

# **Nukleáris törvényszéki analitikai módszer kidolgozása az atomerőműből származó kiégett nukleáris anyagokra, azok karekterizálásához (2. év)**

**Kovács-Széles Éva, Kocsonya András,  
Nguyen Cong Tam, Dósa Gergely,  
Völgyesi Péter, Almási István, Tóth Csaba,  
Hlavathy Zoltán, Lakosi László**

**MTA Energiatudományi Kutatóközpont Sugárbiztonsági Laboratórium**



# Előzmények, irodalomkutatás

Nuclear Forensics ITWG körelemzések, gyakorlatok

- valódi mérések
- virtuális feladatok

előző évi munkánk:

Almási István: Nukleáris törvényszéki analitikai módszer kidolgozása az atomerőműből származó kiégett nukleáris anyagokra, azok karakterizálásához, OAH-NBI-ABA-19/14-M, 2014

Roncsolásmentes (NDA) vizsgálatok

- Néhány potenciális izotóp az üzemanyag-katetták kiégésének gamma-spektrometriai módszerrel történő karakterizálásához
- Egyéb roncsolásmentes módszerek

Roncsolásos (DA) módszerek

- Mintavétel és feloldás
- Elválasztástechnika: aktinidák és egyéb izotópok szeparálása
- A mérendő izotópok köre
- A minták elemzése
- A kiégés (burn-up) mérése



# Áttekintés

Kiégett üzemanyagokról elérhető adatbázisokban fellelhető  
karakterisztikus paraméterek statisztikai értékelése

Szimuláció és szimulációs program a kiértékelésekhez

Kiégett üzemanyag mérési eredményei és annak felhasználása az MTA  
EK-ban nukleáris törvényszéki célokra, eredetmeghatározáshoz

- Roncsolásmentes (NDA)
- roncsolásos (DA)
- Példa: EK-10 fűtőelem vizsgálatai



# Irodalmi áttekintés: roncsolásmentes vizsgálatok

passzív módszerek: gamma-spektrometria, neutronszámlálás

aktív módszerek: interrogáció pulzáló neutronforrással,

állanód (weak steady state) forrás alkalmazása

A keltett gamma- és neutronsugárzást mérik

Safeguards célokra kidolgozott módszerek átemelése a forensics-be

ellenőrzés → meghatározás

helyszínen is bevethető NDA technikák

- Cserenkov nézők
- SFAT ( $^{137}\text{Cs}$  gamma-sugárzás)
- FORK, SMOPY gamma- és neutrontektorok

Besugárzási történet (irradiation history) meghatározása

néhány potenciális izotóp az üzemanyag kazetták kiégésének gamma-spektrometriai módszerrel történő karakterizálásához:  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{154}\text{Eu}$ ,  $^{106}\text{Ru}$

potenciális alternatívák:  $^{131}\text{I}$ ,  $^{140}\text{La}$ ,  $^{95}\text{Nb}$

hosszú távú tárolás vizsgálata:  $^{94}\text{Nb}$  – kis diffúziós állandó és neutronbefogás

MOX és LEU üzemanyagok elkülönítése:  $^{134}\text{Cs}/^{154}\text{Eu}$  arány (Willman et al)

$^{154}\text{Eu}$  nagyobb arányban keletkezik MOX üzemanyagban



# Egyéb roncsolásmentes módszerek

Neutronmérések:  $^{238}\text{U}$  neutronbefogása  $\rightarrow$   $^{244}\text{Cm}$ :  $T_{1/2} = 18.1$  év  
spontán hasad  $\rightarrow$  késő neutronok  
kiegésmeghatározás, egyedi dúsítás mérése

Cserenkov sugárzás kvantitatív mérése

Monte Carlo szimuláció: besugárzási történet követése MCNP-X kóddal  
(SCK-CEN)

Kiégett fűtőanyag könyvtár LEU és MOX kazettákra

Karakterizálás: izotóp-összetétel, a neutron/gamma-emisszió intenzitás/spektrum  
besugárzási történet 3 változó függvényében: kezdeti dúsítás, kiegészítés, hűlési idő

ORIGEN-ARP (ORNL SCALE programcsomag) és ALEPH 2.2 kiegészítő  
kódok

A könyvtárat összehasonlítják a Los Alamos-ban (LANL) az amerikai Next  
Generation Safeguards Initiative (NGSI) keretében hasonló felépítésű kazettákra  
készített referencia kiégett fűtőelem-könyvtárakkal.

Kiégett fűtőelemek hasadóanyag-tartalmának meghatározása

- Self-Interrogation Neutron Resonance Densitometry (SINRD)
- Passive Neutron Albedo Reactivity with Fission Chamber (PNAR-FC) + SINRD:  
a kiégett fűtőelemek Pu tartalmának meghatározása

Mindkettő: LANL Next Generation Safeguards Initiative (NGSI) projekt



# Roncsolásos módszerek

leggyakrabban használt eljárás: tömegspektrometria (MS)

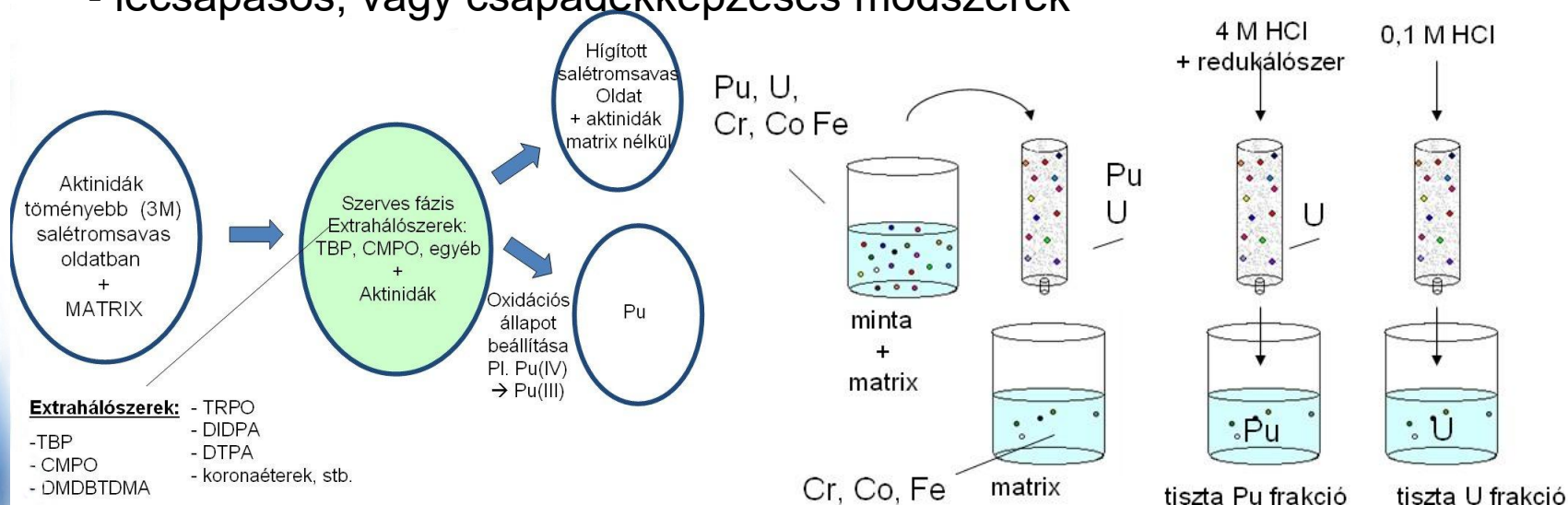
- a kazetta megbontása és feloldása szükséges: sugárveszélyes művelet speciális forrófülkéket és manipulátort igényel, Európában 7 országban 10 ilyen laboratórium ismert

kezdeti lépés: salétromsavas oldás → oldatba vitel

- a minta előkészítés jelentős időt igényel: rövid felezési idejű izotópok mérése korlátozott

elválasztástechnika, az aktinidák és egyéb izotópok szeparálása

- reprocesszálás folyamatánál kidolgozott módszerek
- hosszú felezési idejű aktinidák, mint Am, Pu, Th, Np elválasztása
  - folyadék-folyadék extrakció (pl. PUREX eljárás)
  - kromatográfiás technikák: mozgó fázis átáramoltatása álló fázison
  - lecsapásos, vagy csapadékképzéses módszerek





# Roncsolásos módszerek

A mérendő izotópok köre: U izotópjai, keletkező hasadási termékek, aktinidák, lantanoidák és egyéb radioaktív izotópok: U, Pu, Am, Np, Ce, Cm, Cs, Eu, Nd, Ru és Sm

A minták elemzése

- on-line elválasztás és mérés: az elválasztásos lépést közvetlenül legfőképpen kromatográfiás technikákat alkalmazva végzik, a kromatográf kimenete közvetlenül össze van kötve a mérőberendezéssel, ami általában tömegspektrométer
- offline módszer: az elválasztás egy közbenső hordozóra történik
  - radiometriai mérési technikák
    - alfa-spektrometria: Pu, Am, Ci izotópok, tipikus bizonytalanság ~2%
    - gamma-spektrometria:
      - folyadékszintilláció (LSC):  $^{147}\text{Pm}$ ,  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ 
        - nagymértékű elem-szeperáció kell a mérés előtt, bizonytalanság: 2%
    - tömegspektrometria (TIMS, ICP-MS)
      - a legpontosabb izotópazonosítást és mennyiségi meghatározást biztosítja, ha a mintát sikerült teljesen elválasztani, tiszta frakciókat nyerni belőle, elkerülve az izobár-interferenciát és a mátrix-hatást
      - bizonytalanság: ~0.5%



# A kiégés (burnup) meghatározása

roncsolásmentes: gamma-spektrometria ( $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ )

roncsolásos eljárások: specifikus nuklidok kémiai analízis általi meghatározásán, valamint a hasadási termékek monitorozásán alapulnak, széles körben alkalmazott referencia módszerek a kiégett fűtőelemek kiégésének meghatározásához

izotópok: U, Pu,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  és  $^{148}\text{Nd}$  – roncsolással meghatározható, bomlási aránya független a hasadó aktinidáktól – ASTM E 321-69 módszer

A stabil hasadási termékek mérésén alapuló módszerek csaknem függetlenek a besugárzási előtörténettől → pontosak. Nd a legjobb.

A Nd-148 alapján számolt kiégés, mint kulcs paraméter alkalmazható a lefoglalt, csempészett kiégett fűtőelemek eredetmeghatározásához, mivel azok esetében besugárzási előtörténet biztosan nem ismert.





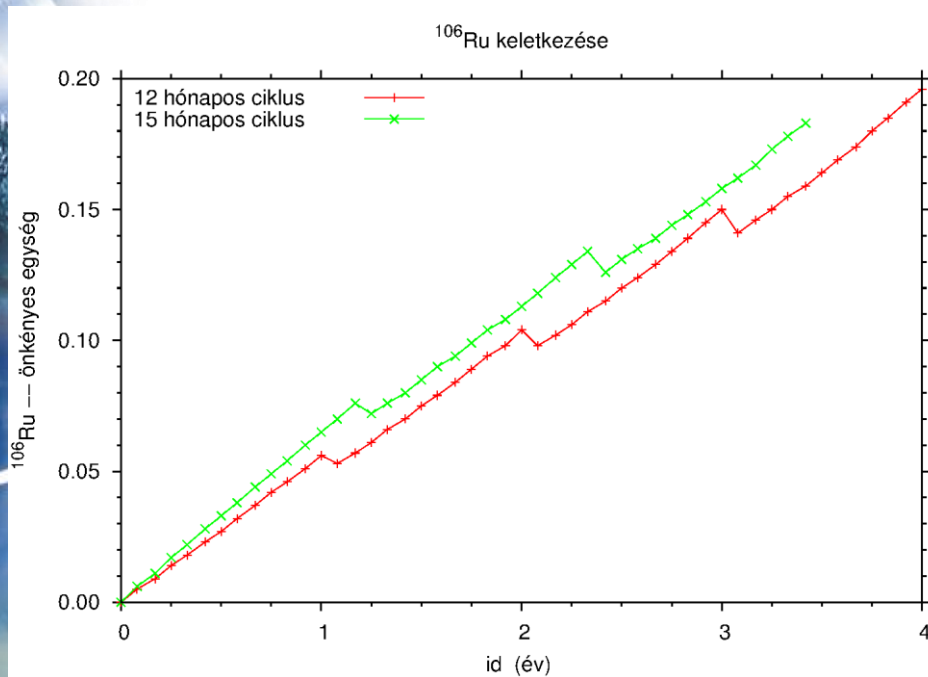
# Kiégett üzemanyagokról elérhető adatbázisokban fellelhető karakterisztikus paraméterek statisztikai értékelése

## SFCOMPO:

- nyílt elérésű nemzetközi adatbázis
- eredetileg a kiégett fűtőelemek izotópösszetétele irodalmi adatok alapján
- Japan Atomic Energy Research Institute (JAERI) 1993
- 2002-ben átvette a Nuclear Energy Agency (NEA) – azóta is üzemelteti
- 4 ország (Németország, Olaszország, Japán és az USA)
- 14 könnyű vizes, 7 nyomottvizes és 7 forralóvizes reaktor  
kiégett fűtőelemeinek izotóp összetétele: U, Pu, Am, Cm  
+hasadási termékek, mint Nd, Cs, Sr
- 246 minta, amelyből 30  $\text{UO}_2\text{-Gd}_2\text{O}_3$  összetételű fűtőelem
- a besugárzott nukleáris üzemanyag legfontosabb, karakterisztikus jellemzője az izotópösszetétel
- bomlási hő, sugárzási dózis és a neutron multiplicitási faktor, stb. számítható
- izotóp korrelációk tanulmányozhatók az egyes reaktorok esetében
- vizsgált paraméterek:  $^{234}\text{U}$ /teljes U,  $^{235}\text{U}$ /teljes U,  $^{236}\text{U}$ /teljes U,  $^{238}\text{Pu}$ /teljes U,  $^{239}\text{Pu}$ /teljes U,  $^{240}\text{Pu}$ /teljes U,  $^{241}\text{Pu}$ /teljes U,  $^{242}\text{Pu}$ /teljes U,  $^{241}\text{Am}$ /teljes U,  $^{242}\text{Am}$ /teljes U,  $^{137}\text{Cs}$ /teljes U,  $^{237}\text{Np}$ /teljes U a kiegészítő függvényében
- az adatbázisban elérhető nuklidok és azok radioaktív izotópjainak köre:  
U, Pu, Am, Np, Ce, Cm, Cs, Eu, Nd, Ru, Sm



# Szimuláció és szimulációs program a kiértékelésekhez



Fűtőelem karakterizáló

U-235

Vizsgált izotóp

Kampány	Kezdeti mennyiségek	Vizsgált izotóp jellemzői
Üzem (hónap): <input type="text" value="11"/>	U-235 (%): <input type="text" value="4.56"/>	Felezési idő (nap): <input type="text" value="368"/>
Szünnet (hónap): <input type="text" value="1"/>	Pu-239 (%): <input type="text" value="0"/>	Keletkezési gyakoriság (U): <input type="text" value="0.001"/>
Neutronfluxus	Vizsgált izotóp (%): <input type="text" value="0"/>	Keletkezési gyakoriság (Pu): <input type="text" value="0.01"/>
Kampány végén (%): <input type="text" value="112"/>		
Mért mennyiségek	Szimuláció	
U-235 (%): <input type="text" value="2.31"/>	U-235 hasadási tényező lépésköz: <input type="text" value="0.0001"/>	
Pu-239 (%): <input type="text" value="1.22"/>	Pu-239 termelődési tényező lépésköz: <input type="text" value="0.0001"/>	
Kampányok száma: <input type="text" value="4"/>	U-235 hasadási tényező kezdeti érték: <input type="text" value="0.015"/>	
Pihentetés (hónap): <input type="text" value="0"/>	Pu-239 termelődési tényező kezdeti érték: <input type="text" value="0.027"/>	
	Mért mennyiségekben megengedett hiba (%): <input type="text" value="10"/>	
	Maximális megengedett lépésszám: <input type="text" value="200000"/>	

Indítás

Eredmények

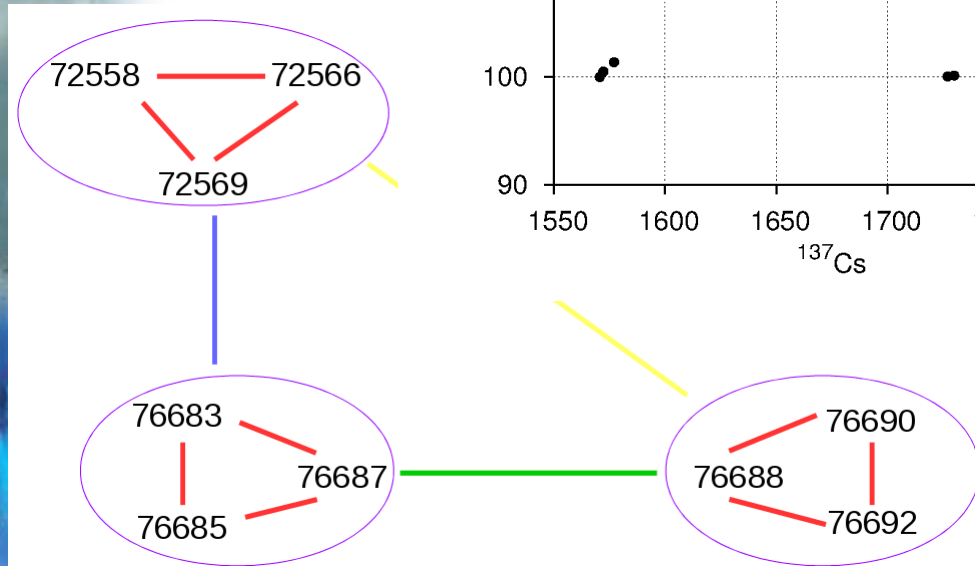
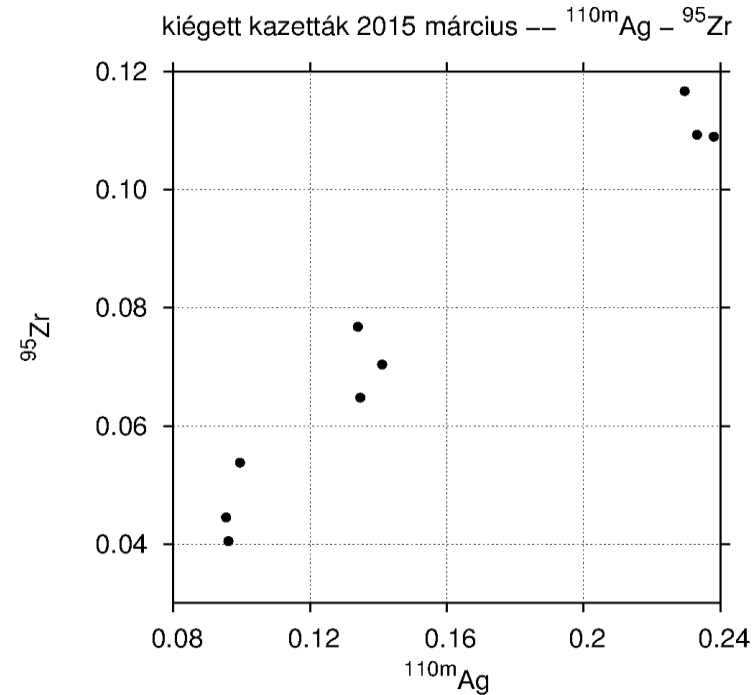
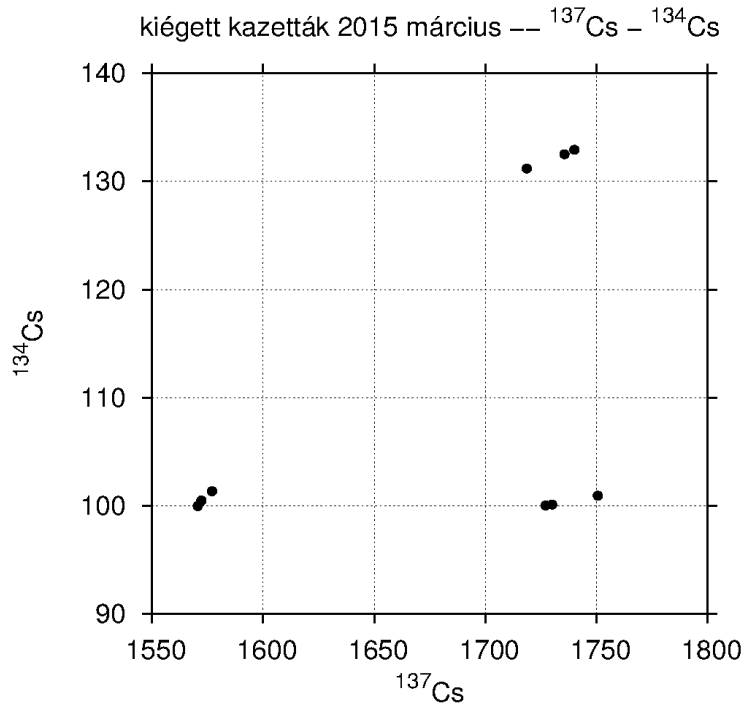
U-235 hasadási tényező: **0.014** Pu-239 termelődési tényező: **0.0255**





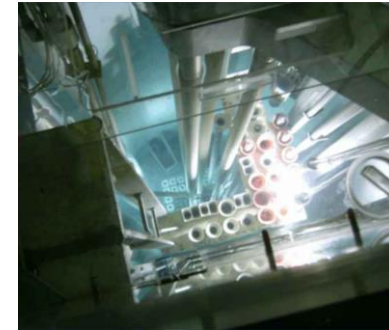
# Kiéggett üzemanyag mérési eredményei és annak felhasználása nukleáris törvényszéki célokra, eredetmeghatározáshoz – roncsolásmentes módszerek

Gamma-spektroszkópiai mérések kiéggett fűtőelem-kazettákon a Paksi Atomerőműben mérhető nuklidok:  $^{154}\text{Eu}$ ,  $^{106}\text{Ru}/^{106}\text{Rh}$ ,  $^{95}\text{Zr}/^{95}\text{Nb}$ ,  $^{124}\text{Sb}$ ,  $^{144}\text{Ce}/^{144}\text{Pr}$ ,  $^{140}\text{La}/^{140}\text{Ba}$



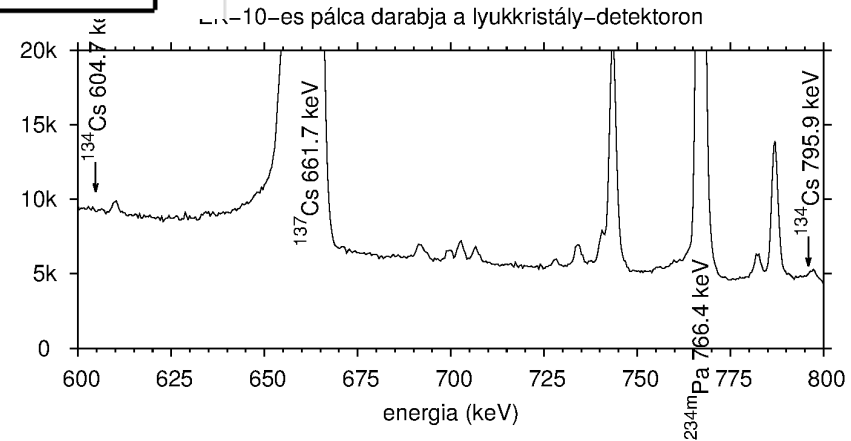


# Kiéggett üzemanyag mérési eredményei és annak felhasználása nukleáris törvényszéki célokra, eredetmeghatározáshoz – EK-10 fűtőelem-pálca



3. táblázat BME üzemanyag tömegspektrometriás mérési eredményei (atom %-ban megadva), szórás: 2-3% közötti (k=2)

Minta sorszáma	U-234	U-235	U-236	U-238	Megjegyzés
5	0,0751	9,92	0,0639*	89,9326	
REF		9,88			Gamma mérés



NUCLEAR  
FORENSIC  
LABORATORY



**Köszönöm a figyelmet!**

