

Plutoniumbestimmung in Hausstaub nach einem Extremereignis mittels Resonanzionisations–Massenspektrometrie

C. Grüning¹, K. Eberhardt¹, G. Huber², J. Lassen², J.V. Kratz¹, P. Kunz², G. Passler², P. Thörle¹, N. Trautmann¹
¹Institut für Kernchemie, ²Institut für Physik, Universität Mainz

Die Resonanzionisations – Massenspektrometrie (RIMS) wurde in unserer Arbeitsgruppe in den letzten Jahren als Standardmethode zur isotopenselektiven Ultrapurenanalyse von Plutonium etabliert [1, 2]. Als notwendige Voraussetzung wurde zunächst ein leistungsstarkes, wartungsarmes und einfach handhabbares Nd:YAG / Titan-Saphir-Lasersystem für die Resonanzionisation aufgebaut [3].

Die Effizienz der Nachweismethode wurde in einer Vielzahl von Messungen zu $\varepsilon = 1 \times 10^{-5}$ bestimmt. Je nach Anzahl der Untergrundereignisse ergeben sich daraus Nachweisgrenzen bis herab zu $2 \cdot 10^6$ Atomen Plutonium. Zur Demonstration der genauen und reproduzierbaren Messung von Isotopenverhältnissen wurden die Zusammensetzungen von synthetischen Isotopengemischen sowie zertifizierter Referenzgemische, wie z.B. dem NIST Standard SRM996, bestimmt [4].

In letzter Zeit wurden mit der RIMS die Plutoniumgehalte von insgesamt 50 Hausstaub-, Meerwasser-, und Urinproben bestimmt und somit die Eignung der RIMS-Apparatur zur isotopenselektiven Ultrapurenanalyse von Plutonium demonstriert [2].

Im Jahr 2001 konnte die Apparatur zur schnellen Bestimmung des Plutoniumgehaltes und der Isotopenzusammensetzung von Staubproben nach einem Extremereignis eingesetzt werden.

Anfang 2001 wurde bei Routineuntersuchungen im Urin eines Arbeiters der ehemaligen Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe eine Plutoniumkontamination festgestellt. Für das Ministerium für Umwelt und Forsten in Rheinland-Pfalz wurden im Juli 2001 die Plutoniumgehalte und Isotopenzusammensetzungen dreier Staubproben aus zwei Wohnungen bestimmt, in denen sich dieser Arbeiter aufhielt. Nach Anlieferung der Proben konnte innerhalb von zwei Arbeitstagen die erste Probe chemisch aufgearbeitet und mit der RIMS vermessen werden.

Das Massenspektrum einer Probe ist in Abbildung 1 dargestellt. Neben dem Tracerisotop ²⁴⁴Pu konnten in jeder Probe die Plutoniumisotope ²³⁸Pu bis ²⁴²Pu mit dem in Tabelle 1 angegebenen Verhältnis nachgewiesen werden. Die Menge an ²³⁹Pu liegt mehrere Größenordnungen über dem Untergrund an Fallout-Plutonium, der in Staubproben zu etwa 1×10^9 Atome/g bestimmt wurde [2]. Die Isotopenzusammensetzung unterscheidet sich ebenfalls deutlich von Fallout-Plutonium mit einem ²⁴⁰Pu zu ²³⁹Pu Verhältnis von 0,18 und entspricht der Zusammensetzung von Reaktorplutonium.

Probe 3 hat einen signifikant geringeren Gehalt an Plutonium 238, 241 und 242 als die beiden anderen Proben. Der geringere ²³⁹Pu-Gehalt wurde bei einer α -spektroskopischen Messungen zur Bestimmung

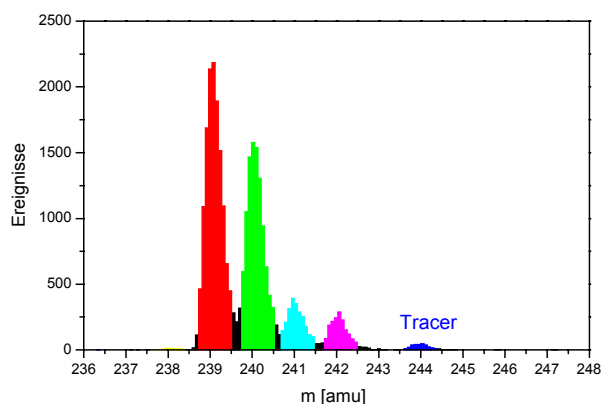


Abb. 1: Massenspektrum einer Staubprobe mit Plutonium aus der ehemaligen Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe.

der Verhältnisse von ²³⁸Pu zu ²³⁹⁺²⁴⁰Pu ebenfalls beobachtet. Die beiden unterschiedlichen Isotopenvektoren deuten auf zwei in ihrer Isotopenzusammensetzung unterschiedliche Quellen für die Kontamination der Wohnungen hin.

Tab. 1: ²³⁹Pu-Gehalt und Isotopenzusammensetzung der Staubproben.

Probe	1	2	3
²³⁸ Pu [%]	1,1(1)	1,1(1)	0,6(1)
²³⁹ Pu [%]	64,8(42)	61,6(50)	65,2(23)
²⁴⁰ Pu [%]	25,1(9)	27,9(12)	27,8(5)
²⁴¹ Pu [%]	4,4(3)	4,8(4)	3,0(2)
²⁴² Pu [%]	4,6(2)	4,7(4)	3,0(2)
²³⁹ Pu [Atome/g]	$\approx 7 \cdot 10^{14}$	$2,9(3) \cdot 10^{11}$	$3,6(3) \cdot 10^{12}$

Literatur:

- [1] G. Passler et al., Kerntechnik 62 85 (1997)
- [2] C. Grüning et al., Jahresbericht 2000, IKMZ 2001-1, C8
- [3] C. Gruening et al., Proc. of the 9th Int. Symp. on Resonance Ionization Spectroscopy, AIP Conf. Proc. 454, 285 (1998)
- [4] C. Gruening et al., Proc. of the 10th Int. Symp. on Resonance Ionization Spectroscopy, AIP Conf. Proc., 584 255 (2001)