



**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-02441953>**

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 Arnal<sup>1</sup>, Olivier Vigneau<sup>1</sup>, Christophe Winkelmann<sup>1</sup>, Stéphane Breaud<sup>2</sup>, Christophe Destouches<sup>2</sup>  
CEA CADARACHE, <sup>1</sup>DEN/DEC/SA3C/LARC, <sup>2</sup>DEN/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'<sup>235</sup>U 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.

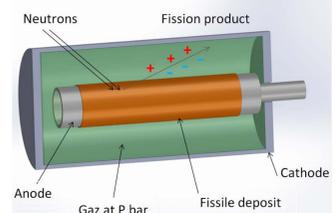
## Chambres à fission miniature

- 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 » (<sup>235</sup>U, <sup>239</sup>Pu, ...)
- Préparation par électrodéposition par voie aqueuse
- Quantité de matière déposée = donnée importante pour déterminer le flux neutronique

Quantité de <sup>235</sup>U déposée ?  
Bilan avant et après électrodéposition



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



## ICP/MS MC



ICP/MS MC Neptune

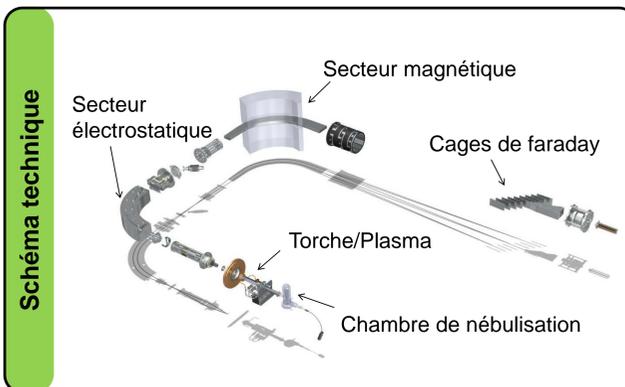


Schéma technique

**Caractéristiques**

- Multi-collection : 9 cages de faraday combinées à 9 amplificateurs de résistance 10<sup>10</sup> à 10<sup>12</sup> 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 (<sup>238</sup>U/<sup>235</sup>U) de l'échantillon inconnu : R<sub>E</sub>
- 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 (<sup>238</sup>U/<sup>235</sup>U) du mélange proche de 1
- 3) Détermination du ratio (<sup>238</sup>U/<sup>235</sup>U) du mélange : R<sub>M</sub>

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 <sup>235</sup>U et <sup>238</sup>U 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 <sup>235</sup>U**

- n<sub>E,T,M</sub><sup>I</sup> nombre d'atomes d'isotope I (<sup>235</sup>U ou <sup>238</sup>U) dans l'échantillon (E), le traceur (T) ou le mélange (M)
- C<sub>T</sub><sup>238U</sup> et R<sub>T</sub> donnés par le certificat d'analyse du traceur
- m<sub>T</sub> et m<sub>E</sub> obtenues par les pesées lors du mélange
- R<sub>E</sub> déterminé par la mesure de la composition isotopique de l'échantillon
- R<sub>M</sub> 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 <sup>235</sup>U
- Traitement chimique
- Mélange
- Mesures par ICP/MS MC

Masse de <sup>235</sup>U 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.