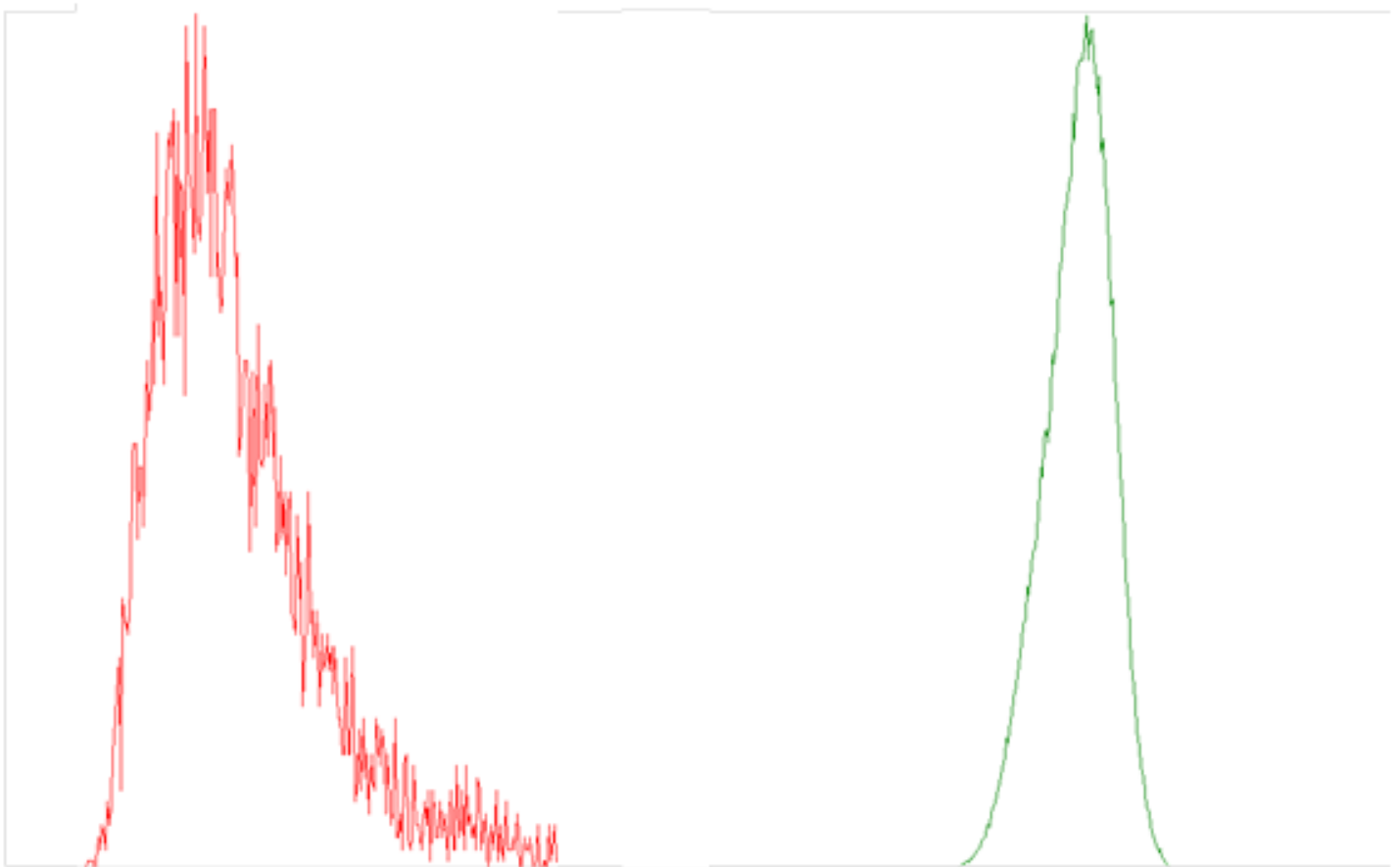


H. RAMEBÄCK, S. JONSSON,  
P. LAGERKVIST, A. TOVEDAL



H. Ramebäck, S. Jonsson, P. Lagerkvist, A.  
Tovedal

# Mätning av $^{241}\text{Pu}$ med LSC och alfaspektrometri

Bild/Cover: FOI



|                        |   |
|------------------------|---|
| Titel                  | Mätning av <sup>241</sup> Pu med LSC och alfaspektrometri   |
| Title                  | Measurement of <sup>241</sup> Pu with LSC and alpha spectrometry                                      |
| Rapportnr/Report no    | FOI-R--4743--SE   |
| Månad/Month            | December  |
| Utgivningsår/Year      | 2018  |
| Sidor/Pages            | 17 p  |
| Kund/Customer          | Fö  |
| Forskningsområde       | 2. CBRN-frågor och icke-spridning   |
| FoT-område             | Ej FoT  |
| Projektnr/Project no   | A404618   |
| Godkänd av/Approved by | Åsa Scott   |
| Ansvarig avdelning     | CBRN-skydd och säkerhet   |
| Exportkontroll         | Innehållet är granskat och omfattar ingen information som är underställd exportkontrollagstiftningen. |

Detta verk är skyddat enligt lagen (1960:729) om upphovsrätt till litterära och konstnärliga verk, vilket bl.a. innebär att citering är tillåten i enlighet med vad som anges i 22 § i nämnd lag. För att använda verket på ett sätt som inte medges direkt av svensk lag krävs särskild överenskommelse.

This work is protected by the Swedish Act on Copyright in Literary and Artistic Works (1960:729). Citation is permitted in accordance with article 22 in said act. Any form of use that goes beyond what is permitted by Swedish copyright law, requires the written permission of FOI.

## Sammanfattning

I detta arbete har en metod som alternativ till masspektrometri för mätning av  $^{241}\text{Pu}$  utvärderats. Metoden bygger på mätning av total alfaaktivitet för plutonium med alfaspektrometri, varefter  $^{241}\text{Pu}$  och alfasönderfallande plutoniumisotoper mäts med vätskescintillationsräkning. Kombinationen av de två mätningarna ger aktiviteten av  $^{241}\text{Pu}$  i ett prov. Metoden ska ses som ett alternativ till masspektrometri då exempelvis tillgång till en masspektrometer saknas.

Nyckelord:  $^{241}\text{Pu}$ , Vätskescintillationsräkning, LSC

## Summary

An alternative method to mass spectrometry for measuring  $^{241}\text{Pu}$  was evaluated. The method comprised the measurement of the gross alpha activity of plutonium using alpha spectrometry, and the subsequent measurement of  $^{241}\text{Pu}$  and the alpha emitting plutonium isotopes using liquid scintillation counting. This method is an alternative to mass spectrometry when e.g. there is no access to a mass spectrometer.

Keywords:  $^{241}\text{Pu}$ , Liquid scintillation counting, LSC



## Innehållsförteckning

|          |   |           |
|----------|---|-----------|
| <b>1</b> | <b>Inledning</b>  | <b>9</b>  |
| <b>2</b> | <b>Teori</b>  | <b>10</b> |
| 2.1      | Beräkning av aktivitet för $^{241}\text{Pu}$ och aktivitetsknoten $R^{241}_{(239+240)}$ ..... | 10        |
| 2.2      | Minsta Detekterbara Aktivitet .....   | 10        |
| 2.3      | Jämförelse mellan mätresultat och referensvärde .....   | 11        |
| <b>3</b> | <b>Material och metod</b>   | <b>12</b> |
| 3.1      | Provupplösning .....  | 12        |
| 3.2      | Kemisk separation av plutonium .....  | 12        |
| 3.3      | Provberedning för mätning med LSC .....   | 12        |
| 3.4      | Provberedning för mätning med alfaspektrometri.....   | 13        |
| 3.5      | Mätning med LSC .....   | 13        |
| 3.6      | Mätning med alfaspektrometri.....   | 13        |
| <b>4</b> | <b>Resultat och diskussion</b>  | <b>14</b> |
| 4.1      | Aktivitet och aktivitetsknot .....  | 14        |
| 4.2      | MDA .....   | 14        |
| 4.3      | Uppslutningsmetod .....   | 15        |
| 4.4      | Alfaspektrometri .....  | 15        |
| <b>5</b> | <b>Slutsatser</b>   | <b>16</b> |
| <b>6</b> | <b>Referenser</b>   | <b>17</b> |





# 1 Inledning

Mätning av radioaktiva ämnen är viktigt i många sammanhang. För till exempel strålskyddstillämpningar är mätningar nödvändiga för att kunna beräkna doser från joniserande strålning. Alfastrålande radionuklider, exempelvis  $^{238,239,240,242}\text{Pu}$  och  $^{241}\text{Am}$ , kan ge signifikanta dosbidrag speciellt via inandning och vid intag av kontaminerad föda [UNSCEAR 2000].  $^{241}\text{Pu}$ , som i huvudsak är en betasönderfallande radionuklid, ger i sig inte så stort dosbidrag relativt de alfasönderfallande plutoniumisotoperna [Ikäheimonen 2000], men med tiden kommer  $^{241}\text{Pu}$  att sönderfalla till  $^{241}\text{Am}$ . Thakur och Ward [Thakur och Ward 2018] listade ett antal källor till plutoniumförekomst i naturen. I huvuddelen av dessa utsläpp svarade  $^{241}\text{Pu}$  för den dominerande plutoniumaktiviteten. Eftersom  $^{241}\text{Am}$  med tiden växer in från  $^{241}\text{Pu}$  kommer dess dosbidrag att kunna bli signifikant, vilket kan göra att det är viktigt att kunna mäta även  $^{241}\text{Pu}$ . Exempelvis kommer den dominerande alfaaktiviteten att komma från  $^{241}\text{Am}$  redan efter ca. tio år för ett högutbränt reaktorplutonium.

Mätning av exempelvis omgivningsprover för att bestämma aktiviteten av  $^{241}\text{Pu}$  kan göras med vätskescintillationsräkning (LSC: *Liquid Scintillation Counting*) eller masspektrometri [Jäggi et al. 2012]. I jämförelsen mellan LSC och ICP-MS (*Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry*) av Jäggi et al. var detektionsgränserna för de båda metoderna fullt jämförbara. I den studien användes samma modeller av instrument för LSC och masspektrometri som finns vid FOI. Med ett annat enklare instrument för LSC-mätningen blev detektionsgränsen i deras studie ungefär två gånger högre. För båda typerna av instrument (LSC och ICP-MS) är alfaspektrometri en nödvändig del i metoden.

I det här arbetet har en metod för bestämning av  $^{241}\text{Pu}$  med LSC och alfaspektrometri testats. Två material användes: ett isotopkvotsreferensmaterial (IRMM-081) som är certifierat för isotopsammansättning och mängd (som kan räknas om till aktivitet), och ett material (Trinitite) som mätts tidigare med ICP-MS. I det senare fallet jämfördes enbart aktivitetsskvoten  $^{241}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$  med tidigare mätning med ICP-MS eftersom provet är väldigt inhomogent.

## 2 Teori

### 2.1 Beräkning av aktivitet för $^{241}\text{Pu}$ och aktivitetsknoten $R_{241/(239+240)}$

Aktiviteten av  $^{241}\text{Pu}$  i ett prov som mäts med LSC kan beräknas enligt [Jäggi et al. 2012]

$$A_{Pu241} = \frac{c_{Pu241}A_{\alpha tot}\epsilon_{\alpha tot}}{c_{\alpha tot}\epsilon_{Pu241}} \quad (1)$$

där  $c_{Pu241}$  är räknehastigheten för  $^{241}\text{Pu}$  från LSC-mätningen,  $c_{\alpha tot}$  är alfa-räknehastigheten från LSC-mätningen,  $\epsilon_{Pu241}$  är mäteffektiviteten för mätning av  $^{241}\text{Pu}$  med LSC och  $\epsilon_{\alpha tot}$  mäteffektiviteten för mätning av alfapartiklar med LSC.  $A_{\alpha tot}$  är den totala alfaaktiviteten i provet vilken bestäms med alfaspektrometri (IDAS: *Isotope Dilution Alpha Spectrometry*)

$$A_{\alpha tot} = A_{Pu238} + A_{Pu239+240} + A_{Pu242} = \frac{A_{Pu242}(N_{238} + N_{239+240} + N_{242})}{N_{242}} \quad (2)$$

där  $A_{Pu242}$  är tillsatt aktivitet av  $^{242}\text{Pu}$  (spik) och  $N_{238}$ ,  $N_{239+240}$  och  $N_{242}$  antalet pulser i spektrumregionerna för  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$  samt  $^{242}\text{Pu}$ . Från alfaspektrometrimätningen erhålls även, p.s.s. med IDAS, aktiviteten av  $^{239+240}\text{Pu}$

$$A_{Pu239+240} = \frac{A_{Pu242}N_{239+240}}{N_{242}} \quad (3)$$

vilket gör att man slutligen kan beräkna aktivitetsknoten

$$R_{241/(239+240)} = \frac{A_{Pu241}}{A_{Pu239+240}} \quad (4)$$

Utifrån ett mätosäkerhetsperspektiv är det viktigt att notera att vid beräkning av aktivitetsknoten med Ekv. (4) är både täljaren och nämnaren beroende av  $A_{Pu239+240}$  (Ekv. (1) och (2)), vilket innebär att osäkerhetspropagering måste göras på hela uttrycket för aktivitetsknoten och inte på de olika ekvationerna var för sig. En känslighetsanalys visar att då  $A_{Pu239+240}$  dominerar, som i det här arbetet, blir dess variansbidrag till aktivitetsknoten liten även om dess osäkerhet skulle varit betydligt större (flera 10-talet %) än vad den var i det här arbetet.

### 2.2 Minsta Detekterbara Aktivitet

Beräkning av MDA (Minsta Detekterbara Aktivitet) gjordes enligt Currie [Currie 1968] med beaktande av ISO 11929:2010 [ISO 11292:2010]<sup>1</sup>. MDA beräknades då enligt

$$MDA = L_d w \quad (5)$$

där  $L_d$  är antalet pulser över bakgrunden vid detektionsgränsen, och  $w$  är konversionsfaktorn för att beräkna aktivitet utifrån nettomätningen.  $L_d$  beräknades enligt Currie utifrån 5 %-

<sup>1</sup> Enligt ISO 11929:2010 ska hänsyn tas till alla osäkerheter vid beräkning av MDA, d.v.s. inte bara osäkerheten i signalen för bakgrunden. Innebörden blir att man ska dividera MDA, baserad på enbart bakgrundens signal, med faktorn  $1 - k_{1-\beta}^2 u_{rel}(w)^2$ , där  $k_{1-\beta}=1.645$  för fallet då man accepterar 5 % risk att inte detektera något vid detektionsgränsen även om det finns närvarande [De Felice et al. 2017].

riskerna att detektera något som inte finns (blanken) samt inte detektera något som finns vid MDA

$$L_d = 2.71 + 4.65\sqrt{N_{Bakgrund}} \quad (6)$$

där  $N_{Bakgrund}$  är antalet pulser i bakgrunden. Det här fallet förutsätter att mättiderna för bakgrund och prov är samma, vilket de var i det här arbetet. Vidare är här

$$W = \frac{A_{atot}\varepsilon_{atot}}{t_m c_{atot}\varepsilon_{Pu241}} \quad (7)$$

där  $t_m$  är mättiden i sekunder.

Med hänsyn taget till ISO 11929:2010 blir detektionsgränsen obetydligt högre, ca. 3 %, om den sammanlagda osäkerheten i konversionsfaktorn för beräkning av aktivitet utifrån nettomätningen inte är större än 10 %,  $k=1$ , [Ramebäck 2017] vilket ofta gäller för laboriemätningar av radionuklider. I det här arbetet var osäkerheten i konversionsfaktorn mindre än 4 %,  $k=1$ , vilket innebär att detektionsgränsen blir mindre än 0,5 % högre jämfört med om man inte skulle beakta alla osäkerheter i beräkningen av MDA.

### 2.3 Jämförelse mellan mätresultat och referensvärde

De uppmätta resultaten jämfördes med tidigare mätta- eller certifierade värden genom att beräkna *zeta-score*, som är ett statistiskt test ofta använt i exv. jämförelsemätningar för att beräkna noggrannheten i en mätning. *Zeta* beräknas enligt

$$zeta = \frac{x_m - X_{ref}}{\sqrt{u_m^2 + u_{ref}^2}} \quad (8)$$

där  $x_m$  är uppmätt värde,  $X_{ref}$  är ett referensvärde,  $u_m$  är standardosäkerheten för det uppmätta värdet och  $u_{ref}$  är standardosäkerheten för referensvärdet. För testet gäller att om  $|zeta| \leq 2$  är mätvärdet konsistent med referensvärdet för ett 95 % konfidensintervall<sup>2</sup>, om  $|zeta| > 3$ , anses det inte konsistent med referensvärdet. För värden på  $|zeta|$  mellan 2 och 3 anses det tveksamt om ett uppmätt värde kan anses konsistent med ett referensvärde. Detta test är ekvivalent med testet beskrivet i ISO Guide 33:2015.

<sup>2</sup> Här gäller det av vi kan anta att  $x_m$  och  $X_{ref}$  är normalfördelade.

## 3 Material och metod

### 3.1 Provuoplösning

Cirka 4 g av Trinitite maldes med mortel till ett fint pulver. Det malda pulvret (0,5 g) blandades sedan med 3 g litiummetaborat (Claisse LiBO<sub>2</sub> ultrapure, Gammadata Instrument AB, Uppsala) i en koldegel (27 ml, Gammadata Instruments AB, Uppsala), och därefter tillsattes ungefär 1 Bq <sup>242</sup>Pu (Eckert & Ziegler, Valencia, California, USA). Koldegeln innehållande blandningen fick stå ca. 2 h innan den ställdes in i en ugn förinställd till 650°C i 2 h. Därefter flyttades koldegeln till en annan ugn, förinställd vid 1050°C, i vilken den fick stå 15 min för att smälta innehållet. Proceduren i den varmare ugnen upprepades tre gånger för att få en relativt homogen upplösning av provet, och därefter hölls den heta smältan direkt i en bägare fylld med 100 ml 1,5 M HNO<sub>3</sub> (spädd till vald koncentration från 65 % EMSURE salpetersyra, Merck Millipore, Darmstadt, Tyskland). Ett liknande förfarande användes även för den certifierade referensmateriallösningen IRMM-081 (Institute for Reference Materials and Measurements, IRMM, Geel, Belgien), med skillnaden att en mindre volym av IRMM-081 (motsvarande ungefär 100 Bq med avseende på totalaktivitet från plutonium) blandades med litiummetaborat.

Smältorna löstes upp i bägarna med 1,5 M HNO<sub>3</sub> under omrörning. Proverna indunstades till halva volymen för att erhålla en lösning med matrisen 3 M HNO<sub>3</sub>. Därefter tillsattes 0,2 g polyetylen glykol 2000 (PEG2000, Alfa Aesar) och proverna fick stå över natt för att flockulera kisel. Nästa dag filtrerades provet med Munktell 00H filter (Ahlstrom Munksjö) och filtratet omhändertogs för senare kemisk separation.

### 3.2 Kemisk separation av plutonium

Innan kemisk separation av plutonium från provmatrisen genomfördes säkerställdes att allt plutonium förekom som Pu(IV) genom att först reducera allt plutonium till Pu(III) med hydroxylammoniumklorid (>99.0 %, Merck Millipore, Darmstadt, Tyskland) och därefter oxidera till Pu(IV) med överskott av natriumnitrit (p.a., Merck Millipore) [Moore och Hudgens 1957]. För efterföljande separation av plutonium användes fastfasextraktionsmaterialiet TEVA (100-150 µm, Triskem International), som är en anjonbytare. Kolonner packade med 2 ml TEVA (Poly-prep chromatography columns, Bio-Rad Technologies) konditionerades därefter med 5 ml 3 M HNO<sub>3</sub>. Provet laddades på TEVA-kolonnen vid en maximal flödes hastighet på ca 1 ml/min, bägaren sköljdes med 3 M HNO<sub>3</sub>, som också laddades på kolonnen. TEVA-kolonnen sköljdes sedan med 20 ml 9 M HCl följt av 10 ml 3 M HNO<sub>3</sub>. Plutonium eluerades från TEVA med 5 ml 0,01 M ammoniumväteoxalat (99,999 %, Sigma-Aldrich). Eluatet samlades upp och delades i två fraktioner på 2,5 ml; en till mätning med LSC och den andra till elektrodeponering följt av mätning med alfaspektrometri.

### 3.3 Provberedning för mätning med LSC

Fraktionen för mätning med LSC blandades med 15 ml scintillationsvätska Ultima Gold AB (Perkin Elmer) i en scintillationsburk i polypropylen (Perkin Elmer). Proverna mättes med Quantulus 1220 (Perkin Elmer).

### 3.4 Provberedning för mätning med alfaspektrometri

Fraktionen för mätning med alfaspektrometri fördes över till glasbägare, våtförbrändes med  $\text{HNO}_3$  och indunstades sedan till torrhet.

Proverna löstes upp med 5 ml 15 %  $\text{Na}_2\text{SO}_4$ , 2,5 ml 5 %  $\text{NaHSO}_4$  och 2 ml MilliQ-vatten under värmning på värmeplatta vid  $150^\circ\text{C}$  i 10 minuter. Provlösningen var täckt med urglas under värmningen. Lösningen överfördes sedan till en elektrodeponeringscell. Bägaren sköljdes tre gånger med 1 ml MilliQ-vatten, som också överfördes till elektrodeponeringscellen. Ammoniumoxalat (1 ml, 20 g/l) tillsattes och provet elektrodeponerades på en stålplanchett i 90 minuter vid en strömstyrka på 0,75 A. Cirka 1 minut före elektrodeponeringen stoppades tillsattes 1 ml 25 % KOH. Efter deponeringen sköljdes stålplanchetten med MilliQ-vatten och fick torka innan mätning.

### 3.5 Mätning med LSC

Proverna som förberetts för mätning med LSC ställdes mörkt i instrumentet över natt. För samtliga prov- och blankmätningar var mättiden 720 minuter. Fönsterinställningarna var kanalerna 400-700 för alfa och kanalerna 40-350 för beta. Mäteffektiviteten för  $^{241}\text{Pu}$  bestämdes genom att mäta en certifierad  $^{241}\text{Pu}$ -referenslösning (Eckert & Ziegler) tillblandad på samma sätt som proverna, d.v.s. 2,5 ml 0,01 M  $\text{NH}_4\text{HC}_2\text{O}_4$  samt 15 ml Ultima Gold AB. Mätningarna gjordes med alfa/betadiskriminering, vilken används för att särskilja alfastrålning från betastrålning radionuklider samt för att reducera bakgrundsnivån i betafönstret [Knoll 2000]. Då  $^{241}\text{Pu}$  är en lågenergetisk betastrålning nuklid ( $E_{\beta\text{max}}=20,8(2)$  keV) och de alfastrålning plutoniumnuklidernas alfaenergi är kring 5 MeV [DDEP], är risken liten att felklassificering av betastrålning nuklider som alfastrålning nuklider och vice versa ska förekomma. Därför sattes PSA-värdet till 1 (d.v.s. ingen aktiv diskriminering), och ingen korrektion för felklassificering behövdes. Detta kontrollerades genom att variera PSA-värdet från 1 till 120, utan att det resulterade i någon statistisk signifikant skillnad i mätningarna med de olika PSA-inställningarna.

### 3.6 Mätning med alfaspektrometri

Planschetterna mättes i ca. 6 dygn i en Octete (Ortec, TN, USA) utrustad med PIPS-detektor (Ortec, TN, USA) med en aktiv area på  $300\text{ mm}^2$ . För att erhålla så högupplösta spektrum som möjligt genomfördes mätningarna under maximalt vakuum (1 mbar) och på maximalt avstånd (ca 40 mm, fals 10) från detektorn. Elektroniken ställdes in så att ca. 2,5 keV/kanal erhöles (conversion gain = 4096, digital offset = 1500).

## 4 Resultat och diskussion

### 4.1 Aktivitet och aktivitetskvot

Resultaten för mätningarna av de två proven visas i Tabell 1.

**Tabell 1.** Resultat för mätning av  $A_{\text{Pu}241}$  och aktivitetskvoten  $R_{241/(239+240)}$

|                     | Trinitite    |                    | IRMM-081     |             |
|---------------------|--------------|--------------------|--------------|-------------|
|                     | Detta arbete | Nygren et al. 2007 | Detta arbete | Certifierat |
| $A$ (Bq/g)          | 2,40         | -                  | 163          | 160,1       |
| $U$ (Bq/g, $k=2$ )  | 0,21         | -                  | 12           | 1.6         |
| <i>zeta</i>         | --           |                    | 0,42         |             |
| $R_{241/(239+240)}$ | 0,0237       | 0,0241             | 0,385        | 0,3775      |
| $U$ ( $k=2$ )       | 0,0018       | 0,0015             | 0,023        | 0,0031      |
| <i>zeta</i>         | 0,32         |                    | 0,62         |             |

Resultaten visade på överensstämmelse mellan mätresultaten i det här arbetet och certifierade värden eller tidigare uppmätta resultat, eftersom alla  $|zeta| \leq 2$ , d.v.s. det förekom inte några signifikanta avvikelser. De relativa mätosäkerheterna,  $k=2$ , i aktivitetsbestämningarna var 7,4 % för IRMM-081 och 8,9 % för Trinitite. Skillnaden i mätosäkerhet beror på att för Trinitite gav räknehastigheten för  $^{241}\text{Pu}$  i LSC-mätningen ett variansbidrag på ca. 20 %, medan det i IRMM-081 var försumbart. I huvudsak var det för båda materialen mäteffektiviteterna för  $^{241}\text{Pu}$  och alfa-mätning med LSC, samt bestämningen av aktivitet  $A_{\text{Pu}239+240}$  med alfaspektrometri som bidrog mest till de sammanlagda mätosäkerheterna (Trinitite: 75 % variansbidrag; IRMM-081: 99 % variansbidrag) vilket innebär att om mätosäkerheten behöver minskas har man mest att vinna på att minska dessa osäkerheter, i den mån det är möjligt. Osäkerheterna i aktiviteter i det här arbetet är i nivå med de rapporterade mätosäkerheterna erhållna av Jäggi et al., som för referensmaterial fick mätosäkerheter på mellan 5 och 25 %,  $k=1$ .

De relativa osäkerheterna för aktivitetskvoten  $R_{241/(239+240)}$  var 6,0 % och 7,4 % (IRMM-081 respektive Trinitite). För Trinitite är det i nivå med resultat från tidigare mätning med ICP-SFMS då osäkerheten i aktivitetskvoten var 6.2 %. [Nygren et al. 2007]. För mätningen av aktivitetskvoten  $R_{241/(239+240)}$  i Trinitite, svarade mäteffektiviteterna och räknehastigheten för  $^{241}\text{Pu}$  i LSC-mätningen för ca 30 % vardera av variansbidragen. Det innebär att det finns potential att minska mätosäkerheten genom att mäta provet längre samt att, om möjligt, minska osäkerheterna i kalibreringarna för LSC-mätningen.

### 4.2 MDA

Man kan dels betrakta MDA från ett rent instrumentellt perspektiv, d.v.s. Bq/prov, dels normerat med exempelvis massan av det prov som mättes, d.v.s. Bq/g prov. I det senare fallet kan det vara svårt att jämföra erhållna MDA med andras arbeten. I det här arbetet blev MDA för aktivitetsmätning av  $^{241}\text{Pu}$  13 mBq/prov för en mättid på 12 h. Ikäheimonen rapporterade en instrumentell detektionsgräns på 7 mBq/prov (15 g prov) för en mättid på 10 h [Ikäheimonen 2000], medan Jäggi et al. erhöll ett MDA på mellan 9-42 mBq/prov (5 g och

0.02 g) [Jäggi et al. 2012]. Jäggi et al. redovisade inte mättider för LSC-mätningarna. Vidare jämförde Jäggi et al. MDA för LSC med mätningar genomförda med ICP-SFMS, och i den jämförelsen var MDA fullt jämförbara mellan mätmetoderna.

### 4.3 Uppslutningsmetod

Med de små provmängder som användes i det här arbetet (0,5 g prov) fungerade inte smältmetoden bra, smältkulan var svår att få lös från koldegeln. Detta kan bero på att provmängden var liten i förhållande till volymen spiklösning och mängden fluss. För att få med så stor del av smältkulan från koldegeln som möjligt hölls het smälta över till en bågare istället för att vänta till dess att den svalnat. I och med detta förfarande förekom en viss förlust av provet, uppskattningsvis mindre än 10 %.

### 4.4 Alfaspktrometri

Aktiviteten från spiken  $^{242}\text{Pu}$  var låg jämfört med  $^{239+240}\text{Pu}$  (2-3 %) och därför blev interferensen från  $^{239+240}\text{Pu}$  i den mer lågenergetiska  $^{242}\text{Pu}$  -toppen betydande. Problemet löstes genom att maximera upplösningen: dels genom att mäta på längre avstånd och med bättre vakuum än normalt, dels genom optimerade elektroniska inställningar. Aktiviteten  $^{242}\text{Pu}$  i spiklösningen är anpassad till prov med betydligt lägre aktivitet  $^{239+240}\text{Pu}$  och i dessa fall är interferens vanligtvis inget problem.



## 5 Slutsatser

I det här arbetet har aktiviteten av  $^{241}\text{Pu}$  samt aktivitetskvoten  $R_{241/(239+240)}$  bestämts i två material. Resultaten jämfördes med data från tidigare mätning och med certifierade värden för ett referensmaterial. Alla mätresultat var konsistenta med referensvärdena. Utöver det var osäkerheten i aktivitetskvoten i nivå med tidigare mätning gjord med ICP-SFMS. Metoden kan användas för bestämning av  $^{241}\text{Pu}$ , åtminstone för prover med en aktivitetskvot  $R_{241/(239+240)}$  på 0,03-0,4. För validering av metoden krävs ytterligare arbete.

## 6 Referenser

- DDEP, *Decay Data Evaluation Project* (DDEP), [www.nucleide.org/DDEP\\_WG/DDEPdata.htm](http://www.nucleide.org/DDEP_WG/DDEPdata.htm), November 2018
- F.L Moore, J.E. Hudgens Jr., *Separation and determination of plutonium by liquid-liquid extraction*, Anal. Chem., 1957, 29, 1767
- H. Ramebäck, *L<sub>d</sub>, MDA och ISO 11929:2010*, 2017, Internt arbetspapper
- ISO 11929:2010, *Determination of the characteristic limits (decision threshold, detection limit and limits of the confidence interval) for measurements of ionizing radiation-Fundamentals and application*, International Organization for Standardization, Geneva, 2010
- ISO Guide 33:2015, *Reference materials-Good practice in using reference materials*, International Organization for Standardization, Geneva, 2015
- Knoll 2000, Glenn F. Knoll, *Radiation Detection and Measurement*, 3rd edition, ISBN 0-471-07338-5
- L.A. Currie, *Limits for qualitative detection and quantitative determination. Application to radiochemistry*, Anal. Chem., 1968, 40, 586
- M. Jäggi, S. Röllin, J.A. Corcho Alvarado, J. Eikenberg, *Determination of <sup>241</sup>Pu in nuclear waste slurries: A comparative study using LSC and ICP-MS*, Appl. Radiat. Isot., 2012, 70, 360
- P. De Felice, S. Jerome, A. Petrucci, *Practical implementation of ISO 11929:2010*, Appl. Radiat. Isot., 2017, 126, 256
- P. Thakur, A.L. Ward, *<sup>241</sup>Pu in the environment: insight into the understudied isotope of plutonium*, J. Radioanal. Nucl. Chem., 2018, 317, 757
- T.K. Ikäheimonen, *Measurement of <sup>241</sup>Pu in environmental samples*, J. Radioanal. Nucl. Chem., 2000, 243, 535
- U. Nygren, Å. Tjärnhage, I. Bergman, *Radiokemiska analysmetoder vid FOI NBC-skydd*, FOI-R—0039-SE.
- U. Nygren, H. Ramebäck, C. Nilsson, *Age determination of plutonium using ICP-SFMS*, J. Radioanal. Nucl. Chem., 2007, 272, 45
- U. Nygren, I. Rodushkin, C. Nilsson and D.C. Baxter, *Separation of plutonium from soil and sediment by inductively coupled plasma mass spectrometry*, J. Anal. At. Spectrom, 2003, 18, 1426-1435.
- UNSCEAR: *Sources and effects of ionizing radiation*, UNSCEAR 2000 Report

FOI är en huvudsakligen uppdragsfinansierad myndighet under Försvarsdepartementet. Kärnverksamheten är forskning, metod- och teknikutveckling till nytta för försvar och säkerhet. Organisationen har cirka 1000 anställda varav ungefär 800 är forskare. Detta gör organisationen till Sveriges största forskningsinstitut. FOI ger kunderna tillgång till ledande expertis inom ett stort antal tillämpningsområden såsom säkerhetspolitiska studier och analyser inom försvar och säkerhet, bedömning av olika typer av hot, system för ledning och hantering av kriser, skydd mot och hantering av farliga ämnen, IT-säkerhet och nya sensorers möjligheter.



FOI  
Totalförsvarets forskningsinstitut  
164 90 Stockholm

Tel: 08-55 50 30 00  
Fax: 08-55 50 31 00

[www.foi.se](http://www.foi.se)