

## Isotopenselektive Plutoniumbestimmung in verschiedenartigen Proben mittels RIMS unter Verwendung eines Titan-Saphir-Lasersystems

C. Grüning<sup>1</sup>, G. Huber<sup>2</sup>, J.V. Kratz<sup>1</sup>, G. Passler<sup>2</sup>, N. Trautmann<sup>1</sup>, A. Waldek<sup>1</sup>, K. Wendt<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Institut für Kernchemie, <sup>2</sup>Institut für Physik, Universität Mainz

Die Resonanzionisations - Massenspektrometrie (RIMS) wird als Methode zur Ultraspurenanalyse von Actiniden in unserer Arbeitsgruppe seit längerem eingesetzt [1]. Um RIMS als Standard - Analyseverfahren verwenden zu können, wird ein leistungsstarkes, wartungsarmes und einfach handhabbares Lasersystem zur Resonanzionisation benötigt.

Dazu wurde ein hochrepetierendes Titan-Saphir-Lasersystem mit einem Abstimmbereich von 725 bis 895 nm aufgebaut [2, 3].

Zur Ultraspurenanalyse von Plutoniumisotopen wurden zunächst die Isotopieverschiebungen der Plutoniumisotope 238 bis 244 im verwendeten dreistufigen Anregungsschema mit den Wellenlängen  $\lambda_1 = 420,76$  nm,  $\lambda_2 = 847,28$  nm und  $\lambda_3 = 767,53$  nm bestimmt (Abb. 1).

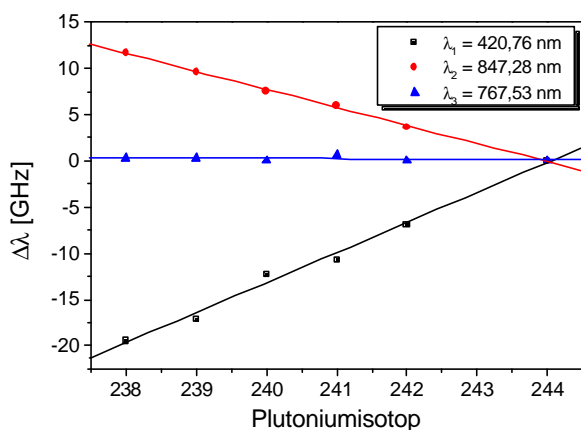


Abb. 1: Isotopieverschiebungen im ersten, zweiten und dritten Anregungsschritt der Plutoniumisotope 238 bis 242, relativ zu 244.

Auf Grund der großen Isotopieverschiebungen im ersten und zweiten Anregungsschritt werden die Laser während einer Messung abwechselnd auf die exakten Wellenlängen der untersuchten Isotope eingestellt.

Zur Demonstration der genauen und reproduzierbaren Messung von Isotopenverhältnissen wurden die Zusammensetzungen im Hause hergestellter Isotopengemische sowie zertifizierter Referenzgemische, wie z.B. dem NIST Standard SRM996, bestimmt. In Abbildung 2 ist das Flugzeitspektrum einer SRM996 Probe von einigen  $10^{12}$  Atomen  $^{244}\text{Pu}$  logarithmisch dargestellt. Der Dynamikbereich der Messung erstreckt sich bei 17 Ereignissen  $^{238}\text{Pu}$  und 485000 Ereignissen  $^{244}\text{Pu}$  über 4 Größenordnungen.

Tabelle 1 zeigt die gute Übereinstimmung der gemessenen mit der zertifizierten Isotopenzusammensetzung der Probe.

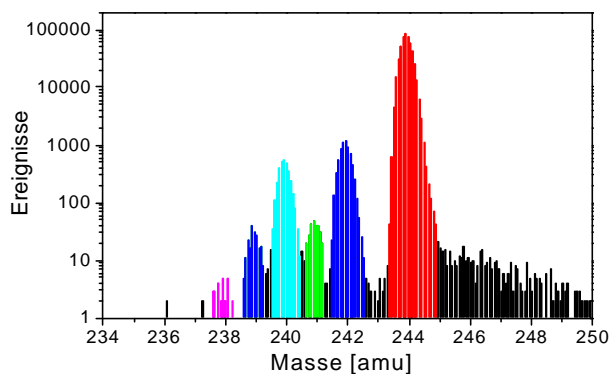


Abb. 2: Flugzeitspektrum des Pu-Referenzstandards RM996.

Tab. 1: Gemessene und zertifizierte Verhältnisse der Plutoniumisotope relativ zu  $^{244}\text{Pu}$ . Die Werte müssen mit  $10^{-3}$  multipliziert werden.

Pu	gemessen	zertifiziert
<b>238</b>	0,04(3)	0,04(1)
<b>239</b>	0,39(8)	0,35(2)
<b>240</b>	6,4(3)	6,9(1)
<b>241</b>	0,54(10)	0,37(2)
<b>242</b>	13,7(5)	13,5(1)

Die Nachweiseffizienz der RIMS bei der Messung von zwei Plutoniumisotopen wurde zu  $\varepsilon = 1 \cdot 10^{-5}$  bestimmt. Bei einer Vertrauensgrenze von 99,7% ( $3\sigma$ ) ergeben sich daraus - je nach Anzahl der Untergrundereignisse - Nachweisgrenzen bis herab zu  $2 \cdot 10^6$  Atomen Plutonium.

Zum isotopenselektiven Plutoniumnachweis in Umweltproben wird das Titan-Saphir Lasersystem erstmals bei der Untersuchung der Plutoniumisotope 238 bis 242 in Staubproben erfolgreich eingesetzt. Zusammen mit Verlusten bei der chemischen Aufarbeitung der Proben ergeben sich Nachweisgrenzen beim Plutoniumnachweis in einer Staubmatrix von einigen  $10^7$  Atomen Plutonium.

### Literatur:

- [1] Passler et al., Kerntechnik 62 (1997) 85
- [2] Grüning et al., Jahresbericht 1997 (1998)
- [3] C. Gruening et al., Proc. of the 9th Int. Symp. on Resonance Ionization Spectroscopy: New Directions and Applications, AIP Conf. Proc. 454 (1998) 285