



HAL
open science

Quantification d'uranium 235 dans des chambres à fission miniatures par dilution isotopique à l'aide d'un icp-ms a multi-collection

N. Arnal, O. Vigneau, C. Winkelmann, S. Breaud, C. Destouches

► **To cite this version:**

N. Arnal, O. Vigneau, C. Winkelmann, S. Breaud, C. Destouches. Quantification d'uranium 235 dans des chambres à fission miniatures par dilution isotopique à l'aide d'un icp-ms a multi-collection. SPECTR'ATOM 2016, May 2016, Pau, France. hal-02441953

HAL Id: hal-02441953

<https://cea.hal.science/hal-02441953v1>

Submitted on 16 Jan 2020

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Quantification d'uranium 235 dans des chambres à fission miniatures par dilution isotopique à l'aide d'un ICP-MS à multi-collection

Nadège Arnal¹, Olivier Vigneau¹, Christophe Winkelmann¹, Stéphane Breaud², Christophe Destouches²
CEA CADARACHE, ¹DEN/DEC/SA3C/LARC, ²DEN/DER/SPEX/LCDI, 13108 Saint-Paul-lez-Durance, FRANCE

Introduction

La mesure de flux neutroniques au cœur des réacteurs nucléaires utilise des chambres à fission miniatures. Le détecteur est une chambre d'ionisation remplie d'un gaz ionisable dans laquelle est insérée une électrode revêtue d'un dépôt d'uranium 235. La détermination de la quantité de matière fissile déposée initialement sur l'électrode et son incertitude associée sont des paramètres très importants pour la mesure du flux neutronique.

La dilution isotopique associée à la mesure par un ICP-MS à multi-collection (ICP/MS MC) est la méthode préconisée pour effectuer une quantification juste et précise de l'uranium 235 contenu dans un échantillon.

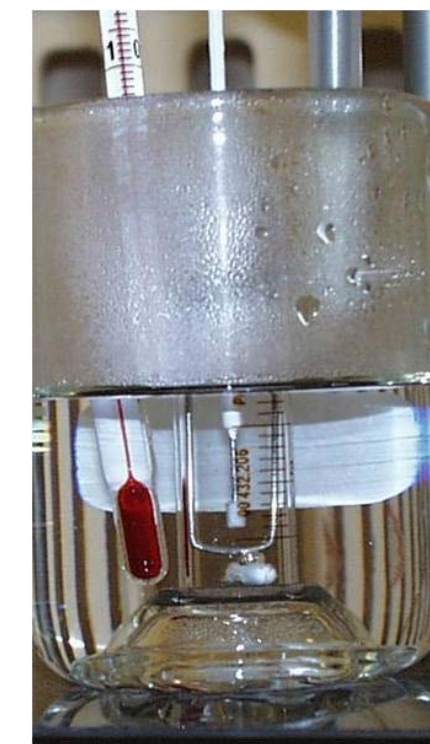
Ainsi, au travers d'un bilan matière sur les solutions d'électro-déposition utilisées pour préparer les électrodes de chambre à fission, la quantité d'uranium 235 déposée est obtenue avec une très faible incertitude.

Les incertitudes sur les quantités d'²³⁵U contenues dans les solutions avant et après électrodépôt sont inférieures à 1% pour des teneurs allant d'une centaine de µg à quelques dizaines de ng.

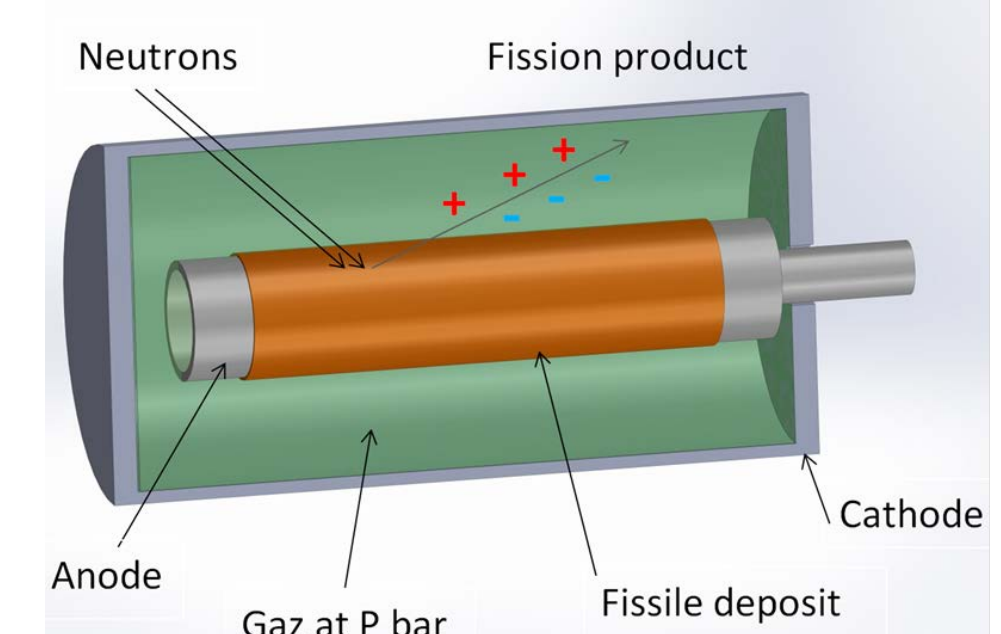
Chambres à fission miniature

- Détection de neutrons au sein d'un cœur de réacteur nucléaire (« in-core ») ou à l'extérieur de celui-ci (« ex-core »)
- Dépôt d'uranium ou d'un actinide fissile
- Dépôt d'isotope « pur » (²³⁵U, ²³⁹Pu, ...)
- Préparation par électrodéposition par voie aqueuse
- Quantité de matière déposée = donnée importante pour déterminer le flux neutronique

Quantité de ²³⁵U déposée ?
Bilan avant et après électrodéposition



Chambre à fission miniature développée par DEN/DER/SPEX et Photonis



ICP/MS MC



ICP/MS MC Neptune

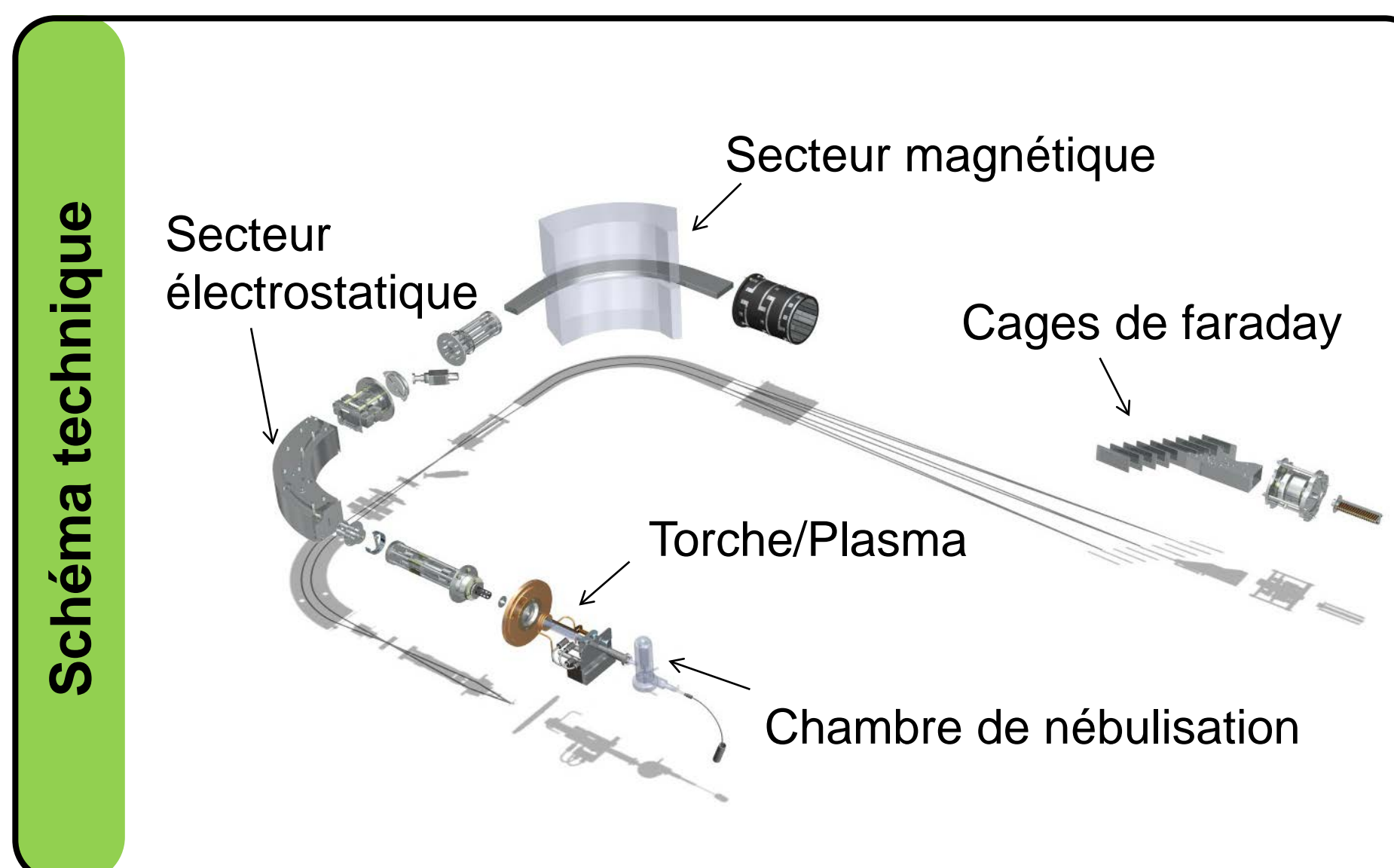


Schéma technique

Caractéristiques

- Multi-collection : 9 cages de faraday combinées à 9 amplificateurs de résistance 10¹⁰ à 10¹² Ω
- Deux systèmes de focalisation des ions : secteur électrostatique + secteur magnétique
- Pas d'effet des fluctuations du signal sur les ratios : écart-type relatif < 0,1%

Dilution isotopique

Principe

- 1) Détermination du ratio (²³⁸U/²³⁵U) de l'échantillon inconnu : R_E
- 2) Mélange de quantités parfaitement connues de l'échantillon et du traceur (matériau de référence certifié en isotopie et en concentration), pour atteindre idéalement un ratio (²³⁸U/²³⁵U) du mélange proche de 1
- 3) Détermination du ratio (²³⁸U/²³⁵U) du mélange : R_M

Les compositions isotopiques sont déterminées par la méthode dite de « sample standard bracketing » : encadrement de l'échantillon avec un étalon d'uranium isotopiquement certifié et possédant une isotopie et des teneurs en U similaires

Quantités de ²³⁵U et ²³⁸U dans l'échantillon, le traceur et le mélange

$$R_E = \frac{n_E^{238U}}{n_E^{235U}}$$

$$R_T = \frac{n_T^{238U}}{n_T^{235U}}$$

$$R_M = \frac{n_M^{238U}}{n_M^{235U}} = \frac{n_E^{238U} + n_T^{238U}}{n_E^{235U} + n_T^{235U}}$$

$$C_E^{235U} = C_T^{238U} \times \frac{m_T}{m_E} \times \frac{1}{R_T} \times \frac{R_T - R_M}{R_M - R_E}$$

Application à la détermination de la teneur en ²³⁵U

- n_{E,T,M}^I nombre d'atomes d'isotope I (²³⁵U ou ²³⁸U) dans l'échantillon (E), le traceur (T) ou le mélange (M)
- C_T^{238U} et R_T donnés par le certificat d'analyse du traceur
- m_T et m_E obtenues par les pesées lors du mélange
- R_E déterminé par la mesure de la composition isotopique de l'échantillon
- R_M déterminé par la mesure de la composition isotopique du mélange

Validation de la méthode

- Pesée de 0,5861 g de IRMM-050 correspond à 586,07 ng théorique de ²³⁵U
- Traitement chimique
- Mélange
- Mesures par ICP/MS MC

Masse de ²³⁵U dans échantillon initial (g)

● Introduite théoriquement
■ Mesurée

Δ = 0,4%

Incertitudes élargies à k=2

Conclusion

Le spectromètre de masse à couplage plasma induit équipé d'un système de multicollection est l'instrument approprié pour mesurer des rapports isotopiques précis (écarts-types relatifs sur les ratios inférieur à 0,1%).

Combiné avec la méthode de dilution isotopique, l'ICP-MS MC permet de mesurer des quantités précises (incertitudes inférieures à 1%) d'un isotope contenu dans un échantillon inconnu.

Cette méthode analytique ne nécessite pas de calibration externe. Des matériaux de référence certifiés en isotopie et en concentration ainsi qu'une balance de précision sont seulement exigés.