



Wissenschaftlicher Ergebnisbericht / Scientific Report 2003

Schwerpunkt / main research area
FE-Vorhaben / RD project
 Institutsbeitrag / institute's contribution

Verantwortlich / in charge
HGF-Forschungsbereich / Research Field
HGF-Programm / Programme

HGF-Thema / Topic
 Internet

Materie / Matter
M03 Entwicklungsarbeiten zur ESS
 62500
 Zentralabteilung für Chemische Analysen /
 Central Division of Analytical Chemistry Analysis (ZCH)
 Dr. S. Küppers s.kueppers@fz-juelich.de
Structure of Matter
Large Scale Facilities for Research with
Photons, Neutrons and Ions
Neutrons
www.fz-juelich.de/scientific-report

Detaillergebnisse / Details

Experimentelle Arbeiten zur Bestimmung langlebiger Radionuklide (Spallationsnuklide) in bestrahlten Hg- und W-Target der ESS

In Rahmen der F&E Arbeiten zu ESS wurde die Entwicklung von Verfahren zur Charakterisierung von Spurenverunreinigungen und Spallationsnukliden in den verschiedenen Targetmaterialien der Europäischen Spallationsquelle (ESS) vorangetrieben.

So wurde zunächst ein ultraempfindliches Analysenverfahren erarbeitet, was die Bestimmung von ^{129}I in verschiedenen Matrices erlaubt. Da kein bestrahltes Hg-Target verfügbar war wurde dieses Verfahren für umweltrelevante Proben (kontaminierte Sedimente) angewandt. So war es möglich, mit Hilfe einer speziell entwickelten Apparatur die an ein Quadrupol-ICP-MS mit Hexapol-Stoßzelle gekoppelt war, ^{129}I in festen Probenmaterialien wie Bodenproben über eine Heißextraktion mit Sauerstoff mit hoher Effizienz in das ICP-MS zu transportieren. Mit diesem Verfahren konnte in kontaminierten Bodenproben $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ Isotopenverhältnisse von 10^{-6} mit einer Nachweisgrenze von 30 pg/g (ppt) bestimmt werden. Durch eine weitere Verbesserung der experimentellen Anordnung (unter Verwendung eines Kühlfingers zwischen Ofen und ICP-MS) konnte die Nachweisgrenze sogar bis auf 0.4 pg/g verbessert werden. Mit diesen experimentellen Arbeiten, die bereits in J. Anal. At. Spectrom. kurz nach Einreichen der Arbeit publiziert wurden, ist die Massenspektrometrie der ZCH international führend.

Ein Problem der Analyse von Spallationsnukliden in einem bestrahlten Target sind auftretende isobare Interferenzen, die durch die Anwendung von Kopplungstechniken mit ICP-MS oder durch die Verwendung von Stoßzellen in der ICP-MS beseitigt bzw. reduziert werden können.

Da als große Fraktion der Spallationsnuklide in einem bestrahlten Target der ESS Lanthanide zu erwarten waren, wurde eine Lanthanidentrennung durch on-line Kopplung der Kapillarelektrophorese (CE) mit ICP-MS entwickelt. Dieses Analysenverfahren wurde zunächst auf ein Lanthanidengemisch mit natürlicher Isotopenhäufigkeitszusammensetzung angewandt.

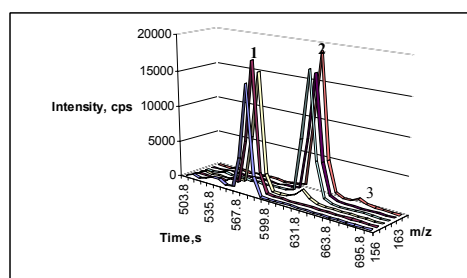
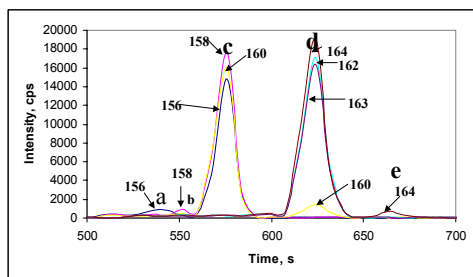


Fig. 1 Zwei- und dreidimensionales zeitaufgelöstes CE-ICP-Massenspektrum gemessen an einer Lösung aus 14 Lanthaniden im Massenbereich von 156 - 164 u für die verschiedenen Dy-Isotope, die sauber von isobaren Atom- und Molekülionen getrennt sind. (a) $^{140}\text{CeO}^+$, (b) $^{142}\text{NdO}^+$, (c) Gd-Isotope, (d) Dy-Isotope (e) $^{164}\text{Er}^+$

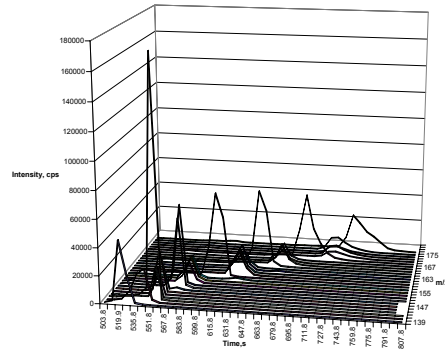
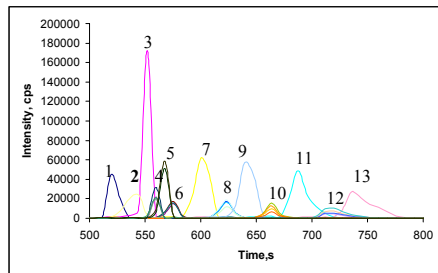


Fig.2 Zwei- und dreidimensionales zeitaufgelöstes CE-ICP- Massenspektrum gemessen an einer Lösung aus 14 Lanthaniden mit natürlicher Isotopenhäufigkeit (1) $^{139}\text{La}^+$, (2) $^{140}\text{Ce}^+$, (3) $^{141}\text{Pr}^+$, (4) Sm^+ , (5) Eu^+ , (6) Gd^+ , (7) ^{159}Tb , (8) Dy^+ , (9) $^{165}\text{Ho}^+$, (10) Er^+ , (11) $^{169}\text{Tm}^+$, (12) Yb^+ , (13) $^{175}\text{Lu}^+$

Die Ergebnisse dieser Untersuchungen können wie folgt zusammengefasst werden:

- Die Kapillarelektrophorese (CE), die mit einem ICP-MS (hier wurde das ICP-QMS, Elan 5000 verwendet) gekoppelt wurde, erlaubt eine schnelle on-line Trennung aller Seltenen Erdenmetalle in kurzer Zeit unter Verwendung eines sehr geringen Probenvolumen (40 nL). Diese Methode an geringsten Probenmengen ist insbesondere für die Arbeiten an einem bestrahlten Target relevant, da somit mögliche Kontaminationen des Gerätes und die Strahlenbelastung des Personals reduziert werden können, wenn hochradioaktive Materialien zu analysieren sind.
- Mit dem erarbeiteten Analysenverfahren können alle auftretenden Interferenzprobleme gelöst werden, wobei eine richtige Bestimmung der Häufigkeiten der Spallationsnuklide möglich wird.
- Die gemessenen Isotopenhäufigkeiten der Lanthanide natürlicher Isotopenhäufigkeitsverteilung stimmen gut mit den erwarteten werten (Tabellenwerten) überein.
- Die Ergebnisse erlauben die Schlussfolgerung, dass diese Methode als sehr empfindliche und richtige Analysenmethode zur Bestimmung der Spallationsnuklide der Lanthanide in einem beliebigen bestrahlten Target der ESS eingesetzt werden kann.

Eine Publikation dieser interessanten Ergebnisse ist geplant.