

# Bestimmung des Gehalts und der Isotopenzusammensetzung von Plutonium in Urangeschossen mit Hilfe der Resonanzionisationsmassenspektrometrie

S. Bürger<sup>1</sup>, D. Bender<sup>1</sup>, G. Huber<sup>2</sup>, J.V. Kratz<sup>1</sup>, P. Kunz<sup>2</sup>, Ch. Lierse von Gostomski<sup>3</sup>, G. Passler<sup>2</sup>, A. Remmert<sup>4</sup>, N. Trautmann<sup>1</sup>, S. Zauner<sup>1</sup>

1) Institut für Kernchemie, Johannes Gutenberg - Universität Mainz, 2) Institut für Physik, Johannes Gutenberg - Universität Mainz, 3) Institut für Radiochemie, TU München, 4) Fachhochschule NTA Isny

In Zusammenarbeit zwischen dem Institut für Kernchemie und dem Institut für Physik wurde in den vergangenen Jahren für den hochempfindlichen Nachweis von Plutonium verbunden mit einer eindeutigen Isotopenverhältnismessung die Resonanzionisations-Massenspektrometrie (RIMS) eingesetzt. Zum Einsatz kommt ein leistungsstarkes, wartungsarmes und einfach handhabbares Nd:YAG / Titan-Saphir-Lasersystem für die Resonanzionisation kombiniert mit einem Flugzeitmassenspektrometer [1].

Die Effizienz der Nachweismethode beträgt  $\epsilon \geq 1 \cdot 10^{-5}$ . Unter Berücksichtigung der Untergrundereignisse ergeben sich daraus Nachweisgrenzen von  $10^6 - 10^7$  Atome bzw.  $10^{-16} - 10^{-15}$  g Plutonium pro Probe.

Auf Anfrage des Instituts für Radiochemie der TU München wurden im August / September 2002 Messungen mittels der hier etablierten RIMS durchgeführt, die die Bestimmung des Plutoniumgehalts und dessen Isotopenzusammensetzung in der im Kosovo verwendeten Uranmunition zum Ziel hatten.

Die chemische Aufarbeitung der Proben und die Abtrennung des Plutoniums aus einem fast vollständigen gelösten Geschoss (92,57 g abgereichertes Uran) ist in München durchgeführt worden [2]; die Herstellung der Filamente erfolgte am Institut für Kernchemie in Mainz. Für RIMS-Messungen standen zwei Proben mit zugefügtem <sup>236</sup>Pu-Tracer für die Bestimmung der chemischen Ausbeute und zwei Proben ohne Tracer zur Verfügung. Diese wurden von uns geteilt und zusätzlich mit hochreinem <sup>244</sup>Pu-Tracer versehen.

Das Massenspektrum einer Probe, mit der ein Sprungscan zwischen den Isotopen <sup>242</sup>Pu und <sup>244</sup>Pu durchgeführt wurde, ist in Abbildung 1 dargestellt.

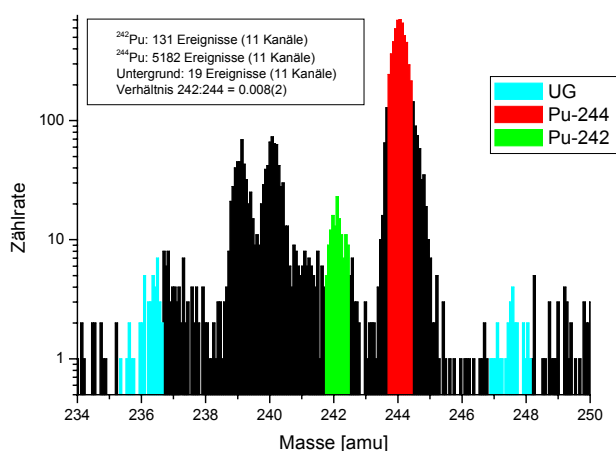


Abbildung 1: RIMS-Massenspektrum einer Isotopenverhältnismessung Pu-242/Pu-244 der Probe I

Bei dem Sprungscan werden die übrigen Isotope zwar unterdrückt, sind jedoch immer noch im Massenspektrum zu sehen. Neben dem Tracer-Isotop <sup>244</sup>Pu konnte in allen untersuchten Proben die Plutoniumisotope <sup>239</sup>Pu bis <sup>242</sup>Pu nachgewiesen werden.

In Tabelle 1 findet sich eine Gegenüberstellung der ermittelten prozentualen Pu-Isotopenanteile aus dem Urangeschoss mit den von Fetter et al. [3] für Waffenplutonium publizierten Werten.

Tabelle 1: Prozentualer Anteil der Pu-Isotope

	Anteil [%]	Anteil [%] in Waffenplutonium nach Fetter et al. [3]
<b>Pu-239</b>	93,6(5,9)	93,5
<b>Pu-240</b>	6,2(0,7)	6,0
<b>Pu-241</b>	0,09(0,03)	0,44
<b>Pu-242</b>	0,06(0,01)	0,015

Sie stimmen innerhalb der Fehler für <sup>239</sup>Pu und <sup>240</sup>Pu überein. <sup>241</sup>Pu hat eine relativ kurze Halbwertszeit ( $T_{1/2} = 14,35$  a). Versucht man die Differenz zwischen 0,09 % und den zu erwartenden 0,44 % durch Zerfall zu erklären, so müssten nach dem radioaktiven Zerfallsgesetz ca. 33 Jahre vergangen sein, also das Plutonium aus den 70iger Jahren stammen. <sup>238</sup>Pu konnte weder mit der RIMS noch mit parallel durchgeführter  $\alpha$ -Spektroskopie bestimmt werden.

Messungen der <sup>239/240</sup>Pu-Aktivität von Urangeschossen am Labor Spiez weisen Werte im Bereich  $< 0,8$  mBq/g Uran bis 3,0 mBq/g Uran auf [4]. Unsere  $\alpha$ -Messungen ergeben 35 mBq <sup>239/240</sup>Pu pro g Uran bei einer chemischen Ausbeute von 38,1 % [2].

Der Gehalt an <sup>239</sup>Pu beträgt somit ca.  $3,5 \cdot 10^{12}$  Atome in 92,57 g Uran oder ca. 15 pg <sup>239</sup>Pu/g Uran, d.h. ca. 15 ppt.

## Literatur:

- [1] Grüning, C. (2001): Spektroskopie und Ultraspurenanalyse von Plutonium mittels Resonanzionisations-Massenspektrometrie. Doktorarbeit. Universität Mainz.
- [2] Remmert, A. (2002): Untersuchung von Kosovo-Uran mittels radiometrischer und massenspektroskopischer Verfahren. Diplomarbeit. Fachhochschule NTA
- [3] Fetter, S. et al. (1990): Fissile Materials and Weapon Design. Science & Global Security, Volume 1, pp. 225-302.
- [4] Burger, M. et al (2001): Report of the Swiss Members of UNEP-Team. Spiez Laboratory.