

# Hochauflösende Resonanzionisations-Massenspektrometrie für den Ultrapurennachweis von $^{236}\text{U}$ in der Umwelt

P. Schumann, S. Boulyga<sup>o</sup>, G. Passler, N. Trautmann\*, K. Wendt

Institut für Physik, \*Institut für Kernchemie, <sup>o</sup>Institut für Anorganische Chemie und Analytische Chemie  
Johannes Gutenberg-Universität Mainz

Im Gemisch der natürlich vorkommenden Uran-Isotope besitzt  $^{236}\text{U}$  die geringe Häufigkeit von  $< 10^{-12}$  im Vergleich zu  $^{238}\text{U}$ . In Kernreaktoren wird das  $^{236}\text{U}$  durch Neutroneneinfang von  $^{235}\text{U}$ -Atomen gebildet. Im Inventar von kerntechnischen Anlagen kann daher das Isotopenverhältnis  $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$  um viele Größenordnungen erhöht sein.

Mit dem Nachweis geringster Mengen von  $^{236}\text{U}$  ist eine mögliche anthropogene Uran-Kontamination mit Uran aus dem Kernbrennstoff-Kreislauf eindeutig von Natururan zu unterscheiden. Studien der Migration von Kernbrennstoff in der Umwelt wären damit über den direkten Nachweis von  $^{236}\text{U}$  möglich. Insbesondere kann die Dynamik der Entstehung von löslichen und damit für lebende Organismen zugänglichen U(VI)-Spezies aus anthropogenen Uran-Quellen untersucht werden. Dies ist vor allem dort möglich, wo Kernbrennstoff in Form von inerten U(IV)-Partikeln in größeren Mengen in die Umwelt abgegeben wurde, wie z.B. in der Umgebung des Tschernobyl-Unfallreaktors.

Das am Institut für Physik der Universität Mainz entwickelte Verfahren der hochauflösenden Resonanzionisations-Massenspektrometrie (HR-RIMS) zur selektiven Bestimmung langlebiger Radioisotope gewährleistet neben der experimentell sehr aufwändigen Beschleunigermassenspektrometrie die beim  $^{236}\text{U}$  geforderten Spezifikationen bezüglich Empfindlichkeit, Isobarenunterdrückung und Isotopenselektivität.

Das Verfahren soll im Verlauf einer Promotionsarbeit für den Nachweis von  $^{236}\text{U}$  angepasst werden. Dies beinhaltet vor allem ausführliche laserspektroskopische Studien an Uran und Untersuchungen zur effizienten Atomisierung von chemisch isolierten Proben. Weiterhin soll das Verfahren bezüglich Isotopenselektivität, Nachweiseffizienz, Präzision und Reproduzierbarkeit spezifiziert und zur Messung von realen Proben herangezogen werden.

Zunächst wurde die Atomisierung von synthetischen Uranproben im Hinblick auf die Anwendung für den Spurennachweis von Uran-Isotopen untersucht. Die Probe wird in Form von Uranylнитratlösung auf eine metallische Folie, die als Probenträger und Reduktionsmittel fungiert, aufgebracht und eingetrocknet. Die Atomstrahlquelle besteht aus einem Graphitröhrchen, das in die Vakuumapparatur eingebracht und direkt durch Stromfluss geheizt wird. Die gefaltete Metallfolie wird in der Atomstrahlquelle auf bis zu 2000 °C erhitzt. Als Probenträger und Reduktionsmittel wurden verschiedene Metalle, unter anderem Ti, Ta, Zr und Pt getestet. Die höchste Atomisationseffizienz wurde mit Ti erhalten. Die Gesamteffizienz des Uran-Nachweises mit Elektronenstoß-Ionisation und nachfolgender

Massenselektion in einem Quadrupolmassenspektrometer betrug hierbei ca.  $1 \cdot 10^{-10}$ , war jedoch durch eine ungenügende Akzeptanz der nicht anpassungsfähigen Ionenoptik limitiert.

Weiterhin wurden laserspektroskopische Studien zur Untersuchung von ersten angeregten Zuständen im atomaren Energieschema des Urans durchgeführt. Hierbei kam ein kommerzieller cw-Titan-Saphir-Laser zur Anwendung, dessen Laserlicht in einem aktiven optischen Kristall (LBO) mit Hilfe eines externen Ringresonators frequenzverdoppelt wurde. Somit standen im Energiebereich von  $24100 \text{ cm}^{-1}$  ca. 30 mW Laserleistung zur Verfügung. Nichtresonant nachionisiert wurde mit einem Argon-Ionenlaser, der im Multiline-UV-Modus ca. 800 mW Laserleistung erbrachte. Es konnten fünf verschiedene erste Übergänge der resonanten Uran-Anregung mit den Gesamtdrehimpuls-Quantenzahlen  $J = 5, 6$  und  $7$  bezüglich ihrer Sättigungsleistung und relativen Anregungseffizienz verglichen werden; ein Beispiel zeigt Fig. 1. Hieraus ergab sich, dass alle Übergänge mit Laserleistungen von wenigen mW gesättigt werden können und die relative Anregungseffizienz für alle Übergänge vergleichbar ist. Daher wurde eine Laserdiode im blauen Wellenlängenbereich von 415 nm beschafft, in einen selbstgebaute externen Gitterresonator eingebaut und erfolgreich erprobt.

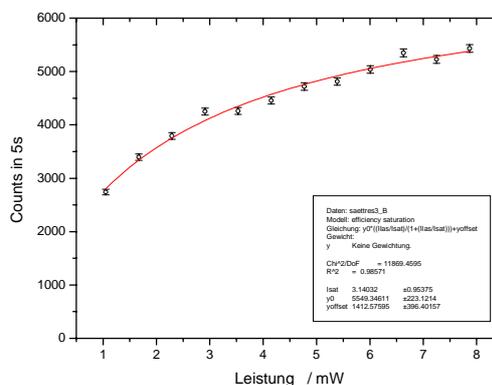


Fig.1: Sättigung des Übergangs  $0 - 24066 \text{ cm}^{-1}$

Wegen der unzureichenden Eigenschaften des bisher benutzten Massenspektrometers wurde ein Quadrupolmassenspektrometer der Firma ABB Extrel, das bereits für den RIMS-Nachweis von Pu eingesetzt wurde und dessen Eigenschaften bereits erprobt sind, in eine neue Vakuumapparatur eingebaut. Mit diesem System sollen in Zukunft laserspektroskopische Untersuchungen mit einem und zwei resonanten Anregungsschritten durchgeführt werden.