

Dreifach-resonante Ionisation von Uran-Isotopen für den isotopenselektiven Spurennachweis von ^{236}U

P.G. Schumann, B.A. Bushaw[#], S. Boulyga[°], G. Passler, N. Trautmann*, K. Wendt
 Institut für Physik, *Institut für Kernchemie, °Institut für Anorganische Chemie und Analytische Chemie
 Johannes Gutenberg-Universität Mainz
[#]Pacific Northwest National Laboratory, Richland (WA), USA

Das Isotop ^{236}U kommt in der Natur nur mit extrem geringer relativer Häufigkeit von $<10^{-12}$ im Vergleich zu ^{238}U vor. In Kernreaktoren wird ^{236}U durch Neutroneneinfang von ^{235}U -Atomen gebildet. Im Inventar von kerntechnischen Anlagen kann daher das Isotopenverhältnis $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ um viele Größenordnungen erhöht sein.

Der Nachweis geringster Mengen von ^{236}U ermöglicht es, eine anthropogene Uran-Kontamination aus dem Kernbrennstoff-Kreislauf eindeutig von Natururan zu unterscheiden. Studien der Migration von Kernbrennstoff in der Umwelt wären damit über den Nachweis von ^{236}U realisierbar. 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}U angepasst 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.

Zunächst wurde das atomare Spektrum des Urans auf hochliegende Zustände ungerader Parität im Energiebereich von 36100 cm^{-1} bis 36400 cm^{-1} untersucht. Hierzu wurden Laserstrahlen eines Diodenlasers bei 415 nm als erster Anregungsschritt, eines Titan-Saphir-Lasers bei $820\text{--}830\text{ nm}$ als zweiter Anregungsschritt und die 514 nm Linie eines Argon-Ionen-Lasers als Ionisationsschritt eingesetzt. In 17 verschiedenen Anregungsschemata konnten 11 verschiedene Zustände bezüglich genauer Energielagen und Drehimpuls-

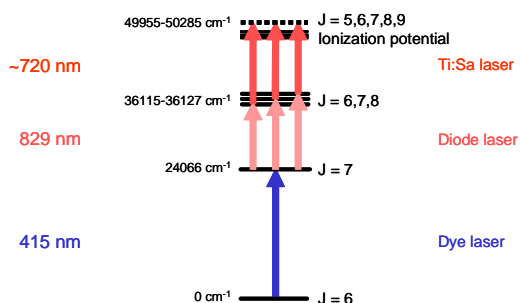


Fig. 1: Anregungsschemata für die dreifach-resonante Autoionisation von Uran

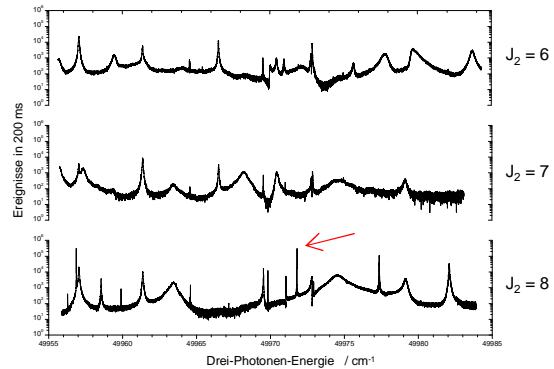


Fig. 2: Spektren autoionisierender Zustände des Urans

Quantenzahlen J spezifiziert werden. Hierbei war es auch möglich, zwei Zustände mit dem für die spätere Autoionisation wichtigen maximal möglichen J -Wert 8 zu identifizieren.

Weitere Untersuchungen, diesmal am Pacific Northwest National Laboratory (USA), betrafen das Spektrum autoionisierender Zustände im Energiebereich direkt oberhalb der Ionisationsgrenze [1]. Hier kamen ein Farbstofflaser bei 415 nm , ein Diodenlaser bei 829 nm und ein Titan-Saphir-Laser bei 720 nm zum Einsatz. Es wurden drei verschiedene Zwischenzustände mit unterschiedlichen J -Werten verwendet (Fig. 1) und jeweils ein Spektrum über fast 30 cm^{-1} der Gesamtenergie aufgenommen (Fig. 2).

Als effizienteste Ionisation wurde eine schmalbandige autoionisierende Resonanz mit einer Breite von 50 MHz bei 49971.8 cm^{-1} und $J=9$ ermittelt. Der dazugehörige Anregungspfad konnte in allen drei Anregungsschritten bezüglich der Hyperfeinstruktur von ^{235}U spezifiziert werden.

Für die Messung der Isotopieverschiebungen von ^{234}U wurde ein Verfahren entwickelt, mit dem durch die Aufnahme dreidimensionaler Laserspektren die spektralen Lagen der Isotope in allen drei Anregungsschritten gleichzeitig gemessen werden können. Dieses Verfahren soll in Kürze auch für die noch ausstehende Messung der Isotopieverschiebungen von ^{236}U angewandt werden.

Weiterführende Untersuchungen werden sich auf die Spezifizierung des analytischen Verfahrens konzentrieren; zudem sind erste Testmessungen von Isotopenverhältnissen $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ in Tschernobyl-Proben geplant.

Literatur:

- [1] P.G. Schumann, B.A. Bushaw, K.D.A. Wendt, to be published