

# Dreifach-resonante Laserionisation von Uran für den isotopenselektiven Spurennachweis von $^{236}\text{U}$

S. Raeder, P.G. Schumann, B.A. Bushaw<sup>#</sup>, G. Passler, N. Trautmann\*, K. Wendt  
Institut für Physik, \*Institut für Kernchemie, Johannes Gutenberg-Universität Mainz  
<sup>#</sup>Pacific Northwest National Laboratory, Richland (WA), USA

Das Isotop  $^{236}\text{U}$  kommt in der Natur nur mit einer extrem geringen relativen Häufigkeit von  $<10^{-12}$  im Vergleich zu  $^{238}\text{U}$  vor. In Kernreaktoren wird  $^{236}\text{U}$  durch Neutroneneinfang von  $^{235}\text{U}$ -Atomen gebildet, weshalb im Kernbrennstoff das Isotopenverhältnis  $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$  um viele Größenordnungen erhöht sein kann.

Die Bestimmung geringster Mengen von  $^{236}\text{U}$  und vor allem des Isotopenverhältnissen  $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$  ermöglicht es, eine anthropogene Uran-Kontamination aus dem Kernbrennstoff-Kreislauf eindeutig von Natururan zu unterscheiden. Studien der Migration von Kernbrennstoff in der Umwelt lassen sich somit über den Nachweis von  $^{236}\text{U}$  realisieren. Insbesondere kann die Dynamik der Entstehung von löslichen und damit für lebende Organismen zugänglichen U(VI)-Spezies aus anthropogenen Uran-Quellen untersucht werden, wie z.B. in der Umgebung des Tschernobyl-Unfallreaktors.

Für diese Untersuchungen soll das Verfahren der hochauflösenden Resonanzionisations-Massenspektrometrie (HR-RIMS) zur selektiven Bestimmung von  $^{236}\text{U}$  eingesetzt werden. Dafür waren laserspektroskopische Untersuchungen zum Auffinden eines geeigneten Anregungspfad für Uran-Isotope, der einerseits zur effizienten Ionisation führen, andererseits aber selektiv nur ein Isotop ansprechen soll, erforderlich. Hier konnte in Zusammenarbeit mit B. Bushaw vom Pacific Northwest National Laboratory (PNNL) durch aufwändige spektroskopische Untersuchungen an verschiedenen atomaren Zwischenzuständen ein Anregungsschema entwickelt werden welches die erforderlichen Spezifikationen für optische Selektivität und effiziente Ionisation gewährleistet [1,2]. Die Laserionisation geschieht dabei über drei resonante Schritte, welche Laserlicht der Wellenlängen 415 nm, 829 nm und 722 nm benötigen. Der letzte resonante Anregungsschritt führt zu einer atomaren Resonanz oberhalb des Ionisationspotentials, einem so genannten auto-ionisierenden Zustand, der in ein Ion-Elektronpaar zerfällt und damit zur effizienten Ionisation führt.

Erste Messungen an der in Mainz entwickelten Apparatur ergaben eine Effizienz von  $10^{-7}$ , wobei eine Probe mit  $10^{17}$  Atomen Uran eingesetzt wurde. Eine Reihe synthetischer Proben mit Isotopenverhältnissen  $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$  von  $10^{-3}$  bis  $10^{-8}$  konnte ebenfalls vermessen werden und demonstriert die Linearität des Systems bis zu Isotopenverhältnissen von  $10^{-8}$  [2].

Dabei rührt die Limitierung von  $10^{-8}$  momentan aus dem neutralen spezifischen Untergrund, der

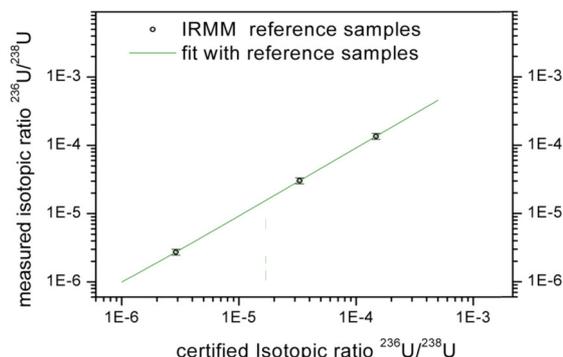


Abbildung 1: Vorläufiges Ergebnis der Messungen von zertifizierten Proben des IRMM

bei den notwendigerweise hohen Ausheiztemperaturen auftritt.

Weitere laserspektroskopische Untersuchungen wurden am PNNL durchgeführt, mit dem Ziel bisher unbekannte zweite Anregungsschritte im Bereich von  $36\,862\text{ cm}^{-1}$  –  $37\,166\text{ cm}^{-1}$  zu finden. Die Anregungsschritte eines derartigen Anregungsschemas liegen in einem für Diodenlaser zugänglichen Wellenlängenbereich. Unter 13 gefundenen Zuständen ungerader Parität konnte ein Zustand bei  $37\,015\text{ cm}^{-1}$  identifiziert werden, durch welchen eine hohe Effizienz für die Laserionisation mit Diodenlasern gewährleistet ist [3,4].

Zur Reduktion des spezifischen Untergrundes wurde begonnen, die Apparatur um eine Quadrupolenkeineinheit zu erweitern, um so eine höhere Selektivität gegenüber dem Neutraluntergrund zu erreichen. Außerdem wurde mit der Vermessung von zertifizierten Proben des IRMM begonnen. Erste Resultate sind in Abbildung 1 dargestellt, die Arbeiten sind aber noch nicht abgeschlossen.

Weiterhin ist die Verbesserung des Messsystems hinsichtlich Effizienz und Isotopenverhältnisbestimmung vorgesehen, um Messungen von  $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ -Verhältnissen in Umweltproben aus der fernerer Umgebung von Tschernobyl durchführen zu können.

## Literatur:

- [1] P.G. Schumann, B.A. Bushaw, K.D.A. Wendt, Spectrochimica Acta Part B 60 (11) 1402-1411 (2005)
- [2] P.G. Schumann, Dissertation Institut für Physik, Universität Mainz (2006)
- [3] S.Raeder, Diplomarbeit Institut für Physik, Universität Mainz (2006)
- [4] B.A. Bushaw, S. Raeder, S.L. Ziegler, K.D.A. Wendt, Spectrochimica Acta, submitted