

Resonanzionisations-Massenspektrometrie zur Bestimmung der Ionisationsenergie von Actinium und Plutonium

A. Waldek¹, P. Kunz², A. Holm², C. Grüning¹, G. Huber², J.V. Kratz¹,
G. Passler², N. Trautmann¹

¹ Institut für Kernchemie, Universität Mainz, 55099 Mainz

² Institut für Physik, Universität Mainz, 55099 Mainz

Die Resonanzionisations-Massenspektrometrie (RIMS) wird seit längerem zur Ultrapurenanalytik von Plutonium und anderen langlebigen Radionukliden eingesetzt. Aufgrund ihrer hohen Empfindlichkeit ist sie auch geeignet, die Ionisationsenergie von Elementen zu bestimmen, die nur in kleinsten Mengen verfügbar bzw. einsetzbar sind. So wurde die Methode bereits erfolgreich zur Messung der Ionisationsenergie einer Reihe von Actiniden bis hin zum Einsteinium eingesetzt [1, 2].

Das Prinzip dieses Verfahrens beruht auf dem klassischen Sattelpunktmodell, wonach sich durch die Superposition des ungestörten Potentials im Atom mit einem elektrischen Feld ein Sattelpunkt ausbildet, der eine spontane Ionisation gebundener Zustände erlaubt. Die energetische Lage dieser Ionisationsschwelle ist von der äußeren elektrischen Feldstärke abhängig. Bei Feldstärke Null entspricht dieser Wert der Ionisationsenergie.

Zur Bestimmung der Ionisationsschwelle werden die Atome des zu untersuchenden Elements zunächst selektiv durch ein oder zwei resonante Photonen, die mit abstimmbaren Lasern erzeugt werden, in ein hochliegendes Niveau angeregt. Ein dritter Laser wird über einen Energiebereich verstimmbar, der die gesuchte Ionisationsschwelle einschließt. Das Überschreiten der Ionisationsschwelle macht sich durch ein spontanes Ansteigen des Ionsignals bemerkbar. Trägt man die so ermittelten Ionisationsschwellen bei verschiedenen Feldstärken gegen die Wurzel der elektrischen Feldstärke auf, so kann man durch Extrapolation auf Feldstärke Null die Ionisationsenergie bestimmen.

Für die Messungen an Actinium, dessen Ionisationsenergie bislang noch nicht bestimmt wurde, konnte das Sandwichfilament mit einer dünnen Titanschicht zur Reduktion nicht eingesetzt werden, da hiermit Actinium nicht effizient reduziert wird. Als Reduktionsmittel wird daher Zirkonium verwendet. Unter diesen Bedingungen dampft Actinium bei Temperaturen um 1250° C ab.

Von Actinium sind bisher nur wenige spektroskopische Daten bekannt. Während der ersten Messperiode wurde ein bisher nicht tabellierter Zustand bei 28598 cm⁻¹ gefunden. Zur Ermittlung der Ionisationsenergie wurde der Energiebereich von 43500 cm⁻¹ bis 45000 cm⁻¹ abgesucht, jedoch keine Ionisationsschwelle gefunden. Neuere theoretische Berechnungen deuten darauf hin, dass die Ionisationsenergie bei ca. 36000 cm⁻¹ liegt [3]. In einer zweiten Messperiode soll dieser Energiebereich untersucht werden.

Um zu prüfen, ob auch mit dem neuen Ti:Sa-Lasersystem [4] Ionisationsenergiemessungen möglich sind, wurde die Ionisationsenergie von Plutonium erneut bestimmt. Dazu wurde die Anregungsleiter gewählt, die auch zur Messung von Umweltproben eingesetzt wird [5]. Die Laseransteuerung bei den Ti:Sa-Lasern erlaubt es noch nicht, die beiden wellenlängenselektiven Elemente (doppelbrechendes Filter und Etalon) synchron durchzustimmen. Daher wurde auf das Etalon verzichtet und mit einer Linienbreite von etwa 150 GHz gearbeitet.

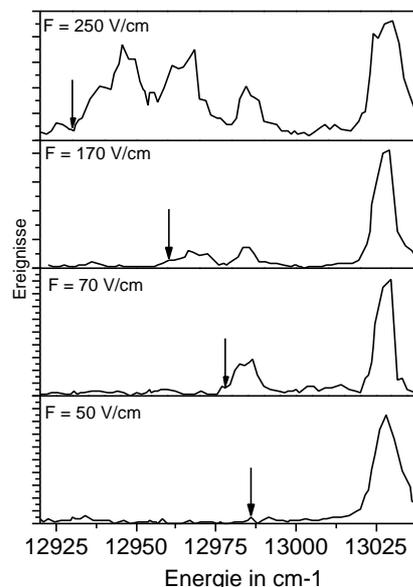


Abb. 1: Ionisationsschwellen von Plutonium (Pfeile) bei 4 verschiedenen elektrischen Feldstärken

Abbildung 1 zeigt die Ionisationsschwelle für Plutonium bei vier verschiedenen Feldstärken. Das Einsetzen des Ionsignals ist mit einem Pfeil gekennzeichnet.

Eine Auswertung der Daten ergibt eine Ionisationsenergie von 48606(3) cm⁻¹ = 6.0262(4) eV, was in guter Übereinstimmung mit Literaturdaten [1] ist.

- [1] S. Köhler et al., Spectrochim. Acta **B52**, 717 (1997)
- [2] J.R. Peterson et al., J. Compounds and Alloys **271-273**, 876 (1998)
- [3] S. Fritsche, priv. Mitteilung (1999)
- [4] C. Grüning et al., Jahresbericht 1997, S. 33
- [5] C. Grüning et al., dieser Jahresbericht