

MS 1: Laser-Resonanzionisation, REMPI und MALDI

Time: Monday 14:00–16:00

Location: F 428

Invited Talk

MS 1.1 Mo 14:00 F 428

Resonanzionisationsmassenspektrometrie (RIMS) zur isotopelektiven Ultraspurenanalyse von langlebigen Radionuklidern — ●NICOLE ERDMANN — European Commission Joint Research Center, Institute for Transuranium Elements, P.O. Box 2340, D-76125 Karlsruhe

Die Resonanzionisationsmassenspektrometrie (RIMS) ist aufgrund ihrer ausgezeichneten Element- und Isotopelektivität und ihrer hohen Empfindlichkeit sehr gut für die Ultraspurenanalyse langlebiger Radionuklide geeignet. Für die Analyse von Plutonium und anderen Aktiniden wurde ein gepulstes, Nd:YAG-Laser gepumptes Titan-Saphir-Lasersystem entwickelt und mit einem Flugzeit-Massenspektrometer gekoppelt. Für das jeweils untersuchte Element erhält man durch Spektroskopie effektive Anregungs- und Ionisationsschemata sowie Informationen über die Isotopieverschiebungen in dem jeweiligen Schema. Für Plutonium wird eine Nachweisgrenze von 2×10^6 Atomen für ein einzelnes Isotop erreicht. Die Anwendung der RIMS für die Ultraspurenanalyse und die Messung von Plutonium-Isotopenverhältnissen in verschiedenen Umweltproben wird beschrieben. Die Bestimmung der Isotopenzusammensetzung von Plutonium ermöglicht Aussagen über dessen Herkunft. Erste Ergebnisse der Weiterentwicklung des Systems zur Analyse von aktinidenhaltigen Mikropartikeln werden vorgestellt, wo durch Kopplung von Ionenstrahlspütern mit resonanter Nachionisation der erzeugten Neutralteilchen das Problem isobarer Interferenzen, wie es bei SIMS auftritt, elegant überwunden wird.

Invited Talk

MS 1.2 Mo 14:30 F 428

ESI-MS for nuclear safety assessment: Polymerization of plutonium — ●CLEMENS WALTHER — Institut für Nukleare Entsorgung, Karlsruher Institut für Technologie, Postfach 3640 D-76021 Karlsruhe, Germany

The safety assessment of prospective deep geological nuclear waste disposal sites such as Gorleben (or the research salt mine Asse) requires detailed knowledge of aqueous chemistry of radionuclides. Water intrusion into the repository may lead to leaching processes and migration of radionuclides. Among these the long lived actinides 241 americium and 239 plutonium (half lives 430y and 24000y, respectively) are of particular relevance. Since man made containers cannot be expected to stand > 250000 y (10 half lives) immobilizing processes (such as sorption or incorporation into the host matrix) and mobilizing processes (volatility or colloid mediated transport) must be understood on a molecular level. Repository conditions must be chosen such as to favor immobilizing conditions over geological timescales. In the present work polymerization processes of tetravalent actinides (the most prominent example being 239Pu) are investigated by high resolution nano-electrospray mass spectrometry. Polymerization may lead to formation of colloids and subsequent efficient transport as recently demonstrated in the case of former Nevada nuclear weapons test sites and a Russian reprocessing plant. Hence, conditions must be chosen to inhibit these reaction path ways.

MS 1.3 Mo 15:00 F 428

Ultraspurenanalyse von Uranisotopen mittels hochauflösender Resonanzionisations-Massenspektrometrie — ●AMIN HAKIMI¹, SEBASTIAN RAEDER¹, KLAUS WENDT¹ und NORBERT TRAUTMANN² — ¹Institut für Physik, Universität Mainz — ²Institut für Kernchemie, Universität Mainz

Die Isotopenzusammensetzung einer uranhaltigen Probe, insbesondere die Häufigkeit des Uranisotops U-236, liefert wichtige Informationen über ihre Historie und Herkunft. Natururan weist einen Gehalt von < 10 ppb an U-236 auf. Da das extrem seltene Isotop U-236 durch Neutroneneinfang aus U-235 gebildet wird, korreliert die Isotopenhäufigkeit von U-236 mit der integralen Neutronenflussdichte, der das Material ausgesetzt war. Mit diesem Indikator kann man anthropogene Uraneinträge in die Umwelt, z.B. aus Kernbrennstoff, nachweisen.

Mit der hochauflösenden Resonanzionisations-Massenspektrometrie (HR-RIMS) steht ein hochselektives Verfahren zum Ultraspurennachweis zur Verfügung. In einem Prototypensystem konnte die Leistungsfähigkeit der Methode zum Ultraspurennachweis von 236U prinzipiell demonstriert werden. Ziel ist nun, die Methode weiter zu optimieren, zu charakterisieren und zur Einsatzreife zu bringen. Zu diesem Zweck ist eine Umstellung auf ein Resonanzionisationsschema geplant, das

mit kommerziellen Diodenlasern angeregt werden kann. Durch Weiterentwicklung des Atomisierungs-ofens sollen die Probeneinbringung und damit die Effizienz verbessert werden. Mit diesen Voraussetzungen ist der Übergang zu quantitativer Analytik, wie z.B. Messungen der Isotopenzusammensetzung in randomisierten Umweltproben, möglich.

MS 1.4 Mo 15:15 F 428

Bestimmung von Isotopenverhältnissen in U und Pu durch RIMS — ●RAEDER SEBASTIAN¹, AMIN HAKIMI¹, NILS STÖBENER², NORBERT TRAUTMANN², TOBIAS REICH² und KLAUS WENDT¹ — ¹WA LARISSA, Institut für Physik, Universität Mainz — ²Institut für Kernphysik, Universität Mainz

Für die Überwachung von Kontaminationen mit radioaktiven Material aus dem Kernbrennstoffkreislauf in der Umwelt ist die quantitative Analyse von Aktiniden von besonderer Bedeutung. Insbesondere die Bestimmung von Plutonium- und Urangelhalten, sowie die genaue Kenntnis der Isotopenzusammensetzung liefern einen wichtigen Aufschluss über Herkunft und Geschichte der untersuchten Probe. Für die Bestimmung geringster Spuren dieser Aktinide ist eine hohe Nachweiseffizienz der Bestimmungsmethode und eine gute Selektivität gegenüber isobaren Kontaminationen unerlässlich. Die Methode der Resonanzionisations-Massenspektrometrie (RIMS) kombiniert eine selektive Ionisation durch Laserstrahlung mit der Massenauflösung herkömmlicher Massenspektrometer. Unter Verwendung gepulster, spektral breitbandiger gepulster Lasersysteme für die resonante Ionisation in einer heißen Laserionenquelle erreicht man hohe Ionisationseffizienzen und durch die Kombination mit einem Quadrupol-Massenspektrometer eine adäquate Massenauflösung. Das System wurde mit synthetischen Proben charakterisiert während erste Messungen von Umweltproben in Vorbereitung sind. Der aktuelle Status des Projekts sowie geplante Verbesserungen werden vorgestellt.

MS 1.5 Mo 15:30 F 428

Two-photon spectroscopy inside a hot cavity — ●CHRISTOPH MATTOLAT¹, HIDEKI TOMITA², TINA GOTTFWALD¹, SEBASTIAN RAEDER¹, SEBASTIAN ROTHE³, FABIO SCHWELLNUS¹, and KLAUS WENDT¹ — ¹Johannes Gutenberg-Universität, Mainz — ²Nagoya University, Nagoya, Japan — ³Cern, Genf, Schweiz

At on-line isotope separators like ISOLDE/Cern access to the study of exotic radioisotopes is given. A severe limitation for any spectroscopic investigations is the life time of the isotope of interest. Therefore, in-source resonance ionization spectroscopy is performed to access extremely short lived isotopes. Nevertheless, this method suffers from the large Doppler broadening of the observed resonance lines due to the hot environment in the source necessary for a fast release of the atoms. One approach to overcome this limitation is found in two-photon spectroscopy in combination with resonance ionization by which ions can be created directly inside the hot ionizer cavity without Doppler broadening. Resonance ionization usually makes use of pulsed lasers with high power and a spectral line width of a few GHz, while for two-photon spectroscopy it is essential to use a well adapted laser with narrow line width. An injection seeded Ti:sapphire laser which operates at high repetition rate and offers an average output power of about 2.5 W at a line width of 20 MHz fulfills these needs. The general feasibility of Doppler free two-photon resonance ionization spectroscopy inside a hot cavity and the suitability of this laser has been demonstrated in investigations of the hyperfine structures of the $3s^2 3p^2 \ ^3P \rightarrow 3s^2 3p4 \ ^3P$ multiplet in ²⁹Si, which could be well resolved.

MS 1.6 Mo 15:45 F 428

Die Laserionenquelle und -falle LIST - Eine hochselektive Quelle für radioaktive Ionenstrahlen — ●FABIO SCHWELLNUS¹, KLAUS BLAUM², RICHARD CATHERALL³, BERNARD CREPIEU³, VALENTIN FEDOSSEEV³, TINA GOTTFWALD¹, KLAUS-PETER HÖLDTKE¹, HANS-JÜRGEN KLUGE⁴, THIERRY STORA³ und KLAUS WENDT¹ — ¹Institut für Physik, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 55099 Mainz — ²Max-Planck-Institut für Kernphysik, Saupfercheckweg 1, 69117 Heidelberg — ³CERN, CH-1211 Meyrin — ⁴GS1, Planckstrasse 1, 64291 Darmstadt

Die Laserionenquelle und -falle (Laser Ion Source and Trap - LIST) wurde zur hochselektiven Erzeugung isobarenfreier, radioaktiver Ionenstrahlen an Großforschungsanlagen, beispielsweise ISOLDE, entwi-

ckelt. Dieser Beitrag fasst die mehrjährige off-line Entwicklungsphase der LIST in Mainz und bei ISOLDE zusammen. Im gegenwärtigen Entwicklungsstand erreicht die LIST eine Unterdrückung von Oberflächenionen über mehr als fünf Größenordnungen, Ionisationseffizienzen von über 0,1 % und liefert nahezu untergrundfreie, gepulste Ionenstrahlen

mit Pulsbreiten unter 10 μ s. Die off-line Charakterisierung und Entwicklung einer Version der LIST zum on-line Einsatz bei ISOLDE kann damit zunächst als abgeschlossen betrachtet werden. Ein Ausblick auf den ersten on-line Einsatz, der sich zurzeit in Vorbereitung befindet, sowie auf mögliche zukünftige Entwicklungen wird gegeben.