

Herstellung von monodispersen Uranpartikeln als In-House-Standard

O. Stetzer^{1,2}, N. Erdmann², J.-V. Kratz¹, N. Trautmann¹, M. Betti², J. van Geel²

¹Institut für Kernchemie, Universität Mainz

²Institut für Transurane, Karlsruhe

Im Institut für Transurane (ITU) werden routinemäßig Wischtestproben analysiert, die von Inspektoren der Internationalen Atomenergiebehörde (IAEA) und der Europäischen Atomenergiebehörde (EURATOM) in kerntechnischen Anlagen genommen werden, um die dortigen Aktivitäten zu überwachen. Ein wichtiges Verfahren dieser forensischen Analysen ist die Sekundärionenmassenspektrometrie (SIMS). Dabei werden - nach entsprechender Probenvorbereitung - hauptsächlich Uranpartikel ($\sim 1 \mu\text{m}$) analysiert, um die in der Anlage auftretenden Anreicherungsgrade zu bestimmen. Um für solche Messungen entsprechende Kalibrationsstandards zur Hand zu haben, wurde im ITU eine Anlage zur Herstellung von monodispersen Uranpartikeln aufgebaut. Mit dieser Anlage gelang es, Uranoxidpartikel verschiedener zertifizierter Anreicherungsgrade mit einem Durchmesser von ca. $1 \mu\text{m}$ herzustellen.

Dazu wurden Uranylнитratlösungen durch Auflösen von zertifiziertem Uranoxid (NIST) in Salpetersäure hergestellt und auf die für die Herstellung von $1 \mu\text{m}$ großen Partikeln benötigte Konzentration verdünnt. Die verdünnten Lösungen wurden anschließend mit einem Schwingblendenaerosolgenerator (TSI, Modell 3450) in kleine ($40 \mu\text{m}$) monodisperse Tröpfchen versprüht. In einer Trockenstrecke verdampfte das Lösemittel bis ca. $1 \mu\text{m}$ große Uranylнитratpartikel zurückblieben. Diese wurden in einem Preßluftstrom durch 3 Öfen gepumpt und dabei auf ca. 800°C erhitzt. Bei dieser Temperatur calcinierten die Teilchen und wandelten sich in das stabile Uranoxid um. Die Partikel wurden anschließend, nach dem Durchlaufen einer Kühlstrecke, auf Nucleopore-Filtern gesammelt.

Zur Charakterisierung wurden mehrere Bilder mit einem Raster-Elektronenmikroskop (REM, Philips XL40) aufgenommen und daraus mit Hilfe eines Bildanalyseprogramms (Carl Zeiss Vision KS 300) eine Größenverteilung bestimmt. Wie aus Abbildung 1 ersichtlich, sind die Partikel in ihrer Größe sehr homogen, ein kleines, zweites Maximum ist auf die Vereinigung von zwei Tröpfchen vor der vollständigen Trocknung zurückzuführen.

Zur weiteren Charakterisierung wurden Partikel verschiedener ^{235}U -Anreicherungsgrade mit SIMS (Cameca IMS6F) untersucht. Für diese Messungen wurde der Primärionenstrahl des SIMS (O_2^+ , Energie: 15 keV , Strom: $1\text{-}2 \text{ nA}$) auf einzelne Partikel fokussiert und anschließend ein Massenspektrum im Bereich $M = 230\text{-}280$ (Massenauflösung: 1000) aufgenommen. Die dabei gemessenen Isotopenverhältnisse wurden mit den zertifizierten Werten für die Ausgangsmaterialien verglichen und sind am

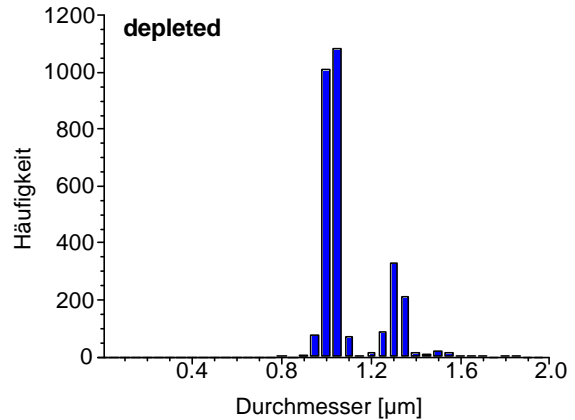


Abb. 1: Größenverteilung Uranpartikel ($0,5 \% ^{235}\text{U}$)

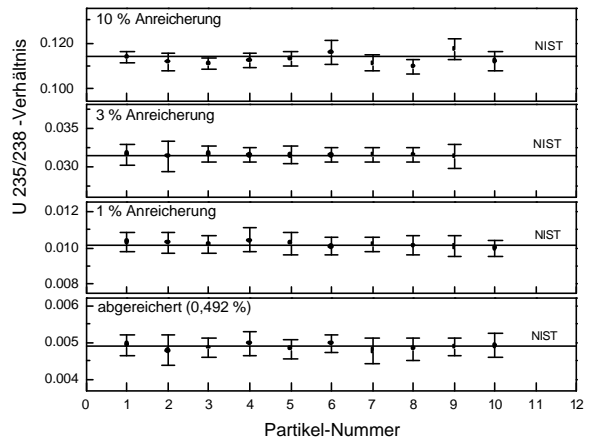


Abb. 2: Isotopenverhältnisse der Uranpartikel

Beispiel $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ in Abb. 2 dargestellt (Fehlerbalken: 1σ). Die Übereinstimmung ist sehr gut. Aus dem Verhältnis Element- zu Uranoxid- und Urandi-oxidationen im SIMS-Spektrum kann man schließen, daß die Partikel überwiegend aus U_3O_8 bestehen.

In zukünftigen Experimenten ist geplant, kleinere Partikel (bis 500 nm) herzustellen. Weiterhin sollen die für Safeguard-Anwendungen interessanten ^{235}U -Anreicherungsgrade 20% , 50% und 90% eingesetzt werden. Diese Partikel dienen später auch zur Kalibration der Spaltspurmethode, die in Zukunft ergänzend neben der Sekundärionenmassenspektroskopie und der Elektronenmikroskopie eingesetzt werden soll.