



Sugárbiztonsági tevékenység a nukleáris törvényszéki analitikában és a nukleáris biztosítéki rendszerben

Széles Éva

*IKI KTT intézeti látogatás
2010. október 5-7., Budapest*



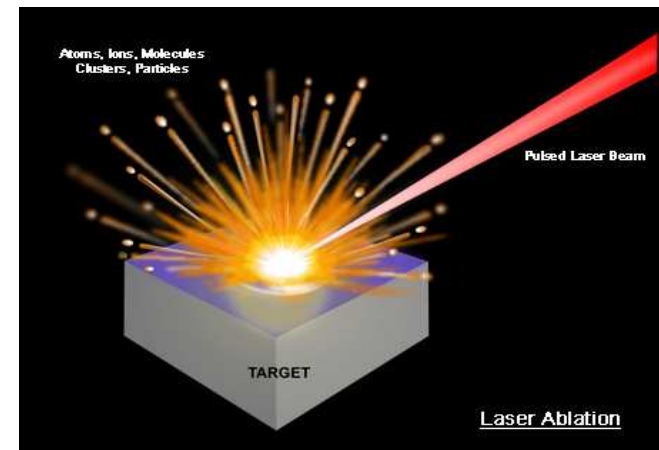
Feladatok

- Lefoglalt anyagok vizsgálata
 - **nukleáris törvényszéki analitika**
 - talált vagy lefoglalt, ismeretlen eredetű nukleáris anyagok **karakterizálása** és **azonosítása (eredetmeghatározás)**
 - **roncsolásos (DA)** és **roncsolásmentes (NDA)** analízis
 - **U** és **Pu** elemzés
 - pl. precíz **izotóparány** elemzés
 - **kormeghatározás**
- Nukleáris biztosítéki (**safeguards**) célú minták elemzése
 - Környezeti és **dörzsminták analízise**
 - **Egyedi részecskék analízise** lézerablációs ICP-MS technikával
 - Nukleáris biztosítéki célú **környezeti monitoring** nukleáris létesítmények leszerelését megelőzően és a leszerelés ideje alatt
 - **Sérült fűtőelemek** vizsgálata (HRGS)



Feladatok

- **Fűtőelemek** kiégettségének és **reprocesszálság**ának vizsgálata (**HRGS**)
- **Környezeti minták elemzése** - más szempontokból:
 - **Nyomnyi mennyiségű aktinidák** elemzése környezeti mintákban (talaj, üledék, víz, növény, stb.)
 - **Egyéb, nukleáris biztonsági szempontból** fontos elemek vizsgálata (**Am, Np, Cm**)
 - **Szilárd minták** közvetlen elemzése **LA-ICP-MS** technikával (pl. geológiai minták, uránércek, fém minták, stb.)





Alkalmazott műszerek

- Nagyfelbontású **induktív csatolású plazma** mágneses szektor **tömegspektrométer** (HR-ICP-SFMS)
- Nagyfelbontású **gamma-spektrométer** (HRGS)
- **Neutron koincidencia számláló** rendszer (NCC)



Minőségbiztosítás

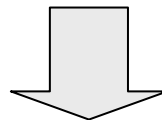
- ISO 9001:2000
- Az ICP-MS laboratórium ISO/IEC:17025 szerinti akkreditált státusszal rendelkezik (NAT-1-1630/2010)
- Nemzetközi körelemzésekben való részvétel:
 - ITWG – HEU (2001, 2010)
 - REIMEP, NUSIMEP, IAEA-PT
 - CEA-CETAMA
- Nemzetközi összemérések az ITU-val (Karlsruhe)





Nagyfelbontású indukzív csatolású plazma mágneses szektor tömegspektrométer (ICP-SFMS)

- Típus: **ELEMENT2** (single collector)
- 100 000 osztályú **tisztatér**ben installálva
- Különböző **mintabeviteli rendszerek**:
 - **Stabil** mintabevivő rendszer
 - **Lézerablációs** rendszer
 - **Deszolvatáló** egység
- Mintaelőkészítő laboratórium (10 000 osztály):
 - **100 osztályú lamináris fülkével**



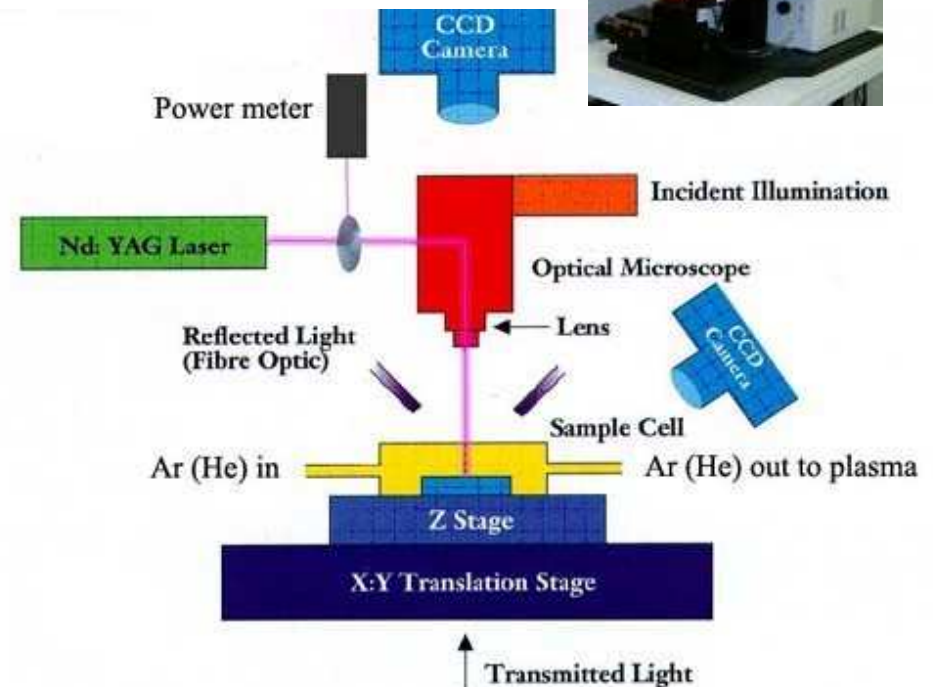
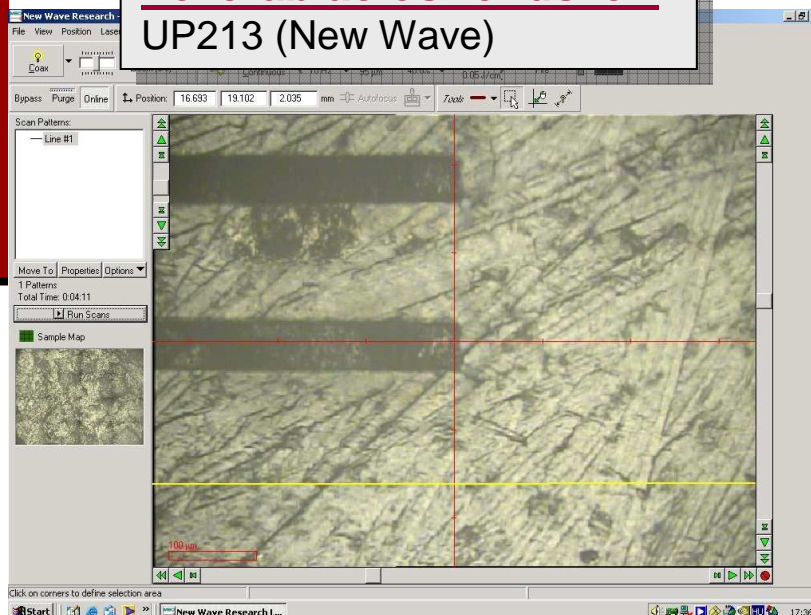
Ultra-nyomnyi elemanalízis



Lézerablációs (LA) egység

- **Kvázi roncsolásmentes (NDA) technika**
- Nem igényel kémiai mintaelőkészítést
- Gyors elemzések (tipikusan <1 óra/minta)

**Lézerablációs rendszer:
UP213 (New Wave)**





Nagyfelbontású gamma- spektrométer (HRGS)

- **Roncsolásmentes technika (NDA)**
- Nem szükséges mintaelőkészítés
- **Alacsony háttérű** gamma-spektrométer
 - 20 cm falvastagságú vaskamra
 - 150 cm³ koaxiális HPGe detektor
 - 34% relatív hatásfok
 - Mintatartó nitrogénnel öblítve
 - Tervezett fejlesztés:
 - Jobb hatásfokú detektor
 - Földalatti elhelyezés
- Kis energiájú planáris HPGe detektorok
 - U és Pu izotóp-elemzéshez

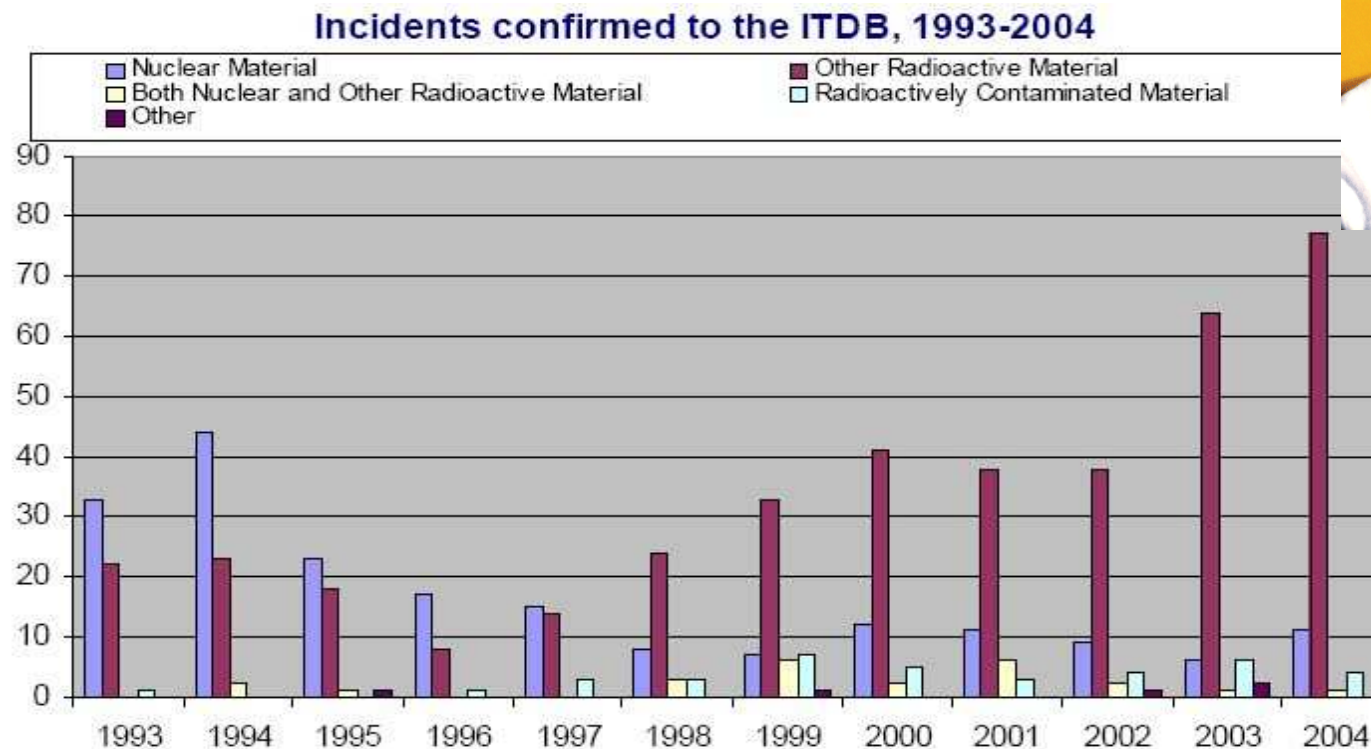




Nukleáris anyagok csempészete

Nukleáris anyagok illegális forgalma világszerte

- Urán, plutónium csempészete, fekete-kereskedelme



- Magyarországon: 90-es évek kezdete óta ~10 felderített eset



Nukleáris törvényszéki analitika Magyarországon

Nukleáris anyagok csempészete Magyarországon: a '90-es évek eleje óta

- Kezdetekben: csak planáris HPGe technikát használtak
- Ma:
 - Alacsony háttérű HPGe
 - SEM
 - ICP-MS
 - NCC
- IKI-ben eddig előfordult:
 - Porok (U-tartalmúak)
 - Pelleték (U-oxid)
 - Fém urán
 - Fűtőelem rudak (U-oxid)
 - Egyéb fűtőelem részek
 - Árnyékolt források (pl. Pu)





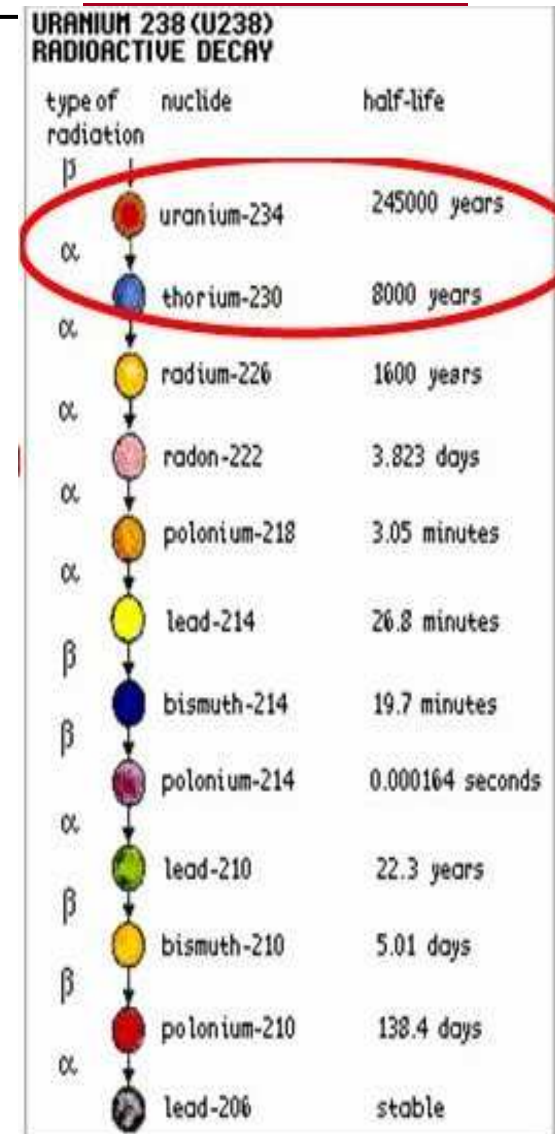
■ Nukleáris törvényszéki módszerek



Nukleáris anyagok gyártási idejének meghatározása I.

- ❑ Kormeghatározás **roncsolásos** technikával (**ICP-MS**)
 - Urán-oxid minták feltárása (savas roncsolás)
 - **^{234}U -izotóp** mennyiségének meghatározása izotóphígításos ICP-MS technikával
 - **^{230}Th -izotóp** mennyiségének meghatározása izotóphígításos ICP-MS technikával extrakciós kromatográfiás elválasztást követően
 - ^{229}Th nyomjelző előállítása: ^{233}U -oldatból („milking”)

- ❑ Kormeghatározás **kvázi roncsolásmentes** módszerrel (**LA-ICP-MS**)





Nukleáris anyagok gyártási idejének meghatározása II.

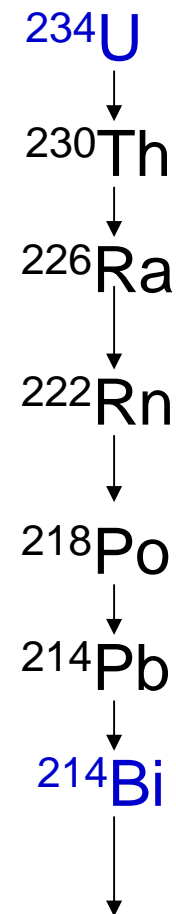
Kormeghatározás **roncsolásmentes** technikával (**HRGS**)

■ Kétféle mérés:

- $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ planáris HPGe detektorral
- $^{214}\text{Bi}/^{238}\text{U}$ koaxiális HPGe detektorral alacsony háttérű vaskamrában

■ Aktivitás-arányok meghatározása relatív (“intrinsic”) hatásfokú kalibrációval

- Független a mérési geometriától





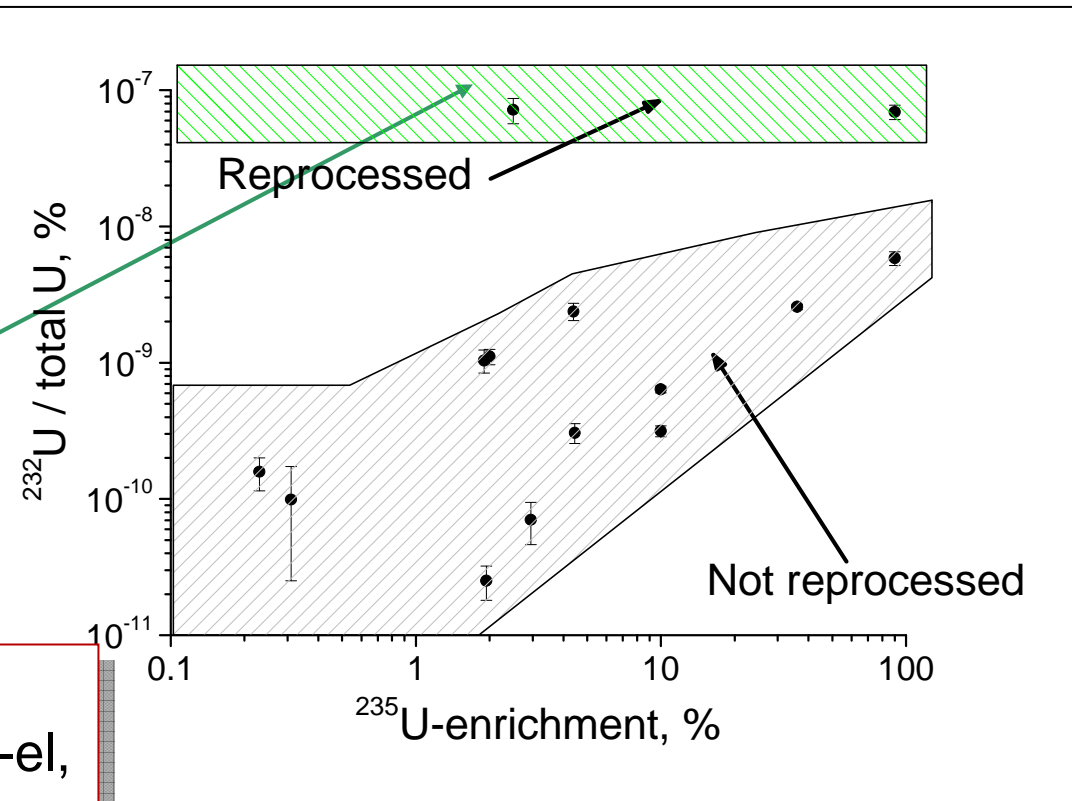
Reprocesszált urán kimutatása

→ ^{232}U analízis HRGS technikával

■ ^{232}U tartalom utal a reprocesszált urán jelenlétére



^{232}U tartalom meghatározása HRGS-el, a ^{235}U dúsítás függvényében ábrázolva

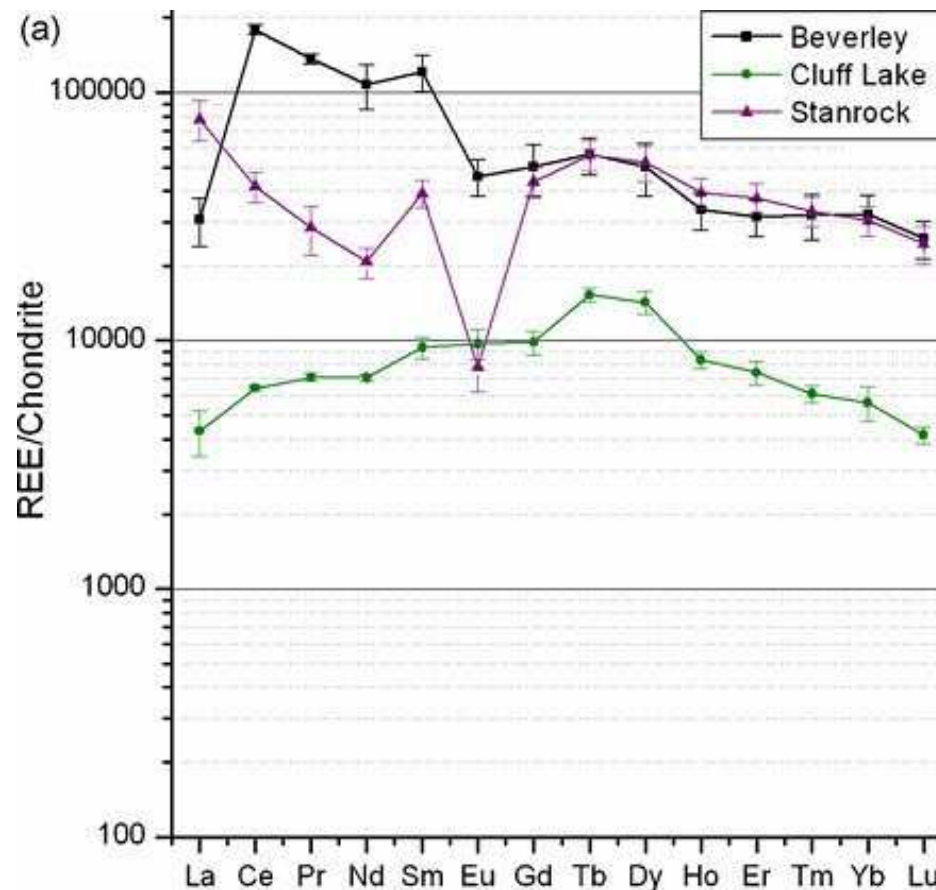


→ ^{236}U és Pu izotópok elemzése ICP-MS technikával



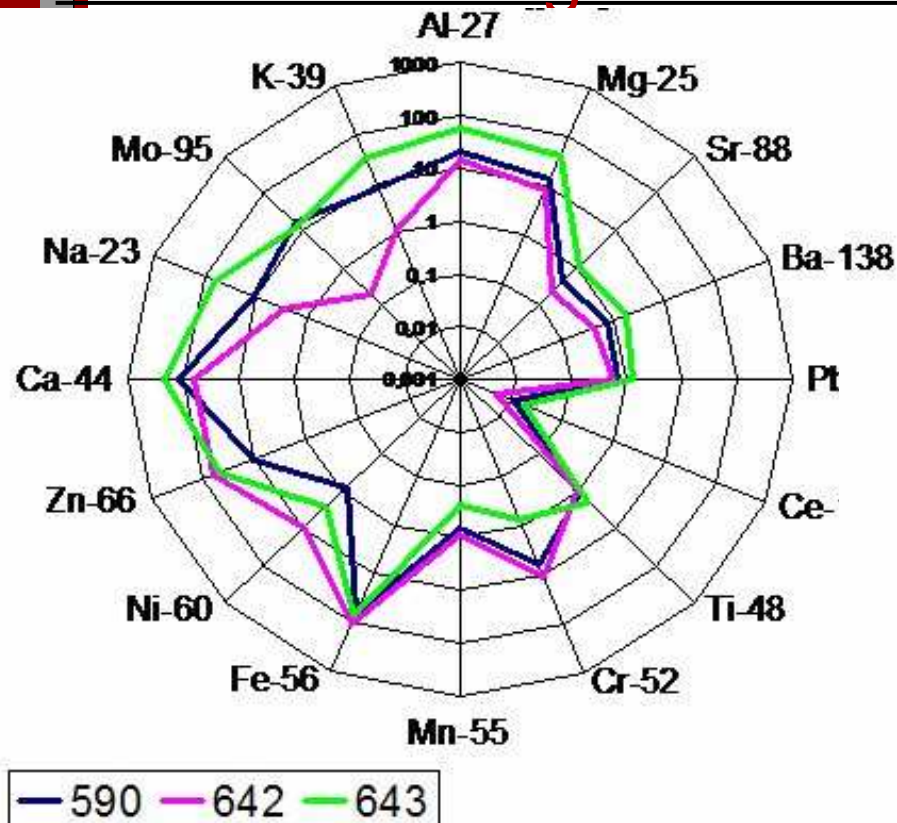
Ritkaföldfémek meghatározása urán-tartalmú anyagokban ICP-MS technikával - **Eredetmeghatározás**

Példa: Három, különböző eredetű urán koncentrátum ritkaföldfém profiljának összehasonlítása. Mintaelőkészítés: savas feltárás + urán-tartalom elválasztása extrakciós kromatográfiával



Nyomelemek meghatározása urán-tartalmú vegyületekben ICP-MS technikával

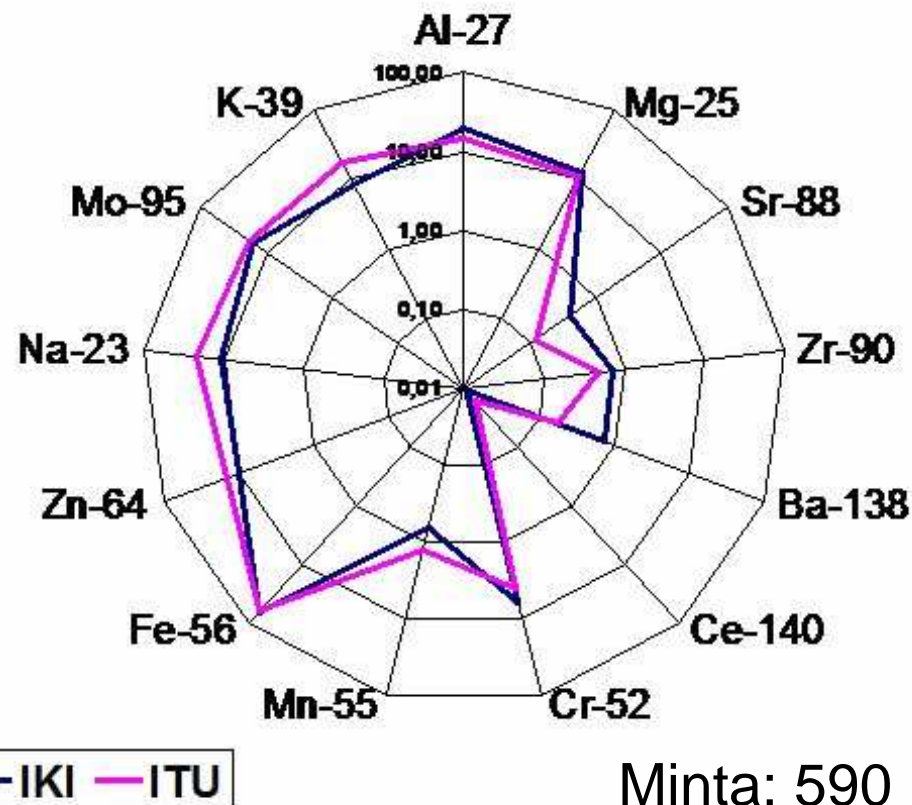
– Eredetmeghatározás II.



Minták:

- 590: Természetes, NU (HU-NAT)
- 642: LEU (HU-LEU)
- 643: DU (HU-DEP)

Nyomelem analízis 3 lefoglalt urán-oxid pelletben →
Nemzetközi összemérés a Transzurán Elemek Intézetével (ITU, Karlsruhe)



Minta: 590

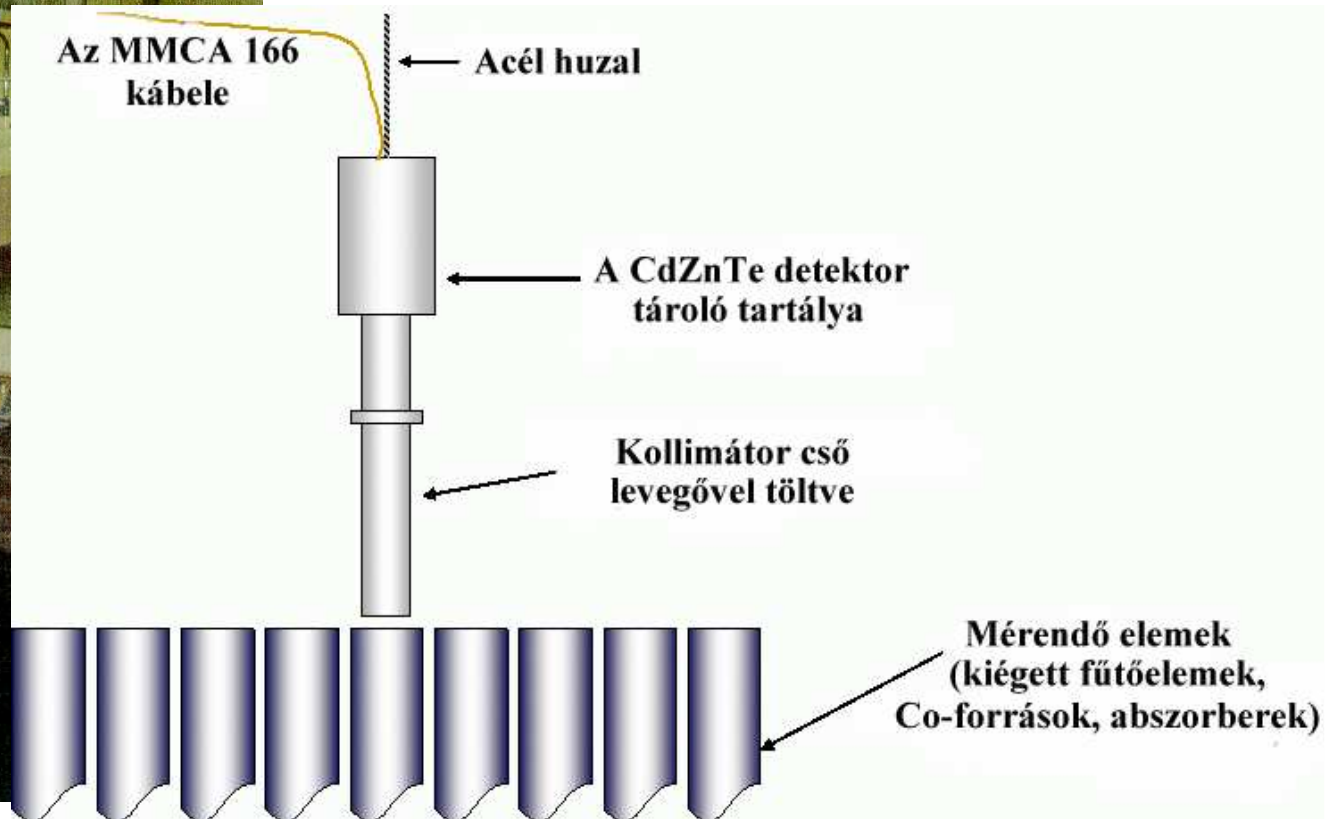
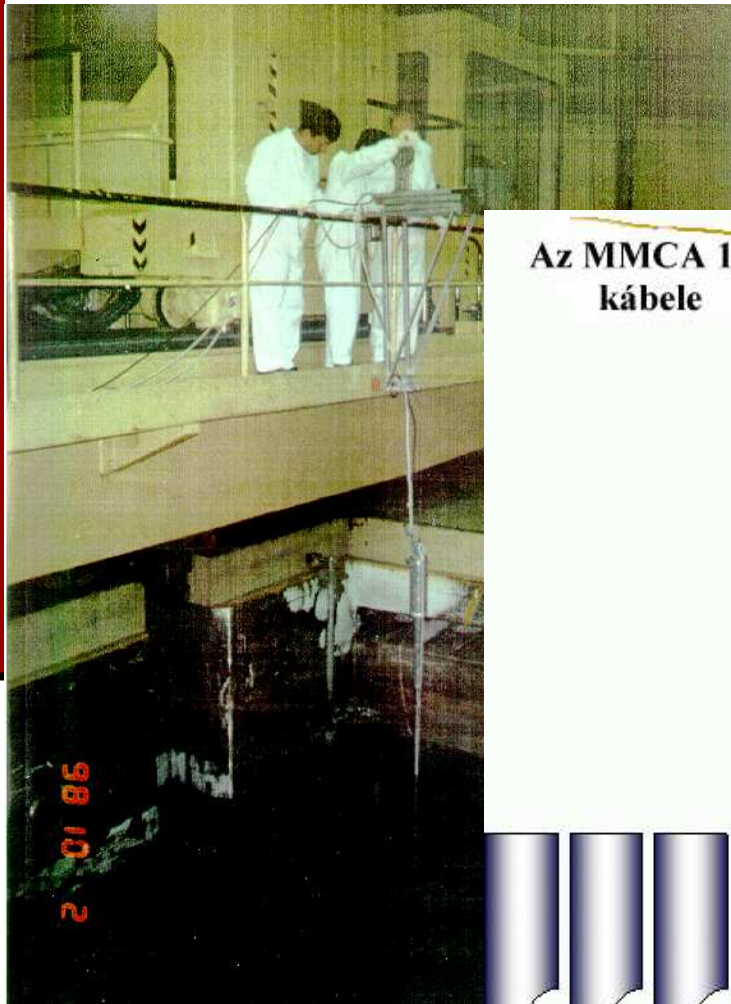


■ Nukleáris biztosítéki célú (Safeguards) elemzések



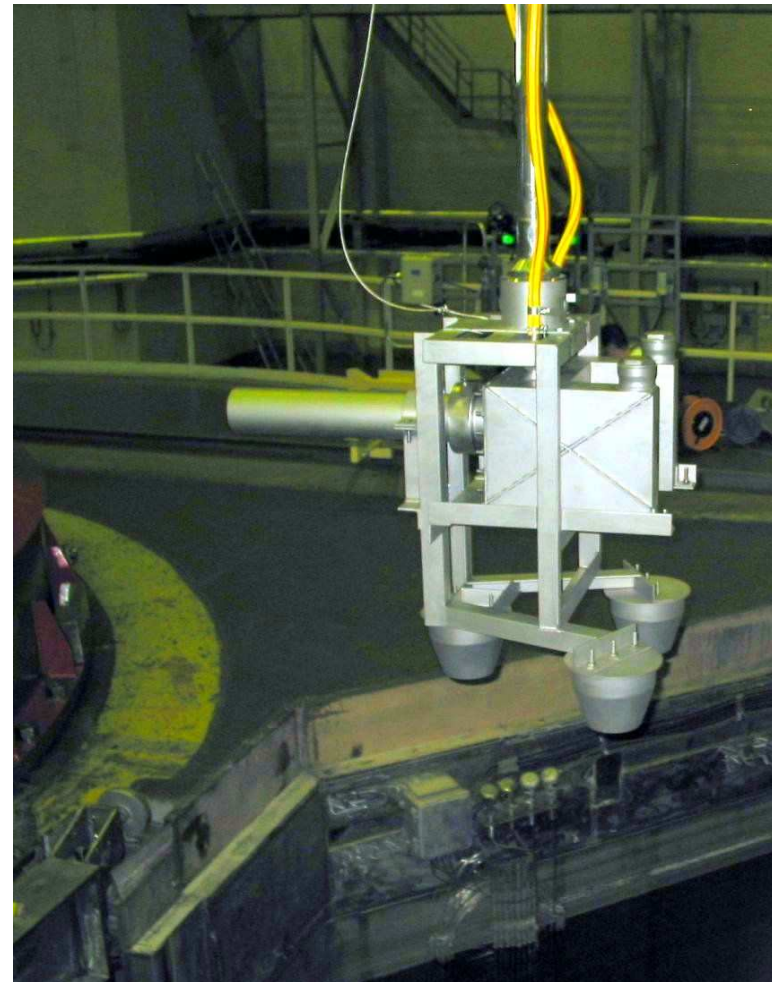
Roncsolásmentes elemzések: PSFAT

Kiégett fűtőelemek vizsgálata (Paks)





Sérült fűtőelemek vizsgálatához épített berendezés (Paks)





Erőművek proliferáció-állóságának vizsgálata

- **Proliferáció-állóság:** az atomenergia-rendszerek azon jellemzője, amellyel gátolható a nukleáris anyagok be nem jelentett (eltitkolt) előállítása és eltérítése (diverziója), továbbá a technológia nukleáris fegyverek vagy nukleáris robbanóeszközök előállítására irányuló felhasználása.

Como II, IAEA STR-332, December 2002

- Paks → új blokkok létesítését megelőző tanulmány





Dörzsminták elemzése

– „bulk” (össz-)elemzés

Urán és plutónium izotópok ultranyomnyi analízise, valamint precíz izotóparány-meghatározás környezeti dörzsmintákban

- Dörzsminták bulk elemzéséhez módszert fejlesztettünk:
 - Gamma-spektrometriás ellenőrzés
 - Mikrohullámú roncsolás
 - Extrakciós kromatográfiás elválasztás TRU[®] gyanta alkalmazásával
 - ICP-MS elemzés
- Elért kimutatási határok:
 - **Urán: 0,01 – 5 ng (IAEA SAL köv.: 0,1 - 5 ng)**
 - **Plutónium: 1 – 7 fg (IAEA SAL köv.: 10 fg)**
- Speciális követelmény: háttérszennyezés minimalizálása
 - Tisztalabor
 - Optimált mintaelőkészítési eljárás
 - Desztillált sav
- A módszer továbbfejlesztés alatt áll

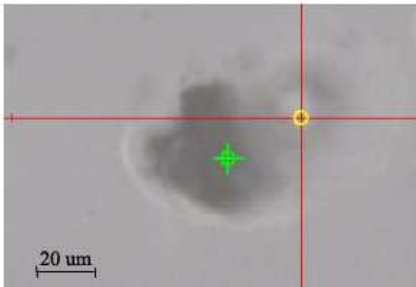




Egyedi részecskék elemzése LA-ICP-MS technikával

Egyedi részecskék izotópösszetételének vizsgálata → módszerfejlesztés

- **Jelenlegi eredmények:** egyedi, urántartalmú részecskék izotóp-összetételének meghatározása lézerablációs ICP-MS technikával
 - Különböző dúsítású urán-oxid részecskékkel tesztelve: **elérhető legkisebb méret: 10 mikrométer**
 - **Kis gyakoriságú izotópokra** is alkalmas (^{234}U , ^{236}U)
 - Elért tipikus precizitás: 0,2-5% RSD $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ izotóparányra
 - **Részecske lokalizáció:** nyomdetektorral és SEM/EDS technikával
 - **Részecske relokalizáció:** 3-, és 6-pontos algoritmussal



→ **További cél:** a módszer adaptálása
dörzsmintákra



Felkészülés nukleáris létesítmények leszerelésére - környezeti monitoring

Cél:

- Hazai nukleáris létesítmények közelében környezeti szennyezettség alapszintű felmérése, mint **referencia adatbázis**
- Átfogó, **nukleáris biztosítéki** célú környezeti monitoring a nukleáris létesítmények leszerelését megelőzően és a leszerelés ideje alatt
- Tesztelemzések a három nagyobb, hazai nukleáris létesítmény környezetében:
 - Paksi Atomerőmű
 - AEKI Kutatóreaktor
 - BME Oktatóreaktor





Összefoglalás

Az Intézetünkben rendelkezésünkre álló technikák alkalmazásával képesek vagyunk:

- A legtöbb nukleáris anyag teljes **nukleáris törvényszéki analízisére; azonosítására és karakterizálására** (DA és NDA technikák egyaránt rendelkezésre állnak; HRGS, ICP-MS, NCC, SEM, PGAA)
- **Környezeti elemzésekben;** ultra-nyomnyi mennyiségű anyagok érzékeny kimutatására
- **Precíz izotóparány** elemzésekre (elsősorban U, Pu)
- Fűtőelemek átfogó vizsgálatára

- **Jövőbeni terveink:**
 - **A NAÜ és az OAH igényeit kiszolgáló további kutatási feladatok és fejlesztések indítása és kivitelezése**
 - **Műszerpark fejlesztése és bővítése**
 - **Nemzetközi laborhálózatokhoz való csatlakozás**



Köszönöm a figyelmet!

A munkában jelenleg résztvevő kollegák:

ICP-MS:

Dr. Bíró Tamás

Dr. Széles Éva

Katona Róbert

Mácsik Zsuzsanna

Lukácsné Bartha Hajnal

HRGS:

Dr. Lakosi László

Dr. Nguyen Cong Tam

Almási István

Hlavathy Zoltán

Nagy Péter

Ideiglenesen távol lévő kollegák:

ICP-MS:

Dr. Stefánka Zsolt (OAH)

Dr. Varga Zsolt (JRC ITU)

HRGS:

Dr. Zsigrai József (JRC ITU)

Bagi János (JRC Ispra)