

Spurenanalytische Bestimmung von ^{99}Tc mit einem Ti:Sa Lasersystem

K. Wies¹, N. Erdmann², G. Passler¹, N. Trautmann², K. Wendt¹

¹ Institut für Physik, ² Institut für Kernchemie
Johannes Gutenberg-Universität, D-55099 Mainz, Germany

^{99}Tc wird bei der Spaltung von ^{235}U mit hoher Ausbeute gebildet. Wegen der langen Halbwertszeit des Isomers ^{99g}Tc ($2,14 \times 10^5$ a) spielt das Verhalten von ^{99g}Tc in der Umwelt eine bedeutende Rolle [1]. Besonders bei der Untersuchung von möglichen Endlagerstätten für nukleare Abfälle ist es von großem Interesse, die Migration verschiedener Tc-Spezies in der Umwelt zu studieren [2]. In Deutschland wird zur Zeit Ton als Wirtsgestein auf seine Eignung für ein mögliches Endlager untersucht.

Um das Verhalten der Tc-Spezies über einen längeren Zeitraum und in Umweltproben zu untersuchen, ist die sensitive Bestimmung von ^{99g}Tc nötig. Die dafür eingesetzte Methode muss sehr empfindlich sein und eine hohe Elementselektivität aufweisen, um vorhandene Isobarenkontaminationen zu unterdrücken. In früheren Untersuchungen wurde gezeigt, dass die Resonanzionisations-Massenspektrometrie (RIMS) mit gepulsten Farbstofflasern für den Ultrapurennachweis von Technetium geeignet ist [3]. In einer Zusammenarbeit zwischen dem Institut für Physik und dem Institut für Kernchemie wurde im letzten Jahr der Einsatz eines modernen, wartungsarmen Ti:Sa Lasersystems [4] zum Nachweis von ^{99g}Tc in Verbindung mit einem Flugzeitmassenspektrometer (TOF-MS) erprobt.

Die resonante Anregung der ^{99g}Tc Atome erfolgt durch Wechselwirkung von drei Ti:Sa Laserstrahlen mit einem Atomstrahl, der durch Widerstandsheizungen eines Rhenium-Filaments, auf dem atomares ^{99g}Tc elektrolytisch abgeschieden wurde, erzeugt wird. Experimentell konnte eine Abdampftemperatur von etwa 1800 K ermittelt werden.

Für die resonante Laserionisation wurde das in in Abbildung 1a) dargestellte Anregungsschema verwendet. Durch Scannen des Lasers für den dritten Anregungsschritt konnte eine starke

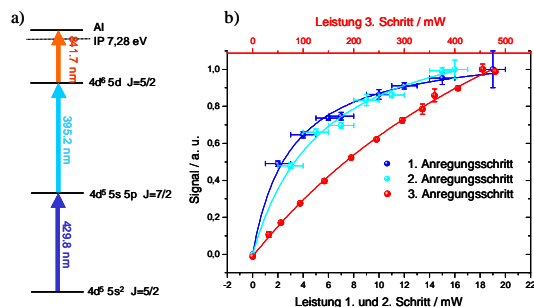


Abb. 1: a) Verwendetes Anregungsschema zur resonanten Anregung von ^{99g}Tc und b) experimentell bestimmte Sättigungskurven.

autoionisierende Resonanz gefunden werden. Für alle Schritte wurden die Sättigungsleistungen für typische experimentelle Bedingungen ermittelt, wie Abbildung 1b) zeigt. Für den ersten Schritt wurde eine Sättigungsleistung von 12 mW, für den zweiten Schritt von 22 mW und für den dritten Schritt von 3 W berechnet. Mit den zur Verfügung stehenden Leistungen können der erste Schritt vollständig und der zweite Schritt zu 80% gesättigt werden. Für den dritten Anregungsschritt können bis zu 1,5 W geliefert werden.

Die gefundene autoionisierende Resonanz zeigt eine starke Empfindlichkeit gegenüber elektrischen Feldern. Dies wurde detaillierter untersucht, da die Gesamteffizienz des Verfahrens dadurch entscheidend beeinflusst werden kann. Abbildung 2 zeigt die Struktur für verschiedene elektrische Feldstärken.

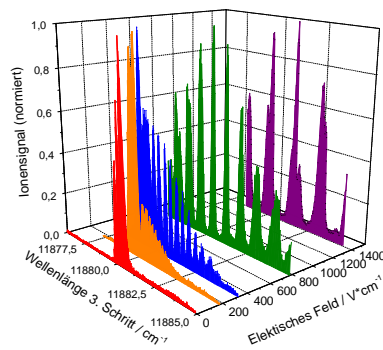


Abb. 2: Autoionisierender Zustand mit $\lambda_3 = 841,7$ nm bei verschiedenen elektrischen Feldstärken in der Ionisationsregion.

Die Gesamteffizienz des Verfahrens zur Bestimmung von ^{99g}Tc wurde zu 5×10^{-7} bestimmt.

Als nächstes soll eine alternatives Anregungsschema zur Verbesserung der Effizienz getestet, sowie die Methode zum Studium der Wechselwirkung von Tc mit Huminsäure und Kaolinit im Rahmen von Migrationsstudien unter Umweltbedingungen eingesetzt werden.

Literatur:

- [1] NEA, Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation: Status and Assessment Report (1999) http://www.nea.fr/html/trw/docs/neastatus99/complete_doc.pdf
- [2] A. Maes et al., Environ. Sci. Technol. **37**, 747 (2003).
- [3] G. Passler et al., Kerntechnik **62**, 85 (1997)
- [4] C. Grüning et al., Int. J. Mass Spectrom. **235**, 171 (2004)