

Ultrapurenanalyse von ^{99}Tc mit RIMS

P. Schönberg, N. Stöbener, J. Drebert, T. Reich

Institut für Kernchemie, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, D-55128 Mainz

^{99}Tc wird mit einer Ausbeute von ca. 6% bei der Spaltung von ^{235}U erzeugt und sollte daher aufgrund seiner langen Halbwertszeit ($2,1 \times 10^5$ a) in der Langzeitsicherheitsanalyse eines potentiellen Endlagers berücksichtigt werden [1]. Hierfür müssen Migrationsstudien durchgeführt werden. Die für den Nachweis des ^{99}Tc eingesetzte massenspektrometrische Methode muss sehr sensitiv sein und etwaige Isobare stark unterdrücken können. Mit der Resonanzionisations-Massenspektrometrie (RIMS) ist dies möglich [2].

Die RIMS an ^{99}Tc wurde im letzten Jahr für das System bestehend aus drei Ti:Saphir(Ti:Sa)-Lasern und einem Flugzeit-Massenspektrometer (TOF-MS) charakterisiert.

Für die Messungen wurden 3×10^{10} Atome ^{99}Tc auf Metallfilamenten elektrolytisch abgeschieden. Die chemische Zusammensetzung der Abscheidung wurde mit der Röntgen-Photoelektronenspektroskopie (XPS) untersucht. Hierbei konnte gezeigt werden, dass sich Tc hauptsächlich in metallischer Form abscheidet (s. Abb. 1) und eine weitere Vorbehandlung der Proben vor den RIMS-Messungen nicht nötig ist.

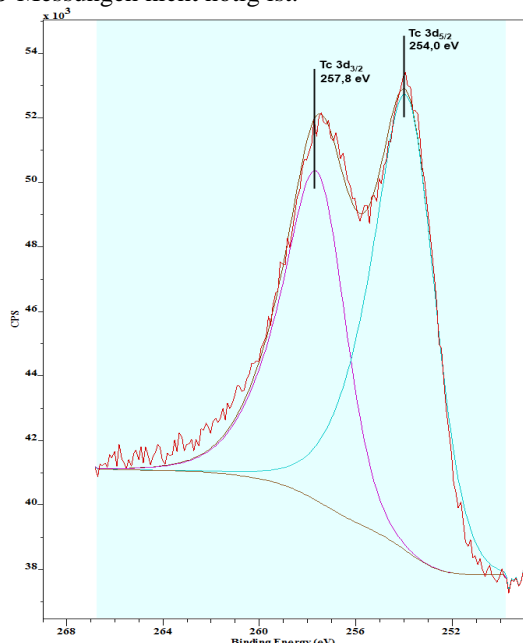


Abbildung 1: XPS-Spektrum einer Tc-Abscheidung nach 10 Minuten Ar-Sputtern; angepasst sind die Tc $3d_{3/2}$ und Tc $3d_{5/2}$ -Linien.

Bei der RIMS wird das Filament resistiv erhitzt und das abdampfende Tc durch Laserlicht ionisiert. Die Ionisation der Atome geschieht über ein in [3] spektroskopiertes, dreistufiges Anregungsschema, welches die Bevölkerung eines autoionisierenden Zustandes im Ionisationsschritt nutzt (s. Abb. 2). Für die ersten beiden Anregungsschritte wird das Licht in einem neu aufgebauten System frequenz-verdoppelt. Über Optiken wird das Licht der

drei Ti:Sa-Laser dann direkt in die Quellenregion eingekoppelt, wo es zur Ionisation der Tc-Atome kommt.

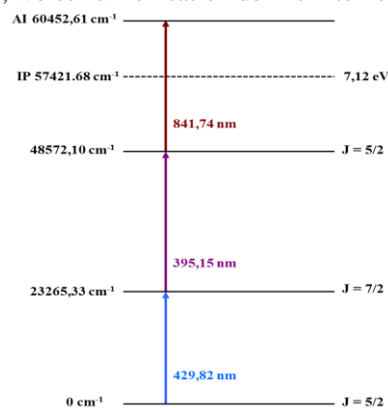


Abbildung 2: Verwendetes Anregungsschema zur Resonanzionisation

Für die aktuelle Konfiguration des RIMS-Aufbaus wurden zur Bestimmung der Sättigungsleistungen der einzelnen Anregungsschritte Sättigungskurven aufgenommen (s. Abb. 3).

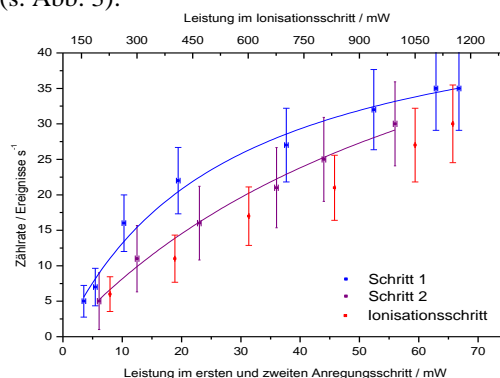


Abbildung 3: Sättigungskurven für die drei Anregungsschritte

Die Sättigungsleistungen der ersten beiden Schritte wurden zu $P_{1,\text{Sätt.}} = 28(5)$ mW und $P_{2,\text{Sätt.}} = 71(16)$ mW bestimmt. Beide Schritte können gesättigt werden, der dritte Anregungsschritt lässt sich mit der zur Verfügung stehenden Leistung nicht sättigen. Aus Effizienzmessungen mit Ta, W und Re als Filamentmaterial, stellte sich Re als am geeignetsten heraus. Hiermit konnte mit dem System eine Gesamteffizienz von $\varepsilon = 5(1) \times 10^{-6}$ mit einer Nachweisgrenze von $\text{LOD} = 1 \times 10^7$ Atomen erreicht werden.

Literatur:

- [1] A. L. Nichols, et al., *Handbook of Nuclear Data for Safeguards*. INDC International Nuclear Data Committee, IAEA Nuclear Data Section, IAEA (2007).
- [2] S. W. Downey, et al., *Int. J. Mass Spectrom. Ion Processes*, A61, 337-345 (1984).
- [3] K. Wies, Dissertation, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, (2006).