

# **Optimalisatie van oplosmethoden voor verschillende types van matrices voor de bepaling van vluchtige en moeilijk te bepalen radionucliden**

**KANDIDAAT**

Nick Simons

**MENTOR**

Dr. Lesley Adriaensen

SCK-CEN – Studiecentrum voor kernenergie

**STAGEBEGELEIDER**

Dr. Dorine Wambeke

**Opleiding**

**Master in de industriële wetenschappen: chemie**

**2012-2013**





## Dankwoord

Deze thesis is enkel tot stand kunnen komen door de hulp van verschillende personen.

Allereerst wil ik mijn bedrijfsmentor bij het SCK•CEN, Lesley Adriaensen, bedanken voor de kans die ze me gaf om stage te lopen bij het SCK•CEN en voor de uitstekende coördinatie en begeleiding gedurende mijn stage.

Vervolgens wil ik mijn collega's in het labo, Karolien Van Rompaey en Magda Ooms, bedanken voor de nodige uitleg en tips die ze me gegeven hebben bij het uitvoeren van de experimenten.

Ook wil ik Freddy Verrezen zeker bedanken voor zijn tijd en uitleg over het principe van liquid scintillation counting. Zonder zijn hulp zou het begrijpen van deze meetmethode veel ingewikkelder zijn geweest.

Verder ook speciale dank voor mijn stagebegeleider van Artesis, mevrouw D. Wambeke, voor de opvolging en verbetering van de thesis en de coördinatie die daarbij hoort.

Als laatste wil ik graag mevrouw L. Beenaerts bedanken voor de uitstekende coördinatie van de masterproeven van alle masterstudenten van Artesis.

## Samenvatting

Omdat er steeds meer belang wordt gehecht aan veiligheid, worden de criteria voor de verwerking en/of berging van radioactief afval steeds strenger. Als gevolg daarvan is het nodig om analyses te kunnen uitvoeren van (radio)nucliden die slechts in zeer lage concentraties in het afval aanwezig zijn en/of van (radio)nucliden die moeilijk te bepalen zijn. Zo wordt de analyse met een zo laag mogelijke detectielimiet van vluchtige radionucliden zoals C-14 en Cl-36, en van moeilijk te bepalen radionucliden zoals Fe-55, Ni-63 en I-129, steeds belangrijker. In deze masterthesis worden de analysemethodes geoptimaliseerd voor de volgende kritische nucliden: C-14, I-129, Cl-36 en Tc-99. Dit zijn langlevende radionucliden die geanalyseerd kunnen worden via  $\beta$ -stralen. Voor sommige radionucliden, zoals I-129 en Tc-99 kan de analyse uitgevoerd worden met ICP-MS.

Een groot deel van het radioactieve afval komt voor in vaste vorm. Een eerste stap in het analyseproces van dit vast afval is om de te bepalen radionucliden in oplossing te brengen. Voor het oplossen zijn volgende technieken gebruikt; gewone chemische oplosmethode en een hoge druk bom. De uiteindelijke keuze van oplosmethode is afhankelijk van de afvalmatrix en van de radionucliden die men wil bepalen. In dit werk zullen verschillende types van mogelijke vaste afvalmatrices worden opgelost. Deze zijn harsen, papierfilters, roestvrij staal en beton/cement. Wanneer de matrices opgelost zijn, worden ze geanalyseerd. Hiervoor worden twee methoden gebruikt; LSC (liquid scintillation counting/vloeibare scintillatie telling) en ICP-MS (inductief gekoppeld plasma massaspectrometrie).

Gedurende deze stage is het gelukt alle vaste matrices in oplossing te krijgen via een gewone chemische oplosmethode. Eens de matrices in oplossing, dient de bekomen oplossing geanalyseerd te worden met LSC. De tracers (C-14 en Cl-36) die werden toegevoegd aan de matrix voor het oplosproces werden voor 80 à 100% teruggevonden in de oplossing, hetgeen een goed resultaat is.

## Abstract

The increasing importance given to safety, the criteria for processing and / or disposal of radioactive waste become stricter. As a result, it is necessary to be able to carry out some analysis on (radio) nuclides, which are only present in very low concentrations in the waste and/or on (radio) nuclides, which are difficult to determine. Thus, the analysis with an as low as possible limit of detection of volatile radionuclides such as C-14 and C-36, and difficult to determine radionuclides such as Fe-55, Ni-63 and I-129, is becoming increasingly important. In this thesis, the analyses are optimized for the following critical nuclides: C-14, I-129, C-36 and Tc-99. These are long-lived radionuclides that may be analyzed via  $\beta$ -rays. For some radionuclides, such as I-129 and Tc-99, the analysis can be performed by ICP-MS.

A large part of the radioactive waste is in solid form. A first step in the analysis process of the solid waste is to solve the determined radionuclides. To solve the waste following techniques are used; ordinary chemical solution method and a high pressure bomb. The final choice of solvent will depend on the method of waste matrix and on which radionuclides one wants to determine. In this work, several types of possible solid waste matrices are solved. These are resins, paper filters, stainless steel and concrete/cement. When the matrices are solved, they are analyzed. There are two common methods used; LSC (liquid scintillation counting) and ICP-MS (inductively coupled plasma mass spectrometry).

During this internship, all solid matrices are brought into solution by using a simple chemical solution method. Once the matrices are in solution, the obtained solution should be analyzed with LSC. 80 to 100 % of the tracers (C-14 and C-36), which were added to the matrix for the dissolving process, were found in the solution, which is a good result.

# Inhoudsopgave

HOOFDSTUK 1: INLEIDING.....	1
1.1 SCK•CEN.....	1
1.2 Doel en probleemstelling.....	1
HOOFDSTUK 2: RADIOACTIVITEIT .....	3
2.1 Algemeen.....	3
2.1.1 Meeteenheden .....	4
2.2 Straling en vervalprocessen .....	6
2.2.1 Alfastraling.....	6
2.2.2 Bètastraling.....	7
2.2.3 Gammastraling .....	10
2.3 Wat is radioactief afval? .....	11
2.3.1 Waar zit het probleem? .....	11
2.3.2 Oorsprong.....	12
2.3.3 Classificatie van radioactief afval .....	13
2.4 Halveringstijd .....	14
2.5 Radionucliden .....	15
2.5.1 Koolstof-14 (C-14) → vluchtig/LSC .....	15
2.5.2 Jodium-129 (I-129) → vluchtig/ICP-MS.....	16
2.5.3 Chloor-36 (Cl-36) → vluchtig/LSC.....	17
HOOFDSTUK 3: MEETMETHODES .....	18
3.1 ICP-MS – Inductief gekoppeld plasma massaspectrometrie.....	18
3.1.1 Het instrument: Q-ICP-MS .....	18
3.2 LSC – Liquid scintillation counting - Vloeistofscintillatietelling.....	24
3.2.1 Principe.....	24
3.2.2 Quenching .....	25
HOOFDSTUK 4: EXPERIMENTEN .....	26
4.1 Oplossen van verschillende matrices via een chemische oplosmethode.....	27
4.1.1 Oplossen van een papierfilter.....	27
4.1.3 Oplossen van roestvrij staal (RVS) .....	28
4.1.4 Oplossen van beton .....	29
4.1.5 Oplossen van harsen .....	30
4.2 Oplossen van matrices met toevoeging van tracers .....	31
4.2.1 Opstelling.....	31
4.2.2 Oplossen van RVS met toevoeging van tracers .....	32
4.2.3 Oplossen van harsen met toevoeging van tracers.....	33
4.2.4 Oplossen van beton met toevoegen van tracers.....	34
4.3 C-14 en Cl-36 bepaling via LSC .....	35
4.3.1 Roestvrij staal .....	35

---

4.3.2	DOWEX .....	36
4.3.3	Anionische en kationische harsen .....	37
4.3.4	Overzicht C-14 en Cl-36 bepaling via LSC - besluit .....	37
4.4	Jodiumbepaling via ICP-MS .....	39
4.4.1	Maken van de standaarden .....	39
4.4.2	Maken van de verdunningen .....	39
4.5	Oplossen van verschillende matrices via hoge druk bommen .....	41
4.6	Algemeen besluit.....	42
HOOFDSTUK 5: BIBLIOGRAFIE.....		43

## Symbolen

Bq	Becquerel
$e^-$	elektron
$e^+$	positron
Gy	Gray
keV	kiloelektronvolt
Sv	Sievert
$\nu_e$	neutrino
$\bar{\nu}_e$	antineutrino

## Afkortingen

AAS	Atomaire absorptie spectrometrie
EC	Electron capture - Elektronenvangst
ICP-AES	Inductief gekoppeld plasma – atomaire emissie spectrometrie
ICP-MS	Inductief gekoppeld plasma – massaspectrometrie
LSC	Liquid scintillation counting – Vloeistofscintillatietelling
NIRAS	Nationale Instelling voor het beheer van de Radioactieve Afvalstoffen en de Splitsbare materialen
SCK•CEN	Studiecentrum voor kernenergie • Centre d'Etude de l'énergie Nucléaire
SF-ICP-MS	Sector veld inductief gekoppeld plasma massaspectrometrie
Q-ICP-MS	Quadrupool inductief gekoppeld plasma massaspectrometrie
i.p.v.	In plaats van
DL	Detectielimiet



## Verklarende woordenlijst

radionuclide	Onstabiele isotopen van elementen die door radioactief verval overgaan naar een ander element, een andere isotoop van hetzelfde element of een stabiele kern van dezelfde isotoop.
afvalmatrix	Het belangrijkste materiaal waaruit het (radioactief)afval bestaat bijvoorbeeld beton of staal.
halfwaardetijd ( $t_{1/2}$ )	De tijdsduur waarin de helft van de kernen van een radionuclide verval.
langlevend	Radionucliden met een lange halfwaardetijd.
verval	De spontane overgang van een nuclide in een ander nuclide of in een energietoestand van dezelfde nuclide. Ieder vervalproces wordt gekarakteriseerd door een bepaalde halveringstijd.
nucleon	proton of neutron als bestanddeel van de atoomkern.
positron ( $p^+$ )	Een positron is een deeltje met dezelfde massa als een elektron, maar met tegengestelde lading.
neutrino	Een elementair (kan niet worden gesplitst), subatomair deeltje zonder lading, met zeer kleine massa. Dit komt vrij tijdens $\beta^+$ verval.
antineutrino	Een gelijkaardig deeltje als een neutrino. Dit komt vrij tijdens $\beta^-$ verval.
interne conversie	Radioactief vervalproces waarbij een geëxciteerde kern reageert met een elektron vanuit één van de lagere atoomorbitalen. Hierdoor kan emissie van elektronen en/of gamma stralen optreden.
desintegratie	Uiteenvallen/splitsing
ioniserende straling	Straling die voldoende energetisch is om een elektron uit de buitenste schil weg te slaan.
ionisatie	Het proces waarbij een atoom of molecuul uit ongeladen toestand een elektron kwijtraakt of er één bij krijgt en als gevolg daarvan verandert in een ion.
kosmische straling	Verzamelnaam voor deeltjes en fotonen met een hoge energie, die ons vanuit de kosmos bereiken.
fall-out	Radioactieve neerslag. De aanduiding voor het stralingsgevaar dat wordt gevormd door neerdalend stof dat na een kernexplosie in de atmosfeer of aan het aardoppervlak neerdaalt.
desolvateren	Breken van de binding tussen opgeloste stof en oplosmiddel.
dynode	Reeks van elektroden in een multiplicator, die zich tussen de anode en de kathode bevinden.

## Omrekeningsfactoren van niet SI-eenheden

ppm parts per million

- 1 ppm = 1  $\mu\text{g/g}$  voor vaste stoffen
- 1 ppm = 1  $\mu\text{g/mL}$  voor verdunde waterige oplossingen

ppb parts per billion

- 1 ppb = 1  $\mu\text{g/kg}$  voor vaste stoffen
- 1 ppb = 1  $\mu\text{g/L}$  voor verdunde waterige oplossingen

## Figuren- en tabellenlijst

### Figurenlijst

Figuur 1-1: SCK•CEN.....	1
Figuur 2-1: De kernkaart: de x- en y-as tonen respectievelijk het aantal neutronen N en het aantal protonen Z. Elke vakje stelt een kern voor, waarbij de zwarte vakjes de stabiele kernen vertegenwoordigen. De andere kernen zijn onstabiel en zullen een bepaald vervalproces ondergaan.....	3
Figuur 2-2: Alfastraling → uitzenden van een energierijk deeltje.....	6
Figuur 2-3: Bétastraling → uitzenden van een elektron.....	7
Figuur 2-4: Bèta(min)verval van Cesium-137 .....	8
Figuur 2-5: Bèta(plus)verval van Natrium-22 .....	9
Figuur 2-6: Principe van elektronenvangst .....	9
Figuur 2-7: Gammastraling → uitzenden van elektromagnetische straling.....	10
Figuur 2-8: Halveringstijd.....	14
Figuur 3-1: QF-ICP-MS .....	19
Figuur 3-2: Verstuiver + verstuiverkamer.....	19
Figuur 3-3: Plasmatoorts .....	20
Figuur 3-4: Interface .....	21
Figuur 3-5: Elektrostatisch lenzensysteem .....	21
Figuur 3-6: Quadropool ICP-massaspectrometer .....	22
Figuur 3-7: Schematische voorstelling LSC .....	24
Figuur 4-1: Opstelling oplosmethode.....	31

### Tabellenlijst

Tabel 2-1: Eigenschappen C-14 .....	16
Tabel 2-2: Eigenschappen I-129.....	16
Tabel 2-3: Eigenschappen Cl-36 .....	17
Tabel 4-1: Oplossen van een papierfilter .....	27
Tabel 4-2: Oplossen van roestvrij staal.....	28
Tabel 4-3: Oplossen van beton .....	29
Tabel 4-4: Oplossen van harsen.....	30
Tabel 4-5: Oplossen van RVS met toevoeging van tracers (experiment A) .....	32
Tabel 4-6: Oplossen van RVS met toevoeging van tracers (experiment B) .....	32
Tabel 4-7: Oplossen van DOWEX met toevoeging van tracers (experiment C) .....	33
Tabel 4-8: Oplossen van anionische en kationische harsen (50:50) met toevoeging van tracers (experiment D).....	34
Tabel 4-9: Oplossen van beton met toevoeging van tracers (experiment E) .....	34
Tabel 4-10: C-14 en Cl-36 bepaling via LSC na het oplossen van RVS (Experiment A) .....	35
Tabel 4-11: C-14 en Cl-36 bepaling via LSC na het oplossen van RVS (Experiment B) .....	36
Tabel 4-12: C-14 en Cl-36 bepaling via LSC na het oplossen van DOWEX (Experiment C).....	36
Tabel 4-13: C-14 en Cl-36 bepaling via LSC na oplossen van een 50:50 mengsel van anionische en kationische harsen (Experiment D).....	37

Tabel 4-14: Overzicht C-14 en Cl-36 bepaling via LSC .....	37
Tabel 4-15: Het maken van standaarden (mL) .....	39
Tabel 4-16: Het maken van standaarden (g) .....	39
Tabel 4-17: Het maken van verdunningen (mL).....	39
Tabel 4-18: Het maken van verdunningen (g).....	40
Tabel 4-19: Temperatuurprofiel A.....	41
Tabel 4-20: Temperatuurprofiel B.....	41

## HOOFDSTUK 1: INLEIDING

### 1.1 SCK•CEN <sup>(1)</sup>

Het Studiecentrum voor Kernenergie, SCK•CEN, is een stichting van openbaar nut. Met laboratoria in Mol en een maatschappelijke zetel in Brussel, is het een van de grootste onderzoekscentra in België. Ongeveer 700 mensen werken aan de ontwikkeling van vreedzame toepassingen van ioniserende straling.



**Figuur 1-1: SCK•CEN <sup>(1)</sup>**

De belangrijkste missie van het bedrijf omvat belangrijke maatschappelijke onderwerpen: de veiligheid van nucleaire installaties, oplossingen voor de opberging van radioactief afval, stralingsbescherming, duurzame ontwikkeling en onderwijs. Het Studiecentrum ontwikkelt, verzamelt en verspreidt ook zijn kennis door opleiding en communicatie en de beschikbare knowhow en infrastructuur worden ook gebruikt voor dienstverlening aan de nucleaire industrie, de medische sector en de overheid.

### 1.2 Doel en probleemstelling

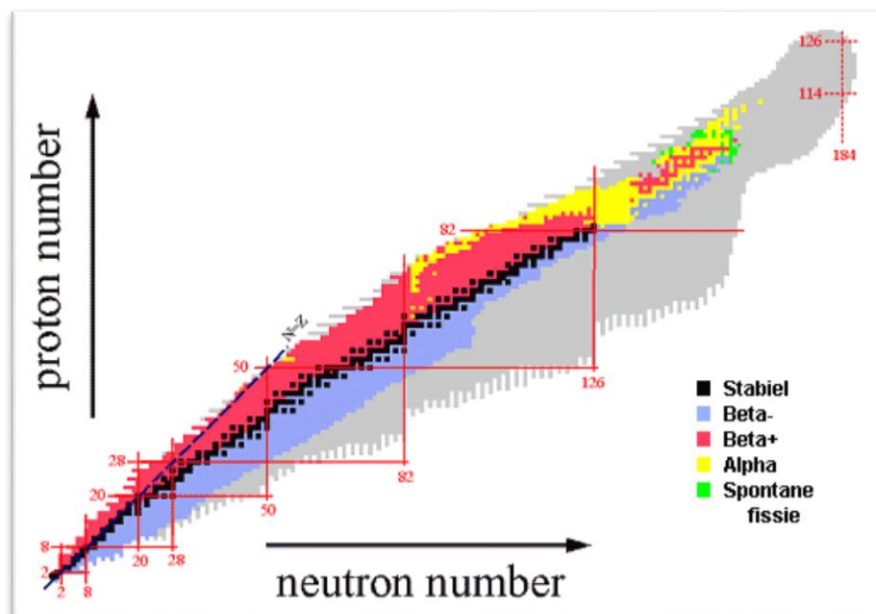
Omdat er steeds meer belang wordt gehecht aan veiligheid, worden de criteria voor de verwerking en/of berging van radioactief afval steeds strenger. Als gevolg daarvan is het nodig om analyses te kunnen uitvoeren van (radio)nucliden die slechts in zeer lage concentraties in het afval aanwezig zijn en/of van (radio)nucliden die moeilijk te bepalen zijn. Zo wordt de analyse met een zo laag mogelijke detectielimiet van vluchtige radionucliden zoals C-14 en Cl-36, en van moeilijk te bepalen radionucliden zoals Fe-55, Ni-63, Nb-94 en Sr-90, steeds belangrijker. In deze masterthesis zullen de analysemethodes worden geoptimaliseerd voor de volgende kritische nucliden: C-14, I-129, Cl-36, Tc-99. Dit zijn langlevende radionucliden die geanalyseerd kunnen worden via  $\beta$ - en X-stralen. Voor sommige radionucliden, zoals I-129 en Tc-99 kan de analyse uitgevoerd worden met ICP-MS.

Een groot deel van het radioactieve afval komt voor in vaste vorm. Een eerste stap in het analyseproces van dit vast afval is om de te bepalen radionucliden in oplossing te brengen. Voor het oplossen zijn verschillende technieken voorhanden; gewone chemische oplosmethode, een buisoven, een microgolf of een hoge druk bom. De uiteindelijke keuze van oplosmethode is afhankelijk van de afvalmatrix en van de radionucliden die men wil bepalen. In dit werk zullen verschillende types van mogelijke vaste afvalmatrices worden opgelost. Deze zijn harsen, papierfilters, roestvrij staal en beton/cement. Wanneer de matrices opgelost zijn, kunnen ze geanalyseerd worden. Hiervoor worden gedurende deze masterproef twee methoden gebruikt; LSC (liquid scintillation counting/vloeibare scintillatie telling) en ICP-MS (inductief gekoppeld plasma massaspectrometrie).

## HOOFDSTUK 2: RADIOACTIVITEIT

### 2.1 Algemeen <sup>(2)</sup> <sup>(3)</sup> <sup>(4)</sup>

Een atoomkern is opgebouwd uit twee typen van nucleonen, positief geladen protonen en neutrale neutronen. De plaats van een atoom in de tabel van Mendeljev, hangt enkel af van het aantal protonen aanwezig in de kern ( $Z$ ). Het aantal aanwezige neutronen ( $N$ ) bepaalt om welke isotoop van het chemisch element het gaat. Elke atoomkern is voorgesteld door een vakje op de kernkaart, gerangschikt volgens  $Z$  en  $N$ , zoals te zien is in Figuur 2-1. De zwarte vakjes stellen de 'stabiliteitsvallei' voor, de kernen die zich stabiel gedragen. Alle andere kernen zijn instabiel. Deze kernen zullen proberen naar een stabiele toestand over te gaan d.m.v. verval. Over het algemeen gebeurt dit verval sneller naarmate de kern verder van de vallei vandaan ligt.



**Figuur 2-1: De kernkaart: de x- en y-as tonen respectievelijk het aantal neutronen  $N$  en het aantal protonen  $Z$ . Elke vakje stelt een kern voor, waarbij de zwarte vakjes de stabiele kernen vertegenwoordigen. De andere kernen zijn onstabiel en zullen een bepaald vervalproces ondergaan. <sup>(2)</sup>**

Atomen zijn stabiel wanneer er voldaan wordt aan de voorwaarde dat er evenwicht is tussen de verschillende deeltjes (protonen en neutronen) in de kern. In sommige gevallen kan het evenwicht verstoord worden. Dit komt voor wanneer er teveel protonen zijn in vergelijking met het aantal neutronen, wanneer er teveel neutronen zijn in vergelijking met het aantal protonen en wanneer er teveel zijn van beide. In deze gevallen is er een teveel aan energie in de kern aanwezig, er wordt gezegd dat deze atoomkern instabiel of radioactief is. Zij zullen zoals hierboven vermeld wordt een bepaald vervalproces ondergaan. Radioactief verval is een spontane verandering in de kern van een atoom waarbij deeltjes ( $\alpha$  of  $\beta$ ) of elektromagnetische straling ( $\gamma$ ) wordt geëmitteerd. Hierbij komt steeds energie vrij en is de massa van de gevormde product(en) steeds kleiner dan die van de uitgangsubstantie.

Een onstabiele kern blijft energie afstoten zolang er in de kern geen evenwicht bereikt is. Dit evenwicht kan bekomen worden in één of meerdere stappen van verval. De uitgezonden straling van radioactieve stoffen heeft een hoeveelheid energie. Wanneer deze stralen door materie gaan zullen ze botsen tegen atomen of moleculen waaraan ze een deel van hun energie overdragen.

### **2.1.1 Meeteenheden <sup>(5)</sup>**

#### **2.1.1.1 De eenheid voor activiteit van een radioactieve stof → Becquerel**

De eenheid voor de meting van radioactiviteit is de Becquerel, afgekort Bq. Eén Becquerel komt overeen met één desintegratie per seconde. Het water in de oceanen bijvoorbeeld heeft een radioactiviteit van ongeveer 12 Bq per liter. Het menselijk lichaam heeft een gemiddelde radioactiviteit van ongeveer 120 Bq per kilogram.

#### **2.1.1.2 De eenheid van geabsorbeerde dosis → Gray**

Ioniserende straling draagt energie over op weefsel. De hoeveelheid energie die wordt overgedragen op een bepaalde hoeveelheid weefsel wordt de geabsorbeerde dosis genoemd. Deze wordt uitgedrukt in Gray (Gy). Eén Gray stemt overeen met 1 Joule/kilogram.

#### **2.1.1.3 De eenheid voor de equivalente dosis → Sievert**

Sommige soorten straling veroorzaken meer ionisatie dan andere. Alfastralen meer dan bèta- en gammastralen. Om hiermee rekening te houden wordt de geabsorbeerde dosis vermenigvuldigd met een factor om te komen tot de equivalente dosis. Deze laatste wordt uitgedrukt in Sievert (Sv).

#### **2.1.1.4 De eenheid voor de effectieve dosis → milliSievert**

Sommige weefsels en organen zijn gevoeliger voor straling dan andere (bijvoorbeeld genitale klieren meer dan botten). Om hiermee rekening te houden wordt de equivalente dosis gewogen met een specifieke risicofactor voor elk weefsel of orgaan om de effectieve dosis te krijgen. Dit systeem biedt het voordeel dat alle soorten menselijke blootstelling aan ioniserende straling kunnen worden uitgezet op één risicoschaal.

De effectieve dosis, vaak kortweg dosis genoemd, wordt aangegeven in Sievert. Onder normale omstandigheden is deze waarde zeer laag, daarom wordt er vaak gesproken van milliSievert (mSv). De wettelijke dosis-jaarlimes bedraagt 20 mSv. Op het SCK•CEN is de maximaal toegelaten dosis in een periode van 12 opeenvolgende maanden 10 mSv. De huidige jaardosis voor iemand in België bedraagt gemiddeld 4,6 mSv waarvan 2,1 mSv



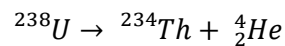
medisch en de rest, 2,5 mSv, van natuurlijke herkomst. De dosis te wijten aan radonstraling uit de aarde of de atmosfeer bedraagt ~0,28 mSv/jaar.

## 2.2 Straling en vervalprocessen

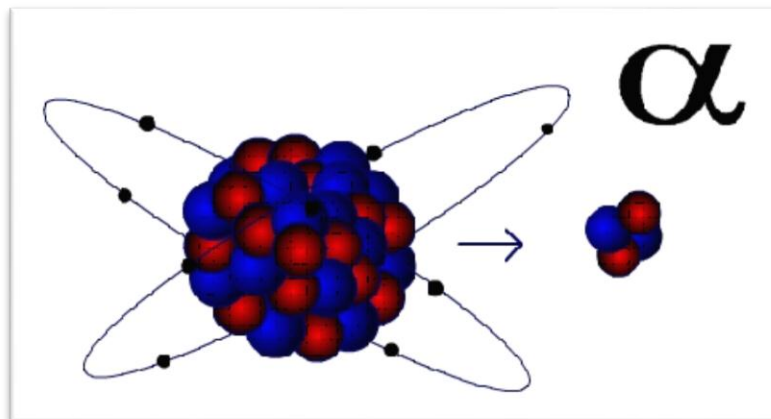
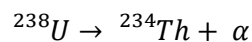
### 2.2.1 Alfastraling<sup>(3) (6)</sup>

Dit soort straling bestaat uit deeltjes. Alfa deeltjes zijn energierijke deeltjes die uitgestoten worden uit onstabiele atoomkernen. Deze energiedeeltjes zijn relatief groot en zwaar, het zijn heliumkernen die bestaan uit twee protonen en twee neutronen. Door hun grootte zijn alfastralen niet zeer doordringend en worden ze snel afgeremd, een blad papier kan hiervoor al voldoende zijn.

Een voorbeeld van een alfaverval reactie is:



Deze reactie wordt vaak korter geschreven met een alfadeeltje ( $\alpha$ ) in plaats van de heliumkern:



Figuur 2-2: Alfastraling → uitzenden van een energierijk deeltje<sup>(6)</sup>

#### 2.2.1.1 Gevaar

Zoals reeds vermeld kunnen alfadeeltjes reeds tegengehouden worden door een blad papier. Echter, als ze in het lichaam worden opgenomen kunnen ze zeer gevaarlijk zijn als gevolg van hun beperkt doordringend vermogen. Ze kunnen bijvoorbeeld via het voedsel of via injectie in het lichaam terecht komen. Eenmaal de alfadeeltjes zich in het lichaam bevinden, geven zij hun energie zeer snel af. Bijgevolg zijn zij in staat grote schade teweeg

te brengen in hun directe omgeving. Deze schade wordt veroorzaakt omdat alle energie die vrijkomt bij het verval zich in een klein gebied om de vervallende kern concentreert.

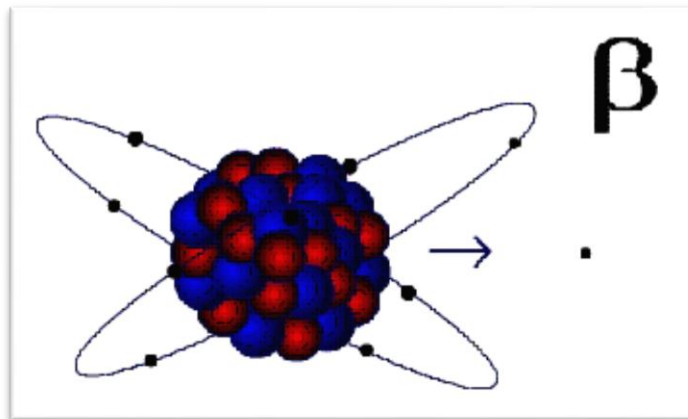
Een andere manier van besmetting is door blootstelling aan gasvormige alfastralers. Een voorbeeld van een gasvormige alfastraler is Ra-226. Wanneer het isotoop twee protonen verliest gedurende zijn vervalproces, wordt Rn-222, gevormd. Dit gevormde radon kan ingeademd worden, waardoor de binnenkant van de longen veel schade kan oplopen. Een ander probleem dat zich voordoet is dat de vervalproducten van Rn-222 niet meer vluchtig zijn, ze zetten zich daarom af in de longen. Ook deze vervalproducten zijn op hun beurt weer radioactief.

Een ander voorbeeld van alfastralers die door inademing gevaarlijk worden is polonium-210, een radioactieve isotoop die ook in sigarettenrook zit.

## 2.2.2 Bètastraling <sup>(3)</sup> <sup>(6)</sup>

Bètastraling is een soort ioniserende straling die bestaat uit deeltjes, namelijk elektronen of positronen. Zij worden van de atoomkern weggeslingerd met een snelheid van 270 000 km/s. Het doordringend vermogen van deze straling is sterker dan dat van alfastraling. Ze kunnen bijgevolg niet meer tegengehouden worden door een blad papier. Bètastralen worden tegengehouden door bijvoorbeeld een aluminiumplaat van enkele millimeters of door drie meter lucht.

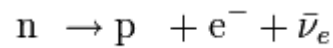
Bètastraling ontstaat tijdens het  $\beta$ -vervalproces, waarin een atoomkern een elektron ( $e^-$ ) of positron ( $e^+$ ) uitzendt. Er zijn twee soorten bètastraling,  $\beta^-$  en  $\beta^+$ -straling.



Figuur 2-3: Bètastraling → uitzenden van een elektron <sup>(6)</sup>

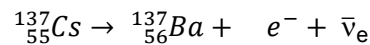
### 2.2.2.1 $\beta^-$ -verval

Wanneer een kern over teveel neutronen beschikt om stabiel te zijn, wordt er een neutron omgezet in een proton. Hierbij wordt eveneens een elektron ( $e^-$ ) en een antineutrino ( $\bar{\nu}_e$ ) gevormd.

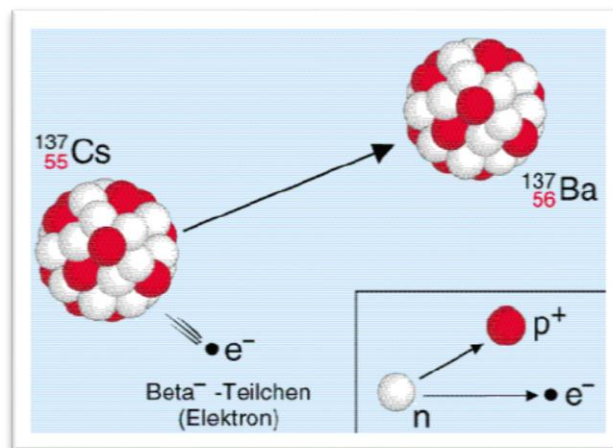


Dit proces mag niet verward worden met interne conversie, waarbij een aan het atoom gebonden elektron wordt uitgezonden. De verandering van een neutron in een proton heeft nagenoeg geen invloed op de massa van de kern. Deze blijft ongeveer gelijk, aangezien het neutron en het proton vrijwel even zwaar zijn. Bij deze vorm van verval blijft het massagetal gelijk, maar neemt het atoomnummer toe met 1.

Voorbeeld:



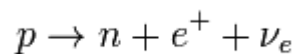
De halveringstijd van Cs-137, in het bovenstaande voorbeeld, bedraagt 30,2 jaar.



Figuur 2-4: Bèta(min)verval van Cesium-137<sup>(7)</sup>

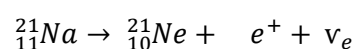
### 2.2.2.2 $\beta^+$ -verval

Wanneer een kern over te weinig neutronen beschikt om stabiel te zijn, wordt er een proton omgezet in een neutron. Hierbij wordt een positron ( $e^+$ ) en een neutrino ( $\nu_e$ ) weggeschoten.

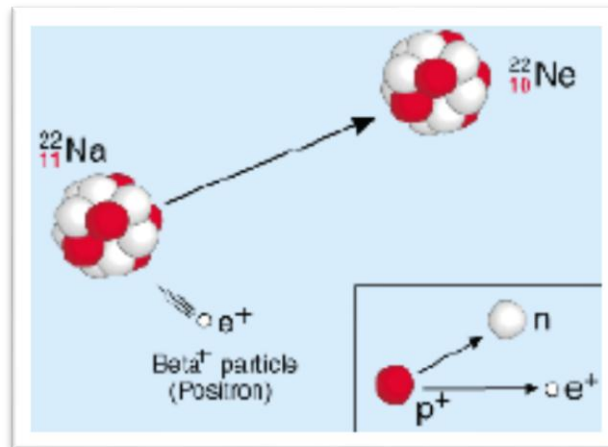


Bij deze vorm van verval blijft het massagetal gelijk, maar neemt het atoomgetal af met 1.

Voorbeeld:



De halveringstijd van Na-21, in het bovenstaande voorbeeld, bedraagt 23 seconden.

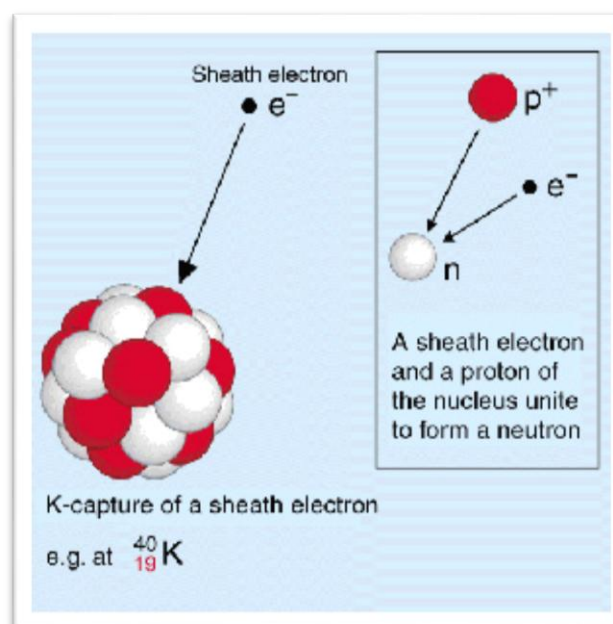


Figuur 2-5: Bèta(plus)verval van Natrium-22<sup>(7)</sup>

### 2.2.2.3 Elektronenvangst (electron capture - EC)<sup>(4)</sup>

Elektronenvangst is het proces waarbij een elektron opgenomen wordt in de kern. Meestal is het elektron afkomstig uit de K- of L-schil en wordt het opgenomen door een proton. Door deze opname wordt het proton, samen met het opgenomen elektron, omgezet in een neutron en een neutrino. Bij deze omzetting blijft het massagetal gelijk, maar het atoomgetal wordt met één verlaagd. Elektronenvangst treedt op bij isotopen waarbij teveel protonen aanwezig zijn in de kern, en er te weinig energie is om een positron uit te zenden.

Voorbeeld: Rubidium-83 zal enkel en alleen via elektronenvangst vervallen tot krypton-83.



Figuur 2-6: Principe van elektronenvangst<sup>(8)</sup>

### 2.2.3 Gammastraling<sup>(3) (6) (9)</sup>

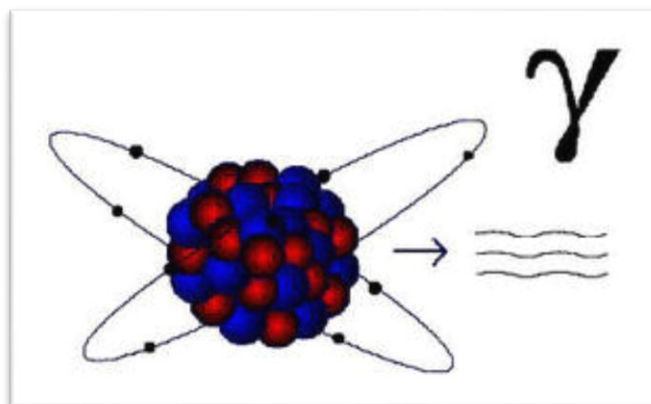
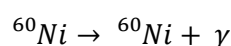
Bij gammastraling worden onzichtbare elektromagnetische stralen uitgezonden met een energie die hoger is dan ultraviolet licht en X-straling. Ze kan het gevolg zijn van verschillende processen. Het komt voor wanneer na het optreden van alfa- en/of bètaverval de kern niet volledig terugkeert naar de grondtoestand, bij paarproductie en bij interne conversie. Paarproductie komt voor als het energieverschil tussen energieniveaus minstens 1022 keV is. Wanneer een elektron ( $e^-$ ) en een  $\beta^+$ -deeltje elkaar tegenkomen zullen deze elkaar als het ware vernietigen. Bij dit annihilatieproces komt een bepaalde hoeveelheid energie vrij onder de vorm van gammastralen. Het elektron-positronpaar resulteert in de productie van twee fotonen met elk een energie van  $\sim 511$  keV die onder een hoek van  $180^\circ$  worden uitgezonden.

Interne conversie is het proces waarbij de beschikbare energie wordt gebruikt om een elektron uit de atoomschil te emitteren. In tegenstelling tot alfa- en bètastraling worden er bij gammastraling geen deeltjes uitgezonden. Door hun hoge energie kunnen gammastralen ver doordringen in het omringende materiaal.

Ze zijn in staat chemische bindingen te breken en elektronen los te maken uit atomen. Wanneer het menselijk lichaam blootgesteld wordt aan een grote hoeveelheid gammastraling, kunnen er in de moleculen van de menselijke cellen chemische bindingen gebroken worden. Hierdoor zullen de levende weefsels beschadigd worden. De straling kan slechts worden tegengehouden door zware stoffen zoals ijzer, beton of lood van enkele centimeters tot meters dik, afhankelijk van de intensiteit van de straling.

Het ioniserende vermogen daarentegen is lager dan dat van alfastraling.

Voorbeeld:



**Figuur 2-7: Gammastraling → uitzenden van elektromagnetische straling<sup>(6)</sup>**

## 2.3 Wat is radioactief afval? <sup>(3)</sup> <sup>(10)</sup>

Afval wordt bekomen bij elke menselijke bedrijvigheid, het is radioactief wanneer het in contact is geweest met radioactieve stoffen, wanneer het is opgebouwd uit radioactieve stoffen of wanneer het radioactieve stoffen bevat. Er zijn tal van processen en sectoren waar radioactief afval geproduceerd wordt; bij de productie van elektriciteit in kerncentrales, bij het gebruik van radioactieve stoffen in geneeskunde, landbouw, industrie en onderzoek, en een groot deel bij de ontmanteling van nucleaire installaties.

Radioactief afval is qua uitzicht niet verschillend van huishoudelijk en industrieel afval. Het kan bestaan uit allerlei materialen, gereedschappen, toestellen, leidingen, afgebroken installaties en beschermende kledij die niet meer gebruikt kunnen worden. Het verschil met gewoon afval is dat radioactief afval stoffen bevat die ioniserende straling uitzenden.

Een ander gedeelte van het radioactief afval is afkomstig van de verbruikte kernbrandstoffen in kernreactoren. Deze zijn na gebruik hoogradioactief.

In België is NIRAS/ONDRAF verantwoordelijk voor het beheer van radioactief afval. Het gaat hier om de productie van radioactief afval, het transport ervan, de behandeling en conditionering van het afval, de opslag en de finale berging. NIRAS staat voor 'Nationale Instelling voor het beheer van de Radioactieve Afvalstoffen en de Splitsbare materialen'.

Het radioactieve afval vertegenwoordigt slechts 0,02% van al het afval, zowel industrieel als huishoudelijk, dat in België geproduceerd wordt.

### 2.3.1 Waar zit het probleem? <sup>(3)</sup> <sup>(10)</sup>

Het probleem is dat radioactief afval ioniserende straling uitzendt. Deze straling kan veranderingen aanbrengen en schade aanrichten in de materie waarin ze doordringt. Bijgevolg kunnen ook levende weefsels beschadigd worden waardoor de straling schadelijk is voor mens en milieu.

De radioactiviteit van het afval zal in functie van de tijd verminderen. Afhankelijk van het soort radionucliden die aanwezig zijn in het afval, kan het echter zeer lang duren vooraleer de radioactiviteit gehalveerd is. Er moet bijgevolg voorzichtig omgegaan worden met radioactief afval, wat betreft behandeling, berging enz..., om het gevaar voor mens en milieu te beperken.

### 2.3.2 Oorsprong<sup>(3)</sup> (11)

Radioactief afval is, zoals eerder vermeld, afkomstig van drie belangrijke bronnen:

- de productie van elektriciteit via kernenergie;
- toepassingen van radioactiviteit in geneeskunde, landbouw, industrie en wetenschappelijk onderzoek;
- de ontmanteling van (stilgelegde) nucleaire installaties.

Het overgrote deel van het radioactieve afval in België is afkomstig van bedrijven die betrokken zijn bij de productie van elektriciteit via kernenergie. Onder dit afval wordt niet enkel de verbruikte kernbrandstof verstaan, maar ook vervangstukken (zoals buizen of kleppen), afval van water- of gaszuiveringsinstallaties (zoals slijk en filters) en beschermingsmaterialen (zoals handschoenen en overschoenen). Dit soort afval noemt men exploitatieafval.

Bij de productie van elektriciteit met kernenergie wordt radioactief afval bekomen in verschillende fasen, reeds vanaf het ontwikkelen van de nucleaire brandstof. Verder wordt afval bekomen bij:

- het winnen en bewerking van uraniumertsen;
- de aanrijking van het uranium;
- de fabricage van de kernbrandstofstaven;
- de conditionering van het afval;
- de ontmanteling van de installaties.

Dit maakt ~ 80% uit van de totale radioactieve afvalproductie.

Ook in geneeskunde, landbouw en industrie worden radioactieve stoffen gebruikt. In ziekenhuizen gebruikt men bijvoorbeeld dagelijks radioactieve stoffen en ioniserende straling, zowel om ziekten op te sporen (scanner) als om ze te behandelen (bestraling van kankertumoren). Het onderzoek naar, en de productie en het gebruik van deze radioactieve stoffen leveren ook radioactief afval op.

Bij de ontmanteling worden niet meer gebruikte kerninstallaties vrijgemaakt van radioactieve besmetting. De besmette uitrustingen worden gedemonteerd en de besmette oppervlakken worden gedecontamineerd. De materialen en uitrustingen die volledig ontsmet zijn, kunnen gerecycleerd worden of zoals gewoon industrieel afval afgevoerd worden. De rest moet verder behandeld worden als radioactief afval.



### 2.3.3 Classificatie van radioactief afval<sup>(3)</sup> (12) (13)

De classificatie van radioactief afval kan in twee stappen opgedeeld worden, namelijk het beheer op korte termijn en het beheer op lange termijn.

Bij beheer op korte termijn spreekt men onder andere over de verwerking en de tijdelijke opslag van radioactief afval. Dit wordt opgedeeld in drie grote categorieën, op basis van het activiteitsniveau (het aantal nucleaire desintegraties per tijdseenheid, Bq) en de aard van de straling die het afval uitzendt. Een derde factor is belangrijk bij het transport en de opslag van het radioactief afval, namelijk het besmettingsniveau aan de oppervlakte.

- **Categorie A:** Het laagactief afval bestaat uit radioactief afval met een contactdosistempo (dosis waarbij iemand blootgesteld wordt bij aanraking) van minder dan 5 mSv per uur. De productie en verwerking van dit afval vereisen een minimale afscherming. Enkele voorbeelden zijn filters, harsen, onderdelen van beschermingsmaterialen, papier, geactiveerd beton en biologisch afval.
- **Categorie B:** Het middelactief afval bestaat uit afval met een contactdosistempo tussen 5 mSv per uur en 2 Sv per uur. De verwerking van dit afval moet in een gesloten en afgeschermd ruimte plaatsvinden. Het grootste deel van dit afval komt voort uit de fabricage en de opwerking van kernbrandstof en bij ontmantelingsactiviteiten, het kan gaan om bepaalde filters en harsen uit kerncentrales.
- **Categorie C:** Het hoogactieve afval bestaat uit afval met een contactdosistempo van meer dan 2 Sv per uur. Dit afval geeft warmte af. Dezelfde voorzorgsmaatregelen als voor het middelactief afval worden vereist. Het enige verschil is de dikte van de afscherming, die altijd berekend wordt om de stralingsdosis voor de operatoren zoveel mogelijk te beperken. Het afval hier betreft voornamelijk splijtingsproducten van de opwerking van kernbrandstof.

Sommige radioactieve stoffen blijven heel lang radioactief. De toekomstige generaties mogen daar geen nadeel van ondervinden. Oplossingen moeten gevonden worden voor het veilige beheer van dit afval op lange termijn. Hierbij moeten mens en milieu in alle omstandigheden beschermd worden en blijven tegen de gevaren van de radioactieve straling uit het radioactief afval. Het komt er voornamelijk op neer dat men de radioactieve stoffen goed moet insluiten en opbergen zodat ze zich niet kunnen verspreiden in de omgeving.

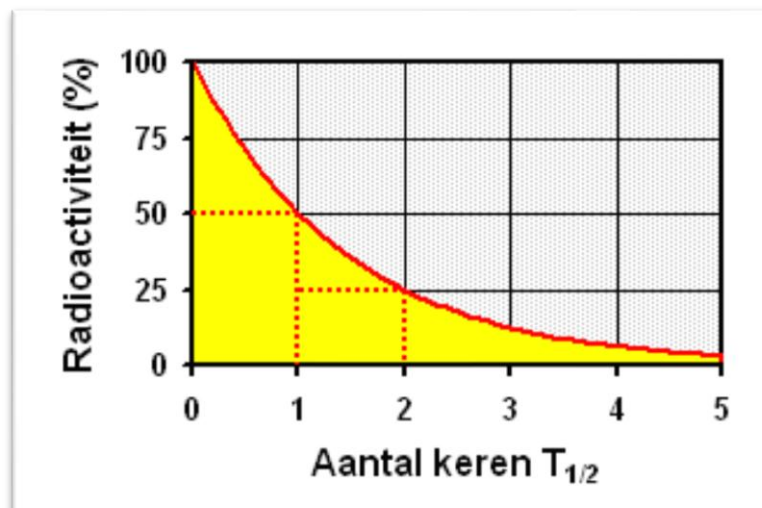
Het beheer op lange termijn omvat in het geval van het afval van categorie A enkele honderden jaren. Voor het afval van de categorieën B en C is dit meerdere honderden tot duizenden en zelfs honderdduizenden jaren en meer.

Door de gigantische kost die de verwerking en belasting van radioactief afval met zich meebrengt, is het zeer belangrijk een goede karakterisatie uit te voeren van het afval. Op basis van de karakterisatie kan het afval verder worden ingedeeld en verwerkt. Op deze manier worden extra kosten en onnodige verwerking vermeden.

## 2.4 Halveringstijd <sup>(3)</sup> <sup>(14)</sup>

Radioactieve bronnen hebben elk een bepaald aantal onstabiele atoomkernen. Gedurende het vervalproces zullen er elke seconde een aantal onstabiele atoomkernen vervallen. Er bestaat geen mogelijkheid om te voorspellen wanneer welke atoomkern zal vervallen. Er kan echter wel met grote nauwkeurigheid bepaald worden wanneer de helft van de kernen, voor grote hoeveelheden van eenzelfde radioisotoop, vervallen zal zijn. Deze periode wordt de halveringstijd van die radioactieve isotoop genoemd.

De halveringstijd geeft aan wanneer de helft van de oorspronkelijke hoeveelheid radioactieve kernen vervallen zijn, en dus ook wanneer de activiteit (het aantal kernen dat per seconde vervalst) tot de helft is teruggevallen. De halveringstijd is voor de meeste radioisotopen gekend. Verschillende isotopen kunnen zeer uiteenlopende halveringstijden hebben. Cadmium-128 heeft bijvoorbeeld 0,28 ms als halveringstijd terwijl cadmium-116 een halveringstijd heeft van  $3,1 \cdot 10^{19}$  jaar.



Figuur 2-8: Halveringstijd <sup>(15)</sup>

## 2.5 Radionucliden <sup>(3)</sup>

Een radionuclide is een atoom met een onstabiele kern, gekenmerkt door een teveel aan energie. Deze energie kan afgegeven worden aan een nieuw gecreëerd stralingsdeeltje in de kern, ofwel afgegeven worden via interne conversie. Tijdens dit proces ondergaan de radionucliden radioactief verval, wat leidt tot de emissie van gammastralen en/of subatomaire deeltjes, zoals alfa- of bèta deeltjes. Radionucliden kunnen in de natuur voorkomen of kunnen kunstmatig geproduceerd worden.

Radioisotopen met geschikte halveringstijd spelen een belangrijke rol in een aantal technieken (bijvoorbeeld nucleaire geneeskunde).

Het aantal radionucliden is moeilijk te bepalen omdat het aantal zeer kortlevende radionucliden die nog moeten worden gekarakteriseerd zeer groot is. Zelfs het aantal langlevende radionucliden is onzeker (in mindere mate).

Alle elementen vormen een aantal radionucliden, hoewel de halveringstijd van velen te kort is om waargenomen te kunnen worden in de natuur. Zelfs het lichtste element, waterstof, heeft een radioisotoop, tritium. De zwaarste elementen komen enkel voor als radionucliden. Voor elk chemisch element, kunnen radioisotopen die niet in de natuur voorkomen (door korte halveringstijden of het ontbreken van een natuurlijk productiemechanisme), kunstmatig geproduceerd worden.

In de volgende paragrafen wordt een overzicht gegeven van de radionucliden die in dit werk werden gebruikt.

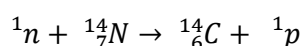
### 2.5.1 Koolstof-14 (C-14) → vluchtig/LSC <sup>(3) (16) (17)</sup>

Koolstof-14 is een radioactief isotoop van koolstof, een niet metaal. Koolstof-14 vervalt door bètaverval naar stikstof-14, een stabiel isotoop. Dit isotoop komt, naast <sup>12</sup>C en <sup>13</sup>C, ook in de natuur voor. De hoeveelheidsverhouding <sup>14</sup>C/C is echter zeer laag: ongeveer 10<sup>-10</sup> % van alle koolstofatomen is koolstof-14.

#### 2.5.1.1 Radioactief verval

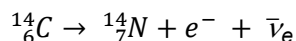
De belangrijkste bron voor <sup>14</sup>C op aarde is de invloed van kosmische straling op stikstof in de atmosfeer. <sup>14</sup>C wordt voornamelijk gevormd in de troposfeer en de stratosfeer, het is daardoor een kosmogeen nuclide.

De thermische neutronen, geproduceerd door kosmische straling, worden geabsorbeerd door stikstofatomen waarbij <sup>14</sup>C wordt gevormd:



Het gevormde  $^{14}\text{C}$  reageert snel met zuurstofgas in de lucht tot koolstofmonoxide en koolstofdioxide, dat ook door het water in de oceanen wordt opgelost (onder de vorm van waterstofcarbonaat).

Koolstof-14 vervalst door bètaverval naar stikstof-14 en zendt daarbij – naast een elektron – ook een antineutrino uit.



Dit verval heeft een halveringstijd van 5730 jaar.

**Tabel 2-1: Eigenschappen C-14**

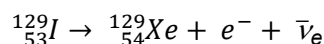
nuclide	aantal $p^+$	aantal $n^\circ$	type verval	$t_{1/2}$	vervalenergie	vervalproduct
$^{14}\text{C}$	6	8	$\beta^-$ -verval	5730 jr.	156,476 keV	stikstof-14

## 2.5.2 Jodium-129 (I-129) → vluchtig/ICP-MS <sup>(3)</sup> <sup>(16)</sup> <sup>(18)</sup> <sup>(17)</sup>

Jodium-129 is een radioactief isotoop van jodium, een halogeen. Dit isotoop komt in zeer kleine hoeveelheden voor op aarde. Het ontstaat door kernsplijting van natuurlijk voorkomend uranium en door interactie van kosmische straling met xenon in de atmosfeer. Jodium-129 is één van de langstlevende radionucliden die aanwezig zijn in nucleair afval.

### 2.5.2.1 Radioactief verval

Jodium-129 vervalst door bètaverval naar de stabiele isotoop xenon-129:



De halveringstijd van jodium-129 bedraagt 15,7 miljoen jaar, daarmee is het de langstlevende radio-isotoop van het element jodium.

**Tabel 2-2: Eigenschappen I-129**

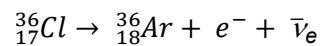
nuclide	aantal $p^+$	aantal $n^\circ$	type verval	$t_{1/2}$	vervalenergie	vervalproduct
$^{129}\text{I}$	53	76	$\beta^-$ -verval	$15,7 \cdot 10^6$ jr.	194,02 keV	xenon-129

### 2.5.3 Chloor-36 (Cl-36) → vluchtig/LSC <sup>(3)</sup> <sup>(16)</sup> <sup>(19)</sup> <sup>(17)</sup>

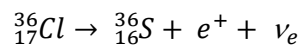
Chloor-36 is een radioactief isotoop van chloor, een halogeen. Van dit isotoop komen op aarde sporen voor. De relatieve aanwezigheid van chloor-36, in natuurlijk chloor, wordt geschat op  $7 \cdot 10^{-13}\%$ . Chloor-36 wordt in de atmosfeer gevormd uit argon-36, onder invloed van kosmische straling.

#### 2.5.3.1 Radioactief verval

Chloor-36 bezit een halveringstijd van  $3,01 \cdot 10^5$  jaar. Het vervalst voor 98,1% tot de pseudostabiele isotoop argon-36, welke theoretisch gezien verder kan vervallen tot de stabiele isotoop zwavel-36:



De rest van de isotopen vervalst tot zwavel-36:



Door zijn lange halveringstijd is chloor-36 uitermate geschikt bij de datering van grondwaterlagen en andere geologische en hydrologische verschijnselen.

**Tabel 2-3: Eigenschappen Cl-36**

nuclide	aantal p <sup>+</sup>	aantal n <sup>o</sup>	type verval	t <sub>1/2</sub>	vervalenergie	vervalproduct
<sup>36</sup> Cl	17	19	β <sup>-</sup> -verval	3,01.10 <sup>5</sup> jr.	709,682 keV	argon-36

## HOOFDSTUK 3: MEETMETHODES

### 3.1 ICP-MS – Inductief gekoppeld plasma massaspectrometrie <sup>(20)</sup> (21) (22) (23) (24) (25) (26) (27)

Inductief gekoppeld plasma-massaspectrometrie (ICP-MS) is een krachtige analysemethode die voornamelijk gebruikt wordt bij sporenanalyse. De methode is reeds meer dan 25 jaar in gebruik. Het succes van deze methode is het gevolg van de algemene voordelen ten opzichte van andere analytische technieken, zoals bijvoorbeeld AAS of ICP-AES. De verschillende voordelen van de ICP-MS zijn:

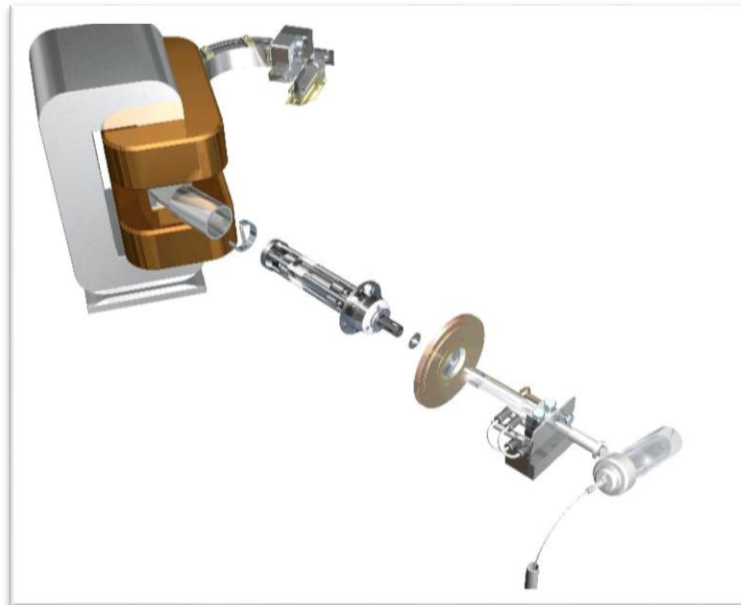
- lage detectielimieten
- hoge analysesnelheid
- groot lineair bereik
- overzichtelijke spectra
- uitgesproken multi-elementkarakter
- geeft informatie over de isotopische samenstelling van stalen

Het eerste ICP-MS instrument waarbij gebruik gemaakt werd van een quadrupool massaspectrometer (Q-ICP-MS), werd rond 1983 gecommercialiseerd. Deze techniek maakt het mogelijk een groot aantal nuclides te bepalen bij lage concentraties. De voordelen van dit type instrument zijn de eenvoud, robuustheid, lage kostprijs en hoge scansnelheid.

Rond 1989 werd de eerste sector veld ICP-MS (SF-ICP-MS) gecommercialiseerd. Dit type ICP-MS toestel maakt gebruik van een dubbelfocuserende sector veld massaspectrometer en is in staat te werken bij hogere resoluties dan een Q-ICP-MS. Bijkomende voordelen zijn bovendien de hogere gevoeligheid en lagere detectielimieten. Dit laatste is te danken aan het gebruik van een gebogen magnetische sector, die ervoor zorgt dat de ruis verlaagd wordt. Als nadeel geldt echter de aanzienlijk verhoogde kostprijs. Vandaar dat tegenwoordig nog altijd Q-ICP-MS op grote schaal toegepast wordt. Ook de scansnelheid van de SF-ICP-MS toestellen is trager dan die van de quadrupool toestellen.

#### 3.1.1 Het instrument: Q-ICP-MS <sup>(22) (24) (25)</sup>

Een ICP-MS instrument bestaat uit drie belangrijke onderdelen: een ionenbron, een massaspectrometer en een detector. De ionenbron is in dit geval een inductief gekoppeld plasma. De massaspectrometer scheidt de analietionen van elkaar op basis van hun massa/lading ( $m/z$ ) verhouding. Tenslotte worden de hoeveelheden aan analietionen bepaald door middel van een detector.

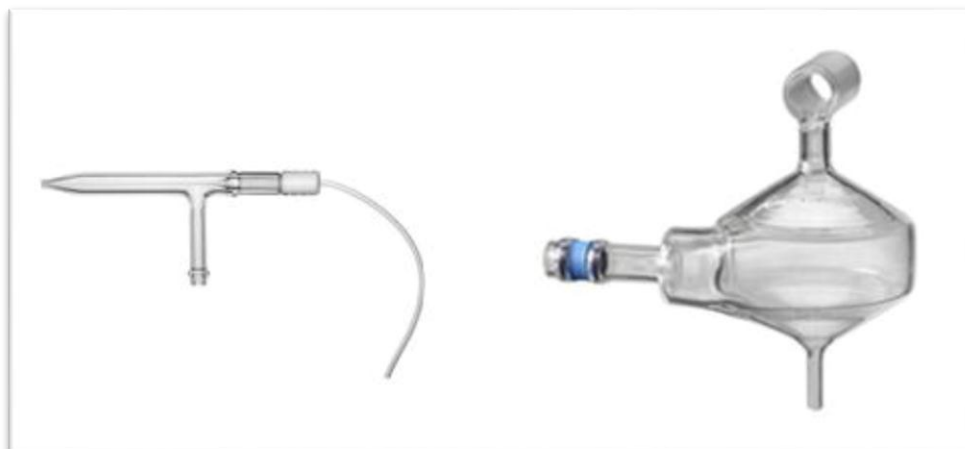


**Figuur 3-1: QF-ICP-MS** <sup>(28)</sup>

### 3.1.1.1 Monsterinroductiesysteem (verstuiver + verstuiverkamer) <sup>(24) (25) (27)</sup>

Het te analyseren monster wordt allereerst getransporteerd naar een verstuiver, meestal door middel van een peristaltische pomp. In de verstuiver wordt het vloeibare monster omgezet in een fijn aerosol. Het verstuivergas, meestal argon, splitst het vloeibare staal op in kleine druppels met variërende grootte.

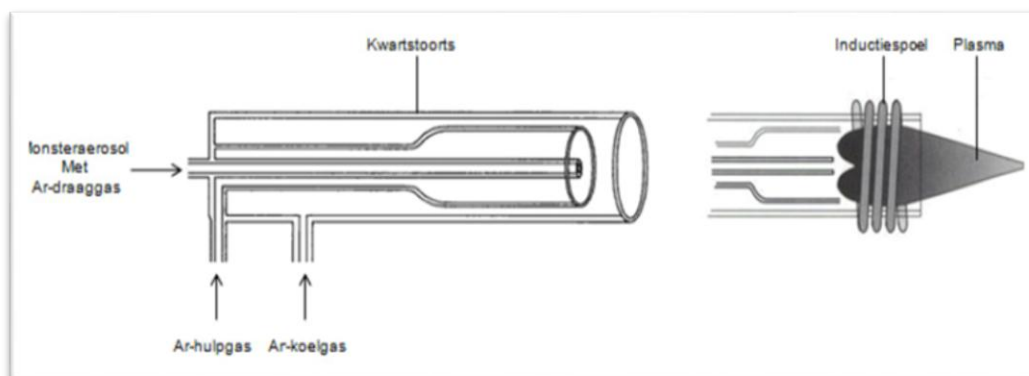
Een verstuiverkamer zorgt er vervolgens voor dat enkel de kleinste druppels geselecteerd en verder getransporteerd worden naar het ICP-MS instrument. Hierdoor verhoogt de ionisatie-efficiëntie en wordt instabiliteit van het plasma vermeden (door overbelading). Er zijn ook alternatieve monsterinroductiesystemen beschikbaar, bijvoorbeeld voor de analyse van vaste stalen.



**Figuur 3-2: Verstuiver + verstuiverkamer** <sup>(23) (29)</sup>

### 3.1.1.2 Plasma<sup>(22) (24) (25) (27)</sup>

De kleine druppeltjes van het aerosol worden vervolgens getransporteerd naar de plasmatoorts door het dragergas. Aan het uiteinde van deze toorts wordt het plasma gegenereerd. Dit plasma kan beschouwd worden als een zeer hete elektrische vlam. Rond de toorts is een koperen, met water gekoelde, inductiespoel die een systeem van drie concentrische kwartsbuizen omsluit, waardoor argongas stroomt. De eerste gasstroom (het koelgas) stroomt tussen de buitenste twee buizen. Hij voert voldoende gas aan om het plasma in stand te houden en een thermische afdichting te vormen tussen het plasma en de buitenste kwartsbuis. De tweede gasstroom (het hulpgas) stroomt tussen de binnenste en middelste kwartsbuizen en wordt gebruikt om de positie van het plasma te regelen. Langsheen de centrale buis wordt het monsteraerosol door de derde gasstroom, het dragergas, in het plasma geïnjecteerd.



Figuur 3-3: Plasmatoorts<sup>(22)</sup>

Een inductief gekoppeld plasma wordt in stand gehouden door een hoog-frequent wisselend magnetisch veld. Door middel van een hoogspanningsvonk wordt een gedeelte van het argon geïoniseerd bij het opstarten van het plasma. De argonionen en vrije elektronen die op deze wijze ontstaan, worden gevangen door het wisselende magnetische veld en beschrijven hierin cirkelvormige banen. Deze ionen en elektronen kunnen dan tegen andere argonatomen botsen en indien ze genoeg energie bezitten kunnen ze deze op hun beurt ioniseren. De aldus ontstane kettingreactie houdt het plasma in stand.

Het dragergas transporteert het monster aerosol door het midden van dit plasma. Hier worden in een eerste stap de aerosol druppels gedevolteerd. Vervolgens worden de analietionen geatomiseerd, geëxciteerd en tenslotte geïoniseerd.

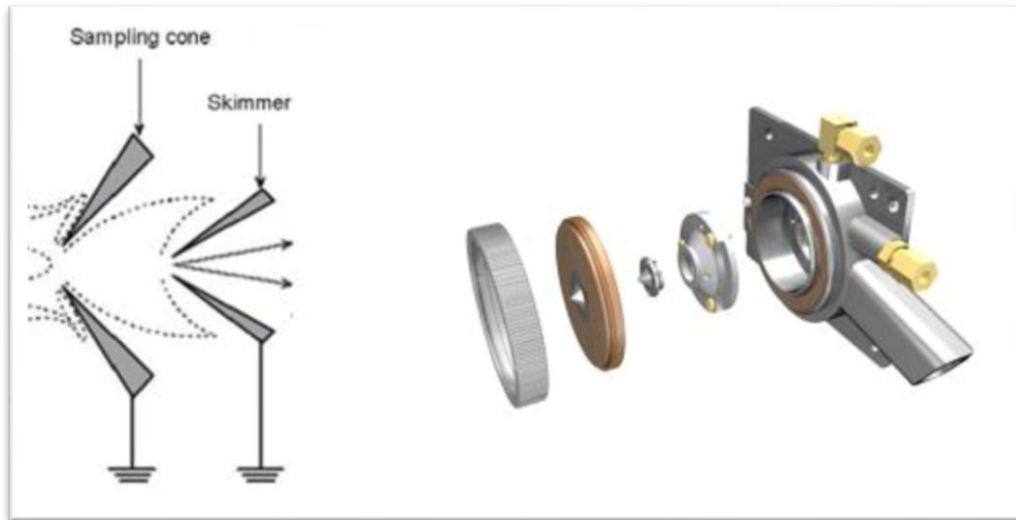
### 3.1.1.3 Interface<sup>(22) (24) (25)</sup>

De op deze manier geproduceerde ionen in het plasma moeten nu op een efficiënte manier naar de massaspectrometer getransporteerd worden. Vermits het inductief gekoppeld plasma bij een gewone atmosferische druk werkt en in de massaspectrometer een hoog vacuüm vereist is, moet hierbij een groot drukverschil overbrugd worden. Hierdoor wordt een interface gekoppeld tussen het plasma en het elektrostatisch lenzensysteem. Deze interface



is opgebouwd uit twee coaxiaal geplaatste, watergekoelde kegels met een centrale opening: de sampling cone en de skimmer.

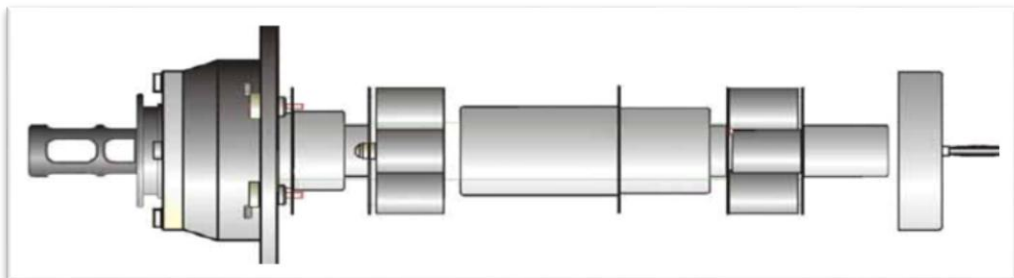
Het plasmagas stroomt de expansiekamer, de ruimte tussen de sampling cone en de skimmer, binnen en expandeert ten gevolge van het drukverschil. Het centrale gedeelte van deze bundel verlaat de expansiekamer via de opening van de skimmer. Een goede plaatsing van zowel skimmer als sampling cone is belangrijk om een hoge transmissie-efficiëntie te bekomen. Als materiaal wordt meestal gekozen voor nikkel of platina, omwille van hun sterkte, resistentie en goede thermische geleidbaarheid.



**Figuur 3-4: Interface** <sup>(27)</sup>

#### 3.1.1.4 Elektrostatisch lenzensysteem <sup>(22) (24) (25)</sup>

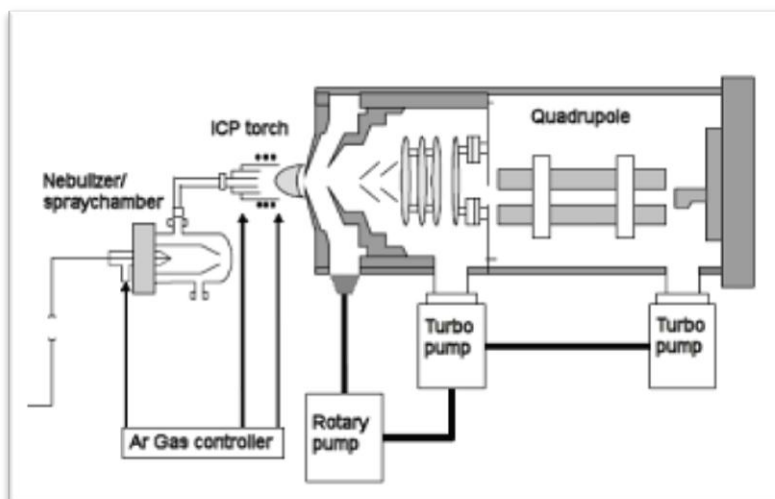
Nadat de ionen de interface verlaten, zorgen een reeks elektrostatische lenzen voor de nodige manipulaties van de ionenbundel. Hierdoor worden de in het plasma gevormde ionen zo efficiënt mogelijk naar de massaspectrometer geleid. De overgebleven deeltjes (ook neutrale deeltjes) worden verwijderd met behulp van een vacuümpomp.



**Figuur 3-5: Elektrostatisch lenzensysteem** <sup>(23)</sup>

### 3.1.1.5 Massaspectrometer <sup>(24) (25) (27)</sup>

De massaspectrometer die gebruikt wordt gedurende deze masterproef is een quadrupool massaspectrometer. Een elektrische quadrupool bestaat uit vier parallelle staven waarop een gelijkspanning wordt aangebracht, waar bovenop een radiofrequentie wisselspanning wordt aangesloten. Alleen ionen met een geselecteerde bepaalde snelheid kunnen in de lengterichting langs de quadrupool komen, de rest wordt afgebogen en komt op een bepaald moment tegen één van de staven terecht. Een instrument met een quadrupool kan een continue stroom aan ionen aan, maar kan op elk moment slechts één bepaalde massa/lading verhouding detecteren. Een spectrum wordt verkregen door een groot aantal metingen achter elkaar uit te voeren waarbij de frequentie van de wisselspanning op de quadrupool verandert. Hierdoor wordt steeds een andere massa/lading geselecteerd die bij de detector gemeten wordt. De quadrupool werkt eigenlijk als massafilter.



Figuur 3-6: Quadrupool ICP-massaspectrometer <sup>(30)</sup>

### 3.1.1.6 Detector <sup>(24) (25) (27)</sup>

Nadat de ionen de massaspectrometer verlaten hebben, dienen ze geteld te worden door een detectiesysteem. Het toestel maakt hiervoor gebruik van een secundaire elektronvermenigvuldiger. Dit type is uitgerust met een kathode en een reeks discrete dynodes, die op een opeenvolgende hogere potentiaal gebracht zijn.

De ionen die de massaspectrometer verlaten worden eerst via een lens afgebogen, in de richting van de kathode. Op deze kathode, die op een negatieve spanning is gebracht, worden elektronen losgeslagen en telkens versneld van de ene naar de daarop volgende dynode. Door botsing met deze dynodes gaan telkens opnieuw bijkomende elektronen vrijgemaakt worden, wat uiteindelijk aanleiding geeft tot een lawine van elektronen. Op deze manier wordt het signaal significant versterkt, waarna elk invallend ion geteld kan worden (pulse counting mode). Een bijkomend voordeel van dit type detector is de mogelijkheid om bij zeer intense bundels de stroom te meten op één van de eerste dynodes (analog mode), om snelle slijtage van de detector te vermijden. De automatische omschakeling van pulse

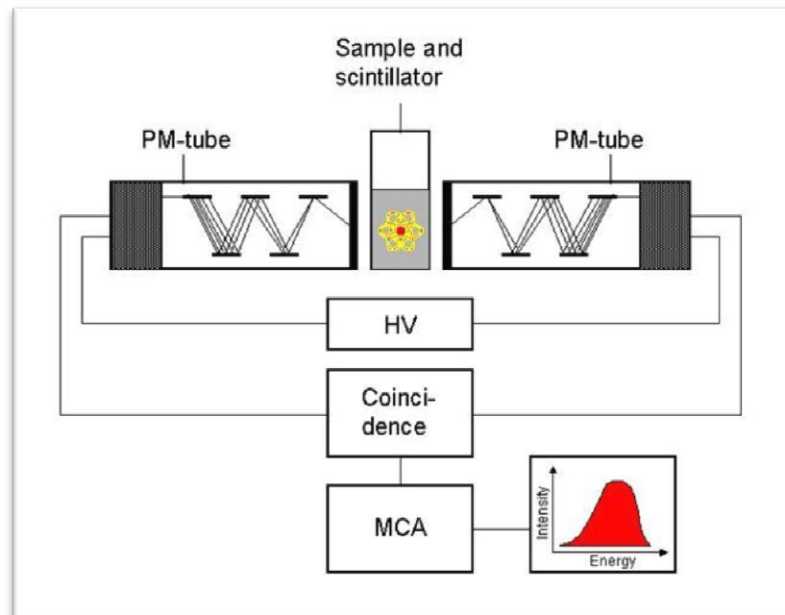
counting naar analog mode laat een lineair dynamisch bereik toe over tien grootteordes. Als nadeel voor dit type detector geldt echter de relatief beperkte levensduur.

## 3.2 LSC – Liquid scintillation counting - Vloeistofscintillatietelling

### 3.2.1 Principe <sup>(31)</sup> <sup>(32)</sup>

Het vloeistofscintillatietelling proces is de omzetting van de energie van een radioactief vervalproces in fotonen in een vloeistof. Fotomultiplicatoren (PM-buizen) detecteren de lichtemissie en zetten de lichtpuls om in een elektrisch signaal. De intensiteit van de lichtpuls (aantal geëmitteerde fotonen) is evenredig met de energie van het radioactief vervalproces. Verder is de grootte (hoogte) van de elektrische puls evenredig met de intensiteit van het licht en derhalve ook evenredig met de energie van het vervalproces.

De elektrische puls kan worden behandeld in een elektronisch systeem, waarin de hoogte gemeten wordt. Dit systeem slaat de vervalprocessen op in een intensiteit energie-array, een zogenaamd Multichannel Analyzer (MCA) systeem. Zo kan een energie spectrum gevormd worden van het vervallende radionuclide.



**Figuur 3-7: Schematische voorstelling LSC <sup>(31)</sup>**

Het proces van vloeistofscintillatietelling omvat dus de detectie van bètaverval in een monster door de vangst van bèta-emissies (uitgezonden elektron) in een scintillatie cocktail. Dit mengsel is bedoeld om de bèta-emissie op te vangen en om te zetten in een foton emissie die kan gedetecteerd worden via een fotomultiplicatorbuis in een scintillatieteller. De cocktail is ook bestemd als oplossende component, waarbij een uniforme suspensie van het staal verkregen wordt.

Het systeem bestaat uit drie hoofdcomponenten: de radioactieve stof, het oplosmiddel en het soluuut (de opgeloste stof).

Proces:

1. Het radioactief staal wordt toegevoegd aan de scintillatie cocktail.
2. Fluorescentie: Bètadeeltjes worden uitgezonden, wat ervoor zorgt dat het solventmolecule in geëxciteerde toestand komt. De energie van de solventmoleculen wordt overgedragen aan het soluut, waardoor het soluut licht uitzendt.
3. Het potje wordt in de scintillatieteller geplaatst, welke de lichtdeeltjes (fotonen) opvangt en digitaliseert.

### 3.2.2 Quenching<sup>(32)</sup>

Quenching is het fenomeen dat resulteert in een daling van het scintillatietellingtempo. Dit kan gecorrigeerd worden via twee methoden, namelijk de interne standaard methode en de sample-kanalen ratio methode.

De interne standaard methode is de meest nauwkeurige methode voor quench correctie. Deze werkwijze veronderstelt dat een extra standaard van hetzelfde isotoop dat aanwezig is in het monster op dezelfde wijze gequencht wordt en in een hoeveelheid gelijk aan die van het onbekende monster.

De sample-kanalen ratio methode gebruikt twee kanalen voor monster telling. Het is gebaseerd op het feit dat de hoogte van een puls van een bèta-emitter altijd verplaatst wordt naar een lager energieniveau wanneer quenching optreedt. Tellingen van het bovenste kanaal gaan verloren.

## HOOFDSTUK 4: EXPERIMENTEN

Een groot deel van het radioactieve afval komt voor in vaste vorm. Een eerste stap in het analyseproces van dit vast afval is om de te bepalen radionucliden in oplossing te brengen. Voor het oplossen zijn verschillende technieken voorhanden; de gewone chemische oplosmethode, een buisoven, een microgolf of een hoge druk bom. De uiteindelijke keuze van oplosmethode is afhankelijk van de afvalmatrix en van de radionucliden die men wil bepalen. In dit werk zullen verschillende types van mogelijke vaste afvalmatrices worden opgelost. Deze zijn harsen, papierfilters, roestvrij staal en beton/cement. Alle experimenten die uitgevoerd worden gedurende deze stage zullen in een zuurkast plaatsvinden.

## 4.1 Oplossen van verschillende matrices via een chemische oplosmethode

### 4.1.1 Oplossen van een papierfilter

Drie papierfilters (589<sup>1</sup> black ribbon, ashless, diameter = 90 mm, massa = ± 0.5 g) worden na twee maal dubbel vouwen respectievelijk in een oplossing van HNO<sub>3</sub> (40 mL) gebracht van 14 M (1), 8 M (2) en 1 M (3) met behulp van een pincet. Hierbij moet worden opgepast dat de filter niet met de handen wordt aangeraakt en dat deze zeker niet wordt verfrommeld. De oplossingen die de papierfilter bevatten worden verwarmd op een verwarmplaat tot ± 80 °C. Aan de 14 M oplossing wordt 2,5 mL H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> toegevoegd, aan de 8 M oplossing wordt 5 mL H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> toegevoegd. Na drie uur en half is geen van de drie papierfilters volledig opgelost.

Om deze reden worden dezelfde oplossingen bij een hogere temperatuur verwarmd. Dit geeft echter ook geen goed resultaat want geen enkele van de drie papierfilters wordt opgelost.

De procedure wordt tevens herhaald met een oplossing van 8 M HNO<sub>3</sub> (40 mL) (4) in een kolf met een refluxkoeler in een verwarmingsmantel. Hierbij wordt stelselmatig 20 mL H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> toegevoegd en wordt verwarmd tot reflux optreedt. Na vier uur wordt een heldere oplossing bekomen. Om de tijd voor het oplossen te beperken wordt hetzelfde experiment herhaald met een 8 M HNO<sub>3</sub> (20 mL) (5) oplossing waaraan een hoeveelheid van 5 mL H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> onmiddellijk wordt toegevoegd. Dit wordt opnieuw verwarmd tot reflux optreedt. Na drie uur en een half wordt een heldere oplossing bekomen.

In tabel 4-1 worden de experimenten met de oplosprocedure weergegeven.

**Tabel 4-1: Oplossen van een papierfilter**

Experiment	(1)	(2)	(3)	(4)	(5)
Massa filter (g)	0,4873	0,4716	0,4904	0,4763	0,5454
Toevoegen	40 mL 14 M HNO <sub>3</sub>	40 mL 8 M HNO <sub>3</sub>	40 mL 1 M HNO <sub>3</sub>	40 mL 8 M HNO <sub>3</sub>	20 mL 8 M HNO <sub>3</sub>
Opwarmen	80°C (plaat)	80°C (plaat)	80°C (plaat)		
Toevoegen	2,5 mL H <sub>2</sub> O <sub>2</sub>	5 mL H <sub>2</sub> O <sub>2</sub>		20 mL H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> (stelselmatig)	5 mL H <sub>2</sub> O <sub>2</sub>
Opwarmen				Tot reflux	Tot reflux
Resultaat oplossen	-	-	-	+	+
Duur opwarmen	3,5 uur	3,5 uur	3,5 uur	4 uur	3,5 uur
Opmerking	Lost ook niet op bij hogere temperatuur	Lost ook niet op bij hogere temperatuur	Lost ook niet op bij hogere temperatuur		

### 4.1.3 Oplossen van roestvrij staal (RVS)

Er wordt getracht roestvrij staal (massa =  $\pm 0.2$  g) in oplossing te brengen. Eerst is het de bedoeling schilfers in oplossing te krijgen, daarna een blokje. De schilfers worden in een 8 M  $\text{HNO}_3$  (40 mL) (1) oplossing gebracht waaraan 5 mL  $\text{H}_2\text{O}_2$  wordt toegevoegd. Dit wordt gedurende drie uur en een half verwarmd op een verwarmplaat tot een temperatuur van  $\pm 80$  °C. Van de oorspronkelijke massa roestvrij staal is slechts 0,60 % weggereageerd. Vervolgens worden schilfers in een 8 M HCl (40 mL) (2) oplossing gebracht. Na twee uur en vijftien minuten wordt een groene heldere oplossing bekomen, de schilfers zijn volledig opgelost. Na het oplossen van de schilfers wordt beslist om drie parameters te veranderen: er wordt een blokje opgelost in plaats van schilfers, de concentratie en het volume zuur worden verlaagd.

Bij het volgende experiment worden de twee eerste parameters veranderd. Het blokje roestvrij staal wordt in een 4 M HCl (40 mL) (3) oplossing gebracht en verwarmd op een verwarmplaat tot een temperatuur van  $\pm 80$  °C. Na twee uur en vijfenveertig minuten is het blokje volledig opgelost, een helder groene oplossing wordt bekomen.

In het volgende experiment wordt dan het volume van het zuur verlaagd tot 25 mL (4), het blokje lijkt volledig op te lossen, maar de oplossing kookt droog. Dit zal geen probleem met zich meebrengen in het eigenlijke experiment omdat hier gewerkt wordt in een volledig gesloten systeem.

In tabel 4-2 worden de experimenten met de oplosprocedure weergegeven. De oplosprocedure wordt nog lichtjes aangepast bij het toevoegen van tracers zoals vermeld in paragraaf 4.2.2.

**Tabel 4-2: Oplossen van roestvrij staal**

Experiment	(1)	(2)	(3)	(4)
Massa RVS (g)	0,2167 (schilfers)	0,2101 (schilfers)	0,2223 (blokje)	0,2151 (blokje)
Toevoegen	40 mL 8 M $\text{HNO}_3$	40 mL 8 M HCl	40 mL 4 M HCl	25 mL 4 M HCl
Opwarmen	80°C (plaat)	80°C (plaat)	80°C (plaat)	80 °C (plaat)
Toevoegen	5 mL $\text{H}_2\text{O}_2$			
Resultaat oplossen	-	+	+	+
Duur opwarmen	3,5 uur	2,25 uur	2,75 uur	2,5 uur
Opmerking	0,60 % weggereageerd			kookt droog



#### 4.1.4 Oplossen van beton

Het oplossen van beton (massa =  $\pm 0,25$  g) gaat moeilijker vermits hierin ook stenen en zand voorkomen. Er wordt een onderscheid gemaakt tussen twee soorten beton, enerzijds een blok beton met veel stenen en onzuiverheden in, anderzijds een prefabblok met kleine steentjes in. De drie eerste experimenten worden uitgevoerd met de eerste soort en het volgende experiment met de tweede soort. Allereerst wordt een blokje beton in een 4 M HCl (25 mL) (1) oplossing gebracht, deze oplossing wordt verwarmd op een verwarmplaat tot een temperatuur van  $\pm 80$  °C. Aan deze oplossing wordt 0,5 mL H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> toegevoegd. Het blokje beton lost in deze oplossing niet op.

Het volgende experiment is identiek aan het eerste, enkel wordt het blokje beton in een 8 M HNO<sub>3</sub> (25 mL) (2) oplossing gebracht. Zoals in het eerste experiment lost het blokje beton niet op. Vermits de vorige twee experimenten geen goed resultaat geven, wordt besloten om koningswater te gebruiken, dit is een 3:1 mengsel van 8 M HCl en 14 M HNO<sub>3</sub>. Het blokje beton wordt in 40 mL koningswater (3) gebracht en verwarmd in een verwarmingsmantel tot  $\pm 150$  °C. Er is reactie zichtbaar, maar het blokje lost niet volledig op. Het koningswater dient twee uur voor gebruik aangemaakt te worden om een goed resultaat te bekomen.

Bij het volgende experiment wordt gebruik gemaakt van een blokje beton, afkomstig van een prefabblok, dat in 40 mL koningswater (4) wordt gebracht. De oplossing zal, zoals in de vorige experimenten, verwarmd worden in een verwarmingsmantel tot een temperatuur van  $\pm 150$  °C. Na verloop van tijd is de oplossing uitgeregadeerd en wordt nog eens 30 mL koningswater toegevoegd, waardoor het blokje beton toch in oplossing raakt, enkel kleine steentjes en een beetje zand blijven over.

In tabel 4-3 worden de experimenten met de oplosprocedure weergegeven.

**Tabel 4-3: Oplossen van beton**

Experiment	(1)	(2)	(3)	(4)
Massa beton (g)	0,2352	0,2290	0,2535	0,2594 (prefabblok)
Toevoegen	25 mL 4 M HCl	25 mL 8 M HNO <sub>3</sub>	40 mL koningswater	40 mL koningswater
Opwarmen	80°C (plaat)	80°C (plaat)	150°C (mantel)	150°C (mantel)
Toevoegen	0,5 mL H <sub>2</sub> O <sub>2</sub>			30 mL koningswater
Resultaat oplossen	-	-	$\pm$	+
Duur opwarmen	3 uur	3 uur	3,5 uur	3,5 uur
Opmerking			koningswater eerst laten uitreageren	kleine steentjes en zand blijven over

### 4.1.5 Oplossen van harsen

Er worden twee verschillende soorten hars in oplossing gebracht. Eerst wordt Dowex opgelost, daarna wordt een 50:50 mengsel van anionische en kationische harsen in oplossing gebracht. Aan beide harsen wordt fenton reagens toegevoegd, dit is waterstofperoxide met een ijzerkatalysator, ijzer(II)sulfaat. In een eerste experiment wordt DOWEX (1) met behulp van 30 mL water in de kolf gebracht, hieraan wordt 3 mL ijzer(II)sulfaat toegevoegd als katalysator, deze dient relatief vers aangemaakt te worden. Er wordt bij verwarming 70 mL H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> druppelsgewijs toegevoegd. Wanneer dit uitgereageerd is, is het hars zo goed als volledig opgelost. Hieraan wordt nog 10 mL 4 M HNO<sub>3</sub> toegevoegd wat een heldere gele oplossing als resultaat geeft.

In een tweede experiment wordt geprobeerd om een 50:50 mengsel van anionische en kationische harsen (2) op dezelfde manier op te lossen als DOWEX. Dit zorgt voor gedeeltelijk oplossen van het hars. Een derde manier (3) van oplossen is identiek aan voorgaande, enkel wordt eerst de 70 mL H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> volledig toegevoegd en achteraf pas verwarmd. Dit zorgt ervoor dat het hars volledig oplost.

In tabel 4-4 worden de experimenten met de oplosprocedure weergegeven.

De oplosprocedure wordt nog lichtjes aangepast bij het toevoegen van tracers zoals vermeld in paragraaf 4.2.4.

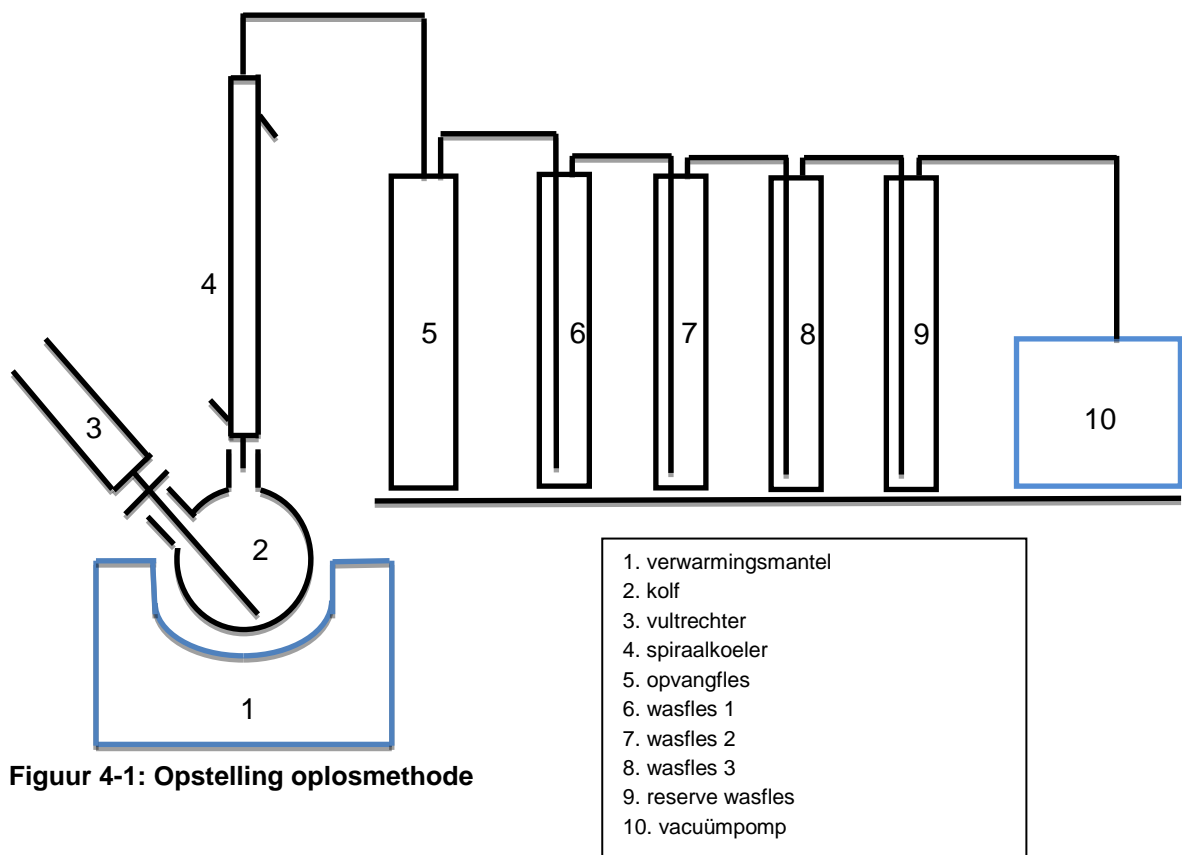
**Tabel 4-4: Oplossen van harsen**

Experiment	(1)	(2)	(3)
Massa hars (g)	2,6518 (DOWEX)	2,1588 (DOWEX)	2,1679 (mengsel)
Toevoegen	30 mL H <sub>2</sub> O + 3 mL Fe(II)SO <sub>4</sub>	30 mL H <sub>2</sub> O + 3 mL Fe(II)SO <sub>4</sub>	30 mL H <sub>2</sub> O + 3 mL Fe(II)SO <sub>4</sub> + 70 mL H <sub>2</sub> O <sub>2</sub>
Toevoegen bij verwarming	70 mL H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> (stelselmatig)	70 mL H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> (stelselmatig)	
Opwarmen	tot reflux	tot reflux	tot reflux
Toevoegen	10 mL 4 M HNO <sub>3</sub>	10 mL 4 M HNO <sub>3</sub>	10 mL 4 M HNO <sub>3</sub>
Resultaat oplossen	+	-	+
Duur opwarmen	3,5 uur	3,5 uur	3,5 uur

## 4.2 Oplossen van matrices met toevoeging van tracers

### 4.2.1 Opstelling

De opstelling weergegeven in Figuur 4-1 wordt gebruikt voor het oplossen van de vaste matrices waaraan tracers zijn toegevoegd. De bedoeling van deze experimenten is om na te gaan wat het gedrag is van de vluchtige radionucliden C-14, Cl-36 en I-129 tijdens het oplossen van vaste stalen. In deze masterproef wordt gewerkt met Cl-36 met een activiteit van 1140 Bq/g, <sup>14</sup>C met een activiteit van 224 Bq/g en een 1000 ppm KI oplossing (i.p.v. I-129-I). De oplosmethode voor de verschillende matrices zijn in vorige experimenten bepaald. De kolf zal worden verwarmd indien nodig, bovenop de kolf wordt een koeler geplaatst die in verbinding staat met een opvangfles. Achter deze opvangfles zullen drie wasflessen gekoppeld zijn met 50 mL 8 M NaOH in elke wasfles. De verwachting is dat bepaalde vluchtige radionucliden in de wasflessen zullen geabsorbeerd worden. Achteraan de opstelling is een vacuümpomp geplaatst, waardoor het systeem onder vacuüm staat. De vrijgekomen dampen worden door de vacuümpomp door de wasflessen geleid.



Figuur 4-1: Opstelling oplosmethode

## 4.2.2 Oplossen van RVS met toevoeging van tracers

Aan 0,1778 g RVS wordt 40 mL 6 M HCl toegevoegd (Experiment A). Hieraan worden de tracers toegevoegd: 36-Cl (1 mL), 14-C (1 mL), 129-I (1 mL). Het geheel wordt gedurende vijf uur en een half verwarmd, waarna het staal volledig was opgelost. De inhoud van de drie wasflessen wordt in flesjes gebracht en de inhoud van de bolkolf in een maatkolf voor analyse. De wasflessen worden nagespoeld met gedestilleerd water en de kolf wordt nagespoeld met  $\pm$  5 mL 4 M HCl. Het spoelwater wordt toegevoegd aan de respectievelijke recipiënten voor verdere analyse.

De gebruikte massa's worden weergegeven in tabel 4-6.

Het experiment wordt herhaald met 0,2377 g RVS en dezelfde hoeveelheden tracers (experiment B). Hiervoor wordt 4 M HCl gebruikt in vergelijking met 6 M HCl in experiment A. Het geheel was opgelost na drie uur en vijftien minuten.

De gebruikte massa's worden weergegeven in tabel 4-7.

**Tabel 4-5: Oplossen van RVS met toevoeging van tracers (experiment A)**

Experiment A	26/03/2013		
Massa RVS (g)	0,1778		
Massa tracer (g)	36-Cl	14-C	129-I
	0,9635	0,9334	1,0005
Massa inhoud wasflessen (g)	WF1	WF2	WF3
	76,4482	73,5852	74,8798
Massa inhoud bolkolf (g)	68,2241		

**Tabel 4-6: Oplossen van RVS met toevoeging van tracers (experiment B)**

Experiment B	27/03/2013		
Massa RVS (g)	0,2377		
Massa tracer (g)	36-Cl	14-C	129-I
	0,9934 g	1,0001 g	1,0000 g
Massa inhoud wasflessen (g)	WF1	WF2	WF3
	73,4848 g	72,0274 g	68,4764 g
Massa inhoud bolkolf (g)	65,4957		

### 4.2.3 Oplossen van harsen met toevoeging van tracers

In experiment C wordt 1,3682 g DOWEX met behulp van 30 mL H<sub>2</sub>O in de kolf gebracht. Hieraan worden de tracers toegevoegd: 36-Cl (1 mL), 14-C (1 mL), 129-I (1 mL). Om het hars in oplossing te krijgen wordt fenton reagens toegevoegd, dit is waterstofperoxide met een ijzerkatalysator, ijzer(II)sulfaat. Eerst wordt 3 mL ijzer(II)sulfaat toegevoegd, dan wordt bij verwarming 70 mL H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> druppelsgewijs toegevoegd, zoals beschreven in de oplosprocedure. Het geheel wordt gedurende drie uur verwarmd, waarna het staal praktisch volledig is opgelost. Om het staal volledig in oplossing te krijgen wordt na afkoeling nog 10 mL 4 M HNO<sub>3</sub> toegevoegd. De inhoud van de drie wasflessen wordt in flesjes gebracht en de inhoud van de bolkolf in een maatkolf voor analyse. De wasflessen worden nagespoeld met gedestilleerd water en de kolf wordt nagespoeld met ± 5 mL 4 M HNO<sub>3</sub>.

De gebruikte massa's worden weergegeven in tabel 4-8.

Het experiment wordt herhaald met 2,7198 g hars en dezelfde hoeveelheden tracers (experiment D). Het verschil bestaat erin dan hierin 50 mL H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> wordt toegevoegd zonder verwarming. Wanneer het mengsel uitgereageerd is, wordt stelselmatig verwarmd. Na twee uur en dertig minuten is het staal bijna volledig opgelost. Om het staal volledig in oplossing te krijgen wordt na afkoeling nog 10 mL HNO<sub>3</sub> toegevoegd.

De gebruikte massa's worden weergegeven in tabel 4-9.

**Tabel 4-7: Oplossen van DOWEX met toevoeging van tracers (experiment C)**

Experiment C	28/03/2013		
Massa DOWEX (g)	1,3682		
Massa NaCl (g)	1,0052		
Massa tracer (g)	36-Cl	14-C	129-I
	0,9883	1,0004	0,9755
Massa inhoud wasflessen (g)	WF1	WF2	WF3
	75,1193	77,8745	75,7043
Massa inhoud bolkolf (g)	119,7695		

**Tabel 4-8: Oplossen van anionische en kationische harsen (50:50) met toevoeging van tracers (experiment D)**

Experiment D	29/03/2013		
Massa hars (g)	2,7198		
Massa NaCl (g)	1,0086		
Massa tracer (g)	36-Cl	14-C	129-I
	0,9999 g	0,9946 g	0,9997 g
Massa inhoud wasflessen (g)	WF1	WF2	WF3
	75,9499 g	79,6094 g	74,2855 g
Massa inhoud bolkolf (g)	88,5239		

#### 4.2.4 Oplossen van beton met toevoegen van tracers

Aan 0,2428 g beton wordt 40 mL koningswater toegevoegd (experiment E). Hieraan worden de tracers toegevoegd: 36-Cl (1 mL), 14-C (1 mL), 129-I (1 mL). Het geheel wordt gedurende drie uur verwarmd, waarna het staal volledig opgelost is, enkel kleine steentjes blijven over. De inhoud van de drie wasflessen wordt in flesjes gebracht en de inhoud van de bolkolf in een maatkolf voor analyse. De wasflessen worden nagespoeld met gedestilleerd water en de kolf wordt nagespoeld met  $\pm 5$  mL 4 M HCl.

De gebruikte massa's worden weergegeven in tabel 4-10.

**Tabel 4-9: Oplossen van beton met toevoeging van tracers (experiment E)**

Experiment E	16/04/2013		
Massa beton (g)	0,2428		
Massa NaCl (g)	1,0002		
Massa tracer (g)	36-Cl	14-C	129-I
	0,9988 g	0,9930 g	0,9015 g
Massa inhoud wasflessen (g)	WF1	WF2	WF3
	73,5057 g	70,5689 g	69,9548 g
Massa inhoud bolkolf (g)	119,7695		

### 4.3 C-14 en CI-36 bepaling via LSC

In paragraaf 4.1 en 4.2 wordt beschreven hoe de vaste matrices in oplossing worden gebracht. Met behulp van LSC wordt de inhoud van de balkolf en de drie wasflessen verder geanalyseerd. Hiermee wordt de hoeveelheid radioactieve tracer die teruggevonden wordt in de oplossing bepaald. Dit wordt gemeten om na te gaan of de hoeveelheid toegevoegde radioactieve tracer volledig wordt teruggevonden in de uiteindelijke oplossing, er wordt dus gecontroleerd of er geen verliezen plaatsvinden tijdens de oplosprocedure.

De hoeveelheid toegevoegde tracer is gekend, evenals de activiteit van deze tracer. Door deze twee gegevens met elkaar te vermenigvuldigen wordt de eigenlijke toegevoegde activiteit bepaald (in Becquerel). Door de analyse wordt de hoeveelheid Becquerel per gram oplossing bepaald. Wanneer deze vermenigvuldigd wordt met het totale gewicht van de oplossing wordt de hoeveelheid activiteit in de oplossing berekend. Bijvoorbeeld de inhoud van wasfles 1 van experiment 26/03/2013 weegt 76,4482 gram, indien dit vermenigvuldigd wordt met de hoeveelheid activiteit per gram (9,80 Bq/g), wordt een waarde bekomen van 749,19 Becquerel voor wasfles 1. Dit wordt voor alle oplossingen berekend, zo kan de totale activiteit in de eindoplossing bepaald worden. Wanneer de toegevoegde hoeveelheid activiteit gekend is en de totale hoeveelheid activiteit in de eindoplossing gekend is, kan het rendement van deze oplosprocedure bepaald worden. Voor experiment A (Tabel 4-11) bedraagt het rendement 98,76 % voor C-14.

Overige berekeningen zijn terug te vinden in onderstaande tabellen.

#### 4.3.1 Roestvrij staal

**Tabel 4-10: C-14 en CI-36 bepaling via LSC na het oplossen van RVS (Experiment A)**

26/03/2013 C-14				26/03/2013 CI-36			
activiteit	1140,00	Bq/g		activiteit	224,95	Bq/g	
input	0,9334	g		input	0,9635	g	
eindgewicht	kolf	68,2241	g				
	WF1	76,4482	g				
	WF2	73,5852	g				
	WF3	74,8798	g				
	Resultaat analyse		Totale activiteit		Resultaat analyse		Totale activiteit
kolf	< DL	Bq/g →	< DL Bq	kolf	3,13	Bq/g →	213,54 Bq
WF1	9,80	Bq/g →	749,19 Bq	WF1	< DL	Bq/g →	< DL Bq
WF2	4,10	Bq/g →	301,70 Bq	WF2	< DL	Bq/g →	< DL Bq
WF3	< DL	Bq/g →	< DL Bq	WF3	< DL	Bq/g →	< DL Bq
			1050,89 Bq				213,54 Bq
input	1064,08	Bq		input	216,74	Bq	
na analyse	1050,89	Bq		na analyse	213,54	Bq	
<b>rendement</b>	<b>98,76</b>	<b>%</b>		<b>rendement</b>	<b>98,52</b>	<b>%</b>	

**Tabel 4-11: C-14 en CI-36 bepaling via LSC na het oplossen van RVS (Experiment B)**

<b>27/03/2013 C-14</b>			
activiteit	1140,00	Bq/g	
input	1,0001	g	
eindgewicht	kolf	65,4759	g
	WF1	73,4848	g
	WF2	72,0274	g
	WF3	68,4764	g
	Resultaat analyse		Totale activiteit
kolf	< DL	Bq/g →	< DL Bq
WF1	12,30	Bq/g →	903,86 Bq
WF2	2,22	Bq/g →	159,90 Bq
WF3	2,10	Bq/g →	143,80 Bq
			1207,56 Bq
input	1140,11	Bq	
na analyse	1207,56	Bq	
<b>rendement</b>	<b>105,92</b>	<b>%</b>	

<b>27/03/2013 CI-36</b>			
activiteit	224,95	Bq/g	
input	0,9934	g	
	Resultaat analyse		Totale activiteit
kolf	2,99	Bq/g →	195,77 Bq
WF1	< DL	Bq/g →	< DL Bq
WF2	< DL	Bq/g →	< DL Bq
WF3	< DL	Bq/g →	< DL Bq
			195,77 Bq
input	223,47	Bq	
na analyse	195,77	Bq	
<b>rendement</b>	<b>87,61</b>	<b>%</b>	

### 4.3.2 DOWEX

**Tabel 4-12: C-14 en CI-36 bepaling via LSC na het oplossen van DOWEX (Experiment C)**

<b>28/03/2013 C-14</b>			
Activiteit	1140,00	Bq/g	
input	1,0004	g	
eindgewicht		119,769	
t	kolf	5	g
	WF1	76,1193	g
	WF2	77,8745	g
	WF3	75,7043	g
	Resultaat analyse		Totale activiteit
kolf	< DL	Bq/g →	< DL Bq
WF1	44,30	Bq/g →	3372,09 Bq
WF2	9,90	Bq/g →	770,96 Bq
WF3	11,30	Bq/g →	855,46 Bq
			4998,50 Bq
input	1140,46	Bq	
na analyse	4998,50	Bq	
<b>rendement</b>	<b>438,29</b>	<b>%</b>	

<b>28/03/2013 CI-36</b>			
activiteit	224,95	Bq/g	
input	0,9883	g	
	Resultaat analyse		Totale activiteit
kolf	1,66	Bq/g →	198,82 Bq
WF1	< DL	Bq/g →	< DL Bq
WF2	< DL	Bq/g →	< DL Bq
WF3	< DL	Bq/g →	< DL Bq
			198,82 Bq
input	222,32	Bq	
na analyse	198,82	Bq	
<b>rendement</b>	<b>89,43</b>	<b>%</b>	



### 4.3.3 Anionische en kationische harsen

**Tabel 4-13: C-14 en CI-36 bepaling via LSC na oplossen van een 50:50 mengsel van anionische en kationische harsen (Experiment D)**

29/03/2013 C-14				29/03/2013 CI-36			
activiteit	1140,00	Bq/g		activiteit	224,95	Bq/g	
input	0,9946	g		input	0,9999	g	
eindgewicht							
t	kolf	88,5239	g				
	WF1	75,8499	g				
	WF2	79,6094	g				
	WF3	74,2855	g				
	Resultaat analyse		Totale activiteit		Resultaat analyse		Totale activiteit
kolf	< DL	Bq/g →	< DL Bq	kolf	2,07	Bq/g →	183,24 Bq
WF1	35,40	Bq/g →	2685,09 Bq	WF1	< DL	Bq/g →	< DL Bq
WF2	7,60	Bq/g →	605,03 Bq	WF2	< DL	Bq/g →	< DL Bq
WF3	11,00	Bq/g →	817,14 Bq	WF3	< DL	Bq/g →	< DL Bq
			4107,26 Bq				183,24 Bq
input	1133,84	Bq		input	224,93	Bq	
na analyse	4107,26	Bq		na analyse	183,24	Bq	
rendement	362,24	%		rendement	81,47	%	

### 4.3.4 Overzicht C-14 en CI-36 bepaling via LSC - besluit

**Tabel 4-14: Overzicht C-14 en CI-36 bepaling via LSC**

	Experiment	A	B	C	D
		RVS (26/03/2013)	RVS (27/03/2013)	Dowex (28/03/2013)	Hars (29/03/2013)
<b>C-14</b>	massa staal (g)	0,9334	1,0001	1,0004	0,9946
	input (Bq)	1064,08	1140,11	1140,46	1133,84
	output (Bq)	1050,89	12107,56	4998,50	4107,26
	rendement (%)	98,76	105,92	438,29	362,24
<b>CI-36</b>	massa staal (g)	0,9635	0,9934	0,9883	0,9999
	input (Bq)	216,74	223,47	222,32	224,93
	output (Bq)	213,54	195,77	198,82	183,24
	rendement (%)	98,52	87,61	89,43	81,47

Uit vorige resultaten kan besloten worden dat de C-14 bepaling niet overal accuraat is, dit kan te wijten zijn aan een foutieve activiteitsbepaling in de tracer. De eerste twee resultaten zijn wel accuraat indien rekening gehouden wordt met een eventuele meetfout. Om te

controleren of deze resultaten representatief zijn, worden de vaste matrices, in dit geval harsen, opnieuw opgelost met toevoeging van een nieuwe tracer. Deze proeven zijn afgerond, maar de resultaten hiervan zijn nog niet verkregen.

De berekende rendementen van Cl-36 zijn  $> 80\%$ . Dit wijst erop dat er bij de gebruikte oplosmethodes slechts een minimaal verlies aan Cl-36 is.

## 4.4 Jodiumbepaling via ICP-MS

Jodium wordt normaal gezien teruggevonden in de wasflessen. Vooraleer te beginnen worden er een aantal standaarden aangemaakt. Deze zijn nodig om de verdunningsfactor te bepalen die wordt ingegeven bij de bepaling van het jodiumgehalte. Van de inhoud van de wasflessen wordt een oplossing gemaakt die honderd maal verdund is (V100), deze wordt gebruikt voor de bepaling van het jodiumgehalte via ICP-MS. Aan het experiment wordt 1% TMAH (tetramethylammoniumhydroxide) toegevoegd, omdat dit ervoor zorgt dat jood in de standaarden stabiel blijft.

### 4.4.1 Maken van de standaarden

Voor het maken van de standaarden wordt eerst 1 ppm I(KIO<sub>3</sub>) gemaakt vanuit 1000 ppm I(KIO<sub>3</sub>). Vanuit deze 1 ppm oplossing worden verschillende verdunningen gemaakt die gebruikt worden als standaard. De verdunningen worden gemaakt zodat de bekomen oplossingen volgende concentraties hebben: 0 ppb, 2 ppb, 5 ppb en 10 ppb.

Tabel 4-15: Het maken van standaarden (mL)

Standaarden	Volume (mL)			
	H <sub>2</sub> O	TMAH	1000 ppm	1 ppm
1 ppm	49,45	0,5	0,05	/
I0	49,5	0,5	/	0
I2	49,4	0,5	/	0,1
I5	49,25	0,5	/	0,25
I10	49	0,5	/	0,5

Tabel 4-16: Het maken van standaarden (g)

Standaarden	Gewicht (g)						
	leeggewicht	H <sub>2</sub> O	TMAH	1000 ppm	1 ppm	totaal	Verdunningsfactor
1 ppm	12,9468	49,4098	0,5321	0,0494	/		
I0	12,8935	49,5829	0,5309	/	0		
I2	12,9115	49,573	0,5304	/	0,0987	50,2021	1,966053213
I5	12,9317	49,4442	0,5106	/	0,2493	50,2041	4,965729891
I10	12,8927	49,2453	0,5156	/	0,4982	50,2591	9,912632737

### 4.4.2 Maken van de verdunningen

Tabel 4-17: Het maken van verdunningen (mL)

Verdunningen	Volume (ml)		
	H <sub>2</sub> O	TMAH	staal
V100	9,8	0,1	0,1

**Tabel 4-18: Het maken van verdunningen (g)**

Verdunningen naam	Gewicht (g)					
	leeggewicht	H <sub>2</sub> O	TMAH	staal	totaal	verdunningsfactor
26/03/13 WF1	6,6592	9,9055	0,1019	0,1219	10,1293	83,09515997
26/03/13 WF2	6,6212	9,7988	0,1003	0,1210	10,0201	82,8107438
26/03/13 WF3	6,6489	9,8157	0,1024	0,1224	10,0405	82,03022876
27/03/13 WF1	6,6104	9,8278	0,1008	0,1487	10,0773	67,76933423
27/03/13 WF2	6,6407	9,8275	0,1017	0,1243	10,0535	80,88093323
27/03/13 WF3	6,6350	9,8453	0,1009	0,1244	10,0706	80,95337621
28/03/13 WF1	6,6479	9,8250	0,1019	0,1233	10,0502	81,51013788
28/03/13 WF2	6,6234	9,8111	0,1026	0,1224	10,0361	81,99428105
28/03/13 WF3	6,6599	9,8301	0,1028	0,1232	10,0561	81,62418831
29/03/13 WF1	6,6576	9,8159	0,1022	0,1237	10,0418	81,17865804
29/03/13 WF2	6,6523	9,8253	0,1024	0,1209	10,0486	83,11497105
29/03/13 WF3	6,6431	9,8369	0,1026	0,1233	10,0628	81,61232766
16/04/13 WF1	6,6902	9,8371	0,1030	0,1238	10,0639	81,29159935
16/04/13 WF2	6,6715	9,8363	0,1029	0,1239	10,0631	81,21953188
16/03/13 WF3	6,6775	9,8346	0,1030	0,1248	10,0624	80,62820513

De resultaten bekomen via deze techniek zijn niet correct. Het zou kunnen dat er iets is misgegaan tijdens de experimenten of tijdens het maken van de verdunningen. De resultaten worden niet vermeld en weerhouden in dit werk. Binnen het tijdsbestek van deze masterproef was het echter niet meer mogelijk om de experimenten te herhalen en te achterhalen wat de oorzaak kan zijn van de afwijkende resultaten. Vermits dit experiment in de toekomst op het SCK zal worden herhaald, worden de experimentele gegevens voor het bereiden van de standaarden en het maken van de verdunningen wel vermeld.

## 4.5 Oplossen van verschillende matrices via hoge druk bommen

Het oplossen van vaste matrices via hoge druk bommen is niet geschikt voor het bepalen van vluchtige radionucliden. Hoge druk bommen kunnen wel gebruikt worden voor de bepaling van niet-vluchtige radionucliden. Bovendien kan deze oplosmethode voor sommige stalen tijdsbesparend zijn.

Als laatste wordt getracht  $\pm 0,1200$  g hars in oplossing te krijgen met behulp van hoge druk bommen. Het principe hiervan is dat de temperatuur traag oploopt en dat de druk opgebouwd wordt, hierdoor zal de matrix sneller oplossen dan onder normale drukcondities. Als oplosmiddel wordt 10 mL 4 M HNO<sub>3</sub> gebruikt.

Het gebruik van hoge druk bommen laat toe het mengsel langzaam op te warmen (Ramp) om het daarna voor een bepaalde tijd op deze temperatuur te houden (Hold). Door het instellen van verschillende tijden voor "Ramp" en "Hold", zal een temperatuurprofiel bekomen worden zoals weergegeven wordt in tabel 4-20 en tabel 4-21.

Eerst wordt geprobeerd om DOWEX op te lossen. Het eerste temperatuurprofiel (Profiel A) houdt het hars slechts één uur bij 200°C. Echter, onder deze condities lost het hars niet volledig op. Daarom wordt geopteerd om een profiel op te stellen waarbij het staal wordt opgewarmd tot een hogere temperatuur (225°C) en waarbij het staal ook langer bij deze de maximale temperatuur blijft, namelijk drie uur i.p.v. één uur (Profiel B). Wanneer het profiel volledig doorlopen is, blijkt dat het hars (DOWEX) wel volledig opgelost is.

Hetzelfde profiel (Profiel B) wordt gebruikt voor het oplossen van een 50:50 mengsel van anionische en kationische harsen. Net zoals bij het vorige experiment lost het hars volledig op nadat profiel B volledig doorlopen is.

**Tabel 4-19: Temperatuurprofiel A**

Nummer	Ramp (min)	Hold (min)	Temperatuur (°C)
1	15	15	100
2	15	30	150
3	15	60	200
4	15	10	100
5	5	5	50

**Tabel 4-20: Temperatuurprofiel B**

Nummer	Ramp (min)	Hold (min)	Temperatuur (°C)
1	15	15	100
2	15	15	150
3	15	15	200
4	15	180	225
5	15	15	100
6	15	15	50

## 4.6 Algemeen besluit

Een eerste doel van dit werk is om verschillende vaste afvalmatrices in oplossing te krijgen. Deze zijn harsen, papierfilters, roestvrij staal en beton/cement. Gedurende deze stage is het gelukt elk van deze matrices in oplossing te krijgen via een gewone chemische oplosmethode.

Een volgend deel van dit werk omvat het oplossen van vaste afvalmatrices waaraan tracers toegevoegd zijn, deze zijn C-14, Cl-36 en I-129. Hierbij wordt de oplosprocedure, die in vorige stap bepaald is, gebruikt. Deze experimenten zijn allemaal gelukt vermits elke matrix opgelost is. De bekomen oplossingen worden geanalyseerd en in het daaropvolgend stuk besproken.

Voor het bepalen van de hoeveelheid C-14 en Cl-36 worden de oplossingen geanalyseerd via LSC. Voor twee van de vier experimenten worden rendementen gevonden van  $>> 100\%$ . Dit kan te wijten zijn aan een foutieve activiteitsbepaling in de tracer.

De berekende rendementen van Cl-36 zijn  $> 80\%$ . Dit wijst erop dat er bij de gebruikte oplosmethodes slechts een minimaal verlies aan Cl-36 is.

Vervolgens wordt de hoeveelheid jodium bepaald met ICP-MS. De bekomen resultaten wijzen op zeer lage rendementen ( $< 5\%$ ). Het zou kunnen dat er iets is misgegaan tijdens de experimenten of tijdens het maken van de verdunningen voor de ICP-MS analyse.

Het laatste onderdeel van dit werk is het oplossen van de verschillende vaste afvalmatrices via hoge druk bommen. De matrices die gebruikt worden zijn harsen, namelijk Dowex en een mengsel van anionische en kationische harsen. Deze zijn beide volledig opgelost na het doorlopen van het vooropgestelde temperatuurprofiel.

## HOOFDSTUK 5: BIBLIOGRAFIE

1. Over SCK•CEN. [Online] [Citaat van: 17 april 2013.] <http://www.sckcen.be/nl/Over-SCK-CEN>.
2. **Vermaelen, Peter.** *Neutron Transferreacties op 86Kr*. sl : Katholieke universiteit Leuven - Faculteit wetenschappen, 2008.
3. **Hou, Jukka Letho en Xiaolin.** *Chemistry and analysis of radionuclides - laboratory techniques and methodology*. Weinheim : Wiley-VCH, 2011.
4. **Rydberg, Gregory Chopin/Jan-Olov Liljenzin/Jan.** *Radiochemistry and Nuclear Chemistry*. sl : Butterworth-Heinemann, 2002.
5. Meeteenheden. [Online] [Citaat van: 5 oktober 2012.] [http://www.nirond.be/nederlands/5\\_niras\\_nl.html](http://www.nirond.be/nederlands/5_niras_nl.html).
6. Soorten ioniserende straling. [Online] [Citaat van: 12 oktober 2012.] <http://www.sckcen.be/nl/Wetenschap-Samenleving/Nucleaire-wetenschap/Radioactiviteit/Soorten-ioniserende-straling>.
7. Bètaverval. [Online] [Citaat van: 14 december 2012.] [http://users.telenet.be/kerncentrale/H7\\_Radioactiviteit.pdf](http://users.telenet.be/kerncentrale/H7_Radioactiviteit.pdf).
8. Electron capture. [Online] [Citaat van: 19 februari 2013.] <http://www.euronuclear.org/info/encyclopedia/e/electroncapture.htm>.
9. Gammastraling. [Online] [Citaat van: 5 oktober 2012.] [http://www.nirond.be/nederlands/5\\_niras\\_nl.html](http://www.nirond.be/nederlands/5_niras_nl.html).
10. Waar zit het probleem? [Online] [Citaat van: 19 oktober 2012.] <http://www.niras.be/content/waar-zit-het-probleem>.
11. Waar komt radioactief afval vandaan? [Online] [Citaat van: 19 oktober 2012.] <http://www.niras.be/content/waar-komt-radioactief-afval-vandaan>.
12. Classificatie. [Online] [Citaat van: 19 oktober 2012.] <http://www.niras.be/content/classificatie>.
13. Classificatie van radioactief afval. [Online] [Citaat van: 5 oktober 2012.] [http://www.nirond.be/nederlands/5\\_niras\\_nl.html](http://www.nirond.be/nederlands/5_niras_nl.html).
14. Halfwaardetijd. [Online] [Citaat van: 19 oktober 2012.] <http://www.sckcen.be/nl/Wetenschap-Samenleving/Nucleaire-wetenschap/Radioactiviteit/Halfwaardetijd>.
15. Halfwaardetijd. [Online] [Citaat van: 26 oktober 2012.] <http://www.nieuwingent.be/2009/12/29/keelpijn-vervolg/>.
16. *Radiochemical Analysis for Nuclear Waste Management in Decommissioning*. **Hou, Xiaolin**. sl : nks, 2010.
17. *Radiochemical Analysis of Radionuclides Difficult to Measure for Characterization of Waste in Decommissioning of Nuclear Facilities*. **Hou, Xiaolin**. sl : Riso National Laboratory DTU, 2007.
18. *A review on speciation of iodine-129 in the environmental and biological samples*. **Hou, Xiaolin**. sl : Elsevier, 2008.
19. *Determination of chloor-36 in nuclear waste from reactor decommissioning*. **Hou, Xiaolin**. sl : American Chemical Society, 2007.
20. *The 30-Minute Guide to ICP-MS*. **Thomas, Robert**. sl : PerkinElmerSCIEX, 2002.

21. *ICP-MS: Een nieuwe en zeer gevoelige methode voor sporelementenbepaling.* **Vandecasteele, C.** 1987.
22. **Wijnen, M.** *Voorbereidende studie van de koud plasma modus van een ICP-QMS voor de bepaling van <sup>55</sup>Fe, <sup>59</sup>Ni en <sup>63</sup>Ni.* sl : Artesis Hogeschool Antwerpen, 2009.
23. **Janssens, S.** *Ontwikkeling van een scheidingsmethode om Fe van Mn af te scheiden in staallegingen als staalvoorbereidingsprocedure voor ICP-MS analyse.* sl : Artesis Hogeschool Antwerpen, 2012.
24. *Bulk- en puntanalyse van materialen uit de beeldvormende industrie via ICP-massaspectrometrie.* **Balcaen, L.** 2005.
25. **Vanhaecke, F.** *Cursus Anorganische Massaspectrometrie.* sl : Universiteit Gent, 2000.
26. Inductief gekoppelde plasma massa spectrometrie. [Online] Katholieke Universiteit Leuven. [Citaat van: 30 november 2012.] [http://www.chem.kuleuven.ac.be/research/LPAC/pdf/ICP\\_MS.pdf](http://www.chem.kuleuven.ac.be/research/LPAC/pdf/ICP_MS.pdf).
27. **Lierde, V. Van.** *Evaluatie van capillaire elektroforese gekoppeld aan inductief gekoppeld plasma sector veld massaspectrometrie voor biomedische toepassingen.* sl : Universiteit Gent, 2007.
28. High Performance/High Resolution ICP-MS, Thermo Scientific Element 2 and Element XR. [Online] [Citaat van: 30 november 2012.] [http://www.thermo.com/eThermo/CMA/PDFs/Product/productPDF\\_23502.pdf](http://www.thermo.com/eThermo/CMA/PDFs/Product/productPDF_23502.pdf).
29. Verstuiver. [Online] [Citaat van: 30 november 2012.] <http://www.precisionglassblowing.com/catalog/images/500-70QD.jpg>.
30. Quadrapool ICP-massaspectrometer. [Online] [Citaat van: 14 december 2012.] <http://www.speciation.net/Public/Document/2007/06/21/2914.html>.
31. Introduction Liquid Scintillation. [Online] [Citaat van: 6 april 2013.] [https://wiki.uio.no/mn/safe/nukwik/index.php/Introduction\\_Liquid\\_Scintillation](https://wiki.uio.no/mn/safe/nukwik/index.php/Introduction_Liquid_Scintillation).
32. **Carlsson, Sten.** *Liquid Scintillation Counting.* 1993.
33. *Determination of technetium-99 in environmental samples: A review.* **Shi, Keliang.** sl : Elsevier, 2011.
34. **Knoll, Glenn F.** *Radiation Detection and Measurement.* sl : John Wiley and Sons, 2000.
35. **Settle, Frank.** *Handbook of Instrumental Techniques for Analytical Chemistry.* sl : Prentice Hall PRT, 1997.