t le coefficient de Fischer pour un intervalle de confiance de 95% (26 mesures).

- Dans le cas II, on prend

intensité de courant égale

$$i_1 = i_2 = i_3 = i_4 = 40 \text{ mA}$$

ce qui conduit à

$l_1 = 161$ mm au début	et	136 mm	2 heures plus tard
$l_2 = 110$ mm	"	87 mm	"
$l_3 = 230$ mm	"	178 mm	"
$l_4 = 170,5$ mm	"	133 mm	"

Les intensités finales sont de 39 mA pour les 4 sources. Les luminances initiales et finales sont très différentes d'une cathode à l'autre puisque les luminances extrêmes sont dans le rapport 2. Mais ces différences importantes n'affectent pas les rapports \bar{p}' .

$\bar{p}'_1 = 0,7235$	avec $\sigma_m t = 0,0086$	soit	1,18 %
$\bar{p}'_2 = 0,7343$	" = 0,0085	"	1,15 %
$\bar{p}'_3 = 0,7363$	" = 0,0068	"	0,92 %
$\bar{p}'_4 = 0,7303$	" = 0,0086	"	1,18 %

t étant le coefficient de Fischer pour 14 mesures et le même intervalle de

confiance que précédemment.

On retrouve les valeurs ρ' du cas I. Il faut surtout remarquer que les 160 intégrations des tableaux I et II se sont réparties sur un temps de travail de près de six heures et que l'on ne constate pas de variation sensible de ρ' entre le début et la fin des mesures.

Ce résultat est très important et montre que le montage réalisé est d'une grande stabilité : les Fabry-Perot sont bien thermostatés et leurs cloches ne présentent aucune fuite de pression.

b) Dosages :

Les courbes de dosage de la concentration en Uranium 235 peuvent être établies, compte-tenu des renseignements fournis par les essais préliminaires, car nous disposons de dix étalons couvrant la gamme 0,402 - 93,27 % de la masse totale de l'élément qui sont :

0,402 %	en U ²³⁵		
0,894 %	"		
1,647 %	"		
2,997 %	"		
4,95 %	"	et	94,98 % en U ²³⁸
10,07 %	"		89,82 % "
19,80 %	"		79,86 % "
34,89 %	"		64,69 % "
90,10 %	"		8,80 % "
93,27 %	"		5,44 % "

Les six derniers étalons sont des étalons du National Bureau of Standards, présentant pour les forts enrichissements des concentrations en U²³⁴ et U²³⁶ non négligeables.

Un autre étalon est fourni par l'abondance isotopique naturelle.

Ces étalons nous avaient été aimablement fournis par le Service d'Analyse et de Chimie Appliquées/Section d'Analyse des Combustibles Nucléaires du CEN-Grenoble.

Nous avons pu tracer des courbes de dosage en utilisant quatre étalons chaque fois et ensuite effectuer le dosage d'échantillons d'abondance isotopique inconnue remis en même temps que les étalons.

Le manque d'étalons entre 35 et 90% ne nous a pas permis de déterminer de courbes précises dans ce domaine car il ne nous était pas possible d'effectuer des mélanges intermédiaires, vu les faibles quantités d'étalons NBS en notre possession.

Le mode de travail choisi est la brillance égale et l'utilisation de la raie B jusqu'à des enrichissements de 10%. Pour les taux supérieurs à 10%, la raie A est employée au lieu de B qui devient trop faible. Le risque d'auto-absorption, bien entendu, doit alors être pris en considération et les résultats obtenus risquent d'être moins précis dans cette zone de concentration.

Les abondances déterminées seront comparées aux valeurs trouvées par spectrométrie de masse et les écarts indiqués.

b. 1 Echantillons ayant une abondance isotopique en U^{235} inférieure à 1,65% :

On les dose en utilisant les étalons

$$\begin{array}{ccc} 0,402 & 0,894 & \text{et } 1,647 \% \\ \text{et en déterminant} & \bar{P}' = \frac{k_a}{k' B} & \end{array}$$

- Echantillon n° 1 -

On obtient (tableau III) :

pour étalon 0,402 %	$\bar{P}' = 0,5307$	avec $\sigma_m^t = 0,0082$	soit 1,54 %
" 0,894 %	$\bar{P}' = 0,6492$	avec $\sigma_m^t = 0,0072$	soit 1,11 %
" 1,647 %	$\bar{P}' = 0,8397$	avec $\sigma_m^t = 0,0062$	soit 0,74 %
pour échantillon	$\bar{P}' = 0,6045$	avec $\sigma_m^t = 0,0063$	soit 1,05 %

La courbe III tracée avec ces valeurs de \bar{P}' et de σ_m^t donne pour l'échantillon n° 1 la concentration

$$0,705 \pm 0,025$$

alors que la valeur trouvée par spectrométrie de masse est $0,711 \pm 0,001$, soit un écart de 0,8%.

- Echantillon n° 2 -

On obtient (tableau IV) :

pour étalon 0,402 %	$\bar{\rho}' = 0,4722$	avec $\sigma_m^2 t = 0,0033$	soit 0,70 %
" 0,894 %	$\bar{\rho}' = 0,6157$	avec $\sigma_m^2 t = 0,0061$	soit 0,99 %
" 1,647 %	$\bar{\rho}' = 0,8397$	avec $\sigma_m^2 t = 0,0086$	soit 1,03 %
pour l'échantillon	$\bar{\rho}' = 0,7515$	avec $\sigma_m^2 t = 0,0085$	soit 1,14 %

La courbe IV tracée avec ces valeurs de $\bar{\rho}'$ et de $\sigma_m^2 t$ donne pour l'échantillon n° 2 la concentration

$$1,36 \pm 0,03$$

alors que la valeur trouvée par spectrométrie de masse serait $1,430 \pm 0,002$, soit un écart de 4,9 %.

Gunble

b. 2 Echantillons ayant une abondance isotopique en U^{235} comprise entre 1,65 et 10 % :

Nous n'avions pas en notre possession d'échantillons à doser dans cette gamme de teneur. Il était cependant possible de déterminer la courbe de dosage et l'incertitude relative probable sur la concentration.

On utilise les étalons

1,647 2,997 4,95 et 10,07 %

et on détermine $\bar{\rho}'$ comme précédemment.

On obtient (tableau V) :

pour étalon 1,647 %	$\bar{\rho}' = 0,2731$	avec $\sigma_m^2 t = 0,0029$	soit 1,05 %
" 2,997 %	$\bar{\rho}' = 0,3671$	avec $\sigma_m^2 t = 0,0022$	soit 0,61 %
" 4,95 %	$\bar{\rho}' = 0,5261$	avec $\sigma_m^2 t = 0,0049$	soit 0,99 %
" 10,07 %	$\bar{\rho}' = 0,9139$	avec $\sigma_m^2 t = 0,0132$	soit 1,44 %

La courbe V tracée avec ces valeurs de $\bar{\rho}'$ et de $\sigma_m^2 t$ montre qu'à une incertitude relative sur la concentration de l'ordre de 1,5 %.

b. 3 Echantillons ayant une abondance isotopique en U^{235} comprise entre 10 et 35 % :

On les dose en utilisant les étalons

10,07 19,80 et 34,89 %

La raie A est maintenant employée et on détermine $\rho = \frac{k a}{k' A}$

Echantillon n° 3 :

On obtient (tableau VI)

pour étalon 10,07	$\bar{P} = 0,2332$	avec $\sigma_m t = 0,0046$	soit	1,95 %
" 19,80	$\bar{P} = 0,4310$	avec $\sigma_m t = 0,0042$	soit	0,97 %
" 34,89	$\bar{P} = 0,8751$	avec $\sigma_m t = 0,0047$	soit	0,54 %
pour l'échantillon	$\bar{P} = 0,7300$	avec $\sigma_m t = 0,0031$	soit	0,43 %

La courbe VI tracée avec ces valeurs de \bar{P} et de $\sigma_m t$ donne pour l'échantillon n° 3 la concentration

$$30,55 \pm 0,10$$

alors que la valeur trouvée par spectrométrie de masse est $30,05 \pm 0,1$, soit un écart de 1,7%.

b. 4. Echantillon ayant une abondance isotopique en U^{235} supérieure à 35%.

Nous ne disposons que des étalons 90,10% et 93,27%, et en très petite quantité ce qui ne permet pas la confection de mélanges ayant une abondance comprise entre 35 et 90%.

Il sera donc très difficile de faire un dosage précis, à moins de se trouver à une concentration de l'échantillon proche de celle d'un étalon.

Un échantillon d'abondance isotopique voisine de 90% nous fut fourni dans le cadre du circuit d'échantillons organisé par la Direction des Matériaux et Combustibles Nucléaires et le résultat obtenu est indiqué dans le paragraphe qui suit.

b. 5. Circuit d'échantillons CEA 04 (Mai 1968)

Ce circuit comportait deux échantillons d'Uranium à teneur isotopique très différente

CEA 04 A enrichissement environ 1,5%

CEA 04 B enrichissement environ 90%

qui furent remis à plusieurs laboratoires français afin de pouvoir établir une comparaison de résultats d'analyse isotopique sur des échantillons donnés.

Nous fûmes le seul laboratoire ayant fait des déterminations par méthode optique, tous les autres utilisant la spectrométrie de masse.

Les résultats sont exprimés en pour cent de la masse totale de l'élément.

CEA 04 A :

Notre résultat est $1,40 \pm 0,04$
alors que les résultats par spectrométrie de masse étaient compris entre 1,373 et 1,423, selon les laboratoires, pour des analyses par thermoionisation et entre 1,3802 et 1,3836 pour des analyses sous forme d' UF_6 .

CEA 04 B :

Notre résultat est $88,2 \pm 0,5$
l'incertitude provient en grande partie du tracé de la "droite" de dosage.
Les résultats des autres laboratoires étaient compris entre 88,21 et 88,43.

Ce circuit d'échantillons CEA 04 nous a permis de comparer utilement les résultats obtenus par notre méthode avec ceux obtenus par spectrométrie de masse : ils sont très voisins et montre la validité de notre méthode de dosage.

V - CONCLUSION -

Le quantomètre Fabry-Perot permet d'effectuer des dosages isotopique de l'Uranium 235 avec une précision relative dépendant de la concentration, qui est :

de l'ordre de 4 %	pour	C =	0,5 %
" 2 "	"	C =	2 %
" 1 %	"	C =	10 %
" 0,5 %	"	C =	20 %

Le nombre de dosages journalier possible avec l'appareil existant ne peut dépasser deux.

Une étude particulière des sources permettrait d'augmenter le nombre de dosages et de réduire le dépôt dans les cathodes.

Les avantages de la méthode résident dans la simplicité de l'appareil, l'absence d'interférences et d'effets de mémoire.

Les inconvénients sont sa faible précision (comparée à celle obtenue

par spectrométrie de masse) et une quantité de matière par analyse de l'ordre du milligramme. De plus, les dosages possibles ne sont que des dosages relatifs U^{235}/U^{238} .

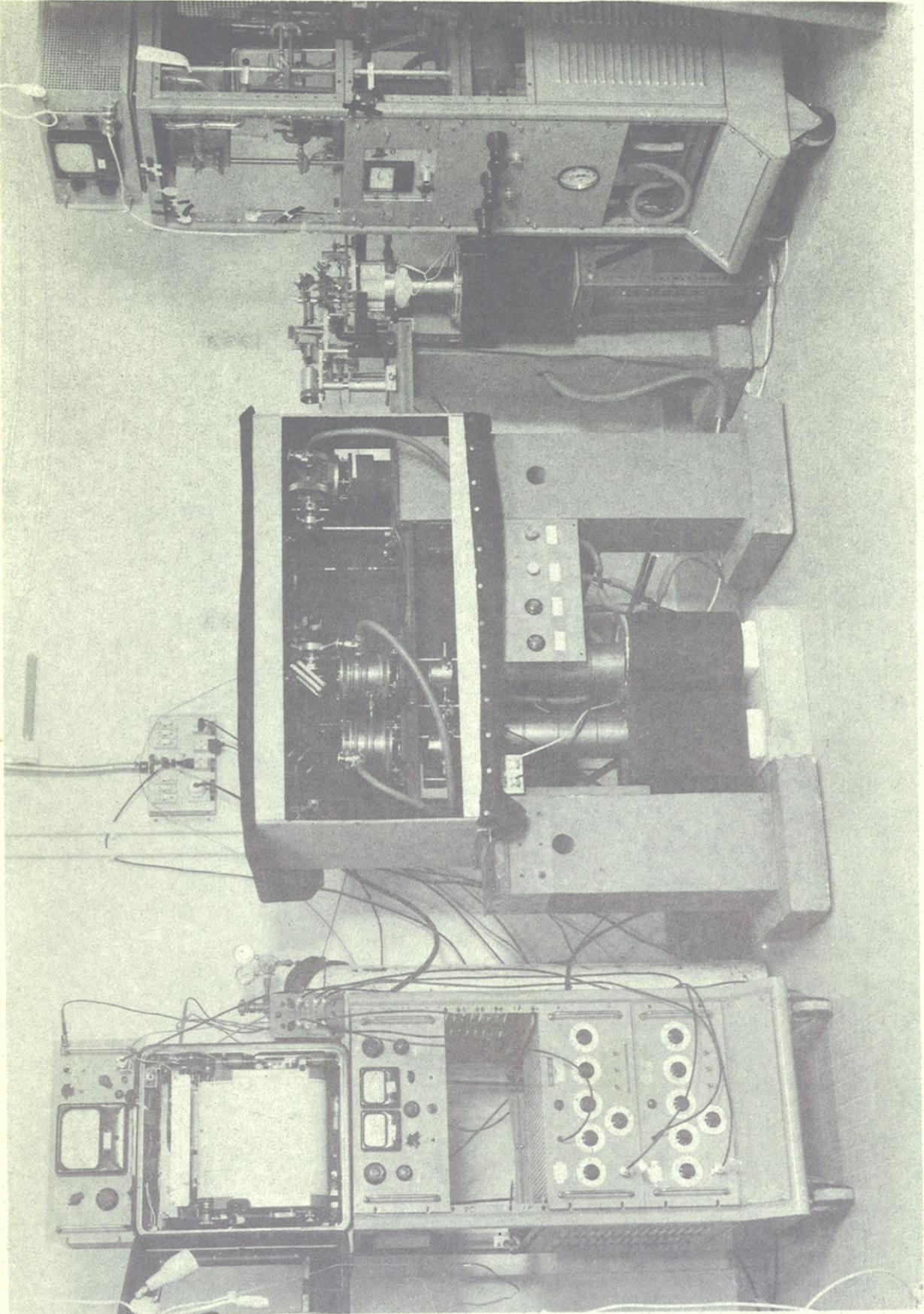
Le dosage de U^{233} , U^{234} et U^{236} nécessiterait une nouvelle étude plus poussée pour déterminer les éléments optiques nouveaux à utiliser. Ce problème, s'il s'avère intéressant, reste encore à résoudre.

BIBLIOGRAPHIE

- [1] H. KOPFERMANN
Kernmomente, Akademische Verlagsgesellschaft, Francfort
-s- Main, 1956
- [2] IONESCO-PALLAS
Ann. Physik 8, 9, (1961)
- [3] ANDERSON D. E et WHITE W. E
Physical Review 71 911, (1947)
- [4] GERSTENKORN S.
Rapport CEA n° 845 (1958)
- [5] BEN MENA T.
Thèse Orsay 1967
- [6] LEE T. et ROGERS L. W.
Applied Spectroscopy 15, 1 (1961)
- [7] STEINHAUS D. W., BLAISE J., DIRINGER M.
Rapport LA 3475
Los Alamos Scientific Laboratory (1966)
- [8] BRODY J. K., TOMKINS F. S. et FRED M.
Spectrochimica Acta Vol. 8, 329-347 (1957)
- [9] ARTAUD J., BLAISE J., GERSTENKORN S.
2ème Conférence sur l'utilisation pacifique de l'Energie
Atomique, PROC. U. N. Genève A/conf. 15 / P 328 (1958)
- [10] BRODY J. K., TOMKINS F. S.
2ème Conférence sur l'utilisation pacifique de l'Energie
Atomique, PROC. U. N. Genève A/conf. 15 / P 945 (1958)
- [11] THORNE R. P.
5 th Intern. Instruments and Measurements Conf. STOCKHOLM
(1960)
- [12] LEICKNAM J. P. Rapport CEA n° 2202 (1962)
- [13] BERTHELOT C., LAUER K. F.
Rapport Euratom 307 e (1963)
- [14] JACQUINOT P.
Josa - Vol. 44, 10 - 1954
- [15] CHABBAL R. et JACQUINOT P.
Rev. Opt. 40, 157-170 (1961)

SOMMAIRE

	Pages
I - INTRODUCTION	1
II - DEPLACEMENT ISOTOPIQUE DANS LE SPECTRE DE L'URANIUM	2
a/ Origine du déplacement isotopique	
b/ Choix de la raie d'Uranium utilisée	
c/ Pouvoir de résolution nécessaire	
III - SPECTROMETRES FABRY-PEROT	4
a/ l'Hypéac	
b/ Le quantomètre Fabry-Perot	
IV - RESULTATS	10
a/ Essais préliminaires	
a-1 Utilisation des raies a et A	
a-2 Utilisation des raies a et B	
b/ Dosages	
b-1 Echantillons ayant une abondance isotopique en U^{235} inférieure à 1,65 %.	
b-2 Echantillons ayant une abondance isotopique en U^{235} comprise entre 1,65 et 10 %.	
b-3 Echantillons ayant une abondance isotopique en U^{235} comprise entre 10 et 35 %.	
b-4 Echantillons ayant une abondance isotopique en U^{235} supérieure à 35 %.	
b-5 Circuit d'échantillons CEA 04	
V - CONCLUSION	19



QUANTOMÈTRE FABRY-PÉROT
à deux canaux.

URANIUM
NATUREL

$$\lambda = 5027 \text{ \AA}$$

$$\Delta\sigma = 1360 \text{ mK}$$

$$I = 50 \text{ mA}$$

$$\delta\sigma = \frac{1860}{30} = 62 \text{ mK}$$

B (U²³⁸)

A (U²³⁸)

a (U²³⁵)

B (U²³⁸)

411 mK

FIG. 1

5027,509 \AA

0,124 \AA

495 mK

5027,385

0,103 \AA

411 mK

5027,282

100 20 0 60 50 40 30 20 10 0

N° 4

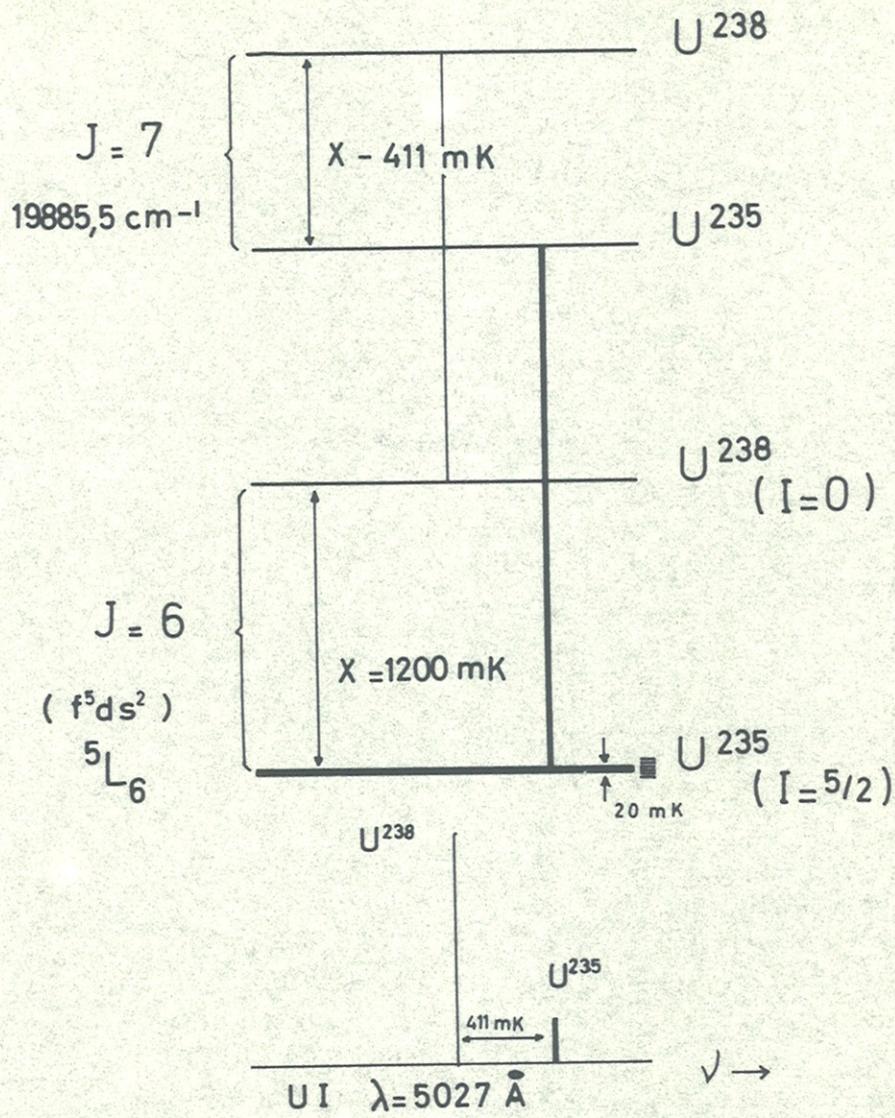


FIG. 2

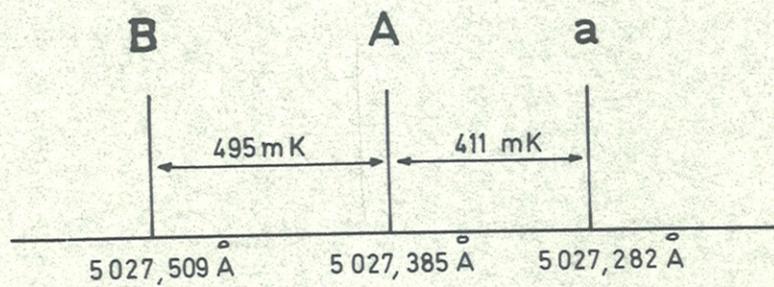


FIG. 3

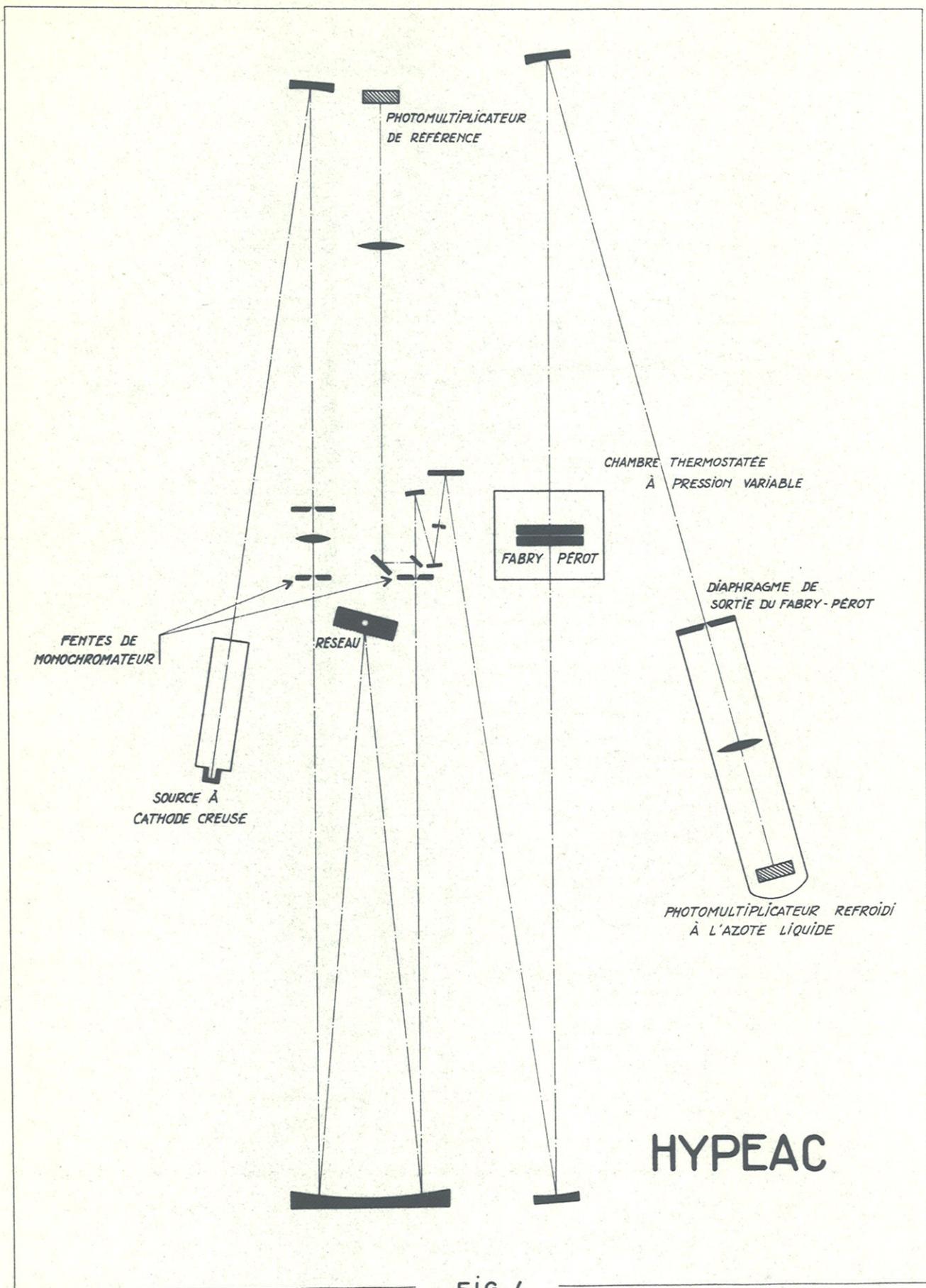
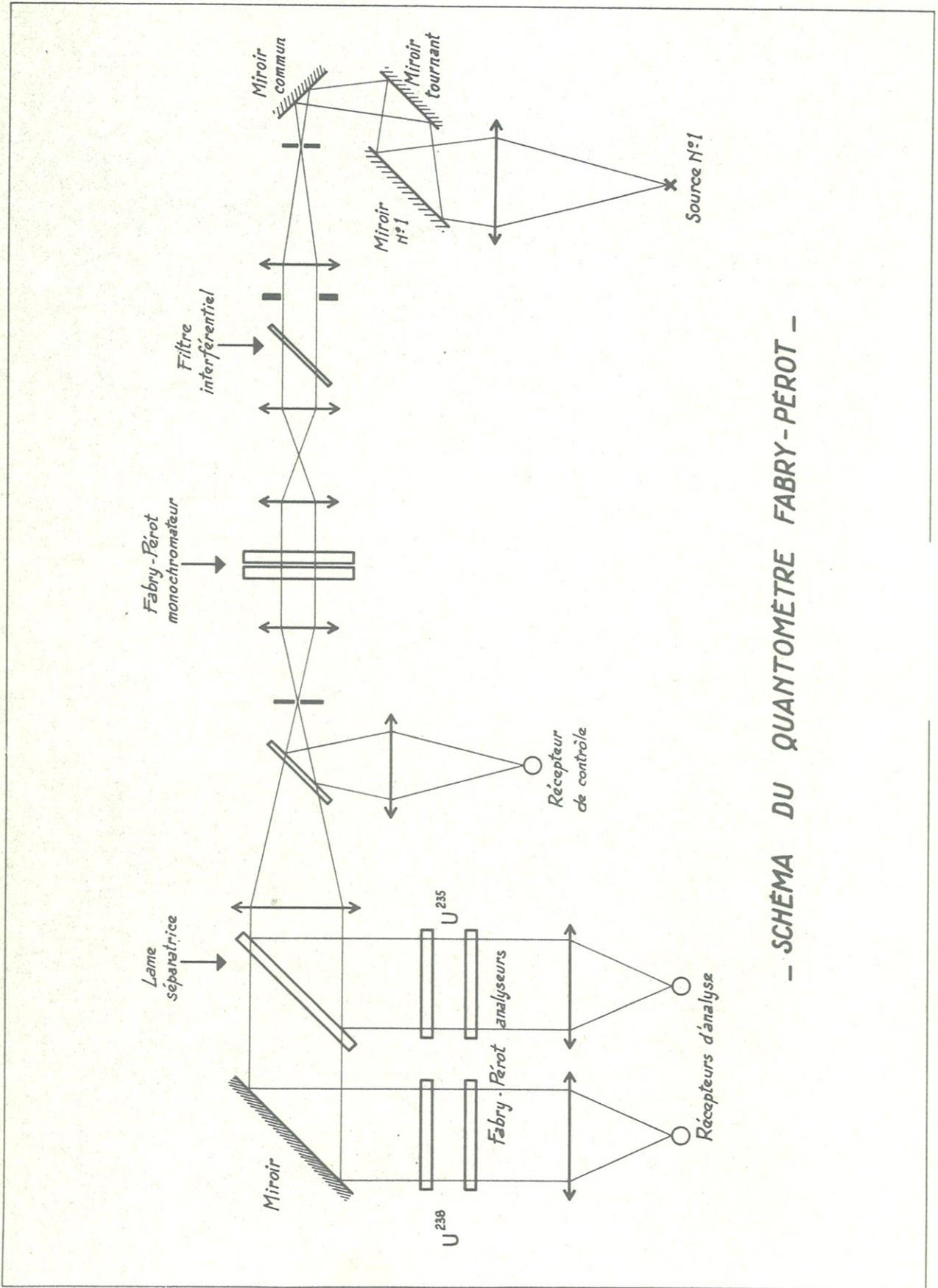


FIG. 4



— SCHEMA DU QUANTOMETRE FABRY-PÉROT —

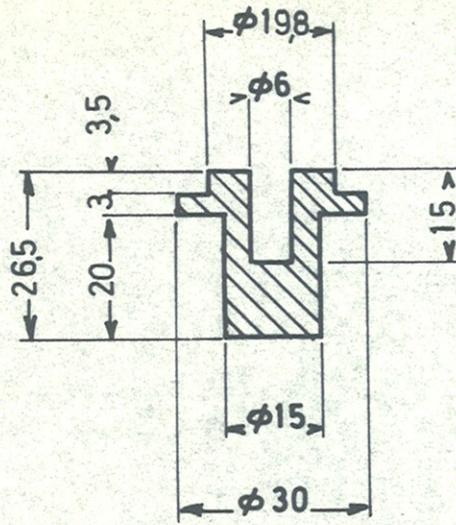


FIG. 7

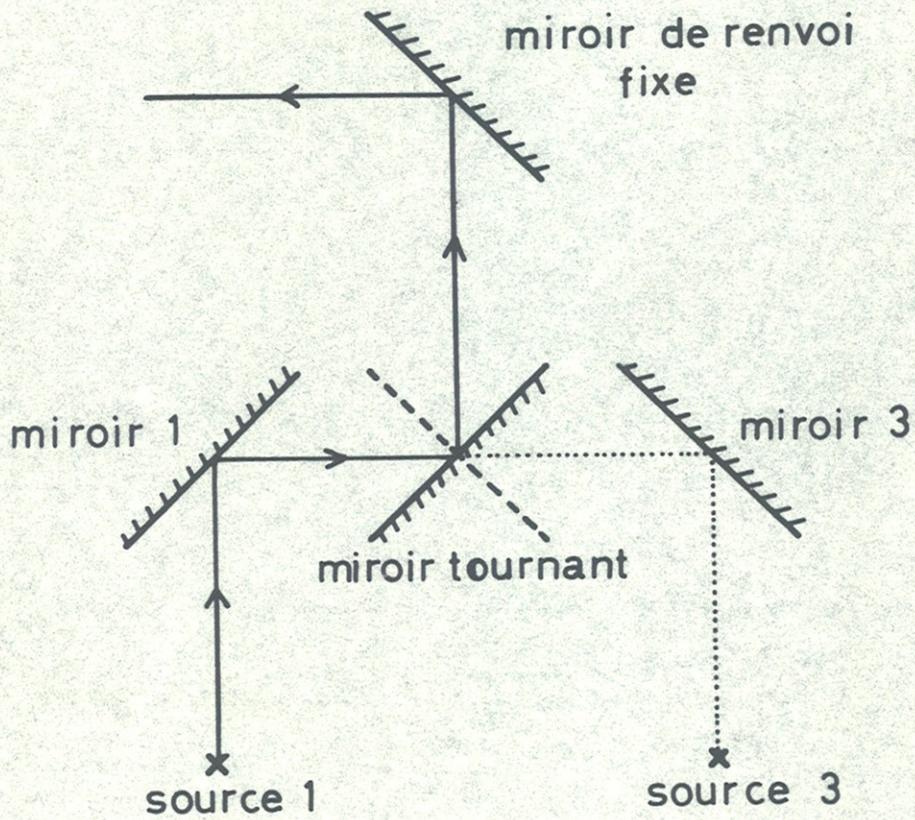


FIG. 8

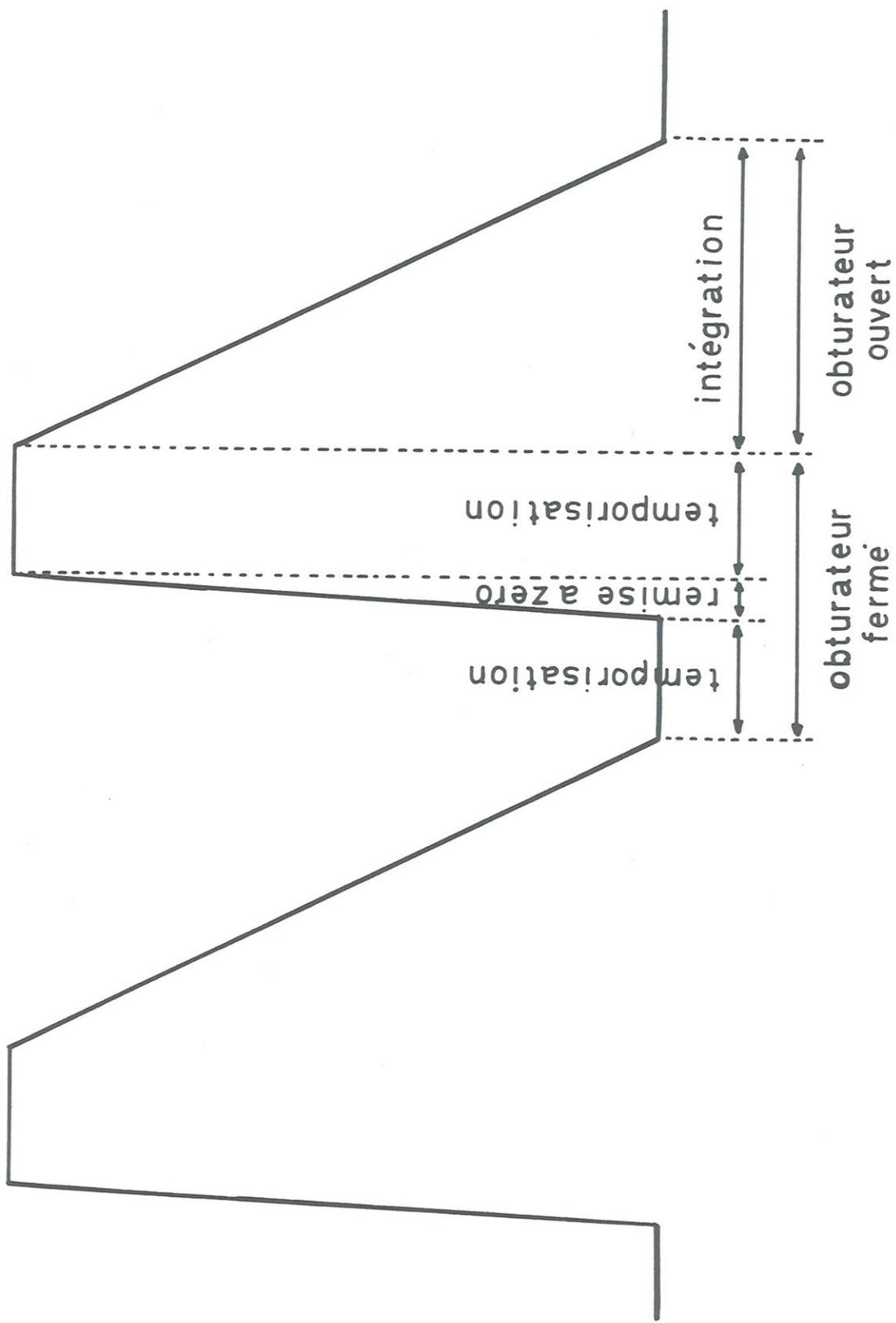


FIG. 9

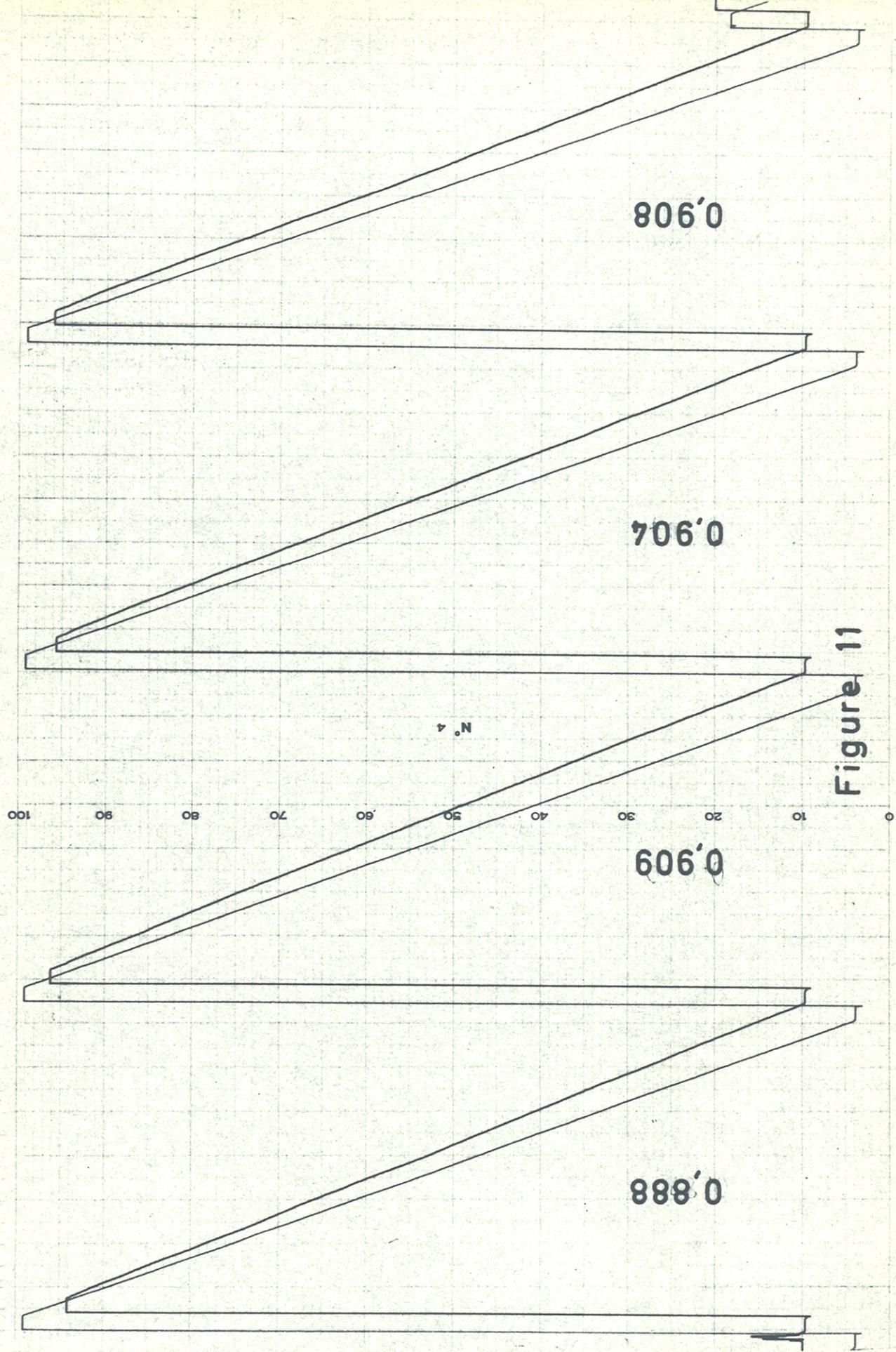


Figure 11

Tableau I

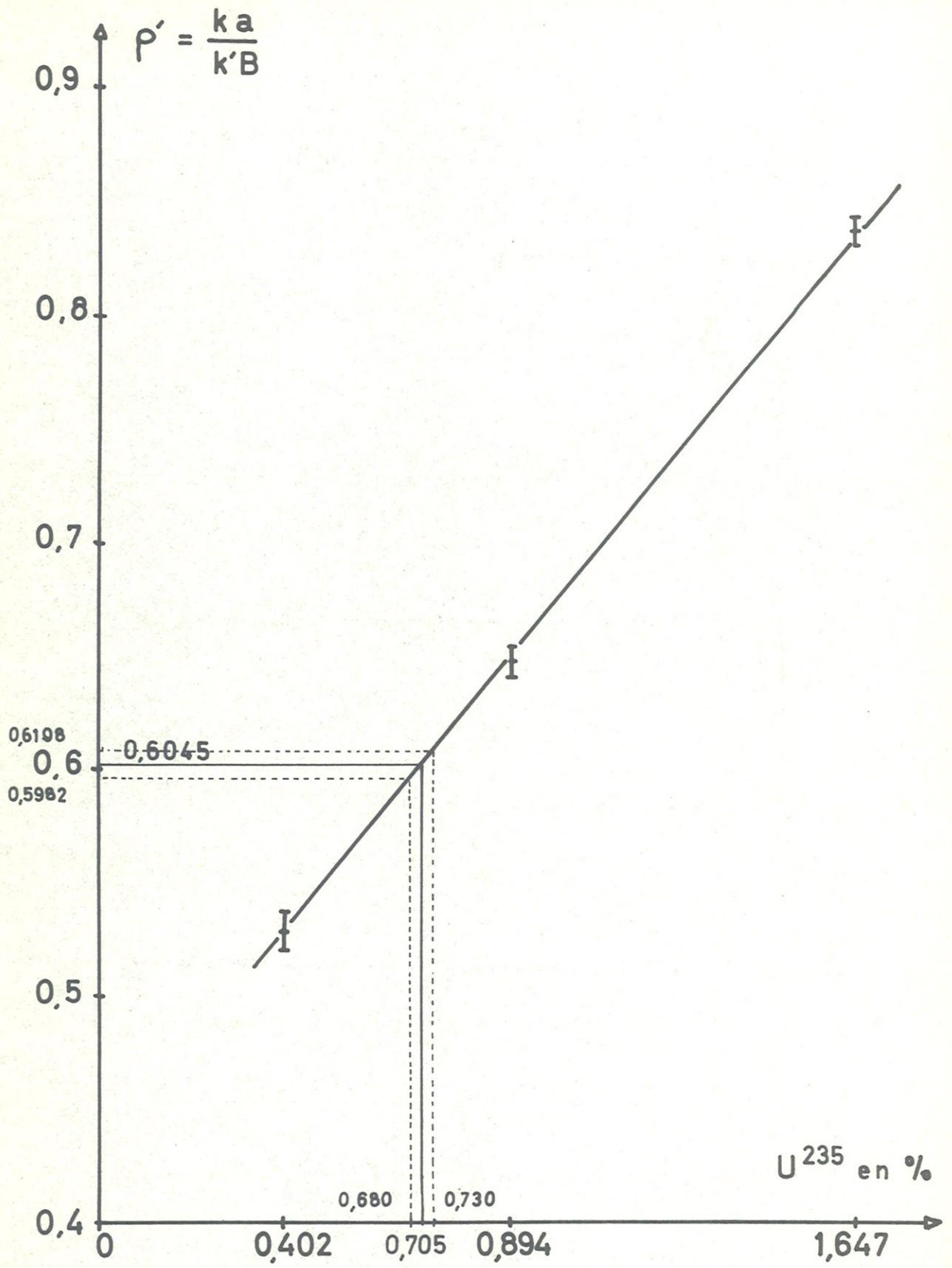
cathode 1	cathode 2	cathode 3	cathode 4
0,717	0,714	0,734	0,727
0,727	0,738	0,741	0,701
0,740	0,779	0,718	0,719
0,702	0,690	0,718	0,728
0,719	0,704	0,690	0,734
0,733	0,744	0,707	0,729
0,713	0,735	0,707	0,757
0,716	0,735	0,729	0,685
$-0,038 \rightarrow$ 0,686	0,719	0,732	0,719
0,726	0,733	0,775	0,720
0,696	0,740	0,741	0,740
0,720	0,729	0,758	0,729
0,719	0,732	0,777	0,716
0,731	0,767	0,739	0,747
0,727	0,731	0,740	0,722
$+0,045 \rightarrow$ 0,769	0,756	0,724	0,723
0,750	0,776	0,722	0,713
0,713	0,714	0,735	0,722
0,735	0,737	0,735	0,746
0,752	0,722	0,754	0,747
0,723	0,728	0,709	0,746
0,705	0,762	0,762	0,773
0,704	0,753	0,727	0,743
0,714	0,720	0,751	0,722
0,751	0,763	0,760	0,754
0,752	0,728	0,762	0,768
valeur moyenne	valeur moyenne	valeur moyenne	valeur moyenne
0,724 ₆	0,736 ₅	0,736 ₄	0,731 ₉

Tableau II

Cathode 1	Cathode 2	Cathode 3	Cathode 4
0,741	0,731	0,734	0,723
0,753	0,740	0,735	0,747
0,722	0,747	0,718	0,723
0,726	0,737	0,740	0,757
0,718	0,742	0,716	0,756
0,710	0,719	0,732	0,726
0,726	0,764	0,746	0,727
0,708	0,743	0,742	0,723
0,742	0,726	0,740	0,713
0,702	0,746	0,735	0,749
0,715	0,720	0,761	0,719
0,735	0,712	0,749	0,720
0,709	0,714	0,734	0,719
0,722	0,739	0,726	0,722
valeur moyenne	valeur moyenne	valeur moyenne	valeur moyenne
0,723 ₅	0,734 ₃	0,736 ₃	0,730 ₃

Tableau III

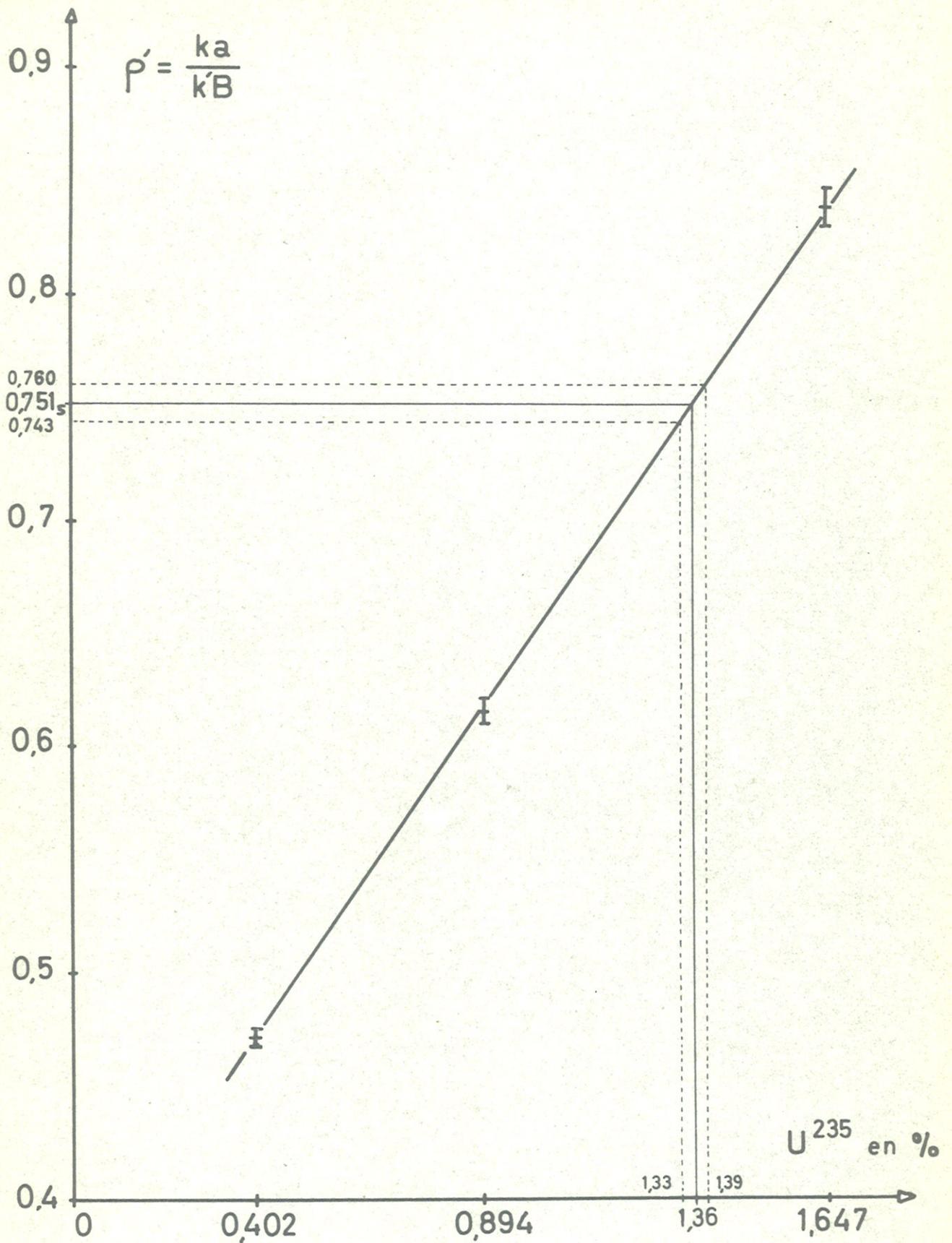
U à 0,4026%	U à 0,894%	U à 1,647%	U à doser
0,525	0,656	0,830	0,581
0,525	0,633	0,848	0,593
0,513	0,665	0,857	0,609
0,540	0,644	0,840	0,602
0,542	0,657	0,841	0,603
0,517	0,642	0,826	0,608
0,508	0,648	0,856	0,601
0,542	0,652	0,833	0,611
0,530	0,652	0,835	0,620
0,541	0,632	0,839	0,605
0,544	0,668	0,839	0,612
0,542	0,641	0,832	0,609
valeur moyenne	valeur moyenne	valeur moyenne	valeur moyenne
0,530 ₇	0,649 ₂	0,839 ₇	0,604 ₅



COURBE III

Tableau IV

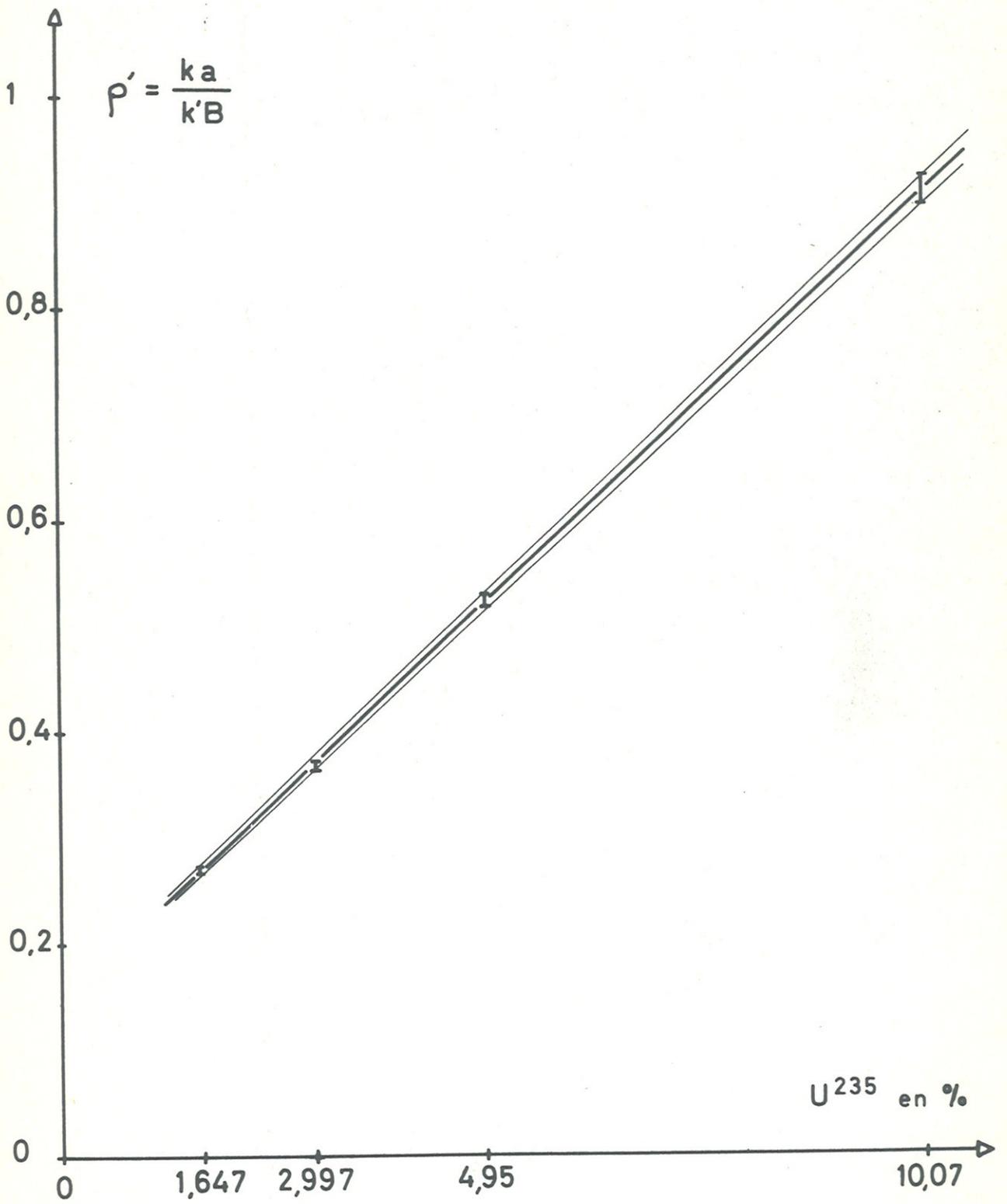
U à 0,4026%	U à 0,894%	U à 1,647%	U à doser
0,474	0,624	0,870	0,774
0,479	0,633	0,867	0,758
0,471	0,638	0,843	0,768
0,476	0,623	0,848	0,766
0,483	0,622	0,848	0,764
0,481	0,614	0,851	0,763
0,468	0,617	0,839	0,736
0,468	0,612	0,815	0,745
0,464	0,614	0,831	0,752
0,468	0,597	0,834	0,739
0,466	0,600	0,816	0,768
0,465	0,607	0,836	0,730
0,474	0,615	0,829	0,740
0,477	0,607	0,832	0,743
0,469	0,612	0,836	0,726
valeur moyenne	valeur moyenne	valeur moyenne	valeur moyenne
0,472 ₂	0,615 ₇	0,839 ₇	0,751 ₅



COURBE IV

Tableau V

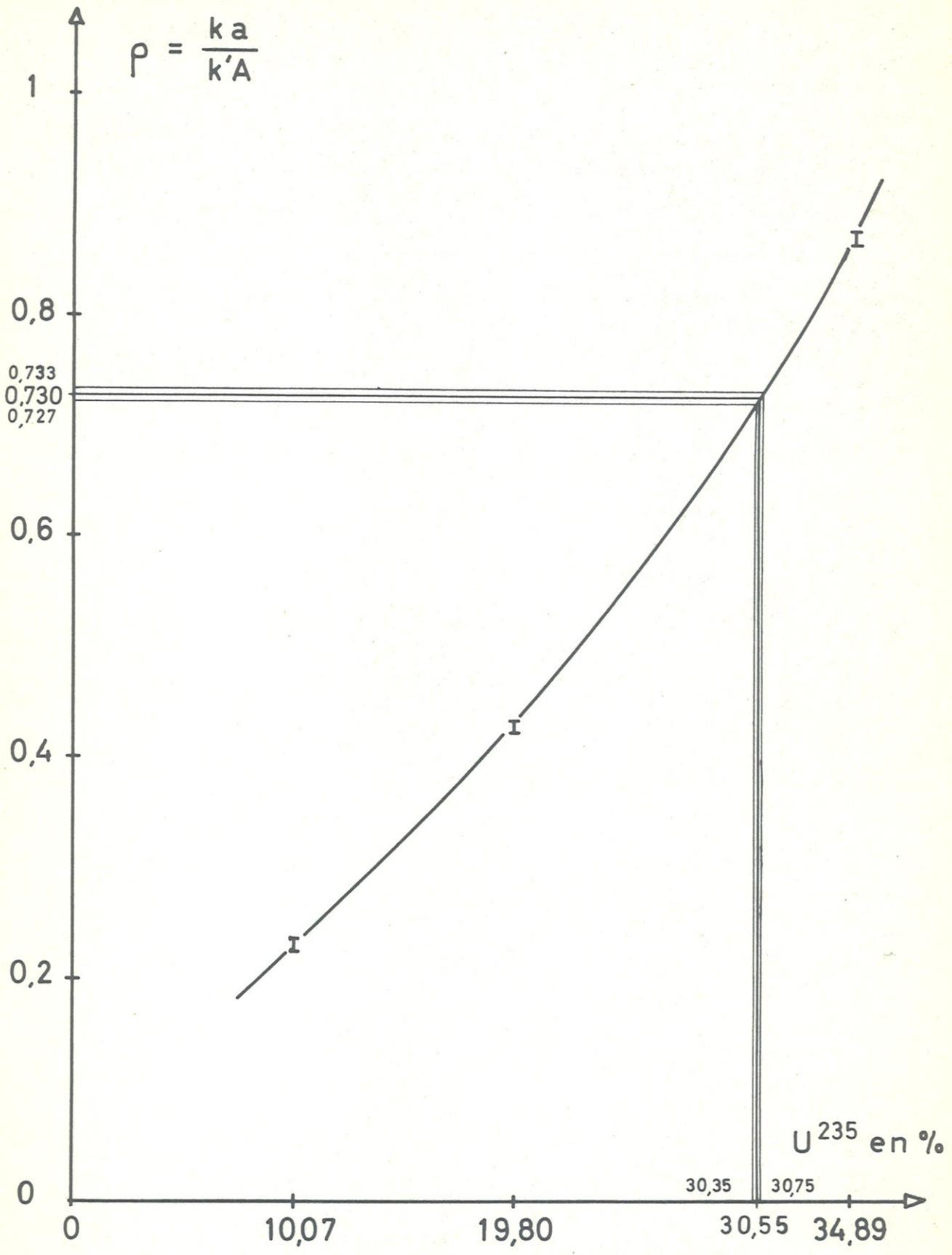
U à 1,647%	U à 2,997%	U à 4,95%	U à 10,07%
0,271	0,367	0,537	0,910
0,288	0,367	0,530	0,881
0,277	0,364	0,538	0,860
0,277	0,369	0,536	0,915
0,274	0,362	0,534	0,896
0,273	0,370	0,534	0,917
0,273	0,377	0,510	0,924
0,269	0,362	0,513	0,929
0,273	0,367	0,524	0,900
0,273	0,369	0,520	0,922
0,272	0,360	0,524	0,930
0,265	0,369	0,516	0,908
0,275	0,365	0,529	0,942
0,269	0,368	0,521	0,958
0,267	0,371	0,526	0,917
valeur moyenne 0,273 ₁	valeur moyenne 0,367 ₁	valeur moyenne 0,526 ₁	valeur moyenne 0,913 ₉



COURBE V

Tableau VI

U à 10,07%	U à 19,80%	U à 34,89%	U à doser
0,244	0,426	0,872	0,733
0,231	0,428	0,881	0,723
0,231	0,432	0,870	0,728
0,225	0,430	0,870	0,731
0,229	0,439	0,872	0,728
0,231	0,438	0,874	0,728
0,231	0,423	0,889	0,729
0,237	0,435	0,873	0,733
0,240	0,428	0,875	0,737
valeur moyenne	valeur moyenne	valeur moyenne	valeur moyenne
0,233 ₂	0,431 ₀	0,875 ₁	0,730 ₀



COURBE VI