

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

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

Das Isotop ^{236}U kommt in der Natur nur mit einer extrem geringen relativen Häufigkeit von $<10^{-12}$ im Vergleich zu ^{238}U vor. In Kernreaktoren wird ^{236}U durch Neutroneneinfang von ^{235}U -Atomen gebildet, weshalb im Kernbrennstoff das Isotopenverhältnis $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ um viele Größenordnungen erhöht sein kann.

Die Bestimmung geringster Mengen von ^{236}U und vor allem des Isotopenverhältnissen $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ ermöglicht es, eine anthropogene Uran-Kontamination aus dem Kernbrennstoff-Kreislauf eindeutig von Natururan zu unterscheiden. Studien der Migration von Kernbrennstoff in der Umwelt lassen sich 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, 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 eingesetzt 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 nach ungeraden hoch liegenden Zuständen gesucht, die für einen zweiten Anregungsschritt in Frage kommen. Hier konnten 11 verschiedene Zustände bezüglich genauer Energielage und Drehimpulsquantenzahl spezifiziert werden.

Messungen des Spektrums autoionisierender Zustände über fast 30 cm^{-1} an drei verschiedenen Zwischenzuständen wurden am Pacific Northwest National Laboratory (PNNL) durchgeführt [1]. Die effizienteste Ionisation geschieht durch eine schmalbandige autoionisierende Resonanz von 50 MHz Breite bei 49971.8 cm^{-1} mit der Drehimpulsquantenzahl $J=9$.

Der so gefundene Anregungspfad, der mittels Laserstrahlung eines Diodenlaser bei 415 nm , eines Diodenlasers bei 829 nm und eines Titan-Saphir-Lasers bei 722 nm ionisiert, erfüllt die notwendigen Spezifikationen bezüglich effektiver Ionisation und hoher Isotopenselektivität.

In allen drei Anregungsschritten des Anregungsschemas konnten die Isotopieverschiebungen von ^{234}U und ^{236}U gemessen und auch die Lage

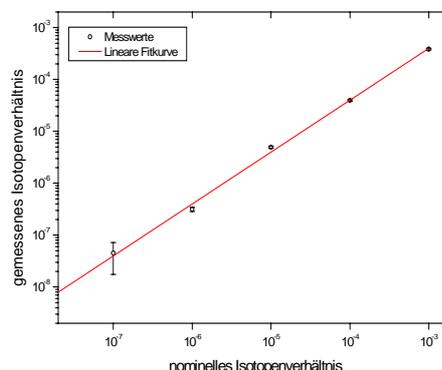


Abbildung 1: Messung einer Uran-Verdünnungsreihe

der Hyperfeinstrukturkomponenten von ^{235}U bestimmt werden [1,2].

Erste Messungen an der Apparatur in Mainz ergaben eine Effizienz von 10^{-7} , wobei eine Probe mit 10^{17} Atomen eingesetzt wurde.

Eine Reihe synthetischer Proben mit Isotopen-Verhältnissen $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ von 10^{-3} bis 10^{-8} konnte ebenfalls vermessen werden. Abbildung 1 zeigt die Linearität des Systems bis zu Isotopenverhältnissen von 10^{-8} [2].

Die Limitierung von 10^{-8} rührt momentan von dem spezifischen Untergrund, der bei hohen Ausheiztemperaturen auftritt.

Weitere laserspektroskopische Untersuchungen wurden am PNNL durchgeführt. Dort wurde nach zweiten Anregungsschritten im Bereich von

$36\ 862\text{ cm}^{-1} - 37\ 166\text{ cm}^{-1}$ gesucht, mit dem Ziel ein Anregungsschema zu finden, welches ebenfalls die an Selektivität und Effizienz gestellten Anforderungen erfüllt, sich jedoch mit Diodenlasern erreichen lässt.

In dem genannten Bereich wurden 13 bisher unbekannte Zustände ungerader Parität mit Drehimpulsquantenzahlen $J = 6, 7$ oder 8 gefunden. Die genaue Auswertung hinsichtlich Effizienz und erste Testmessungen mit diesen Anregungsschemata stehen noch aus.

Geplant ist die Reproduktion der Isotopenverhältnismessungen, so wie eine Messung zertifizierter Proben um die Stabilität und die Korrektheit des Verfahrens zu zeigen. Weiterhin ist die Verbesserung des Messsystems hinsichtlich Effizienz und Isotopenverhältnisbestimmung angedacht, um Messungen von $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ -Verhältnissen in Umweltproben aus Tschernobyl durchführen zu können.

Literatur:

- [1] P.G. Schumann, B.A. Bushaw, K.D.A. Wendt, Spectrochimica Acta Part B 60 (11) 1402-1411 (2005)
- [2] P.G. Schumann, Dissertation Institut für Physik, Universität Mainz (2006)