

Hatósági dörzsminták hasadóanyag-tartalmának biztosítéki célú elemzése gamma-, alfa-spektrometria és ICP-MS módszerekkel

Szalóki Imre, Gerényi Anita, Radócz Gábor, Szarvas Csongor, Fülöp Emese

Nukleáris Technikai Intézet, BME

Széles-Kovács Éva, Tóbi Csaba

EK Sugárbiztonsági Laboratórium

Projekt időszaka: 2020.06.10 – 2021.03.15

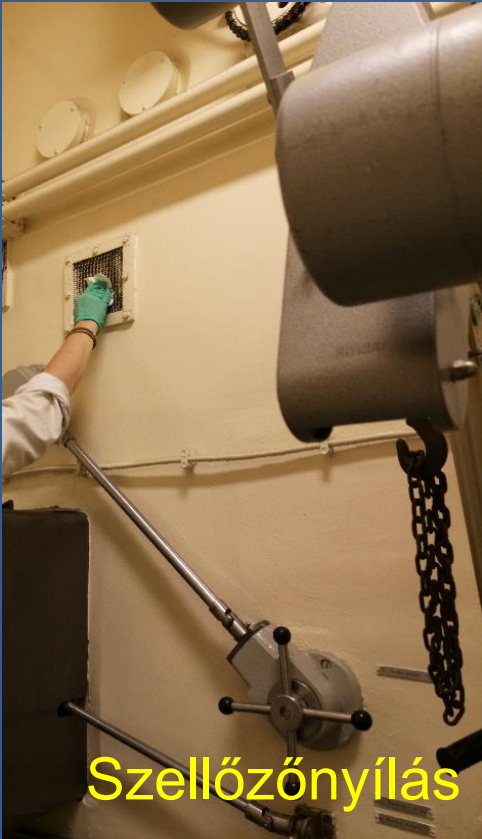


Mintavétel

Mintavétel időpontja: 2020.07.30
Energiatudományi Kutatóközpont
Kutatóreaktor forrókamra fülkesor

IAEA Safeguards szervezet
által végzett helyszíni
dörzsmintavétel és
hasadóanyag-tartalom
meghatározásának
ismétlése hazai hatáskörben

1. sz. forrókamra



Szellőzőnyílás



Padló

Ablak

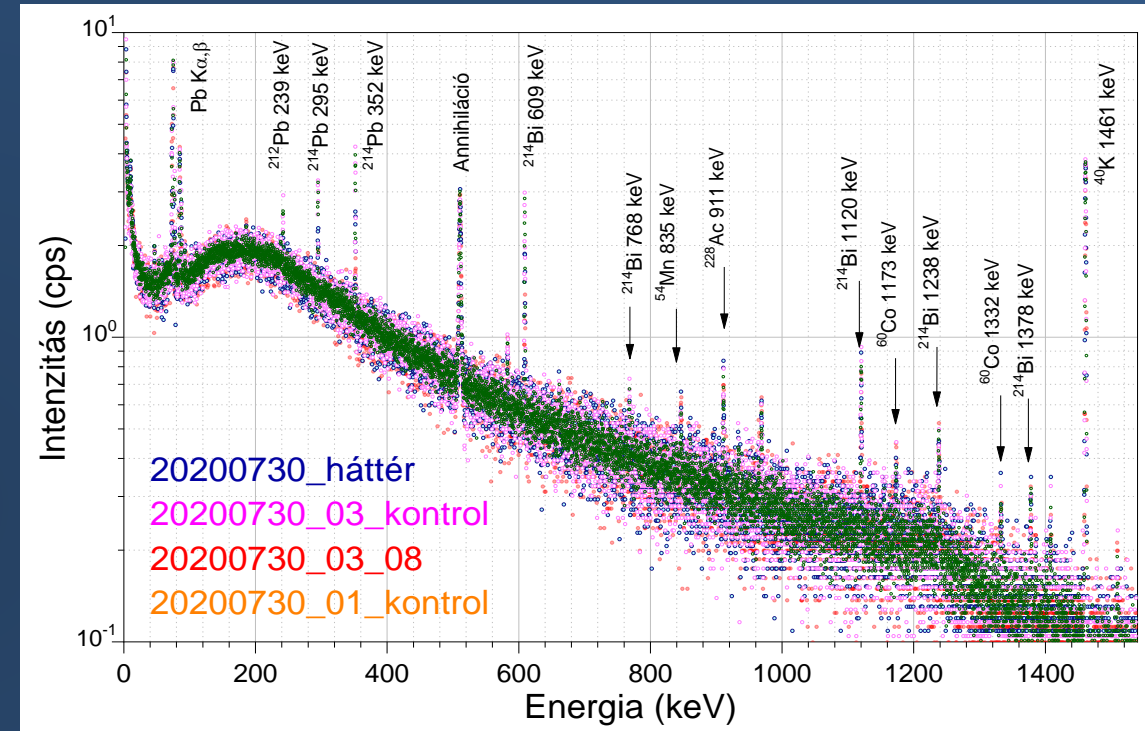
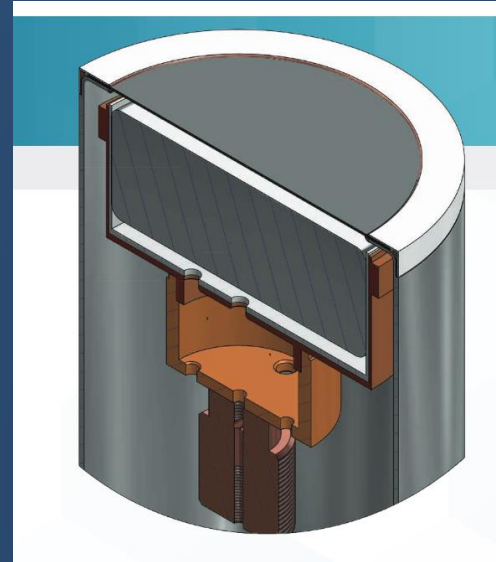


Manipulátor kar



Dörzsminták gamma-spektrometriai elemzése

Cél: a nagyobb gamma-aktivitással rendelkező izotópok felderítése



Canberra HPGe, planar detektor

Relatív detektálási hatások 37 %

Ablak 600µm szén, 5 keV < E

Aktivításkalibráció Monte-Carlo számítással (MCNP)

G. Radócz, A. Gerényi, Sz. Czifrus, I. Szalóki, *Annals of Nuclear Energy*, 130 (2019) 512–517

A 4784 dörzsminta gamma-spektrometriai eredménye

Izotóp	Energia (keV)	Mérési idő (s)	LD (mBq)	Aktivitás (mBq)
²⁴¹ Am	59,54	86991	17	< LD
⁵⁴ Mn	834,85		1	< LD
⁶⁰ Co	1173,23		30	< LD
	1332,49		41	< LD
²³⁵ U	185,71		19	< LD

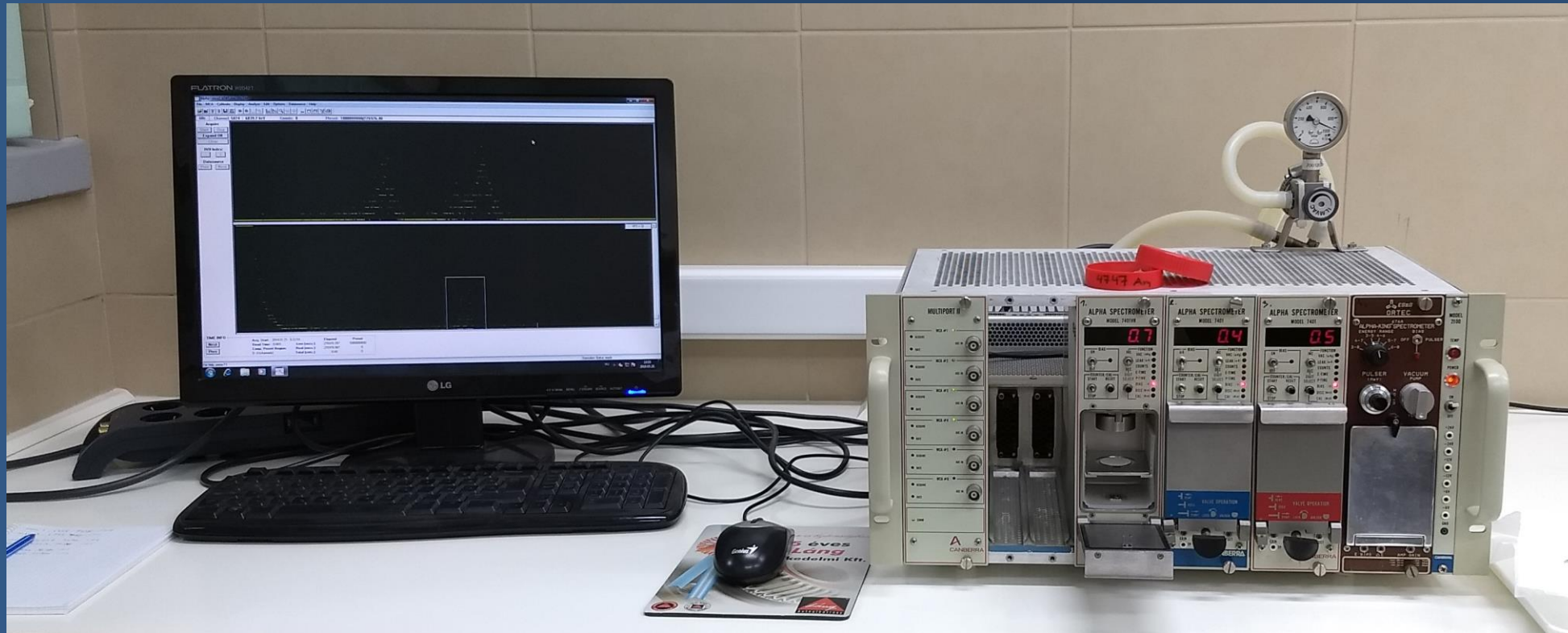
Mintakészítés, alfa-spektrometriai mérések

Nyomjelzők: ^{242}Pu (NIST) ^{233}U (New Brunswick Laboratory)

Minták feltárása, kémiai elválasztás: EK Sugárbiztonsági Laboratórium

Kémiai elválasztás kromatográfiával: U, Pu

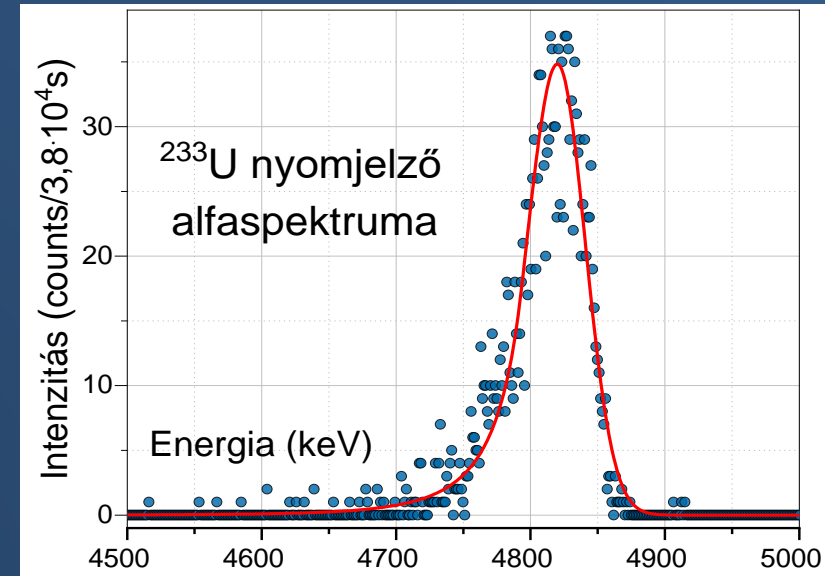
Alfa-minta készítése: BME NTI Radioanalitikai Laboratórium



Alfa-spektrometriai mérések

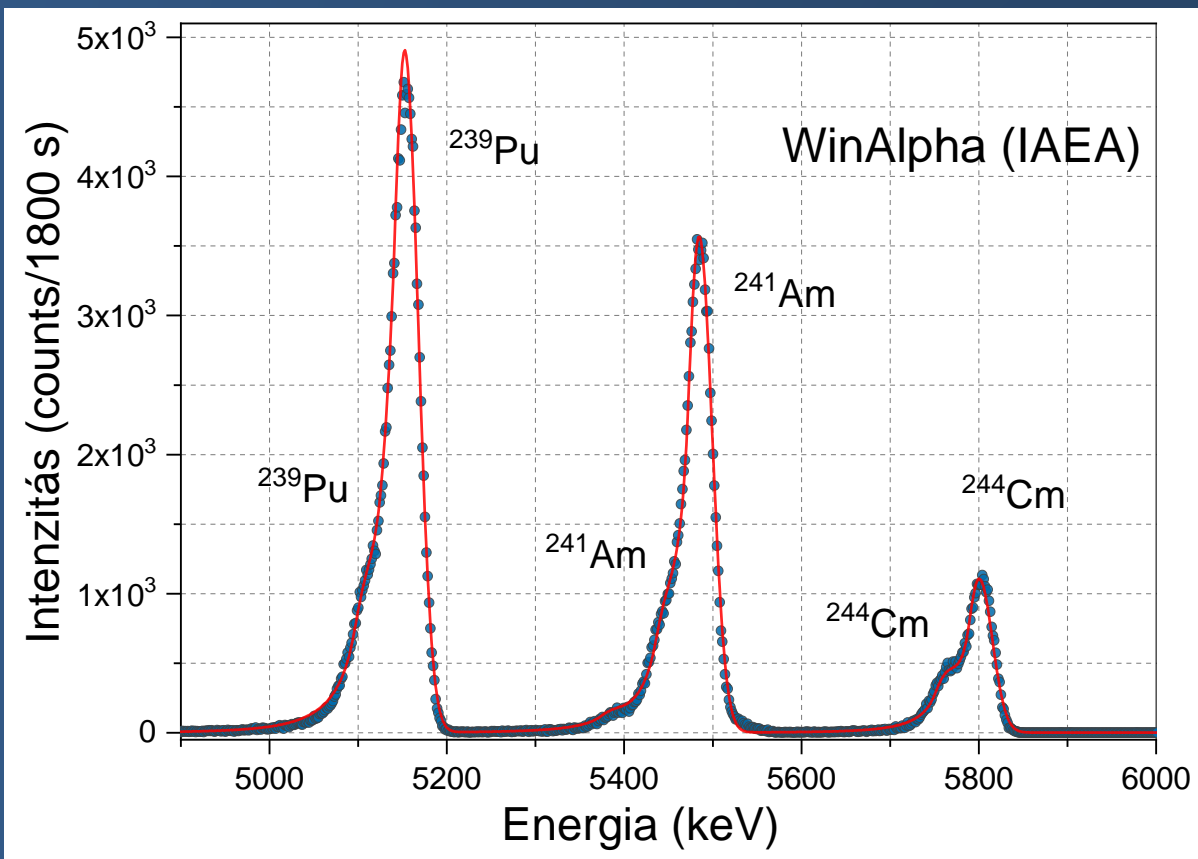
Kémiai kitermelés ^{233}U 46-65 % (10 %), ^{242}Pu 22-49 % (9 %)

Mérési idő $180 \cdot 10^3 - 610 \cdot 10^3$ s, Spektrumok kiértékelése: WinAlpha



Nyomjelzés

330 mBq/dörzsminta



U, Pu alfa-spektrometriai mérések eredményei		
Izotóp	LD (mBq)	Minta aktivitása (mBq)
^{233}U	0,24 – 0,89	110 - 114
^{232}U	0,37 – 1,28	< 3
^{234}U	0,27 – 0,99	22 - 38
^{235}U	0,55 – 1,83	< 7
^{238}U	0,33 – 0,89	< 4
^{242}Pu	0,49 – 0,88	< 13
$^{239}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu}$	0,70 – 1,11	< 10
^{238}Pu	0,31 – 0,53	< 5

ICP-MS mérések

Mért izotópok: ^{233}U , ^{234}U , ^{235}U , ^{238}U ,
 ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu , ^{242}Pu

Pu izotópok mennyisége az összes mintában a kimutatási határ alatti érték volt

Érzékenység ^{238}U

ICP-MS 1 ng/g \rightarrow $\approx 10^6$ cps

Alfa-spektrometria $\approx 10^{-4}$ cps

Természetes
összetételű urán

ICP-MS elemzéssel mért urántartalom izotóp-összetétele, teljes urántartalom ng és aktivitás mBq egységekben

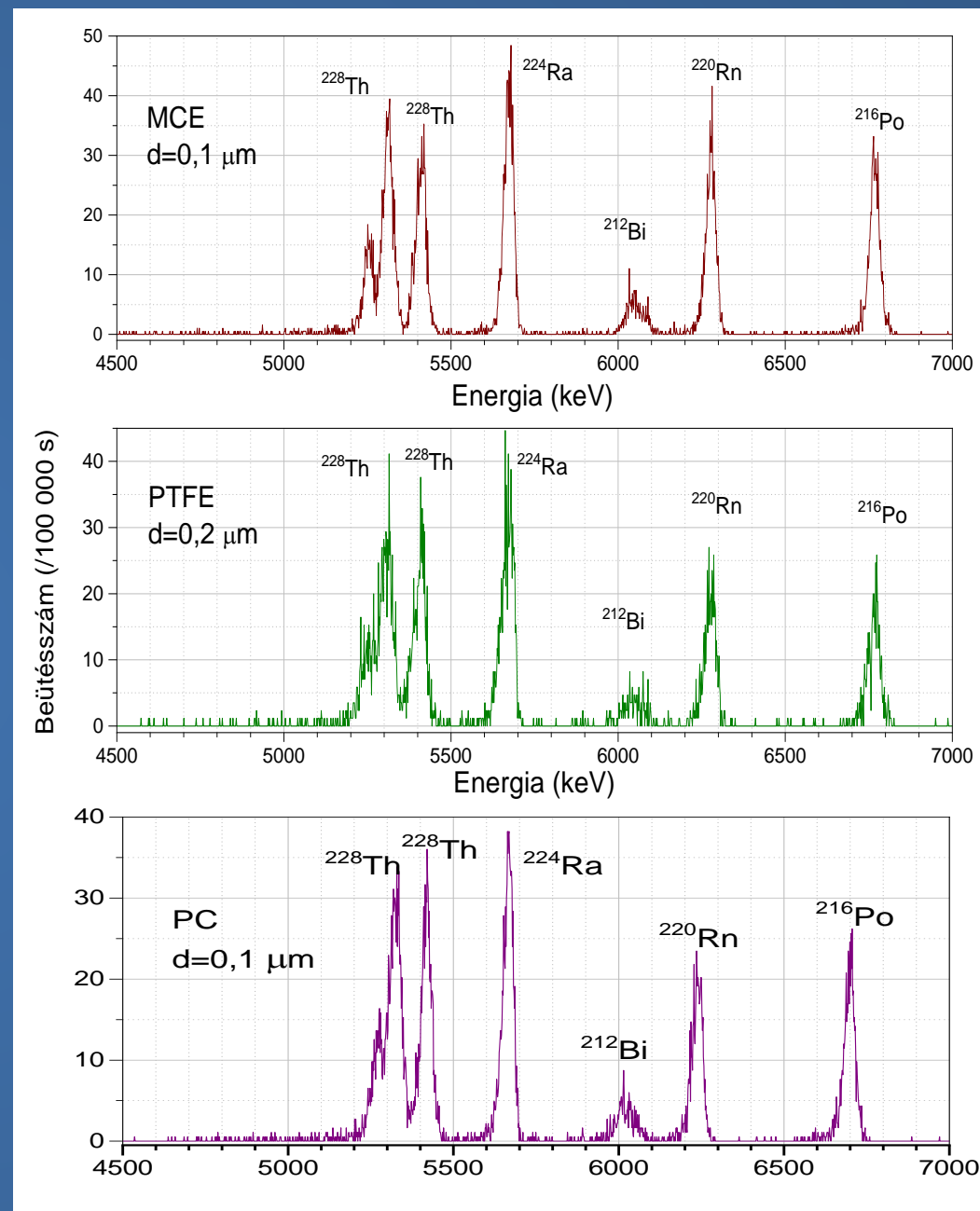
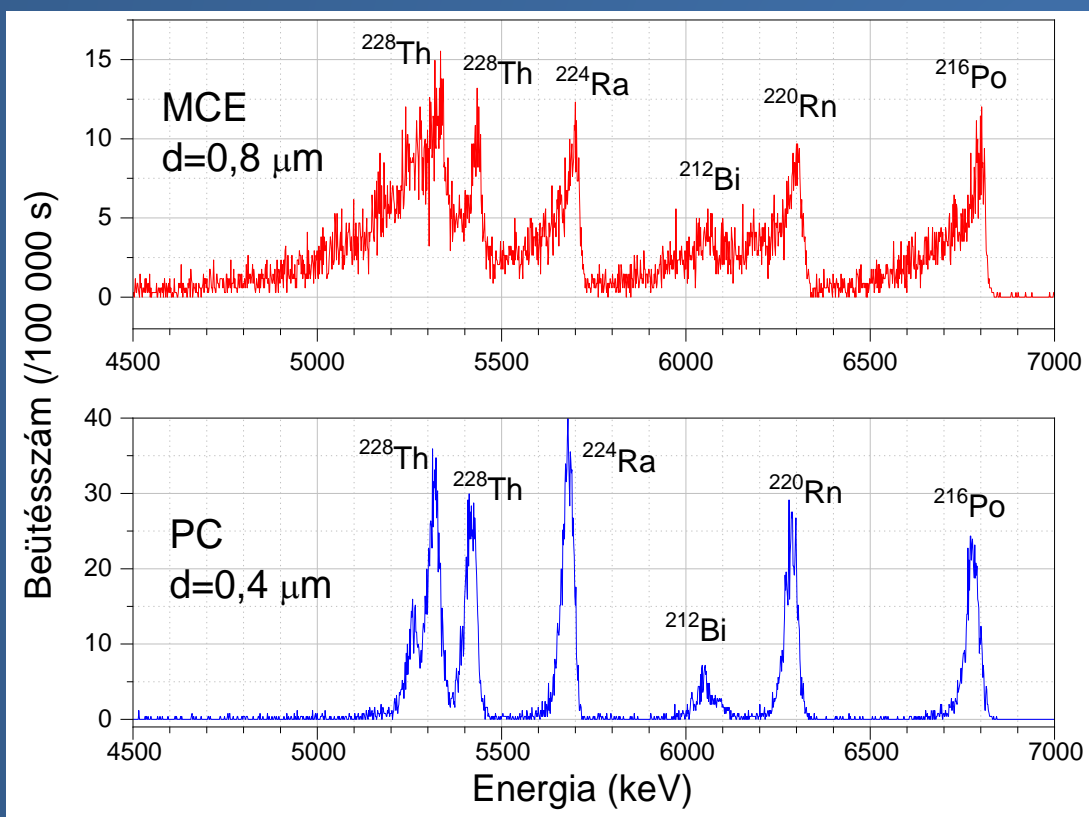
Minta	Relatív mennyiség (atom%)					
	^{234}U	SD	^{235}U	SD	^{238}U	SD
4782	$1,2 \cdot 10^{-2}$	$5,0 \cdot 10^{-4}$	$6,68 \cdot 10^{-1}$	$2,06 \cdot 10^{-2}$	99,31	$2,06 \cdot 10^{-2}$
	Urántartalom/dörzsminta			5,6 ng	0,3 ng	0,07 mBq
4783	$5,4 \cdot 10^{-2}$	$9,7 \cdot 10^{-4}$	$7,02 \cdot 10^{-1}$	$5,2 \cdot 10^{-4}$	99,29	$5,2 \cdot 10^{-4}$
	Urántartalom/dörzsminta			500 ng	48 ng	0,30 mBq
4784	$5,4 \cdot 10^{-3}$	$3,0 \cdot 10^{-4}$	$6,62 \cdot 10^{-1}$	$4,42 \cdot 10^{-2}$	99,33	$4,42 \cdot 10^{-2}$
	Urántartalom/dörzsminta			8,57 ng	0,67 ng	0,11 mBq
4785	$1,07 \cdot 10^{-2}$	$5,0 \cdot 10^{-4}$	$6,96 \cdot 10^{-1}$	$2,54 \cdot 10^{-2}$	99,29	$2,54 \cdot 10^{-2}$
	Urántartalom/dörzsminta			17,6 ng	1,20 ng	0,22 mBq

ICP-MS elemzéssel mért plutóniumtartalom izotóp-függő kimutatási határai

^{239}Pu		^{240}Pu		^{241}Pu	
LD (fg/g)	LD (mBq/g)	LD (fg/g)	LD (mBq/g)	LD (fg/g)	LD (mBq/g)
5,3	$1,22 \cdot 10^{-2}$	2,4	$2,02 \cdot 10^{-2}$	1,9	7,27

Szűrőkre lecsapatott ^{232}U minták alfaspektrumai

1. MCE 0,8 μm pórusátmérővel rendelkező membrán \Rightarrow erősen torzult spektrumalak \Rightarrow nem célszerű használni a Nd-lecsapatással végzett mintakészítési eljáráshoz.
2. Legnagyobb intenzitás és energiafelbontás MCE d=0,1
3. PC (0,4), PTFE (0,2), PC (0,1) nincs lényeges különbség



Köszönjük a figyelmet



Dörzsminta

Mikrohullámú feltárás
Nyomjelző ^{233}U , ^{242}Pu , ^{243}Am oldás 3 M HNO_3

Oxidációs állapot beállítása
Mohr-só, $\text{N}_2\text{H}_4 \cdot \text{H}_2\text{O}$, NaNO_2

Extrakciós kromatográfia TRU oszlopon

4 M HCl

Am-frakció

4 M HCl 0,1 M
aszorbinsav

Pu-frakció

0,2 M HF
4 M HCl

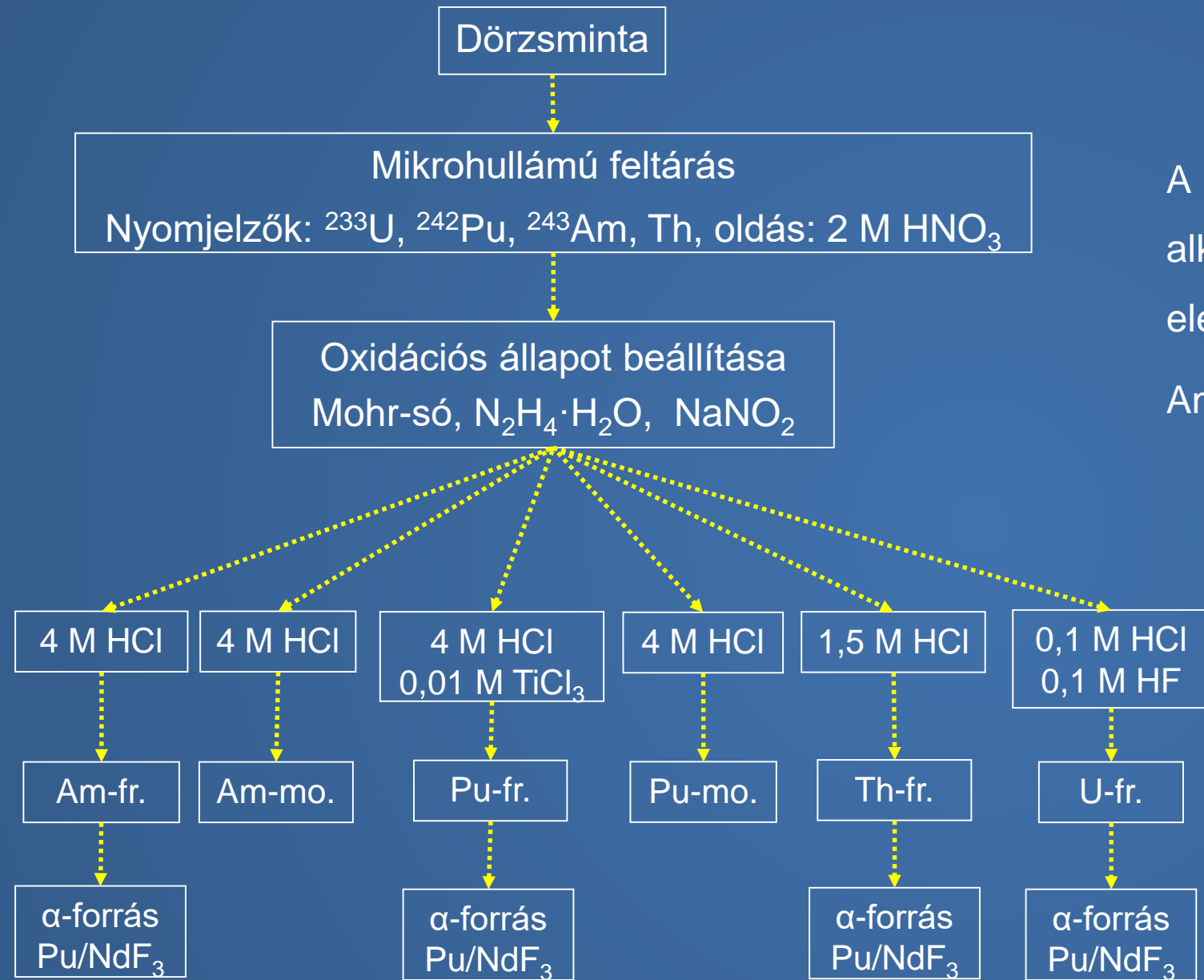
Th-frakció

0,1 M HCl
0,05 M oxálsav

U-frakció

EK Sugárbiztonsági Laboratóriumában alkalmazott kémiai elválasztási eljárás az Am, Pu, Th és U frakciók elválasztására

E. Szeles, Zs. Varga, Zs. Stefánka, Sample preparation method development for analysis of safeguards swipe samples by inductively coupled plasma mass spectrometry, *J. Anal. Atom. Spectrom.*, 25 (7):1014-1018, 2010).



A BME-NTI Radioanalitikai Laboratóriumában alkalmazott kémiai elválasztási eljárás egyes elemi lépéseit áttekintő folyamatábra az Am, Pu, Th és U frakciók elválasztására.

Mácsik Zsuzsanna, Dr. Vajda Nóra, Környezeti minták mintavételi és elemzési módszerének kidolgozása biztosítéki ellenőrzések céljából, *OAH Kutatási jelentés, NTI, (2007)*