

# TOF-SIMS zur orts aufgelösten Analyse von Actiniden in Mikropartikeln

N. Erdmann<sup>1</sup>, J.V. Kratz<sup>1</sup>, N. Trautmann<sup>1</sup>, M. Eriksson<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Institut für Kernchemie, Universität Mainz, D-55099 Mainz, Germany; <sup>2</sup>IAEA-MEL, MC-98000 Monaco

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.

In Umweltproben sind die hier interessierenden Partikel nur in sehr geringer Anzahl unter einem großen Überschuss anderer Partikel vorhanden. Zu ihrem Auffinden kommt daher eine Kopplung verschiedener Verfahren zum Einsatz. Dem Screening der Proben auf ihren Gehalt an spaltbarem Material dient zum Beispiel die Spaltspuranalyse [1]. Andere ortsauflösende Verfahren [2] können zur Erkennung von radioaktivem Material eingesetzt werden. Ein nächster Schritt ist die Untersuchung der gefundenen Partikel mit einem Rasterelektronenmikroskop, das mit einem Röntgendetektor ausgestattet ist, um die enthaltenen Elemente mittels ihrer charakteristischen Röntgenstrahlung zu identifizieren. Man kann hier außerdem aufgrund der Morphologie des Partikels Rückschlüsse auf Herkunft und Historie ziehen. Weitere zerstörungsfreie Analysemethoden [3] können sich anschließen und wertvolle zusätzliche Informationen liefern, z.B. über den Oxidationszustand ( $\mu$ -XANES) oder die 3D-Element-Verteilungen (Röntgen-Mikrotomographie).

Ein wichtiger Schritt ist die nachfolgende Bestimmung der Isotopenzusammensetzung mit SIMS [4]. Hier können allerdings isobare Interferenzen ein Problem darstellen. Im Rahmen eines DFG-geförderten Projekts wurde ein kommerzielles TOF-SIMS Gerät (Fa. IONTOF) angeschafft [5]. Es wird zur Lasernachionisation umgebaut [6], Ziel ist die Kopplung von Ionenstrahl-Sputtern und resonanter Laser-Ionisation der gesputterten Neutralteilchen mit Resonanzionisationsmassenspektrometrie zur Eliminierung des Isobarenproblems. Das verwendete TOF-SIMS Gerät setzt zum Sputtern eine Ga-Flüssigmetall-Ionenquelle ein, welche einen Fokus im sub- $\mu\text{m}$  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.

Erste Tests zur Wiederfindung und orts aufgelösten Analyse uran- und plutoniumhaltiger Partikel wurden durchgeführt. Hierbei wurden Partikel untersucht, die bereits mit einer Reihe von anderen Verfahren (Beta-Kamera [2],  $\gamma$ -Spektroskopie, SEM, SIMS) charakterisiert worden waren. Die Partikel stammen aus

Sedimentproben, die im Rahmen einer Kampagne 1997 in Thule (NW Grönland) gesammelt wurden, wo 1968 ein US-amerikanisches B52-Flugzeug mit thermonuklearen Waffen an Bord verunglückte [7]. Dabei wurde das in den Bomben enthaltene spaltbare Material (angereichertes Uran und Plutonium) sowie abgereichertes Uran aus der Ummantelung freigesetzt.

Sediment-Partikel mit hohen Konzentrationen an Uran und Plutonium („Hot Particles“) wurden nach der Identifizierung [3] auf separate Probenträger transferiert. Die Probenträger enthielten Markierungen, die eine Wiederfindung des jeweiligen Partikels mit den verschiedenen Analyseverfahren ermöglichte. Mit der TOF-SIMS Apparatur wurde ein Massenspektrum der Partikel aufgenommen, wobei  $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$  und ihre jeweiligen Oxidionen identifiziert werden konnten. Die laterale Verteilung der Isotope innerhalb des Partikels wurde untersucht. Ein Beispiel ist in Abbildung 1 gezeigt. Man erkennt deutliche Unterschiede,  $^{235}\text{U}$  und  $^{239}\text{Pu}$ , welche aus dem Kern der Bombe stammen, zeigen eine ähnliche Verteilung, während  $^{238}\text{U}$ , das offenbar aus der Ummantelung stammt, deutlich an einer anderen Stelle am Partikel hervortritt.

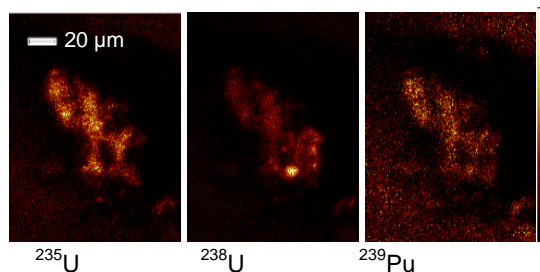


Abb. 1. Laterale Verteilung von  $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$ , und  $^{239}\text{Pu}$  in einem „Hot Particle“ aus Thule, hellere Farben bedeuten höhere Intensität im Pixel.

In Zukunft ist eine selektive Bestimmung des enthaltenen Plutoniums und seiner Isotopenzusammensetzung durch Nachionisation mit RIMS geplant.

## Literatur

- [1] O. Stetzer et al., Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. A **525**, 582 (2004)
- [2] K. Ljunggren, S.E. Strand, J. Nucl. Med, **31**, 2058 (1990)
- [3] M. Eriksson et al., Spectrochim Acta B **60**, 455 (2005)
- [4] M. Betti et al., Anal. Chem. **71**, 2616 (1999)
- [5] N. Erdmann et al., Institut für Kernchemie, Universität Mainz, Jahresbericht C15 (2004)
- [6] F. Engelberger et al., dieser Bericht
- [7] USAF Nuclear Safety, Project Crested Ice, AFRP 122-1 Jan/Feb/Mar 1970, No. 1, 65