

# Spaltspuranalyse von Uranoxidpartikeln

O. Stetzer<sup>1</sup>, M. Betti<sup>2</sup>, J. van Geel<sup>2</sup>, J.V. Kratz<sup>1</sup>, R. Schenkel<sup>2</sup>, N. Trautmann<sup>1</sup>,

<sup>1</sup>Institut für Kernchemie, Universität Mainz

<sup>2</sup>Institut für Transurane, Karlsruhe

Seit Bekanntwerden eines geheimen Atomwaffenprogramms des Irak und dem Golfkrieg besteht ein vermehrtes Interesse an Analysemethoden für Safeguardsanwendungen [1]. Darunter versteht man die Untersuchung von Proben, die in nuklearen Einrichtungen oder aus deren näherer Umgebung genommen werden. Ziel ist die Identifikation von spezifischen Signaturen, die Rückschlüsse auf die in der Anlage verarbeiteten Kernbrennstoffe zulassen. Eine sehr wichtige Signatur stellt dabei der Anreicherungsgrad des Isotops  $^{235}\text{U}$  in Uranproben dar, weil dieser darüber Aufschluß gibt, ob in der Anlage Kernbrennstoff mit niedrigen Anreicherungsgraden um ca 4 % (LEU, low enriched uranium) oder hochangereichertes, waffenfähiges Uran (HEU, high enriched uranium) verarbeitet wurde.

Einen Schwerpunkt stellt die Analyse einzelner Partikel dar, weil diese die Signaturen aus den Verarbeitungsprozessen unverändert mit sich tragen. Um "verdächtige" Partikel mit höheren Anreicherungsgraden in einer Probe aus einem Meer von Staubpartikeln zu lokalisieren, wurde die Spaltspuranalyse [2] eingesetzt, damit sie dann anderen Analysemethoden, wie z.B. der Sekundärionenmassenspektrometrie (SIMS), zugeführt werden können. Anhand von zuvor hergestellten Referenzpartikeln aus Uranoxid mit verschiedenen Anreicherungsgraden wurde die Methode an die Anforderungen der anderen Analysemethoden (wie z.B. SIMS) angepaßt. Dadurch sind die Proben ohne zusätzliche Behandlung weiteren Untersuchungen zugänglich.

Die Spaltfragmente, die bei der Bestrahlung mit thermischen Neutronen im Reaktor entstehen, hinterlassen in geeigneten Detektormaterialien, wie z.B. Polycarbonatfolie, entlang ihrer Trajektorien Gitterschäden, die sich durch Ätzen mit Natronlauge "entwickeln" und unter einem Mikroskop auszählen lassen. Handelt es sich bei den Proben um Partikel, so erhält man Spaltspursterne. Die Anzahl der Spaltspuren (engl. fission tracks) eines solchen Sternes ist direkt proportional zur Anzahl der  $^{235}\text{U}$ -Atome in dem Partikel. Kennt man zusätzlich die Dichte und Größe des Partikels, so kann daraus dessen Anreicherungsgrad abgeschätzt werden.

Für die Entwicklung und Evaluierung der Spaltspuranalyse wurden Partikel verschiedener Größen ( $0.6 - 1 \mu\text{m}$ ) und Anreicherungsgrade (0.5 - 90 %) durch Spraypyrolyse von Uranylнитratlösungen hergestellt. Zur Spaltspuranalyse wurden die Proben nach geeigneter Präparation zur Bestrahlung im Reaktor mit einem passenden Stück Polycarbonatfolie in Kontakt gebracht. Nach der Bestrahlung wurde der Detektor vorsichtig abgelöst, geätzt und unter dem Mikroskop analysiert. Die Spaltspuren pro Partikel wurden für jedes gefundene Partikel gezählt und in Form von Histogrammen dargestellt (Abb. 1). An die Daten ließen sich Gaußfunktionen anfitzen, in vielen Proben konnte neben dem Hauptmaximum ein Nebenmaximum

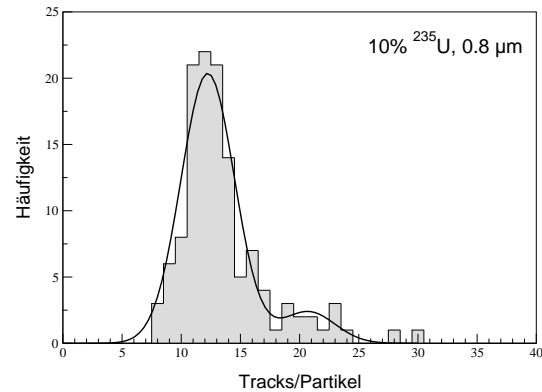


Abbildung 1: Histogramm einer Spaltspurverteilung von Partikeln mit 10 % Anreicherungsgrad.

gefunden werden. Dieses entspricht Partikeln mit doppelter Masse, die bei der Herstellung durch Koagulation von zwei Tröpfchen vor dem Trocknen entstehen [3]. Trägt man die gemessenen Werte gegen die berechneten Werte auf, so erhält man die Nachweiseffizienz (Abb. 2). Die Effizienz

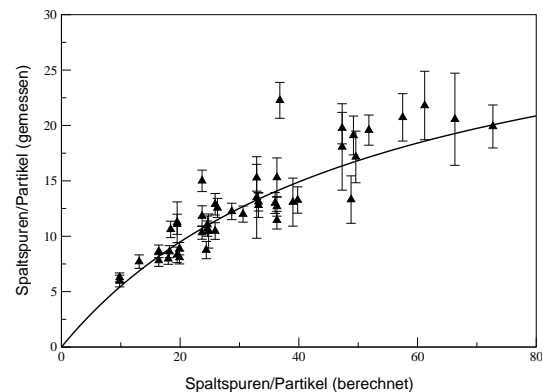


Abbildung 2: An die experimentellen Daten angefitzte Effizienzkurve für die Spaltspuranalyse.

enz weicht von einem linearen Zusammenhang ab, da sich die Spaltspuren bei höherer Spaltspurdichte überlagern und analog zur Totzeit bei einem konventionellen Detektorsystem teilweise unterdrückt werden. Weil die Anzahl der Spaltspuren pro Partikel von der Masse des Partikels abhängt, muß zur Abschätzung eines Anreicherungsgrades bei unbekanntenen Proben die Größe der Partikel zuvor mittels Rasterelektronenmikroskopie bestimmt werden.

## Literatur

- [1] D. Donohue, R. Ziesler: *Anal. Chem.* **65**, 359A (1993)
- [2] R. Fleisher et. al: *Nuclear Tracks in Solids*, Univ. of. Calif. Press, Berkeley, 1975
- [3] N. Erdmann et. al: *Spectrochim. Acta Part B* **55**, 1565 (2000)