

Entwicklung eines Trennungsgangs zur Abtrennung von Plutonium aus einer festen Uranmatrix und nachfolgender Ultrapurenanalyse mittels RIMS

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

Institut für Kernchemie, Universität Mainz, D-55099 Mainz

Ein Verfahren zur Abtrennung von Plutonium aus einer festen Uranmatrix wurde entwickelt. Ziel ist die Herstellung von Filamenten für eine nachfolgende Analyse des Plutoniums hinsichtlich Gehalt und Isotopenzusammensetzung durch Resonanz-Ionisations-Massenspektroskopie (RIMS). Mögliche Anwendungen dafür sind Plutoniumbestimmungen in natürlichen Uranerzen oder Reaktorbrennelementen.

Die Vorexperimente wurden mit jeweils ~1 g abgereichertem Uran (0,2% ^{235}U ; $\sim 2,5 \cdot 10^{21}$ Atome gesamt), dem ^{240}Pu als Tracer ($\sim 2 \cdot 10^{10}$ Atome) zugefügt wurde, durchgeführt. Die Probe enthielt folgende Isotope: ^{238}U , ^{235}U und ^{240}Pu sowie die Zerfallsprodukte ^{234}U , ^{230}Th , ^{226}Ra , ^{231}Pa .

Die folgende chemische Aufarbeitung ergab die beste Ausbeute von ca. 60%.

Das metallische Uran wurde mit 8 M HNO_3 unter Kochen gelöst (~90 Minuten). Nach vollständiger Auflösung wurde der Tracer zugegeben und nochmals zum Sieden erhitzt. Dann wurde mit konz. NH_3 gefällt. Die abgekühlte Lösung wurde abgesaugt, der Niederschlag mit verdünntem NH_3 gewaschen und mit 4 M HNO_3 aufgenommen. Diese Lösung wurde auf eine extraktionschromatographische Säule (TEVA-Resin-SPS; konditioniert mit 4 M HNO_3) aufgebracht. Es wurde mit 4 M HNO_3 gespült und dann mit 0,5 M HCl das Pu eluiert. Die Lösung wurde eingedampft, mit 2 M HNO_3 und H_2O_2 aufgenommen und abgeraucht. Der Rückstand wurde mit 2 M HNO_3 aufgenommen und mit NaNO_2 versetzt. Anschließend erfolgte die Aufgabe auf eine Anionenaustauschersäule (BioRad-AG-MP1, vorkonditioniert mit 2 M HNO_3). Nach Spülung mit 2 M HNO_3 wurde mit 0,36 M HCl / 0,025 M HF -Lösung eluiert. Das Eluat wurde verkocht, der Rückstand mit konz. H_2SO_4 aufgenommen und abgeraucht, um organische Rückstände und Kolloide zu zerstören. Dann wurde mit einer $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ -Lösung (20%; pH=1,5) aufgenommen, in das Elektrolysegefäß überführt und anschließend elektrolysiert (90 min; 17 V; ~300 mA). Das Plutonium wird hierbei als $\text{Pu}(\text{OH})_4$ auf einem Tantalblech abgeschieden.

Die chemische Ausbeute wurde in allen Experimenten mittels α -Spektroskopie bestimmt. Die Spektren (Abb. 1) enthielten keine nachweisbaren Mengen an ^{238}U mehr, was weniger als $\sim 2,5 \cdot 10^{12}$ Atomen entspricht.

Neben dem Tracer-Isotop ^{240}Pu konnte in allen Proben ^{239}Pu nachgewiesen werden, bedingt durch eine Verunreinigung aus dem Labor.

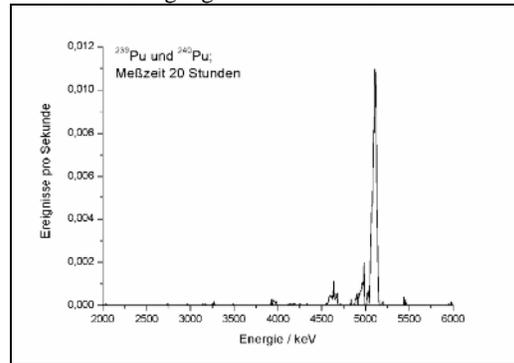


Abb.1: α -Spektrum nach der chemischen Aufarbeitung von 1 g U und der Elektrolyse des Pu

Die weitere elementselektive Identifizierung erfolgt durch die RIMS.

Zum Einsatz kommt dabei ein Nd:YAG / Titan-Saphir-Lasersystem für die Resonanzionisation und ein Flugzeitmassenspektrometer zum Nachweis der erzeugten Ionen [1]. Die Nachweisgrenze der Methode beträgt $10^6 - 10^7$ Atome Plutonium pro Probe [1]. Das Massenspektrum einer isolierten Pu-Fraktion ist in Abbildung 2 dargestellt.

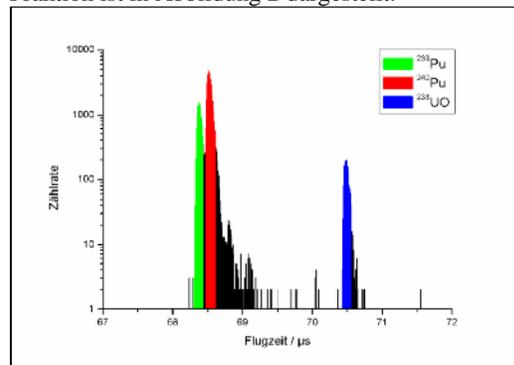


Abb.2: RIMS-Spektrum der Pu-Fraktion nach der chemischen Aufarbeitung von 1 g U

Ein Anwendungsbeispiel für das beschriebene Verfahren ist die geplante Bestimmung von Plutonium im Uran des Haigerlocher Reaktors [2] in Kollaboration mit dem Institut für Transurane, Karlsruhe.

Literatur:

- [1] Grüning, C. (2001): Spektroskopie und Ultrapurenanalyse von Plutonium mittels Resonanz-Ionisations-Massenspektroskopie. Doktorarbeit. Universität Mainz
- [2] www.haigerloch.de/stadt/atomkeller/b8.html