

Systematische Untersuchungen zur Spurenanalyse von Plutoniumisotopen mittels In-Source-RIMS

A. Hakimi, S. Raeder, N. Stöbener, G. Passler, N. Trautmann*, K. Wendt
Institut für Physik, *Institut für Kernchemie, Johannes Gutenberg-Universität Mainz

Die Isotopenzusammensetzung einer plutoniumhaltigen Probe liefert wichtige Informationen über ihre Herkunft und Historie. Dabei ist das Isotopenverhältnis $^{239}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$ von besonderem Interesse. Der Hauptentstehungspfad für ^{239}Pu ist ein Neutroneneinfang von ^{238}U , gefolgt von zwei β -Zerfällen. Das Isotop ^{240}Pu wiederum entsteht durch Neutroneneinfang aus ^{239}Pu . Anhand des Verhältnisses dieser beiden Isotope lassen sich Intensität und Dauer des Neutronenflusses, dem das Material ausgesetzt war, ermitteln. Dabei ist eine Unterscheidung möglich, ob das Material einem langanhaltenden, kontinuierlichen Neutronenfluss in einem Reaktor oder einem kurzen und hochintensiven Neutronenpuls aus einer Nuklearwaffenexplosion ausgesetzt war. Für diese Untersuchungen wird das Verfahren der In-Source-Resonanzionisationsmassenspektrometrie (RIMS) eingesetzt. Dabei wird die zu untersuchende Probe in einem resistiv geheizten Röhrchen verdampft und in die Gasphase überführt. Anschließend wird das überlagerte Laserlicht dreier gepulster Titan:Saphir-Laser in den Graphitofen eingestrahlt. Die Laser dienen zur resonanten Ionisation mittels subsequenter Anregung über zwei gebundener Zustände in einen autoionisierenden Zustand. Somit kann die Ionenquelle elementselektiv betrieben werden.

Durch den Effekt der Isotopieverschiebung ist es möglich, durch gezieltes Verstimmen der Laserfrequenzen isotopenselektiv zu ionisieren (s. Abb. 1a)+b)). Die so erzeugten Plutoniumionen werden anschließend in einem Quadrupol massenspektrometrisch separiert und mit einem Channeltron nachgewiesen.

Die im Berichtszeitraum durchgeführten Arbeiten zielten auf eine quantitative Bestimmung der Nachweisgrenze für Plutoniumisotope mittels In-Source-RIMS ab. Zu diesem Zwecke wurden zahlreiche Messungen zur Nachweeffizienz und von Isotopenverhältnissen durchgeführt. Neben dem bisher eingesetzten Referenzstandard NIST SRM 996 wurden zur unabhängigen Überprüfung die zertifizierten Standards IRMM-043 und IRMM-044 des Institute for Reference Materials and Measurements, Geel, Belgien, verwendet. Die Referenzmaterialien wurden verschieden stark verdünnt, um die Nachweeffizienzen bestimmter Isotope über mehrere Größenordnungen ihrer Häufigkeit zu messen. Die verdünnten Lösungen enthalten damit 10^9 bzw. 10^{10} Atome des jeweiligen Tracerisotops (NIST: ^{244}Pu , IRMM: ^{242}Pu). Die Proben werden auf Titanfolie eingetrocknet, welche während der Atomisation zur Reduktion des Plutoniums dient.

Zur Optimierung des Messprozesses wurden rechnergesteuerte Automatisierungsroutinen implementiert, die eine verbesserte Reproduzierbarkeit sichern. Die Titan:Saphir-Laser wurden mit motorisierten Etalons bestückt, um die Laserfrequenzen zu stabilisieren und zügig auf gewünschte Isotope verfahren zu können. Weiterhin zeigte sich, dass bei stufenartigem Aufheizen des Atomisationsofens ein eruptives Verhalten der Probe auftritt. Dies zeigt sich in stark ansteigenden Zählraten als Antwort auf die Heizstromerhöhung; die Zählraten zeigen jedoch einen schnellen Abfall, was gerade bei Isotopenverhältnismessungen zu Verfälschungen führen kann. Im aktuellen Aufbau wird der Heizstrom kontinuierlich als Rampe mit einstellbarer Geschwindigkeit gefahren. Dadurch ergibt sich ein wesentlich glatteres Ausheizverhalten der Proben.

Zum Zeitpunkt der Fertigstellung des Berichtes ist die Messkampagne noch nicht abgeschlossen, somit liegt auch kein abschließendes Ergebnis vor. Vorläufige Ergebnisse lassen auf eine Nachweisgrenze von $1 \cdot 10^5$ für Plutoniumisotope schließen.

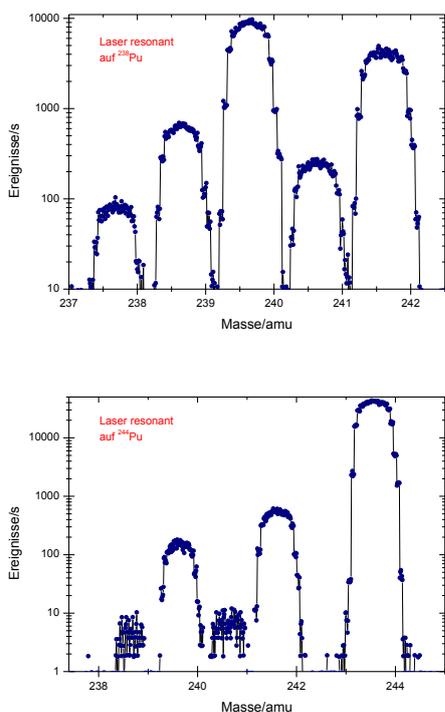


Abb. 1: Massenscan mit Laserresonanz auf a) ^{238}Pu und b) ^{244}Pu

Für die Finanzierung des Projektes geht der Dank an das DFG-Graduiertenkolleg 826/3.