

Vorbereitungen zur isotopenselektiven Uranbestimmung mittels RIMS unter Verwendung eines Titan-Saphir-Lasersystems

S. Bürger¹, J.V. Kratz¹, G. Passler², N. Trautmann¹, S. Zauner¹

¹) Institut für Kernchemie, Johannes Gutenberg - Universität Mainz

²) Institut für Physik, Johannes Gutenberg - Universität Mainz

Die Isotopenzusammensetzung des Urans liefert Hinweise auf den Ursprung der Radioaktivität, da diese charakteristisch ist für den jeweiligen nuklearen Entstehungsprozess. Insbesondere interessiert das Verhältnis $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ und das Vorhandensein von ^{236}U . Eine hoch sensitive und isotopenselektive Nachweismethode ist hierfür notwendig.

In Zusammenarbeit zwischen dem Institut für Kernchemie und dem Institut für Physik wurde in den vergangenen Jahren für die isotopenselektive Ultrapurenanalyse von Plutonium die Resonanzionisations-Massenspektrometrie (RIMS) eingesetzt. Für die Resonanzionisation wird ein leistungsstarkes, wartungsarmes und einfach handhabbares Nd:YAG / Titan-Saphir-Lasersystem verwendet, welches mit einem Flugzeitmassenspektrometer kombiniert ist [1]. Damit konnte für Plutonium eine Effizienz $\varepsilon \geq 1 \cdot 10^{-5}$ und eine Nachweisgrenze von $\leq 10^7$ Atomen bzw. $\leq 10^{-15}$ g pro Probe erreicht werden [1]. Erste laserspektroskopische Untersuchungen wurden mit diesem RIMS-System an Uran vorgenommen, um eine vergleichbare Effizienz und Nachweisgrenze zu realisieren.

Die resonante Ionisation erfolgt durch Überlagerung der Laserstrahlen der drei Ti:Sa-Laser mit einem atomaren Atomstrahl des Aktinids, der durch Widerstandsheizen eines Tantal-Titan-Sandwich-Filaments erzeugt wird. Für alle Untersuchungen wurden Filamente mit 10^{13} bis 10^{14} Atomen abgereicherten Urans benutzt. Aus theoretischen Überlegungen leiten Eichler et al. [2] eine Abdampftemperatur für Uran von ca. 1800 K ab (siehe Abbildung 1). Experimentell konnte eine Abdampftemperatur von ca. 1400 K ermittelt werden.

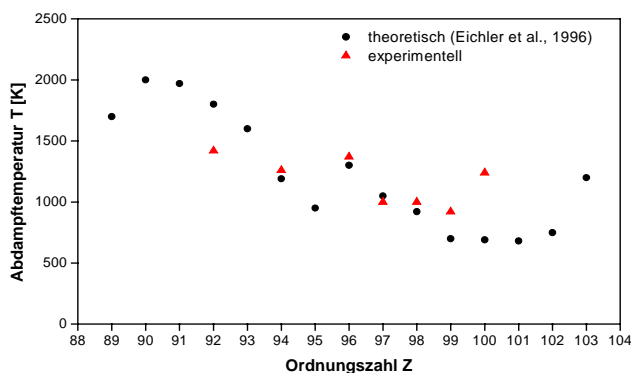


Abbildung 1: Die schwarzen Punkte geben die nach [2] theoretisch bestimmten Abdampftemperaturen an, die roten Dreiecke die experimentell bestimmten nach [3]. Für $Z = 92$ (Uran) wurde der Wert im Rahmen dieser Arbeit bestimmt.

Der Grundzustand des äußersten Elektrons im Isotop ^{238}U mit $E = 0 \text{ cm}^{-1}$ hat die Elektronenkonfiguration $5f^3 6d 7s^2$ mit $J^P = 6^-$ und die Termbezeichnung 5L_6 . Bei einer Temperatur von ca. 1400 K ist der Grundzustand thermisch zu ca. 67 % besetzt. In allen laserspektroskopischen Untersuchungen wurde von diesem Zustand aus resonant angeregt. Es wurden mehrere Anregungsleitern untersucht, wobei die Auswahlregeln $\Delta J = 0$ bzw. ± 1 und $\Delta P = -1$,

sowie der Durchstimmbereich der TiSa-Laser bei verwendetem Spiegelsatz von $\approx 750 \text{ nm}$ bis $\approx 880 \text{ nm}$ und die zu erreichende Ionisationsgrenze des Urans von $49957(1) \text{ cm}^{-1}$ [4] zu berücksichtigen sind.

Bislang wurde für die effizienteste Leiter mit $\lambda_1 = 394,493 \text{ nm}$ (frequenzverdoppelt) (Leistung $P_1 = 18 \text{ mW}$, Sättigungsleistung $P_{1\text{sät}} = 14(6) \text{ mW}$, Linienbreite $\Delta\nu_1 = 3,2(3) \text{ GHz}$), $\lambda_2 = 808,146 \text{ nm}$ ($P_2 = 420 \text{ mW}$, $\Delta\nu_2 = 4,7(5) \text{ GHz}$), sowie einem nicht-resonanten letzten Schritt mit $\lambda_3 = 741,98 \text{ nm}$ ($P_3 = 450 \text{ mW}$) eine Effizienz $\varepsilon \approx 10^{-10}$ und somit eine Nachweisgrenze (NWG) von 10^{12} Atomen ^{238}U erreicht. Abbildung 2 zeigt das RIMS-Massenspektrum von ^{238}U mit seinen Oxiden.

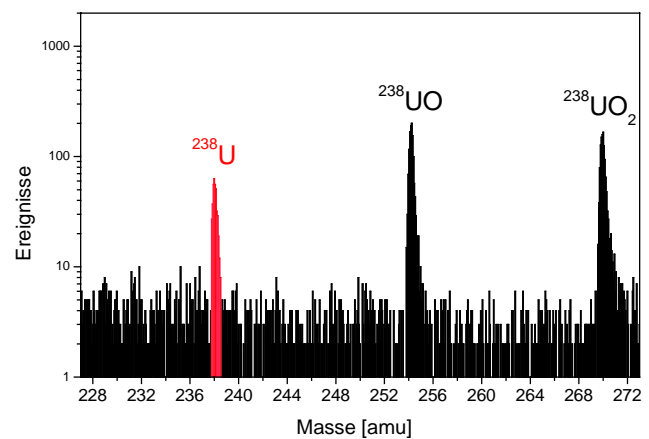


Abbildung 2: RIMS-Massenspektrum des ^{238}U mit seinen Oxiden

Durch resonante Ionisation über einen Autoionisierenden Zustand (AI) kann die NWG auf 10^{10} bis 10^{11} Atome verbessert werden. Die NWG bei der α -Spektroskopie beträgt $0,37 \text{ mBq}$ [5], d.h. 10^{13} Atome ^{238}U .

Als nächster Schritt muss eine noch effizientere Anregungsleiter gefunden werden, wobei die Ionisation resonant über einen autoionisierenden Zustand oder einem Rydberg-Niveau erfolgen soll. Abschließend kann die Isotopieverschiebung zu den anderen Uranisotopen bestimmt und anhand von Standards und Umweltproben die Leistungsfähigkeit der Methode für Uran getestet werden.

Literatur:

- [1] Grüning, C. (2001): Spektroskopie und Ultrapurenanalyse von Plutonium mittels Resonanzionisations-Massenspektrometrie. Doktorarbeit. Universität Mainz.
- [2] Eichler, B. et al. (1996): Eine Atomstrahlquelle für Actinoide - Konzeption, Aufbau und Wirkungsweise. PSI Bericht, 96-3.
- [3] Grüning, C. et al. (2001): Bestimmung der Abdampftemperatur von Es und Fm von Tantal-Titan-Filamenten. Jahresbericht 2001. Universität Mainz.
- [4] Nunnemann, M. (1999): Dissertation. Universität Mainz.
- [5] Peuser, M. et al. (1981): Detection Methods for Trace Amounts of Plutonium. IAEA-SM-252/40.