

ETUDE DU COUPLAGE ABLATION LASER – ICPMS POUR LA DETECTION DES ACTIVITES NUCLEAIRES : APPLICATION A L'ANALYSE DE MICROPARTICULES D'URANIUM.

Anne-Claire.HUMBERT

CEA

Anne-Claire.HUMBERT@cea.fr

Afin de contribuer à la lutte contre la criminalistique nucléaire et la prolifération nucléaire, le laboratoire d'expertise analytique de la direction des applications militaires du CEA (site de Bruyères-le-Châtel) développe des techniques et méthodes d'analyse qui permettent de caractériser la matière nucléaire afin d'en déterminer l'usage, l'origine et l'historique industriel. L'un des observables clé est la composition isotopique de l'uranium.

En effet, au cours du cycle industriel de l'uranium, sa composition isotopique et les teneurs en impuretés élémentaires varient. Ces paramètres peuvent donc nous renseigner sur la nature, l'usage, le positionnement dans le cycle nucléaire et l'origine de l'uranium. C'est pourquoi, nous mettons en œuvre des analyses isotopiques des actinides tels que l'uranium, le plutonium, le thorium, et élémentaires pour la quantification des teneurs en impuretés dans les matières nucléaires.

Les échantillons se présentent sous forme de poudres ou fragments macroscopiques de matière nucléaire, de particules micrométriques mélangées à de la poussière, ou sont dispersées au sein de matrices environnementales (biologique, sol). Les caractérisations sont effectuées à l'échelle globale ou particulière.

Les méthodes disponibles au laboratoire sont très performantes mais souvent chronophages et génératrices de nombreux déchets lorsqu'une dissolution et des étapes de purification chimique s'avèrent nécessaires. Lorsque l'échantillon est constitué d'uranium pondéral, cette méthodologie génère des effluents chimiques radioactifs et présente des risques de contaminations des instruments et d'expositions des personnels. De plus, la réalisation des opérations de dissolution en zone contrôlée augmente la durée des analyses.

C'est pourquoi, nous avons souhaité disposer d'une technique de mesure rapide, fournissant des informations élémentaires et isotopiques, à la fois à l'échelle « locale » (microscopique) et à une échelle plus macroscopique, adaptable à des échantillons de nature variée, avec une durée de préparation limitée, pouvant apporter une information au juste nécessaire ou

permettre le tri des échantillons pour une analyse ultérieure plus approfondie. Le couplage ablation laser - ICPMS (LA-ICPMS) pourrait être cette technique. En effet, quelle que soit la nature de la matière nucléaire, ce couplage peut être utilisé pour la détermination de l'ensemble des informations listées [figure 1](#).

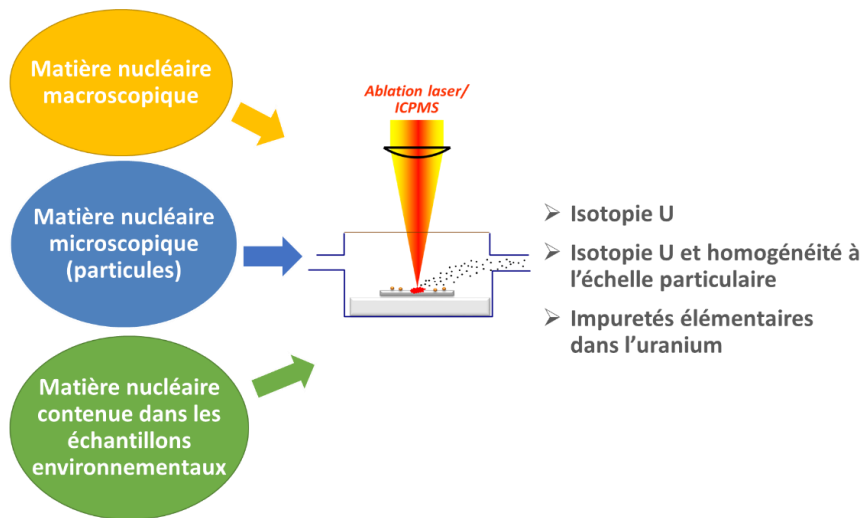


Figure 1: Résumé des différentes analyses réalisables avec le couplage LA-ICPMS en fonction de la dimension de la matière nucléaire et de son environnement.

Le principe de fonctionnement est le suivant. Le faisceau laser, de diamètre entre 10 et 200 μ m, est focalisé à la surface de l'échantillon. L'énergie transmise permet d'ablater des micro-fragments de ce dernier qui sont ensuite transportés par un gaz vecteur vers l'ICPMS. Ces particules sont atomisées et ionisées dans le plasma de l'ICPMS. Les performances du couplage dépendent de la fréquence, de l'énergie et de la longueur d'onde du faisceau laser ainsi que de l'ICPMS choisi pour la détection. Selon la nature des échantillons, une mise en forme est parfois nécessaire. Par exemple, les particules de tailles sub-micrométriques doivent être au préalable déposées sur un support plan et repérées. Les poudres doivent être mises en forme pour éviter leur dispersion au sein de la cellule du laser. Les rendements d'ablation et d'ionisation dépendent de la matrice de l'échantillon. Il est donc nécessaire de disposer d'étalons de matrice proche de celle de l'échantillon pour prendre en compte ce fractionnement et rendre des résultats justes.

Pour l'analyse isotopique directe, le laboratoire met en œuvre un dispositif d'ablation laser UV - nanoseconde couplé avec un ICPMS multi-collecteur (Thermo-Scientific "Neptune Plus"). Seuls quelques fragments micrométriques, prélevés à la surface des matériaux nucléaires, sont introduits dans la chambre d'ablation et analysés.

J'exposerai dans cette présentation la méthodologie utilisée et les performances obtenues à partir de microparticules d'uranium certifiées en composition isotopique. Je présenterai également les résultats obtenus dans le cadre d'un exercice international de criminalistique nucléaire organisé par l'ITWG (International Technical Working Group on Nuclear Forensics). L'ITWG est une organisation internationale qui a pour vocation de développer et promouvoir les méthodes d'analyse utiles pour lutter contre les trafics illégaux de matière nucléaire. Les performances de la mesure par couplage LA-ICPMS seront comparées à celles des autres méthodes mises en œuvre au laboratoire, telles que la mesure isotopique par ICPMS en voie liquide après dissolution d'une masse pondérable d'uranium et la mesure à l'échelle particulaire par spectrométrie de masse à ions secondaires (LG-SIMS). Nous verrons que les résultats obtenus par couplage LA-ICPMS sont en bon accord avec ceux obtenus par les techniques de référence.

Les principales limitations du couplage LA-ICPMS sont cependant d'une part un manque de sensibilité par rapport aux méthodes qui comportent une purification et concentration radiochimique de l'élément d'intérêt et d'autre part des incertitudes de mesure plus élevées

que celles des autres techniques du laboratoire.

En effet, les signaux produits par l'ablation de fragment de la taille micrométrique ont une durée de quelques secondes. La détermination d'un rapport isotopique à partir de signaux transitoires très bruités et générés par des détecteurs dont les délais de réponse sont variables est un défi à relever afin de faire progresser les performances de la technique.

La thématique de la présentation est axée sur l'analyse isotopique de particules micrométriques d'uranium. Cependant, d'autres applications potentielles du couplage ablation laser sont également à l'étude, notamment pour la quantification des impuretés dans les concentrés miniers d'uranium.