



## Module 1

# Uranium et radioactivité

Robert Guillaumont

CLIS Sites Uranium Haute-Vienne - Formation - 28 oct. 2008



## L'uranium est le plus lourd des éléments chimiques naturels

- 1 kg d'uranium métallique naturel (Unat) a un volume de 52,5 cm<sup>3</sup> à 25 °C. U pèse 20 fois plus que l'eau.
- 1 kg de Unat contient, 992,28 g de U238, 7,2 g de U235 et 0,05 g de U234. Le poids de Unat est dû à U238, celui de U234 est insignifiant.
- Les trois espèces U238, U235 et U234 sont des isotopes d'uranium c'est-à-dire des atomes d'uranium qui ont des noyaux différents. Les noyaux de U235 et U238 ont des propriétés remarquables vis-à-vis des neutrons.
- Le nombre total d'atomes, N, dans 1 g d'uranium est extrêmement élevé. Pour compter ce nombre avec un ordinateur ayant un microprocesseur à 2 GHz (2 milliards d'unités comptées par seconde) il faut 40 000 ans.
- Autrement dit dans n'importe quelle quantité courante d'uranium il y a beaucoup, beaucoup d'atomes. Cela est important pour ce qui suit. Il y a cependant quelques exceptions (cas du radon).

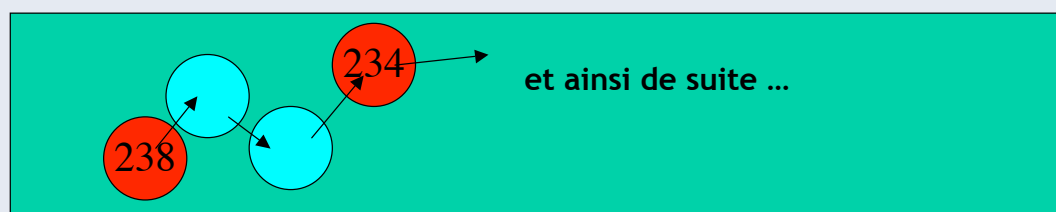


## L'uranium (naturel) est un « radioélément naturel »

- Cela veut dire que tous les isotopes de l'uranium sont radioactifs.
- Un atome radioactif a un noyau qui émet une particule, par exemple un noyau d'hélium (particule alpha) ou un électron (particule bêta) au moment de sa disparition.  
Un autre atome naît.
- Au cours du processus de « désintégration » il y a généralement émission de rayonnements électromagnétiques de même nature que la lumière. La particule émise et les rayonnements émis par le noyau de l'atome sont « ionisants » c'est-à-dire qu'ils sont capables d'arracher un électron à la matière. Cela permet de détecter la désintégration.
- Pour un ensemble d'atomes radioactifs, N, dont on mesure les désintégrations on parle de rayonnements alpha, bêta et gamma.  
L'émission est isotrope.



- Les désintégrations des isotopes **238** et **235** de l'uranium donnent des atomes eux-mêmes radioactifs et ainsi de suite... jusqu'à des atomes stables (U234 est l'arrière petit fils de U238).
- En quelques mois des traces **facilement** détectables de deux radionucléides (**Th234** et **Pa234**) apparaissent dans de l'uranium initialement pur.
- Dans les minerais d'uranium la situation est encore plus compliquée.
- Aussi pour aller plus loin dans l'explication de la radioactivité et de celle de l'uranium il faut simplifier.





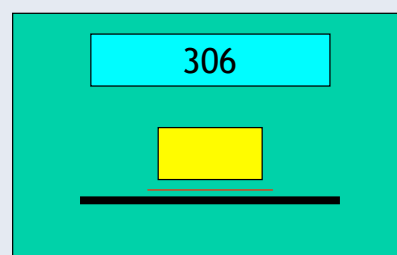
## Radioactivité

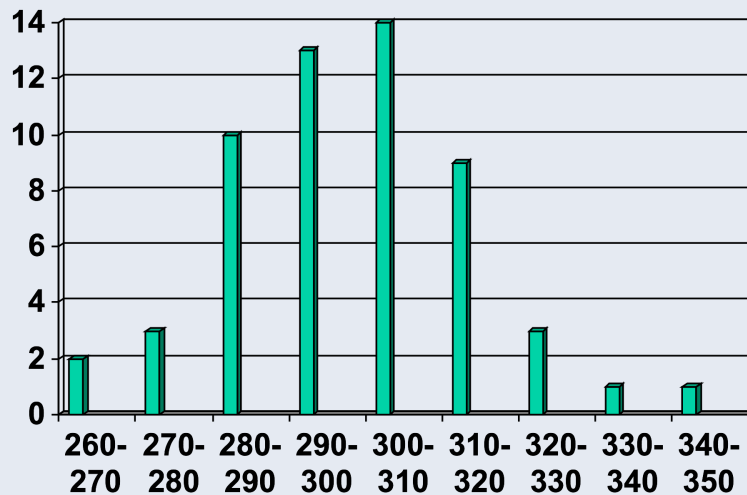
- Marie Curie a isolé de minerais d'uranium le polonium ( $Po_{210}$ ). C'est un radionucléide qui n'émet que des **particules alpha** et ne donne pas de fils radioactif mais du plomb ( $Pb_{206}$ ).
- On peut préparer facilement des sources idéales de polonium ne présentant aucun danger et compter les particules qu'elles émettent, autrement dit les désintégrations qu'elles subissent ou encore les atomes qui disparaissent.
- Pendant des minutes successives on compte  $\Delta N_1$  désintégrations,  $\Delta N_2$  désintégrations,  $\Delta N_3$  désintégrations et ainsi de suite.  
Les valeurs obtenues sont différentes ou rarement identiques.
- Les valeurs peuvent être rangées selon leur fréquence d'apparition dans des intervalles de valeurs et on peut ainsi définir une valeur moyenne par minute :  $\Delta N^*$  qui correspond au maximum de la fréquence d'apparition.
- Pendant des heures qui suivent si on continue les mesures on constate que  $\Delta N^*$  est constant.



$\Delta N$ mesurés (57 valeurs)	intervalles	fréquence
346	340-350	1
333	330-340	1
324,326,327	320-330	3
310,312,319,315,314, 315,316,318,315	310-320	9
300,301,305,306,310, 302,304,305,306,315, 302,301,300,308	300-310	14
291,295,296,297,292, 293,293,295,294,296, 291,290,296	290-300	13
280,284,285,287,281, 280,283,282,285,284	280-290	10
271,276,275	270-280	3
261,263	260-270	2
259	250-260	1

Source sans épaisseur  
(pas de matière) donnant  
1000 alpha /min





$\Delta N^* = 300 \pm 17$  désintégrations par minute



- Si on **change de source** pour **une autre** contenant plus de polonium on constate que plus  $\Delta N^*$  est élevé plus l'écart entre une valeur  $\Delta N_x$  et  $\Delta N^*$  devient faible. A la limite on peut confondre n'importe quelle valeur de  $\Delta N$  avec  $\Delta N^*$  (l'erreur est  $1,414/\sqrt{\Delta N}$ ). **C'est ce que l'on fait en pratique pour gagner du temps dans la mesure du nombre de désintégrations.**

$\Delta N^* = \Delta N$  en pratique, si  $\Delta N$  est élevé

- Cette simple expérience montre que la **désintégration des atomes est un phénomène aléatoire** puisqu'il n'existe pas de valeur unique de  $\Delta N$ . On peut rapprocher ce phénomène de certains jeux de hasard.
- **L'activité** d'une source radioactive est par définition le nombre de désintégration **par unité de temps**.  
Si **l'unité de temps est la seconde** l'unité de mesure est le **Becquerel**.

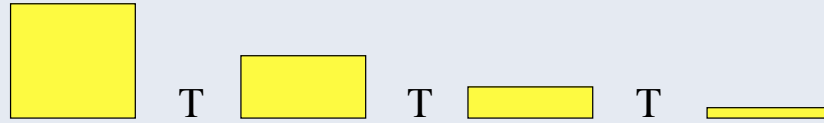
1Bq = 1 désintégration par seconde.

mBq = 1/1000 Bq .... 1 kBq = 1 000 Bq, MBq = 1000 kBq, GBq = 1000 MBq.

L'ancienne unité était le Curie (Ci). 1 Ci =  $3,7 \cdot 10^{10}$  Bq.



- Si on compte maintenant le **nombre de désintégrations**,  $\Delta N$ , à intervalles réguliers, par exemple **toutes les semaines** pendant une minute, on constate que  $\Delta N$  diminue inexorablement.
- $\Delta N$  a **diminué de moitié** au temps  $T = 138$  jours, puis du quart au temps  $2T = 276$  jours et ainsi de suite. Après  $10 T$  l'activité est divisée par 1000.



- **T est par définition la période radioactive** d'un ensemble de radionucléides. **Elle règle leur disparition inexorable.**

#### Loi de décroissance de N

- L'étude de la décroissance du nombre de radionucléides d'un ensemble donné montre que la fraction d'atomes qui disparaît (qui se désintègre) pendant un temps donné,  $\Delta t$ , est **constant**, **pourvu que ce temps d'observation soit faible devant T**. Cette constante est la constante radioactive,  $\lambda$ . Cela est traduit par :

$$\Delta N/N \Delta t = \lambda$$



- Il en découle que le nombre de désintégrations pendant  $\Delta t$  est :

$$\Delta N = \lambda N \Delta t$$

ou que l'activité mesurée à un moment donné pendant l'unité de temps ( $\Delta t = 1$ ) est simplement :

$$A = \lambda N$$

- La loi mathématique qui traduit la décroissance des atomes ou de l'activité ( $N = N_0 \exp(-\lambda t)$  ou  $A = A_0 \exp(-\lambda t)$ ) montre que :

$$\lambda T = 0,7$$

$$A = 0,7 N/T$$

- Les 120 premiers milligrammes de radium préparés par Marie Curie en 1902 auront diminué de moitié en l'an 3500, la période du radium étant  $\sim 1600$  ans. Leur activité initiale était de 0,120 Ci (1 g = 1 Ci).
- Les périodes des radionucléides vont de quelque millièmes de seconde ( $10^{-6}$  s) à 10 milliards d'années ( $10^{10}$  ans). Cela conduit à des situations très contrastées.



## Jusqu'ou vont les rayonnements des sources radioactives ?

- Les particules alpha sont émises avec des **vitesse**s considérables de l'ordre de **150 000 km/s**. Les atomes fils produits dans les désintégrations reculent avec une vitesse de l'ordre de **3 000 km/s**. L'énergie nucléaire des désintégrations devient de l'énergie cinétique.
- Les **vitesse**s des particules bêta sont variables mais peuvent être proche de **celle de la lumière**. Elles n'emportent qu'une partie de l'énergie des désintégrations.
- Les rayonnements gamma ont la vitesse de la lumière.
- Les rayonnements alpha et bêta perdent leurs énergies dans la matière en provoquant **bouleversements considérables** et ont, pour les plus énergiques, des « parcours »
  - dans l'air de quelques centimètres (alpha) au mètre (bêta),
  - mais beaucoup moins dans les milieux denses, quelques millimètres dans l'eau (alpha) à quelques centaines de millimètres (bêta).



- Les rayonnements gamma n'ont pas de parcours à proprement parler, leur intensité est divisée par 2 par quelques mètres d'air ou quelques dizaines de centimètres d'eau. Ils sont en général quasiment atténués après une centaine de mètres d'air et un mètre d'eau (ou moins).
- **Ce n'est pas l'activité qui compte mais les rayonnements qui atteignent l'homme.**



## Radioactivité de l'uranium et des minerais

- U238 et U235 génèrent par désintégrations successives **deux familles** de radionucléides dont **tous les membres** sont identifiés.
- Cela a demandé plus de **40 années** de recherches après la découverte de la radioactivité naturelle (Becquerel 1896). En fait Becquerel n'a pas mesuré la radioactivité de l'uranium mais celles de ses descendants. Deux radionucléides ont une importance particulière Ra226 et Rn222.
- Dans une famille radioactive on **peut calculer les activités et les quantités de chaque membre** en fonction du **temps** compté à partir du moment où le père commence à se désintégrer.
- On dit que la famille est à l'équilibre lorsque **l'activité de chaque membre est égale à celle du radionucléide qui a la plus longue période.**

$$(\lambda N) \text{ père} = (\lambda N) \text{ 1}^{\text{er}} \text{ fils} = (\lambda N) \text{ 2}^{\text{eme}} \text{ fils} \dots \text{ et ainsi de suite}$$

- Cet équilibre est atteint à des temps variables dépendants des périodes des radionucléides.



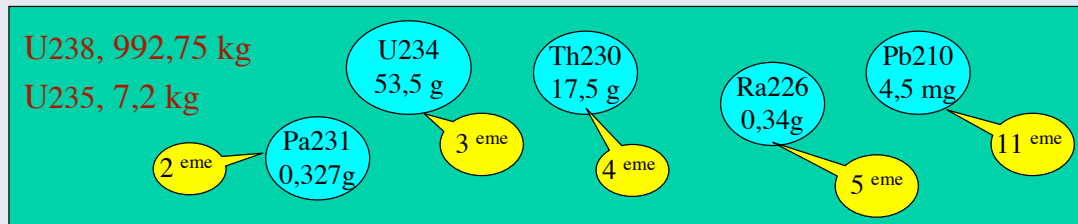
- Pour U238 (T = 4,5 milliards d'années) il faut des centaines de milliers d'années.
- Pour U235 (T = 0,71 milliard d'années) il faut des dizaines de milliers d'années.
- **Aucun lot d'uranium préparé par l'homme n'a encore créé sa propre famille.**
- C'est seulement dans les minerais **d'uranium inaltérés** que l'on peut mesurer l'équilibre entre chaque membre des familles de U238 et U235.
- A chaque quantité d'uranium sont associées des quantités de radionucléides inversement proportionnelles à leurs périodes.

$$\begin{aligned} (N/T) \text{ père} &= (N/T) \text{ 1}^{\text{er}} \text{ fils} = (N/T) \text{ 2}^{\text{eme}} \text{ fils} = \dots \\ (\text{Quantité}/T) \text{ père} &= (\text{Quantité}/T) \text{ 1}^{\text{er}} \text{ fils} = \dots \end{aligned}$$

- Si la quantité de U234 est insignifiante vis à vis de celle de U238 il n'en n'est pas de même de son activité qui est égale.



- Les quantités des radionucléides supérieures au milligramme, à l'équilibre, dans une tonne d'uranium :



- L'activité alpha de 1 g :
  - de U238 (théorique) = 12 333 Bq.
  - de Unat pur = 25 426 Bq, essentiellement partagée entre U238 et U234.
  - de Unat quelques mois après sa préparation = 51 000 Bq (U238 alpha, U234 alpha, Th230 bêta, Pa231 bêta).
- L'activité théorique associée à 1g d'uranium contenu dans un minerai = 178 000 Bq (tous les radionucléides en filiation émetteurs alpha ou bêta).
- En réalité dans un minerai il peut y avoir des déséquilibres. Seules des mesures précises permettent de connaître la composition exacte d'un minerai (minéraux d'uranium et autres).

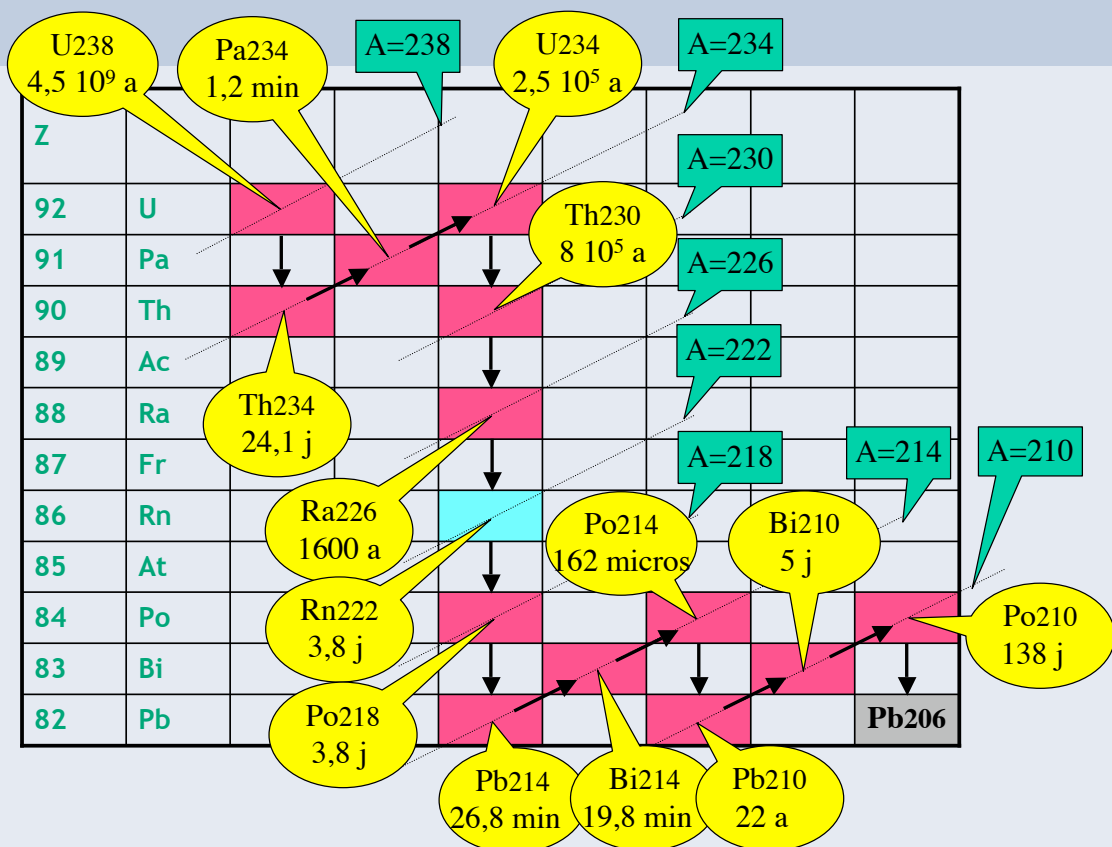


## Le radon est un radioélément important

- Dans un volume donné le radon donne un dépôt actif à vie courte (Po218, Pb214, Bi214 et Po214) qui disparaît en quelques heures si on le sépare du Rn et un dépôt actif à vie longue (Pb210, Bi210 et Po210) qui perdure au moins pendant 200 ans.
- Pour les activités habituelles de Rn dans l'air (<10 Bq/m<sup>3</sup> soit 5 atomes/cm<sup>3</sup>) les atomes de Po218, Pb214, Pb210, Bi214 et Po214 n'ont pas de comportement défini. Ils se « sorbent » sur les aérosols.

Rn... dépôt actif à vie courte...	Pb210... dépôt actif à vie longue...	Pb206
3,8 jours	22 ans	stable
qq 10 Bq/m <sup>3</sup> = qq 5 atomes/cm <sup>3</sup>		
qq atomes de	par cm <sup>3</sup>	
	Po218	Bi210
	Pb214	Po210
	Po214	
	Pb210 (s'accumule)	





## Uranium dans la nature et dans le Limousin

- Dans la nature l'uranium est présent sous la forme de nombreux minéraux ou d'espèces dissoutes dans l'eau a des **teneurs très variables** : quelques g/t (ou mg/kg) en moyenne dans les roches et quelques mg/m<sup>3</sup> (microgramme/L) en moyenne dans les eaux superficielles et profondes. Certaines eaux minérales en contiennent 50 mg/m<sup>3</sup>.
- Un minerai d'uranium est exploitable à partir d'une teneur de 100 g/t. Dans le Limousin on a exploité des minerais de **300 g/t (0,03%) à 10 kg/t (1%)**. Il existe au Canada des filons très riches jusqu'à 100 kg/t (10 %) **et plus**.
- Les granites du Limousin encaissant les minerais contiennent de 10 à 100 g/t (stériles francs) et jusqu'à 300 g/t (stériles de sélectivité).
- Les eaux captées près des sites miniers du limousin et qui sont, après traitement, rejetées à l'environnement contiennent environ 80 mg /m<sup>3</sup> (**80 microgrammes/L**) de Unat. La limite réglementaire maximale de rejet est de l'ordre de 1,8 mg/L.



- Dans une solution contenant **1 microgramme/L** de Unat la concentration de l'élément est  $C_U = 4,2 \cdot 10^{-9} \text{ M}$ . Son activité dépend de l'âge de l'uranium contenu (temps écoulé depuis qu'il était pur).
- La concentration limite de l'eau potable en Unat est de 15 microgrammes/L,  $C_U = 6,3 \cdot 10^{-8} \text{ M}$  (à comparer avec la limite de 50 mg/L en arsenic,  $C_{As} = 6 \cdot 10^{-4} \text{ M}$ ).
- La lixiviation des minéraux/minerais d'uranium conduit à des solutions dont les compositions sont difficiles de prévoir en raison des différences de composition des minéraux d'uranium et des minerais et des propriétés chimiques des radionucléides en filiation, représentant 11 éléments chimiques.
- Il en est de même s'il s'agit de résidus miniers contenant des minéraux pour partie différents de ceux des minerais d'uranium.
- Ces propriétés sont sous la dépendance de constantes thermodynamiques et cinétiques de nombreuses réactions chimiques et des paramètres (pH, Eh, concentration en complexants) qui définissent localement la solution. Beaucoup de ces constantes et paramètres sont inconnus.



- Le comportement des radionucléides en concentrations très, très faibles (mais ayant des activités égales aux autres radionucléides) **est souvent imprévisible.**
- Une fois en solution les éléments restent à l'état dissous ou se « sorbent » sur **les colloïdes ou particules** en suspension. La sorption est un phénomène très complexe. Il dépend aussi de constantes thermodynamiques et cinétiques de nombreuses réactions chimiques et de la composition de la solution.
- **Les solutions présentent ainsi une fraction soluble et insoluble.**
- L'activité d'une eau ayant percolé sur les minéraux d'uranium ne peut pas être simplement calculée à partir de sa seule teneur en uranium.
- Les mesures expérimentales courantes consistent à mesurer les concentrations de U238, de Ra226 et de Pb210 (voire de Po210) soit en Bq/L soit en g/L soit en moles/L.