

Large-geometry Secondary Ion Mass Spectrometry (LG-SIMS) for Safeguard

Thippatai Tanpraphan ,Laure Sangely , Jane Poths , Olivier Bildstein

International Atomic Energy Agency (IAEA), Wagramer Strasse 5, Vienna, Austria

Abstract

Secondary Ion Mass Spectrometry (SIMS) technology has been applied for a decade to the analysis of swipe samples collected by IAEA inspectors in and around nuclear facilities, in order to assess the absence of undeclared nuclear activities. The main analytical task is to analyze the uranium isotopic abundances of individual micrometer size particles present on the swipe taken from the inspection. For this purpose, the IAEA implemented in 2010 a new Large –Geometry SIMS CAMECA IMS 1280 instrument as a replacement for its CAMECA IMS 4f. The IMS 1280 is the only large geometry SIMS commercially available with a design allowing the simultaneous measurement of as many as 5 species in the uranium mass range (e.g., U-234, U-235, U-236, U-238, and U-238H, the latter being used to correct the U-235 hydride contribution to the U-236 signal) using five electron multiplier (EM) detectors.

There are two difficulties inherent to particle analysis using SIMS: i) it is not possible to increase the sputtered volume (which is limited by the particle size) in order to improve the counting statistics of a respective measurement. As a result, useful ion yields (referring to the resultant of ionization yield, ion transmission and detection factors) need to be improved if higher precision analysis are desired; ii) the sputtering of sub-micrometric particles to a nearly complete consumption results in transient signals having a large dynamic range. To overcome this challenge, the use of multi-collection proved to be highly beneficial for isotopic analyses in particles compared to mono-collection (i.e. a single collector), since it considerably increases useful ion yields and negates measurement uncertainty terms inherent to sequential measurement of transient signals. However, multi-collection is likely to introduce additional measurement uncertainty terms in isotopic measurements compared to mono-collection. These have been carefully investigated and an evaluation of the capability of the IMS 1280 multi-collector system to measure U-234 and U-236 at ppm-level abundances. The results obtain from LG-SIMS are far more superior in every aspect which lead to higher confidence level in drawing conclusion of absence of undeclared nuclear activities.

บทคัดย่อ

Secondary Ion Mass Spectrometry หรือ SIMS เป็นเทคนิคที่ถูกใช้อย่างแพร่หลายมาเป็นเวลานานสำหรับการวิเคราะห์ไอโซโทปของยูเรเนียมจากตัวอย่างที่จัดเก็บได้จากโรงงานปฏิกรณ์นิวเคลียร์ในประเทศสมาชิกทั่วโลก เพื่อที่จะมั่นใจว่าประเทศสมาชิกเหล่านั้น ได้ดำเนินการใช้พลังงานนิวเคลียร์ ไปตามกิจกรรมที่ได้แจ้งล่วงหน้าไว้กับทบวงพลังงานปรมาณูระหว่างประเทศ (IAEA) ทั้งนี้เพื่อเป็นสร้างความมั่นใจว่าจะไม่มีการนำพลังงานปรมาณูไปใช้ในทางมิชอบ หน้าที่โดยหลักของห้องทดลองคือการวิเคราะห์ยูเรเนียมในระดับอนุภาค (เส้นผ่าศูนย์กลางในหน่วยไมครอน) ที่กระจายอยู่บนแผ่นผ้าตัวอย่างที่จัดเก็บมาจากโรงงานปฏิกรณ์นิวเคลียร์ที่กำหนด ด้วยเครื่องมือ SIMS IMS 1280 ของบริษัท CAMECA ที่ได้ติดตั้งเมื่อปี 2010 ทดแทน SIMS IMS 4f จากบริษัทเดียวกัน ที่ถูกใช้งานมาก่อน โดยเครื่องมือ SIMS IMS 1280 นี้มีขีดความสามารถที่จะวิเคราะห์ไอโซโทปของยูเรเนียมได้ถึง 5 ชนิดในเวลาเดียวกันโดยอาศัยระบบ Multi collector Electron multiplier

ความท้าทายในการวิเคราะห์ไอโซโทปของอนุภาคยูเรเนียมนั้นมีอยู่สองประการ กล่าวคือ 1. ปริมาณของยูเรเนียมไอออนที่มีจำกัดเนื่องจากปริมาณของไอออนแปรผันตามขนาดของอนุภาค หนทางแก้ไขคือการเพิ่มประสิทธิภาพให้สามารถเพิ่มจำนวนไอออนที่ได้จากปริมาณอนุภาคที่เท่าเดิม 2. เนื่องมาจากขนาดที่เล็กของอนุภาค นักวิเคราะห์จำเป็นต้องสกัดอนุภาคออกมาใช้แทบทั้งหมดซึ่งก่อให้เกิดปัญหาของสัญญาณที่ไม่คงที่ในช่วงท้ายของการวิเคราะห์ จากปัญหาที่กล่าวมาข้างต้นนั้น SIMS IMS 1280 ช่วยแก้ไขปัญหาดังกล่าวไปได้มาก จากการที่มีระบบ Multi collector Electron multiplier ที่เครื่องมือเดิมไม่เคยมีมาก่อน อย่างไรก็ตามระบบใหม่นี้ก็ยังมีปัญหาที่จะต้องแก้ไข เนื่องจากมีอุปกรณ์รับสัญญาณถึง 5 ชิ้นซึ่งทำงานในเวลาเดียวกัน ดังนั้นความเข้าใจในการทำงาน และตอบสนองของอุปกรณ์รับสัญญาณทั้งหมดจึงความสำคัญที่จะต้องศึกษาอย่างลึกซึ้งเพื่อที่จะสร้างความมั่นใจในผลของการวิเคราะห์ โดยเฉพาะอย่างยิ่ง ไอโซโทป 234 และ 236 ของยูเรเนียมซึ่งมีปริมาณน้อยมากในระดับหนึ่งในล้านส่วน ในที่สุดแล้วผลการวิเคราะห์ไอโซโทปด้วยเครื่องมือ SIMS IMS 1280 นั้นสามารถพิสูจน์ได้ว่ามีความแม่นยำ และถูกต้องกว่าเครื่องมือเดิมที่ใช้อย่างมีนัยสำคัญ นำมาซึ่งระดับความมั่นใจยิ่งขึ้นในการสรุปว่าประเทศสมาชิกไม่มีการนำพลังงานปรมาณูไปใช้ในทางมิชอบ