

Kopplung von Ionenstrahl-Sputtern und Resonanzionisationsmassenspektrometrie zur orts aufgelösten Analyse von Actiniden

N. Erdmann¹, J.V. Kratz¹, N. Trautmann¹, G. Passler², P. Lievens³, R.E. Silverans³, E. Vandeweert³

¹ Institut für Kernchemie, Universität Mainz, D-55099 Mainz, Germany; ² Institut für Physik, Universität Mainz, D-55099 Mainz, Germany; ³ Laboratorium voor Vaste-Stoffysica en Magnetisme, K.U. Leuven, Celestijnenlaan 200D, B- 3001 Leuven, Belgium

Micro-Partikel, die in hohen Konzentrationen Actiniden enthalten, sind von speziellem Interesse für „Nuclear Safeguards“ Analysen der IAEA und Euratom, zur Risikobewertung kontaminierter Gegenden, sowie für nukleare forensische Analysen. Ein Verfahren, welches sich in den letzten Jahren zur Routine-Methode für die Analyse solcher Partikel entwickelt hat, ist die Sekundärionenmassenspektrometrie (SIMS) [1]. Isobare Interferenzen (z.B. $^{238}\text{U}/^{238}\text{Pu}$, $^{241}\text{Pu}/^{241}\text{Am}$) stellen jedoch ein Problem dar.

Die Resonanzionisationsmassenspektrometrie (RIMS), die für Bulk-Analysen im Ultra-spurenbereich bereits seit vielen Jahren erfolgreich eingesetzt wird [2], ist hoch-elementselektiv und sehr nachweisstark. Im Rahmen eines neuen, von der DFG geförderten Projekts soll ein kommerzielles TOF-SIMS Gerät (Fa. IONTOF) so umgebaut werden, dass es die Kopplung von Ionenstrahl-Sputtern und resonanter Nachionisation der gesputterten Neutralteilchen mit RIMS ermöglicht, wodurch das Isobarenproblem eliminiert wird.

Voruntersuchungen [3] wurden u.a. am Resonanzionisationsmassenspektrometer der K.U. Leuven, Belgien, [4] durchgeführt. Der Fokus der dort verfügbaren Ar-Ionenquelle ist mit $\varnothing = 3\text{mm}$ zu groß für die Einzelpartikelanalytik, jedoch lassen sich grundlegende Studien zu den gesputterten Neutralteilchen-Spezies durchführen. Die in den Partikeln nachzuweisenden Actiniden liegen typischerweise in oxidischer Form vor, beim Sputtern entstehen neben neutralen Atomen auch Oxid-Moleküle. Da für die selektive resonante Ionisation neutrale Atome erforderlich sind, ist es für einen effizienten Nachweis von Interesse, deren Anteil zu maximieren.

Als Modellelement wurde Uran eingesetzt. Mit U_3O_8 Partikeln wurde untersucht, wie Proben-Substrat und Proben-Vorbereitung das Verhältnis atomaren Urans zu Uranoxidmolekülen beeinflusst. Das atomare Uran wurde vom Grundzustand mittels 2-Schritt-resonanter Anregung mit $\lambda_1=324,614\text{ nm}$ und $\lambda_2=513,554\text{ nm}$ (Population eines autoionisierenden Zustands) ionisiert, während die Molekülionen nichtresonant erzeugt wurden, so dass nur ein qualitativer Vergleich der Signale möglich war. Bei kontinuierlichem Beschuss der Probe mit dem Ar-Ionenstrahl stellt sich nach ca. 15-30 min ein festes Verhältnis von Uran- zu Oxidionen ein. Es wurde beobachtet, dass bei Verwendung von Titan als Probenträger durch 10-minütiges

Aufheizen der Probe auf 800°C unter UHV Bedingungen das atomare Signal um ca. einen Faktor 10 gegenüber der nicht aufgeheizten Probe verbessert werden konnte.

Das verwendete TOF-SIMS Gerät ist in Abb. 1 gezeigt. Zum Sputtern wird eine Ga-Flüssigmetall-Ionenquelle eingesetzt, welche einen Fokus im sub- μm Bereich erlaubt. Der Ionenstrahl kann bis zu $500 \times 500\ \mu\text{m}^2$ über die Probenoberfläche gerastert werden, um orts aufgelöste Information zu erhalten. Die Ionen werden in einem Flugzeitmassenspektrometer nachgewiesen.

Zur resonanten Ionisation der gesputterten Neutralteilchen werden die Laserstrahlen von 3 durchstimmbaren Ti:Saphirlasern eingekoppelt. Diese 3-stufige Anregung und Ionisation lässt eine hohe Elementselektivität mit niedrigem Untergrund erwarten. Eine Besonderheit ist ferner die Tatsache, dass das verwendete Lasersystem hochrepetierend im kHz-Bereich arbeitet. Damit wird eine optimale Kopplung mit der Pulsfrequenz der Sputter-Ionenquelle möglich, wodurch sich kurze Meßzeiten ergeben.

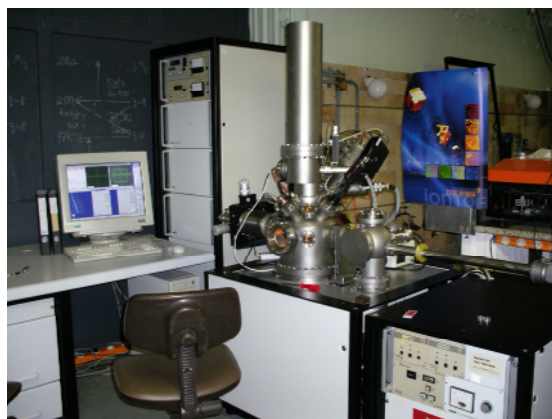


Abb. 1. Foto des TOF-SIMS Gerätes, welches durch Einkopplung von 3 durchstimmbaren Lasern für den RIMS-Betrieb umgebaut wird.

References

- [1] M Betti et al., Anal. Chem. **71**, 2616 (1999)
- [2] N. Trautmann et al., Anal. Bioanal. Chem **378**, 348 (2004)
- [3] N. Erdmann et al., Anal. Chem. **75**, 3175 (2003)
- [4] E. Vandeweert et al., Phys. Rev. B **64**, 195417 (2001)