

Abtrennung und Ultrapurenanalyse von Plutonium mittels RIMS aus Uran des Haigerloch-Reaktors

Th. Wunderlich, N. Erdmann, J.V. Kratz, N. Trautmann

Institut für Kernchemie, Universität Mainz, D-55128 Mainz

Es wurde ein Verfahren zur Abtrennung von Plutonium aus einer festen Uranmatrix [1] mit dem Ziel entwickelt, den Gehalt des Plutoniums und seine Isotopenzusammensetzung sehr empfindlich durch Resonanz-Ionisations-Massenspektroskopie (RIMS) zu bestimmen. Diese Methode wurde erfolgreich auf eine Probe eines Uranwürfels des Haigerloch-Reaktors [2] angewendet.

Das vom Institut für Transurane, Karlsruhe zur Verfügung gestellte Uran mit einer Masse von 2,65 g wurde in 3 Fraktionen aufgeteilt und jeweils aufgearbeitet. Die durchschnittliche Ausbeute der Trennungsgänge betrug ca. 52%.

Das Uran wurde mit 8 M HNO₃ unter Kochen vollständig gelöst (~20 Minuten), die Lösung auf ein definiertes Volumen aufgefüllt und gedrittelt. Jedem Drittel wurde ²³⁶Pu- und ²⁴⁴Pu-Tracer zugegeben und der beschriebene Trennungsgang angewendet [1].

Die chemische Ausbeute wurde mittels α -Spektroskopie (Abb. 1) bestimmt.

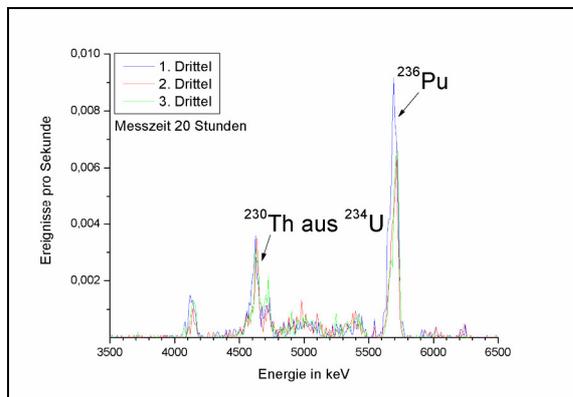


Abb.1: α -Spektren nach der Aufarbeitung der Uranfraktionen und der Elektrolyse des Plutoniums

Die isotopenselektive Bestimmung des ²³⁹Pu erfolgte durch RIMS.

Zum Einsatz kam dabei ein Nd:YAG / Titan-Saphir-Lasersystem für die Resonanzionisation und ein Flugzeitmassenspektrometer zur Trennung und zum Nachweis der erzeugten Ionen [3]. Die Nachweisgrenze der Methode beträgt $10^6 - 10^7$ Atome Plutonium [3].

Das Massenspektrum der dritten Fraktion ist als Beispiel in Abbildung 2 dargestellt.

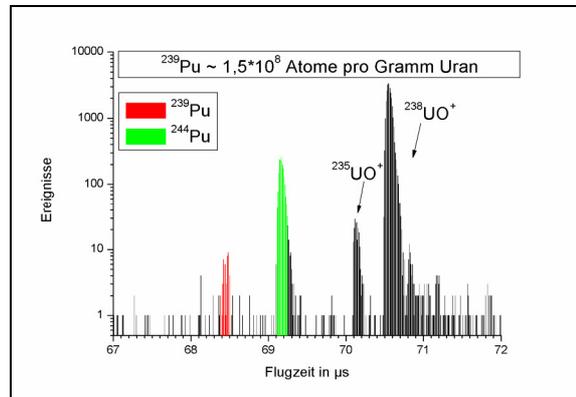


Abb. 2: RIMS-Spektrum der 3. Pu-Fraktion nach der chemischen Aufarbeitung

Für die drei aufgearbeiteten Proben ergaben sich folgende Werte:

1. Fraktion: $\sim 1,3 \cdot 10^8$ Atome ²³⁹Pu pro Gramm U
2. Fraktion: $\sim 1,7 \cdot 10^8$ Atome ²³⁹Pu pro Gramm U
3. Fraktion: $\sim 1,5 \cdot 10^8$ Atome ²³⁹Pu pro Gramm U

Im Durchschnitt enthält eine Probe des Haigerloch-Urans also $1,5 \cdot 10^8$ Atome ²³⁹Pu pro Gramm Uran. Das entspricht einem Gehalt von $\sim 6 \cdot 10^{-14}$ g Pu/g U. Die RIMS-Apparatur und der verwendete Tracer enthielten keine ²³⁹Pu-Kontamination.

Im Vorfeld durchgeführte Berechnungen über die zu erwartende Plutoniumkonzentration durch Neutroneneinfang im Uran des Reaktors oder Untergrundreaktionen liegen mit 10^{-16} bis 10^{-15} g Pu/g U deutlich unter dem ermittelten Wert. Der Gehalt von Plutonium in natürlichem Uranerz liegt bei 10^{-12} bis 10^{-11} g Pu/g U [4]; sollte aber durch die damalige Herstellung des metallischen Urans noch kleiner sein, da das Plutonium - auf Grund der chemisch ähnlichen Eigenschaften wie Thorium - bei der vorherigen Abtrennung von Thorium aus dem Uran entfernt worden ist.

Literatur:

- [1] Wunderlich, Th. (2005): Entwicklung eines Trennungsg. zur Abtrennung von Plutonium aus einer festen Uranmatrix und nachfolgender Ultrapurenanalyse mittels RIMS, Jahresbericht 2005, Universität Mainz
- [2] www.haigerloch.de/stadt/atomkeller/b8.html
- [3] C. Grüning et al., Resonance ionization mass spectrometry for ultratrace analysis of plutonium with a new solid state laser system, Int. J. Mass Spectrom. 235, 2004
- [4] Wunderlich, Th. (2006): Abtrennung von Plutonium aus Umweltproben, Diplomarbeit, Universität Mainz