

# Nordische Mythen, griechische Götter und Engel

## AUTORINNEN und AUTOREN

Paul Hanemann	David Ohm
Aaron Lehnert	Clemens Walther
Laura Leifermann	Tobias Weissenborn

## ZUSAMMENFASSUNG

Radioaktive Mikropartikel sind wichtige Objekte nuklearer Forensik. Ihre Isotopenmuster tragen Informationen über ihre Herkunft und Entstehungsgeschichte. Mit der Kombination höchst sensitiver und selektiver massenspektrometrischer Methoden werden diese im Spurenkonzentrationsbereich entschlüsselt. Hierfür sind Isotopenmengen im Attogramm-Bereich bereits ausreichend. Die Selektion einzelner Partikel auf Wolfram-Nadeln erlaubt es nicht nur, Interferenzen verschiedener Quellen zu vermeiden, sondern auch nachfolgend zu dieser quasi nicht destruktiven Isotopenanalyse weitere z. B. chemische Untersuchungen zu Stabilität und Auflösungsverhalten zu machen. Dies hilft abzuschätzen, ob Verwitterungsprozesse eine Mobilisierung von Radionukliden aus Partikeln heraus verursachen und so zu einer radiologischen Gefährdung führen können.

## SUMMARY

### Nordic myths, Greek gods and angels

Radioactive microparticles are important objects in nuclear forensics. Their isotope patterns carry information about their origin and history. With the combination of highly sensitive and selective mass spectrometric methods, these are decoded in the trace concentration range. Isotope quantities in the attogram range are already sufficient. Mounting individual particles on tungsten needles not only makes it possible to avoid interference from different sources, but also to carry out further, e.g. chemical, investigations into stability and dissolution behavior subsequent to this quasi-non-destructive isotope analysis. This helps to assess whether weathering processes can cause a mobilization of radionuclides from particles and thus lead to a radiological hazard.

## Ein nuklearforensisches Abenteuer

Wird nukleares Material gefunden, stellt sich die Frage nach seiner Historie. Darunter verstehen wir nicht nur die Herkunft, sondern auch das Alter und zu welchem Zweck das Material genutzt wurde. Handelt es sich um Material aus einem Kernreaktor, könnte man zum Beispiel nach der Art des Reaktors, dem Anreicherungsgrad des Brennstoffs und sogar nach Betriebsparametern fragen. Doch kann man das aus einer einzigen Probe beantworten? Mit etwas Glück: ja.

Wichtig ist in diesem Fall aber, eine Interferenz mit weiteren Quellen zu vermeiden. Misst man eine Bodenprobe mit mehreren 100 g z. B. per Gamma-Spektrometrie, so kann das nicht garantiert werden. Wir untersuchen daher Partikel, die nur einige  $\mu\text{m}$  groß sind. In diesem Fall tun sich aber weitere Probleme auf: Wie findet man sie und welche Methoden kommen mit dieser kleinen Materialmenge aus?

### Resonante Laserionisations-Sekundärneutralteilchen-Massenspektrometrie

Unser Lösungsansatz ist die rL-SNMS oder ausgeschrieben das Wortungetüm „Resonante Laserionisationssekundärneutralteilchenmassenspektrometrie“ (s. Abb. 1). **Dahinter verbirgt sich der folgende Ansatz:**

Wir benutzen ein statisches Sekundärionisations-Massenspektrometer (SIMS). Hier werden Oberflächen mit einem Strahl schneller Ionen beschossen (b I), die sekundäre Teilchen (Ionen oder Atome) herauslösen.

Klassisch zieht man die Ionen in ein Massenspektrometer ab und bestimmt

deren Masse zu Ladung Verhältnis. Das ist ein sehr empfindliches Verfahren. Es hat aber den Nachteil, dass Ionen mit derselben Masse, also z. B.  $^{238}\text{Pu}$  in einer Matrix aus  $^{238}\text{U}$  nicht unterschieden werden können.

Wir unterdrücken daher die Ionen und nutzen die sekundären neutralen Teilchen (b II). Diese werden mittels resonanten Lichts mehrerer durchstimmbarer gepulster Laser (a) selektiv ionisiert (b III). Im o. g. Beispiel erzeugen wir also nur Pu-Ionen (b IV), während U neutral bleibt und unterdrückt wird – und zwar um bis zu 1:100.000. Dies ist dann das Verfahren der rL-SNMS. Der primäre Strahl der Ionen

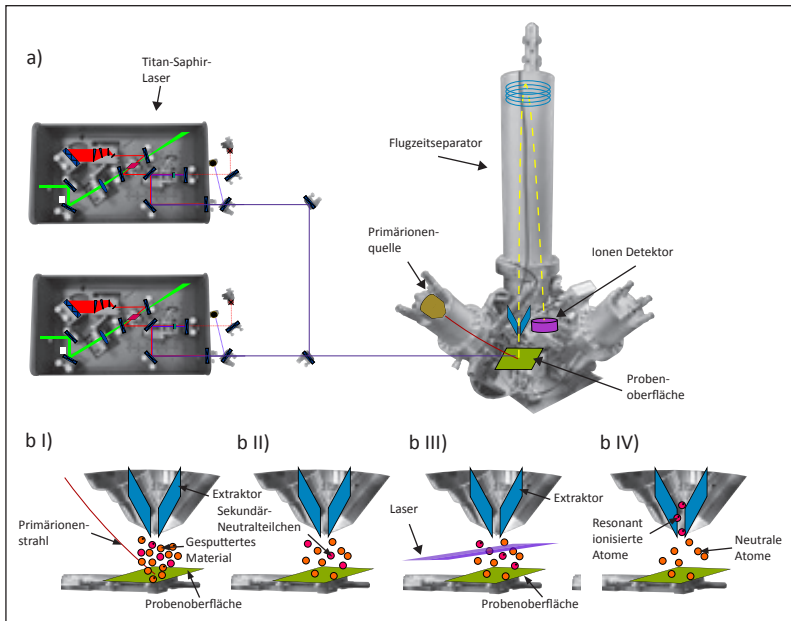


Abb. 1: Schematische Darstellung des rL-SNMS-Systems

- a): Überblick des gesamten Systems
- b I): Schritt 1 – Durch Primärionenbeschuss werden Sekundärionen und Sekundärneutralteilchen von der Probenoberfläche gesputtert.
- b II): Schritt 2 – Durch das Anlegen einer Spannung am Extraktor werden die Sekundärionen verdrängt, während die Sekundärneutralteilchenwolke dispergiert wird.
- b III): Schritt 3 – Die Sekundärneutralteilchenwolke wird von mehreren Laserstrahlen getroffen. Hierdurch wird das zu messende Element ionisiert, während der Rest der Wolke neutral bleibt.
- b IV): Die resonant ionisierten Sekundärteilchen werden durch den Extraktor in den Flugzeit-Massenseparator beschleunigt.

kann sehr eng fokussiert und über die Probe gerastert werden. Damit erhält man eine Ortsauflösung besser als 100 nm.

**Ablauf der Messung**

**Starten wir mit der Probennahme.**

Nur wenige Mikrometer große Partikel in einer Umweltprobe zu finden, entspricht der berühmten Suche nach der Nadel im Heuhaufen. Wir wenden dafür ein gestuftes Verfahren an (s. Abb. 2). Schon bei der Probenahme (A) achten wir auf lokale Erhöhung der Ortsdosisleistung. Das kann ein Hinweis auf einen Partikel mit hoher Gamma-Aktivität sein.

**Weitere Schritte im Labor**

Die Proben werden dann im Labor gesiebt (B) und die kleine Fraktion mithilfe einer Polywolframat-Lösung nach

Dichte getrennt (C). Diese hat eine Dichte von ca.  $3 \text{ g cm}^{-3}$ . So wie Holz auf Wasser schwimmt, ist dies hier für die meisten natürlichen Partikel der Fall, z. B. Silikate.

Kernbrennstoff dagegen hat eine Dichte von ca.  $10 \text{ g cm}^{-1}$  und sedimen-

tiert. Diese untere Fraktion überführen wir in ein Elektronenmikroskop (D), das im sogenannten Backscatter-Mode schwere Elemente kontrastreich gegen den Hintergrund leichter Elemente abbildet. Ist auf diese Weise ein Partikel identifiziert, wird er mittels Mikromanipulators und eines speziellen Klebers (E) auf einer Wolframnadel (F) fixiert und steht danach für analytische Messungen, zum Beispiel radiometrische Methoden oder rL-SNMS (G), zur Verfügung. Mit dieser Methode sind auch Partikel auffindbar, die keine Gamma-Strahlung emittieren.

**Messungen**

Die Leistungsstärke dieser Methode soll anhand einiger Beispiele demonstriert werden.

**Infolge des Reaktorunfalls in Tschornobyl** am 26. April 1986 wurden große Mengen Kernbrennstoff in partikulärer Form freigesetzt, deren Großteil im Umkreis von 30 km niederging. Isotopenverteilungen im Brennstoff des RBMK-Reaktors sind aus Messungen an intakten Brennelementen bekannt [1]. Jedoch können sie sich unterscheiden je nach ursprünglichem Anreicherungsgrad (also dem Anteil spaltbaren  $^{235}\text{U}$ ), aus welcher Position im Reaktorkern und auch innerhalb des Brennelements der Brennstab stammt und sogar, ob die Probe aus dem unteren,

**Suche nach der Nadel im Heuhaufen**

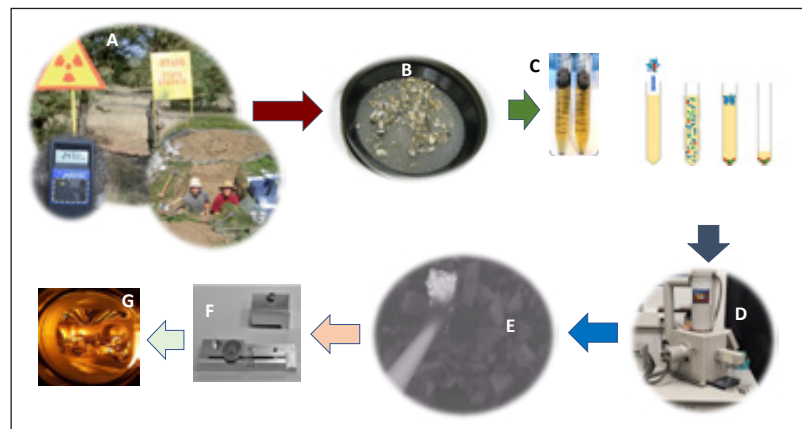


Abb. 2: Unsere Partikelsuche und Isolation besteht aus diesen Schritten: Probennahme (A), Sieben (200 µm) (B), Dichtentrennung in Polywolframatlösung (C), im REM Finden (D) und Aufnadeln (E), Nadel mit Partikel in Halterung (F), Stage und Extraktionskonus des rL-SNMS-Geräts (G).

mittleren oder oberen Segment des Stabs entnommen wurde<sup>1)</sup>.

Mithilfe der rL-SNMS können wir diese Unterschiede an nur einige Mikrometer großen Partikeln bestimmen.

## Partikel nur einige Mikrometer groß

Dafür benötigen wir nur wenige Picogramm Material des Partikels.

Die Methode ist zwar streng genommen durch das Absputtern invasiv, jedoch konnten wir bereits zeigen, dass ein einziger Partikel über 1.000 Messstunden „überlebt“ und reproduzierbare Ergebnisse liefert.

Auch stark unterdrückte Isotope werden identifiziert. So konnten Spuren von <sup>242m</sup>Am in einem der Partikel nach-

gewiesen werden. Für diese Messung wurden nur ca. 100 Attogramm dieses Isotops benötigt [2].

Aufgrund der herausragenden Sensitivität und Selektivität der Methode sind auch Messungen an nur einem einzigen Parti-

kel aussagekräftig und belastbar.

Ebenfalls aus der Sperrzone Tschornobyl konnte der Partikel „Orm“ identifiziert werden, dessen Isotopenverhältnisse deutlich von den für diese Art von Partikel erwarteten Verhältnissen abweicht.

### Der Partikel „Orm“

Am IRS erhalten alle Partikel einen Namen. Dies macht die Arbeit an ihnen viel persönlicher, als das bei einer Zahl wäre. Die Namensgebung orientiert sich an den verschiedenen Fundorten (Kühlteich des Tschornobyl-Reaktors: Nordisch, Kopa-chi: Griechisch und Bohrkerne von Bodenproben Engel)

<sup>1)</sup> Hier spielt bei einem Siedewasserreaktor z. B. die Kühlmitteldichte eine Rolle.

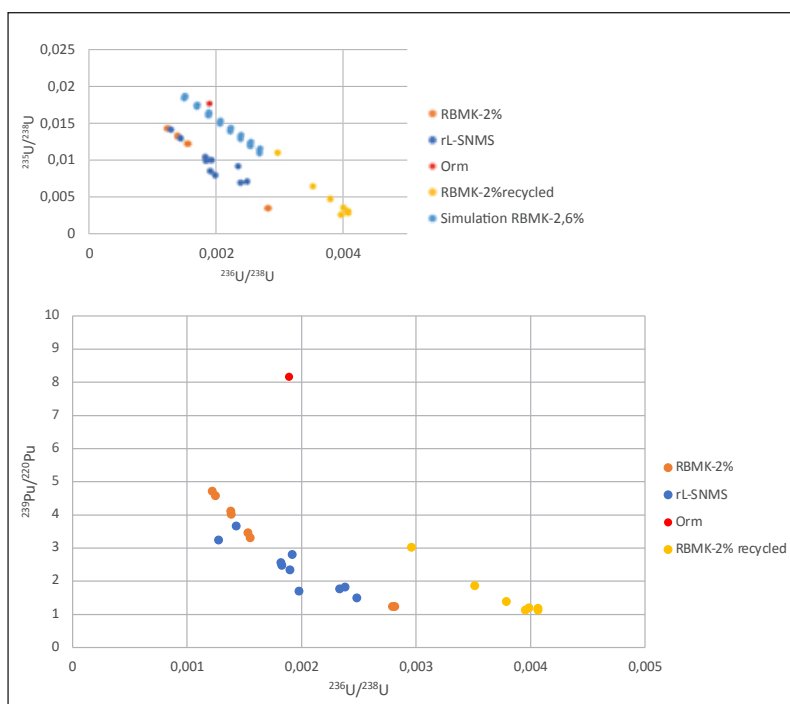


Abb. 3: Uran-Isotopenverhältnisse (oben) und Plutonium-Isotopenverhältnisse (unten) des Hot Particles im Vergleich zu Literaturwerten.

Die RBMK-Daten stammen von Makarova et al. [3], die rL-SNMS-Daten wurden am IRS von Raiwa et al. [4] aufgenommen.

Die Anteile von <sup>235</sup>U und <sup>236</sup>U, jeweils normiert auf den Hauptbestandteil <sup>238</sup>U, sind in Abb. 3 (oben) zusammen mit Vergleichswerten aus der Literatur aufgetragen. Es fällt auf, dass Orm (roter Datenpunkt) gegenüber den erwarteten Literaturwerten für 2 % angereicherten RBMK-Brennstoff (orange Datenpunkte), wie er in bisherigen Messungen gefunden wurde (dunkelblaue Datenpunkte), entweder einen zu großen <sup>235</sup>U- oder <sup>236</sup>U-Anteil aufweist. Der Anteil an <sup>235</sup>U sinkt im Laufe des Betriebs im Reaktor (also mit zunehmendem Abbrand) durch Spaltung, während der <sup>236</sup>U-Anteil aufgrund von Neutroneneinfang des <sup>235</sup>U steigt. Die beiden Isotope sind also antikorreliert.

### Auswertung

Daher gibt es für die bei Orm beobachteten Uranisotopenverhältnisse 2 mögliche Erklärungen: (a) Verwendung aufgearbeiteten Brennstoffs oder (b) initiale höhere Anreicherung.

#### Hypothese (a):

Bei der Wiederaufbereitung des Kernmaterials wird neues, spaltbares <sup>235</sup>U als Brennstoff hinzugefügt, das im vorherigen Zyklus entstandene <sup>236</sup>U wird jedoch nicht abgetrennt. Sollte dieser Partikel aus Kernbrennstoff stammen, der schon einmal in einem Reaktor Neutronenfluss ausgesetzt war, also aus wiederaufbe-

reitetem Kernmaterial besteht, könnte dies die überhöhten <sup>236</sup>U-Ergebnisse erklären.

In Abb. 3 (oben) sind Literaturwerte für wiederaufbereiteten RBMK-Brennstoff mit einer Anreicherung von 2 % aufgetragen (gelbe Datenpunkte). Es ist zu erkennen, dass diese Datenpunkte gut zu den an Orm gemessenen Uran-Isotopenverhältnissen passen.

#### Hypothese (b)

Höherer Anreicherungsgrad (z. B. 2,6 % statt 2,0 %).

## Wiederaufbereitetes Kernmaterial?

Da in frischem unrecycletem Brennstoff praktisch kein <sup>236</sup>U vorhanden ist<sup>2)</sup>, sondern durch Neutroneneinfang von <sup>235</sup>U gebildet wird, hängt die Menge <sup>236</sup>U nach einer bestimmten Zeit im Reaktor vom vor-

handenen Anteil <sup>235</sup>U und von der Neu-

<sup>2)</sup> Im vorliegenden Fall wären das ca. 0,01 %.

tronenfluenz<sup>31</sup> ab. Aus der Menge <sup>236</sup>U kann also auf die Verweildauer im Reaktor (über den Abbrand) geschlossen werden. Das wiederum gibt Aus-

### Menge an verbrauchtem <sup>235</sup>U

kunft über die Menge des verbrauchten <sup>235</sup>U. Startet man mit z. B. 2,6 % initialer Anreicherung, ist nach gegebenem Abbrand „mehr übrig“ als bei 2 %. Diese Hypothese würde die erhöhten

<sup>235</sup>U-Werte des Hot Particles erklären. In Abb. 3 auf Seite 37 (oben) sind simulierte Isotopenverhältnisse für RBMK-Kernbrennstoff mit einer initialen Anreicherung von 2,6 % (hellblaue Datenpunkte) aufgetragen. Es ist zu erkennen, dass diese ebenfalls gut zu den an Orm gemessenen Isotopenverhältnissen passen.

**Zusätzliche rL-SNMS-Messungen**  
Da nur durch die Uran-Isotopenverhältnisse nicht feststellbar ist, welche der beiden Hypothesen zutrifft, wurden zusätzliche rL-SNMS-Messungen an Orm durchgeführt. Die Plutonium-Isotopenverhältnisse stellen einen weiteren charakteristischen „Fingerabdruck“ für Kernbrennstoff dar. Frischer Kernbrennstoff enthält üblicherweise kein Plutonium.

<sup>239</sup>Pu entsteht im Kernreaktor durch Neutroneneinfang von <sup>238</sup>U mit anschließenden  $\beta$ -Zerfällen erst während der Bestrahlung. Durch Neutroneneinfang entsteht aus dem erbrüteten <sup>239</sup>Pu mit zunehmendem Abbrand <sup>240</sup>Pu. Daher nimmt im Betrieb des

Kernreaktors das <sup>239</sup>Pu/<sup>240</sup>Pu-Verhältnis im Brennstoff ab.

Das gemessene <sup>239</sup>Pu/<sup>240</sup>Pu-Verhältnis von Orm gegen das <sup>236</sup>U/<sup>238</sup>U-Verhältnis (blaue Datenpunkte) sowie im Vergleich dazu Literaturwerte für 2% angereicherten RBMK-Brennstoff (orange

Datenpunkte) sind in Abb. 3 auf Seite 37 (unten) aufgetragen.

Die Literaturwerte für wiederaufbereiteten RBMK-Brennstoff (gelbe Datenpunkte) zeigen das gleiche Verhalten, sind jedoch in Richtung höherer <sup>236</sup>U-Werte verschoben.

### Fazit der Messungen mit der rL-SNMS-Methode

Es ist in Abb. 3 auf Seite 37 (unten) eindeutig zu erkennen, dass die mit rL-SNMS bestimmten Plutonium-Isotopenverhältnisse von Orm zu den Literaturwerten für wiederaufbereiteten Kernbrennstoff passen. Durch die Kombination der Uran- und Plutonium-Verhältnisse konnte so belegt werden, dass es sich bei Orm um ein Fragment von wiederaufbereitetem RBMK-Brennstoff handelt.

Diese Messungen zeigen deutlich die Vorteile der rL-SNMS-Methode an einzelnen Partikeln gegenüber anderen Analysemethoden, die nur Sammelproben untersuchen können. Bei Messungen an Sammelproben wäre ein solcher Partikel nicht detektierbar gewesen, da sein Signal durch Signale von anderen in der Sammelprobe enthaltenen Partikeln verdrängt worden wäre.

### Frage nach der radiologischen Gefährdung

Eine neben der Historie mindestens genauso wichtige Frage ist die nach der radiologischen Gefährdung, die von dem Material ausgeht.

Bei den Partikeln in den kontaminierten Gebieten um Tschornobyl heißt das:

### Wie löslich sind Hot Particles?

Unter welchen Bedingungen geben sie ihren Inhalt frei?

### Antworten

Auch diese Fragen adressieren wir mit unseren Experimenten an einzelnen Partikeln.

Der wichtigste Einflussfaktor aber für die Beantwortung dieser Frage ist

die **chemische Zusammensetzung der Partikel**. Sie bestimmt, wie stabil die Partikel sind, und auch, wann und wie sie ihr radioaktives Material in die Umwelt abgeben.

Ursprünglich lagen die Kernbrennstoffpartikel als Uran-Dioxid vor, ein chemisch eher stabiler Stoff. Beim Einsatz im Reaktor entstehen durch Spaltung leichtere Elemente (wie z. B. Cs) und durch Neutroneneinfang die schwereren Transurane (wie oben am Beispiel

des Pu veranschaulicht). Die sich bildenden Stoffe werden in der Uran-Matrix eingebettet und sind zum großen Teil radioaktiv.

Diese Matrix kann sich aber verändern. Partikel, die schon bei der initialen

Explosion freigesetzt wurden, liegen noch als Uran-Dioxid vor, wohingegen Partikel, die während des 10-tägigen Grafitbrandes von Tschornobyl aus dem Reaktor

austraten, stark oxidiert wurden. Zusätzlich kann man Partikel finden, die bei den sehr hohen Temperaturen mit Zirkon aus der Ummantelung der Brennstäbe verschmolzen sind.

Man kann die Partikel also in 3 Klassen unterteilen:

- höheroxidiert (UO<sub>2+x</sub>),
- initiales vierwertiges UO<sub>2</sub> und
- zirkonhaltig [5].

In dieser Reihenfolge verhält sich auch ihre Löslichkeit:

- Oxidierte Partikel sind sehr porös, fast schon pulvrig, und lösen sich in der Umwelt sehr schnell auf.
- UO<sub>2</sub>-Partikel sind eher stabil und zeigen auf rasterelektronenmikroskopischen Aufnahmen feine Poren.
- Die Zirkon-Partikel haben entweder nur eine leichte Zirkon-Schicht oder können ganz und gar mit Zirkon durchgeschmolzen sein. Letztere sind äußerst stabil und widerstehen auch starken Säuren im Labor.

### Wiederauf- bereiteter RBMK- Brennstoff

### Uran-Matrix

<sup>31</sup> zeitliches Integral der Neutronenflussdichte

## Behandlung der Partikel

Die aus der Umwelt isolierten Partikel wurden, wie oben erwähnt, auf Wolfram-Nadeln befestigt. Aufgrund des quasi nicht invasiven Charakters der rL-SNMS haben wir im Laufe der Zeit ein ganzes Kabinett aufgenadelter, intakter Partikel erhalten (s. Abb. 4), die isotopisch charakterisiert sind. Es hat sich herausgestellt, dass der Klebstoff, mit dem die Partikel an der Nadel befestigt sind, Flüssigkeiten und selbst aggressiven Säuren widersteht.

## Auf Wolfram-Nadeln befestigt



Abb. 4: Das Kabinett aufgenadelter Partikel

Die Partikel werden hier mit Nummern gekennzeichnet, da die Namen teilweise zu lang sind, und der jeweilige Aufenthaltsort kann, wenn er nicht in diesem Schrank ist, mit kleinen Plastikschildern gekennzeichnet werden.

## Auslaugung an einzelnen Partikeln

Darauf basiert die Idee, die Auslaugung an einzelnen Partikeln zu messen: Die auf der Wolfram-Nadel befestigten Partikel werden eine festgelegte Zeitspanne in eine Lösung getaucht (s. Abb. 5). Anschließend wird der Partikel wieder herausgenommen und nach Wunsch im Elektronenmikroskop abgebildet. Die Lösung wird gamma-spektroskopisch und massenspektrometrisch auf gelöste Bestandteile analysiert.



Abb. 5: Leaching einzelner Partikel in verschiedenen Flüssigkeiten

Um die Partikel zu kategorisieren und ihre Löslichkeit zu analysieren, führen wir 2 verschiedene sequenzielle Auslaugungsversuche durch:

- sogenanntes Leaching in synthetischen Biofluiden und
- chemisches Leaching in aufsteigend aggressiveren Lösungsmitteln.

Beim ersten setzen wir die Partikel einer Reihe künstlicher Verdauungssäfte aus:

- Speichel,
- Magensäure,
- Galle und
- Dünndarmflüssigkeit.

Die Partikel, die wir bisher untersucht haben, haben hier keine Radionuklide freigegeben – eine gute Nachricht!

## Unterschiedliche Löslichkeiten

Die zweite Sequenz erlaubt Rückschlüsse über die Oxidationsstufe der Uran-Matrix. Beginnend mit

- Essigsäure gehen wir über
- verdünnte Salzsäure,
- Salpetersäure bis hin zu
- Königswasser oder sogar
- konzentrierter Flusssäure (s. Abb. 6 auf Seite 40).

Hier zeigt sich die eingangs erwähnte hohe Löslichkeit oxidierter Partikel: Gerade die sehr pulvrigen Partikel lassen einen Großteil ihres Radiocäsiums

Anzeige



## SK UT Strahlenschutzkurse Uni Tübingen

### Fachkunde- und Inhousekurse im Strahlenschutz

- zum Fachkundeerwerb und zur Fachkundeaktualisierung in Tübingen
- Fachkundeaktualisierung durch Inhousekurse

Besuchen Sie uns auf unserer Homepage und finden Sie den passenden Kurs!

[www.strahlenschutzkurse-UT.de](http://www.strahlenschutzkurse-UT.de)

Kursleiter: Dr. Thomas Haug  
haug@wit-strahlenschutz.de



UNIVERSITÄT  
TÜBINGEN



schon in der Salzsäure frei, bevor sie sich in Salpetersäure auflösen.

Das andere Extrem sind die zirkonhaltigen Partikel.

Um sie aufzulösen, benötigen wir eine Mischung aus Flusssäure und hochkonzentrierter Salpetersäure. Hierbei wird sogar die

Wolfram-Nadel angegriffen, mit der wir die Partikel extrahieren.

## Fazit

Die unterschiedlichen Löslichkeiten machen deutlich, wie wichtig eine individuelle Analyse der Kernbrennstofffragmente ist.

Wurden die Partikel vollständig aufgelöst, können wir sie auch mittels ICP-MS untersuchen und so die genaue Menge an vorhandenem Uran und Plutonium in den einzelnen Partikeln bestimmen.

**Unterschiede in den Oxidationsstufen**

Unterschiede in den Oxidationsstufen können helfen, den Ursprung der Partikel weiter einzugrenzen. Findet man einen vollständig oxidierten Partikel, weiß man nicht nur, dass seine Löslichkeit sehr hoch ist, sondern auch, dass er wahrscheinlich aus den Tagen nach dem eigentlichen Unfall stammt. Ein Partikel mit Zirkon wird dagegen von der Explosion stammen, da hier die Temperatur im Reaktor am höchsten war.

Die Auslaugungsversuche zeigten, dass sich Partikel aus Tschornobyl unterschiedlich schnell von außen nach innen auflösen. Daher war es von Interesse, in die Partikel hineinzuschauen,

um zu sehen, ob sich die Struktur sichtbar im Querschnitt verändert. Dazu haben wir die Partikel mittels fokussierten Ionenstrahls am FZJ in 2 Hälften geschnitten, siehe Abb. 7 links.

Die Partikelhälften verblieben auf jeweils einer Nadel und konnten getrennt voneinander untersucht werden. Dabei wurde eine Porenstruktur erkennbar, die sich durch den gesamten Partikel zieht, siehe Abb. 7 rechts.

Diese Poren ließen die Vermutung aufkommen, dass die Partikel trotz jahrelanger Lagerung im Erdreich von Tschornobyl noch im Inneren weitestgehend intakt waren und nur an der Oberfläche angegriffen wurden und verwittern.

**Weitere Untersuchungen, z. B. mit Edelgas-Massenspektrometrie**

Daher wurden weitere Untersuchungen an den Partikeln durchgeführt, die unter anderem die Edelgas-Massenspektrometrie beinhalten. Bei dieser Methode wurden am LLNL die Partikel zunächst auf 800°C erhitzt, um anhaftende Kontaminationen von atmosphärischen Edelgasen zu entfernen. Danach wurden die Partikel Ares, Eurybia, Heimdall, Ida, Nereus und Thor schrittweise auf bis zu 1.200°C erhitzt, um die Edelgase aus den Partikeln herauszutreiben. Dabei waren sie an ein statisches Sektorfeld-Massenspektrometer gekoppelt, das die heraus tretenden Gase analysierte.

Bei den betrachteten Edelgasen handelte es sich um die stabilen Isotope des Xenons und des Kryptons sowie das radioaktive <sup>85</sup>Kr mit einer Halbwertszeit von etwa 11 Jahren.

**Ergebnisse**

Diese Isotope können Aufschlüsse über das Alter, die Quelle der Spaltung (Pu- oder U-Spaltung) und auch über die Neutronenflüsse im Reaktor liefern. Bisher wurden solche Messungen lediglich an hoch angereicherten und stark abgebrannten Proben durchgeführt. Jetzt aber wurden diese Messungen erstmals an verwitterten Proben durchgeführt, die einen geringen Abbrand und eine geringe Anreicherung aufwiesen. Dabei gelang es uns, verschiedene Isotope sowohl des Kryptons als auch des Xenons zu detektieren und zu analysieren.

Durch die Messung des radioaktiven <sup>85</sup>Kr im Verhältnis zu den stabilen Isotopen <sup>83</sup>Kr und <sup>84</sup>Kr und Vergleich mit den erwarteten Spaltausbeuten konnte das Alter der Partikel auf einen Zeitraum von 2 bis 3 Jahren vor dem Unfall datiert wer-

**Analyse der heraus tretenden Gase**

**Alter der Partikel**

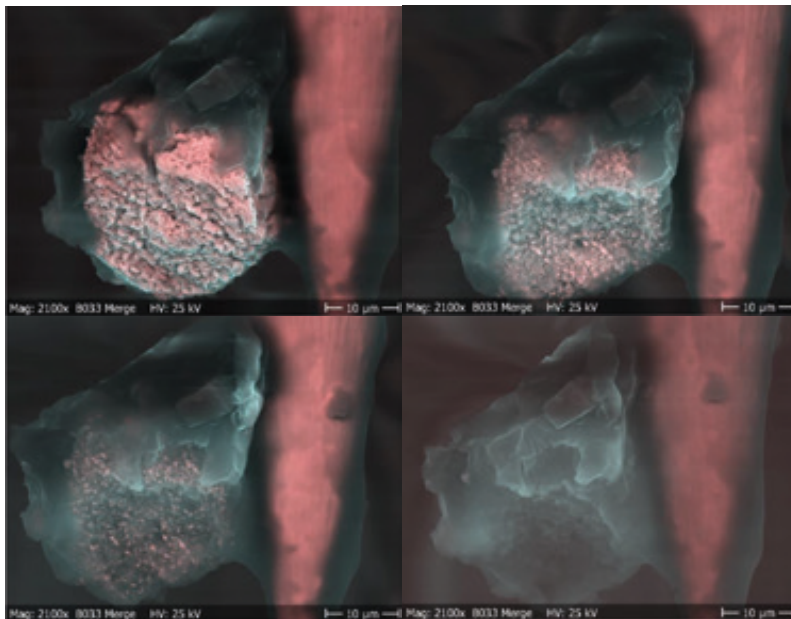


Abb. 6: Abatur: Ein pulveriger oxidiertes Partikel, der sich nach und nach in Salpetersäure auflöst.



Abb. 7 links: Schnittprozess eines Partikels, der zu jeweils einer Hälfte auf einer Nadel klebt. Rechts: Struktur eines aufgeschnittenen Partikels namens Momos. Ein Poren- und Tunnelsystem im Partikel ist erkennbar.

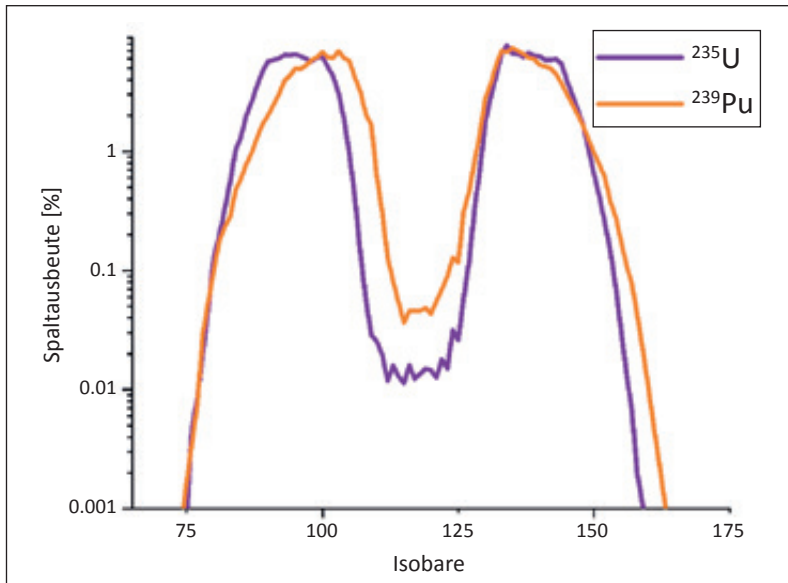


Abb. 8: Doppelhöckerstruktur der Produkte bei der Spaltung von U-235 und Pu-239 mit thermischen Neutronen

den. Dies ist ein sinnvolles Ergebnis, da der Block 4 des Reaktors in Tschornobyl 1984 in Betrieb genommen wurde und das gemessene Alter sich auf einen Mittelwert während des Zeitraums des Betriebs bezieht (nicht auf den Tag des Unfalls!).

#### Wann entstand das Edelgas?

Weiterhin wurden die Verhältnisse von  $^{86}\text{Kr}/(^{83}\text{Kr}+^{84}\text{Kr})$  und  $^{134}\text{Xe}/(^{131}\text{Xe}+^{132}\text{Xe})$  verwendet, um im Nachhinein beurteilen zu können, aus welcher Spaltung das Edelgas entstanden sein muss. Im RBMK-Reaktor wurde, wie oben beschrieben, eine Anreicherung des  $^{235}\text{U}$  von 2 % verwendet. Bei dessen Spaltung mit thermischen Neutronen entstehen Spaltprodukte mit einer Verteilung, die einem Doppelhöcker ähnelt (s. Abb. 8 lila). Zusätzlich wird, wie oben beschrieben,  $^{239}\text{Pu}$  erbrütet, welches ebenfalls mit thermischen Neutronen gespalten werden kann. Dessen Spaltproduktverteilung ist aber leicht verschoben (s. Abb. 8 rot). Aus diesen Unterschieden kann bei der Analyse der Edelgase  $^{134}\text{Xe}$  und  $^{86}\text{Kr}$  bestimmt werden, zu welchem Anteil jeweils das  $^{235}\text{U}$  oder  $^{239}\text{Pu}$  gespalten wurde.

Bei der Analyse von Ares, Eurybia, Heimdall, Ida und Thor kam heraus, dass diese, wie zu erwarten bei niedrig

angereichertem Brennstoff, zu großen Teilen aus Uran-Spaltung entstanden sind. Nur zu etwa 10 % wurde  $^{239}\text{Pu}$  in diesen Partikeln gespalten.

#### Bestimmung der Neutronenflussdichte im Reaktor

Unter Nutzung der Isotopen-Verhältnis von  $^{136}\text{Xe}/(^{131}\text{Xe}+^{132}\text{Xe})$  kann sogar die Neutronenflussdichte im Reaktor bestimmt werden (s. Abb. 9), an der Stelle, an der der Partikel ent-

standen ist (Aufgrund der Konkurrenz von Beta-Zerfall und Neutroneneinfang des Isotops  $^{135}\text{Xe}$  in laufendem Reaktorbetrieb). Diese Werte liefern Neutronenflussdichten im Bereich von  $2 \times 10^{13} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ , welche relativ gering sind, für den in Tschornobyl verwendeten RBMK-Reaktor aber typisch sind. Ist der Herkunftsreaktor unbekannt, ist dieser Wert eine wichtige Information.

#### Fazit

Schon allein die Tatsache, dass überhaupt Edelgase aus den Partikeln Ares, Eurybia, Heimdall, Ida, Nereus und Thor extrahiert werden konnten, ist eine unerwartete Feststellung [6]. Sie korrigiert die bisherige Annahme, dass alle Edelgase beim Unfall entwichen seien. Weiterhin konnten wir zeigen, dass die Untersuchung einzelner Partikel eine extrem mächtige Methode darstellt, über Isotopenverhältnisse des Urans, Plutoniums, Americiums etc. die Historie von Partikeln aufzuklären und über Auslaugungsprozesse chemisches Prozessverständnis zu erlangen.

**Für den Strahlenschutz von Bedeutung**

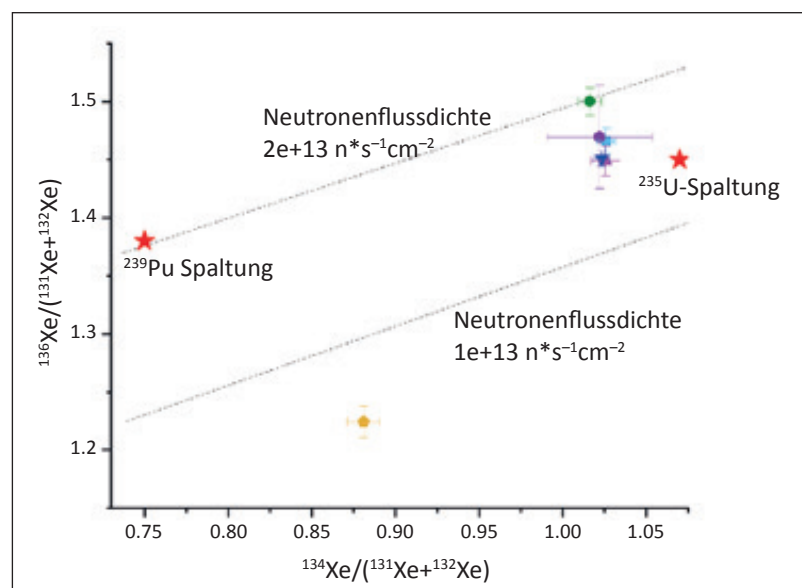


Abb. 9: Die Verhältnisse der Edelgasisotope geben Aufschluss über Betriebsparameter des Reaktors – auch noch nach sehr langer Zeit.

Beides ist für den Strahlenschutz von Bedeutung.

Die Edelgasmessungen können jetzt noch Hinweise auf das Alter der Partikel geben, den Ursprung der Spaltung und die vorherrschenden Neutronenflussdichten im Reaktor. rL-SNMS wie auch die restlichen genannten Methoden sind nicht beschränkt auf die beispielhaft behandelten Isotope. Praktisch alle Spaltprodukte können gemessen werden. Und selbstverständlich ist diese Methode auch anwendbar auf nicht radioaktive Partikel (obwohl das vermutlich weniger Spaß macht).

### Danksagung

Wir danken **Felix Brand** und Mitarbeitenden vom FZJ IEK6 für die Partikelschnitte mit FIB und dem Team um **Mike Savina** von LLNL für die Edelgasuntersuchungen. **Klaus Wendt** und seinem Team von der Uni Mainz danken wir für fortwährenden Support mit den Lasern. Wir danken **Darcy v. Eerten** und der Förderung durch LISA (H2020 MSCA-ITN-ETN 814229), der Siebold-Sasse-Stiftung und dem BMBF (02NUK044 und 02NUK075). ■

### LITERATUR

- [1] T.P. Makarova et al., Radiochemistry 2008, 50(4), 414. DOI: 10.1134/S1066362208040152
- [2] H. Bosco et al., Sci. Adv. 2021, 7, eabj1175. in deutscher Sprache: DOI: 10.1002/piuz.202201658
- [3] DOI: 10.1134/S1066362208040152
- [4] DOI: 10.1016/j.sab.2022.106377
- [5] Salbu et al., J. Environ. Radioact. 2018, <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2017.09.001>
- [6] <https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2025.137992>

### AUTORINNEN UND AUTOREN



#### Paul Hanemann

Paul Hanemann, geb. 1995  
2019–2022 Master of Science  
Physik, Leibniz Universität,  
Hannover

Masterarbeit: „Herstellung und Charakterisierung partikelförmiger Isotopenstandards für die SIMS und SNMS“

2022–heute Doktorand Physik, Leibniz Universität, Hannover

#### ANSCHRIFT DES AUTORS

E-Mail: hanemann@irs.uni-hannover.de



#### Aaron Lehnert

Aaron Lehnert, geb. 1999  
Aaron Lehnert ist Doktorand am  
Institut für Radioökologie und  
Strahlenschutz der Gottfried-

Wilhelm-Leibniz Universität Hannover. Seit seiner Bachelorarbeit 2021 am IRS ist er im Bereich der Radioökologie tätig. Während der Promotion beschäftigt er sich mit der Herstellung und Charakterisierung von Referenzstandards für das rL-SNMS System, dessen Grundlage schon in seiner Masterarbeit gelegt wurde.

#### ANSCHRIFT DES AUTORS

E-Mail: lehnert@irs.uni-hannover.de



#### Laura Leifermann

Laura Leifermann, geb. 1997  
März 2021–heute Promotion in  
Physik am Institut für Radio-  
ökologie und Strahlenschutz der

Leibniz Universität Hannover zu dem Thema Entwicklung neuer Methoden in der Nuklearforensik zur Bestimmung der Herkunft einzelner radioaktiver Teilchen

#### ANSCHRIFT DER AUTORIN

E-Mail: leifermann@irs.uni-hannover.de



#### David Ohm

2021–2023 Master of Science  
Leibniz Universität Hannover  
Masterarbeit am Institut für  
Radioökologie und Strahlen-

schutz: Berechnung isotopischer Fingerprints verschiedener Reaktortypen für die nukleare Forensik  
Seit 2023: Wissenschaftlicher Mitarbeiter am Institut für Radioökologie und Strahlenschutz

#### ANSCHRIFT DES AUTORS

E-Mail: ohm@irs.uni-hannover.de



#### Clemens Walther

Prof. Dr. Clemens Walther, geb.  
1969, Physiker und Radio-  
chemiker; Leiter des Instituts für  
Radioökologie und Strahlenschutz

an der Leibniz Universität Hannover; Mitglied der SSK, Vorsitzender des Radioökologie-Ausschusses, Vorsitzender der FG Nuklearchemie der GDCh, Sprecher des Kompetenzverbundes Strahlenforschung (KVSE), Chair des European Network on Nuclear and Radiochemistry Education and Training, FS-Präsident 2024/2025

#### ANSCHRIFT DES AUTORS

Institut für Radioökologie und Strahlenschutz  
Herrenhäuser Straße 2

Gebäude 4113

30419 Hannover

E-Mail: walther@irs.uni-hannover.de



#### Tobias Weissenborn

Tobias Weissenborn, geb. 1996  
seit 10/2022 Immatrikulierter  
Promotionsstudent an der  
Gottfried Wilhelm Leibniz Uni-

versität Hannover

#### ANSCHRIFT DES AUTORS

E-Mail: weissenborn@irs.uni-hannover.de

### Haftungsausschluss

Die Inhalte dieser Zeitschrift werden von Verlag, Herausgeber und Autoren nach bestem Wissen und Gewissen erarbeitet und zusammengestellt. Eine rechtliche Gewähr für die Richtigkeit der einzelnen Angaben kann jedoch nicht übernommen werden. Gleiches gilt auch für die Webseiten, auf die verwiesen wird. Es wird betont, dass wir keinerlei Einfluss auf die Inhalte und Formulierungen dieser Seiten haben und auch keine Verantwortung für sie übernehmen. Grundsätzlich gelten die Wortlaute der Gesetzestexte und Richtlinien sowie die einschlägige Rechtsprechung.