

Laserspektroskopische Untersuchung des Urangehalts verschiedener

Substratfolien für die effiziente Atomisation von Uran

S. Raeder, A. Hakimi, G. Passler, N. Trautmann*, K. Wendt

Institut für Physik, *Institut für Kernchemie, Johannes Gutenberg-Universität Mainz

Die Isotopenzusammensetzung einer uranhaltigen Probe liefert wichtige Informationen über ihre Herkunft und Historie. Dabei ist das Isotopenverhältnis $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ von besonderem Interesse. Das Isotop ^{236}U kommt in der Natur nur mit einer extrem geringen relativen Häufigkeit von $<10^{-12}$ im Vergleich zu ^{238}U vor. Da ^{236}U durch Neutroneneinfang von ^{235}U -Atomen gebildet wird, ist das Isotopenverhältnis $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ ein Maß für die integrale Neutronenflussdichte, der das Material ausgesetzt war. Aufgrund der hohen Neutronenflüsse in Kernreaktoren kann der Anteil an ^{236}U um viele Größenordnungen gegenüber dem Gehalt in Natururan erhöht sein. Somit ist das Isotopenverhältnis $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ ein Indikator, anhand dessen anthropogene Urankontaminationen von Natururan unterschieden werden können. Dadurch bietet sich ein Ansatz, um Studien der Migration von Kernbrennstoff in der Umwelt über den Nachweis von ^{236}U realisieren. Insbesondere kann die Dynamik der Entstehung von löslichen und damit für lebende Organismen zugänglichen U(VI)-Spezies aus anthropogenen Uran-Quellen untersucht werden, z.B. in der Umgebung des Tschernobyl-Unfallreaktors.

Für diese Untersuchungen wird das Verfahren der hochauflösenden Resonanzionisations-Massenspektrometrie (HR-RIMS) zur selektiven Bestimmung von ^{236}U eingesetzt. In bisherigen Arbeiten wurden laserspektroskopische Untersuchungen zum Auffinden geeigneter Anregungspfade für Uran-Isotope, die einerseits zur effizienten Ionisation führen, andererseits aber selektiv nur ein Isotop anregen sollen, durchgeführt. Etabliert wurde dabei ein Anregungsschema über drei resonante Schritte, welche Laserstrahlung der Wellenlängen 415 nm, 829 nm und 722 nm benötigen. Der letzte resonante Anregungsschritt führt zu einer atomaren Resonanz oberhalb des Ionisationspotentials, einem so genannten autoionisierenden Zustand, der in ein Ion-Elektronenpaar zerfällt und damit zur effizienten Ionisation führt.

Für eine effiziente und selektive Ionisation einer Probe ist eine vorhergehende Verdampfung und Atomisation zwingend erforderlich. Da metallisches Uran stets oxidiert oder in anderen molekularen Verbindungen vorliegt, muss es zur Freisetzung als Atom zunächst reduziert werden. Für gewöhnlich kann ein Metall durch Beigabe eines „unedleren“ Metalles, mit höherer Sauerstoffaffinität, reduziert werden. Wegen der hohen Temperaturen von etwa 1800°C , die Uran zur Verdampfung benötigt, ist die Auswahl

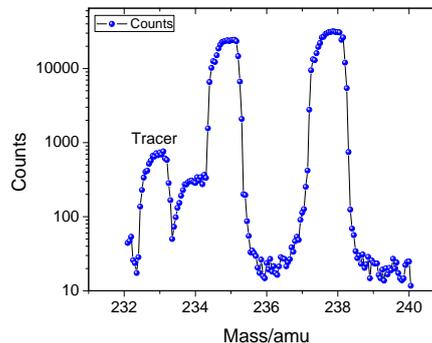


Fig. 1: Massenspektrum der Uranisotope in Zr-Folie, wobei die Laserstrahlung resonant auf den Tracer ^{233}U eingestellt ist

an Metallsubstraten bereits durch die zumeist tiefer liegenden Siedepunkte stark eingeschränkt. Da Uran als natürliches Spurenelement persistiert, kann eine Verunreinigung von kommerziellen Metallfolien mit Uranspuren nicht ausgeschlossen werden. Derartige Verunreinigungen würden Messungen der Isotopenzusammensetzung im Ultraspurenbereich systematisch verfälschen. Zur Untersuchung dieses Effekts wurde der Urangehalt verschiedener kommerzieller Metallfolien mit Resonanzionisation unter Einsatz eines gepulsten Titan:Saphir-Lasersystems bestimmt. Substratfolienstücke identischer Abmessungen ($\sim 1\text{ cm}^2$) aus Zirkon, Vanadium, Titan und Niob wurden mit ^{233}U als Tracer ausgeheizt und der jeweilige Gehalt an ^{238}U bestimmt.

Es zeigte sich, dass in allen genannten Metallfolien Uran enthalten ist. Titan enthält etwa $7 \cdot 10^{10}$ Atome ^{238}U , Niob etwa $1,3 \cdot 10^{12}$ und Vanadium ca. $3,5 \cdot 10^{12}$. Den höchsten ^{238}U -Gehalt findet man in Zirkonfolie, mit ungefähr $6 \cdot 10^{13}$ Uranatomen.

Dieses Ergebnis macht eine erhebliche Fehlerquelle deutlich. Besonders im Ultraspurenbereich ist eine Verunreinigung von mehr als 10^{12} Atomen ein Effekt, der die Messung im Prozentbereich verfälschen kann. Aus diesem Grunde ist neben der Verwendung von Titan als vorläufig einziges Reduktionsmittel die Untersuchung weiterer Metallfolien angedacht. Zudem fiel auf, dass die Freisetzung des Probenmaterials im Temperaturbereich eines Phasenübergangs des Substrates signifikant steigt. Die quantitative Messung dieses Effekts ist in Planung. Weiterhin ist vorgesehen, das Messsystem hinsichtlich der Atomisierungseffizienz zu verbessern, indem ein neues, bereits erfolgreich getestetes Ofensystem adaptiert wird. Mit diesen Veränderungen am System sollen anschließend umweltrelevante Proben bezüglich ihrer Isotopenverhältnisse und Gesamtgehalte vermessen werden.