

Bestimmung der Abdampftemperaturen von Es und Fm von Tantal-Titan-Filamenten

C. Grüning¹, K. Eberhardt¹, G. Huber², J. Lassen², J.V. Kratz¹, P. Kunz², M. Nunnemann², G. Passler², N. Trautmann¹
¹Institut für Kernchemie, ²Institut für Physik, Universität Mainz

Die Resonanzionisations-Massenspektrometrie wird seit längerem zur Ultraspurenanalyse [1,2] und zur präzisen Bestimmung der Ionisationsenergie der Aktiniden [3] unter Verwendung extrem geringer Probenmengen eingesetzt. Die Aktinide müssen für die Untersuchungen mit der RIMS atomar verdampft werden; die Atome werden dann mittels Laserlicht resonant angeregt und ionisiert. Dazu wurde eine Filamenttechnik mit Tantal als Unterlage, elektrolytischer Abscheidung der Aktiniden und einer aufgesputterten Titanschicht als Reduktionsmittel entwickelt. Von diesen Filamenten verdampfen die Aktiniden bei relativ niedriger Temperatur atomar.

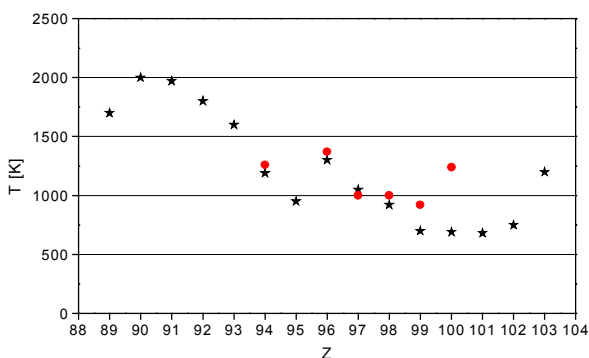


Abb. 1: Abdampftemperaturen der Aktiniden von Tantal-Titan-Filamenten. * Rechnungen aus [4], ●: experimentelle Daten.

Das Abdampfverhalten der Aktiniden von solchen Filamenten ist in [4] mit Hilfe thermodynamischer Rechnungen modelliert und insbesondere die Abdampftemperaturen berechnet worden. In Abbildung 1 sind die berechneten Werte zusammen mit experimentell bestimmten Daten dargestellt. Sie stimmen für Pu, Cm, Bk und Cf recht gut überein.

Für Einsteinium wurde die Abdampftemperatur mit Hilfe der RIMS zu $920 (\pm 30)$ K bestimmt [5] und liegt deutlich über der vorhergesagten Temperatur von etwa 650 K.

Für Fermium wurde die Abdampftemperatur bestimmt, indem ein Tantal-Titan-Filament im Vakuum bis zu einer definierten Temperatur aufgeheizt und das während einer Zeit von 5 Minuten abgedampfte Fermium auf einer Catcher-Folie aufgefangen wurde. Die auf der Folie befindliche Fermiummenge wurde für jede Temperatur α -spektroskopisch ermittelt. In Abbildung 2 ist die abgedampfte Fermiummenge in Abhängigkeit der Temperatur aufgetragen. Quantitativ verdampft Fermium ab $1240 (\pm 30)$ K. Diese Temperatur liegt deutlich über der berechneten von etwa 650 K (siehe Abbildung 1).

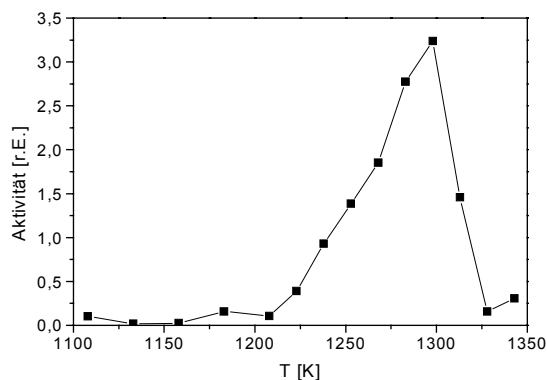


Abb. 2: Abgedampfte Fermiumaktivität in Abhängigkeit der Temperatur.

Aus der Abdampftemperatur und –dauer kann die Adsorptionenthalpie ΔH_{abs} berechnet werden [4]:

$$-\Delta H_{\text{ads}} = T \cdot R \cdot \left(\ln \frac{t}{-\ln(1-F)} + \ln(\nu_0) \right)$$

mit T: Abdampftemperatur des jeweiligen Elements, t: Abdampfdauer für eine Verflüchtigung von F=90%, $\nu_0 = 8,8736 \cdot 10^{12} \text{ s}^{-1}$ und $R = 8,3144 \text{ J / (mol} \cdot \text{K)}$.

Für Einsteinium ergibt sich daraus eine Adsorptionenthalpie von $-\Delta H_{\text{Es}} = 294 (\pm 18) \text{ kJ / mol}$, die grösser ist als der aus thermochromatographischen Experimenten bestimmte Wert von $-\Delta H_{\text{Es}} = 220 \text{ kJ / mol}$ [4]. Die aus den Abdampfversuchen berechnete Adsorptionenthalpie von Fermium beträgt $-\Delta H_{\text{Fm}} = 395 (\pm 14) \text{ kJ / mol}$ und ist damit deutlich grösser als die von Einsteinium.

Literatur:

- [1] G. Passler et al., Kerntechnik **62** 85 (1997)
- [2] C. Grüning et al., Jahresbericht 2000, IKMZ 2001-1, C8
- [3] S. Köhler et al., Spectrochimica Acta **52B** 717 (1997)
- [4] B. Eichler et al., Radiochimica Acta **79** 221 (1997)
- [5] M. Nunnemann, Dissertation, Institut für Physik, Universität Mainz (1999)