

Resonanzionisations-Massenspektrometrie ionengesputterter Neutralteilchen zur element-selektiven Analyse von Aktiniden in Mikropartikeln

N. Erdmann^{1,2}, J.V. Kratz², K. Lützenkirchen¹, G. Passler³, N. Trautmann²

¹ European Commission Joint Research Centre, Institute for Transuranium Elements, D-76125 Karlsruhe, Germany; ² Institut für Kernchemie, Universität Mainz, D-55099 Mainz, Germany; ³ Institut für Physik, Universität Mainz, D-55099 Mainz, Germany

Mikropartikel, die Actiniden enthalten, sind von speziellem Interesse für „Nuclear Safeguards“ Analysen, zur Risikobewertung kontaminierter Gegenden, sowie für nukleare forensische Analysen. Sekundärionenmassenspektrometrie (SIMS) hat sich als Routine-Methode für die Analyse solcher Partikel etabliert. Isobare Interferenzen (z.B. $^{238}\text{U}/^{238}\text{Pu}$, $^{241}\text{Pu}/^{241}\text{Am}$) stellen hierbei jedoch ein Problem dar. Die Resonanzionisationsmassenspektrometrie (RIMS), die für Bulk-Analysen im Ultraspurenbereich seit vielen Jahren erfolgreich eingesetzt wird [1], ist hoch element- und isotopenselektiv sowie sehr empfindlich.

Im Rahmen eines Forschungsprojekts wurde ein kommerzielles TOF-SIMS Gerät so umgebaut, dass es die Kopplung von Ionenstrahl-Sputtern, welches die zur Partikelanalytik notwendige hohe Lateralaufklärung liefert, mit einem hochreptierenden (kHz) durchstimmbaren Festkörperlasersystem zur resonanten Nachionisierung der gesputterten Neutralteilchen erlaubt (Abbildung 1), wodurch das Isobarenproblem eliminiert wird. Dazu wurde die zeitliche Synchronisation der Laserpulse mit der Ionenquelle und dem Flugzeit-Massenspektrometer (TOF-MS) realisiert, sowie die Unterdrückung der beim Sputtern entstehenden Sekundärionen erfolgreich umgesetzt.

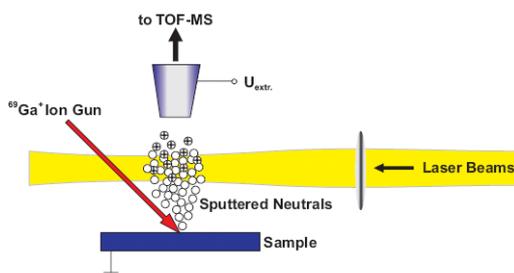


Abbildung 1: Schema des experimentellen Aufbaus zur Kopplung von Ionenstrahl-Sputtern und Laserionisierung der gesputterten Neutralteilchen.

Erste Tests zur resonanten Nachionisierung wurden mit Gadolinium durchgeführt. Das Anregungsschema von Gd ($\lambda_1 = 422,71 \text{ nm}$, $\lambda_2 = 849,30 \text{ nm}$, $\lambda_3 = 775,09 \text{ nm}$) ist mit dem Ti:Sa Lasersystem ausführlich spektroskopisch untersucht worden [2]. Abbildung 2 zeigt das RIMS Spektrum gesputterter Neutralteilchen von einer Gd-Folie. Die Massenaufklärung kann zu $m/\Delta m_{\text{FWHM}} \approx 600$ abgeschätzt werden, was für die Bestimmung der Isotopenzusammensetzung von Plutoniumproben ausreichend ist.

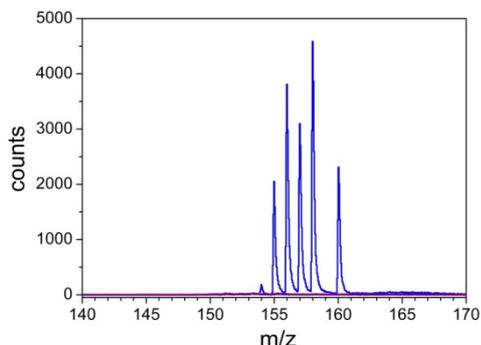


Abbildung 2: TOF-Massenspektren ionengesputterter Neutralteilchen von Gd mit 3-stufiger resonanter Lasernachionisierung (blau: alle 3 Laser resonant, violett: λ_2 um 20 GHz aus der Resonanz verstimmt).

Für Untersuchungen an Plutonium wurden einige 10^{15} Atome ^{244}Pu (ca. 3 μg) elektrolytisch als $\varnothing = 6 \text{ mm}$ Fleck auf Titanfolie abgeschieden; die mit dem Ionenstrahl abgetragene Fläche betrug pro Messung jeweils nur wenige μm^2 . Auch hier konnte ein Signal beobachtet werden, welches klar mit den resonanten Wellenlängen für 3-stufige Anregung von Plutonium ($\lambda_1 = 420,76 \text{ nm}$, $\lambda_2 = 847,28 \text{ nm}$, $\lambda_3 = 767,53 \text{ nm}$) korreliert war (Abbildung 3).

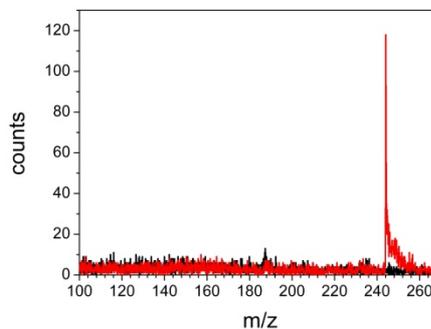


Abbildung 3: TOF-Massenspektren ionengesputterter Neutralteilchen von ^{244}Pu mit 3-stufiger resonanter Lasernachionisierung (rot: alle 3 Laser resonant, schwarz: λ_2 um 11 GHz aus der Resonanz verstimmt).

In Zukunft sind Verbesserungen der Nachweis-effizienz sowie die Anwendung eines gekoppelten Verfahrens aus zerstörungsfreien Methoden und nachfolgender Analyse ionengesputterter Neutralteilchen mittels RIMS für actinidenhaltige Mikropartikel in Umweltproben geplant.

Referenzen

- [1] N. Trautmann et al., Anal. Bioanal. Chem. **378**, 348 (2004).
- [2] A. Schmitt, Dissertation, Institut für Physik, Universität Mainz (2004).