

# **Zerstörungsfreie Analyse von Kernbrennstoffpartikeln aus der Sperrzone Tschernobyls**

**Von der Fakultät für Mathematik und Physik  
der Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover**

**zur Erlangung des Grades  
Doktor der Naturwissenschaften  
Dr. rer. nat.**

genehmigte Dissertation von M.Sc. Manuel Raiwa

2022

**Referent:**

Prof. Dr. Clemens Walther  
Institut für Radioökologie und Strahlenschutz  
Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover

**Korreferent:**

Prof. Dr. Klaus Wendt  
Institut für Physik  
Johannes Gutenberg Universität Mainz

**Korreferent:**

Prof. Dr. Uwe Morgner  
Institut für Quantenoptik  
Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover

Tag der Promotion: 10.6.2022

# Zusammenfassung

In dieser Dissertation wird die Analyse radioaktiver Partikel im Mikrometerbereich aus der Sperrzone Tschernobyls beschrieben. Da diese sogenannten *hot particles* sehr unterschiedliche Zusammensetzungen und Eigenschaften besitzen können, sind aufwendige Messverfahren nötig, um sie einzeln zu analysieren. Zusätzlich sollten die Partikel im Verlauf der in dieser Arbeit durchgeführten Messungen nicht zerstört werden und für eventuelle Folgeexperimente vorgehalten werden. Dies schränkt die zur Verfügung stehenden Verfahren stark ein.

Statische resonante Laser Sekundär-Neutralteilchen-Massenspektrometrie (rL-SNMS) besitzt als einziges Messverfahren die erforderlichen Eigenschaften. Ihr Probenkonsum ist vernachlässigbar, ihre Ortsauflösung liegt knapp unter einem Mikrometer und durch geeignete Anregungsschemata können isobare Interferenzen um mehrere Größenordnungen unterdrückt werden.

Nach der detaillierten Vorstellung der Funktionsweise der rL-SNMS, wird ein neu installiertes Gitterlasersystem charakterisiert. Mit ihm durchgeführte Langzeitmessungen benötigen die Stabilisierung von Leistung und Wellenlänge. Diese Funktion wird von dem eigens entwickelten Steuerprogramm CARO übernommen.

Neben den Stabilisierungsroutinen übernimmt es auch den automatischen Wechsel zwischen Anregungsschemata. Dadurch können mehrere Elemente nacheinander resonant ionisiert und im Zuge einer kontinuierlichen Messung analysiert werden. Aufwendige Umbaumaßnahmen an den zuvor verwendeten Laserresonatoren werden mit dem neuen System nicht mehr benötigt und Resonanzen können per Dropdown-Liste ausgewählt werden. Nachdem geeignete Laserparameter für verschiedene Anregungsschemata festgelegt und an Referenzmaterialien validiert wurden, werden SNMS Messungen von Technetium, Uran, Plutonium, Americium und Curium durchgeführt. Durch das neue Lasersystem können alle Actinide eines Partikels innerhalb eines Tages gemessen werden.

Die berechneten Isotopenverhältnisse stimmen mit Referenzmessungen von abgebranntem Kernbrennstoff des Tschernobyl Reaktortyps überein. Dies zeigt, dass das System auch in der Lage ist, partikuläre Proben unbekannter Herkunft zu analysieren und anhand der Isotopenverhältnisse eine mögliche Quelle zu identifizieren.

Weiterhin wurden gammaspektrometrische Messungen von individuellen Partikeln durchgeführt. Es konnten routinemäßig die Aktivitäten von  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{241}\text{Am}$  und  $^{154}\text{Eu}$  bestimmt werden. In Kombination mit dem aus den Isotopenverhältnissen abgeschätzten Abbrand zeigen Americium und Europium das erwartete vergleichbare Verhalten in der Umwelt. Die Beschreibung der Radiocäsiumkonzentration in den Partikeln ist 35 Jahre nach dem Unfall deutlich komplexer und nicht durch einzelne Faktoren wie Partikelart oder Herkunftsort in der Umwelt erklärbar.



# Abstract

This dissertation describes the analysis of radioactive particles in the micrometer range from the Chernobyl exclusion zone. Since these so-called *hot particles* can have very different compositions and properties, they need to be analyzed individually. Furthermore, in this work the particles must not be destroyed during the measurement and should be kept intact for possible follow-up experiments. This severely limits the available methods.

Static resonant laser secondary neutral mass spectrometry (rL-SNMS) is the only technique capable of all required properties. Its sample consumption is negligible, its spatial resolution is below one micrometer, and suitable excitation schemes can suppress isobaric interferences by several orders of magnitude.

After a detailed introduction to the measuring principle of the rL-SNMS, a newly installed grating laser system is characterized. Long-term measurements performed with it require the stabilization of power and wavelength. This is done by the developed control application CARO.

In addition to the stabilization routines, it also handles the automatic switching between excitation schemes. This allows for the subsequent detection of several resonantly ionized elements within one continuous measurement. Time-consuming modifications to the previously used laser resonators are no longer needed with the new system, and resonances can be selected via drop-down menu.

After suitable laser parameters for different excitation schemes have been determined and validated on reference materials, SNMS measurements of technetium, uranium, plutonium, americium, and curium are performed. With the new laser system, all actinides of a particle can be measured within one day.

The calculated isotope ratios agree with reference measurements of bulk spent nuclear fuel from the Chernobyl reactor type. This shows that the system can determine a possible source term based on the isotope ratios.

Finally, gamma spectrometric measurements of individual particles were performed. It was possible to routinely determine the activities of  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{241}\text{Am}$ , and  $^{154}\text{Eu}$ . Combined with the burnup estimated from the isotopic ratios, americium and europium show the expected comparable behavior in the environment. The description of the radiocesium concentration in the particles 35 years after the accident however is clearly more complex and cannot be explained by isolated influences such as particle type or origin in the environment.

**Schlagworte:** Kernbrennstoff, Resonanzionisation, hot particle

**Keywords:** nuclear fuel, resonance ionization, hot particle



# Inhaltsverzeichnis

<b>1. Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2. Kernbrennstoff</b>	<b>5</b>
2.1. Grundlagen . . . . .	5
2.2. Isotopenverhältnisse . . . . .	10
2.3. Messmethoden . . . . .	14
2.4. Sekundär-Neutralteilchen-Massenspektrometrie . . . . .	23
<b>3. Lasersystem</b>	<b>29</b>
3.1. Vorhandenes System . . . . .	29
3.2. Gitter Laser . . . . .	31
3.3. Caro . . . . .	35
3.4. Performance und Integration . . . . .	45
<b>4. SNMS Settings</b>	<b>49</b>
4.1. Uran . . . . .	50
4.2. Plutonium . . . . .	57
4.3. Americium . . . . .	62
4.4. Technetium . . . . .	66
4.5. ToF-SIMS Settings . . . . .	68
<b>5. SNMS Messungen</b>	<b>71</b>
5.1. Ortsauflösung . . . . .	72
5.2. Isotopenverhältnisse . . . . .	77
<b>6. Gammaspektrometrie</b>	<b>89</b>
6.1. Spektroskopie . . . . .	89
6.2. Messungen . . . . .	94
<b>7. Fazit</b>	<b>101</b>
7.1. Ausblick . . . . .	102
<b>A. Anhang</b>	<b>105</b>
<b>B. Datenbank</b>	<b>125</b>
<b>Eigenständigkeitserklärung</b>	<b>195</b>





# 1. Einleitung

Die moderne Radioökologie ist ein vielfältiges Forschungsfeld, welches oft vor einzigartigen experimentellen Anforderungen in Physik und Chemie steht. Insbesondere die Beschreibung von Reaktorunfällen ist außerordentlich komplex und erfordert die Neu- und Weiterentwicklung verschiedenster Messmethoden.

Aufgrund seiner hohen radiotoxischen Gefahr für den Menschen steht der Kernbrennstoff dabei im Fokus der Forschung [1, 2]. Oft ist der direkte Zugang zu beschädigten Reaktoren durch die hohe Strahlenbelastung stark eingeschränkt. Es müssen deshalb innovative Verfahren zum Einsatz gebracht werden, damit Zustand und Gefahr für Mensch und Umwelt abgeschätzt werden können.

Ein bemerkenswertes Beispiel dafür ist die Bestimmung der räumlichen Brennstoffverteilung innerhalb des beschädigten Reaktorgebäudes des Fukushima Daiichi Kernkraftwerks mittels gemessener zurückgestreuter kosmischer Myonen außerhalb des Gebäudes [3, 4].

Auch der Reaktorunfall von Tschernobyl 1986 führte zur Entwicklung neuer Forschungsbereiche, um Zustand und Verhalten des Kernbrennstoffs nach dem Unfall beschreiben zu können. Dieser schmolz im Zuge der zehn Tage andauernden Löscharbeiten und floss als über 2000 °C heiße Lava in die unteren Stockwerke [5, 1]. Diese, auch als *Corium* bezeichnete, Masse bildet heute den Hauptteil der Reaktorüberreste und ist seit 2019 umschlossen vom neu errichteten *New Safe Confinement*.

Etwa 3,5(5) % des Kernmaterials wurde jedoch im Laufe des Unglücks aus dem Gebäude geschleudert [5]. Das freigesetzte Material variierte von gasförmigen und flüchtigen Elementen, über feinen Staub, bis hin zu großen Bruchstücken des Kerns. Während die makroskopischen Fragmente in unmittelbarer Umgebung niedergingen, erstreckte sich die Freisetzung flüchtiger Elemente wie Iod und Cäsium praktisch über ganz Europa [6].

Der überwiegende Teil größerer Trümmerstücke wurde im Zuge der Gegenmaßnahmen in „provisorischen“ Deponien neben dem errichteten Sarkophag auf dem Kraftwerksgelände verschüttet. Das Verhalten des weit verbreiteten radioaktiven Cäsiums in der Umwelt ist ausführlich in der Literatur beschrieben [7, 8, 9].

Zwischen diesen beiden gut dokumentierten Freisetzungspfaden wurden etwa 3 t Kernmaterial in Form kleiner Partikel mit einem Durchmesser von einigen Mikrometern bis einen Millimeter über die Grenzen des Kraftwerksgeländes hinaus emittiert [10]. Aufgrund ihrer geringen Größe verteilten sich diese als *hot particles* bezeichneten Fragmente über 100 km weit in mehrere Länder [11]. Ihr Verhalten in der Umwelt ist bis heute Gegenstand der Forschung.

Diese Dissertation beschreibt die Weiterentwicklung eines Messverfahrens und die Analyse solcher Partikel aus der Sperrzone Tschernobyls.

## 1. Einleitung

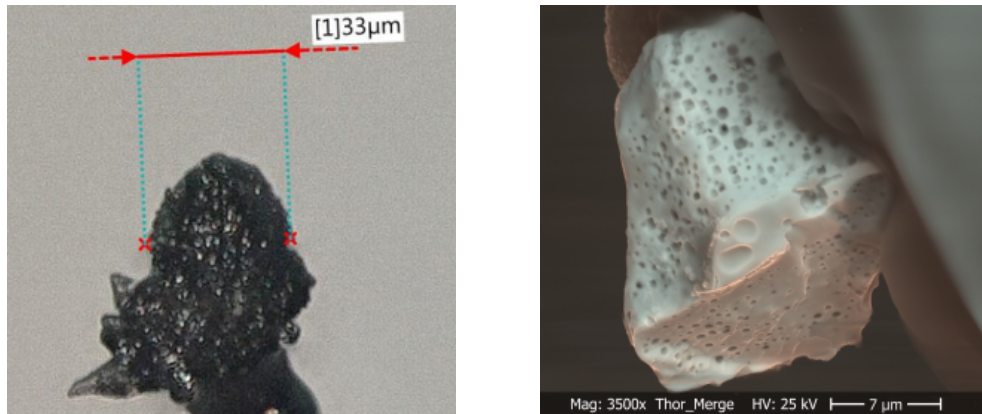


Abbildung 1.1.: *links*: Der hot particle *BK-007* unter optischem Mikroskop. *rechts*: Die Bildgebung mittels Rasterelektronenmikroskop der Probe *CP-003* lässt die für Kernbrennstoff typische löchrige Struktur erkennen.

**Hot particles** Grundsätzlich bezeichnet der Begriff *hot particle* einen radioaktiven Partikel mit einer Größe von einigen Mikrometern bis einem Millimeter [12]. Diese Partikel können neben dem beschriebenen Reaktorunglück von Tschernobyl noch weiteren Quellen entstammen.

Dazu gehören oberirdische Kernwaffentests [13], Wiederaufarbeitungsanlagen [14] oder andere Unfälle mit radioaktivem Material [15, 16]. Dabei unterscheiden sich die freigesetzten Partikel sehr in ihrer Entstehungsart und Zusammensetzung. So wurden durch den Reaktorunfall in Fukushima hauptsächlich Partikel bestehend aus kondensierten flüchtigen Elementen emittiert. Ihre chemische Komposition entspricht nicht der des verwendeten Kernbrennstoffs [17, 18].

Beim Reaktorunglück von Tschernobyl ist dagegen der Entstehungszeitpunkt des Partikels entscheidend. Struktur und elementare Zusammensetzung veränderten sich über den Zeitraum von initialer Explosion bis zum Löschen des Brandes zehn Tage später erheblich [19].

Aufgrund der Vielzahl an Partikelarten ist es somit schwer, eine generelle Aussage zur resultierenden Strahlenbelastung zu tätigen. Auch Angaben zum veränderten Krebsrisiko bei Menschen durch Inkorporation sind aufgrund fehlender kontrollierter Studien nicht eindeutig [20].

Zusätzlich können die enthaltenen radioaktiven Elemente bei umweltbedingtem Auflösen des Partikels in die Biosphäre freigesetzt werden. Damit stellen hot particles eine potenzielle Quelle fortlaufender Kontamination von Boden und Grundwasser dar [10]. Es ist somit unverzichtbar, Wissen über Zusammensetzung und Struktur solcher Partikel zu besitzen. Nur dann können Rückschlüsse zur Herkunft der Kontamination und Folgen für den Menschen abgeschätzt werden.

Abbildung 1.1 zeigt zwei der in dieser Arbeit analysierten Partikel aus der Sperrzone Tschernobyls (CEZ). Insbesondere das Bild des Rasterelektronenmikroskops (REM) rechts zeigt die für Kernbrennstoff typische löchrige Struktur.

**SIRIUS** Das Verhalten in der Umwelt dieser Partikel ist auch für die Endlagersuche in Deutschland von Relevanz. Insbesondere Auslaugung aus der Brennstoffmatrix und Mobilität von langlebigen Actiniden sind von hohem Interesse. Da Langzeitexperimente mit realem abgebranntem Kernbrennstoff in der Biosphäre aus einer Vielzahl an Gründen nicht durchführbar sind, stellen die Partikel der CEZ das vergleichbarste Testsystem für witterungsbedingte Veränderungen an Kernbrennstoff dar.

Aufgrund dessen wurde die Neuentwicklung einer innovativen Messmethode zur Analyse einzelner hot particles vom Bundesministerium für Bildung und Forschung (BMBF) gefördert (Förderkennzeichen *02NUK044A*).

Das Forschungsprojekt *SIRIUS* (Sekundärionisation radioaktiver Isotope zur ortsaufgelösten Ultrapurenanalyse) wurde vom 01.01.2016 bis zum 31.12.2019 an drei beteiligten Instituten durchgeführt. Neben dem Institut für Kernchemie und dem Institut für Physik der Johannes Gutenberg-Universität Mainz, war das Institut für Radioökologie und Strahlenschutz (IRS) der Leibniz Universität Hannover einer der Hauptprojektpartner.

Durch die finanzielle Förderung des BMBFs war es möglich, mehrere Abschlussarbeiten im Rahmen von *SIRIUS* erfolgreich abzuschließen. Inklusive dieser Arbeit wurden alleine am IRS fünf Dissertationen [21, 22, 23, 24], zwei Masterarbeiten [25, 26] und vier Bachelorarbeiten [27, 28, 29, 30] angefertigt.



## 2. Kernbrennstoff

### 2.1. Grundlagen

**Atomaufbau** Um ein besseres Verständnis der Abläufe innerhalb eines Kernreaktors zu bekommen, sollen zunächst einige Grundlagen der Kernphysik etabliert werden. Atome bestehen aus drei verschiedenen Teilchenarten. Die elektrisch positiv geladenen Protonen (Z) und neutralen Neutronen (N) bilden den wenige Femtometer großen Atomkern. Die Position der negativ geladenen Elektronen lässt sich hingegen nur mit einer Aufenthaltswahrscheinlichkeit durch die Orbitaltheorie beschreiben (Abbildung 2.1) [31, 32]. Der durch sie definierte Atomradius liegt im Bereich von 30 pm bis 300 pm.

Da die Massen dieser Teilchen sehr gering sind, werden sie üblicherweise in atomaren Masseneinheiten  $1 \text{ u} = 1,6605 \cdot 10^{-27} \text{ kg}$  angegeben. Protonen (1,007 u) und Neutronen (1,008 u) besitzen einen sehr geringen Massenunterschied und bilden den Hauptteil der Atommasse. Elektronen ( $5,5 \cdot 10^{-4} \text{ u}$ ) sind für die Gesamtmasse von untergeordneter Bedeutung.

Besitzt ein Atom die gleiche Anzahl von Protonen und Elektronen, gleichen sich die Ladungen aus und es handelt sich um ein elektrisch neutrales Atom. Bei Elektronendefizit oder -überschuss besitzt das Atom eine Ladung  $z$  und wird als **Ion** bezeichnet. Da sowohl Protonen als auch Elektronen die Ladung von einer Elementarladung  $1 e = 1,602\,176\,634 \cdot 10^{-19} \text{ C}$  besitzen, wird üblicherweise nur die Anzahl an Elementarladungen des Ions angegeben und die Einheit weggelassen.

Die Protonenanzahl definiert das dem Atom zugeordnete Element. So sind Atome mit einem Proton Wasserstoff, mit zwei Helium, et cetera. Die Neutronenanzahl im Kern steigt generell mit der Protonenanzahl, kann jedoch bei Atomen des gleichen Elements unterschiedlich sein. Die Atome mit gleicher Protonen- und Neutronenanzahl werden als **Isotope** eines Elements gruppiert.

Werden Eigenschaften explizit eines Isotops betrachtet, wird zusätzlich zum Elementsymbol auch die Summe aus Protonen und Neutronen ( $A = Z + N$ ) im Text angegeben. Da sie in erster Näherung ebenfalls die Masse des Isotops in der atomaren Masseneinheit u angibt, wird A auch als Massenzahl bezeichnet. Atome gleicher Masse aber unterschiedlicher Protonen- und Neutronenanzahl, werden als **Isobare** bezeichnet.

So besitzt beispielsweise das Element Schwefel mit 16 Protonen vier Isotope mit 16, 17, 18 und 20 Neutronen. Ihr jeweiliger Anteil liegt auf der Erde bei 95,02 %  $^{32}\text{S}$ , 0,75 %  $^{33}\text{S}$ , 4,21 %  $^{34}\text{S}$  und 0,02 %  $^{36}\text{S}$ . Das Element Argon (18 Protonen) besitzt mit  $^{36}\text{Ar}$ ,  $^{38}\text{Ar}$  und  $^{40}\text{Ar}$  drei stabile Isotope. Da  $^{36}\text{Ar}$  und  $^{36}\text{S}$  die gleiche Massenzahl ( $A = 36$ ) besitzen, werden sie als Isobare zueinander bezeichnet.

## 2. Kernbrennstoff

**Radioaktivität** Nicht alle Kombinationen von Protonen und Neutronen bilden einen stabilen Atomkern. So ist in natürlichem Schwefel kein Isotop mit 19 Neutronen zu finden. Der entsprechende Atomkern von  $^{35}\text{S}$  befindet sich in einer energetisch instabilen Konfiguration und wird zerfallen. Solche instabilen Atomkerne werden als **radioaktiv** bezeichnet.

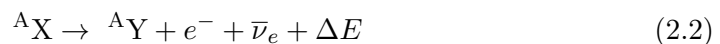
Die Umwandlungsrate eines radioaktiven Isotops wird durch die Halbwertszeit ( $T_{1/2}$ ) angegeben. Sie entspricht der Zeit, in der die Hälfte einer Menge des Isotops zerfallen ist. Atomkerne besitzen mehrere Zerfallsmöglichkeiten, wovon die wichtigsten zwei im Folgenden genauer erläutert werden sollen.

Eine Möglichkeit der Neukonfiguration des Atomkerns ist der Ausstoß eines Teilchens bestehend aus zwei Protonen und zwei Neutronen. Der neu gebildete Atomkern, auch Tochterkern genannt, besitzt zwei Protonen weniger und ist einem neuen Element zuzuordnen. Die Massenzahl verringert sich um vier. Die Zerfallsart wird als **Alphazerfall** bezeichnet und kommt insbesondere bei massereichen Atomkernen vor. Der ausgestoßene zweifach positiv geladene Helium-4 Atomkern wird als Alphateilchen oder Alphastrahlung bezeichnet. Zusätzlich zu der Kernumwandlung wird bei diesem Zerfall Energie als kinetische Energie der beteiligten Kerne frei. Da die Kernumwandlung zwischen quantisierten Kernzuständen stattfindet, besitzt die Alphastrahlung eine diskrete Energie.



Die zweite wichtige Zerfallsart ist der in zwei Varianten vorkommende **Betazerfall**. Hier wandeln sich Protonen und Neutronen im Kern ineinander um. Da sich die Summe von Protonen und Neutronen nicht ändert, bleibt die Massenzahl des Tochterkerns gleich. Unterschieden wird zwischen dem Beta-Plus-Zerfall, bei dem sich ein Proton in ein Neutron umwandelt und dem **Beta-Minus-Zerfall**, bei dem sich ein Neutron in ein Proton umwandelt. Letzterer tritt insbesondere bei Kernen mit einem Neutronenüberschuss auf und ist der für Kernbrennstoff bedeutendere. Die um eins erhöhte Protonenanzahl führt dazu, dass der Kern dem nächsthöheren Element zugeordnet wird.

Bei dem Beta-Minus-Zerfall werden ein Elektron und ein Elektron-Antineutrino aus dem Kern emittiert. Das Elektron wird auch als Betateilchen oder Betastrahlung bezeichnet. Das Elektron-Antineutrino wechselwirkt kaum mit Materie und ist außerordentlich schwer zu detektieren. Analog zum Alphazerfall wird auch beim Beta-Minus-Zerfall Energie frei, welche sich zwischen Elektron und Elektron-Antineutrino aufteilt. Die Energieverteilung des emittierten Elektrons ist deshalb kontinuierlich. Ein Beispiel für den Beta-Minus-Zerfall ist das zuvor angesprochene  $^{35}\text{S}$ , welches mit einer Halbwertszeit von 87,3 Tagen zu  $^{35}\text{Cl}$  zerfällt.



Zerfällt ein radioaktives Atom, befindet sich der entstandene Tochterkern in den meisten Fällen nicht in dem energetisch günstigsten Zustand. Um in diesen Grundzustand überzugehen, muss der Atomkern überschüssige Energie abgeben. Dies kann

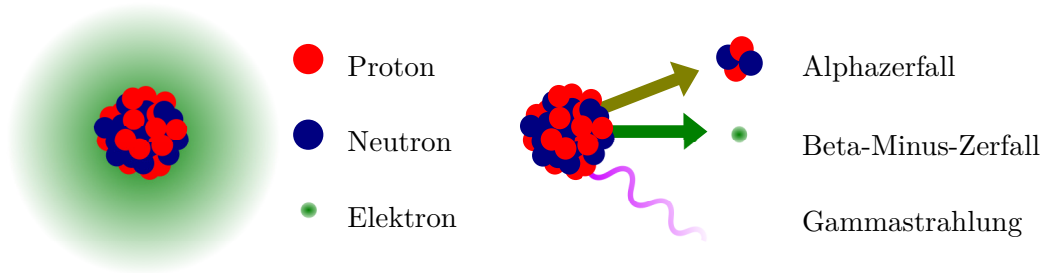


Abbildung 2.1.: *links*: Atome bestehen aus Protonen und Neutronen im Kern, sowie Elektronen deren Position nur als Aufenthaltswahrscheinlichkeit in einem größeren Bereich ausgedrückt werden kann. *rechts*:  $\alpha$ -,  $\beta$ - und  $\gamma$ -Strahlung. Beim Alpha-Zerfall wird ein  ${}^4\text{He}^{2+}$  Kern emittiert, während beim Beta-Minus-Zerfall ein Neutron in ein Proton im Kern umgewandelt und ein Elektron emittiert wird. Nach einem Zerfall wird überschüssige Anregungsenergie des Tochterkerns in Form von hochenergetischen Photonen, der Gammastrahlung, abgegeben.

über ein oder mehrere ausgesendete hochenergetische Photonen geschehen. Die so abgegebene elektromagnetische Strahlung wird als **Gammastrahlung** bezeichnet. Die Kernbausteine ändern sich hierbei nicht. Durch die Quantisierung der Kernanregungen kann das Atom nur Photonen einer Energie emittieren, die der Differenz zweier Kernanregungsniveaus entspricht. Es handelt sich somit ebenfalls um eine Strahlung mit diskreter Energieverteilung.

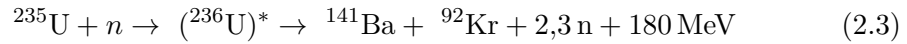
In den meisten Fällen ist die Halbwertszeit des entstandenen angeregten Tochterkerns deutlich geringer als die des vorangegangenen Alpha- oder Betazerfalls. Besonders langlebige angeregte Zustände werden unter Angabe ihrer Halbwertszeit und der Bezeichnung *metastabil* explizit ausgewiesen und mit einem *m* gekennzeichnet. Ein Beispiel für einen solchen Zustand ist  ${}^{99\text{m}}\text{Tc}$  mit einer Halbwertszeit von sechs Stunden, welches in der medizinischen Diagnostik Verwendung findet [33].

**Kernreaktor** Besonders massereiche Kerne ab einer Protonenanzahl von 90 können neben den beschriebenen Zerfällen auch in zwei kleinere Kerne spalten. Die benötigte Energie zur initialen Deformierung des Atomkerns wird als Spaltbarriere bezeichnet. Sie führt dazu, dass spontane Kernspaltung meist von untergeordneter Bedeutung ist. Die dominierenden natürlichen Zerfallskanäle von massereichen Isotopen sind die zuvor erläuterten Alpha- und Beta-Minus-Zerfälle.

Wird einem Kern zur Überwindung der Spaltbarriere von außen Energie hinzugefügt, wird dies als induzierte Kernspaltung bezeichnet. Die mit Abstand wichtigste Form ist die **neutroneninduzierte Kernspaltung**, bei der ein Neutron in den Kern geschossen wird. Der kurzzeitig entstehende Atomkern mit einem zusätzlichen Neutron wird als Compoundkern bezeichnet. Übersteigt die zugeführte kinetische Energie des Neutrons die Spaltbarriere des Compoundkerns, so besteht die Möglichkeit zur Kernspaltung.

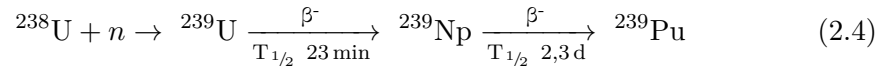
## 2. Kernbrennstoff

Die technisch bedeutendste neutroneninduzierte Spaltung ist die von  $^{235}\text{U}$ . Sie wird sowohl in Kernwaffen als auch in Kernreaktoren verwendet. Gleichung 2.3 zeigt den Neutroneneinfang und die Bildung des Compoundkerns ( $^{236}\text{U}$ )\*. Die darauffolgende Spaltung erzeugt im Mittel 2,3 freie Neutronen und prompt 180 MeV Energie. Die Massen der zwei entstehenden Spaltprodukte sind leicht unterschiedlich und folgen einer Verteilungsfunktion mit zwei Maxima. Die größte Spaltausbeute wird um die Massen 90 und 140 erreicht, weshalb die in Gleichung 2.3 angegebenen Isotope  $^{141}\text{Ba}$  und  $^{92}\text{Kr}$  nur eine der Möglichkeiten darstellen.



Kerne mit gerader Protonen- und Neutronenzahl werden als gg-Kerne bezeichnet und besitzen zusätzliche Paarungsenergie [34]. Das von  $^{235}\text{U}$  eingefangene Neutron führt zur Bildung des gg-Kerns  $^{236}\text{U}$  mit 92 Protonen und 144 Neutronen. Die dadurch gewonnene Paarungsenergie führt zu einer niedrigeren Spaltschwellenenergie, was die Spaltung von  $^{235}\text{U}$  mit niederenergetischen (thermischen) Neutronen ermöglicht.  $^{238}\text{U}$  auf der anderen Seite ist bereits ein gg-Kern. Das zusätzliche Neutron führt zum Verlust der Paarungsenergie im Compoundkern und einem hohen Spaltschwellenwert von 1,1 MeV. Diese kinetische Energie muss das Neutron mindestens haben, damit es zur Kernspaltung kommt.  $^{238}\text{U}$  ist somit nur mit schnellen, hochenergetischen Neutronen spaltbar.

Wird ein Neutron vom Kern aufgenommen, ohne dass dieser spaltet, wird dies als Neutroneneinfang oder Neutronenaktivierung bezeichnet. Da alle Elemente mit mehr als 82 Protonen radioaktiv sind, folgen auf diese Kernreaktion bei massereichen Isotopen weitere Zerfälle. Insbesondere entstehen durch folgende Beta-Minus-Zerfälle höhere Elemente, da sich die Protonenzahl um eins erhöht. So führt der Neutroneneinfang von  $^{238}\text{U}$  zur Bildung der Elemente Neptunium und Plutonium. Sie werden deshalb auch als **Brutprodukte** bezeichnet.



Neutroneninduzierte Kernspaltung von  $^{235}\text{U}$  setzt neben den zwei Spaltprodukten auch weitere Neutronen frei. Diese stehen für die Spaltung des nächsten Urankerns zur Verfügung, sodass eine Kettenreaktion von Kernspaltungen entsteht. Die erzeugten Spaltprodukte besitzen einen Neutronenüberschuss und sind selbst radioaktiv. Neben einer Kaskade von Beta-Minus-Zerfällen werden bei diesen zeitverzögerten Zerfällen auch weitere freie Neutronen durch die Spaltprodukte freigesetzt. Diese beta-verzögerten Neutronen sind von großer Bedeutung in der Neutronenbilanz und Steuerbarkeit der Kettenreaktion. Pro Spaltung von  $^{235}\text{U}$  werden prompt 180 MeV Energie frei [34]. 167 MeV davon entfallen auf die kinetische Energie der beiden Spaltprodukte. Durch ihre hohe Masse werden sie im umliegenden Material schnell abgebremst und geben ihre Energie in Form von Wärme ab. Das aufgeheizte Material gibt seine Energie an einen Wasserkreislauf ab, der wiederum eine Turbine zur Stromerzeugung dreht. Dies ist das Grundprinzip aller Kernreaktoren.



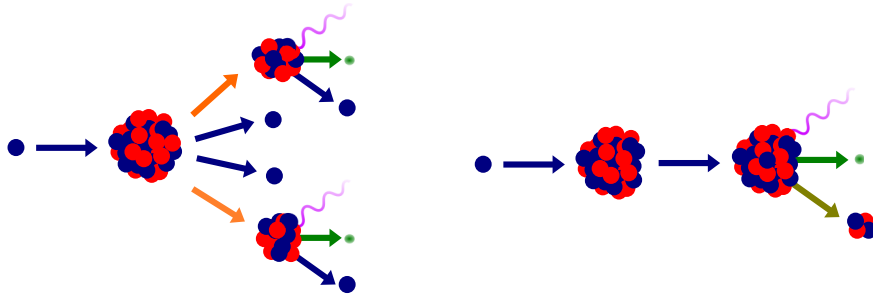


Abbildung 2.2.: *links*: Die neutroneninduzierte Kernspaltung erzeugt zwei leichtere Spaltprodukte, sowie mehrere freie Neutronen. Die freiwerdende kinetische Energie der Spaltfragmente ist die Hauptquelle der produzierten Wärme des Kernreaktors. Die Spaltprodukte zerfallen weiter, bis sie sich in ein stabiles Isotop umgewandelt haben. *rechts*: Die Aufnahme eines Neutrons in den Kern ohne Spaltreaktion wird als Neutroneneinfang bezeichnet.

Die überwiegende Mehrheit der weltweit gebauten Reaktoren beruht auf Kernbrennstoff aus Uran. Natürlich vorkommendes Uran besteht jedoch nur zu 0,7204 % aus dem gut spaltbaren  $^{235}\text{U}$  und zu 99,2742 % aus schlecht spaltbarem  $^{238}\text{U}$ . Für eine technisch effektive Umsetzung der Kettenreaktion muss der Anteil an  $^{235}\text{U}$  erhöht werden. Das Uran wird anschließend als **angereichert** bezeichnet. Je nach Bauart des Reaktors wird auf maximal 5 %  $^{235}\text{U}$  in Kernbrennstoff angereichert. Forschungsreaktoren, die nicht der Stromproduktion dienen, besitzen typischerweise eine Anreicherung von 20 %. Ab 85 % wird das Uran als *weapons-grade* eingestuft, welches in Kernwaffen eingesetzt werden kann.

**Abbrand** Im Laufe des Reaktorbetriebs verringert sich durch kontinuierliche Kernspaltung die vorhandene  $^{235}\text{U}$ -Menge. Um abschätzen zu können, wann der Kernbrennstoff ausgewechselt werden muss, wird ein Maß benötigt, wie viele der enthaltenen  $^{235}\text{U}$ -Atome bereits gespalten wurden. Diese Angabe wird **Abbrand** (engl. burnup) genannt.

Direkt den Anteil der gespaltenen Atome anzugeben (engl. fissions per initial metal atom *FIMA*) ist im laufenden Reaktorbetrieb jedoch schwierig. In der Praxis wird deshalb der Abbrand über die abgegebene Wärmemenge des Reaktors abgeschätzt. Dabei wird die thermische Energie in MW multipliziert mit der Betriebszeit in Tagen und durch die Masse der spaltbaren Elemente in kg des Brennstoffes geteilt. In dem einfachsten Fall ist initial nur Uran als spaltbares Element vorhanden, womit sich die Einheit des Abbrands zu MWd/kgU ergibt.

Über die bekannte abgegebene Energie pro  $^{235}\text{U}$ -Zerfall, kann nun die Anzahl der stattgefundenen Zerfälle und damit der gespaltenen Anteil abgeschätzt werden. Der Umrechnungsfaktor zwischen beiden Werten liegt laut der Organisation für wirtschaftliche Zusammenarbeit und Entwicklung (engl. OECD) bei 10 MWd/kgU pro

## 2. Kernbrennstoff

Prozent FIMA [35]. Er variiert jedoch je nach Brennstofftyp und verändert sich leicht mit steigendem Abbrand [36]. In dieser Arbeit wurde der Wert von Spino et al. für angereicherten Urandioxidbrennstoff von 9,38 MWd/kgU pro Prozent FIMA übernommen [37] (Gleichung 2.5).

$$1 \% \text{ FIMA} = 9,38 \text{ MWd/kgU} \quad (2.5)$$

Je mehr spaltbares Material im Kernbrennstoff vorhanden ist, desto höher sind die erzielbaren Abbrände. So wurden in alten Reaktoren mit 2% angereichertem Brennstoff Abbrände von etwa 20 MWd/kgU erreicht. Moderne Leistungsreaktoren mit Anreicherungsgraden von 5% erreichen einen Abbrand von circa 50 MWd/kgU.

### 2.2. Isotopenverhältnisse

Mit steigendem Abbrand verändert sich die Zusammensetzung des Kernbrennstoffs. Dies betrifft sowohl die Element- als auch die Isotopenverteilung. So sinkt beispielsweise der  $^{235}\text{U}$ -Anteil durch Kernspaltung und Neutroneneinfang, während  $^{236}\text{U}$  erst im laufenden Betrieb gebildet wird. Abbildung 2.3 zeigt die relativen Anteile der Uranisotope  $^{235}\text{U}$  und  $^{236}\text{U}$  in abgebranntem Kernbrennstoff von verschiedenen Brennstofftypen. Die 81 Datenpunkte stammen von Makarova et al. [38]. Das Datenset wurde explizit veröffentlicht, um Referenzwerte für die Entwicklung

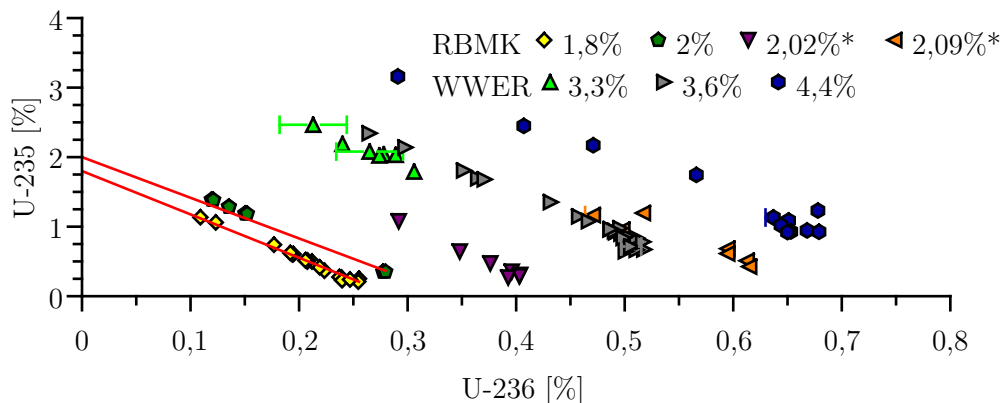


Abbildung 2.3.: Daten von Makarova et al. [38]. Relative Anteile von  $^{235}\text{U}$  und  $^{236}\text{U}$  in abgebrannten Brennelementen unterschiedlicher initialer Anreicherungen und Reaktortypen.  $^{235}\text{U}$  wird im Laufe des Betriebs weniger, während der  $^{236}\text{U}$ -Anteil steigt. Der generelle Trend (rote Linie) ist dabei vergleichbar und nur durch den initialen Anreicherungsgrad zu unterscheiden. \*recycelter Kernbrennstoff mit erhöhtem  $^{236}\text{U}$ -Anteil zum Beladezeitpunkt.

zerstörungsfreier Messmethoden zu liefern. Es beinhaltet neben dem WWER-400 und WWER-1000 (rus. Wodo-wodjanoi energetitscheski reaktor *WWER*) Reaktortyp auch Daten aus dem RBMK-1000 (rus. Reaktor Bolschoi Moschtschnosti Kanalny *RBMK*) Kernkraftwerk Leningrad, welches dem Reaktortyp des Kernkraftwerkes Tschernobyl entspricht.

Wie erwartet, hat sich bei allen Proben der  $^{235}\text{U}$ -Anteil im Vergleich zum initialen Anreicherungsgrad verringert und der  $^{236}\text{U}$ -Anteil erhöht. Die Werte folgen dabei mit steigendem Abbrand einem fast linearen Trend (rote Linie) beginnend beim  $^{235}\text{U}$ -Anteil zum Beladezeitpunkt. Beide Reaktortypen zeigen einen vergleichbaren Trend der Urananteile und unterscheiden sich hauptsächlich in ihren Startbedingungen. Der RBMK verwendet geringere Anreicherungen als die WWER. Der Brennstoff mit 2,02 % und 2,09 % Anreicherung wurde aus recyceltem abgebranntem Uran hergestellt und enthält bereits beim Beladen des Reaktors 0,135 % bzw. 0,38 %  $^{236}\text{U}$ . Sein Trend ist somit nach rechts versetzt.

Auffällig ist die große Streuung der Werte entlang des generellen Trends. Obwohl es sich bei allen Messwerten um abgebrannten Brennstoff handelt, mitunter vom selben Brennelement, wurden sehr unterschiedliche Anteile des  $^{235}\text{U}$  gespalten. Die einzelnen Messpunkte unterscheiden sich teilweise nur in ihrem Ursprungsort im Reaktorkern. Dies belegt, wie heterogen Neutronenfluss und Neutronenspektrum in dem 7 m hohen Reaktorkern eines RBMK sind. Da ein solches Brennelement nur in Gänze über die komplette Höhe entladen werden kann, besteht abgebrannter Brennstoff aus unterschiedlichsten Isotopenzusammensetzungen [39].

Des Weiteren zeigt sich, dass Brennelemente schon dann entladen und gewechselt werden müssen, wenn sie im Inneren ihren spaltbaren  $^{235}\text{U}$ -Anteil verbraucht haben. Zu diesem Zeitpunkt kann an den Enden des Brennelementes noch ein signifikanter  $^{235}\text{U}$ -Anteil vorhanden sein.

Die unterschiedliche Zusammensetzung des Brennstoffes bleibt nicht auf die Uranisotope beschränkt. Durch Neutroneneinfang und anschließende Beta-Minus-Zerfälle werden höhere Elemente in einem Reaktor erbrütet. Insbesondere der Neutroneneinfang des Hauptisotops  $^{238}\text{U}$  mit anschließendem zweifachem Beta-Minus-Zerfall (Gleichung 2.4) bildet das spaltbare  $^{239}\text{Pu}$ , welches bei erhöhtem Abbrand signifikant zur Energiegewinnung beiträgt. Abbildung 2.4 gibt eine Übersicht der wichtigsten Reaktionspfade der Actinide in einem Kernreaktor. Der überwiegende Teil des Kernbrennstoffs besteht zum Beladezeitpunkt aus dem schlecht spaltbaren  $^{238}\text{U}$ . Gering angereicherte Brennelemente wie bei RBMK Reaktoren erfordern einen Wechsel bei geringem Abbrand von etwa 20 MWd/kgU. Eine Tonne abgebrannter RBMK Brennstoff besteht weiterhin zu 960 kg bis 980 kg aus  $^{238}\text{U}$  [38]. Höhere Isotope wie  $^{239}\text{Pu}$ , die erst über Kernreaktionen erbrütet werden müssen, machen mit 1,5 kg bis 3 kg nur einen geringen absoluten Anteil des Brennstoffs aus. Mit jeder weiteren benötigten Kernreaktion sinkt der absolute Anteil, bis schließlich Isotope wie  $^{244}\text{Cm}$  nur noch in Konzentrationen zwischen 0,004 g/tU<sub>0</sub> bis 12 g/tU<sub>0</sub> vorhanden sind.

Auch nach der Entnahme des Brennelements aus dem Reaktor verändern sich die Konzentrationen einiger Isotope. Die Halbwertszeiten der drei Uranisotope  $^{235}\text{U}$  ( $7 \cdot 10^8$  a),  $^{236}\text{U}$  ( $2 \cdot 10^7$  a) und  $^{238}\text{U}$  ( $4 \cdot 10^9$  a) sind so lang, dass Veränderungen

## 2. Kernbrennstoff

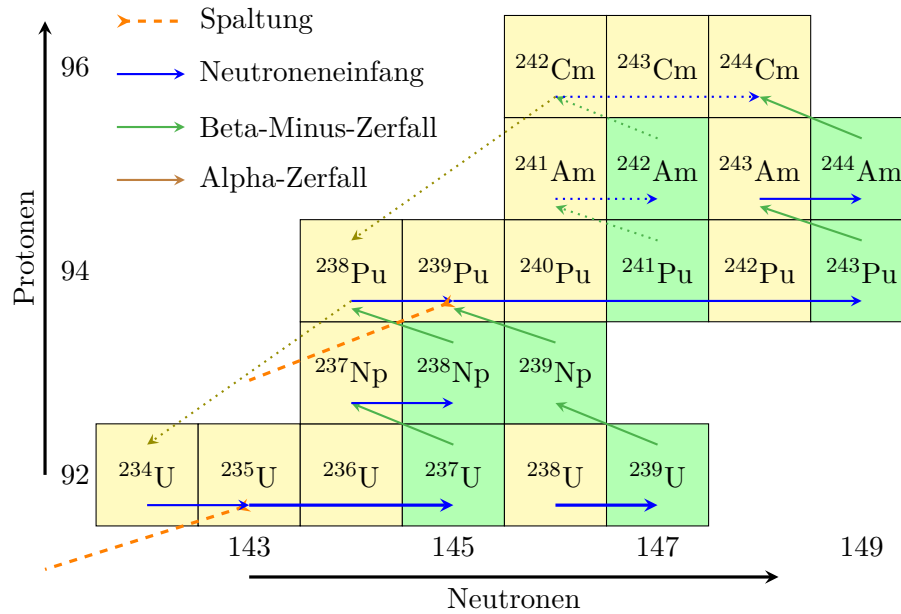


Abbildung 2.4.: Werden die Isotope in Abhängigkeit ihrer Protonen- und Neutronenzahl abgebildet, ergibt sich die Nuklidkarte. Grüne Isotope in grün zerfallen vornehmlich per Beta-Minus-Zerfall und gelbe per Alphazerfall. Ausgehend von  $^{235}\text{U}$  und  $^{238}\text{U}$  zeigen die Pfeile den Pfad der wichtigsten Kernreaktionen im Reaktor. Die gepunkteten Reaktionen sind aufgrund der zugrundeliegenden Halbwertszeiten und kleinerer Neutroneneinfangquerschnitte von geringerer Bedeutung.

durch radioaktiven Zerfall kaum messbar sind. Isotope wie  $^{238}\text{Pu}$  ( $T_{1/2}$  87,7 a) und  $^{241}\text{Pu}$  ( $T_{1/2}$  14,3 a) besitzen jedoch kürzere Halbwertszeiten, sodass ihr Zerfall das Verhältnis zu den anderen langlebigen Plutoniumisotopen messbar verändert und die Zeitspanne zwischen Reaktorentnahme und Messung des Isotopenverhältnisses zu beachten ist.

Das Isotop  $^{241}\text{Am}$  besitzt die Besonderheit, dass es erst signifikant durch den Zerfall von  $^{241}\text{Pu}$  nach der Entnahme entsteht. Da typische Verweildauern von Brennelementen im Reaktor wenige Jahre sind und  $^{241}\text{Pu}$  selbst erst erbrütet werden muss, ist die  $^{241}\text{Am}$ -Konzentration während des Reaktorbetriebs zu vernachlässigen. Erst mit einigen Jahren Verzögerung sind signifikante Mengen von  $^{241}\text{Am}$  durch den  $^{241}\text{Pu}$ -Zerfall entstanden. Aufgrund der längeren Halbwertszeit des  $^{241}\text{Am}$  von 432 a steigt seine Konzentration im abgebrannten Brennstoff über Jahre an. Es löst im Zeitraum zwischen 100 und 1000 Jahre nach der Reaktorentnahme Plutonium als dominanten Alphastrahler ab.

Zusätzlich besitzt  $^{241}\text{Am}$  mit 720(20) b einen hohen Einfangquerschnitt für thermische Neutronen. Die geringe Menge, welche bereits während des Betriebs entsteht, reagiert somit effektiv zum  $^{242}\text{Am}$  weiter.

**Berechnung des Abbrands** In Kernbrennstoffproben unbekannter Herkunft ist die Bestimmung des Abbrands über Betriebsleistung und -dauer des Reaktors nicht möglich. Dennoch ist der Abbrand eine wichtige Kenngröße, da sie Informationen über den ursprünglichen Kernreaktor liefert und den Vergleich mit Referenzwerten aus der Literatur erlaubt.

Die soeben beschriebenen Veränderungen der Isotopenverhältnisse des Kernbrennstoffs können jedoch ausgenutzt werden, um den Abbrand einer unbekannt Probe abzuschätzen. So verwendeten Makarova et al. die Konzentrationen der Isotope  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{145+146}\text{Nd}$  und  $^{148}\text{Nd}$ , um über die bekannten Spaltausbeuten den Anteil der gespaltenen Atome zu berechnen [38].

Für Umweltproben aus der Sperrzone Tschernobyls (CEZ) wurde von Mironov et al. eine Methode entwickelt, welche dem Verhältnis der Uranisotope  $^{238}\text{U}$  ( $p_{238}$ ) und  $^{236}\text{U}$  ( $p_{236}$ ) einen Abbrand ( $B$  in g/kgU) nach Gleichung 2.6 zuordnet [40].

$$B = \left( \frac{1}{4180} \frac{p_{238}}{p_{236}} \right)^{\frac{-1}{0,817}} \quad (2.6)$$

Die Unsicherheit ergibt sich direkt aus den Unsicherheiten der relativen Anteile zu:

$$\begin{aligned} u^2(B) &= \sum_k \left( \frac{\partial}{\partial x_k} B(x) \right)^2 u^2(x_k) \\ &= \left( \frac{1}{4180 \cdot 0,817} \left( \frac{p_{238}}{p_{236}} \frac{1}{4180} \right)^{\frac{-1,817}{0,817}} \right)^2 u_{abs}^2 \left( \frac{p_{238}}{p_{236}} \right) \end{aligned} \quad (2.7)$$

Um die Berechnungsmethode zu überprüfen, wurde sie mit den Abbränden von Makarova et al. verglichen. Abbildung 2.5 links zeigt eine gute Übereinstimmung zwischen theoretischer Berechnung durch Mironov et al. und den gemessenen Werten. Aus dem von Makarova et al. bestimmten Uranisotopenverhältnis wurde der Abbrand mit Gleichung 2.6 neu berechnet und mit den Originalwerten verglichen. Abbildung 2.5 rechts zeigt ebenfalls eine gute Übereinstimmung beider Methoden für den in Tschernobyl verwendeten Kernbrennstoff von 2% Anreicherung. Die Abschätzung des Abbrands durch die Uranisotopenverhältnisse wird deshalb als valide angenommen.

## 2. Kernbrennstoff

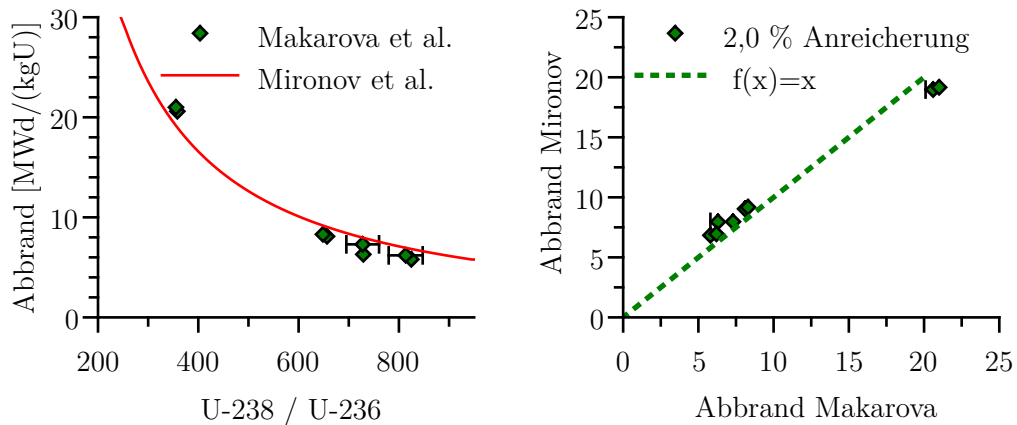


Abbildung 2.5.: Vergleich der durch Makarova et. al. gegebenen Abbrände gegen die aus dem  $^{238}\text{U}/^{236}\text{U}$ -Verhältnis errechneten. Die von Mironov et. al. gegebene Berechnungsmethode liefert vergleichbare Werte.

### 2.3. Messmethoden

Die diskutierte Bestimmung des Abbrands ist dabei nur ein Beispiel, in dem die Isotopenverhältnisse ausgewählter Elemente eine Schlüsselrolle spielen. So kann über den Anteil von spaltbarem  $^{235}\text{U}$  bzw.  $^{239}\text{Pu}$  bestimmt werden, ob es sich um waffenfähiges Material handelt [41]. Die Plutoniumisotopenverhältnisse insgesamt geben Aufschluss über die erfahrene Neutronenfluenz und das Neutronenspektrum, was wiederum Rückschlüsse auf den Ursprungsreaktor der Probe zulässt [42]. Weiterhin kann über den Zerfall von  $^{241}\text{Pu}$  zu  $^{241}\text{Am}$  eine Abschätzung des Probenalters vorgenommen werden [43].

Konventionelle Methoden der Materialanalyse wie energiedispersive Röntgenspektroskopie (EDX) sind in der Lage, die elementare Zusammensetzung einer Probe zu bestimmen, nicht aber die jeweilige Isotopenverteilung [18]. Die verfügbaren Messmethoden zur Bestimmung einzelner Isotope können grob in zwei verschiedene Gruppen eingeteilt werden.

Die Erste beschränkt sich auf die Detektion radioaktiver Zerfälle von instabilen Isotopen. Da die Zerfallsenergien des Alpha- und Gammazerfalls diskret sind, können die Signale durch einen energieauflösenden Detektor einem Isotop zugeordnet werden. Aus der Anzahl der gemessenen Zerfälle ergibt sich die in der Probe vorhandene Menge des Isotops. Der Erfolg dieser Methode ist jedoch stark von der jeweiligen Halbwertszeit abhängig.

Damit statistisch signifikant viele Zerfälle gezählt werden, wird eine ausreichend hohe Konzentration des Isotops in der Probe benötigt und die Halbwertszeit muss hinreichend kurz sein. Die Alphazerfälle von  $^{238}\text{Pu}$  mit 87,7 a oder  $^{244}\text{Cm}$  mit 18,11 a

sind zwei Beispiele, die mittels Alphaspektrometrie gut nachweisbar sind. Die geringe Reichweite von Alphastrahlung und die damit verbundene Selbstabsorption der Alphateilchen in der Probe verlangt eine aufwendige Probenvorbereitung. So müssen feste Proben zunächst aufgelöst und anschließend mittels Elektrodeposition als dünne Schicht auf einem Probenträger aufgebracht werden. Dieses Verfahren ist zeitaufwendig und zerstört zwingend die ursprüngliche Probe.

Gammastrahlung ist deutlich durchdringender, sodass das Auflösen und die Elektrodeposition nicht notwendig sind und die Probe intakt vermessen werden kann. Des Weiteren ist die Gammaspktrometrie nicht auf Isotope mit Alphazerfall limitiert. Auch Spaltprodukte wie  $^{137}\text{Cs}$  und  $^{154}\text{Eu}$  senden nach einem Beta-Minus-Zerfall detektierbare Gammaquanten aus, sodass diese Methode in Kapitel 6 besprochen und verwendet wird.

Es besitzen jedoch nicht alle Actinide messbare Gammastrahlung. Entweder weil die Energie und Emissionswahrscheinlichkeit zu gering ist ( $^{240}\text{Pu}$  bei 45,2 keV zu 0,0447 %) oder weil das Isotop direkt in den Grundzustand des Tochterkerns zerfällt und keine Gammastrahlung emittiert ( $^{241}\text{Pu}$  zu 99,998 %).

Stabile oder besonders langlebige Isotope wie  $^{238}\text{U}$  ( $4 \cdot 10^9$  a) sind in abgebranntem Kernbrennstoff mit dieser Methode gar nicht oder nur mit großem instrumentellem Aufwand messbar.

### 2.3.1. Massenspektrometrie

Um diese Isotope zu messen, wird die zweite grundsätzliche Messmethode benötigt. Anstatt des radioaktiven Zerfalls, wird in der **Massenspektrometrie** ein Atom oder Molekül als geladenes Ion detektiert. Genauer wird das Masse-zu-Ladungs-Verhältnis  $m/z$  eines Ions bestimmt.

In den letzten 100 Jahren wurden verschiedenste Massenspektrometer entwickelt [44]. Das grundlegende Funktionsprinzip ist jedoch gleich.

Ein Gemisch aus generierten Ionen unterschiedlicher Massen und Ladungen der Probe wird durch elektromagnetische Felder beschleunigt. In Abhängigkeit ihres Masse-zu-Ladungs-Verhältnisses bewegen sie sich folglich auf unterschiedlichen Trajektorien und werden räumlich und/oder zeitlich voneinander getrennt. Anschließend wird das zeit- bzw. ortsabhängige Ionensignal detektiert. Die aufgezeichnete Signalintensität in Abhängigkeit des Masse-zu-Ladungs-Verhältnisses wird **Massenspektrum** genannt. Je nach Ionisationsmethode, ist die Ladung  $z$  der generierten Ionen bekannt und die Signale im Spektrum können direkt einer Ionenmasse zugeordnet werden.

Um die Isotopenzusammensetzung der Actinide von Kernbrennstoff zu bestimmen, wird oft auf eine Kombination aus verschiedenen Messmethoden gesetzt. So wurden die für diese Arbeit verwendeten Referenzwerte von Makarova et al. aus Alphaspektrometrie, Gammaspktrometrie und induktiv gekoppelter Plasma-Massenspektrometrie (ICP-MS) gewonnen [38]. Bei niedrigkonzentrierten Umweltproben wird eine Kombination von Alphaspektrometrie und Beschleuniger-Massenspektrometrie (AMS) verwendet [45, 46]. Diese Verfahren sind zum einen zeitaufwendig, zum anderen zerstören sie die Probe im Zuge der nötigen chemischen Vorbereitung. Insbeson-

## 2. Kernbrennstoff

dere wird jedoch eine gewisse Mindestmenge an Probenmaterial benötigt, um die Probenvorbereitung überhaupt durchführen zu können.

### 2.3.2. Hot Particles

Die geringe Probenmenge radioaktiver Partikel im Mikrometerbereich beschränkt die verfügbaren Messmethoden deutlich.

Auf zerstörungsfreier Röntgenstrahlung basierende Methoden sind in der Lage, Messungen von individuellen Partikeln vorzunehmen. Aufgrund unvollständiger Isotopeninformationen fokussieren sie sich hauptsächlich auf die Elementverteilung und Bestimmung der Oxidationsstufen innerhalb des Partikels [14, 47, 13].

Gammasspektrometrische Messungen können einzelne Isotope wie  $^{241}\text{Am}$  quantifizieren, sind aber anfällig für Interferenzen im niederenergetischen Bereich [48, 49].

Massenspektrometrische Untersuchungen von individuellen Partikeln mit chemischer Vorbehandlung wurden aufgrund des hohen Aufwandes nur vereinzelt durchgeführt. Verwendet wurde hier die ICP-MS [50] oder die Thermionen-Massenspektrometrie (TIMS) [43]. Im Zuge der Messung wird die Probe dabei jedoch zerstört.

Größere Partikel von 200  $\mu\text{m}$  bis 1000  $\mu\text{m}$  können mit Laserablations-ICP-MS ohne chemische Probenvorbereitung analysiert werden [51]. Diese Methode hat jedoch eine größere Ortsunschärfe und erhöhten Probenkonsum, sodass sie für Partikel im unteren Mikrometerbereich nicht geeignet ist.

Die bestgeeignete Messmethode, welche ohne aufwendige Probenvorbereitung kleinste Partikel analysieren kann, ist die Sekundärionen-Massenspektrometrie (**SIMS**). Sie findet routinemäßig in verschiedensten Gebieten der Partikelanalyse Verwendung [52, 53, 54, 16]. Für einen detaillierteren Vergleich weiterer Messmethoden wird auf die Literatur verwiesen [55].

### 2.3.3. Sekundärionen-Massenspektrometrie

Die SIMS ist eine ortsauflösende Messmethode, welche Massenspektren der obersten Atomschichten von festen Proben ohne chemische Vorbehandlung erzeugt [56]. Die Funktionsweise der in dieser Arbeit verwendeten *TOF.SIMS 5 (Iontof GmbH)* wird im folgenden Abschnitt genauer betrachtet. Ihre einzigen Anforderungen an das Probenmaterial sind Vakuumfestigkeit unter dem Messkammerdruck von  $1 \cdot 10^{-10}$  mbar, sowie eine Fixiermöglichkeit auf einem Probenträger. Abbildung 2.6 zeigt das Messprinzip der SIMS. Die feste Probe wird in die Messkammer eingebracht und befindet sich auf einer positionierbaren Messplattform. Eine Primärionenquelle erzeugt einen fein fokussierten Ionenstrahl aus Bismutionen (gelb). Er wird gepulst mit bis zu 30 kV auf die Probenoberfläche beschleunigt. Durch die auftreffenden Ionenpulse werden geringe Mengen an Atomen und Molekülen aus der obersten Probenschicht herausgelöst (engl. sputtern).

Im Anhang A.1 sind zwei REM Aufnahmen des Partikels *CP-025* vor und nach etwa 50 Stunden kombinierter Messdauer verteilt über 2,5 Jahre gezeigt. Es sind erste Abtragungen an der Probenoberfläche durch die Primärionen zu erkennen.



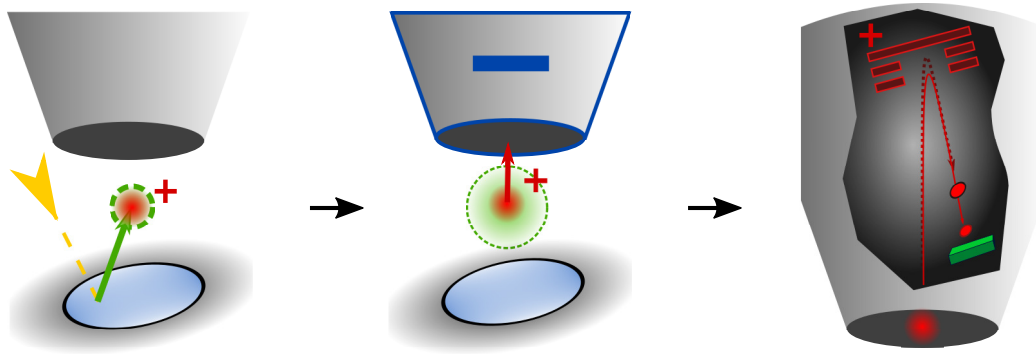


Abbildung 2.6.: Prinzip der ToF-SIMS. *links*: Ein gepulster Primärionenstrom rastert über die Probenoberfläche. Dabei werden aus den obersten Atom- und Molekülschichten Atome und Moleküle aus der Probe gelöst. *Mitte*: Die entstandene Wolke aus neutralen Teilchen (grün) und sekundären Ionen (rot) expandiert über der Probe. An den Extraktor wird eine negative Spannung angelegt, wodurch Kationen in den Analysator beschleunigt werden. *rechts*: Sie durchfliegen den Analysator und werden vom Reflektor auf einen Detektor gelenkt. Je nach Masse-zu-Ladungs-Verhältnis haben die Ionen unterschiedliche Flugzeiten und werden nacheinander detektiert.

Da normale Messzeiten deutlich unter 5 Stunden liegen, ist der Probenkonsum bei Einzelmessungen vernachlässigbar und die Methode kann als quasi-zerstörungsfrei betrachtet werden.

Die aus der Probe geschlagenen Atome und Moleküle bilden eine Wolke über dem Einschlagsort der Primärionen. Sie enthält neutrale, sowie positiv und negativ geladene Ionen (rot) welche als Sekundärionen (SI) bezeichnet werden. Der Sputterprozess der SIMS erzeugt hauptsächlich einfach geladene Ionen, sodass ab hier  $z = 1$  festgelegt wird und Ionenmasse  $m$  und Masse-zu-Ladungs-Verhältnis ( $m/z$ ) gleichbedeutend sind. Der Anteil an Ionen liegt typischerweise bei nur 1% aller erzeugten sekundären Teilchen, während 99% ungeladenen sind.

Im folgenden Analyseschritt (Abbildung 2.11 Mitte) wird über der Ionenwolke eine Extraktionsspannung  $U$  angelegt, welche die Ionen in einen feldfreien Raum beschleunigt. Die erreichte Geschwindigkeit der Ionen  $v_i$  hängt von ihrer Masse  $m_i$  und ihrer Ladung  $ze$  gemäß Gleichung 2.8 ab.

Das einfach geladene ( $ze = 1 \text{ eV}$ )  $^{238}\text{U}^+$  ( $m \approx 238 \text{ u}$ ) wird beispielsweise bei einer typischen Extraktionsspannung von 10 kV auf  $89\,998 \text{ m s}^{-1}$  beschleunigt.

$$v_{238} = \sqrt{\frac{2zeU}{m_{238}}} = \sqrt{\frac{2 * 1,6 \cdot 10^{-19} \text{ C} * 10 \text{ kV}}{238 * 1,66 \cdot 10^{-27} \text{ kg}}} = 89\,998 \text{ m s}^{-1} \quad (2.8)$$

Anschließend erfolgt die Trennung der Ionen in einem Flugzeitanalysator (engl. time-of-flight (ToF) Abbildung 2.6 rechts).

## 2. Kernbrennstoff

Da alle Geräteparameter für die Ionen gleichbleiben, besitzen Ionen unterschiedlicher Masse und Ladung unterschiedliche Flugzeiten bis zum Detektor (grün). Dieser registriert abschließend die zeitversetzten Ionensignale und generiert auf diese Weise ein Massenspektrum.

Da der Primärionenstrahl auf 80 nm fokussiert über die Probe gerastert werden kann, entsteht zu jedem beschossenen Pixel der Probe ein eigenes Massenspektrum. Diese Ortsinformationen kann in einer *Landkarte* (engl. Ionmap) ausgewertet werden. Somit wird zusätzlich zum Massenspektrum auch der Herkunftsort der Ionen registriert. Eine wichtige Leistungsangabe aller Massenspektrometer ist die Massenauflösung  $R$ . Sie gibt an, welche Massenunterschiede  $\Delta m$  von dem Gerät bei einer Masse  $m$  noch als getrennte Signale verarbeitet werden können.

$$R = \frac{m}{\Delta m} \quad (2.9)$$

Für Ionen der Masse 238 und 239 liegt die Flugzeitdifferenz nach 2 m Flugstrecke bei gut trennbaren 46,6 ns. Der *TOF.SIMS 5* Detektor besitzt eine zeitliche Auflösung von 50 ps. Dennoch wird die daraus rein rechnerisch resultierende, sehr hohe Massenauflösung nicht erreicht. Real detektierte Massenspektren besitzen Signale (engl. Peaks) eines Isotops über einen deutlich ausgedehnteres Zeitintervall. Die realistisch erreichbare Massenauflösung der *TOF.SIMS 5* ist auf  $R = 12000$  limitiert. Dies ist ausreichend, um die nominellen Massen voneinander getrennt zu detektieren.

Dies liegt zum einen an der Proben topografie. Ionen von einer erhöhten Stelle der Probe müssen weniger Flugstrecke zum Detektor zurücklegen als Ionen derselben Masse von einem tiefer liegenden Punkt. Der Primärionenstrahl ist in der Lage eine Fläche von  $500 \mu\text{m} \times 500 \mu\text{m}$  abzurastern. Höhenunterschiede in diesem Gebiet führen somit zur Verbreiterung des aufgezeichneten Massenpeaks.

Zum anderen sind die unterschiedlichen Startenergien der Ionen vor der Beschleunigung ein wichtiger Punkt. Die kinetische Energie der Sekundärionen nach dem Sputterprozess folgt einer Energieverteilung. Ionen gleicher Masse bewegen sich als dispergierendes Ionenpaket durch den Analysator. Das ausgedehnte Paket besitzt somit auch eine endliche Auftretdauer auf dem Detektor. Um diesen Effekt zu minimieren, besitzt der Flugzeitanalysator ein Reflektron.

Nach etwa 1,5 m Flugstrecke treffen die Ionen auf eine ringförmige Kaskade von geladenen Elektroden in der sie um fast  $180^\circ$  reflektiert werden. Dadurch erhöht sich erstens die Flugstrecke und zweitens wird die Energiedispersion abgebaut. Ionen mit höherer Anfangsenergie dringen tiefer in das Reflektron ein und müssen somit mehr Strecke zurücklegen als niederenergetische. Die reflektierten hochenergetischen Ionen besitzen einen Fokuspunkt mit den niederenergetischen Ionen gleicher Masse. Dort besitzt das Ionenpaket minimale räumliche Ausdehnung und wird vom Detektor registriert. Da dieser an einer festen Position im Flugzeitanalysator montiert ist, wird die Feinabstimmung über die eingestellten Spannungen der Ionenoptiken im Analysator durchgeführt.

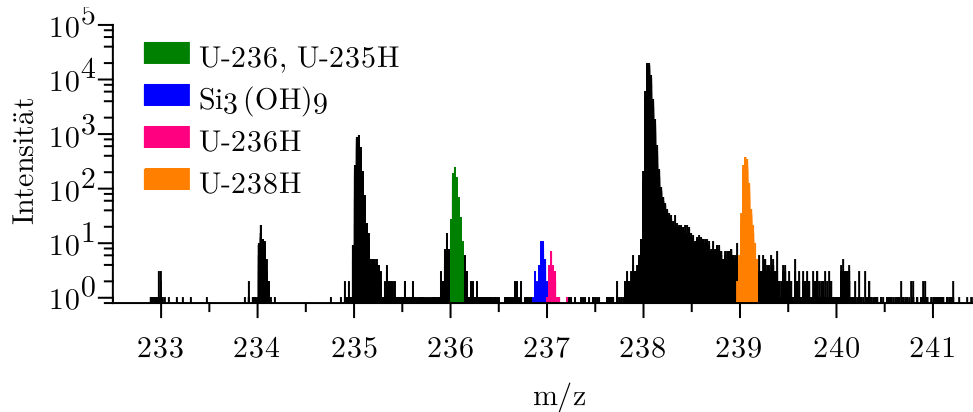


Abbildung 2.7.: SIMS Spektrum der Referenzprobe IRMM-2029. Zu erkennen sind die erwarteten Signale auf den Massen von  $^{234}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{236}\text{U}$  und  $^{238}\text{U}$ , sowie ihre Hydride. Auch unter Laborbedingungen hergestellte Proben weisen geringe Mengen an Siliziumverbindungen auf.

**Referenzmessung** Abbildung 2.7 zeigt einen Ausschnitt eines SIMS Massenspektrums bei optimierter Massenauflösung von  $R = 8000$ . Die detektierten Signale der einzelnen Massen lassen sich klar voneinander trennen. Das Untergrundsignal zwischen den einzelnen Peaks ist auf einzelne Counts beschränkt.

Die analysierte Probe wurde im Rahmen der Masterarbeit von Paul Hanemann hergestellt und enthält die zertifizierten Isotopenverhältnisse der IRMM-2029 Referenzlösung (*European Commission, Joint Research Centre*) (Anhang Tabelle A.2). Mit ihr sollen mögliche systematische Abweichungen der SIMS bei der Partikelanalyse untersucht werden. Aus diesem Grund wurde die Probe in vergleichbarer Geometrie als Partikel hergestellt und montiert. Eine detaillierte Beschreibung der Herstellung ist in der entsprechenden Masterarbeit zu finden [26]. Neben den erwarteten Signalen von  $^{234}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{236}\text{U}$  und  $^{238}\text{U}$  auf ihren entsprechenden Massen sind weitere Peaks vorhanden. Zum einen handelt es sich um Hydridverbindungen des Urans, die sich während des Sputterprozesses bilden [16, 57]. Die entsprechenden Moleküle aus Wasserstoff und Uran sind um eine Massenzahl zum elementaren Uran verschoben und liegen somit im Signalbereich des nächsthöheren Isotops.

Zum anderen sind Verbindungen aus Silicium (zb.  $\text{Si}_3(\text{OH})_9$ , blau) zu erkennen. Da die exakte Masse unterhalb der nominellen Masse liegt, ist es möglich, durch Optimierung der Massenauflösung ihr Signal teilweise von den Uranisotopen zu trennen.

Diese Moleküle sind in der Umwelt omnipräsent und auch bei im Labor hergestellten Proben zu finden. Sie haften an der Probenoberfläche und sind nur schwer komplett zu unterdrücken. Eine noch höhere Massenauflösung ist bei der gegebenen Probengeometrie in Kombination mit dem verwendeten Flugzeitanalysator nicht erreichbar. Aus der Anzahl der gemessenen Ionen eines Peaks lassen sich nun die Isotopenverhältnisse der Probe berechnen.

## 2. Kernbrennstoff

**Isotopenverhältnisse und Unsicherheiten** Da es sich um eine Zählung von individuellen Ionen handelt, werden die Unsicherheiten aus der Zählstatistik berechnet [58, 59].

Die gemessenen Ionen innerhalb eines  $m/z$ -Intervalls ( $n_{\text{Brutto}}$ ) müssen um die Zählrate des Messuntergrunds ( $n_{\text{Untergrund}}$ ) reduziert werden. Die resultierende Nettozählrate ( $n_{\text{Netto}}$ ) ist Ausgangspunkt aller weiteren Berechnungen.

Die Untergrundzählrate bei SIMS Messungen ist nur bedingt abschätzbar, da kein kontinuierliches Hintergrundspektrum vorhanden ist. Sie beschränkt sich somit auf den Maschinenhintergrund des  $m/z$ -Intervalls. Etwaige zusätzliche Interferenzen innerhalb des ausgewerteten Peaks können nicht bestimmt werden.

$$n_{\text{Netto}} = n_{\text{Brutto}} - n_{\text{Untergrund}} \quad (2.10)$$

Die Unsicherheiten der Zählraten sind gegeben durch die Wurzel der Zählereignisse  $n$ .

$$u(n_{\text{Brutto}}) = \sqrt{n_{\text{Brutto}}} \quad (2.11)$$

$$u(n_{\text{Untergrund}}) = \sqrt{n_{\text{Untergrund}}} \quad (2.12)$$

$$u(n_{\text{Netto}}) = \sqrt{n_{\text{Brutto}} + n_{\text{Untergrund}}} \quad (2.13)$$

Der relative Anteil eines Isotops ( $p_i$ ) ergibt sich aus dem Verhältnis seiner Nettozählrate zur Summe aller Nettocounts.

$$p_i = \frac{n_{i,\text{Netto}}}{\sum n_{\text{Netto}}} \quad (2.14)$$

Die Unsicherheit der relativen Isotopenanteile ergibt sich zu:

$$\begin{aligned} u^2(p_i) &= \sum_{k=1} \left( \frac{\partial}{\partial x_k} p_i \right)^2 u^2(x_k) \quad (2.15) \\ &= \frac{(\sum n_{\text{Netto}} - n_{i,\text{Netto}})^2}{(\sum n_{\text{Netto}})^4} u^2(n_{i,\text{Netto}}) + \frac{(-n_{i,\text{Netto}})^2}{(\sum n_{\text{Netto}})^4} \left( -u^2(n_{i,\text{Netto}}) + \sum_j u^2(n_j) \right) \end{aligned}$$

Die relative Unsicherheit des Isotopenanteils ( $u_{\text{rel}}(p_i)$ ) ergibt sich zu:

$$u_{\text{rel}}(p_i) = \frac{u(p_i)}{p_i} \quad (2.16)$$

Die Unsicherheit des Verhältnisses von zwei Isotopen folgt direkt aus den relativen Unsicherheiten der einzelnen Isotopenanteile ( $u_{\text{rel}}(p_i)$ ).

$$u_{\text{rel}}^2 \left( \frac{p_i}{p_j} \right) = u_{\text{rel}}^2(p_i) + u_{\text{rel}}^2(p_j) \quad (2.17)$$

Ist das Isotopenverhältnis der gemessenen Probe bekannt, kann die Abweichung zu den referenzierten Anteilen mit Formel 2.18 angegeben werden.

$$x_i = \frac{p_{i,\text{mess}}}{p_{i,\text{ref}}} - 1 \quad (2.18)$$

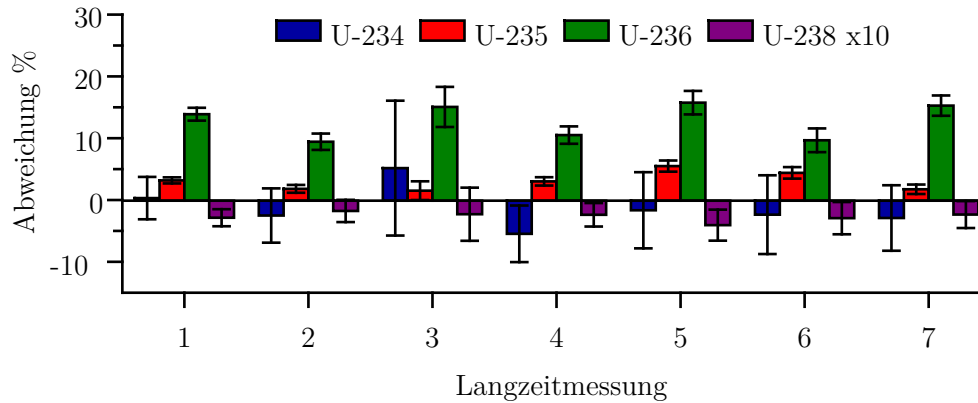


Abbildung 2.8.: SIMS Isotopenverhältnisse der Uranreferenzlösung. Aufgetragen ist die Abweichung gemäß 2.18. Bei allen Messungen werden die Anteile der Isotope  $^{235}\text{U}$  und  $^{236}\text{U}$  überschätzt, während  $^{238}\text{U}$  unterschätzt wird. Zur besseren Darstellung wurden alle Werte des Hauptisotops  $^{238}\text{U}$  in der Abbildung verzehnfacht.

**Abschätzung der Hydridbildung** Aus dem Massenspektrum des Referenzpartikels wurden die Uranisotopenanteile bestimmt und gemäß Gleichung 2.18 ihre Abweichung berechnet. Insgesamt sieben verschiedene SIMS Messungen mit unterschiedlichen Ortsauflösungen, Messzeiten und Messfenstern wurden ausgewertet (Abbildung 2.8). Alle sieben Messungen zeigen vergleichbare Abweichungen zu den zertifizierten Anteilen. So werden die Anteile von  $^{235}\text{U}$  und  $^{236}\text{U}$  überschätzt, während  $^{238}\text{U}$  unterschätzt wird. Da die relative Abweichung des Hauptisotops  $^{238}\text{U}$  sehr gering ist, wurden die Werte in der Abbildung zur besseren Sichtbarkeit verzehnfacht.  $^{234}\text{U}$  ist in der Probe nur in Spuren enthalten und die entsprechend geringe Zählstatistik führt zu hohen Messunsicherheiten. Eine systematische Abweichung ist nicht erkennbar.

Hauptverantwortlich für die Abweichungen ist die Hydridbildung. Die Ionen von  $^{234}\text{UH}$  werden zum Signal von  $^{235}\text{U}$  und  $^{235}\text{UH}$  zum Signal von  $^{236}\text{U}$  gezählt. Die Hydride  $^{236}\text{UH}$  und  $^{238}\text{UH}$  hingegen werden auf  $m/z$  237 und  $m/z$  239 detektiert.

Da für die Berechnung der Isotopenverhältnisse ausschließlich Peaks auf ihren entsprechenden Massen ausgewertet werden, ergibt sich dadurch eine systematische Überschätzung der  $^{235}\text{U}$ - und  $^{236}\text{U}$ -Anteile.

Aus den Hydridpeaks auf  $m/z$  237 und  $m/z$  239 lässt sich der Anteil der gebildeten Hydridfraktion abschätzen. Er liegt je nach Messung im Bereich zwischen 1,82(2) % und 2,62(3) % des elementaren Urans. Mit dieser Information ist es möglich, die Hydride auf  $m/z$  235 und  $m/z$  236 zu berücksichtigen und die Peakhöhe entsprechend anzupassen. Dadurch ergeben sich korrigierte Isotopenverhältnisse, welche insbesondere die Interferenz von  $^{235}\text{UH}$  im  $^{236}\text{U}$ -Anteil bereinigen (Abbildung 2.9). Dieses Hydridmonitoring wird routinemäßig bei Uranmessung mittels SIMS angewandt [57]. Die übrigen Abweichungen, welche außerhalb der statistischen Zählunsicherheit liegen, lassen nur noch wenig Systematik erkennen. Es ist anzunehmen, dass

## 2. Kernbrennstoff

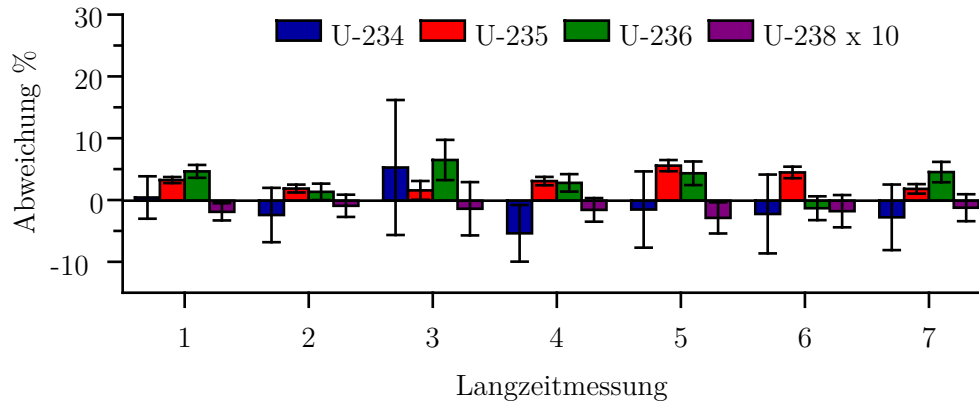


Abbildung 2.9.: Ausgehend vom Peak bei  $m/z$  239 wurde der jeweilige Anteil an hydratisiertem Uran in jeder der in 2.8 dargestellten Messungen bestimmt. Anschließend wurde dieser Anteil aus den entsprechenden Peaks herausgerechnet. Im direkten Vergleich kann somit die Überhöhung von  $^{236}\text{U}$  durch  $^{235}\text{UH}$  erklärt werden. Es bleiben nur noch geringe Abweichungen zum Referenzwert über.

geringe molekulare Interferenzen auf den jeweiligen Massen für die Abweichungen verantwortlich sind. Besonders anfällig hierfür sind Isotope mit geringer Konzentration wie  $^{234}\text{U}$  und  $^{236}\text{U}$ , da schon ein schwaches Hintergrundsignal zu signifikanten Überschätzungen ihres Anteils führt.

Zusammenfassend bleibt, dass aufgrund der Hydridbildung eine exakte Bestimmung der Isotopenverhältnisse nur bedingt möglich ist. Befindet sich auf  $m/z$  237 oder  $m/z$  239 keine Interferenz, kann der Hydridanteil abgeschätzt und die Ergebnisse mit guter Genauigkeit korrigiert werden. Eine pauschale Korrektur des Hydridanteils ist nicht möglich, da die Bildung von Hydrid je nach Probenmatrix und Messdauer unterschiedlich ist [57]. Selbst bei den hier ausgeführten Messungen, welche alle von derselben Probe stammen, variierte der Hydridanteil um den Faktor 1,5 und es wird eine individuelle Korrektur jeder Messung benötigt.

**SIMS Messung an abgebranntem Kernbrennstoff** Das beschriebene Hydridmonitoring mittels  $^{236}\text{UH}$  auf  $m/z$  237 oder  $^{238}\text{UH}$  auf  $m/z$  239 ist bei abgebranntem Kernbrennstoff nicht möglich. Beide Massenintervalle besitzen mit  $^{237}\text{Np}$  und  $^{239}\text{Pu}$  langlebige, nicht vernachlässigbare isobare Interferenzen. Abbildung 2.10 zeigt das SIMS Massenspektrum eines abgebrannten Brennstoffpartikels. Wie auch bei dem Referenzpartikel in Abbildung 2.7 sind die langlebigen Uranisotope und ihre Hydride zu erkennen.

Zusätzlich sind jedoch noch weitere Signale bei  $m/z$  240 und  $m/z$  241 vorhanden, welche den Brutprodukten Plutonium und Americium zuzuordnen sind. Keines dieser minoren Actinide kann isoliert gemessen werden, da es zu einer Vielzahl an isobaren Interferenzen kommt.

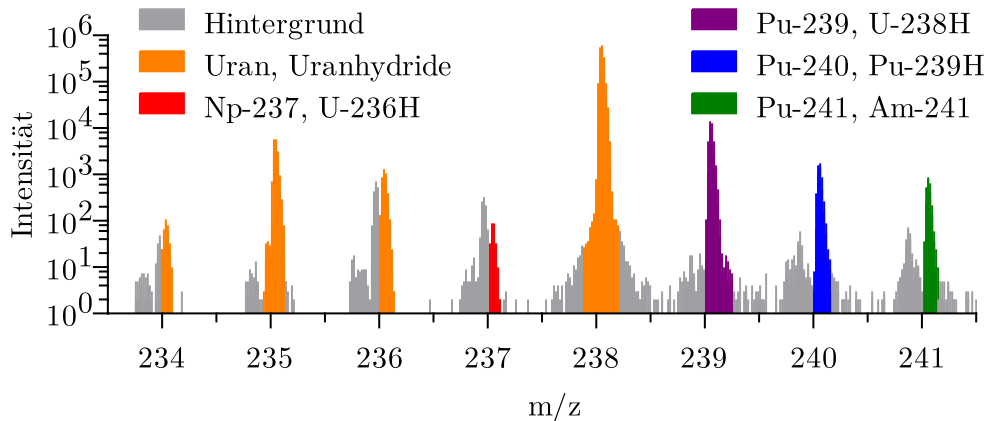


Abbildung 2.10.: Das SIMS Spektrum eines hot particles zeigt die Limitierungen der konventionellen SIMS. Neben den markierten Actiniden sind weitere Ionen von Silicaten und Kohlenstoffverbindungen in grau als Hintergrund zu erkennen. Da ihr Einfluss auf den ausgewerteten Massenbereich nicht exakt abgeschätzt werden kann, verhindern sie die Analyse von niedrig konzentrierten Isotopen.

Zwar besitzen Isobare wie  $^{238}\text{U}$  zu  $^{238}\text{Pu}$  eine geringe Massendifferenz von 1,228 mu, die benötigte Massenauflösung von  $R > 200000$  für getrennte Signale ist technisch aber nur schwer zu erreichen. Des Weiteren sind diese Isotope in sehr unterschiedlichen Konzentrationen in Kernbrennstoff vorhanden [38], was eine direkte massenspektrometrische Bestimmung beider Isotope deutlich erschwert.

Ferner sind in dem Spektrum 2.10 auch nach dem Abtragen der obersten Atom-schicht weiterhin geringe Mengen von Silikaten und Kohlenstoffverbindungen (grau) vorhanden. Isotope mit sehr geringen Zählraten wie  $^{234}\text{U}$  oder  $^{243}\text{Am}$  sind anfällig für dadurch hervorgerufene Hintergrundsignale.

Die konventionelle SIMS ist somit nicht geeignet, um Isotopenverhältnisse höherer Elemente wie Plutonium oder Americium in abgebranntem Kernbrennstoff zu messen. Die Analyse von Uran besitzt einen geringen systematischen Fehler, der den  $^{236}\text{U}$ -Anteil überschätzt, kann jedoch als bedingt geeignet angesehen werden.

## 2.4. Sekundär-Neutralteilchen-Massenspektrometrie

Um das offensichtliche Problem der gemeinsamen Detektion isobarer Ionen in der Massenspektrometrie zu verhindern, existieren mehrere Ansätze.

Handelt es sich um eine Probe von einigen Gramm, so ist die chemische Trennung der Elemente vor der Messung das etablierte Standardverfahren. Die zu untersuchende Probe wird dabei aufgelöst und in verschiedene Fraktionen getrennt. Bei abgebranntem Kernbrennstoff wird diese chemische Trennung der Actinide großtechnisch per PUREX-Prozess [60] und im Labormaßstab mit Anionenaustauscherharzen [61]

## 2. Kernbrennstoff

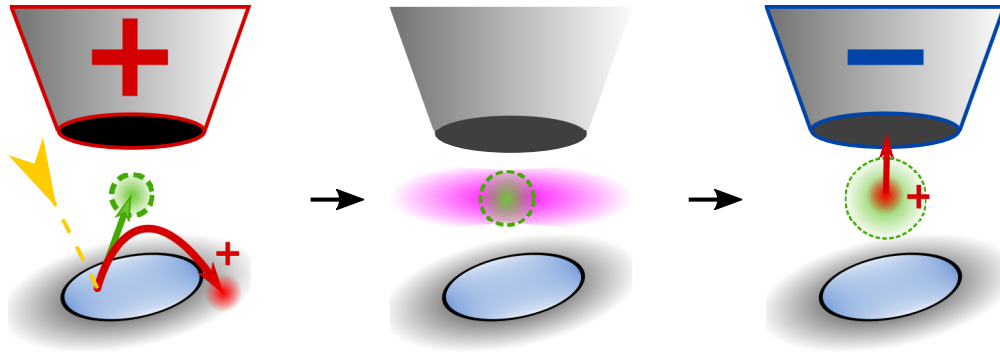


Abbildung 2.11.: *links*: Der Primärionenpuls (gelb) wird über die Probenoberfläche gerastert. Dabei werden Sekundärionen (rot) und sekundäre neutrale Atome (grün) aus der Oberfläche geschlagen. Im Gegensatz zur SIMS werden die Sekundärionen durch eine Gegenspannung am Extraktor aus der Atomwolke entfernt. *Mitte*: In die ungeladene Atomwolke werden zeitgleich die Laserpulse fokussiert und je nach gewählter Wellenlänge gezielt einzelne Elemente ionisiert. *rechts*: Die erzeugten Ionen werden analog zur SIMS mit dem Flugzeitanalysator gemessen.

durchgeführt. Die einzelnen Fraktionen können anschließend größtenteils frei von isobaren Interferenzen gemessen werden.

Einige Massenspektrometer bieten direkt Optionen zur Unterdrückung isobarer Interferenzen ohne vorangegangenes chemisches Trennverfahren. So können innerhalb der ICP-MS mittels Kollisionsgasen gezielt Atome eines Elements in Moleküle umgewandelt und so in ihrem  $m/z$ -Wert verschoben werden [62]. Für die Uran-Plutonium Kombination können mit  $\text{CO}_2$  als Reaktionsgas Unterdrückungen von 1 zu 1000 erreicht werden [63].

Bei der TIMS kann durch schrittweises Erhöhen der Heizleistung eine Unterdrückung von etwa einer Größenordnung erreicht werden [64]. Hier wird die Eigenschaft ausgenutzt, dass Uran bei niedrigerer Temperatur Ionen bildet als Plutonium.

Beide Verfahren zerstören zwingend die Probe im Messprozess und geben keine Informationen über die Isotopenverteilung innerhalb der Probe. Sind diese Messaspekte, wie in dieser Arbeit, von erhöhter Relevanz, wird die Sekundär-Neutralteilchen-Massenspektrometrie (**SNMS**) verwendet. Es handelt sich um eine modifizierte SIMS, welche die erzeugten neutralen Teilchen zur weiteren Analyse nutzt. Abbildung 2.11 zeigt das Messverfahren analog zur konventionellen SIMS in Abbildung 2.6. Der Primärionenstrahl bleibt unverändert, und es werden weiterhin Sekundärionen und neutrale Teilchen von der Probenoberfläche abgetragen. Im Gegensatz zur SIMS liegt bei der SNMS eine positive Spannung von 500 V am Extraktor an, welche die generierten Ionen direkt aus dem Messbereich entfernt (BIAS Spannung). Auf diese Weise bleibt ausschließlich eine Wolke aus neutralen Teilchen über der Probe zurück.



Als nächstes wird die BIAS Spannung abgeschaltet und mehrere Laserpulse mit präzise eingestellter Wellenlänge werden gleichzeitig in die Neutralteilchenwolke geschossen. Die neutralen Teilchen können die Laserphotonen absorbieren und bei hinreichend hoher Energie wird ein Elektron über die Ionisationsenergie angeregt und vom Atom getrennt. Die auf diese Art erzeugten Laserionen innerhalb der Neutralteilchenwolke werden analog zur konventionellen SIMS mit dem Flugzeitanalysator auf ihr Masse-Zu-Ladungs-Verhältnis analysiert. Da dieser Ionisationsprozess explizit nur ein Elektron vom Atom trennt, sind alle Ionen einfach geladen ( $z = 1$ ). Die Unterdrückung von Isobaren erfolgt nun über die gewählten Laserfrequenzen und -leistungen. Dabei wird die einzigartige Elektronenkonfiguration mit charakteristischen Energieniveaus der Elemente ausgenutzt. Im nächsten Abschnitt werden die wichtigsten Grundzüge für den Ionisationsprozess der SNMS dargestellt. Die detaillierte Beschreibung ist Gegenstand der Quantenmechanik und entsprechender Literatur zu entnehmen [65].

### 2.4.1. Resonanzionisation

Grundsätzlich muss zur Ionisation des Atoms eine Energie größer der Ionisationsenergie des jeweiligen Elements absorbiert werden. Das dazu benötigte Laserlicht wird traditionell durch die Anzahl der Schwingungen pro Zentimeter (Wellenzahl [ $\text{cm}^{-1}$ ]) anstatt Wellenlänge oder Frequenz beschrieben. So besitzt beispielsweise das Element Americium eine Ionisierungsenergie von 5,9738 eV, was Licht einer Wellenzahl von  $48\,182\text{ cm}^{-1}$  entspricht [66].

Die einfachste Möglichkeit der Ionisation ist die sogenannte nicht-resonante Nachionisation. Bei dieser Variante wird Licht eines hochenergetischen UV-Lasers mit einer Wellenzahl größer der Ionisierungsenergie verwendet. Damit führt schon die Absorption eines Photons zur Ionisation. Sie wird als nicht-resonant bezeichnet, da sie unabhängig von den Energieniveaus ist und keine Diskriminierung zwischen den Elementen durchführt. Sie wird hauptsächlich zur Erhöhung des Gesamtsignals verwendet, da so die 99% neutralen Teilchen des Sputterprozesses genutzt werden können [67, 68].

Zur gezielten Ionisation von Elementen oder einzelnen Isotopen werden die charakteristischen Energieniveaus benötigt. Hierbei wird das Laserlicht auf eine Wellenlänge eingestellt, die dem Unterschied zwischen zwei Energieniveaus eines Elementes entspricht. Durch Absorption eines Photons werden Elektronen effektiv von dem unteren Zustand in den oberen Zustand angeregt, während Elemente ohne entsprechendes Energieniveau keine Photonen absorbieren. Übergänge dieser Art können sehr effizient sein, wenn die beteiligten Energieniveaus die quantenmechanischen Auswahlregeln erfüllen. Die Ionisation unter Verwendung solcher atomarer Resonanzen wird **Resonanzionisation** genannt. Sie geht zurück auf die Arbeit von Ambartzumian und Letokhov aus dem Jahr 1971 [69]. Abbildung 2.12 stellt die verschiedenen Ionisationsmethoden am Beispiel von Americium dar. Möglichkeit a) zeigt die nicht-resonante Ionisation, welche das Elektron direkt über die Ionisierungsenergie von  $48\,182\text{ cm}^{-1}$  anregt. Sie ist in der Lage, alle Elemente und Moleküle mit einer Ionisationsenergie geringer als die Wellenzahl des Lasers zu ionisieren.

## 2. Kernbrennstoff

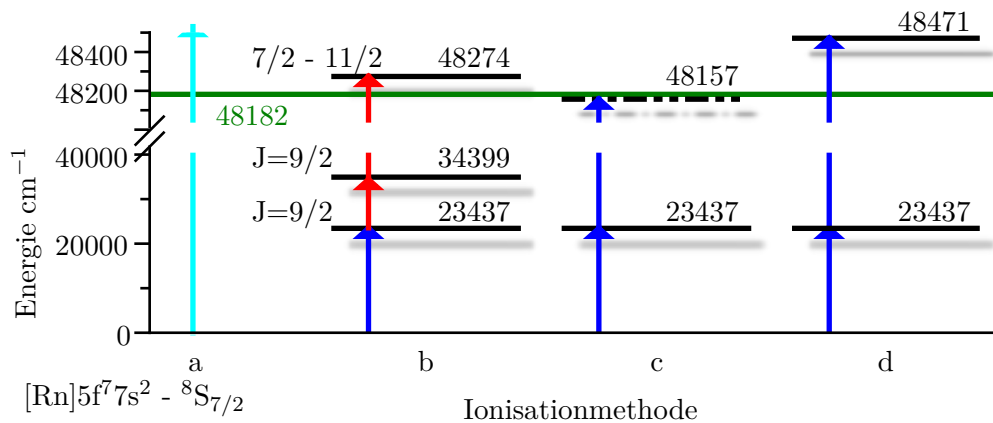


Abbildung 2.12.: Verschiedene Laserionisationen für Americium. a) nicht-resonante Ionisation mittels hochenergetischem UV Laser  $\geq$  der Ionisierungsenergie von  $48\,182\text{ cm}^{-1}$  b) dreistufige Resonanzionisation über Zwischenzustände in einen autoionisierenden Zustand. c) Zweistufige Anregungsschemata in einen Rydberg-Zustand d) oder in einen autoionisierenden Zustand.

b) zeigt die dreistufige Resonanzionisation über Zwischenniveaus mit einem Anregungsschema von Sebastian Raeder [70]. Für die Anregung aus dem Grundzustand  $[\text{Rn}]5f^77s^2 - {}^8S_{7/2}$  bei  $0\text{ cm}^{-1}$  in den ersten angeregten Zustand (engl. first excited state **FES**) bei  $23\,437\text{ cm}^{-1}$  wird Laserlicht mit  $23\,437\text{ cm}^{-1}$  ( $426,676\text{ nm}$ ) benötigt. Dies entspricht Licht im violetten Spektralbereich. Anschließend wird das Elektron vom FES in den zweiten angeregten Zustand (engl. second excited state **SES**) bei  $34\,399\text{ cm}^{-1}$  angeregt. Das benötigte Licht mit  $11\,496\text{ cm}^{-1}$  ( $869,868\text{ nm}$ ) liegt im nahen infraroten Bereich. Je nach Ionisationsenergie des Elements und den verwendeten Übergängen wird ein dritter angeregter Zustand (third excited state **TES**) benötigt.

Für den letzten Anregungsschritt, der zur Ionisation des Atoms führt, gibt es zwei effektive Varianten. Die erste besteht aus der Anregung eines zweiten Elektrons, welches seine Anregungsenergie an das erste bereits angeregte Elektron überträgt. Durch die Summe der Anregungsenergien überschreitet es die Ionisationsenergie und wird vom Atom getrennt. Das durch die Summe der Anregungsenergien gebildete Energieniveau oberhalb der Ionisierungsenergie wird **autoionisierender Zustand** genannt.

Die zweite Möglichkeit besteht aus der Anregung in einen **Rydberg-Zustand** knapp unterhalb der Ionisationsenergie. Ein Elektron in einem solchen Zustand besitzt eine sehr geringe Bindungsenergie, sodass bereits kleine Störungen wie Stoßprozesse mit anderen Atomen oder elektrische Felder zur Ionisation führen [71]. Sowohl dieser als auch die Autoionisation sind Prozesse, die eine hohe Ionisationsrate erlauben.

Die Abfolge von Anregungsschritten wird **Anregungsschema** genannt. Die zweistu-

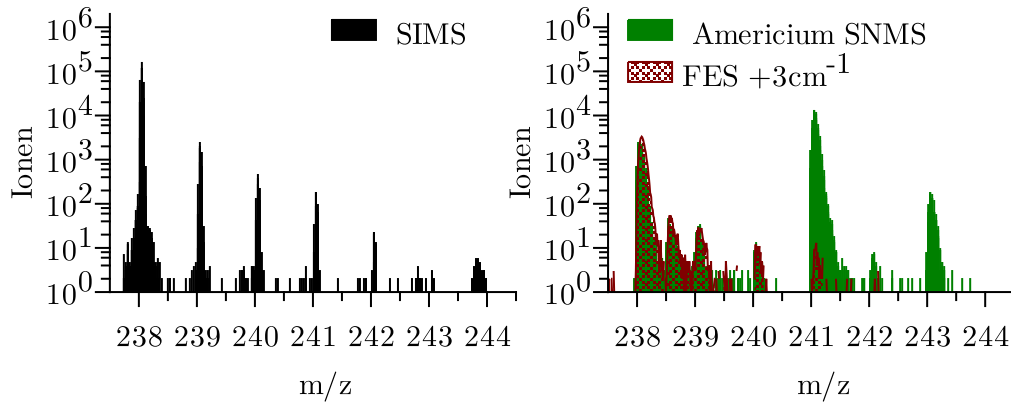


Abbildung 2.13.: Vergleich zwischen SIMS und Americium SNMS. Messungen durchgeführt am Partikel *KOP-001* mit 27 min Messzeit.  $m/z$  243 bei der SIMS Messung  $< 10$  Ionen. Die SNMS besteht aus einer resonanter Messung und einer im ersten Anregungsschritt um  $3 \text{ cm}^{-1}$  verstimmt Wiederholungsmessung zur Bestimmung des nicht-resonanten Hintergrundes. Die Differenz liefert 1941 netto  $^{243}\text{Am}$  Counts.

figen Anregungsschemata c) und d) in Abbildung 2.12 zeigen sowohl die Ionisation mittels Autoionisation als auch per Rydberg-Zustand. Zur Abgrenzung von nicht-resonanter Nachionisation wird das Messverfahren oft auch als resonante Laser SNMS (rL-SNMS) angegeben.

**rL-SNMS** Im direkten Vergleich zwischen SIMS und rL-SNMS mit Anregungsschema d) in Abbildung 2.13 des Partikels *KOP-001* wird die Überlegenheit der Methode deutlich. Beide Messungen wurden unter vergleichbaren Bedingungen bei 27 min Messdauer durchgeführt. Das Massenspektrum der SIMS zeigt den bekannten dominanten  $^{238}\text{U}$ -Peak mit 586 877 Ionen, sowie den abfallenden Trend der Hydride und höheren Brutprodukte bis zu  $^{243}\text{Am}$ . Da es in der Probe mit einer Konzentration von etwa  $5 \text{ g t}^{-1}$  vorliegt [38], werden entsprechend weniger als zehn Ionen bei einer Zählrate von 0,3 Ionen pro Minute auf  $m/z$  243 detektiert. Dabei kann nicht zwischen echten  $^{243}\text{Am}$ -Ionen und Maschinenhintergrund diskriminiert werden.

Eine rL-SNMS Messung besteht aus zwei nacheinander aufgezeichneten Massenspektren. Bei der ersten sind alle Laserfrequenzen auf die Übergangsrisonanzen eingestellt. Das erhaltene resonante Massenspektrum (grün) zeigt zwei deutliche Peaks auf den Massen  $m/z$  241 und  $m/z$  243. Da bei jeder SNMS Messung auch ein Anteil an nicht-resonanten Ionen produziert wird, sind weitere kleinere Peaks auf den anderen Massen vorhanden. Zur Unterscheidung zwischen nicht-resonanten und resonanten Ionen wird der Laser des ersten Anregungsschrittes von der Americiumresonanz um  $+3 \text{ cm}^{-1}$  verstimmt und die Messung wiederholt. Ohne die erste Anregung werden keine resonanten Laserionen produziert und das Massenspektrum

## 2. Kernbrennstoff

zeigt nur den nicht-resonanten Anteil. Im Gegensatz zur SIMS steht so eine präzise Hintergrundmessung zur Verfügung und die Differenz beider Messungen liefert gemäß Gleichung 2.10 die Nettozählrate.

Der errechnete resonante Überschuss von 1941 Ionen auf  $m/z$  243 kann nun zweifelsfrei  $^{243}\text{Am}$  zugeordnet werden. Die Zählrate liegt bei 72,3 Ionen pro Minute. Damit erhöht sich die Sensitivität im Vergleich zur SIMS um mindestens das Dreihundertfache. Um diese Zählrate mittels konventioneller SIMS zu erhalten, wären mehr als 100 Stunden Messzeit notwendig. Auf diesen Zeitskalen wäre der Probenkonsum nicht mehr vernachlässigbar und die quasi-zerstörungsfreie Eigenschaft ist nicht mehr gegeben. Damit bleibt die resonante Laser SNMS die einzige Messmethode, um quasi-zerstörungsfrei kleinste Proben auf einzelne Isotope im Spurenbereich von  $10^{-6} \text{ g g}^{-1}$  zu analysieren.

Bis zu diesem Zeitpunkt gibt es weltweit kein kommerziell erhältliches rL-SNMS System. Aus diesem Grund haben mehrere Forschergruppen weltweit eigene Systeme entwickelt und an ihre Bedürfnisse angepasst. So befindet sich an der Universität Chicago das Messsystem *Chili*, welches kleinste Weltraumproben in dem Fachgebiet der Kosmochemie analysiert [72]. Das Institut für Kernchemie an der Universität Mainz nutzt die gute Ortsauflösung und Sensitivität der SNMS, indem es die Verteilung und Diffusionsgeschwindigkeit von Plutonium in Gesteinsproben für die Endlagerforschung untersucht [73]. Das Lawrence Livermore National Laboratory in Kalifornien besitzt das Messsystem *LION* zur nuklearforensischen Untersuchung radioaktiven Materials [74, 75] und in Japan ist ein System zur Analyse der Cäsiumkontamination durch den Reaktorunfall im Kernkraftwerk Fukushima Daichii aufgebaut worden [76]. Weiterhin findet die rL-SNMS Anwendung in der Klimaforschung zur retrospektiven pH-Wert Bestimmung der Ozeane [77], sowie in der Mineralogie [78] und Metallkunde [79].

## 3. Lasersystem

Während die ToF-SIMS ein seit Jahren etabliertes und kommerziell erhältliches Massenspektrometer ist, besteht das für die rL-SNMS benötigte Lasersystem weitestgehend aus speziell für die Resonanzionisation angefertigten Komponenten.

Durch die Kopplung von ToF-SIMS und Lasersystem ergeben sich mehrere Anforderungen. Zum einen werden verschiedene Wellenlängen benötigt. Diese liegen je nach Anregungsschema im blauen bzw. roten bis infraroten Spektralbereich. Sollen mehrere Elemente mit dem System gemessen werden, müssen die Laser in der Lage sein, flexibel ihre Wellenlänge zu ändern.

Zum anderen müssen die Laser im gleichen Takt wie der Primärionenstrahl der SIMS gepulst werden. Dies verlangt bei den gängigen Massenspektrometern eine Repetitionsrate im Kilohertzbereich. Damit die resonante Anregung nur in die Energieniveaus des gewählten Anregungsschemas stattfindet, müssen die Laser eine schmale spektrale Linienbreite besitzen.

Zusätzlich benötigt das Lasersystem ausreichend Leistung, um möglichst viele der erzeugten Neutralteilchen anzuregen und zu ionisieren. Für den Nachweis sehr gering konzentrierter Isotope werden Messzeiten von über einer Stunde benötigt. Die Laser müssen über diesen Zeitraum sowohl in der Ausgangsleistung als auch der Wellenlänge stabil sein.

Diese hohen Anforderungen führten zur Entwicklung von Titan:Saphir (**TiSa**) Lasern durch die Forschungsgruppe *Larissa* des Instituts für Physik der Universität Mainz. In Abhängigkeit ihres Resonatoraufbaus ist es möglich, die emittierte Wellenlänge dieser Laser stufenlos anzupassen, weshalb sie als **durchstimmbar** bezeichnet werden. Die erste Iteration dieser Laser wurde im Rahmen der Doktorarbeit von Michael Franzmann am IRS implementiert und an die *TOF.SIMS 5* gekoppelt [22].

### 3.1. Vorhandenes System

Sowohl das bestehende rL-SNMS System am IRS [80, 81] als auch die Standard TiSa Laser [82, 83, 84, 85] sind bereits in mehreren Veröffentlichungen beschrieben worden. Aus diesem Grund soll im folgenden Abschnitt nur knapp die Ausgangssituation zusammengefasst werden.

Startpunkt für das durchstimmbare Laserlicht sind drei kommerziell erhältliche *DM60-532* Pumplaser des Herstellers *Photonics Industries* mit einer festen Wellenlänge von 532 nm oder 527 nm. Ihre 60 W Ausgangsleistung wird mittels Polarisationsoptiken auf 15 W reduziert. Da die ToF-SIMS alle 100  $\mu$ s einen Messzyklus durchführt, werden sie entsprechend mit 10 kHz Repetitionsrate extern getriggert. Die nachgelagerten TiSas besitzen einen Z-förmigen optischen Resonator (Z-Cavity)

### 3. Lasersystem

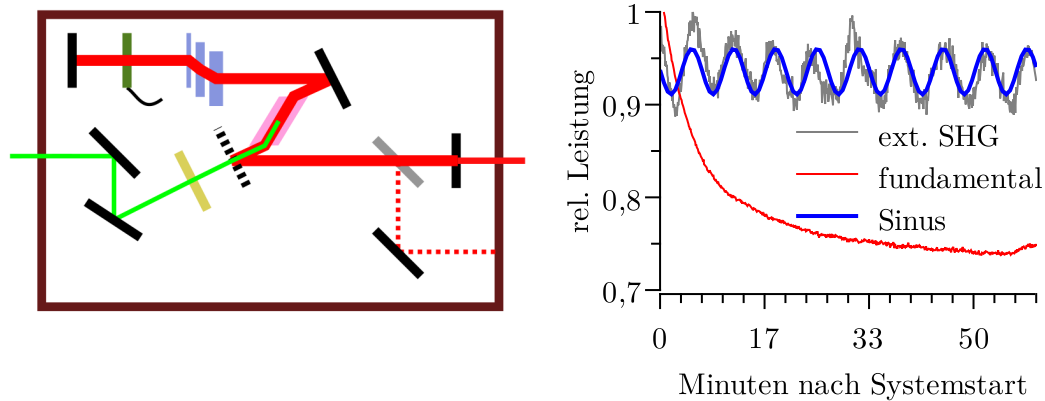


Abbildung 3.1.: Standard TiSa *links*: Aufbau der Z-Cavity mit Lyot-Filter (blau) und Etalon (grün) zur Wellenlängenauswahl und Stabilisierung *rechts*: Nach dem Einschalten des Lasers zeigt sich sowohl im fundamentalen (rot) als auch im extern frequenzverdoppelten Betrieb (grau) eine Zeitabhängigkeit der Laserleistung.

mit einem Titan:Saphir Kristallstab als Lasermedium (Abbildung 3.1 links, rosa). Dieser hat einen Durchmesser von 6,35 mm und eine Länge von 2 cm. Das grüne Pumplicht wird mit einer Linse (gelb) in den Kristall fokussiert, wo dieser es absorbiert und Licht im Wellenlängenbereich von 680 nm bis 960 nm ( $14\,700\text{ cm}^{-1}$  bis  $10\,400\text{ cm}^{-1}$ ) emittiert [86, 87, 88].

Die Auswahl der Wellenlänge erfolgt in drei Schritten. Der erste besteht aus der Wahl der verwendeten Spiegel des Resonators. Für den Aufbau stehen vier verschiedene Spiegelsätze zur Verfügung, welche durch gezielte Transmissionsverluste den Emissionsbereich einschränken [22]. Der nächste Selektionsschritt besteht aus einem Lyot-Filter (blau) innerhalb der Cavity, der die Wellenlängenauswahl in  $0,7\text{ nm}$  ( $10\text{ cm}^{-1}$ ) Schritten ermöglicht. Die finale Einstellung erfolgt durch ein Fabry-Perot-Etalon (grün) mit einer Dicke von  $0,3\text{ mm}$ . Kleine Winkeländerungen zwischen Etalonoberfläche und Resonatorlicht führen zur Verschiebung der Wellenlänge [89]. Aus diesem Grund wird eine Positionsachse der Etalonhalterung von einem Linearaktuator gesteuert. Eine Software liest die emittierte Wellenlänge aus und passt den Etalonwinkel entsprechend an.

Das erzeugte Laserlicht besitzt eine maximale Ausgangsleistung von 4 W mit einer Pulslänge von 25 ns bis 50 ns. Die Linienbreite liegt im Bereich von 3 GHz bis 6 GHz ( $0,1\text{ cm}^{-1}$  bis  $0,2\text{ cm}^{-1}$ ).

Der stufenlos einstellbare Wellenlängenbereich beschränkt sich auf den Abstimmbereich des Etalons von etwa 300 GHz ( $10\text{ cm}^{-1}$ ). Größere Sprünge sind mit dem Lyot-Filter möglich, erfordern aber eine Anpassung der Laserstrahlführung bis zur ToF-SIMS. Änderungen von mehr als 50 nm ( $650\text{ cm}^{-1}$ ) erfordern in der Regel den Tausch von Resonatorspiegeln, was die zeitaufwendige Neujustage der Cavity zur Folge hat. Damit bietet diese Variante des TiSa-Lasers nicht die nötige Flexibilität, um verschiedene Anregungsschemata ohne große Umbaumaßnahmen zu nutzen.

**Frequenzverdopplung** Werden Wellenlängen im violetten bis blauen Spektralbereich benötigt, so kann ein Teil des ursprünglichen (fundamentalen) Lichts durch einen  $\beta$ -Bariumborat (**BBO**) Kristall frequenzverdoppelt werden (engl. second harmonic generation (**SHG**)). Bei geeignetem Einfallswinkel zwischen Laserstrahl und Kristalloberfläche (**Phasenanpassungswinkel**) kann aus dem Licht der beschriebenen TiSas bis zu 400 mW Laserlicht der halben Wellenlänge erzeugt werden. Dadurch wird der Bereich von 340 nm bis 480 nm zugänglich. Für die weiterführende, theoretische Beschreibung der starken Konversion von nicht-linearen Kristallen wird auf entsprechende Literatur verwiesen [90, 89].

Abbildung 3.1 rechts zeigt die zeitliche Entwicklung der Ausgangsleistung zweier TiSa Laser nach dem Entfernen der Strahlenfalle des Pumplaserlichts. Das entstehende thermische Ungleichgewicht führt zur Verzerrung des Resonators. Dadurch verändert sich die Verstärkung des Laserlichts pro Resonatorumlauf und damit die Ausgangsleistung. Da dieses Lasermodell über keine aktive Leistungskontrolle verfügt, muss abgewartet werden, bis sich ein stabiles thermisches Gleichgewicht ausgebildet hat. Dies kann bei fundamentalem Laserbetrieb bis zu einer Stunde dauern (rote Linie). Bei außerhalb des Resonators (engl. extra-cavity) frequenzverdoppeltem Licht (grau) kann das System in einem instabilen Zustand verbleiben. Trotz festem Phasenanpassungswinkel oszilliert die Ausgangsleistung mit einer Periode von etwa 400 s (blaue Sinusschwingung Gl. 3.1).

$$y(x) = -0,025 \sin(0,0157x - 0,07) + 0,94 \quad (3.1)$$

Da alle in dieser Arbeit besprochenen Anregungsschemata mindestens einen frequenzverdoppelten Schritt besitzen, sind Leistungsschwankungen von bis zu 10 % eine konstante, potenzielle Fehlerquelle. Insbesondere bei niedrigen Laserleistungen im ersten Anregungsschritt hat dies einen großen Einfluss auf die Anzahl generierter Ionen (Details in Kapitel 4). Die Vergleichbarkeit, insbesondere von direkt aufeinanderfolgenden resonanten und nicht-resonanten SNMS Messungen, ist durch diese Schwankungen nicht mehr gegeben. Aus diesem Grund und zur Erweiterung des stufenlos durchstimmbaren Frequenzbereiches wurde das Lasersystem am IRS um zwei TiSa-Laser der nächsten Generation erweitert.

## 3.2. Gitter Laser

Während der im vorigen Abschnitt beschriebene Standard TiSa die Wellenlängenauswahl über gezielte Verluste in der Cavity erreicht, verwendet die neue Generation den Ansatz der Beugung am optischen Gitter.

Anstatt eines hochreflektierenden Endspiegels wird ein goldbeschichtetes Replica-Gitter mit 1740 Strichen pro mm der Firma *Horiba Jobin Yvon GmbH* verwendet. Es ist für den Bereich 750 nm bis 850 nm optimiert (engl. blazed) und wird in Littrow-Anordnung im Resonator verbaut (Abbildung 3.2). Der Einfallswinkel  $\Theta$  des Lichts entspricht dabei dem Ausfallswinkel der ersten Beugungsordnung einer bestimmten Wellenlänge.

### 3. Lasersystem

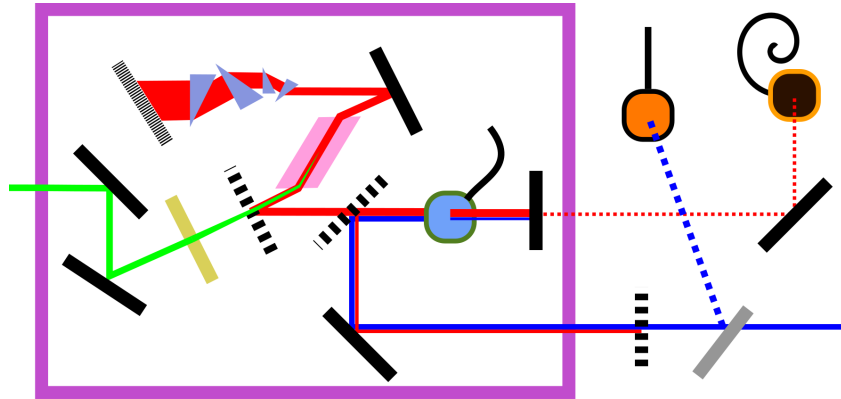


Abbildung 3.2.: Aufbau Gitter-TiSa. 13 W Pumplicht (grün) werden in einen Titan:Saphir Kristall fokussiert. Das emittierte Laserlicht wird über vier Prismen aufgeweitet und auf das Gitter geleitet. Der Einfallswinkel des Lichtes entspricht nur für eine Wellenlänge dem Ausfallswinkel der ersten Beugungsordnung. Somit wird nur Licht dieser Wellenlänge zurück in den Resonator reflektiert. Ein BBO Kristall erzeugt frequenzverdoppeltes Licht, welches über einen dichroitischen Spiegel aus dem Resonator reflektiert wird.

Somit wird gemäß Gittergleichung 3.2 nur Licht dieser Wellenlänge  $\lambda$  in den Resonator zurück reflektiert. Durch Veränderung des Winkels kann die Wellenlänge des Laser stufenlos angepasst werden.

$$\lambda = 2g \sin \theta \quad g = \frac{\text{mm}}{1740} \quad (3.2)$$

Das ursprüngliche Design dieses Lasertyps geht auf die Arbeit von Teigelhöfer et al. zurück [91]. Es enthielt noch vier verschiedene Spiegelsätze als ersten Auswahlsschritt der Wellenlänge. Die folgende Entwicklungsstufe verwendete keine wellenlängenselektiven Spiegel mehr, sodass eine kontinuierlich durchstimmbare Emission von 707 nm bis 933 nm erreicht wurde [92].

Damit das Gitter auf der ganzen Breite ausgeleuchtet wird, sind zwei anamorphe Prismenpaare zur Strahlaufweitung in der Cavity eingebaut. Sie sind mit einer Antireflex Beschichtung bedampft, welche die Reflektionsverluste an den Oberflächen im Bereich von 650 nm bis 1050 nm minimiert.

Analog zum Standard TiSa besitzt auch der Gitterlaser einen Titan:Saphir Kristallstab von 2 cm Länge und 6,35 mm Durchmesser, der mit 13 W bis 15 W Pumpplaserlicht angeregt wird. Der Kristall ist im Brewster-Winkel zum linear polarisierten Pumplicht eingebaut, sodass dieses mit minimalen Reflektionsverlusten an der Oberfläche transmittiert wird [89].

Für den Laserbetrieb im fundamentalen Wellenlängenbereich wird ein teildurchlässiger Spiegel ( $R = 70\%$ ) als Auskoppelspiegel am Resonatorende eingesetzt. In dieser Arbeit wurden jedoch beide Laser im frequenzverdoppelten Spektralbereich



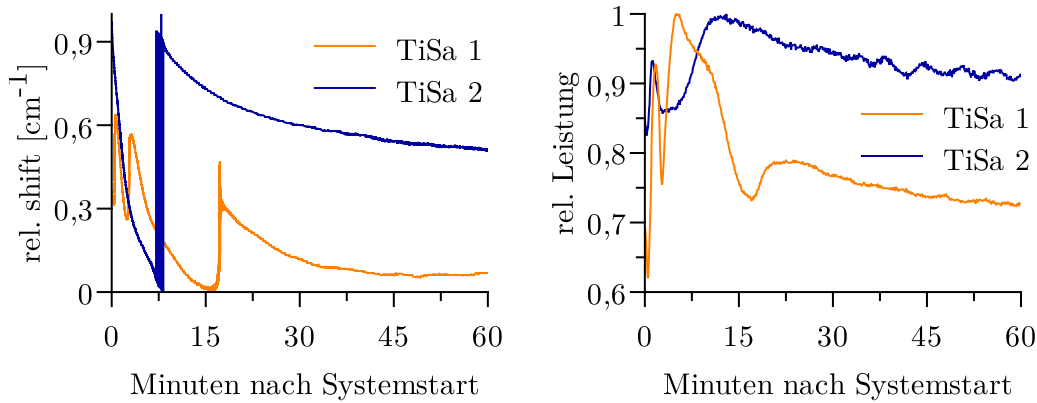


Abbildung 3.3.: Die Gitterlaser zeigen nach dem Start ein instabiles Verhalten in Leistung und fundamentaler Wellenlänge. Es kommt insbesondere auch zu Modensprüngen.

verwendet, sodass ein hochreflektierender Spiegel ( $R = 99\%$ ) verbaut wurde. Der transmittierte Anteil hinter dem Endspiegel sinkt auf  $50\ \mu\text{W}$  bis  $100\ \mu\text{W}$ . Das fundamentale Restlicht wird über einen Kollimator in ein Fasersystem gekoppelt und ausschließlich zur Analyse von Wellenlänge und Pulstiming verwendet.

Zur effizienten Frequenzverdopplung wurde der BBO-Kristall direkt in den Resonator (intra-cavity SHG) eingesetzt. Das erzeugte frequenzverdoppelte Licht wird über einen dichroitischen Spiegel vor dem TiSa-Kristall aus dem Resonator ausgekoppelt. Störende verbleibende Anteile an fundamentalem Licht werden am Laserausgang mit einem dichroitischen Kurzpassfilter zurückgehalten.

Der erzeugte Laserpuls hat eine Pulslänge von etwa  $20\ \text{ns}$  (FWHM) bei einer Laserlinienbreite von  $3\ \text{GHz}$ . Diese kann auf etwa  $6\ \text{GHz}$  erhöht werden, wenn nur ein anamorphes Prismenpaar verwendet wird und nicht alle Linien des optischen Gitters ausgeleuchtet werden [92]. Da zur Bestimmung isotopenspezifischer Resonanzen in Kapitel 4 ein möglichst hohes Auflösungsvermögen erreicht werden soll, wurden in dieser Arbeit beide Paare verwendet.

Zuletzt wird ein Teil des blauen Laserlichts zur Leistungskontrolle an einem teildurchlässigen Spiegel (Pickup) auf ein Powermeter (*Thorlabs PM100USB*) mit *Thorlabs S120VC* Sensor reflektiert. Die Abbildung 3.3 zeigt die zeitliche Entwicklung von Wellenlänge und Leistung der Gitterlaser nach dem Systemstart. Analog zu den Standard TiSas, ist ebenfalls ein instabiles Verhalten zu beobachten. Auch hier entsteht zunächst ein thermisches Ungleichgewicht, welches sich erst nach einer Stunde Laufzeit abbaut.

Zusätzlich sind spontane Sprünge der fundamentalen Wellenlänge in Schritten von  $0,03\ \text{nm}$  ( $0,44\ \text{cm}^{-1}$ ) zu erkennen. Diese **Modensprünge** werden durch den in der Cavity stehenden BBO erzeugt. Diese Eigenschaft wird im Detail in Abschnitt 3.3.2 besprochen.

### 3. Lasersystem

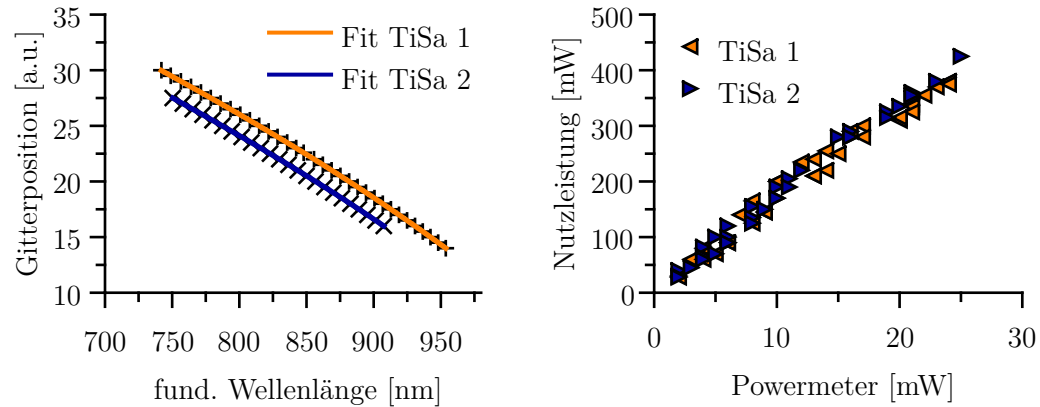


Abbildung 3.4.: *links*: fundamentale Wellenlänge in Abhängigkeit der Gitterposition. Beide Verläufe können durch ein Polynom dritten Grades beschrieben werden. *rechts*: Gemessene Kontrollleistungen am Powermeter und Nutzleistung auf dem Lasertisch. Die Abhängigkeit bleibt über den gesamten Wellenlängenbereich linear.

Zum Wechsel der frequenzverdoppelten Ausgangswellenlänge muss sich sowohl der Winkel des optischen Gitters als auch der Phasenanpassungswinkel des BBOs ändern. Der resultierende neue Strahlgang im Resonator führt zu einem erneuten thermischen Ungleichgewicht. Dadurch tritt dieser Effekt, wenn auch in geringerem Ausmaß, bei jeder größeren Wellenlängenänderung auf.

#### 3.2.1. Lasersetup

Grundlage für eine aktive Stabilisierung von Wellenlänge und Leistung sind aufgezeichnete Kontrollsignale des Lasers. Dieser Abschnitt stellt die verwendete Auslese- und Steuerelektronik der Gitter TiSas vor. Alle Rotationsmotoren der Gitterlaser stammen von der Firma *PI miCos GmbH*. Das auf dem Rotationstisch *DT-65N 2SM* verbaute Gitter wird über einen *SMC pollux Controller Type 1* gesteuert. Die kleinste Schrittweite des Motors beträgt  $0,0001^\circ$ .

Abbildung 3.4 links zeigt die Abhängigkeit von ausgelesener Gitterposition und fundamentaler Wellenlänge der Laser. Da das Gitter mit einer eigens angefertigten Halterung in den Rotationstisch verbaute wurde, entspricht die ausgelesene Position nicht direkt dem Winkel  $\Theta$  (Siehe Anhang A.4). Die spezielle Halterung ist notwendig, damit alle benötigten Winkel nach Gleichung 3.2 für den TiSa Emissionsbereich von 650 nm bis 950 nm angefahren werden können, ohne dass das Gitter bei der Positionskalibrierung (engl. homing) mit dem Laserchassis zusammenstößt.

Zur mathematischen Beschreibung der Abhängigkeit wurden die Verläufe mit einem Polynom dritten Grades angepasst. Es ergeben sich die Gitterpositionen  $f_{1,2}(x)$  für beliebige fundamentale Wellenlängen  $x_{1,2}$  in nm gemäß Gleichung 3.3. Die Abwei-

chung zwischen berechneter und gemessener Position ist kleiner als 0,7 nm ( $10 \text{ cm}^{-1}$ ).

$$\begin{aligned} f_1(x) &= 101,04 - 0,1739 x_1 + 1,71 \times 10^{-4} x_1^2 - 8,81 \times 10^{-8} x_1^3 \\ f_2(x) &= 95,18 - 0,1612 x_2 + 1,55 \times 10^{-4} x_2^2 - 8,14 \times 10^{-8} x_2^3 \end{aligned} \quad (3.3)$$

Abbildung 3.4 rechts zeigt die aufgezeichnete Kontrollleistung der Datenpunkte und die verbleibende Nutzleistung. Das System aus Pickup und verwendetem Sensor des Powermeters bildet über den gesamten Wellenlängenbereich ein gutes Leistungsmonitoring bei gleichbleibenden 5 %.

Der BBO-Phasenangepassungswinkel wird über einen *N-472.210 PiezoMike* Linearaktuator angepasst. Er ist in der M10x1 Bohrung eines Zweiachsen Kippspiegelhalters verbaut und ändert den vertikalen Kippwinkel des gefassten BBO-Kristalls. Der Aktuator ist in der Lage, durch Rotation 13 mm Vorschub in 50 nm Schritten durchzuführen. Gesteuert wird der Linearaktuator über einen *E-871.1A1N Q-Motion® Controller*.

Der geringe transmittierte Anteil an fundamentalem Laserlicht hinter dem Endspiegel des Resonators wird aus zwei Gründen in ein Fasersystem gekoppelt. Zunächst wird es über einen 99:1 Y-Fasersplitter in zwei Teile aufgespalten. Das Faserende mit 1 % wird zur Verarbeitung des Pulstimmings auf eine Photodiode geschraubt. Der detektierte Laserpuls wird von einem Oszilloskop *6403C (PicoScope)* verarbeitet. Das bestehende LABVIEW Programm des alten Lasersystems wurde erweitert und ist nun in der Lage acht Eingangssignale von zwei Oszilloskopen gleichzeitig anzuzeigen. Die Laserpulse sind im Anhang A.5 abgebildet.

Die zeitliche Synchronisation untereinander und mit der ToF-SIMS wird durch individuelle Trigger der Pumplaser sichergestellt. Ein *DG645 Delay Generator (Stanford Research Systems)* registriert den Extraktionspuls des Flugzeitanalysators der SIMS und löst daraufhin den externen Trigger der Pumplaser aus. Dieses kann für jeden Laser individuell verzögert werden, sodass die TiSa Laser mit 5 ns Präzision aufeinander abgestimmt pulsen.

Der zweite Ausgang der Y-Faser dient der Wellenlängenanalyse. Er endet in einem neuen Achtkanal Faserswitch des Wavemeters *WS6-600 (Highfinesse)*. Es bietet eine Genauigkeit von 600 MHz ( $0,02 \text{ cm}^{-1}$ ). Mit diesen Erweiterungen ist das System in der Lage, die Wellenlängen und Laserpulse der drei Standard TiSas und der zwei neuen Gitter TiSas gleichzeitig auszulesen. Für letztere fehlt jedoch eine Steuersoftware.

### 3.3. Caro

Zur Steuerung der Rotationsmotoren und optischen Elemente des Lasers soll in diesem Abschnitt das eigens geschriebene LABVIEW Kontrollprogramm (engl. **C**ontrol **a**pplication for **r**otary **o**ptics (**Caro**)) vorgestellt werden.

Zielsetzung war ein benutzerfreundliches Programm, welches den Point-and-Click Betrieb der Gitterlaser erlaubt. Dies beinhaltet die Verbindung mit allen beteiligten

### 3. Lasersystem

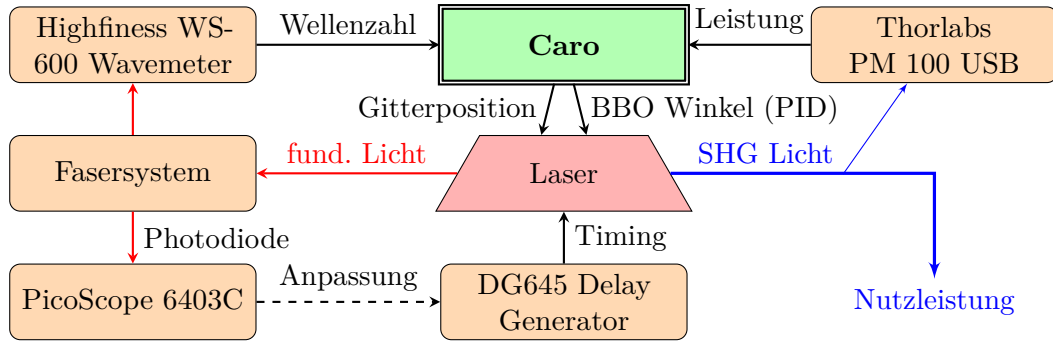


Abbildung 3.5.: Übersicht der beteiligten Geräte an der Signalverarbeitung.

Hardwarekomponenten, das Steuern der Elektronik, die Überwachung des Betriebszustandes, sowie die Stabilisierung von Leistung und Wellenlänge. Des Weiteren soll das Programm vollautomatische Wechsel zwischen Anregungsschemata durchführen, damit SNMS Messungen verschiedener Elemente nacheinander möglich sind. Abbildung 3.5 zeigt die grundlegende Signalverarbeitung. Der Betriebszustand der Gitterlaser wird im Wesentlichen von zwei Variablen kontrolliert. Der Position des optischen Gitters und dem BBO-Phasenanpassungswinkel. Letzterer bestimmt, wie effizient fundamentales in frequenzverdoppeltes Licht konvertiert wird und legt somit die Ausgangsleistung fest. Die erstellte Benutzeroberfläche und eine Übersicht des logischen Blockdiagramms von CARO sind im Anhang unter A.6 und A.7 zu finden. Dort ist ebenfalls eine Tabelle der wichtigsten Softwareparameter aufgelistet A.4.

**Initialisierung** Beim Programmstart wird zuerst eine Verbindung zur entsprechenden Hardware aufgebaut. Insgesamt werden fünf *Physical Instruments* Controller mit sechs Motoren, zwei Leistungsmessgeräte und zwei Kanäle des Wavemeters initialisiert. Die korrekte Zuordnung der Hardware zu den entsprechenden Lasern wird per Seriennummer sichergestellt. Dabei kann vor Programmstart ausgewählt werden, ob beide oder nur ein Laser benutzt werden soll.

Die Controller der Gitterposition laden als Erstes angepasste Stagedefinitionen, welche die erlaubten Winkel limitieren. So wird eine Totalreflektion bei senkrecht stehendem Gitter und alle Winkel unter  $0^\circ$  verhindert. Letzteres ist notwendig, da sich die Gitterposition automatisch beim Programmstart selbst referenziert. Der Rotationstisch besitzt einen Sensor bei  $0^\circ$  der durch Linksdrehung (*FNL*) angesteuert wird und die dortige Position als 0 im Programm definiert. Eine Ausgangsposition unter  $0^\circ$  hätte eine komplette Rotation zur Folge, welches zur Kollision von Gitter und Lasergehäuse führen würde. Nach erfolgreicher Referenzierung wird eine vordefinierte Startposition angefahren, und die Gittermotoren melden Betriebsbereitschaft. Solch ein Sensor zur Referenzierung ist bei den Linearaktuatoren nicht vorhanden. Um dennoch über einen absoluten Positionswert zu verfügen, wird nach erfolgreicher Verbindung mit dem Controller die aktuelle Position als 0 definiert. Damit diese bei jedem Programmstart gleich ist, fährt der Linearaktuator beim Beenden von

CARO immer auf 0 zurück. Erst wenn diese Ausgangsposition erreicht ist, wird ein Boolean (`Piezo shutdown correctly?`) auf *wahr* gesetzt und das Programm wird gestoppt. Im Falle einer Notabschaltung des Programms (STOP! Button), werden keine Bewegungen der Motoren mehr durchgeführt, und der Boolean ist beim Programmstart *falsch*. Der Benutzer wird aufgefordert, die Position manuell bis zum optimalen Phasenangepassungswinkel zu verfahren und als 0 zu definieren. Sobald alle Geräte Betriebsbereitschaft gemeldet haben, können die Motoren angesteuert werden.

**Manuelle Steuerung** Der einfachste Betriebszustand ist die manuelle Steuerung. Hierbei werden Leistung und Wellenlänge angezeigt, aber nicht weiter zur Steuerung berücksichtigt. Die Positionswerte für Gitter und BBO können manuell eingetragen und verändert werden. Dieser Modus ist immer nach Programmstart ausgewählt und erlaubt maximale Flexibilität. Die eingegebenen Werte werden lediglich einer Bereichsprüfung unterzogen. Der Modus wird insbesondere für grundlegende Einstellungen wie der manuellen Referenzierung des Linearaktuators oder der Aufnahme der Gitterpositionsgleichungen 3.3 benötigt.

Alle zur Steuerung wichtigen Abfragen werden mit einer Abtastrate von 10 Hz ausgeführt. Dies stellte sich als guter Kompromiss zwischen Reaktionsgeschwindigkeit und Prozessorauslastung dar.

Davon unabhängig wird einmal pro Sekunde eine zweite Kontrollschleife ausgeführt, in der alle sekundären Aufgaben verarbeitet werden. Insbesondere findet dort die Überwachung des Betriebszustandes statt. Wenn gewünscht, können jede Sekunde 13 Betriebsparameter in einer Logdatei abgespeichert werden. Dazu gehören unter anderem die Ausgangswellenlänge und Ausgangsleistung. Damit kann das Verhalten des Lasersystems auch im Nachhinein zu jeder Sekunde nachvollzogen und eventuelle Unstimmigkeiten in den SNMS Messungen zurückverfolgt werden.

### 3.3.1. PID Leistungssteuerung

Die simpelste Form der Zuordnung des Phasenangepassungswinkels zur entsprechenden Wellenlänge kann über eine *Look-Up-Tabelle* realisiert werden [93]. Sie enthält vordefinierte Werte für eine Auswahl an eingespeicherten Wellenlängen.

Eine solche Zuordnung ließe sich auch für die Gitterlaser realisieren, ist jedoch im Forschungsbetrieb unpraktikabel. Jegliche Änderung des Resonatoraufbaus würde die Beziehung zwischen Winkel und Gitterposition leicht verschieben und somit die gespeicherten Werte obsolet machen. Auch bietet sie nicht die nötige Flexibilität, um neue Wellenlängen direkt aufzurufen und erlaubt keine Echtzeitstabilisierung der Ausgangsleistung. Die Leistungssteuerung wurde deshalb über einen **PID-Regler** (engl. proportional–integral–derivative controller) realisiert.

Die detaillierte Beschreibung des PID-Reglers ist Gegenstand umfangreicher Literatur der Regelungstechnik [94]. Verkürzt dargestellt handelt es sich um eine Funktion, der ein Sollwert (engl. Setpoint) eines aufgenommenen Messwerts (engl. Input) vorgegeben wird. Der Regler versucht über Variation einer Ausgangsgröße

### 3. Lasersystem

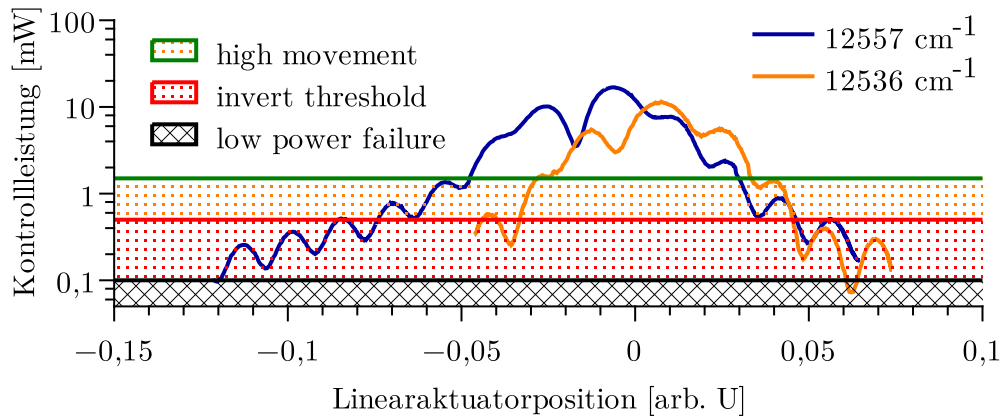


Abbildung 3.6.: Abhängigkeit von Phasen Anpassungswinkel und Laserleistung. Um zu jeder Zeit eine effiziente Konversion sicherzustellen, sind mehrere Leistungsschwellenwerte in die Steuerung integriert. Diese ändern die PID-Kontrollparameter oder starten weitere Steuerungsrouinen in CARO.

(engl. Output) den eingestellten Sollwert zu erreichen. In dem Fall des Gitterlasers wird eine gewünschte Kontrollleistung am Powermeter in das Programm eingetragen und der PID-Regler variiert die Position des Linearaktuators als Ausgangswert. Der Leistungsmittelwert der letzten zehn Programmzyklen wird als Eingangssignal verarbeitet.

Der PID-Regler besitzt drei einstellbare Parameter (engl. proportional gain ( $K_c$ ), integral time ( $T_i$ ) und derivative time ( $T_d$ )). Sie legen fest, in welcher Größenordnung und in welche Richtung Veränderungen am Ausgangswert vorgenommen werden. Zur theoretischen Berechnung der optimalen Parameter existieren verschiedene komplexe Verfahren [94]. Es stellt sich oft jedoch als ausreichend praktikabel heraus, sich diesen Werten iterativ bis zum gewünschten Verhalten zu nähern.

Dieser Ansatz wurde auch in dieser Arbeit verwendet, da die verwendete Photodiode *S120VC* (*Thorlabs*) eine Messunsicherheit von 5% besitzt. Dadurch ergibt sich auch unter optimalen Bedingungen eine Verteilung der PID-Eingangsgröße, welche das untere Stabilitätslimit darstellt. Die verwendeten Kontrollparameter sind in der Tabelle A.4 im Anhang zu finden.

Wird die Leistungskontrolle von *manual* in *stabilize* gestellt, beginnt der PID-Regler, die Ausgangsleistung an den eingetragenen Sollwert anzupassen. Ist die Abweichung kleiner als der Schwellwert `max deviation from power setpoint`, wird der Status der Leistung im Programm auf *stable* gesetzt. Abbildung 3.6 zeigt die Kontrollleistung in Abhängigkeit der Linearaktuatorposition bei zwei fundamentalen Wellenlängen. Wie zu erkennen ist, besitzen die Kurven mehrere Maxima, welche sich schon bei kleinen Wellenlängenänderungen deutlich verschieben. Zusätzlich ergeben sich für eine Wellenlänge und einen Leistungssollwert mehrere mögliche Linearaktuatorpositionen. Der PID-Regler stabilisiert die Leistung je nach Ausgangsposition an

einer der Flanken. Dabei legt die Ableitung der Flanke die Bewegungsrichtung des Linearaktuators bei Leistungsverlust bzw. Leistungsüberschuss fest.

Die Parameter des PID-Reglers sind auf kleine Veränderungen der Kontrollleistung als Eingangsgröße abgestimmt. Wird eine neue Wellenlänge vom Gittermotor angefahren, kommt es zu einer abrupten Leistungsveränderung. Die ausgeführten Positionsänderungen sind nun nicht groß genug, um die Leistung an der Flanke stabil zu halten. Damit dennoch Änderungen der Gitterposition in praktikablen Geschwindigkeiten möglich sind, wechselt das System automatisch in einen *high movement* Modus, sobald die Leistung den Grenzwert `threshold high movement` unterschreitet. In diesem Modus werden die PID-Parameter  $K_c$  und  $T_i$  mit einem individuellen `high speed factor` multipliziert. Der Linearaktor führt daraufhin deutlich größere Schritte aus und der Phasenanpassungswinkel wird in Echtzeit dem drehenden Gitter angepasst. Sobald der Schwellwert wieder überschritten wird, wechselt das System automatisch in den normalen PID-Modus und die Leistung wird wieder mit kleinen Änderungen des Linearaktuators stabilisiert.

**Automatic invert control** Durch den Wechsel der Gitterposition beginnt der Linearaktor im Modus *stabilize* automatisch mit der Bewegung an eine neue Position. Im *high movement* Modus wird zwar die Bewegungsgeschwindigkeit des Linearaktuators erhöht, die Bewegungsrichtung richtet sich jedoch weiterhin nach dem Gradienten der ursprünglichen Flanke. Stimmen diese Bewegungsrichtungen nicht überein, so verfährt der Linearaktor beim Versuch die Leistung zu erhöhen in die falsche Richtung.

Um dies zu verhindern, besitzt CARO einen zweiten Schwellwert unterhalb des `high movement` Schwellwerts, welcher eine Steuerroutine zur automatischen Invertierung der Bewegungsrichtung auslöst (engl. automatic invert control (**AIC**)).

Beim Unterschreiten des Schwellwerts `threshold for invert` wird der  $K_c$  Parameter des PID-Reglers invertiert. Dies führt zur Vorzeichenänderung der ausgeführten Regelungsschritte. Zeitgleich wird die Bewegungsgeschwindigkeit des Gitters abgesenkt. Dies gibt dem Linearaktor Zeit, den BBO zurück zum optimalen Phasenanpassungswinkel zu bewegen. Sobald der Schwellwert *high movement* wieder überschritten ist, wird die Bewegungsrichtung als korrekt angenommen und die Rotationsgeschwindigkeit des Gittermotors wird auf seinen Ursprungswert zurückgesetzt. Ein positiver Nebeneffekt der AIC ist die Betriebssicherheit. Für den Fall, dass die gewünschte Leistung vom PID-Regler nicht erreicht werden kann, führt die AIC zum Pendeln zwischen der oberen und unteren Linearaktorposition, welche den Schwellwert für eine Invertierung zur Folge hat. Dies verhindert BBO-Winkel fernab des Phasenanpassungswinkels der aktuellen Wellenlänge. In einem solchen Fall würde kein frequenzverdoppeltes Licht erzeugt werden, welches über den dichroitischen Spiegel aus dem Resonator ausgekoppelt wird. Die Leistung des fundamentalen Lichts innerhalb des Resonators erhöht sich ohne Auskopplung deutlich. Dies kann zu Beschädigungen von Optiken oder des Gitters führen.

Um diesen Zustand mit Sicherheit zu verhindern, wurde eine weitere Routine

### 3. Lasersystem

mit entsprechendem Schwellwert integriert. Unterschreitet die Leistung den `piezo alignment lost` Wert, wird ein *low power failure* ausgelöst. Dieser kann durch eine fälschlicherweise ausgeführte Invertierung oder durch eine externe Störung des Lasers verursacht werden. Für den ersten Fall wird die Bewegungsrichtung des Linearaktuators erneut gewechselt. Zu einer solchen fälschlichen Invertierung kann es beispielsweise durch kurzzeitiges Blockieren des Laserstrahls oder bei sehr niedriger Ausgangsleistung am Rand des möglichen Emissionsbereichs kommen. Überschreitet die Leistung innerhalb einer bestimmten Zeit wieder den `high movement` Schwellwert, so wird der normale Betrieb fortgeführt. Die Wartezeit entspricht dabei der doppelten Dauer, die der Laser beim ersten Invertieren zwischen den Schwellenwerten `piezo alignment lost` und `threshold for invert` verbraucht hat.

Passiert dies nicht, wird der aktuelle Betriebsstatus überschrieben, und sowohl Gitter als auch Linearaktor verfahren in ihre Ausgangsposition vom Systemstart, in der ihre Beziehung zueinander korrekt war. Dies deckt insbesondere den Ausfall des Pumpasers ab.

Um die volle Kontrolle über das System zu erhalten, kann sowohl die *low power failure* Kontrolle als auch die *AIC* abgeschaltet werden. Die Invertierung der PID-Bewegungsrichtung kann dann manuell in *CARO* ausgeführt werden. In der Standard-einstellung bei Programmstart ist beides eingeschaltet, sodass auch unbeaufsichtigte Messungen durchgeführt werden können und sich das System stets selbst überwacht. Abbildung 3.9 zeigt unter anderem noch einmal alle Leistungsschwellwerte und Routinen.

#### 3.3.2. Wellenlängenselektion

Für die Wellenlängensteuerung stehen neben der manuellen Gitterpositionseingabe zwei weitere Modi zur Verfügung. Der *go to wavelength* Modus berechnet gemäß Gitterkalibrierung 3.3 eine Gitterposition für die eingegebene Wellenlänge und führt die entsprechende Rotation aus. Ist die Position erreicht, wird abgewartet, bis die Ausgangsleistung stabil ist. Anschließend wechselt *CARO* in den dritten Modus *stabilize*, indem die Feinjustierung auf die eingetragene Wellenzahl stattfindet.

Da die zwei gesteuerten Parameter Gitterposition und Phasenanpassungswinkel direkt voneinander abhängig sind, besteht die Gefahr, dass sich die jeweiligen stabilisierenden Routinen gegenseitig beeinflussen. Im ungünstigsten Fall würden sie sich gegeneinander destabilisieren. Um dies zu verhindern, wird die Wellenlängenstabilisierung nicht mit einem 10 Hz PID-Regler ausgeführt, sondern mit Stufenfunktionen und mehreren Sekunden Wartezeiten nach jedem Schritt. Dadurch wird dem BBO nach jeder Wellenlängenänderung Zeit gegeben, seinen Winkel entsprechend anzupassen, bevor der nächste Schritt erfolgt. Die unterschiedlichen Methoden entkoppeln die Systeme regelungstechnisch voneinander.

Je nach Abweichung zwischen eingetragener und gemessener Wellenlänge wird das Gitter mit verschiedenen Winkelschritten nachgestellt und anschließend eine Warteschleife abgerufen. Da der Zusammenhang von Gitterwinkel und Wellenlänge monoton ist, ist die Schrittrichtung eindeutig und eine Invertierungsroutine wie beim PID-Regler ist nicht notwendig.



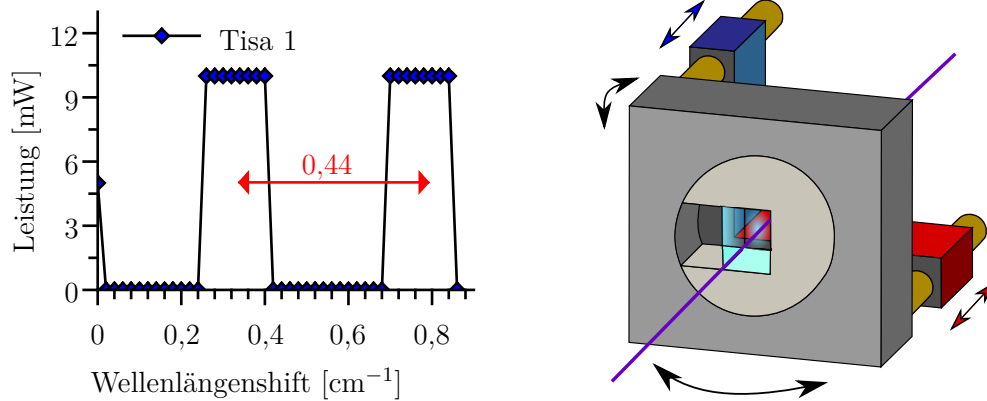


Abbildung 3.7.: *links*: Beim Durchstimmen ohne PID-Leistungsregelung zeigen sich die Modensprünge mit  $\Delta_{FSR,mess} = 0,44 \text{ cm}^{-1}$ . *rechts*: Stabilisierung des Lasers erfolgt über die beide Achsen der BBO-Halterung. Der Kippwinkel regelt den Phasenanpassungswinkel und somit die Leistung (blau). Der waagerechte Winkel wird von einem zweiten Linearaktuator (rot) kontrolliert (Funktion siehe Text). Durch die planaren Oberflächen des Kristalls lässt sich die Wellenlänge wie mit einem Etalon stabilisieren.

Sobald die Abweichung kleiner als der Schwellwert `perform tiny steps below` ist, wird der Status der Wellenlänge auf `in range` gesetzt. Befindet sich der Laser für mehrere Sekunden (`perform tiny steps after x seconds`) in diesem Modus und ist zusätzlich die Leistung in dieser Zeit im Status `stable`, so wird die letzte Stufe der Stabilisierung ausgelöst. Die Gitterposition wird nun mit den kleinstmöglichen Winkelveränderung von  $0,0001^\circ$  geändert. Dadurch wird das Lasersystem so geringen Störungen wie möglich ausgesetzt und die SNMS Messungen können durchgeführt werden.

**Horizontaler Linearaktuator** Wie bereits beim unstabilierten Betrieb gezeigt wurde, neigt das System zu spontanen Modensprüngen. Diese werden von den planparallelen Oberflächen des BBOs erzeugt. Da er auf beiden Seiten mit der gleichen Antireflexbeschichtung bedampft ist, wirkt der 7 mm lange Kristall wie ein Fabry-Perot-Etalon im Resonator. Der erzeugte freie Spektralbereich (engl. free spectral range (FSR)) lässt sich gemäß Gleichung 3.4 abschätzen [89]. Dabei wird der Brechungsindex des BBOs mit  $n_{BBO} = 1,6$  angenommen. Der FSR von 13,4 GHz entspricht Sprüngen in der Wellenzahl von  $0,45 \text{ cm}^{-1}$ .

$$\Delta_{FSR,theo} = \frac{c}{2n_{BBO}l} = 13,4 \text{ GHz} \quad (3.4)$$

Abbildung 3.7 links zeigt die Kontrollleistung beim Durchstimmen mit festem Phasenanpassungswinkel. Zu erkennen sind Modensprünge mit einem gemessenen freien

### 3. Lasersystem

Spektralbereich von  $\Delta_{FSR,mess} = 0,44 \text{ cm}^{-1}$ , was sehr gut mit dem theoretischen Wert übereinstimmt.

Durch diese Lasermodenstruktur werden einige Wellenlängenbereiche effektiv unterdrückt. Es ist somit nicht möglich, mit dem Gitter allein einen stufenlos durchstimmbaren frequenzverdoppelten Laserbetrieb zu gewährleisten. Insbesondere kann es im Zuge der Stabilisierung bei Langzeitmessungen zu einem Sprung zwischen zwei Moden kommen. Die resultierende frequenzverdoppelte Wellenzahl mit  $\Delta = 0,9 \text{ cm}^{-1}$  kann bei schmalen Energieniveaus so weit von der atomaren Resonanz weg liegen, dass keine Resonanzionisation mehr erfolgt.

Um Kontrolle über diesen Effekt zu erhalten, wurde die zweite, horizontale Achse des BBO-Halters ebenfalls mit einem steuerbaren Linearaktuator ausgestattet. Abbildung 3.7 rechts zeigt die Implementierung des Kristallhalters innerhalb des Resonators. Während der blaue Linearaktuator den Kippwinkel und damit die Leistung regelt, steuert der rote die andere Achse. Da hiermit lediglich relative Positionsveränderungen erzielt werden sollen, konnte die Steuerung mit einem kostengünstigen Linearaktuator *N-470.210Y PiezoMike* und dem zugehörigen Steuergerät *E-872.401 Q-Motion* (beides *Physical Instruments*) realisiert werden.

Durch die Kontrolle des horizontalen Winkels kann nicht nur die instabile Konfiguration zwischen zwei Lasermoden verhindert werden. Es ist des Weiteren möglich, den Etaloneffekt für eine gezielte Änderung der Wellenlänge wie bei den Standard TiSas auszunutzen.

Da der neue Linearaktuator in geringem Maß auch den Kippwinkel beeinflusst, ist hier ebenfalls eine Stufenfunktion mit Wartezeiten zur Wellenlängenstabilisierung gewählt worden. Damit wird dem PID-Regler Zeit gegeben, die induzierte Störung in der Leistung zu korrigieren, bevor eine erneute Wellenlängenkorrektur stattfindet. Abbildung 3.8 zeigt das Verhalten bei langsamer, kontinuierlicher Positionsveränderung des neuen Linearaktuator. Die Messung wurde mit eingeschalteter Leistungsstabilisierung durchgeführt. Das horizontale Verkippen des BBOs führt zu einer kontinuierlichen Wellenlängenänderung mit einem Durchstimmbereich von  $0,3 \text{ cm}^{-1}$  (rot). Dabei passt der PID-Regler automatisch die vertikale Linearaktuatorposition (blau) an. Die Leistungsabweichung des Lasers bleibt während der Messung stabil bei weniger als 5 % (grün), was der Messunsicherheit der Photodiode entspricht.

Somit steht für den letzten stabilisierenden Schritt in der Routine des Steuerprogramms auch der horizontale BBO-Winkel als Alternative zum Gitterwinkel zur Verfügung. Der Benutzer kann in CARO festlegen, welche Option er verwenden möchte.

#### 3.3.3. Automatisches Verfahren

Mit den zwei vorgestellten Stabilisierungsroutinen ist es nun möglich, per Dropdown-Liste automatisch ein neues Anregungsschema anzufahren.

Sobald der Benutzer ein Element ausgewählt hat, kann er per Mausklick auf *go to Element* die Abbildung 3.9 gezeigte Routine auslösen. Dabei werden dem Pro-

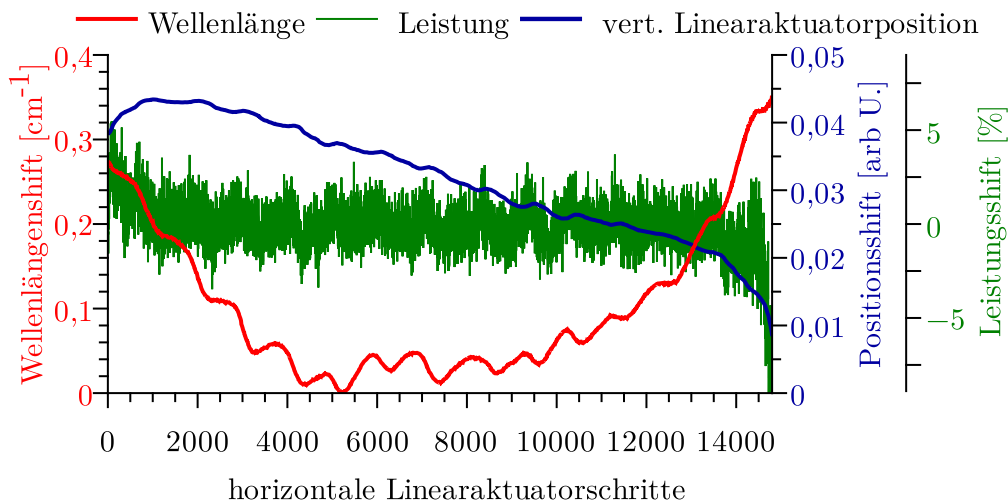


Abbildung 3.8.: Verfahren des neuen horizontalen Linearaktuators erlaubt stufenloses Durchstimmen des Lasers über einen Bereich von  $0,3 \text{ cm}^{-1}$  (rot). Bei eingeschalteter Leistungsstabilisierung kompensiert die vertikale Linearaktuatorposition (blau) die resultierende Leistungsschwankung automatisch und hält ihre Abweichung unter 5% (grün).

gramm eingespeicherte Sollwerte von Kontrolleistung und Wellenzahl übergeben. Anschließend wechseln die Steuermodi von Wellenlänge in *go to wavelength* und der Leistungssteuerung in *stabilize*. Zusätzlich wird AIC eingeschaltet, um die korrekte Bewegungsrichtung des vertikalen Linearaktuators sicherzustellen.

Gemäß voreingestellter Schwellwerte wechselt der Modus der Wellenlängensteuerung automatisch auf *stabilize* und führt die stufenweise Feinjustage der Ausgangswellenlänge per Gitterposition und, sofern ausgewählt, waagrechtem BBO-Winkel durch. Sobald ein Laser die gewünschten Sollwerte von Wellenlänge und Leistung erreicht, wird sein Status auf *stable* gesetzt. Da der geänderte BBO-Winkel zu einem erneuten thermischen Ungleichgewicht führen kann, wird unter Standardeinstellungen fünf Minuten stabiler Laserbetrieb abgewartet, bis die Statusleiste des Lasers im Programm auf grün geschaltet wird. Sobald beide Laser stabil sind, ist das System bereit zur Messung.

Hervorgehoben werden soll hier, dass der Benutzer ausschließlich eine Interaktion ausgeführt hat und der Rest automatisch erfolgt. Lediglich das Pulstiming der Laser muss überprüft und gegebenenfalls manuell am Delaygenerator angepasst werden.

### 3. Lasersystem

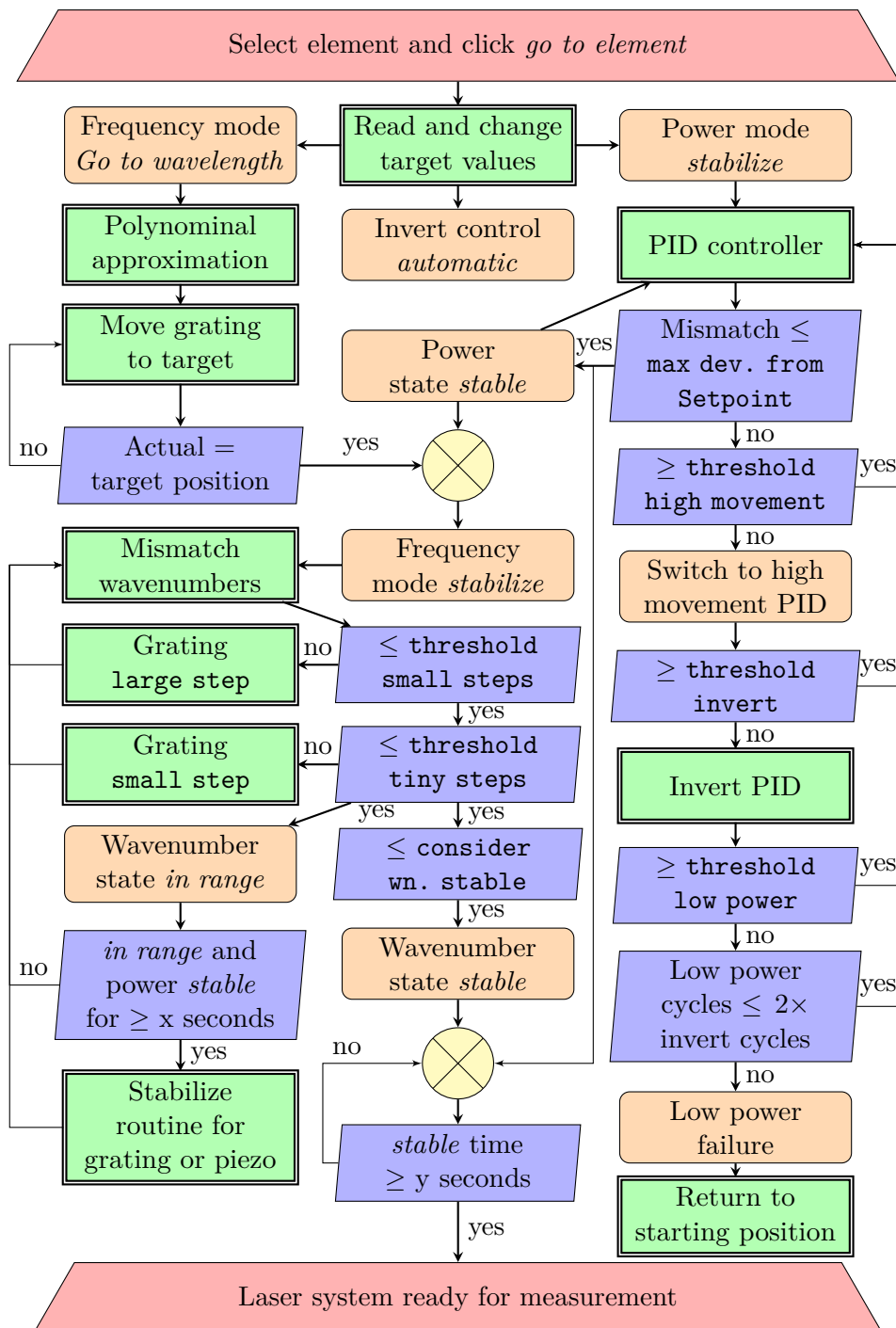


Abbildung 3.9.: Flussdiagramm des Algorithmus zum vollautomatischen Anfahren der Elementresonanzen durch CARO. grün: Interne Routinen, blau: Bedingungen, orange: Statusänderungen des Systems.

### 3.4. Performance und Integration

Zu dem Zeitpunkt dieser Arbeit beinhaltet CARO 15 zweistufige Anregungsschemata für 15 verschiedene Elemente. Darunter die von Kneip et al. im Rahmen von *SIRIUS* entwickelten für Uran, Plutonium und Americium [95].

Im folgenden Abschnitt soll die erreichte Performance des Lasersystems bei 13 W Pumpleistung vorgestellt werden. Um möglichst flexibel in der Wahl der Anregungsschemata zu sein, ist der per Softwaresteuerung erreichbare Wellenlängenbereich entscheidend.

Abbildung 3.10 zeigt die per Point-and-Click erreichten Ausgangsleistungen. Die vergleichbar niedrige Ausgangsleistung im fundamentalen Wellenlängenbereich kann bei Bedarf durch einen zusätzlichen teildurchlässigen Spiegel im Resonator erhöht werden. Bei diesem von Li et al. entwickelten *dual-cavity* Design steigt jedoch auch die Linienbreite des Lasers leicht an [96]. Da für SNMS Messungen selten höhere Leistungen als 40 mW Verwendung finden und damit die in Kapitel 4 durchgeführten Linienscans möglichst präzise sind, wurde auf diese Erweiterung verzichtet.

Im frequenzverdoppelten Wellenlängenbereich zeigt sich an beiden Enden eine stetige Abnahme der Leistung. Dies liegt unter anderem am verwendeten BBO-Kristall. Er ist in einem Winkel von  $28,2^\circ$  geschnitten und somit für 400 nm bis 440 nm optimiert. Wellenlängen außerhalb dieses Bereichs benötigen große Kippwinkel, was zu Reflektionsverlusten an der Kristalloberfläche führt.

Insgesamt bietet das System ausreichend Leistung und Flexibilität, um jedes Anregungsschema zwischen 375 nm und 450 nm direkt anzusteuern. Sollte in einem bestimmten Wellenlängenbereich mehr Leistung benötigt werden, kann der Resonator entsprechend optimiert werden.

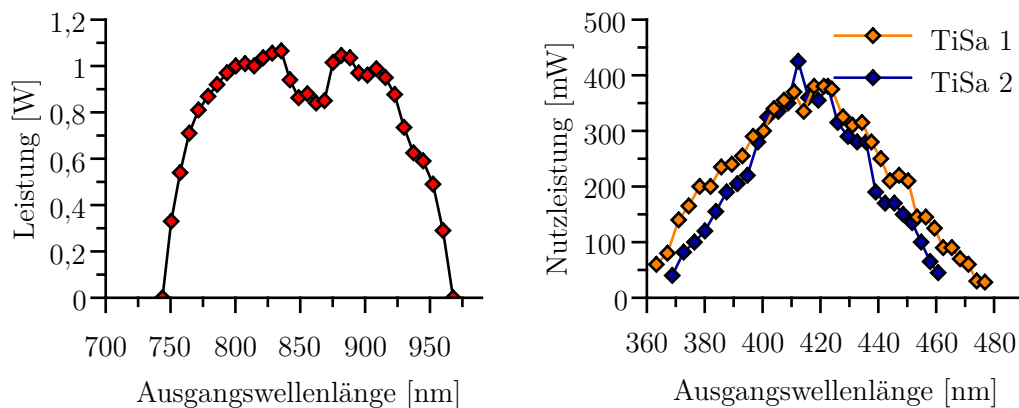


Abbildung 3.10.: Leistungscharakteristik der neuen Gitterlaser *links*: Ohne Frequenzverdopplung steht der rote bis infrarote Spektralbereich zur Verfügung. *rechts*: Mit eingebauter Frequenzverdopplung ergibt sich für beide Laser ein nutzbarer Wellenlängenbereich von 375 nm bis 450 nm.

### 3. Lasersystem

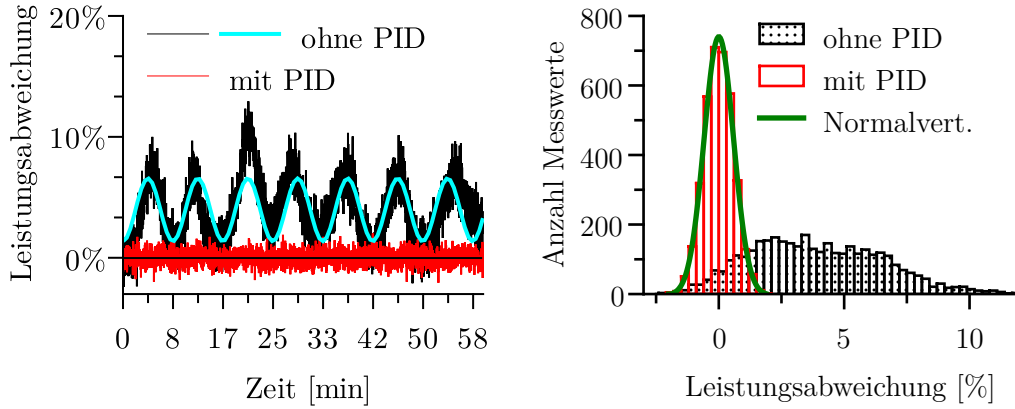


Abbildung 3.11.: Langzeitmessungen mit und ohne Leistungsstabilisierung bei aktiver Frequenzstabilisierung mittels BBO. Der Sollwert ist 9 mW Kontrollleistung. Im unstabilisierten Betrieb ergeben sich Leistungsschwankungen. Mit eingeschaltetem PID-Regler folgen die Messwerte einer Normalverteilung mit  $2\sigma = 1,17(2)\%$ .

**Leistungsstabilität** Um die erreichte Stabilität zu überprüfen, wurden die Daten der Logdatei von CARO ausgewertet. Es wird angenommen, dass die Schwankungen in der Kontrollleistung gleichermaßen in der Nutzleistung vorkommen. Entsprechend wird die prozentuale Abweichung zum Sollwert angegeben.

Damit ausschließlich der stabilisierende Effekt des PID-Reglers berücksichtigt wird, wurde zuerst eine Stunde mit aktiver Leistungsstabilisierung aufgezeichnet und direkt im Anschluss ohne. Dadurch ist sichergestellt, dass die zweite Messung nicht aufgrund der langen Einlaufzeit des Lasers stabiler ausfällt. Beide Messungen wurden bei 9 mW Kontrollleistung aufgenommen, was einer Nutzleistung von etwa 150 mW entspricht. Die fundamentale Wellenzahl des Lasers wurde auf  $11\,630\text{ cm}^{-1}$  mit dem horizontalen BBO-Winkel stabilisiert.

Bei abgeschalteter Leistungsstabilisierung ist eine ausgeprägte periodische Leistungsschwankung von 10% zu beobachten (Abbildung 3.11). Diese Schwankungen sind schon von den Standard TiSas bekannt und können ebenfalls mit einer Sinusfunktion (Gleichung 3.5) beschrieben werden. Die Periodendauer von 499 s ist vergleichbar mit der des alten Systems (400 s).

$$f(x) = -0,026 \sin(0,0126x + 1,57) + 0,04 \quad (3.5)$$

Sobald die PID-Leistungsregelung eingeschaltet wird, werden diese Schwingungen komplett unterdrückt und die Ausgangsleistung bleibt stabil. Das Histogramm der aufgenommenen Messwerte (Abbildung 3.11 rechts) zeigt, dass die Verteilung der Messwerte nun einer Normalverteilung mit  $2\sigma = 1,17(2)\%$  folgt (Gleichung 3.6).

$$f(x) = 10,9 \times \frac{1}{\sqrt{\left(\frac{\pi}{2}\right)0,0117}} \exp\left(-2\left(\frac{x}{0,0117}\right)^2\right) \quad (3.6)$$

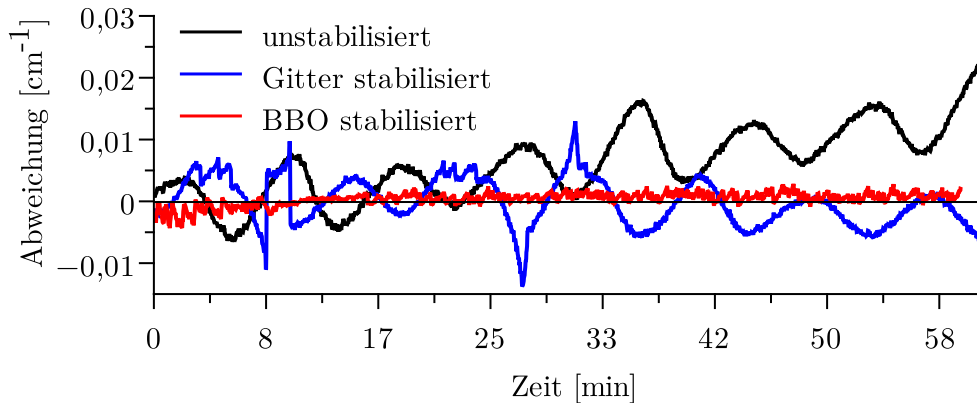


Abbildung 3.12.: Langzeitmessungen der verschiedenen Messmodi zeigen das Driftverhalten der Wellenlänge. Die Stabilisierung mittels horizontalem BBO-Winkel liefert das beste Ergebnis. Die Sollwerte der Messungen sind  $11\,630\text{ cm}^{-1}$  bei  $9\text{ mW}$  stabilisierter Kontrollleistung.

Das übrig bleibende Restrauschen kann zum einen durch Leistungsschwankungen der individuellen Pumplaserpulse verursacht werden. Zum anderen bietet der verwendete Photosensor aber nur eine Messgenauigkeit von  $5\%$ . Da die Leistungsverteilung deutlich darunter liegt, liefert der programmierte PID-Regler die bestmögliche Stabilisierung der Laser.

**Wellenlängenstabilität** Für die Stabilisierung der Wellenlänge stehen, wie im Abschnitt 3.3.2 besprochen, sowohl der Gitterwinkel als auch der horizontale BBO-Winkel zur Verfügung. Im Gegensatz zur Leistungsmessung wird hier die absolute Abweichung zum Sollwert von  $11\,630\text{ cm}^{-1}$  angegeben. Alle Messungen wurden mit eingeschalteter Leistungsstabilisierung auf  $9\text{ mW}$  Kontrollleistung aufgezeichnet. Auch hier wurde zuerst mit Wellenlängenstabilisierung und anschließend ohne gemessen, um eine verfälschende Laufzeitstabilisierung auszuschließen. Alle Messdaten wurden der Logdatei von CARO entnommen.

Die Abbildung 3.12 zeigt, dass die Laser im unstabilisierten Betrieb sowohl zu einer Schwingung als auch zu einem linearen Wellenlängendrift neigen. Dabei besitzt die Schwingung eine vergleichbare Periode wie die der Leistungsschwingungen, was auf den BBO-Kristall als Ursache schließen lässt.

Wird die Wellenlänge mit dem Gitter stabilisiert, kann zwar die lineare Drift korrigiert werden, die feinen Schwankungen bestehen jedoch weiterhin. Eine mögliche Ursache hierfür kann die Hysterese des verwendeten Rotationstische *DT-65N 2SM* sein. Kleinste Positionsänderungen unter Vorzeichenwechsel führen so erst nach einigen Schritten zur Winkeländerung.

Der neu eingebaute Linearaktuator hingegen ist für diese kleinen Bewegungen ausgelegt. Er kann den horizontalen BBO-Winkel sehr genau und hysteresefrei steuern. Mit dieser Stabilisierungsmethode bleibt die Abweichung der fundamentalen Wellen-

### 3. Lasersystem

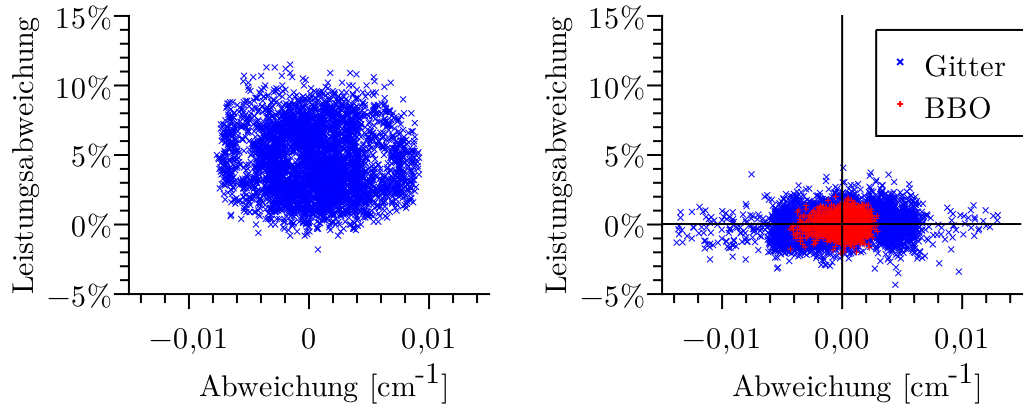


Abbildung 3.13.: Verbesserung durch die Stabilisierungsroutinen von CARO bei einer Stunde Messdauer. *links*: Abweichungen im unstabilisierten Betrieb. *rechts*: Bei eingeschalteter Leistungs- und Wellenlängenstabilisierung.

länge bei einer Stunde Messdauer unter  $0,004 \text{ cm}^{-1}$ . Das Histogramm der gezeigten Messwerte ist im Anhang A.8 zu finden.

Abbildung 3.13 zeigt noch einmal deutlich den Stabilitätsgewinn durch CARO und die Überlegenheit der BBO-Stabilisierung. Da das Wavemeter *WS6-600* jedoch nur eine absolute Genauigkeit von  $0,02 \text{ cm}^{-1}$  besitzt, bleiben die Resonanzmessungen des IRS auf diese Genauigkeit limitiert.

**Integration** Damit die neuen Gitterlaser parallel zu den Standard TiSas betrieben werden können, wurde der Aufbau des Lasertisches gemäß A.10 im Anhang geändert. Durch verschiedene Polarisationsoptiken und dichroitische Spiegel können zwei fundamental betriebene und zwei frequenzverdoppelte TiSa Laser zur Überlappung gebracht werden. Ein weiterer extern frequenzverdoppelter Standard TiSa kann über einen magnetischen Spiegelhalter im Austausch für die Gitterlaser eingekoppelt werden. Somit steht das alte Lasersystem weiterhin vollständig zur Verfügung.

Die Fokussierung und Abschwächung der neuen Gitterlaserpulse findet analog wie bei den Standard TiSas über Linsen und Glan-Laser Polarisatoren statt. Details sind den entsprechenden vorangegangenen Dissertationen zu entnehmen [22, 23].

Die räumliche Positionierung der Laser unter dem ToF-SIMS Extraktor wird über Piezospiegel feinjustiert. Der Laserfokus wird mit einem *beam profiler* (*Ophir SP620U*) auf  $D4\sigma(x, y) = 300 \mu\text{m}$  eingestellt.



## 4. SNMS Settings

Mit dem stabilisierten Lasersystem ist es nun möglich, korrekte SNMS Messungen durchzuführen. Der Fokus dieser Arbeit liegt dabei auf Partikelmessungen der Elemente Uran, Plutonium und Americium. Diese Actinide zeichnen sich durch eine Vielzahl an Energieniveaus aus. Die Auswahl geeigneter zweistufiger Anregungsschemata wurde an dem Institut für Physik der Universität Mainz durchgeführt [95]. Die angegebenen Wellenzahlen beziehen sich in der Regel auf ein einzelnes Isotop des Elements. Da die Atomkerne verschiedener Isotope unterschiedliche Volumina und Massen besitzen, verschieben sich die Energieniveaus geringfügig zueinander [71]. Diese Isotopieverschiebung (engl. isotopic shift) der Energieniveaus muss deutlich kleiner als die Laserlinienbreite (3 GHz bis 6 GHz) sein, damit kein Isotop bei der Resonanzionisation bevorzugt wird. Zusätzlich besitzen Isotope mit Kernspin eine Hyperfeinstruktur, welche die Energieniveaus aufspaltet und so die Übergangswahrscheinlichkeiten beeinflusst. Dieser Einfluss wird in Abschnitt 4.1.1 am Beispiel von Uran genauer erläutert.

In diesem Kapitel sollen die Resonanzen der Anregungsschemata auf ihre Isotopieverschiebung untersucht und die ermittelten Isotopenverhältnisse an Referenzmaterialien überprüft werden. Dazu wird der Wellenlängenbereich um die jeweilige Resonanz mit mehreren Messungen abgescannt. Bei einem solchen **Linienscan** wird ausschließlich die Wellenzahl eines Lasers variiert und alle anderen Messparameter gleich gehalten. Ausgewertet und normiert wird im Folgenden nur die resonanten Überhöhungen des Linienscans.

Zusätzlich wird bei den Linienscans von Uran und Americium die resonante Zählrate mit dem nicht-resonanten  $^{238}\text{UO}$ -Signal skaliert. Da dieses unabhängig von den geringen Änderungen der Wellenzahl ist, können so ungewollte Veränderungen im Zuge der Messreihe berücksichtigt werden. Dazu gehören geringe Schwankungen im Primärionenstrom, Positionsveränderungen der Probe oder Laserstrahlen, sowie die zeitliche Verschiebungen des Triggersignals. Die berechnete Intensität eines Isotops bei einem Linienscan ergibt sich somit aus Gleichung 4.1.

$$\text{Intensität}_i = \left( \frac{n_i - \text{Min}(n_i)_{\text{Scan}}}{\text{Max}(n_i)_{\text{Scan}}} \right)_{\text{resonant}} \times \left( \frac{\text{Max}(n_{\text{UO}})_{\text{Scan}}}{n_{\text{UO}}} \right) \quad (4.1)$$

Die erhaltene wellenlängenabhängige Verteilung folgt einem Voigt-Profil, welches sich durch Faltung einer Gauß-  $G(x)$  und Lorentz-Kurve  $L(x)$  ergibt. Aufgrund der nicht trivialen Form des Voigt-Profiles wurden die Datenpunkte mit einem Pseudo-Voigt-Profil genähert 4.2. So lassen sich die Halbwertsbreite ( $w$ ) der Resonanz und

#### 4. SNMS Settings

die exakte Resonanzmitte ( $x_c$ ) für jedes Isotop angeben.

$$f(x) = y_0 + A(\mu L(x) + (1 - \mu)G(x)) \quad (4.2)$$

$$f(x) = y_0 + A \left( \mu \frac{2}{\pi} \frac{w}{4(x - x_c)^2 + w^2} + (1 - \mu) \frac{\sqrt{4 \ln(2)}}{\sqrt{\pi} w} \exp \left( -\ln(2) \frac{4(x - x_c)^2}{w^2} \right) \right)$$

Nach der Bestimmung der Resonanzen wird der Einfluss der Laserleistung untersucht. Sobald ein resonanter Übergang zwischen zwei Energieniveaus gesättigt ist, führt die weitere Leistungserhöhung lediglich zu mehr nicht-resonanter Ionisation. Da diese auch andere Elemente ionisiert, erhöht sie entsprechend den Messuntergrund. Um möglichst hohe resonante Zählraten bei niedrigem nicht-resonanten Untergrund zu erhalten, wird die sogenannte **Sättigungsleistung**  $P_S$  nach Gleichung 4.3 für jeden Übergang bestimmt [97, 89]. Um den Vergleich zwischen den einzelnen Isotopen zu erlauben, werden die Zählraten lediglich auf ihr Maximum normiert.

$$I(P) = I_0 + m \cdot P + \frac{A \cdot P/P_S}{1 + P/P_S} \quad (4.3)$$

Da der Laserfokus zwischen den Messreihen nicht verändert wird, werden direkt die verwendeten Leistungen am letzten Spiegel des Lasertischs in mW angegeben und nicht die Leistung pro  $\text{cm}^2$  im Ionisationsbereich innerhalb der ToF-SIMS.

#### 4.1. Uran

**Linien-scans** Analog zu den SIMS Referenzmessungen in Abschnitt 2.3.3 wird auch bei den SNMS Messungen der IRMM-2029 Standard als Referenzmaterial verwendet. Das erste Energieniveau bei  $25\,235,75 \text{ cm}^{-1}$  wurde bereits 1946 von Kiess et al. beschrieben und dient dem ersten Anregungsschritt [98]. Der zweite wird von

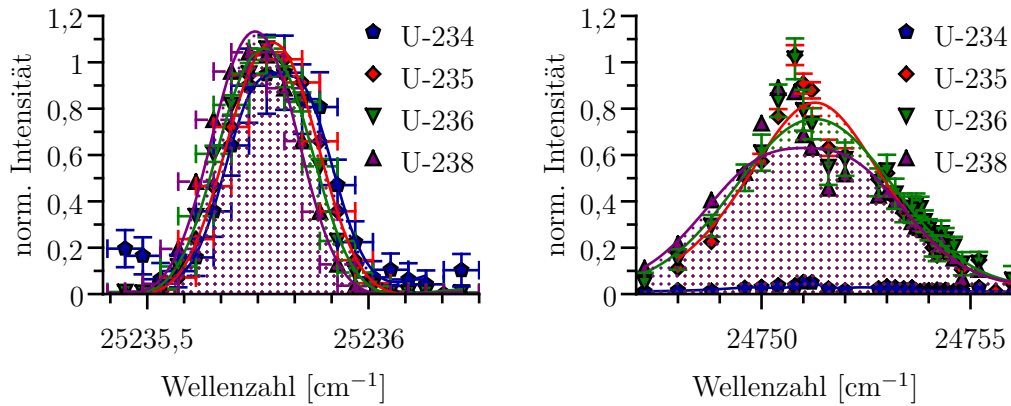


Abbildung 4.1.: Uran Anregungsschema *links*: FES Linienscan zeigt scharfe Resonanz ohne große Isotopieverschiebung. *rechts*: SES Linienscan liefert sehr breite Resonanz über mehrere Wellenzahlen.

Tabelle 4.1.: Uran Resonanzen

Referenz	U-234 [cm <sup>-1</sup> ]	U-235 [cm <sup>-1</sup> ]	U-236 [cm <sup>-1</sup> ]	U-238 [cm <sup>-1</sup> ]
FES Blaise [99]		25 235,79(5)		25 235,745(2)
FES Bosco [23]	25 236,0(5)	25 235,9(4)	25 235,9(4)	25 235,8(4)
FES diese Arbeit	25 235,80(4)	25 235,78(4)	25 235,77(4)	25 235,74(4)
SES diese Arbeit	24 751,14(10)	24 751,28(7)	24 751,27(9)	24 751,04(8)

Kneip et al. mit 24 754,10(5) cm<sup>-1</sup> angegeben [95]. Das daraus erhaltene Anregungsschema aus beiden Wellenlängen wird im Folgenden genauer analysiert.

Der FES Linienscan wurde mit 5 mW Leistung durchgeführt. Der SES wurde dabei auf 24 754,1 cm<sup>-1</sup> bei 30 mW stabilisiert. Der SES Linienscan wurde mit 10 mW bei festem FES von 25 235,772 cm<sup>-1</sup> bei 3 mW aufgezeichnet. Die Messzeit pro Datenpunkt betrug jeweils 10 min.

Abbildung 4.1 links zeigt die scharfe Resonanz des FES. Eine starke Isotopieverschiebung von <sup>234</sup>U, <sup>235</sup>U, <sup>236</sup>U bis <sup>238</sup>U ist nicht zu beobachten. Die angepassten Pseudo-Voigt-Verteilungen spiegeln den Intensitätsverlauf gut wider. In Tabelle 4.1 sind die berechneten Resonanzen aufgelistet. Der FES des Anregungsschemas wurde in der Mitte der Resonanzen zu 25 235,772 cm<sup>-1</sup> festgelegt.

Für den SES Linienscan in Abbildung 4.1 rechts ergibt sich ein weniger klares Bild. Zu sehen ist eine sehr breite Resonanz über mehrere Wellenzahlen bei 24 751,2 cm<sup>-1</sup>, welche nicht gut durch die Pseudo-Voigt-Verteilung beschrieben wird. Da bereits der erste Anregungsschritt allein hohe Uranzählraten liefert, wird durch den SES maximal noch eine Verdreifachung des Signals erreicht. Dies verhindert eine genauere Bestimmung der <sup>234</sup>U Resonanz. Für die drei anderen Isotope konnte die von Kneip et al. angegebene Resonanz bei 24 754,10(5) cm<sup>-1</sup> trotz engmaschiger Abtaststrategie nicht reproduziert werden. Stattdessen wurde der SES für den weiteren Verlauf auf 24 751,2 cm<sup>-1</sup> festgelegt, da dort der größte Signalzuwachs erreicht wurde.

Zum Vergleich der isotopenspezifischen Resonanzen sind in Tabelle 4.1 die verfügbaren Literaturwerte des FES aufgezeigt. Blaise et al. gibt einen sehr genauen Wert für die <sup>238</sup>U-Resonanz und zusätzlich die Isotopieverschiebung zu <sup>235</sup>U an [99]. In der Dissertation von Hauke Bosco wurde der FES ebenfalls analysiert und Resonanzen für alle vier Isotope angegeben [23]. Allerdings führen dort die großen Unsicherheiten zu keiner signifikanten Isotopieverschiebung.

In dieser Arbeit konnten die Unsicherheiten aller Resonanzen um eine Größenordnung verringert werden. Der nun limitierende Faktor ist die absolute Messunsicherheit von 0,04 cm<sup>-1</sup> des *WS6-600 Wavemeters*. Alle ermittelten FES Resonanzen stimmen mit den verfügbaren Literaturangaben im Rahmen ihrer Unsicherheit überein. Für den SES lagen keine weiteren Literaturangaben zum Vergleich vor.

**Sättigungsleistung** Nachdem die Resonanzen von FES auf 25 235,772 cm<sup>-1</sup> und SES auf 24 751,2 cm<sup>-1</sup> festgelegt wurden, sollen nun die Sättigungsleistungen der

#### 4. SNMS Settings

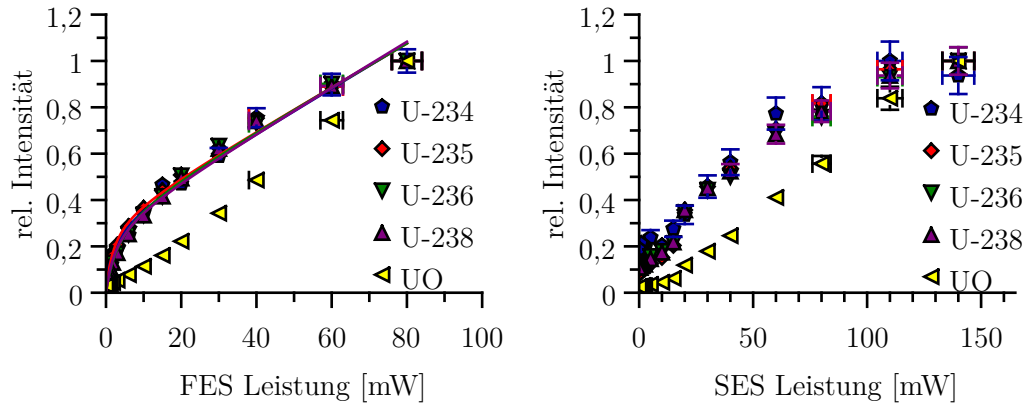


Abbildung 4.2.: *links*: Leistungsabhängigkeit des FES. Durch die zwei Photonenanregung ist auch über der Sättigungsleistung ein deutlicher Signalanstieg zu beobachten. *rechts*: Leistungsabhängigkeit des SES. Die hohe Signalintensität des ersten Anregungsschrittes alleine verhindert die Bestimmung von Sättigungsleistungen. Ein ausgeprägtes Sättigungsverhalten ist nicht erkennbar.

Tabelle 4.2.: Uran FES Sättigungsleistung

U-234 [mW]	U-235 [mW]	U-236 [mW]	U-238 [mW]
3,0(11)	2,1(4)	3,6(8)	2,8(6)

Übergänge bestimmt werden. Die entsprechenden Messungen wurden für 5 min pro Datenpunkt aufgenommen. Die fixierten Leistungen sind 30 mW im SES während des FES Scans und 10 mW im FES beim SES Scan.

Die sich ergebenden Leistungsabhängigkeiten sind in Abbildung 4.2 gezeigt. Zusätzlich zu den resonanten Uranisotopen ist das Signal von Uranoxid aufgetragen. Da es ausschließlich nicht-resonant ionisiert wird, steigt seine Zählrate linear mit der Leistung. Eine Abweichung von diesem Verhalten würde auf eine Störung im Verlaufe der Messungen hindeuten. Dies beinhaltet insbesondere leichte Verschiebungen der Probenposition innerhalb der ToF-SIMS und Veränderungen des Triggersignals. Da der lineare Trend bei beiden Messreihen hinreichend gut gegeben ist, kann davon ausgegangen werden, dass die Zählratenänderung ausschließlich auf die Leistungsvariation zurückzuführen ist.

Beim Trend der FES Leistung ist kein signifikanter Unterschied zwischen den Isotopen zu erkennen. Dies belegt, dass die Laserlinienbreite die geringe Isotopieverschiebung überdeckt und alle Isotope das gleiche Sättigungsverhalten zeigen. Die berechneten Sättigungsleistungen liegen zwischen 2 mW bis 4 mW und sind in Tabelle 4.2 gegeben. Bemerkenswert ist, dass auch nach erreichter Sättigungsleistung die Zählraten weiter linear mit der Laserleistung ansteigen. Ein geringer nicht-resonanter Anstieg nach der Sättigungsleistung ist zu erwarten. Dieser ausgeprägte Trend ist jedoch eine Besonderheit der Wellenlänge.

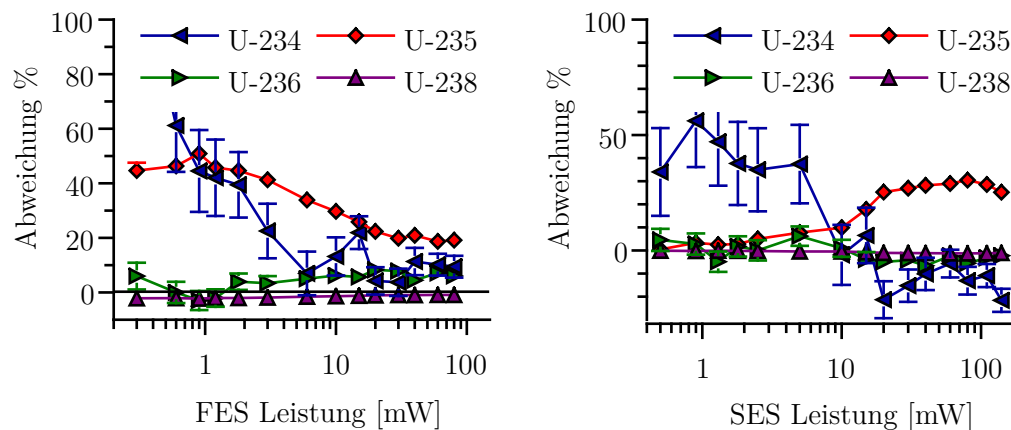


Abbildung 4.3.: Abweichung vom referenzierten Isotopenverhältnis. *links*: FES Leistungsabhängigkeit bei 30 mW SES. Der Anteil von  $^{234}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$  und  $^{236}\text{U}$  wird überschätzt,  $^{238}\text{U}$  unterschätzt. Ab etwa 30 mW bleibt die Abweichung annähernd konstant. *rechts*: SES Leistungsabhängigkeit bei 10 mW FES.  $^{235}\text{U}$  Anteil wird ab etwa 20 mW konstant mit etwa 25 % überschätzt.

Er geht zurück auf einen autoionisierenden Zustand bei  $50\,471,467\text{ cm}^{-1}$ , welcher durch die Absorption eines zweiten FES Photons erreicht wird. Dieses Anregungsschema mit nur einer Wellenlänge wurde zuerst von Savina et al. beschrieben [100]. Es ist auch der Grund, warum der FES allein ohne weiteren SES eine hohe Zählrate liefert.

Entsprechend ist die Bestimmung der Sättigungsleistung der breiten SES Resonanz schwierig. Bei sehr niedrigen Leistungen im zweiten Anregungsschritt bricht die Zählrate nicht wie üblich ein, sodass keine Sättigungskurven mit entsprechenden Sättigungsleistungen bestimmt werden können. Abbildung 4.2 rechts zeigt jedoch ein resonantes Verhalten aller Uranisotope im Vergleich zum nicht-resonanten Uranoxid. Es ausgeprägtes Sättigungsverhalten des SES ist jedoch auch bei hohen Leistungen nicht erkennbar.

#### 4.1.1. Isotopenverhältnisse

**Resonant** Aus den aufgezeichneten Massenspektren der Messreihen zur Bestimmung der Sättigungsleistung wurden die Uranisotopenverhältnisse berechnet. Ein Spektrum mit 10 mW im ersten und 30 mW im zweiten Anregungsschritt ist beispielhaft im Anhang A.11 abgebildet.

Wie schon bei der Berechnung des Hydridanteils im SIMS Abschnitt 2.3.3, wird die Abweichung zum referenzierten Urananteil der IRMM-2029 Lösung gemäß Gleichung 2.18 angegeben. Da die Messzeiten mit wenigen Minuten kurz waren, dienen diese Messung ausschließlich dem Identifizieren systematischer Abweichungen. Hohe statistische Unsicherheiten insbesondere bei dem niedrig konzentriertem  $^{234}\text{U}$ -Anteil sind entsprechend erwarten worden.

#### 4. SNMS Settings

Abbildung 4.3 zeigt die Abweichungen bei verschiedenen FES und SES Leistungen. Die Messreihe des ersten Anregungsschrittes zeigt eine Überschätzung der Isotope  $^{234}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$  und  $^{236}\text{U}$ , während  $^{238}\text{U}$  unterschätzt wird. Die Abweichung bleibt ab 20 mW konstant bei etwa 20 % zu hohem  $^{235}\text{U}$ -Anteil.

Dies ist dahingehend überraschend, da die geringe Sättigungsleistung des Übergangs und vernachlässigbare Isotopieverschiebung eine gleichberechtigte Ionisation bei Leistungen deutlich oberhalb der Sättigungsleistung vermuten lassen. Dennoch treten hier bereits mehrere systematische Abweichungen auf.

Ein Effekt entstammt den hohen Zählraten des resonanten Signals bei hohen Leistungen (vgl. 4.2). Der Detektor der *TOF-SIMS.5* ist auf das Zählen einzelner Ionen ausgelegt und kann innerhalb seiner Totzeit von 15 ns kein weiteres Ion detektieren. Diese Zeit entspricht der Peakbreite (FWHM) von  $^{238}\text{U}$  bei einer typischen Massenauflösung von 2000. Es kann somit nicht mehr als ein  $^{238}\text{U}$ -Atom pro Zyklus (engl. counts per shot) detektiert werden. Für den Fall, dass mehrere Atome derselben Masse in einem Zyklus ionisiert werden, wird die Zählrate unterschätzt, da sie als eines detektiert werden. Die *TOF-SIMS.5* besitzt sowohl eine statistische Totzeitkorrektur als auch einen optional zuschaltbaren *EDR Analyser* zur Reduktion dieses bekannten Sättigungseffekts.

Ab etwa 10 mW Laserleistung steigt die Zählrate auf 0,1 Ion pro Messzyklus. Da es sich um einen durchschnittlichen Wert gemittelt über das Messfenster und die Peakbreite handelt, ist davon auszugehen, dass es bei höheren Leistungen zu ersten Sättigungseffekten des Hauptisotops  $^{238}\text{U}$  kommt.

Um die Sättigung des Detektor und eine dadurch verursachte Verzerrung der Isotopenverhältnisse zu verhindern, wurde für den SES Scan eine FES Leistung von 10 mW gewählt. Die statistische Totzeitkorrektur war zu jedem Zeitpunkt eingeschaltet. Auf diese Weise blieben die Zählraten bis zu einer SES Leistung von 80 mW unter 0,1 Ion pro Zyklus und auf den Einsatz des *EDR Analysers* konnte verzichtet werden. Durch die angepasste Zählrate konnte die Sättigung des  $^{238}\text{U}$ -Peaks verhindert werden. Dennoch bleibt eine konstante Überschätzung von  $^{235}\text{U}$  um etwa 25 % ab 20 mW vorhanden.

Hier zeigt sich der Einfluss der Hyperfeinstruktur als zweiter Effekt. Der erste Übergang aus dem Grundzustand in das Energieniveau  $25\,235,772\text{ cm}^{-1}$  ist ein  $\Delta j = 0$  Übergang [99]. Aus diesem Grund sind die Übergänge  $m_j = 0 \rightarrow m_j = 0$  verboten [65].

Da  $^{235}\text{U}$  als einziges Isotop einen Kernspin von  $7/2$  besitzt, spalten die Energieniveaus gemäß Hyperfeinstruktur auf. Diese Aufspaltung liegt im MHz Bereich und wird von der Laserlinienbreite (3 GHz) überdeckt. Somit stehen alle aufgespaltenen Niveaus für den Übergang zur Verfügung.

Die geraden Isotope ohne Kernspin besitzen keine Hyperfeinstruktur und somit bleibt der Übergang mit  $m_j = 0 \rightarrow m_j = 0$  verboten. Dieser Einfluss des Kernspins auf die Übergangswahrscheinlichkeiten zwischen Energieniveaus wird auch als *Odd-Even-Effekt* bezeichnet und ist Gegenstand mehrerer Veröffentlichungen [100, 101, 102]. In diesem Fall führt er zur systematischen Bevorzugung der resonanten Ionisation von  $^{235}\text{U}$  um etwa 25 %.

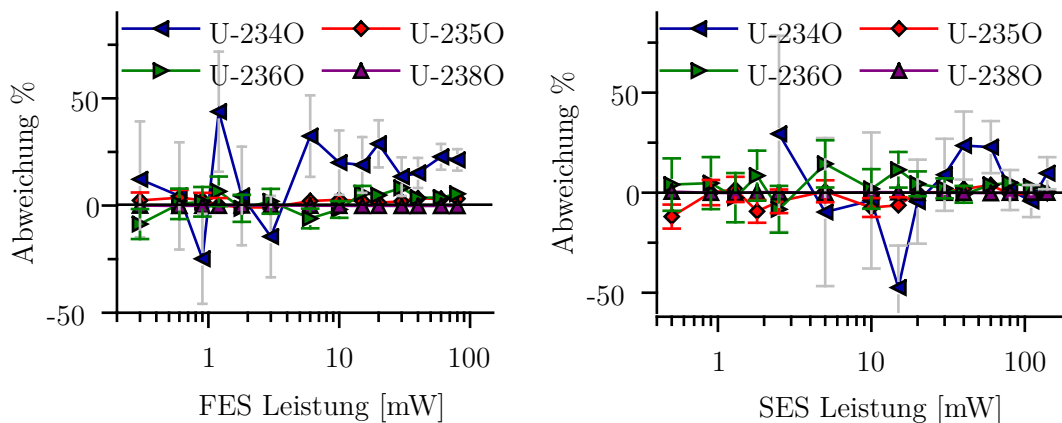


Abbildung 4.4.: Abweichung zum referenzierten Isotopenverhältnis ermittelt aus Uranoxid. *links*: Hohe Leistungen führen zu Sättigungseffekten des Detektors bei  $^{238}\text{UO}$ . Der Anteil wird leicht unterschätzt, während die anderen Anteile überschätzt werden. Zusätzlich wird der  $^{234}\text{UO}$  Anteil durch die isobare Interferenz  $^{238}\text{UC}$  an der Probenoberfläche überschätzt. *rechts*:. Reduzierte FES Leistung von 10 mW verhindert die Detektorsättigung. Es ist keine systematische Abweichung mehr vorhanden.

Es ist deshalb nicht möglich, direkt aus den resonanten Peaks des Massenspektrums auf die Isotopenverhältnisse der Probe zu schließen. Es besteht jedoch die Möglichkeit, die IRMM-2029 Probe mit bekannter Zusammensetzung zur Kalibration zu benutzen. Dabei werden die ermittelten Abweichungen zu den zertifizierten Anteilen verwendet, um die unterschiedlichen Ionisationswahrscheinlichkeiten der individuellen Uranisotope zu bestimmen. Diese können anschließend mit den gemessenen Anteilen einer unbekannt Probe verrechnet werden.

Dieses Verfahren wird näher im Abschnitt 4.2 für Plutonium beschrieben. Es ist insbesondere dann von Interesse, wenn Uran nur im Ultraspurenbereich vorhanden ist und eine effiziente und isobarenfreie Ionisation benötigt wird. In dem Fall von Kernbrennstoffpartikeln stellt Uran jedoch den Hauptbestandteil der Probe ohne nennenswerte isobare Interferenz [38]. Damit steht noch eine weitere Möglichkeit zur Bestimmung der Isotopenverhältnisse an den nicht-resonanten Uranoxiden zur Verfügung.

**Nicht-resonant** Wie im Spektrum des Referenzpartikels im Anhang A.11 zu erkennen ist, werden neben den elementaren auch Laserionen von Uranoxid erzeugt. Diese Moleküle besitzt komplexe Elektronenkonfigurationen, welche im Detail in entsprechender Fachliteratur diskutiert werden [103, 104]. Wichtig ist an dieser Stelle nur, dass sie eine niedrigere Ionisationsenergie besitzen und schon von einem Laser

#### 4. SNMS Settings

im blauen Spektralbereich nicht-resonant ionisiert werden. Die Peaks der Moleküle  $^{234}\text{UO}$  bis  $^{238}\text{UO}$  wurden auf ihre Isotopenverhältnisse ausgewertet. Auch hier soll die Abweichung zu den Referenzwerten überprüft werden, da eventuell gebildete Uranhydroxide einen vergleichbaren Effekt wie Hydride beim elementaren Signal hätten.

Die in Abbildung 4.4 gezeigten Abweichungen des FES Scans weisen aufgrund des nicht vorhandenen Odd-Even-Effekts keine systematische Überschätzung des  $^{235}\text{U}$ -Anteils auf.  $^{234}\text{U}$  unterliegt den erwarteten starken Schwankungen bei niedrigen Leistungen und wird bei hoher Leistung überschätzt. Eine mögliche Ursache ist  $^{238}\text{U}^{12}\text{C}$ , welches ebenfalls auf  $m/z$  250 gemessen wird. Aufgrund der niedrigen Konzentration von  $^{234}\text{U}$  haben bereits geringe Untergrundsignale eine signifikante Erhöhung des berechneten Anteils zur Folge. Da die Kohlenstoffverbindungen hauptsächlich als Raumluftkontamination an der Probenoberflächen vorkommen, wird diese Interferenz nur in den obersten Atomschichten erwartet und sollte bei langen Messungen an Einfluss verlieren.

Analog zum elementaren Uran, kommt es auch bei den Oxiden zu Zählraten von mehr als 0,1  $^{238}\text{UO}$ -Ionen pro Messzyklus, sobald die Leistung des ersten Anregungsschrittes 40 mW überschreitet. Es folgt der gleiche Effekt wie beim elementaren Uran, dass der Detektor erste Sättigungseffekte zeigt und der gemessene  $^{238}\text{U}$ -Anteil unterschätzt wird. So fällt die Abweichung des  $^{238}\text{U}$ -Anteils von  $-0,1(6)\%$  bei 10 mW konstant bis auf  $-0,22(19)\%$  bei 80 mW. Da  $^{238}\text{U}$  den Hauptanteil der Probe stellt, haben diese scheinbar geringen Abweichungen eine signifikante Überschätzung der niedrig konzentrierten Isotope zur Folge.

Die für den SES Scan gewählte FES Leistung von 10 mW verhindert Zählraten größer als 0,07 Ionen pro Zyklus selbst bei SES Leistungen von 140 mW. Die berechneten Isotopenverhältnisse unter Leistungsänderung des zweiten Anregungsschrittes zeigen nun keinerlei systematische Über- oder Unterschätzung mehr. Die Messungen wurden 24 h nach dem FES Scan an derselben Probe durchgeführt. Da sie in der Zwischenzeit im Ultrahochvakuum blieb, sind die Oberflächenkontaminationen geringer und die Überschätzung von  $^{234}\text{U}$  durch  $^{238}\text{UC}$  konnte deutlich reduziert werden.

Somit stellt die nicht-resonante Ionisation von Uranoxid eine gute Alternative zur kalibrierten resonanten SNMS dar. Da sie größtenteils unabhängig von den verwendeten Wellenlängen ist, liegt es nahe, die Uranisotopenverhältnisse aus einem Massenspektrum einer anderen resonanten Elementmessung zu gewinnen. Die in den noch folgenden Abschnitten 4.3 und 5.2.4 vorgestellten Anregungsschemata von Americium und Curium wurden jeweils für drei Langzeitmessungen am Referenzpartikel verwendet.

Abbildung 4.5 zeigt die Abweichungen. Das Anregungsschema von Curium benutzt mit 40 mW im FES und 80 mW im SES hohe Leistungen, weshalb sich auch hier der schon bekannte Sättigungseffekt des  $^{238}\text{UO}$  zeigt. Americium wird mit 10 mW im ersten und 30 mW im zweiten Anregungsschritt gemessen. Dies liefert im Rahmen der statistischen Unsicherheit die referenzierten Isotopenverhältnisse bei einer Abweichung von weniger als 3%. Eine Korrektur der isobaren  $^{17}\text{O}$ -Interferenz wurde durchgeführt, änderte die Werte aber aufgrund des geringen Anteils von 0,07% nur im Rahmen der statistischen Unsicherheit.



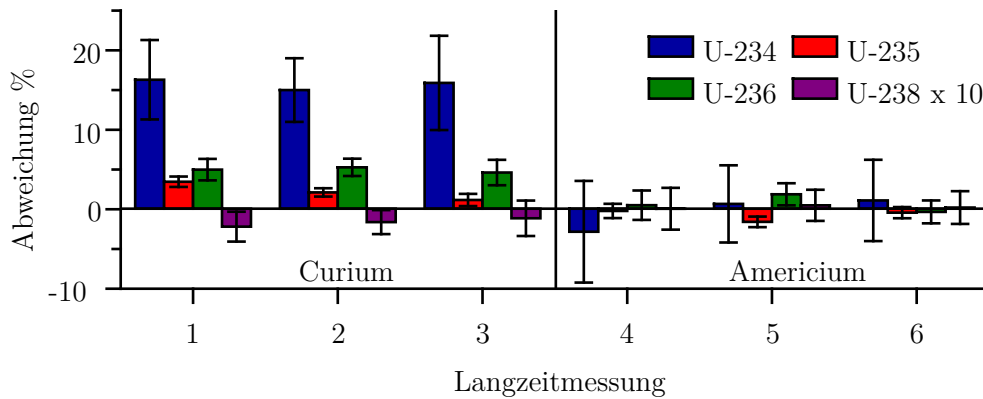


Abbildung 4.5.: Abweichung der Isotopenverhältnisse von Uranoxid bei SNMS Messungen von Curium und Americium. Durch die hohen Leistungen bei Curium (FES 40 mW, SES 80 mW) zeigt sich der erwartete Sättigungseffekt bei  $^{238}\text{UO}$ . Americium (10 mW und 30 mW) liefert im Rahmen der statistischen Unsicherheit die referenzierten Isotopenverhältnisse.

Abschließend müssen noch isobare Interferenzen innerhalb des Kernbrennstoffes ausgeschlossen werden, welche in dem reinen Uranpartikel nicht vorhanden sind. Laut Makarova et al. liegt die Konzentration der einzigen isobaren Interferenz von  $^{238}\text{PuO}$  auf  $m/z$  254 etwa 1:100000 unterdrückt vor [38]. Der dadurch verursachte Messhintergrund liegt innerhalb der statistischen Zählunsicherheit des Uranoxids, weshalb sie als vernachlässigbar angesehen wird. Zusammenfassend zeigt sich, dass die Bestimmung der Uranisotopenverhältnisse durch Auswerten der Uranoxidsignale in der Americium SNMS die beste Messmethode darstellt.

## 4.2. Plutonium

**Linien-scans** Das zweistufige Anregungsschema von Kneip et al. bestehend aus  $24\,188,45(4)\text{ cm}^{-1}$  im ersten und  $24\,690,34(5)\text{ cm}^{-1}$  im zweiten Anregungsschritt wurde am langlebigen  $^{244}\text{Pu}$  entwickelt [95]. In abgebranntem Kernbrennstoff befinden sich jedoch hauptsächlich die fünf Plutoniumisotope  $^{238}\text{Pu}$  bis  $^{242}\text{Pu}$  [38], weshalb die entsprechenden Resonanzen im Folgenden ermittelt werden.

Die Messungen erfolgten an einem eingetrockneten Tropfen abgebrannter Mischoxid-Kernbrennstoff-Lösung (MOX) auf einem polierten Aluminiumblock. Die MOX-Lösung besitzt eine bekannte Zusammensetzung welche in Tabelle A.3 im Anhang angegeben ist. Die glatte und leitfähige Oberfläche des Aluminiumblocks begünstigt die Messgeometrie und sorgt für hohe Zählraten. Eine Messzeit von 180 s pro Datenpunkt reichte aus, um statistisch signifikante Zählraten aufzunehmen. Auf eine Driftkorrektur mit nicht-resonantem Signal konnte verzichtet werden.

Der FES Linien-scan wurde mit einer Leistung von 2 mW durchgeführt. Der SES

#### 4. SNMS Settings

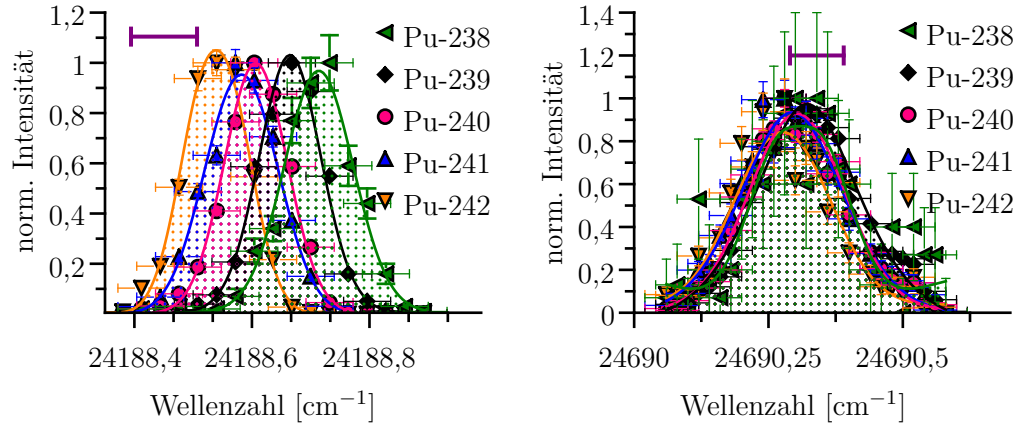


Abbildung 4.6.: Plutonium Linienscans. Der violett markierte Bereich zeigt die  $^{244}\text{Pu}$  Resonanz nach Kneip et al. [95]. *links*: Der FES besitzt eine scharfe Resonanz mit systematischer Isotopieverschiebung von  $-0,044(2) \text{ cm}^{-1}$  pro Neutron *rechts*: Der SES Linienscan hat keine signifikante Verschiebung.

Tabelle 4.3.: Plutonium Resonanzen. Alle Angaben in  $\text{cm}^{-1}$ . <sup>1</sup>Kneip et al. [95], <sup>2</sup>Blaise et al. [105], \*berechnet aus Isotopieverschiebung

	FES	Literatur	Breite	SES	Breite
Pu-238	24188,71(4)		0,139(8)	24690,31(4)	0,17(2)
Pu-239	24188,67(4)	24188,703* <sup>2</sup>	0,125(4)	24690,32(4)	0,24(3)
Pu-240	24188,61(4)	24188,639 <sup>2</sup>	0,126(5)	24690,30(4)	0,207(9)
Pu-241	24188,58(4)		0,148(5)	24690,30(4)	0,23(1)
Pu-242	24188,54(4)		0,125(6)	24690,28(4)	0,21(1)
Pu-244	24188,45(4)*	24188,45(4) <sup>1</sup>		24690,34(5) <sup>1</sup>	

wurde stabilisiert auf  $24\,690,36(4) \text{ cm}^{-1}$  bei 20 mW. Anschließend wurde der SES Linienscan mit 1 mW durchgeführt und der FES bei  $24\,188,624(40) \text{ cm}^{-1}$  auf 5 mW Leistung stabilisiert. Die niedrigen Leistungen waren möglich, da alle Isotope zu mindestens 2% relativem Anteil in der MOX-Probe vorhanden waren. Eine Sättigungsverbreiterung der Resonanzen konnte so weitestgehend vermieden und die Isotopieverschiebung entsprechen genau ermittelt werden.

Abbildung 4.6 zeigt die aufgenommenen Linienscans. Der violett markierte Bereich über den Resonanzen gibt die  $^{244}\text{Pu}$ -Resonanz nach Kneip et al. an [95]. Sowohl die FES- als auch die SES-Resonanzen lassen sich gut mit einer Pseudo-Voigt-Verteilung anpassen. Die Halbwertsbreiten und Mitten sind in Tabelle 4.3 aufgelistet. Für den ersten Anregungsschritt existieren Vergleichsangaben für die Resonanzen von  $^{239}\text{Pu}$  und  $^{240}\text{Pu}$  von Blaise et al. [105]. Beide Werte stimmen mit den gemessenen Werten im Rahmen der Unsicherheit überein. Deutlich zu erkennen ist die systematische

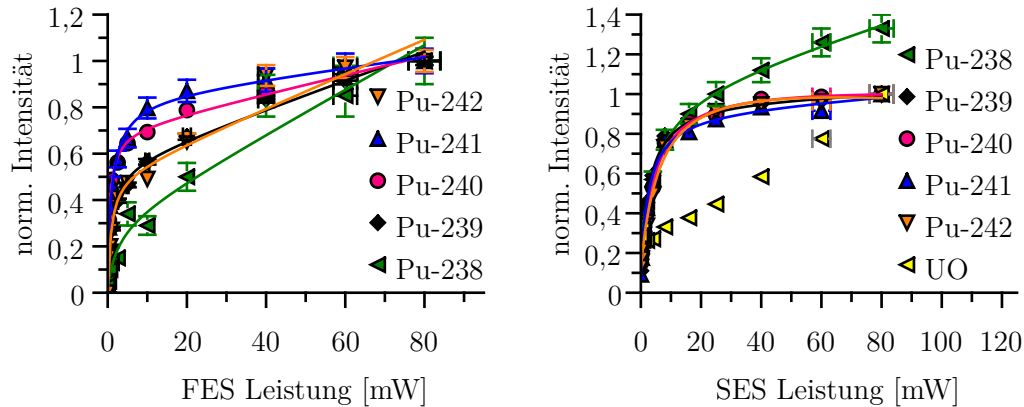


Abbildung 4.7.: Leistungsabhängigkeiten des Plutoniumanregungsschemas *links*: Durch die scharfen Resonanzen im FES und die geringe Linienbreite der Gitterlaser, zeigen die äußeren Isotope  $^{238}\text{Pu}$  und  $^{242}\text{Pu}$  ein weniger ausgeprägtes Sättigungsverhalten. *rechts*: Der SES besitzt keine Unterschiede zwischen den Isotopen. Der Anstieg von  $^{238}\text{Pu}$  bei Leistungen über 25 mW ist auf nicht-resonantes  $^{238}\text{U}$  zurückzuführen. Der Trend von nicht-resonantem Uranoxid dient als Vergleich.

Isotopieverschiebung von  $-0,044(2) \text{ cm}^{-1}$  pro Neutron. Ausgehend von der  $^{242}\text{Pu}$  Resonanz kann so ein theoretischer Wert für  $^{244}\text{Pu}$  von  $24\,188,45(4) \text{ cm}^{-1}$  abgeschätzt werden, welcher mit der Angabe von Kneip et al. übereinstimmt. Die Breite der Resonanz von etwa  $0,13 \text{ cm}^{-1}$  entspricht der Linienbreite des Gitterlasers. Der Wert ist somit als obere Schranke der Resonanzbreite zu verstehen.

Die Schärfe der Resonanz in Kombination mit der Isotopieverschiebung zeigt, dass nur in einem kleinen Wellenlängenbereich zwischen den Resonanzen alle Isotope ionisiert werden. Der erste Anregungsschritt wird deshalb im Folgenden auf  $24\,188,624 \text{ cm}^{-1}$  festgelegt. Da die Wellenlängenangaben hardwarebedingt eine Unsicherheit von  $0,04 \text{ cm}^{-1}$  besitzen, muss vor jeder Messung überprüft werden, ob tatsächlich alle Isotope ionisiert werden.

Der zweite Anregungsschritt zeigt keine signifikante Isotopieverschiebung. Die von Kneip et al. angegebene  $^{244}\text{Pu}$ -Resonanz von  $24\,690,34(5) \text{ cm}^{-1}$  stimmt im Rahmen der Unsicherheit mit allen anderen Isotopen überein. Weitere Literaturwerte für die gemessenen Isotope sind nicht vorhanden. Der SES wurde somit auf  $24\,690,306 \text{ cm}^{-1}$  festgelegt.

**Sättigungsleistung** Nachdem die Wellenlängen für das Anregungsschema ausgewählt wurden, sollen im Folgenden die Leistungsabhängigkeiten analysiert werden. Für die Messreihe des FES wurde der SES auf 40 mW stabilisiert. Die hohe Leistung ist nötig, damit bei geringer FES Leistungen möglichst alle der ineffizient angeregten  $^{238}\text{Pu}$ - und  $^{242}\text{Pu}$ -Atome ionisiert werden und eine akzeptable Zählstatistik erreicht wird.

#### 4. SNMS Settings

Tabelle 4.4.: Plutonium Sättigungsleistungen in mW

	Pu-238	Pu-239	Pu-240	Pu-241	Pu-242
FES	3(2)	1,1(1)	0,8(2)	1,6(4)	0,7(2)
SES	4,9(10)	3,0(2)	5,3(6)	2,7(3)	6,7(11)

Die Messreihe des zweiten Anregungsschrittes wurde aus dem gleichen Grund mit 40 mW im ersten Anregungsschritt durchgeführt. Die Messzeiten lagen bei jeweils 300 s pro Datenpunkt.

Abbildung 4.7 stellt die aufgenommenen Leistungskurven dar. Im ersten Anregungsschritt zeigen die äußeren Isotope  $^{238}\text{Pu}$  und  $^{242}\text{Pu}$  das geringste Sättigungsverhalten. Bei ihnen findet eine effektive Anregung erst bei hohen Laserleistungen und entsprechender Sättigungsverbreiterung statt. Die Isotope mit Resonanzen nahe der gewählten FES Wellenlänge zeigen hingegen den klassischen Sättigungstrend. Dieser Unterschied in der Leistungsabhängigkeit lässt sich damit direkt auf die Isotopieverschiebung zurückführen.

Die Leistungstrends des zweiten Anregungsschrittes sind ebenfalls konsistent mit dem aufgezeichneten Linienscan. Ohne signifikante Isotopieverschiebung ist kein Unterschied im Sättigungsverhalten zwischen den Plutoniumisotopen zu erkennen. Lediglich die Zählrate von  $^{238}\text{Pu}$  scheint sich weiter zu erhöhen, nachdem die anderen Isotope ihre Sättigung erreicht haben.

Dies ist auf nicht-resonantes  $^{238}\text{U}$  zurückzuführen, welches massenspektrometrisch nicht vom  $^{238}\text{Pu}$  aufzulösen ist. Die hohe kombinierte Leistung von 40 mW im FES und entsprechendem SES, führt zu signifikanter Ionisation des Uranisotops auf  $m/z$  238. Es ist etwa 400-fach höher in der MOX-Lösung konzentriert als  $^{238}\text{Pu}$  und trägt ab 25 mW SES Leistung signifikant zur Zählrate bei. Bestätigt wird dies durch den vergleichbaren Trend des ausschließlich nicht-resonant ionisierten Uranoxids. Aus diesem Grund wurde die Intensität von  $^{238}\text{Pu}$  auf die Zählrate des Messwertes mit 25 mW normiert.

Es konnten für alle Isotope sowohl im ersten als auch im zweiten Anregungsschritt die Sättigungsleistungen bestimmt werden. Die in Tabelle 4.4 gegebenen Werte sind niedrig und liegen im Bereich zwischen 0,7 mW bis 6,7 mW. Die Angaben der äußeren Isotope im ersten Anregungsschritt sind aufgrund der gewählten Wellenlänge abseits ihrer Resonanz unter Vorbehalt zu betrachten.

##### 4.2.1. Isotopenverhältnisse

Die ermittelte Isotopieverschiebung des ersten Anregungsschrittes und die daraus resultierenden ungleichen Anregungswahrscheinlichkeiten wirken sich unmittelbar auf die gemessenen Isotopenverhältnisse aus. Dies zeigt die in Abbildung 4.8 dargestellte Abweichung zu den Referenzanteilen der MOX-Probe. Die Isotopenverhältnisse der MOX-Lösung wurden jeweils auf das Messdatum zerfallskorrigiert, da insbesondere der  $^{241}\text{Pu}$  Anteil nicht als konstant angenommen werden kann.

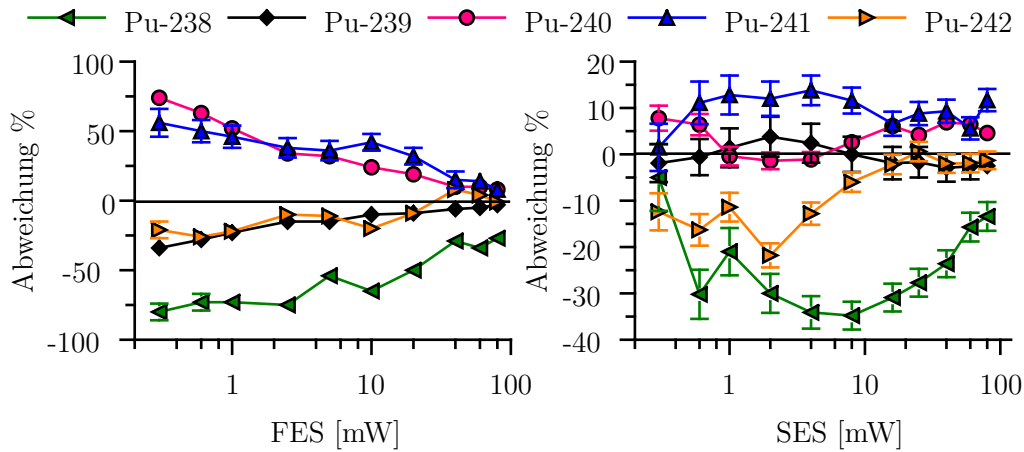


Abbildung 4.8.: Abweichung zum wahren Isotopenverhältnis in Abhängigkeit der Laserleistung. *links*: Im FES führt die steigende Sättigungsverbreiterung zur Abnahme der Abweichung. Der wahre Wert wird jedoch auch bei hohen Leistungen nicht erreicht. *rechts*: Der SES zeigt oberhalb der Sättigungsleistung bei etwa 10 mW keinen systematischen Trend mehr. Die Abweichung spiegeln die gewählten 40 mW im FES wieder. Der  $^{238}\text{Pu}$  Anteil erhöht sich durch nicht-resonant ionisiertes  $^{238}\text{U}$  auf  $m/z$  238.

Mit steigender Leistung im FES nähert sich das gemessene Isotopenverhältnis den wahren Werten an und die Abweichungen sinken. Das Verhalten ist damit konsistent zu der Lage der Resonanzen und dem aufgenommenen Sättigungsverhalten. Allerdings wird auch bei sehr hohen Leistungen und entsprechender Sättigungsverbreiterung keine gleichberechtigte Resonanzionisation erreicht und eine signifikante Abweichung bleibt bestehen.

Die SES Leistung zeigt keinen ausgeprägten Einfluss auf das gemessene Isotopenverhältnis, sobald die Sättigungsleistung des Übergangs bei etwa 10 mW überschritten wird. Lediglich die nicht-resonante Ionisation von  $^{238}\text{U}$  bei hohen Leistungen täuscht einen steigenden Trend von  $^{238}\text{Pu}$  vor. Die hier bestehenden Abweichungen sind als Folge der gewählten FES Leistung anzusehen.

Im Anhang A.12 sind die absoluten Isotopenverhältnisse angegeben. Dort zeigt sich noch einmal, dass selbst bei sehr hohen Leistungen das Verhältnis der benachbarten Isotope  $^{239}\text{Pu}$  und  $^{240}\text{Pu}$  nicht korrekt gemessen werden kann. Die Kombination aus scharfen Atomresonanzen im ersten Anregungsschritt und schmaler Laserlinienbreite machen direkte Rückschlüsse auf die Plutoniumisotopenverhältnisse der Probe unmöglich.

Es ist deshalb nötig, die Anregungswahrscheinlichkeiten der jeweiligen Isotope an einer Probe mit bekannter Zusammensetzung im Vorfeld zu kalibrieren. Auf diese Weise können die gemessenen Ionen einer unbekannt Probe entsprechend skaliert

#### 4. SNMS Settings

werden. Dazu wird für jedes Isotop ein Skalierungsfaktor  $S_i$  eingeführt. Dieser ergibt sich aus dem Verhältnis des referenzierten zum gemessenen Plutoniumanteil gemäß Gleichung 4.4. Für alle Messungen dieser Arbeit wurde die MOX-Probe als Referenz verwendet.

$$S_i = \frac{p_{i,\text{MOX,ref}}}{p_{i,\text{MOX,mess}}} \quad (4.4)$$

Die auf der Probe gemessenen Nettocounts  $n_{i,\text{netto}}$  werden mit ihren entsprechenden Faktoren  $S_i$  multipliziert. Anschließend erfolgt die Berechnung der kalibrierten relativen Anteile  $p_{i,\text{cal}}$  nach Gleichung 4.5.

$$p_{i,\text{cal}} = \frac{S_i(n_{i,\text{res}} - n_{i,\text{non-res}})}{\sum_j S_j(n_{j,\text{res}} - n_{j,\text{non-res}})} = \frac{S_i n_{i,\text{netto}}}{\sum_j S_j n_{j,\text{netto}}} \quad (4.5)$$

Da ausschließlich Zählraten und Referenzwerte mit bekannten Unsicherheiten verwendet werden, ergeben sich die Unsicherheiten der kalibrierten Anteile direkt durch Fehlerfortpflanzung [58, 59]. Diese kalibrierte rL-SNMS kann theoretisch auf alle Elemente erweitert werden, solange eine entsprechende Referenzprobe vorhanden ist. Insbesondere kann der IRMM-2029 Standard verwendet werden, um in resonanten Uran SNMS Messungen den beschriebenen Odd-Even-Effekt zu berücksichtigen.

### 4.3. Americium

Americium ist ein weiteres in Kernbrennstoff vorhandenes Actinid, welches mit  $^{241}\text{Am}$  und  $^{243}\text{Am}$  zwei relevante langlebige Isotope besitzt. Ausgehend von dem von Fred et al. beschriebenen Energieniveau bei  $23\,436,04(10)\text{ cm}^{-1}$  [106] wurden am Institut für Physik der Universität Mainz zwei potenzielle zweite Anregungsschritte identifiziert.

Zur Auswahl standen ein autoionisierender Zustand bei  $25\,033\text{ cm}^{-1}$  und ein Rydberg-Zustand bei  $24\,720\text{ cm}^{-1}$ . Beide Anregungsschritte wurden im Zuge einer von mir betreuten Bachelorarbeit hinsichtlich ihrer Isotopieverschiebung, Effizienz und Selektivität untersucht [30]. Da der Rydberg-Zustand einen fünffach höheren nicht-resonanten Plutoniumuntergrund lieferte, wurde der autoionisierende Zustand bei  $25\,033\text{ cm}^{-1}$  als SES ausgewählt. Details zu den mit Standard TiSas durchgeführten Messungen sind der entsprechenden Bachelorarbeit von Maximilian Heller zu entnehmen [30].

Bis zum Ende dieser Doktorarbeit stand kein Americium Referenzmaterial mit bekanntem Isotopenverhältnis zur Verfügung, weshalb alle Daten zur Beschreibung der Übergänge an einem Brennstoffpartikel aus der Umwelt durchgeführt werden mussten.

**Linienscans** Abbildung 4.9 zeigt die Linienscans des ersten und zweiten Anregungsschrittes. Der Scan des FES wurde mit 5 mW durchgeführt bei einem SES von  $25\,033,46(4)\text{ cm}^{-1}$  mit 45 mW. Jeder Datenpunkt repräsentiert 600 s Messzeit. Die Daten des SES Scans wurden aus der Bachelorarbeit von Maximilian Heller

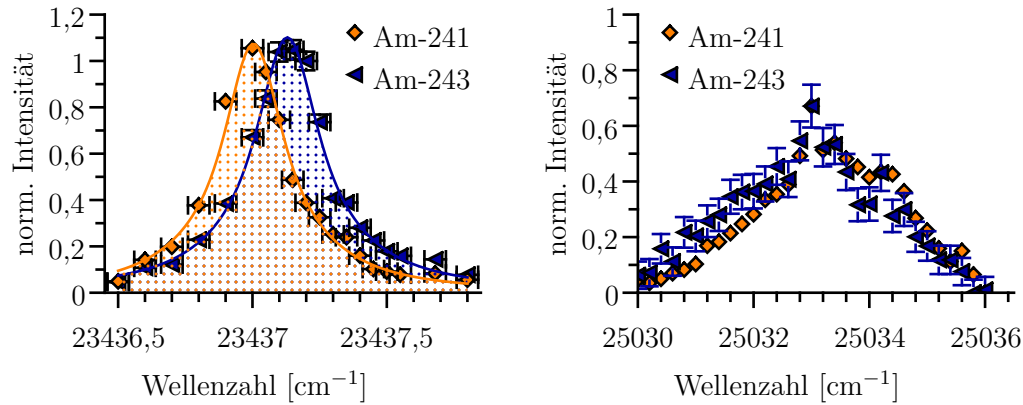


Abbildung 4.9.: Americium Linienscan *links*: Der FES zeigt eine scharfe Resonanz mit einer Isotopieverschiebung von  $0,126(57) \text{ cm}^{-1}$ . *rechts*: Der SES ist unscharf und mehrere Wellenzahlen breit (Daten aus [30]).

Tabelle 4.5.: Erster Anregungsschritt von Americium. Alle Angaben in  $\text{cm}^{-1}$ .  
\*berechnet aus Isotopieverschiebung

	Am-241	Am-243	I.S. (243-241)
Fred et al. [106]	23 437,04(10)	23 437,2(1)*	0,156(100)
Kneip et al.[95]	23 436,98(4)		
M. Heller [30]	23 436,96(4)	23 437,12(4)	0,158(57)
Diese Arbeit	23 437,00(4)	23 437,13(4)	0,126(57)

übernommen. Der Scan wurde durchgeführt mit einem FES bei  $23\,437 \text{ cm}^{-1}$  mit  $5,2 \text{ mW}$  und einer SES Leistung von  $56,5 \text{ mW}$  [30]. Die höheren Leistungen waren nötig, damit das in der Umweltprobe sehr niedrig konzentrierte  $^{243}\text{Am}$  ausreichend Zählstatistik liefert.

Der erste Anregungsschritt lässt sich gut mit einem Pseudo-Voigt-Profil beschreiben. Die Resonanzen sind scharf mit einer Halbwertsbreite von etwa  $0,3 \text{ cm}^{-1}$  bei ausgeprägter Isotopieverschiebung von  $0,126(57) \text{ cm}^{-1}$ .

Für die Resonanz von  $^{241}\text{Am}$  gibt es drei Vergleichswerte, welche alle im Rahmen ihrer Unsicherheit mit dem hier ermittelten Wert von  $23\,437,00(4) \text{ cm}^{-1}$  übereinstimmen (Tabelle 4.5). Die Resonanz von  $^{243}\text{Am}$  wurde von Fred et al. nur mit großer Unsicherheit über die Isotopieverschiebung berechnet, stimmt aber mit den am SNMS System gemessenen Werten überein.

Der SES Linienscan (Abbildung 4.9 rechts) ist sehr unscharf und besitzt über mehrere Wellenzahlen keine signifikante Selektivität. Der zweite Anregungsschritt wurde somit auf den Wert des maximalen Signals bei  $25\,033,46 \text{ cm}^{-1}$  festgelegt.

#### 4. SNMS Settings

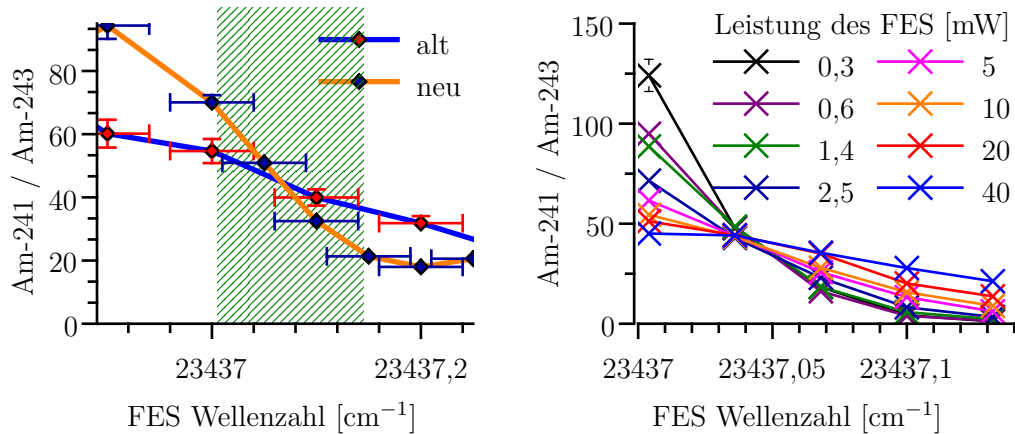


Abbildung 4.10.: *links*: Die aus den Linienscans ermittelten Isotopenverhältnisse zeigen weder im alten noch im neuen System ein Plateau im Bereich zwischen den Resonanzen (grün). *rechts*: Scans mit unterschiedlicher Sättigungsverbreiterung zwischen den Resonanzen liefern an ihrem Schnittpunkt das wahre Isotopenverhältnis und die Wellenlänge gleichberechtigter Anregung. Der FES wird auf  $23437,04 \text{ cm}^{-1}$  festgelegt.

**Isotopenverhältnisse** Analog zum ersten Anregungsschritt von Plutonium ergibt sich auch bei Americium eine starke Abhängigkeit der Anregungswahrscheinlichkeit je nach gewählter FES Wellenlänge. Da kein Referenzmaterial mit bekanntem Isotopenverhältnis für die kalibrierte SNMS zur Verfügung stand, wurde eine andere Methode entwickelt, um die gleichberechtigte Ionisation von  $^{241}\text{Am}$  und  $^{243}\text{Am}$  sicherzustellen.

Ein Vergleich der FES Linienscans dieser Arbeit mit der Bachelorarbeit von Maximilian Heller im Anhang A.13 zeigt den Einfluss der schmalen Linienbreite der Gitterlaser gegenüber den Standard TiSas bei jeweils 5 mW Leistung. Die Halbwertsbreite der angepassten Verteilungsfunktion sinkt von  $0,5 \text{ cm}^{-1}$  auf  $0,3 \text{ cm}^{-1}$ .

Abbildung 4.10 links zeigt die aus den Linienscans ermittelten Isotopenverhältnisse. Weder im alten noch im neuen System ergibt sich ein Plateau im Bereich zwischen den Resonanzen (grün). Somit ist die Laserlinienbreite nicht ausreichend, um den FES beliebig zwischen die Resonanzen zu setzen und das korrekte Isotopenverhältnis zu messen. Dennoch muss in diesem Bereich eine Wellenlänge existieren, bei der beide Isotope die gleiche Anregungswahrscheinlichkeit besitzen.

Bevorzugt der gewählte FES eines der beiden Isotope, verschiebt sich das Isotopenverhältnis zugunsten dieses. Dieser selektive Effekt ist stärker je schmaler die Laserlinienbreite ist. Auf der Wellenlänge gleicher Anregungswahrscheinlichkeit hat er jedoch keinen Effekt. Somit ergibt sich das korrekte Isotopenverhältnis und die gesuchte Wellenlänge aus dem Schnittpunkt der Trends des alten und des neuen Lasersystems.



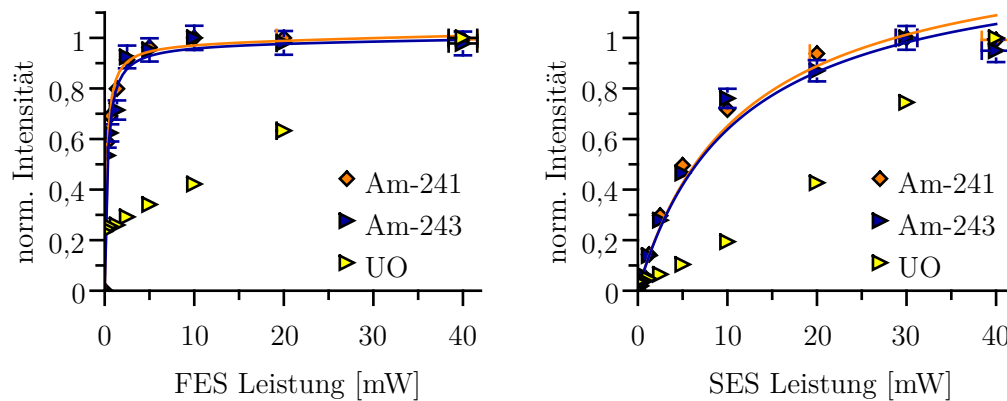


Abbildung 4.11.: Leistungsabhängigkeit des Americiumanregungsschemas. Erster und zweiter Anregungsschritt besitzen ein identisches Sättigungsverhalten.

Tabelle 4.6.: Americium Sättigungsleistung

	Am-241 [30]	Am-241	Am-243
FES [mW]	0,34(7)	0,23(3)	0,30(7)
SES [mW]	8(2)	11(2)	11(2)

Da Vergleichsmessungen zwischen dem alten und neuen Lasersystem vielen Unsicherheiten unterliegen, wurde der Bereich zwischen den Resonanzen erneut vermessen. Es wurden acht Messreihen mit unterschiedlichen Leistungen und damit verbundener Sättigungsverbreiterungen durchgeführt. Die Wellenlänge, bei der die Leistungsänderung keinen Einfluss auf das Isotopenverhältnis hat, regt beide Isotope gleichermaßen an.

Abbildung 4.10 rechts zeigt die Daten der Messreihen. Die Messdauer pro Messpunkt betrug 180 s bei einem SES von  $25\,033,46\text{ cm}^{-1}$  mit 30 mW. Die gesuchte FES Wellenlänge ergibt sich aus den Schnittpunkten bei  $23\,437,04\text{ cm}^{-1}$ .

**Sättigungsleistung** Für das gewählte Anregungsschema von FES  $23\,437,04\text{ cm}^{-1}$  und SES  $25\,033,46\text{ cm}^{-1}$  wurden schließlich die Leistungsabhängigkeiten bestimmt. Diese sollten für beide Isotope bei gleichberechtigter Anregung jeweils übereinstimmen. Die Messdauer betrug 180 s pro Datenpunkt. Der FES Scan wurde mit 30 mW im SES und der SES Scan mit 5 mW im FES durchgeführt.

Die Verläufe sind in Abbildung 4.11 dargestellt. Sowohl der FES als auch der SES besitzen ein klassisches Sättigungsverhalten ohne erkennbaren Unterschied zwischen  $^{241}\text{Am}$  und  $^{243}\text{Am}$ . Das nicht-resonant ionisierte Uranoxid zeigte eine zufriedenstellend lineare Steigung, sodass die Messreihe als vergleichbar angenommen wird. Die ermittelten Sättigungsleistungen sind in Tabelle 4.6 gegeben. Dort sind auch die von

#### 4. SNMS Settings

Maximilian Heller berechneten Sättigungsleistungen von  $^{241}\text{Am}$  aufgeführt. Da auch das alte Lasersystem auf den gleichen Fokus unter dem Extraktor eingestellt wurde, sind die Werte bedingt vergleichbar.

Der erste Übergang ist bereits bei sehr geringen Leistungen von weniger als 1 mW gesättigt. Trotzdem wurde für die Messungen der folgenden unbekanntenen Proben eine FES Leistung von 10 mW gewählt. Die höhere Sättigungsverbreiterung macht die Messung unempfindlicher gegenüber Wellenlängendrifts innerhalb der Messunsicherheit von  $0,4\text{ cm}^{-1}$ . Der SES besitzt keine solch ausgeprägte Isotopenselektivität. Zur Signalmaximierung bei gleichzeitiger Vermeidung zu hoher nicht-resonanter Untergrundzählrate wurde die Leistung kurz über der Sättigungsleistung auf 30 mW festgelegt.

#### 4.4. Technetium

Neben den beschriebenen Actiniden Uran, Plutonium und Americium sind langlebige Spaltprodukte von großem Interesse in der Radioökologie. Das Element Technetium besitzt mit dem Isotop  $^{99}\text{Tc}$  ( $T_{1/2} 2,1 \cdot 10^5\text{ a}$ ) ein solches, welches mit 6,13 % Spaltausbeute von  $^{235}\text{U}$  in relevanten Mengen in abgebranntem Kernbrennstoff vorhanden ist [107].

Die bisher vorgestellte Laserspektroskopie zielte darauf ab, mehrere Isotope eines Elementes gleichzeitig und in korrektem Verhältnis zueinander zu ionisieren. Dies ist bei nur einem langlebigen Isotop hinfällig. Dennoch kann die rL-SNMS mit ihrer hohen Ortsauflösung helfen, die Verteilung des Isotops innerhalb einer Probe zu bestimmen. Zusätzlich bietet sie eine hohe Empfindlichkeit und Isobarenunterdrückung auf  $m/z$  99, weshalb das SNMS System auch für Technetiummessungen ausgelegt wurde.

Durch die hohe Ionisationsenergie von  $57\,421,68(26)\text{ cm}^{-1}$  existiert kein zweistufiges Anregungsschema [108, 109]. Es wird ein dritter Anregungsschritt (TES) für die Resonanzionisation benötigt. Ein entsprechendes Anregungsschema wurde 2012 von Wendt et al. entwickelt [110]. Es besteht aus zwei Wellenlängen im blauen Spektralbereich (FES  $23\,265,33\text{ cm}^{-1}$ , SES  $25\,306,77\text{ cm}^{-1}$ ) und einem im roten (TES  $11\,929,7\text{ cm}^{-1}$ ).

Da nur ein Isotop gemessen werden soll, wurde auf Linienscans verzichtet und nur die Leistungsabhängigkeit der einzelnen Schritte analysiert. Analog zur Charakterisierung des Americiumschemas ist auch hier ein Brennstoffpartikel als Referenzprobe verwendet worden.

**Sättigungsleistung** Da der neue Aufbau des SNMS Systems die Kombination von Standard und Gitter TiSas ermöglicht (siehe Abschnitt 3.4), konnte der dritte Anregungsschritt unkompliziert von einem Standard TiSa durchgeführt werden. Die zwei blauen Anregungsschritte hingegen liegen im erreichbaren Wellenlängenbereich der Gitter TiSas. Die verwendeten Leistungen des FES Scan waren 75 mW im SES und 300 mW im TES. Der SES Scan wurde mit einem FES von 15 mW und einem

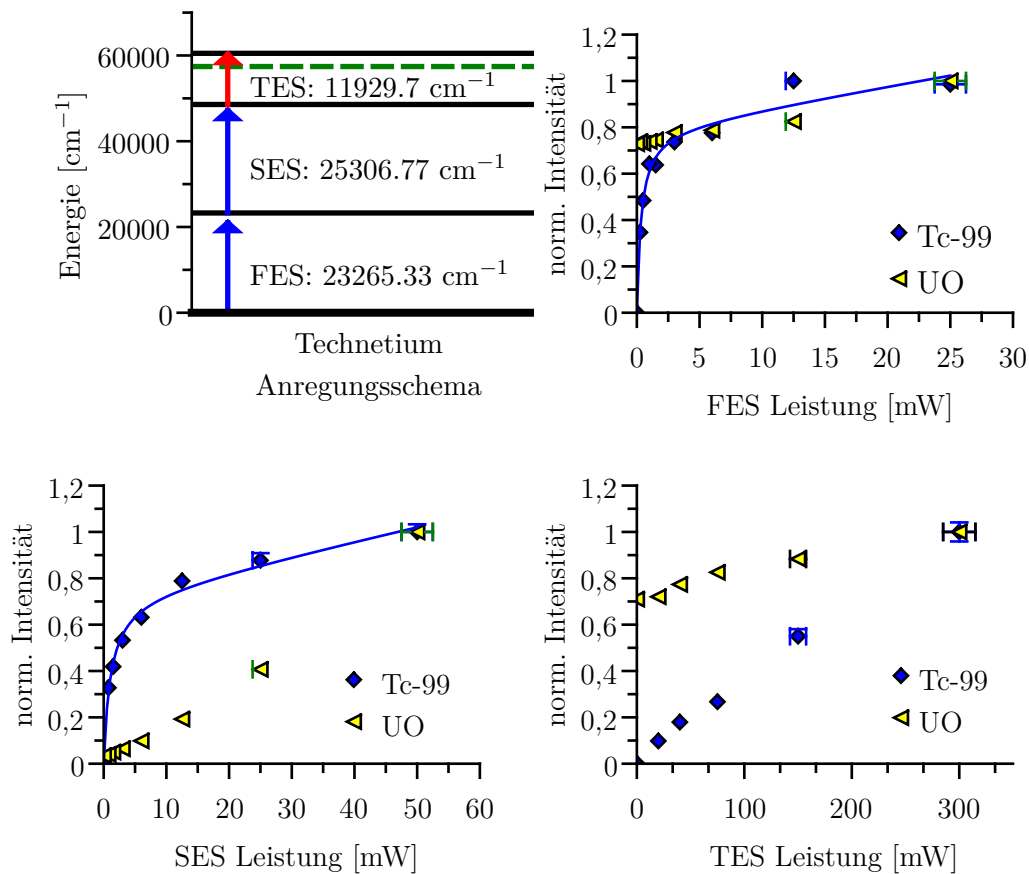


Abbildung 4.12.: Technetium Anregungsschema von Wendt et al. [110]. Die hohe Ionisationsenergie von  $57\,421,68(26)\text{ cm}^{-1}$  (grüne Linie) [108] erzwingt einen dritten Anregungsschritt. FES und SES zeigen klassisches Sättigungsverhalten, während der TES ohne erkennbare Sättigung ist. Uranoxid als nicht-resonanter Vergleich.

TES von 300 mW durchgeführt. Schließlich wurde der TES Scan bei einem FES von 15 mW und einem SES von 20 mW durchgeführt. Jeder Messpunkt entspricht einer Messdauer von 300 s. Die Messungen wurden im *fast imaging* Modus der Primärionenquelle durchgeführt, welche eine Ortsauflösung unterhalb von einem Mikrometer erlaubt.

Die aufgenommenen Sättigungskurven sind in Abbildung 4.12 gezeigt. FES und SES besitzen ein klassisches Sättigungsverhalten mit den in Tabelle 4.7 gegebenen Sättigungsleistungen. Im dritten Anregungsschritt hingegen steigt das <sup>99</sup>Tc-Signal nahezu linear mit der Leistung. Als nicht-resonanter Vergleich ist das Uranoxidsignal gegeben. Die Eigenschaft, dass der dritte Anregungsschritt kein Sättigungsverhalten zeigt, wurde ebenfalls in der Dissertation von Michael Franzmann diskutiert [22]. Dort wurde das gleiche Anregungsschema mit den Standard TiSas untersucht. Die

#### 4. SNMS Settings

Tabelle 4.7.: Technetium Sättigungsleistungen

	FES [mW]	SES [mW]	TES [mW]
M. Franzmann [22]	0,3(1)	3,5(8)	>2400
Diese Arbeit	0,33(7)	1,1(2)	>300

dort ermittelten Sättigungsleistungen sind zum Vergleich ebenfalls in Tabelle 4.7 gegeben. Die Werte sind durch die unterschiedlichen Lasersysteme nur bedingt vergleichbar, liegen aber im selben Bereich. Insbesondere anzumerken ist, dass beim Fehlen einer der drei Anregungsschritte kein  $^{99}\text{Tc}$ -Ion innerhalb der Messzeit von 5 min detektiert wurde. Somit werden auch bei hohen Laserleistungen ausschließlich resonante Ionen produziert. Dies ist eine direkte Folge der hohen Ionisationsenergie von Technetium, was die nicht-resonante Laserionisation dieses Elements deutlich erschwert.

Bei der Wahl der Messleistungen sollte beachtet werden, dass FES und SES über den Sättigungsleistungen betrieben werden. Darüber hinaus führt eine Leistungserhöhung zur nicht-resonanten Ionisation zusätzlicher Elemente. Insbesondere Alkalimetalle wie Natrium und Kalium liefern aufgrund ihrer niedrigen Ionisationsenergie gute Zählraten. Da rL-SNMS Messungen von Technetium vornehmlich zur Bestimmung der räumlichen Verteilung in der Probe durchgeführt werden, kann über die Leistung der Kontrast des Ionenbildes eingestellt werden.

#### 4.5. ToF-SIMS Settings

Nachdem die Laserparameter festgelegt wurden, soll in diesem Abschnitt auf die ToF-SIMS Parameter eingegangen werden. Diese können in zwei Bereiche unterteilt werden. Der erste umfasst die Einstellungen der Primärionenquelle und ihre Betriebsmodi. In dieser Arbeit fanden sowohl der *spectrometry* als auch der *fast imaging* Modus Verwendung.

Im *spectrometry* Modus besitzt der gepulste  $\text{Bi}_3^+$ -Strom eine Stärke von 5 pA, eine laterale Auflösung unter 5  $\mu\text{m}$  und eine minimierte Pulslänge von 0,9 ns. Durch die kurze Auftreffdauer werden Ionenpakete minimaler Ausdehnung erzeugt, weshalb dieser Modus für SIMS Messungen mit hoher Massenauflösung verwendet wird.

Der *fast imaging* Modus fokussiert den Primärionenpuls stärker auf 150 nm und erlaubt somit eine deutlich höhere Ortsauflösung der generierten Ionenbilder. Um die Menge der generierten sekundären Teilchen nicht zu sehr zu reduzieren, wird die Pulslänge auf 100 ns erhöht. Die Stromstärke sinkt so nur um den Faktor 14 auf 0,35 pA. Da die Auftreffdauer des Primärionenpulses lang ist, generiert dieser Modus ausgedehnte sekundäre Ionenpakete, was zu entsprechend breiten Massenpeaks im SIMS Massenspektrum führt.

Der zweite grundlegende Einstellungsbereich betrifft den Massenanalysator. Die enthaltenen Ionenoptiken müssen auf Spannungen eingestellt werden, die möglichst

Tabelle 4.8.: Spannungen der Ionenoptiken des Flugzeitanalysators in Volt

	Extraktor	Energy	Lens	VDP	Reflektron
Franzmann [22, 80]	1450	3000 (max)	4619	400 (max)	300 (max)
Bosco [23]	1450	3000 (max)	$\approx 4225$	400 (max)	$\approx 90$
SIMS 600 ns delay	1000	2000	$\approx 3000$	$\approx 225$	15
Neu SNMS	1000	2000	$\approx 3000$	$\approx 225$	$\approx 15$

alle Ionen in einem kompakten Paket auf den Detektor leiten. In der Dissertation von Michael Franzmann wurden die Trajektorien der Laserionen simuliert und die in Tabelle 4.8 angegebenen Spannungen festgelegt [22, 80].

Die Werte stellten sich als untauglich für nicht-leitende Proben heraus, sodass in einer von mir betreuten Bachelorarbeit der Einfluss der Spannungen auf Transmission und Massenauflösung untersucht wurde. Es wurden drei kritische Parameter des Analysators identifiziert (**Lens**, **VdP** und **Reflektron**). Diese müssen jeder Probe entsprechend ihrer Leitfähigkeit und Geometrie angepasst werden. Eine generelle Angabe optimaler Werte ist nicht zielführend. Weitere Details zur SNMS auf nicht-leitenden Proben sind der Bachelorarbeit von Marie Bullwinkel zu entnehmen [28]. Ausgehend von diesen Ergebnissen wurden bereits die SNMS Einstellungen für leitende Proben im Laufe der Dissertation von Hauke Bosco angepasst (Tabelle 4.8)[23]. Für diese Arbeit wurde hingegen ein neuer Ansatz gewählt und die auf der Simulation basierenden Werte verworfen. Insbesondere die Verwendung von Maximalspannungen lassen keinen Handlungsspielraum zur Optimierung von Transmission und Massenauflösung.

Die Einstellung der Ionenoptiken erfolgt in zwei Schritten. Zuerst werden die Analysatorspannungen für eine SIMS Messung mit 600 ns Extraktionsverzögerung eingestellt und anschließend auf der Probe optimiert. Die große Wartezeit zwischen Primärionenpuls und Extraktion ist nötig, damit bei der folgenden SNMS die generierten Sekundärionen von der BIAS Spannung aus dem Extraktionsbereich entfernt werden können. Die in Tabelle 4.8 gegebenen Werte stammen zur Vergleichbarkeit alle von derselben Probe. Die gewählten Spannungen unterscheiden sich deutlich von den Werten vergangener Arbeiten. Insbesondere werden keine Maximalwerte verwendet. Für die Optimierung der SNMS Messung wird zuerst die BIAS Spannung eingeschaltet und die Sekundärionen unterdrückt. Die leicht abgelenkte Flugbahn der Primärionen wird an **LMIG X Target** korrigiert. Die Laser erzeugen nach der Koppelung der Trigger Ionen innerhalb der Neutralteilchenwolke. Diese befindet sich an der Position, wo zuvor die Sekundärionen durch die BIAS Spannung entfernt wurden. Entsprechend sind alle für die SIMS gewählten Analysatorspannungen ein guter Ausgangswert für die Laserionen der SNMS. Die Feinjustage der Spannungen erfolgt direkt an dem SNMS Signal der Probe. Dies beinhaltet insbesondere die Analysatorspannungen **X,Y Deflection** und **Lens** für die Transmission, sowie **VDP** und **Lens** für die Massenauflösung.

Abbildung 4.13 zeigt drei Uran SNMS Massenspektren der gleichen Probe und Ionen-

#### 4. SNMS Settings

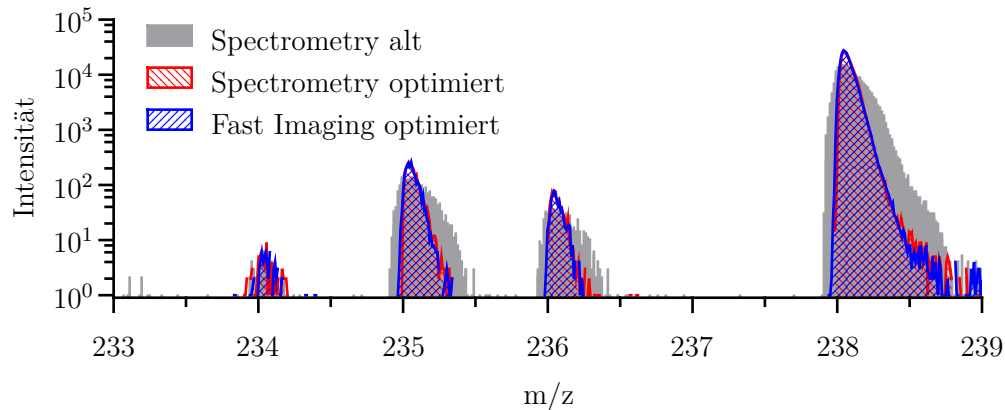


Abbildung 4.13.: Vergleich der SNMS Einstellung. Alle Messungen zeigen die gleiche Ionenanzahl. Die neuen Parameter liefern eine bessere Massenauf-  
 lösung. Es gibt keinen Unterschied zwischen *spectrometry* und *fast imaging*, da der Ionisationsprozess unabhängig von der Form des  
 Primärionenpulses ist.

anzahl. Die Transmission der alten und neuen Werte ist in etwa gleich. Die Messdauer im *spectrometry* Modus betrug 60 s bzw. 61 s. Im *fast imaging* Modus verringert sich die Anzahl generierter Ionen entsprechend dem reduzierten Primärionenstrom um den Faktor 14. Somit steigt die Messdauer auf 983 s für die gleiche Ionenanzahl. Im Vergleich zu den alten Werten, verbessert sich die Peakform und Massenauf-  
 lösung jedoch deutlich.

Da die Ionenerzeugung bei der SNMS unabhängig von der Art des Primärionen-  
 pulses erfolgt, ist der Messmodus für die Peakform irrelevant. Die Wahl zwischen  
*spectrometry* und *fast imaging* Modus ist ausschließlich eine Abwägung zwischen  
 lateraler Auflösung unter 5  $\mu\text{m}$  und 14-fach höherem Ionensignal.

Die Massenauf-  
 lösung der SNMS ist limitiert durch die Laserpulsbreite von etwa 20 ns  
 und den Durchmesser der Neutralteilchenwolke nach der Extraktionsverzögerung. Die  
 in dieser Arbeit erreichten Peakbreiten bei Messungen an hot particles entsprechen  
 einer Massenauf-  
 lösung von 3000 in der SNMS und 8000 in der SIMS jeweils gemessen  
 bei  $m/z$  238.

Mit den neuen Parametern ist es insbesondere möglich, Hybridmessungen von SIMS  
 und SNMS durchzuführen. Durch die frei wählbare BIAS Spannung kann der Grad  
 der Sekundärionenunterdrückung eingestellt werden.

Da die gewählten Parameter des Flugzeitanalysators für SIMS und SNMS sehr  
 ähnlich sind, erlaubt dies die gleichzeitige Auswertung von SIMS und SNMS Peaks.  
 So können zusätzliche Sekundärionensignale für eine bessere Bildgebung in SNMS  
*fast imaging* Ionenbilder eingebunden werden.

## 5. SNMS Messungen

Nachdem auf die Einstellungen der SNMS Messungen im vorherigen Kapitel eingegangen wurde, sollen nun die durchgeführten Analysen vorgestellt werden. Das ursprüngliche Probenmaterial, aus denen die Partikel stammen, wurde an vier verschiedenen Orten innerhalb der Sperrzone Tschernobyls gesammelt. Es handelt sich um Bodenproben, aufgenommen 1600 m westlich des Reaktors nahe dem roten Wald, Sedimentproben vom Rand des Kühlteiches 3400 m in süd-östlicher Richtung, Bodenproben eines Feldes nahe der ehemaligen Stadt Kopatschi 5000 m südlich und einem Bohrkern aus Asphalt vom Marktplatz der Stadt Prypiat 3400 m nord-westlich. Die genauen Geokoordinaten sind im Anhang in Tabelle A.1 gegeben. Die Standorte sind dort ebenfalls auf der Karte A.3 abgebildet.

Die Vorbereitung des Probenmaterials ist nicht Gegenstand dieser Arbeit. Lokalisation, Isolation und Präparation von Mikrometer großen Kernbrennstofffragmenten aus Bodenproben ist Thema zahlreicher am IRS durchgeführter Abschlussarbeiten. Es wird deshalb nur zusammenfassend das Verfahren vorgestellt. Detaillierte Informationen sind vornehmlich den Dissertationen von Martin Weiß [24] und Wolfgang Schulz [111], sowie den entsprechend betreuten Abschlussarbeiten von Laura Leifermann und Paul Hanemann zu entnehmen [27, 29, 25].

**Probenvorbereitung** Zur leichteren Identifizierung der Partikel innerhalb der Bodenprobe wird zunächst die Menge an normalem Umweltmaterial reduziert. Dazu werden etwa 5 g Rohmaterial aufgeschlämmt und gesiebt. Der Großteil der Aktivität verbleibt in der kleinsten Fraktion mit einem Durchmesser von weniger als 63  $\mu\text{m}$  Partikelgröße. Kernbrennstoffpartikel größer als 63  $\mu\text{m}$  können leicht mit einem Kontaminationsmonitor in den groben Fraktionen gefunden werden.

Nach der Trocknung des Materials wird im nächsten Schritt die hohe Dichte des abgebrannten Kernbrennstoffs von 10,42  $\text{g cm}^{-3}$  ausgenutzt [112]. Ein Teil der kleinsten Fraktion wird in eine Polywolframatlösung mit einer Dichte von etwa 3  $\text{g cm}^{-3}$  gegeben und für mehrere Minuten zentrifugiert. Die schweren Kernbrennstofffragmente setzen sich in der dichten Fraktion am Boden des Probengefäßes ab, während ein Großteil der Umweltpartikel aufschwimmt. Diese Flotation der Brennstoffpartikel in Umweltproben wurde 2002 von Ahamdach et al. entwickelt [113].

Nach der Trennung wird die dichte Fraktion aus der Polywolframatlösung gefiltert, auf doppelseitigem Klebeband verteilt und in ein Rasterelektronenmikroskop überführt. In diesem können die einzelnen Partikel mittels energiedispersiver Röntgenspektroskopie (EDX) auf ihre elementare Zusammensetzung untersucht werden. Besteht ein Partikel hauptsächlich aus Uran, wird er via Mikromanipulator (*Kleindiek Nanotechnik*) aus der Probenmatrix auf eine Wolframnadel transferiert. Der

Partikel wird mit *SEM Glu* (*Kleindiek Nanotechnik*) auf der Nadel fixiert und auf einem eigens entwickelten Probenträger auf der Stage der ToF-SIMS befestigt.

## 5.1. Ortsauflösung

### 5.1.1. Technetium

Technetium besitzt als Pertechnetat  $\text{TcO}_4^-$  eine hohe Mobilität in der Umwelt. Informationen über die exakten Transportwege innerhalb der Biosphäre sind deshalb von hohem Interesse [114]. Insbesondere das Verhalten bei einer ungewollten Freisetzung aus einem zukünftigen Endlager und mögliche Rückhalteoptionen sind Gegenstand aktueller Forschung [115, 116].

Zu diesem Zweck wurde getestet, wie gut das SNMS System im *fast imaging* Modus bei reduziertem Primärionenstrom die Verteilung von  $^{99}\text{Tc}$  an der Oberfläche eines Brennstoffpartikels darstellen kann. Die in Indium gepresste Probe *RW-001* stellt einen geeigneten Test dar, da das nicht-resonant ionisierte Indium einen klaren Kontrast zum Partikel bietet. Die Messzeit der resonanten und im FES um  $2\text{ cm}^{-1}$  verstimmten Messung betrug jeweils knapp eine Stunde. Resonant wurden 2725 und verstimmt 5 Ionen auf  $m/z$  99 detektiert. Letzteres entspricht dem Maschinenhintergrund bei dieser Messdauer. Die Zählrate der resonant ionisierten Atome ist somit auch bei schwachem Primärionenstrom noch ausreichend für signifikante Zählstatistik. Die Massenspektren sind im Anhang A.14 gegeben.

Die Abbildung 5.1 zeigt die erhaltene Ionenverteilung von  $^{99}\text{Tc}$  (grün), Indium (rot) und Urandioxid (blau). Die *fast imaging* SNMS erreicht auch bei unebenen Proben

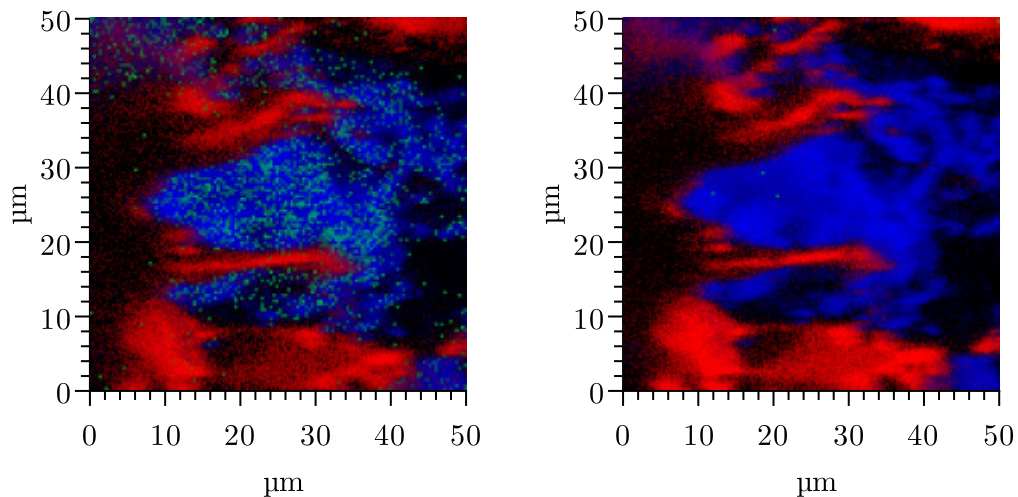


Abbildung 5.1.: Technetium SNMS Messung *links*: Die resonanten  $^{99}\text{Tc}$ -Ionen (grün) kommen ausschließlich vom hot particle bestehend aus  $\text{UO}_2$  (blau). Das umgebende Indium (rot) zeigt kein Technetium. *rechts*: In der verstimmten Messung werden kaum Ionen auf  $m/z$  99 gemessen.



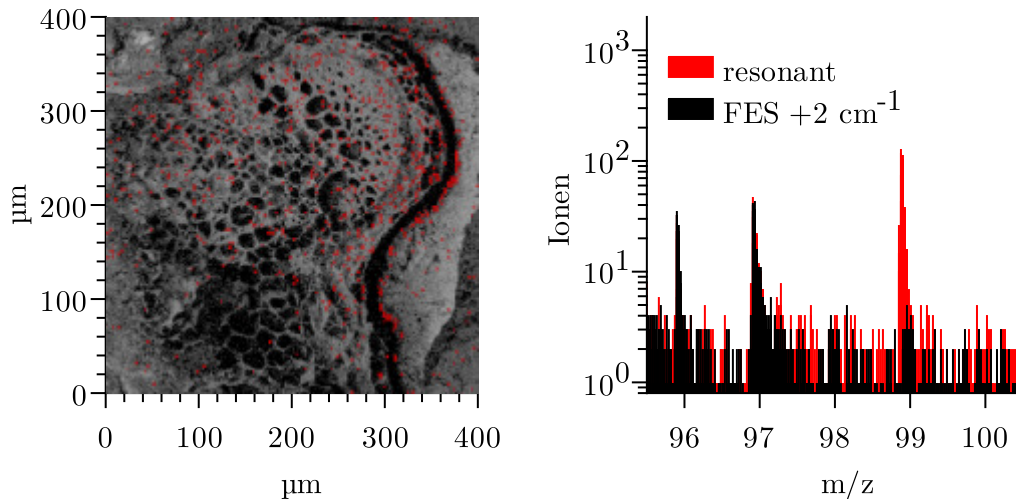


Abbildung 5.2.: *links*: In dem Querschnitt eines Erbsenstiels konnten  $^{99}\text{Tc}$ -Ionen (rot) in der Rinde und Epidermis gemessen werden [117, 119]. *rechts*: Der Vergleich der Massenspektren belegt, dass es sich um Technetium handelt.

eine laterale Auflösung unter einem Mikrometer. Die Grenzen zwischen hot particle und Indium sind scharf und gut aufgelöst. Das resonant ionisierte  $^{99}\text{Tc}$  stammt ausschließlich aus dem Gebiet des Uranidoxids und kann damit dem hot particle zugeordnet werden.

Die zufriedenstellende Ortsauflösung und Zählrate waren Anlass für weitere Messungen von komplexeren Proben. Das Forschungsprojekt *Translara* am IRS untersuchte unter anderem den Transportmechanismus von Technetium in Pflanzen. Diese wurden über die Wasseraufnahme mit  $^{99}\text{Tc}$  kontaminiert und nach umfangreicher Präparation per SNMS auf ihre Technetiumverteilung analysiert. Die Querschnittsmessung eines Erbsenstiels soll hier beispielhaft vorgestellt werden. Sowohl in der Dissertation von Marcus Mandel als auch in der Masterarbeit von Linus Holtmann finden sich umfangreiche Informationen zur Probenvorbereitung und detaillierte Diskussionen der weiteren Messergebnisse [117, 118]. Abbildung 5.2 zeigt die resonante SNMS Messung des Querschnitts. Die Messdauer des  $400\ \mu\text{m} \times 400\ \mu\text{m}$  großen Messfensters betrug 82 min bei einer Auflösung von  $256 \times 256$  Pixeln. Das gesamte Ionensignal (grau) lässt die einzelnen Bereiche des Pflanzenstiels erkennen. Das Technetium (rot) ist hauptsächlich der Rinde und Epidermis zuzuordnen. Die rechts gezeigten Massenspektren der Messungen belegen, dass es sich zum Großteil um resonant ionisiertes  $^{99}\text{Tc}$  handelt und nur ein geringer Einfluss von nicht-resonanten Ionen auf  $m/z$  99 vorhanden ist.

Die analysierten Pflanzen können aufgrund von radiotoxischen Effekten nicht mit hohen  $^{99}\text{Tc}$ -Konzentrationen kontaminiert werden. Entsprechend sind in den analysierten Querschnitten nur  $1 \cdot 10^{10}$  bis  $1 \cdot 10^{11}$  Technetiumatome (10 pg bis 100 pg) vorhanden [117]. Der Nachweis solch geringer Konzentrationen mittels konventio-

## 5. SNMS Messungen

neller SIMS wäre aufgrund der Vielzahl an molekularen isobaren Interferenzen der Pflanzenprobe auf  $m/z$  99 unmöglich. Das SNMS System ist somit das einzige Messsystem, welches im Stande ist, direkt die Verteilung mit einer solchen Ortsauflösung zu bestimmen. Die Ergebnisse wurden in der renommierten Fachzeitschrift *Journal of Hazardous Materials* veröffentlicht [119].

### 5.1.2. Actiniden Scan

An dem von Indium umgebenen Partikel wurden ebenfalls *fast imaging* Messungen von Uran, Plutonium und Americium durchgeführt. Demonstriert werden soll, dass es durch das automatische Verfahren der Anregungsschemata möglich ist, mehrere Elemente in einer kontinuierlichen Messung nacheinander resonant zu ionisieren.

Zur Signalmaximierung der niedrig konzentrierten Isotope  $^{234}\text{U}$  und  $^{238}\text{Pu}$  wurden die Anregungsschemata leicht zugunsten deren Resonanzen verschoben und die in Anhang A.15 angegebenen Wellenlängen verwendet. Die Leistungen wurden auf 15 mW im ersten und 30 mW im zweiten Anregungsschritt festgelegt. Dies sichert eine ausreichende Sättigungsverbreiterung für den Plutonium FES und die Sättigung des Americium SES. Das Messfenster betrug  $20\ \mu\text{m} \times 20\ \mu\text{m}$  bei einer Auflösung von  $256 \times 256$  Pixeln. Der zeitliche Verlauf dieser Messung und das resultierende Ionensignal sind in Abbildung 5.3 gezeigt.

Jedes Element wurde für 30 min gemessen. Zwischen den farbig markierten Messungen wurden die Laserstrahlen geblockt und automatisch die nächste Resonanz angesteuert. Nachdem Wellenlänge und Leistung stabil waren, wurden die Laserpulse am Delay Generator erneut zeitlich synchronisiert und die Messung des neuen Elements begann. Insbesondere wurden keine Änderungen an der Strahlführung durchgeführt. Die Wechselzeit zwischen den Anregungsschemata betrug weniger als 10 min.

Das in Abbildung 5.3 unten dargestellte Ionensignal zeigt die jeweiligen resonant ionisierten Isotope des ausgewählten Elements. Die Datenpunkte geben die für 66 summierten Ionen auf dem  $m/z$ -Intervall an. Bei allen drei Anregungsschemata war nicht-resonant ionisiertes Uranoxid als Hauptbestandteil des Brennstoffpartikels das gleichbleibend dominierende Signal. Dies belegt, dass auch unter Wechsel der Anregungsschemata die Laser ihre Position in der Neutralteilchenwolke halten. Die zeitintensive Ausrichtung der Laserstrahlen muss somit nur einmal pro Probe und gewähltem Messfenster durchgeführt werden.

Im Zuge ihrer jeweiligen resonanten Messung werden auch die niedrig konzentrierten Isotope  $^{242}\text{Pu}$  und  $^{243}\text{Am}$  mit ausreichender Intensität detektiert. Die Isotope der anderen Elemente sinken hingegen auf Untergrundniveau ab. Die einzige Ausnahme hiervon bildet das Hauptisotop  $^{238}\text{U}$ , welches während der Americium- und Plutoniummessung in geringem Maße mitionisiert wird. Da Americium kein bedeutendes Isotop der Masse 238 besitzt, ist dies nur für die  $^{238}\text{Pu}$ -Detektion ein Problem, welches in Abschnitt 5.2.2 genauer betrachtet wird.

Die aus den markierten Messungen erstellten Massenspektren sind im Anhang A.16 zu finden. Das Spektrum der Uranmessung verdeutlicht, dass das geringe Signal

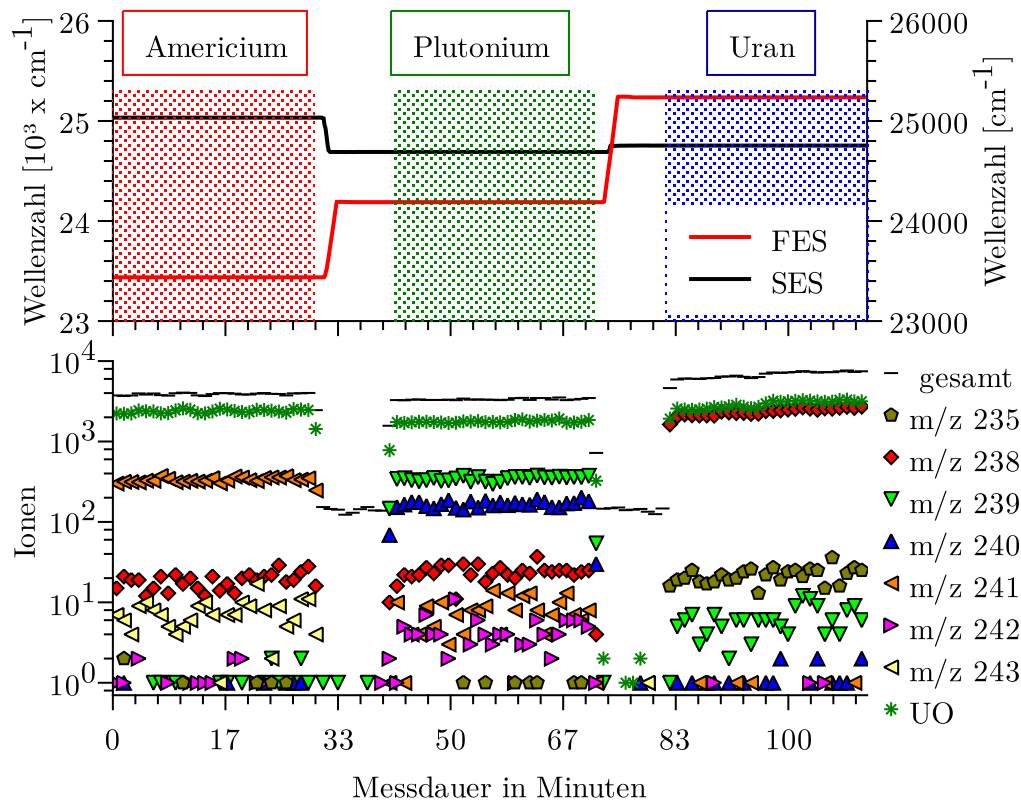


Abbildung 5.3.: Zeitlicher Verlauf einer *fast imaging* SNMS Messung *oben*: Wellenzahlen der Laser. Die markierten Bereiche geben die entsprechende Elementmessung an. *unten*: Das resultierende Ionensignal. Je nach Anregungsschema werden die Isotope auf ihrem entsprechenden  $m/z$ -Intervall gemessen.  $^{238}\text{U}$  als Hauptbestandteil bleibt die einzige nicht-resonante Interferenz.

auf  $m/z$  239 dem Peak tailing von  $^{238}\text{U}$  zuzuordnen ist. Eine Ionisation von  $^{238}\text{U}$  ist, sofern sie überhaupt stattfindet, deutlich weniger ausgeprägt als bei der SIMS. Da die Messung im *fast imaging* Modus durchgeführt wurde, kann die Herkunft der Ionen mit einer räumlichen Genauigkeit von unter  $1\ \mu\text{m}$  abgebildet werden. Die resultierenden Ionenbilder sind in Abbildung 5.4 gezeigt. Das nicht-resonante Uranoxid und Urandioxid ergeben den bereits aus der Technetiummessung 5.1 bekannten Umriss des Partikels. Zur besseren Sichtbarkeit wurden vier Pixel der niedrig konzentrierten Isotope  $^{235}\text{U}$  und  $^{243}\text{Am}$  zu einem kombiniert. Letzteres ist in abgebranntem Kernbrennstoff aus RBMK Reaktoren mit nur  $1\ \text{g/tU}$  vorhanden und stellt somit das Signal der geringsten Konzentration dar [38]. Der niedrige Primärionenstrom senkt die Zählrate um den Faktor 14 und verhindert somit einen klaren Kontrast in den Abbildungen. Dennoch besitzen auch die niedrig konzentrierten Isotope eine gleichmäßige Verteilung über die Partikeloberfläche. Dagegen liefert das umschließen-

## 5. SNMS Messungen

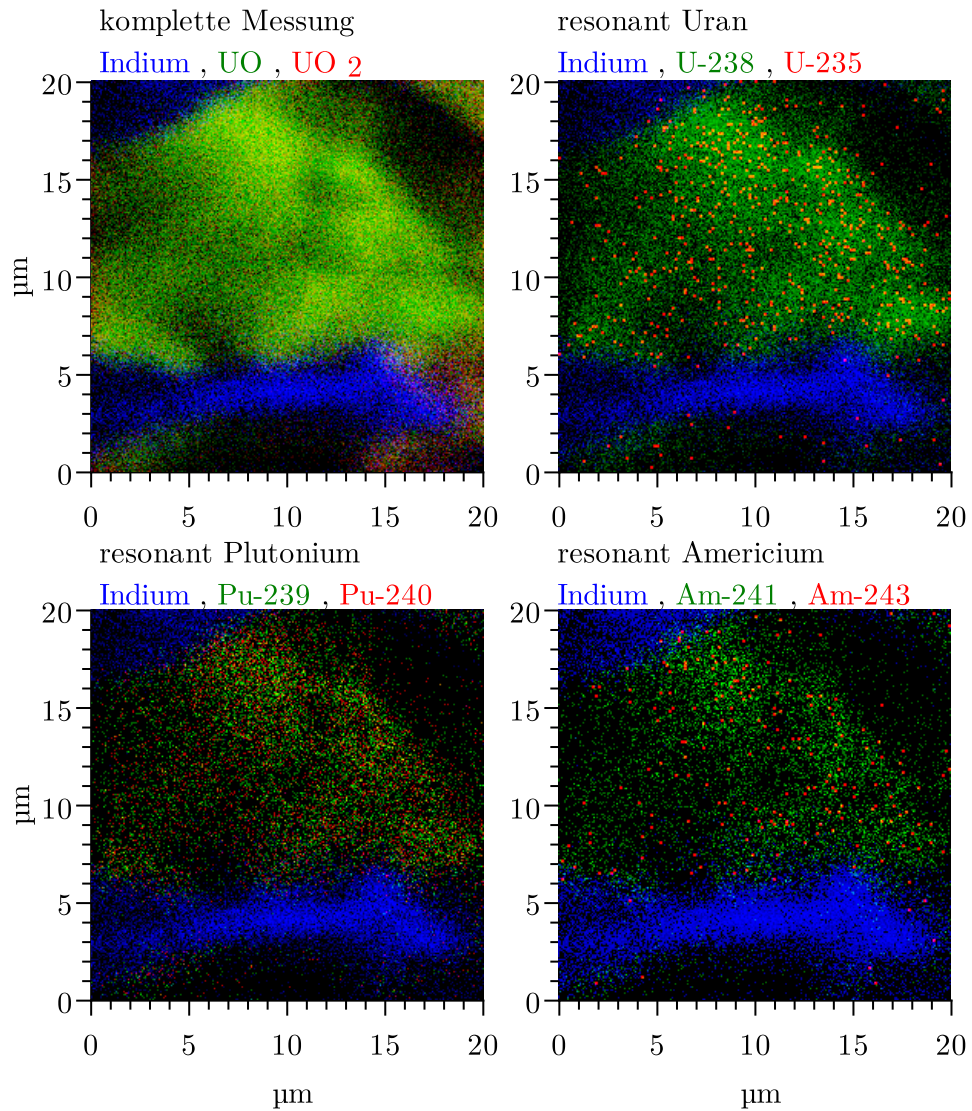


Abbildung 5.4.: Ionenbilder der in 5.3 markierten Bereiche. Die Uranoxide oben links geben die Umrisse des hot particles gepresst in Indium an. Die Isotope lassen sich klar vom Indium unterscheiden und sind gleichmäßig über den Partikel verteilt.

de Indium (blau) keine Signale der Actiniden. Die homogene Verteilung ist typisch für kleine Brennstofffragmente, da Änderungen der Isotopenverhältnisse zumeist erst bei makroskopischen Brennstoffproben messbar werden [16].

Ausschließlich am Rand des ursprünglichen Brennstoffpellets können die veränderten Bedingungen von Neutronenfluss und -moderation im Reaktor deutlich abweichende Isotopenverhältnisse auf kürzeren Distanzen hervorrufen [120, 121]. Dieser *Skin-Effekt* ist mit der hier gezeigten Ortsauflösung von unter einem Mikrometer abbildbar, sofern eine entsprechende Probe vorhanden wäre.

Der vorgestellte Actiniden Scan belegt, dass das neue SNMS System bestens geeignet ist, um die Verteilung mehrerer, im ppm-Bereich konzentrierter Isotope einer Probe größtenteils frei von Isobaren zu messen. Ist eine Ortsauflösung von 5  $\mu\text{m}$  ausreichend, kann der *spectrometry* Modus verwendet werden und die Messdauer sinkt von 30 min auf 2 min pro Element bei gleichbleibender Gesamtionenzahl.

## 5.2. Isotopenverhältnisse

Nach der Demonstration des automatischen Wechsels der Anregungsschemata werden im Folgenden die gemessenen Isotopenverhältnisse mehrerer Partikel vorgestellt und eingeordnet. Um möglichst hohe Zählraten und dementsprechend geringe statistische Unsicherheiten zu erhalten, wurden alle Messungen im *spectrometry* Modus durchgeführt.

Für die SNMS werden die in Kapitel 4 festgelegten Parameter verwendet. Dementsprechend besteht die Analyse der Isotopenverhältnisse einer Probe aus insgesamt drei resonanten und drei im ersten Anregungsschritt verstimmt gemessenen Messungen. Aus der Americium Messung wird sowohl das Verhältnis von  $^{241}\text{Am}$  zu  $^{243}\text{Am}$  bestimmt als auch die Uranisotopenverhältnisse aus den addierten Uranoxidsignalen von resonanter und nicht-resonanter Messung.

Für Plutonium sind vier Messungen notwendig, da sowohl die Probe als auch der MOX-Standard resonant und verstimmt gemessen wird. Zur besseren Übersicht werden in diesem Abschnitt nur ausgewählte Ergebnisse in Tabellenform gezeigt und der überwiegende Teil anhand von Isotopenplots diskutiert. Alle absoluten Werte sind jedoch im Anhang B angegeben. Die entsprechenden Berichte der eigens für diese Arbeit von mir eingerichteten *Microsoft Access* Partikel Datenbank geben umfassende Angaben zu jeder Messung.

Literaturangaben für die erwarteten Isotopenverhältnisse des Reaktortyps RBMK-1000 stammen von Makarova et al. [38]. Die Werte wurden um 35 Jahre (genauer 12669 Tage) zerfallskorrigiert, was der Zeitspanne zwischen Unfall und dem Jahr der hier vorgestellten Messungen entspricht. Insbesondere die angegebenen Plutonium- und Americiumanteile verändern sich durch den Zerfall von  $^{241}\text{Pu}$  ( $T_{1/2}$  14,3 a) zu  $^{241}\text{Am}$  und  $^{242}\text{Cm}$  ( $T_{1/2}$  163 d) zu  $^{238}\text{Pu}$  merklich.

Vergleichsdaten der SNMS mit den Standard TiSas liegen aus früheren Plutonium- und Americiummessungen vor. Unter anderem wurden Plutoniumisotopenverhältnisse von zwölf Partikeln mit einem dreistufigen Anregungsschema (blau-rot-rot)

## 5. SNMS Messungen

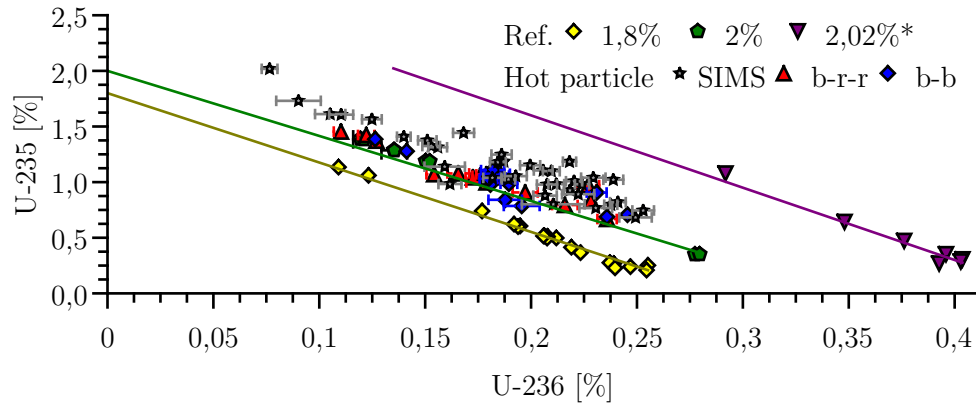


Abbildung 5.5.: Anteile von  $^{235}\text{U}$  und  $^{236}\text{U}$ . Die mittels SIMS bestimmten Werte liegen aufgrund der in Kapitel 2.3.3 beschriebenen Effekte von Uranhydrid und nicht auflösbaren Isobaren leicht über den Referenzwerten des im Reaktor 4 verwendeten Kernbrennstofftyps mit 2 % Anreicherung. Messwerte aus nicht-resonanten Messungen (b-r-r und b-b) streuen leicht um den erwarteten Trend. \*recycelter Kernbrennstoff der bereits einen Anteil  $^{236}\text{U}$  zum Beladezeitpunkt enthält.

im Zuge der Dissertation von Hauke Bosco ermittelt [23]. Neun Americiumisotopenverhältnisse stammen aus der von mir betreuten Bachelorarbeit von Maximilian Heller [30]. Zusätzlich wurde das Uranoxidsignal dieser Messungen neu ausgewertet, wodurch weitere Uranisotopenverhältnisse ermittelt wurden.

### 5.2.1. Uran

Zusätzlich zu der SNMS wurden die relativen Urananteile von 37 Partikeln mit konventioneller SIMS bestimmt. Zehn dieser Messwerte stammen aus einer von mir betreuten Bachelorarbeit von Polina Fraatz [122]. Berücksichtigt wurden jeweils die vier Uranisotope  $^{234}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{236}\text{U}$  und  $^{238}\text{U}$  (vgl. Abbildung 2.4).

$^{234}\text{U}$  kommt nur in sehr geringen Spuren in Kernbrennstoff vor, während  $^{238}\text{U}$  den Großteil darstellt. Beide Isotope sind mit thermischen Neutronen nicht spaltbar und ihre Anteile sind von untergeordnetem Interesse (siehe Kapitel 2). Ihre Abhängigkeiten sind deshalb im Anhang A.17 und A.18 dargestellt und beschrieben.

Von hoher Bedeutung ist hingegen der relative Anteil des spaltbaren  $^{235}\text{U}$ , sowie seinem Aktivierungsprodukt  $^{236}\text{U}$ . Abbildung 5.5 zeigt die berechneten Anteile im Vergleich zu den Referenzwerten von unterschiedlich angereichertem RBMK-Brennstoff.

Alle Proben können 2 % initialer Anreicherung zugeordnet werden, was dem in

Reaktorblock 4 verwendeten Typ entspricht [5]. Bei den SIMS Messwerten führt die in Kapitel 2.3.3 diskutierte Überschätzung von  $^{236}\text{U}$  durch  $^{235}\text{UH}$  zu einem leicht verschobenen Trend. Bei einzelnen Partikeln ist zusätzlich ein zu hoher  $^{235}\text{U}$ -Anteil vorhanden. Dies ist zurückzuführen auf Silicate und Kohlenwasserstoffverbindungen an der Probenoberfläche, welche das Uransignal überlagern. Trotz dieser leichten systematischen Ungenauigkeit bietet die konventionelle SIMS Messung akzeptable Ergebnisse bei erheblich reduziertem Messaufwand.

Die aus nicht-resonanter SNMS ermittelten Isotopenanteile befinden sich nahezu ideal auf dem erwarteten Trend. Dabei spielt es keine Rolle, ob das Uranoxid mit einem doppelblauen (b-b) oder blau-rot-rotem (b-r-r) Anregungsschema ionisiert wurde. Die leichten Abweichungen von dem linearen Trend der Referenzwerte sind hier explizit keine Messungenauigkeit. Vielmehr sind sie eine Folge der kleinen Probengröße von wenigen Mikrometern.

Die von Makarova et al. angegebenen Referenzwerte sind aus Querschnitten einzelner Brennstäbe ermittelt. Im Zuge der benötigten chemischen Probenvorbereitung wurden 15 mg bis 20 mg in  $\text{HNO}_3$  aufgelöst und analysiert. Die Ergebnisse stellen somit Durchschnittswerte des kompletten Querschnitts dar. Wie bereits im Abschnitt 5.1.2 angesprochen, unterscheiden sich die Isotopenverhältnisse jedoch deutlich zwischen dem Inneren eines Brennstoffpellets und dessen äußerer Schicht [120, 75].

Der Herkunftsort eines hot particles ist somit entscheidend für die Isotopenverhältnisse. Mit einer Größe von wenigen Mikrometern stellt er einen einzelnen Messpunkt innerhalb der Pellets dar. Es ist somit folgerichtig, dass die Werte einzelner Partikel um den makroskopisch ermittelten Referenzwert schwanken. Ortsabhängige Isotopenverhältnisse kommen nicht nur bei Kernbrennstoff vor. Bellucci et al. konnten Verschiebungen innerhalb eines 200  $\mu\text{m}$  großen Partikel des Kernwaffenunglücks von Thule nachweisen [16]. Dies unterstreicht die Notwendigkeit von Messungen mit hoher Ortsauflösung, um die tatsächlich vorherrschenden Isotopenverhältnisse von unbekanntem Proben abbilden zu können.

Aus dem gemessenen  $^{238}\text{U}$  zu  $^{236}\text{U}$  Verhältnis wurde gemäß Formel 2.6 der Abbrand des jeweiligen Partikels berechnet. Als Vergleich dienen ebenfalls die von Makarova et al. berechneten Werte. Abbildung 5.6 zeigt den abnehmenden Anteil des spaltbaren  $^{235}\text{U}$  mit steigendem Abbrand. Die berechneten Werte für die Partikel liegen wie erwartet im Bereich des RBMK-Brennstoffs. Der überschätzte  $^{236}\text{U}$ -Anteil der SIMS Messungen führt unmittelbar zu erhöhten Abbränden im Vergleich zu den Referenzwerten. Die Werte aus den nicht-resonanten SNMS Messungen streuen hingegen nur leicht um die Referenzwerte und können für die folgenden Abschnitte als korrekt angenommen werden. Auch hier ist kein Unterschied zwischen einem zweistufigem (b-b) oder dreistufigem (b-r-r) Anregungsschema zu erkennen. Abbildung 5.7 links zeigt die Abbrandverteilung, bei der im Vergleich zwischen nicht-resonanter SNMS und SIMS ebenfalls die leichte Verschiebung zu erkennen ist. Der durchschnittliche Partikelabbrand liegt bei 12,0(4) MWd/kgU gemessen mit konventioneller SIMS und 11,6(5) MWd/kgU bei nicht-resonanter SNMS. Da jedoch unterschiedliche Proben sets gemessen wurden, können diese Werte nur bedingt verglichen werden.

Wird die Probenmenge auf Partikel beschränkt, bei denen sowohl ein SIMS als auch

## 5. SNMS Messungen

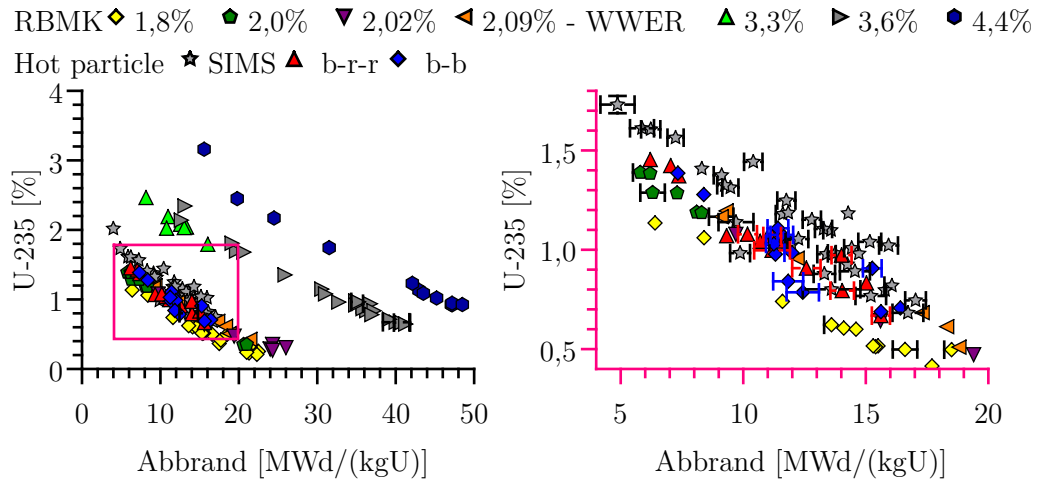


Abbildung 5.6.: Mit steigendem Abbrand sinkt der Anteil des spaltbaren  $^{235}\text{U}$ . *links*: Alle gemessenen Werte liegen im Bereich des niedrig angereicherten RBMK-Brennstoffs. *Ausschnitt rechts*: Der überschätzte  $^{236}\text{U}$ -Anteil der SIMS Messungen führt zu einer leichten, systematischen Überschätzung des Abbrands. Nicht-resonante SNMS Werte (b-r-r und b-b) stimmen mit den Referenzwerten überein.

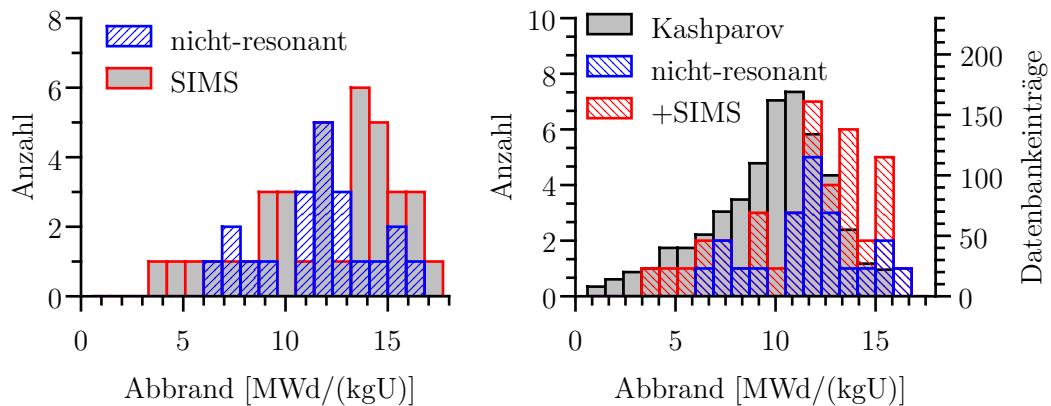


Abbildung 5.7.: *links*: Histogramm der berechneten Abbrände mittels SIMS und nicht-resonanter SNMS. Der überschätzte  $^{236}\text{U}$ -Anteil führt zu höheren Abbränden. *rechts*: Den gemessenen Partikeln wird vornehmlich der Abbrand der SNMS Messung zugeordnet. Der SIMS Wert wird nur verwendet, wenn keine SNMS Messung vorliegt. Im Vergleich zur Datenbank von Kashparov et al. ergibt sich eine Verschiebung der Verteilung zu höheren Werten [123].



ein SNMS Wert vorhanden ist, so liefert die SIMS im Mittel einen 1,2(5) MWd/kgU höheren Abbrand. Aufgrund des präziseren Messverfahrens wird der SNMS Wert bevorzugt und nur der SIMS Wert verwendet, wenn dieser nicht zur Verfügung steht. Insgesamt ergibt sich ein Probenet von 40 verschiedenen Partikeln mit berechnetem Abbrand, 21 davon per nicht-resonanter SNMS und 19 per konventioneller SIMS.

Der Mittelwert des Abbrands dieses Sets beträgt 11,4(5) MWd/kgU. In der Literatur finden sich unterschiedliche Angaben des durchschnittlichen Reaktorabbrands zum Unglückszeitpunkt. Der Bericht der Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) von 1996 geht von einem mittleren Abbrand von 10,3 MWd/kgU aus [5]. Er weist jedoch darauf hin, dass 75 % der Brennelemente im zentralen Teil des Kerns einen höheren Abbrand von 12 MWd/kgU bis 15 MWd/kgU besaßen. Da nicht der komplette Reaktorkern in die Umwelt geschleudert wurde, ist ein Vergleich mit dem durchschnittlichen Reaktorabbrand nur bedingt zielführend.

Die Abbrände der in die Umwelt geschleuderten Brennstofffragmente wurde bereits kurz nach dem Unfall mittels Gammasspektrometrie von Kuriny et al. untersucht [124]. So befinden sich in einer Datenbank von Kashparov et al. 1125 Partikeleinträge mit einem durchschnittlichen Abbrand von 9,5 MWd/kgU [123].

Das Histogramm der Datenbankeinträge im Vergleich mit dem ausgewählten Probenet dieser Arbeit ist in Abbildung 5.7 rechts gegeben. Der niedrigere durchschnittliche Abbrand ist zum Teil ein Effekt der überschätzenden SIMS Messungen, zum Teil aber auch ein Resultat der Probenvorbereitung. So wurden die Bodenproben im ersten Schritt mittels Gammasspektroskopie in der Umwelt ausgewählt [111]. Diese Methode bevorzugt Partikel mit großem Abbrand und entsprechend hoher Gammaaktivität. Partikel mit geringem Abbrand besitzen nur eine geringe Gammaaktivität und können sich nicht signifikant vom Untergrundniveau der Tschernobyl Bodenmatrix abheben.

Die Abweichungen sind insgesamt jedoch gering genug, dass die ermittelten Abbrände als Vergleichsgrundlage für weitere Messergebnisse der Partikel mit der Literatur dienen können. Dies ist insbesondere für die Americiumisotopenverhältnisse in Abschnitt 5.2.3 und die Gammasspektrometrie in Kapitel 6 von großer Bedeutung.

### 5.2.2. Plutonium

Durch die Bestimmung des Abbrands der Partikel kann abgeschätzt werden, dass die  $^{238}\text{Pu}$ -Konzentration im Bereich von 3 g/tU bis 30 g/tU liegt [38]. Die Isobare  $^{238}\text{U}$  als Hauptbestandteil des Brennstoffes muss dementsprechend um mehrere Größenordnungen unterdrückt werden, damit eine signifikante resonante  $^{238}\text{Pu}$ -Überhöhung messbar wird. Bereits geringe Mengen nicht-resonanter Ionisation führen zu  $^{238}\text{U}$ -Zählraten, bei denen das zusätzliche  $^{238}\text{Pu}$  nicht mehr außerhalb der statistischen Zählunsicherheit liegt.

Das dreistufige Anregungsschema von Grüning et al. besitzt die erforderliche sehr hohe Selektivität [125]. Mit ihm wurde im Verlauf des *SIRIUS* Projekts bereits an einem der Partikel (*RW-001*) das Uran um fast fünf Größenordnungen unterdrückt und eine signifikante  $^{238}\text{Pu}$ -Überhöhung erreicht [126]. Der gleiche Partikel wird im Folgenden mit dem zweistufigen Anregungsschema gemessen.

## 5. SNMS Messungen

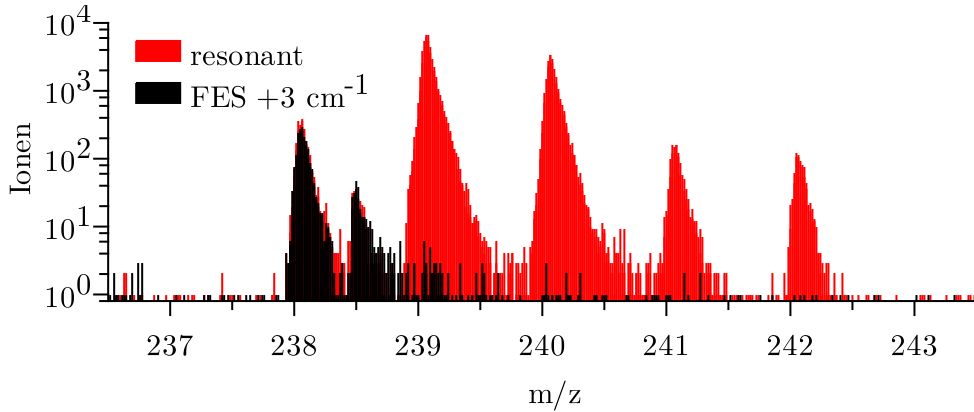


Abbildung 5.8.: Zweistufiges SNMS Spektrum von *RW-001*. Auf  $m/z$  238 wurden resonant 5113 und nicht-resonant 4609 Ionen gemessen. Der Peak bei  $m/z$  238,5 ist den restlichen  $^{238}\text{U}$ -Sekundärionen zuzuordnen.

Das in 5.8 abgebildete Spektrum zeigt die resonante und nicht-resonante Messung. Die Masse 238 liefert resonant 5113 und nicht-resonant 4609 Ionen. Die Netto Zählrate liegt damit bei 504 Ionen, was eine knappe, aber signifikante resonante Überhöhung darstellt.

Die anderen Massen sind größtenteils frei von isobaren Interferenzen und erlauben eine ungestörte Bestimmung der Plutoniumanteile. Auf  $m/z$  238,5 ist sowohl in der resonanten als auch in der nicht-resonanten Messung ein geringes Signal erkennbar. Es handelt sich um restliche  $^{238}\text{U}$ -Sekundärionen, die nicht weit genug von der BIAS Spannung aus dem Extraktionsbereich entfernt wurden. Sie besitzen eine längere Flugbahn zum Detektor, was eine Verschiebung des Signals um eine halbe Masse zur Folge hat. Es stellt für die Auswertung der resonanten Signale jedoch keine Interferenz dar, da die Massenauflösung hoch genug ist, um die Peaks voneinander zu trennen.

Mithilfe der direkt davor gemessenen MOX-Probe und den daraus bestimmten Skalierungsfaktoren können nun die kalibrierten Plutoniumanteile  $^{238}\text{Pu}$  bis  $^{242}\text{Pu}$  berechnet werden. Der Abbrand des Partikels beträgt 12,4(7) MWd/kgU. Die zwei Datenpunkte von Makarova et al., die diesem Wert am nächsten kommen, sind die Proben Nummer 9 mit 11,6(1) MWd/kgU und 16 mit 13,6(3) MWd/kgU der Messreihe des nicht-recyclten RBMK-Brennstoffs [38]. Tabelle 5.1 führt zusätzlich zu den Werten dieser Arbeit noch die von Bosco et al. angegebenen Isotopenverhältnisse auf [126]. Um die Werte miteinander vergleichen zu können, wurden die netto Counts von  $^{238}\text{Pu}$  und  $^{241}\text{Pu}$  der 2019 durchgeführten dreistufigen Messung und die Daten von Makarova et al. auf das Datum der zweistufigen Messung zerfallskorrigiert.

Da auch die Skalierungsfaktoren ihrer Zählstatistik entsprechende Unsicherheiten besitzen, sinkt die Genauigkeit der kalibrierten Anteile leicht im Vergleich mit der unkalibrierten Messung. Dennoch fallen die Anteile mit zufriedenstellender Sicherheit in den Bereich der Referenzdaten von Makarova et al.. Insbesondere die Anteile der

Tabelle 5.1.: Berechnete Isotopenverhältnisse in % von *RW-001* im Vergleich zu Literaturwerten. Abbrand (BU) in MWd/kgU. \*zerfallskorrigiert auf das Datum der kalibrierten Messung

	BU	Pu-238	Pu-239	Pu-240	Pu-241	Pu-242
[38] #9	11,6(1)	0,295(5)	63(1)	32,2(5)	1,62(3)	2,39(2)
Diese Arbeit	12,4(7)	0,39(8)	59(1)	35,0(9)	2,0(1)	3,3(3)
[38] #16	13,6(3)	0,418(4)	60,7(1)	33,5(3)	1,84(2)	3,46(2)
Bosco et al.[126]	12,4(7)	0,18(2)*	62,3(2)	33,1(2)	2,01(4)*	2,41(5)

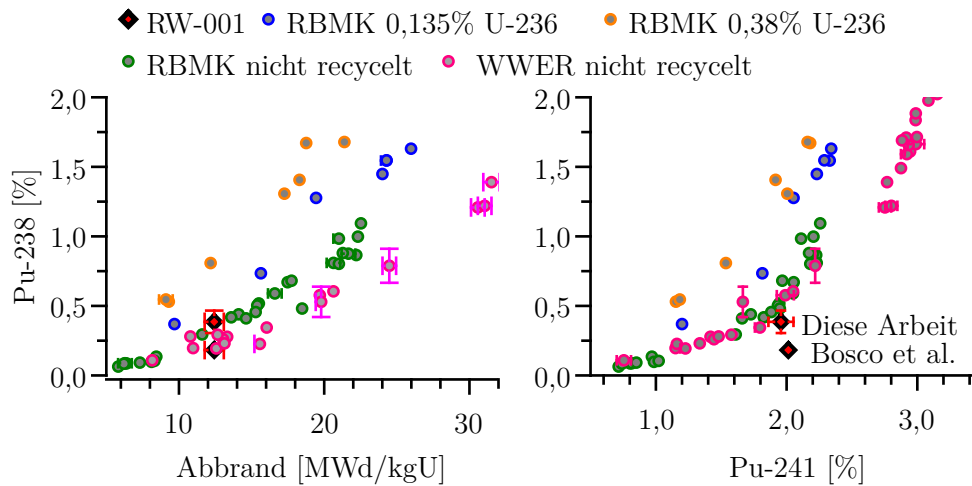


Abbildung 5.9.: Vergleich von kalibrierter zweistufiger SNMS und den Angaben von Bosco et al. [126]. Nur durch die Kalibration der Ionisationswahrscheinlichkeiten kann die Übereinstimmung der Messwerte mit den erwarteten Isotopenverhältnissen gezeigt werden.

niedrig konzentrierten Isotope  $^{238}\text{Pu}$  und  $^{242}\text{Pu}$  liegen zwischen den Literaturangaben. Im Unterschied dazu fallen die Anteile der äußeren Isotope bei der unkalibrierten Messung geringer aus. Der  $^{238}\text{Pu}$ -Anteil halbiert sich im Vergleich zu der kalibrierten SNMS sogar. Der Vergleich mit den Literaturdaten in Abbildung 5.9 zeigt, dass die Messwerte der kalibrierten SNMS deutlich besser mit dem Trend für nicht-recycelten RBMK-Brennstoff übereinstimmen. Die alte Messung zeigt insbesondere im Isotopenplot von  $^{238}\text{Pu}$  und  $^{241}\text{Pu}$  eine Abweichung zu den Literaturangaben. Eine mögliche Erklärung dafür kann in unzureichender Sättigungsverbreitung liegen. Auch bei der alten Messung wurde der Fokus auf maximale isobare Unterdrückung und damit verbundene niedrige Laserleistung gelegt. Zwar besitzen die verwendeten Standard TiSas eine breitere Laserlinienbreite, dennoch kann es auch dort zu einer ungleichen Anregungswahrscheinlichkeit in einem der Übergänge kommen.

Um die Unterdrückung des neuen Systems von Uran zu Plutonium zu bestimmen,

## 5. SNMS Messungen

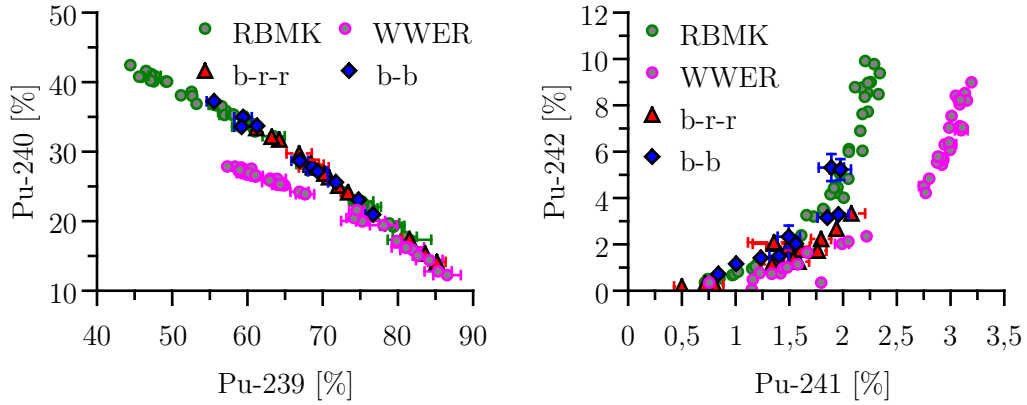


Abbildung 5.10.: *links*: Anteil von  $^{239}\text{Pu}$  und  $^{240}\text{Pu}$ . Sowohl die Messwerte des dreistufigen (b-r-r) als auch des zweistufigen (b-b) Anregungsschemas stimmen mit den RBMK Literaturwerten überein. *rechts*: Anteil von  $^{241}\text{Pu}$  und  $^{242}\text{Pu}$ . Die Partikel mit niedrigem Abbrand lassen sich nicht eindeutig einem Reaktortyp zuordnen.

wurden die Messwerte der Partikel Proben von Makarova et al. mit ähnlichem Abbrand zugeordnet. Das dort gegebene Verhältnis von  $^{238}\text{U}$  zu  $^{239}\text{Pu}$  wird verwendet, um die erwartete Anzahl von  $^{238}\text{U}$ -Ionen ohne Unterdrückung abzuschätzen. Die gemessenen Ionen auf  $m/z$  238 der nicht-resonanten Messung werden ausschließlich  $^{238}\text{U}$  zugeschrieben. Somit ergibt das Verhältnis von erwarteten zu gemessenen Ionen auf  $m/z$  238 den Unterdrückungsfaktor (engl. Suppression).

$$Supp = \frac{n_{U-238,erwartet}}{n_{U-238,gemessen}} = \left( \frac{n_{netto,239}}{n_{non-res,238}} \right)_{Mess} \left( \frac{U-238}{Pu-239} \right)_{Lit} \quad (5.1)$$

Die einzelnen Unterdrückungsfaktoren der Messungen sind im Anhang in der Tabelle A.5 aufgeführt. Bei den in dieser Arbeit gewählten SNMS Parametern lag sie im Durchschnitt bei etwa 3400. Die beste Unterdrückung von 12000 konnte am Partikel *RW-001* durch weiteres Reduzieren der Laserleistung erreicht werden. Dieser Wert liegt jedoch deutlich unter dem von Bosco et al. angegeben Wert von 75000 des dreistufigen Anregungsschemas [126].

Da der in Indium gepresste Partikel *RW-001* etwa das Zehnfache an Gesamtsignal im Vergleich zu den Partikeln auf Wolframnadeln liefert, ist er der Einzige, bei dem eine signifikante  $^{238}\text{Pu}$ -Überhöhung gemessen werden konnte. Deshalb wurde bei den restlichen Partikeln nur die Isotopenverteilung von  $^{239}\text{Pu}$  bis  $^{242}\text{Pu}$  bestimmt. Das Auslassen von  $^{238}\text{Pu}$  führt zur Überschätzung dieser relativen Anteile, ist aufgrund der geringen Menge jedoch vernachlässigbar. Die zwei Hauptisotope  $^{239}\text{Pu}$  und  $^{240}\text{Pu}$  sind gleichzeitig die, welche durch die gewählten Laserfrequenzen am effektivsten ionisiert werden. Dadurch ergeben sich hohe Zählraten und geringe Unsicherheiten für die errechneten Anteile. Abbildung 5.10 zeigt, dass sowohl die Messwerte ermittelt mit dem alten als auch die des neuen Lasersystems exakt dem erwarteten Trend für RBMK-Reaktoren entspricht.

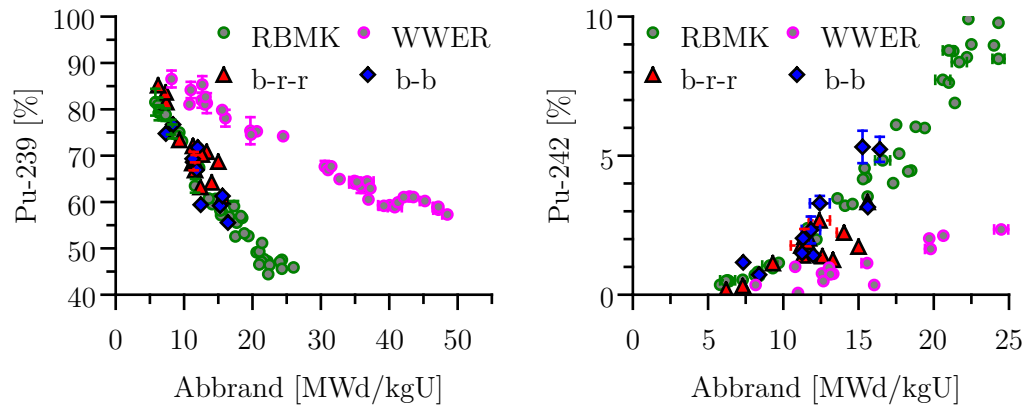


Abbildung 5.11.: *links*: Mit steigendem Abbrand sinkt der relative  $^{239}\text{Pu}$ -Anteil durch die Neutronenaktivierung zu höheren Isotopen unterschiedlich stark je nach Reaktortyp. *rechts*: Der gemessene  $^{242}\text{Pu}$ -Anteil liegt bei den unkalibrierten, dreistufigen Messungen (b-r-r) unter dem erwarteten Trend.

Auch zeigt sich hier die Notwendigkeit von Messungen individueller Partikel im Vergleich zu makroskopischen Umweltproben. Die Isotopenverhältnisse sind breit über den Trend des RBMK-Brennstoffs verteilt. Dies spiegelt die unterschiedlichen Abbrände innerhalb des Reaktors wider.

Konegger-Kappel et al. bestätigten diese Streuung für die isobarenfreien Isotope  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$  und  $^{242}\text{Pu}$  mittels LA-MC-ICP-MS bereits an mehreren Partikeln aus Tschernobyl [51]. Die dortige Partikelgröße betrug jedoch  $200\ \mu\text{m}$  bis  $1000\ \mu\text{m}$  und die Ortsauflösung der Messungen war auf  $100\ \mu\text{m}$  bis  $120\ \mu\text{m}$  beschränkt.

Auch die Anteile von  $^{241}\text{Pu}$  und  $^{242}\text{Pu}$  in Abbildung 5.10 zeigen eine große Streuung, die dem RBMK-Trend folgen. Im Gegensatz zu dem Trend der Hauptisotope ist hier ein Unterschied zwischen zwei- (b-b) und dreistufiger (b-r-r) Anregung zu erkennen. Wie bereits beim Partikel *RW-001* gezeigt, fallen die unkalibrierten  $^{242}\text{Pu}$ -Anteile geringer aus. Ein direkter Vergleich der vier doppelt gemessenen Partikel zeigt, dass ohne Kalibration der  $^{242}\text{Pu}$ -Anteil durchschnittlich um 87% unterschätzt wird (Messwerte im Anhang B).

Dabei ist zu beachten, dass die Kalibration unmittelbar vor jeder Messung durchgeführt werden muss. Wellenlängenverschiebungen innerhalb der Messunsicherheit von  $0,04\ \text{cm}^{-1}$  ändern die Skalierungsfaktoren bereits erheblich. Dies belegen die unterschiedlichen Werte bei gleichen SNMS Parametern an verschiedenen Messtagen. So schwankt der  $^{242}\text{Pu}$ -Skalierungsfaktor je nach Messung zwischen 5,1(4) und 23(1) (Werte im Anhang). Die einmalige Bestimmung für die ausgewählten SNMS Parameter ist deshalb nicht ausreichend. Neben dem direkten Vergleich von Isotopenanteilen können die gemessenen Anteile auch in Abhängigkeit des Abbrands gesetzt werden. Abbildung 5.11 zeigt besonders deutlich, welchen Einfluss der Reaktortyp auf die Isotopenverhältnisse besitzt. So aktiviert der RBMK Plutonium effektiver als der

## 5. SNMS Messungen

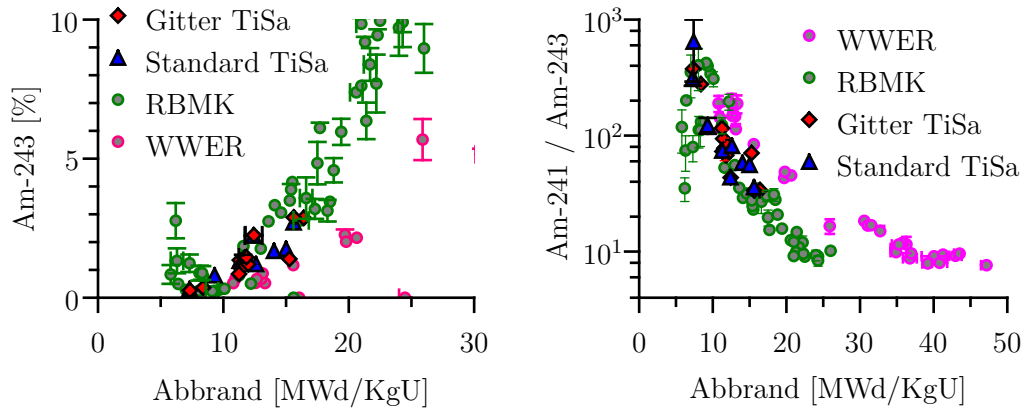


Abbildung 5.12.: *links:* Ab einem Abbrand von etwa 10 MWd/kgU steigt der Anteil von  $^{243}\text{Am}$  deutlich an. Sowohl die Messwerte von Maximilian Heller als auch die dieser Arbeit liegen im Trend des RBMK-Brennstoffs. *rechts:* Das  $^{241}\text{Am}$  zu  $^{243}\text{Am}$  Verhältnis sinkt entsprechend mit steigendem Abbrand. Eine eindeutige Zuordnung zu einem Reaktortyp ist jedoch erst bei höherem Abbrand möglich.

WWER, was zu einem schnelleren Abfall des  $^{239}\text{Pu}$ -Anteils und entsprechendem Anstieg des  $^{242}\text{Pu}$ -Anteil führt.

Die Messwerte der Partikel folgen alle dem Trend des RBMK, lassen sich aber erst mit höherem Abbrand diesem eindeutig zuordnen. Lediglich der Trend des unkalibrierten  $^{242}\text{Pu}$ -Anteils liegt aus den bereits diskutierten Gründen unterhalb des erwarteten Trends.

Dies bestätigt zum einen, dass die kalibrierte SNMS korrekte Plutoniumisotopenverhältnisse misst und zum anderen, dass die Werte konsistent mit dem berechneten Abbrand sind. Weitere Plutoniumisotopenplots der Messreihen sind in Anhang A.19 und A.20 gegeben.

### 5.2.3. Americium

Die Americium SNMS liefert Spektren, die größtenteils frei von isobaren Interferenzen sind. Die im Anhang A.21 gegebene Überlagerung von resonanter und nicht-resonanter Messung zeigt deutliche resonante Überhöhungen von  $^{241}\text{Am}$  und  $^{243}\text{Am}$ . Zusätzlich ist eine geringe Überhöhung auf  $m/z$  242 zu erkennen, welche dem langlebigen, angeregtem Zustand  $^{242m}\text{Am}$  ( $T_{1/2}$  141 a) zugeordnet werden kann.

Die resonante Überhöhung war jedoch mit weniger als 100 Nettocounts gering und anfällig für Fluktuationen des Hintergrundsignals. Die berechneten Anteile von  $^{242m}\text{Am}$  schwankten zwischen 0,03(1) % und 0,19(5) %. Aufgrund der hohen relativen Unsicherheiten und fehlenden Literaturangaben wurde auf eine weitergehende Auswertung verzichtet.

Die Anteile der Hauptisotope  $^{241}\text{Am}$  und  $^{243}\text{Am}$  ließen sich hingegen sehr gut bestim-

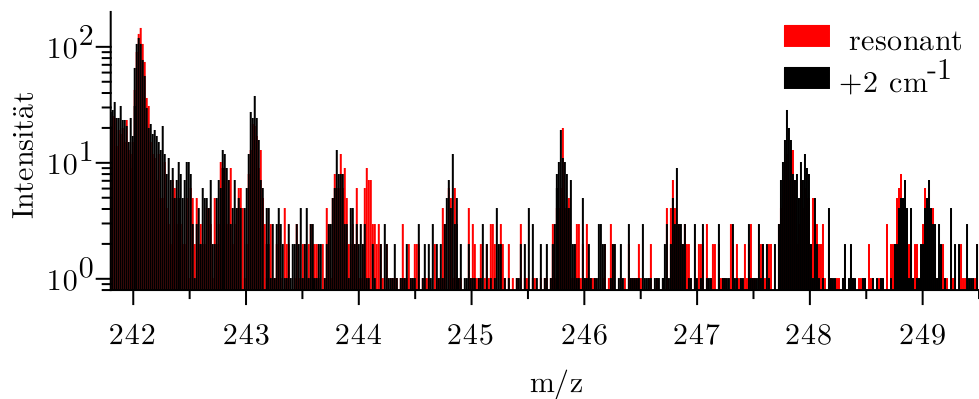


Abbildung 5.13.: Erster, zerstörungsfreier  $^{244}\text{Cm}$ -Nachweis in einem hot particle *RW-001*. Resonant wurden 41 Ionen detektiert nicht-resonant 10. Die erwartete Konzentration von 0,16 g/tU entspricht gerade einmal 2,7 fg im ganzen Partikel.

men. Abbildung 5.12 zeigt den steigenden Anteil von  $^{243}\text{Am}$  ab einem Abbrand von etwa 10 MWd/kgU. Sowohl die von Maximilian Heller aufgenommenen Werte mit den Standard TiSas als auch die dieser Arbeit liegen im Trend des RBMK-Brennstoffs [30]. Allerdings verhindert der geringe Abbrand der Partikel eine klare Zuordnung zu einem der Reaktortypen.

Abbildung 5.12 rechts gibt das Verhältnis der beiden Isotope zueinander in Abhängigkeit des Abbrands an. Nur der Partikel *BK-012* der Messreihe dieser Arbeit besitzt eine leichte Abweichung von dem RBMK-Trend. Ein Vergleich der Plutonium- und Uranisotopenverhältnisse dieses Partikels zeigt, dass die Verschiebung von einem besonders hohen  $^{236}\text{U}$ -Anteil stammt. Dies führt zur Überschätzung des Abbrands und somit zur Abweichung.

Literaturangaben zu Americium in individuellen Partikeln beschränkt sich meist auf das Hauptisotop  $^{241}\text{Am}$  und die Messung mittels Gamma- oder Alphaspektrometrie [48, 113, 123].

Die zerstörungsfreie Anteilsbestimmung beider Isotope an individuellen Partikeln ist hingegen eine Neuheit. Zusammen mit den Ergebnissen der Uran- und Plutoniummessungen wurden sie in der Fachzeitschrift *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy* veröffentlicht [127].

#### 5.2.4. Curium

Das nächsthöhere Element Curium besitzt in Kernbrennstoff mit einem Abbrand von rund 10 MWd/kgU zwei in Spuren vorhandene Isotope. 35 Jahre nach dem Reaktorunfall von Tschernobyl ist  $^{242}\text{Cm}$  ( $T_{1/2}$  162,8 d) bereits vollständig zu  $^{238}\text{Pu}$  zerfallen. Ausschließlich das langlebigere Isotop  $^{244}\text{Cm}$  ( $T_{1/2}$  18,11 a) ist noch in Konzentrationen von etwa 0,16 g/tU präsent [38, 128]. Damit sinkt die erwartete

## 5. SNMS Messungen

Zählrate im Vergleich zum  $^{243}\text{Am}$  um ein bis zwei Größenordnungen.

Da für diese Arbeit keine Referenzprobe für Curium zur Verfügung stand, konnten weder Linienscans noch Leistungsabhängigkeiten bestimmt werden. Dennoch wurde ein Versuch unternommen, an dem Partikel *RW-001* eine resonante Überhöhung auf  $m/z$  244 zu erhalten.

Grundlage hierfür war ein am Institut für Physik in Mainz entwickeltes Anregungsschema, welches ohne Änderungen übernommen wurde. Der erste Anregungsschritt lag bei  $23\,083,82\text{ cm}^{-1}$  und der zweite bei  $25\,409,2\text{ cm}^{-1}$ . Da keine signifikante Isobare auf  $m/z$  244 vorhanden ist, wurden die Leistungen mit 70 mW im FES und 105 mW im SES besonders hoch gewählt. Dies dient zum einen der Sicherstellung, dass der Übergang über der Sättigungsleistung betrieben wird und zum anderen, dass die Sättigungsverbreiterung die Resonanz des Isotops  $^{244}\text{Cm}$  überdeckt.

Das Spektrum 5.13 zeigt die erfolgreiche Detektion von  $^{244}\text{Cm}$ . Die resonante Messzeit betrug 4300 s und lieferte 41 Ionen auf  $m/z$  244. Die um  $2\text{ cm}^{-1}$  im FES verstimmt nur 10. Beide Messungen wurden so lange durchgeführt, bis das Uranoxidsignal auf  $m/z$  254 20 000 000 Ionen betrug. Die erhaltenen Spektren gleichen sich bis auf die resonante Überhöhung bei  $m/z$  244.

Das Volumen des Partikels kann mit  $10\text{ }\mu\text{m} \times 10\text{ }\mu\text{m} \times 15\text{ }\mu\text{m}$  konservativ als Quader zu  $1,5 \cdot 10^{-9}\text{ cm}^3$  abgeschätzt werden [126]. Die Schwermetалldichte von klassischem Kernbrennstoff liegt laut OECD im Bereich von  $10\text{ g cm}^{-3}$  [35], während andere Quellen die Dichte mit  $11\text{ g cm}^{-3}$  angeben [113, 126]. Genauere Angaben zum Brennstoff sind abhängig von Abbrand und Zusammensetzung. Lindgren et al. geben die Dichte von frischem Urandioxid Brennstoff mit 95 % der theoretischen maximalen Dichte von  $10,97\text{ g cm}^{-3}$  an [112]. Da der bestimmte Abbrand der Partikel mit 10 MWd/kgU für die Dichte vernachlässigbar niedrig ist, wurde dieser Wert von  $10,42\text{ g cm}^{-3}$  für alle weiteren Berechnungen übernommen. Daraus ergibt sich eine ungefähre Partikelmasse von 16 ng. Zusammen mit der erwarteten Konzentration von etwa 0,16 g/tU stellt dies die zerstörungsfreie Detektion von 2,5 fg  $^{244}\text{Cm}$  dar.

Bisherige Messungen von Curium in Umweltproben aus Finnland und Polen beschränkten sich auf Alphaspektrometrie nach aufwendigem chemischem Trennverfahren [129, 130]. Aufgrund der sehr ähnlichen Zerfallsenergien kann dabei nur die Summe von  $^{243}\text{Cm}$  (5785,2 keV) und  $^{244}\text{Cm}$  (5804,77 keV) bestimmt werden [109, 131].

Diese hier vorgestellte direkte  $^{244}\text{Cm}$ -Detektion an einem individuellen hot particle ist demnach weltweit einzigartig und wurde in der angesehenen Fachzeitschrift *Science Advances* veröffentlicht [126].



## 6. Gammaspektrometrie

Im Gegensatz zu den bisher vorgestellten Ergebnissen der Massenspektrometrie ist die Gammaspektrometrie eine quantitative Analyse. Durch eine Kalibration mit einem Referenzpräparat vergleichbarer Geometrie kann die Zahl der detektierten  $\gamma$ -Quanten einer Anzahl von Zerfällen in der Probe zugeordnet werden.

Ist weiterhin das Volumen der Probe bekannt, so kann die Konzentration des radioaktiven Isotops in der Probe mit Angaben für abgebrannten Brennstoff in der Literatur verglichen werden. Eine niedrigere gemessene Konzentration kann auf eine Fraktionierung während des Reaktorunfalls oder eine umweltbedingte Auslaugung des Elements aus dem Partikel hindeuten. Diese potenziell interessanten Erkenntnisse waren Anlass für die gammaspektrometrische Analyse individueller Partikel.

Da sich die absoluten Anteile der Radionuklide in Kernbrennstoff in Abhängigkeit des Abbrands verändern, bilden die in Kapitel 5.2.1 bestimmten Abbrände der Partikel die unverzichtbare Grundlage für Literaturvergleiche.

Da die Gammaspektrometrie eine unkomplizierte und weit verbreitete Messmethode ist, sind Gamma-Aktivitäten von hot particles verschiedenster Herkunft gut in der Literatur beschrieben. Daten von fast 2000 Partikeln des Reaktorunfalls von Tschernobyl wurden in den Jahren 1986 bis 1995 ermittelt und in einer Datenbank von Kashparov et al. zusammengefasst [123]. Die in dieser Arbeit vorgestellten Messungen wurden zwischen 2019 und 2021 durchgeführt, was zwar die Anzahl an messbaren Isotopen verringert, aber auch einen möglichen Trend durch Umwelteinflüsse aufzeigen kann.

### 6.1. Spektroskopie

In Abhängigkeit ihrer Herkunft werden unterschiedliche  $\gamma$ -Strahler in hot particles erwartet. So beinhalten Partikel des Reaktorunfalls in Fukushima hauptsächlich die leicht flüchtigen Spaltprodukte  $^{134}\text{Cs}$  und  $^{137}\text{Cs}$ . Es handelt sich um kondensierte Partikel, die kaum  $\gamma$ -Aktivitäten von schwerflüchtigen Actiniden aufweisen [18].

Im Gegensatz dazu zeigen Partikel aus Kernwaffenmaterial eine hohe Aktivität von verschiedenen Actiniden und nur wenig Cäsium. So entwickelten Jimenez-Ramos et al. ein Verfahren, welches das  $^{240}\text{Pu} / ^{239}\text{Pu}$  Verhältnis an niederenergetischen  $\gamma$ -Quanten bestimmt [48]. Das nicht vorhandene  $^{137}\text{Cs}$ -Compton-Kontinuum in diesen Partikeln ermöglicht die hochauflösende Gammaspektrometrie im Röntgenbereich.

Zheltonozhsky et al. untersuchten individuelle Partikel sowohl aus dem sowjetischen Kernwaffentestgelände in Semipalatinsk als auch vom Kraftwerksgelände Tschernobyls [49]. Die Aktivitäten wurden im Jahr 1997, zehn Jahre nach dem Unfall, gemessen und verglichen.

## 6. Gammaspektrometrie

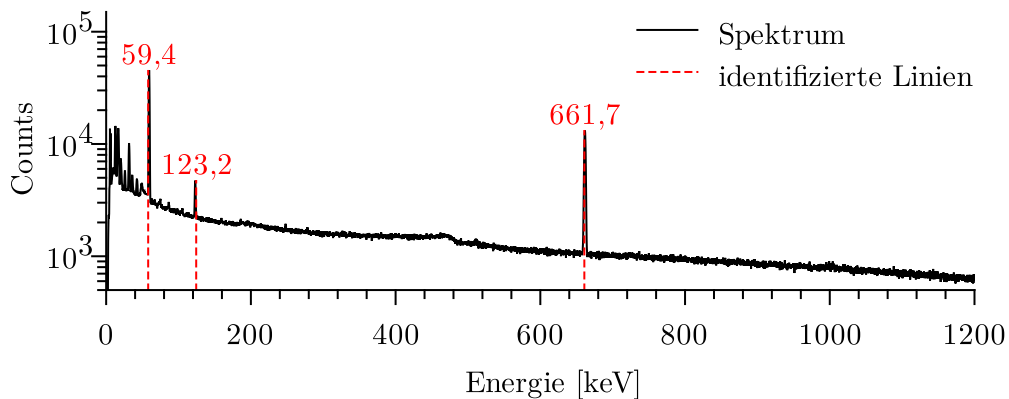


Abbildung 6.1.: Nach Abzug des Hintergrundspektrums zeigt das  $\gamma$ -Spektrum des Partikels *CP-025* drei eindeutige Photopeaks. Die Signale bei 59 keV, 123 keV und 662 keV lassen sich  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{154}\text{Eu}$  und  $^{137}\text{Cs}$  zuordnen. Die Messezeit betrug elf Tage.

Die Entstehung der Partikel aus Tschernobyl liegt zum Zeitpunkt dieser Arbeit bereits 35 Jahre zurück. Dadurch sind Isotope mit kurzer Halbwertszeit zum Großteil zerfallen und ihre Aktivität ist nicht mehr messbar. Isotope mit sehr langen Halbwertszeiten sind ebenfalls schlecht detektierbar, da zu wenig  $\gamma$ -Quanten innerhalb einer Woche Messzeit emittiert werden. Es wurde somit zunächst bestimmt, welche Isotope mit dem am IRS vorhandenen Equipment ausgewertet werden können.

Für die Messungen wurde ein planarer n-Type Halbleiterdetektor *GL2820R* des Herstellers *Canberra* verwendet. Er besitzt einen Germaniumkristall mit einem Durchmesser von 60 mm, einer Dicke von 20 mm und einem Volumen von  $56\text{ cm}^3$ .  $\gamma$ -Quanten gelangen durch ein 0,5 mm dickes Carbon-Epoxy Fenster zu dem mit flüssigem Stickstoff gekühlten Kristall. Die Energieauflösung beträgt 660 (FWHM) bei 59,5 keV. Die Spektren wurden aufgezeichnet mit der Software *Genie2000* von *Canberra*.

Um zwischen natürlicher  $\gamma$ -Strahlung und Strahlung der Probe zu unterscheiden, wurde eine Hintergrundmessung mit kompletter Probenhalterung jedoch ohne Partikel durchgeführt. Das aufgezeichnete Blank-Spektrum wird anschließend vom Spektrum des Partikels abgezogen. Abbildung 6.1 zeigt ein typisches verbleibendes Energiespektrum der Probe *CP-025*. Im Energiebereich unter 50 keV sind eine Vielzahl von Röntgenpeaks vorhanden. Diese überlagern sich teilweise gegenseitig und sind deshalb für eine quantitative Auswertung ungeeignet. Bei höheren Energien sind drei eindeutige Photopeaks bei 59 keV, 123 keV und 662 keV zu erkennen. Sie können Übergängen in  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{154}\text{Eu}$  und  $^{137}\text{Cs}$  zugeordnet werden. Die Isotope mit ihren entsprechenden Zerfällen sollen im Folgenden kurz vorgestellt werden.

**Americium** Von den in Kapitel 5 massenspektrometrisch gemessenen Actiniden kann ausschließlich  $^{241}\text{Am}$  ( $T_{1/2}$  432,6 a) auch per Gammaspektrometrie bestimmt werden.

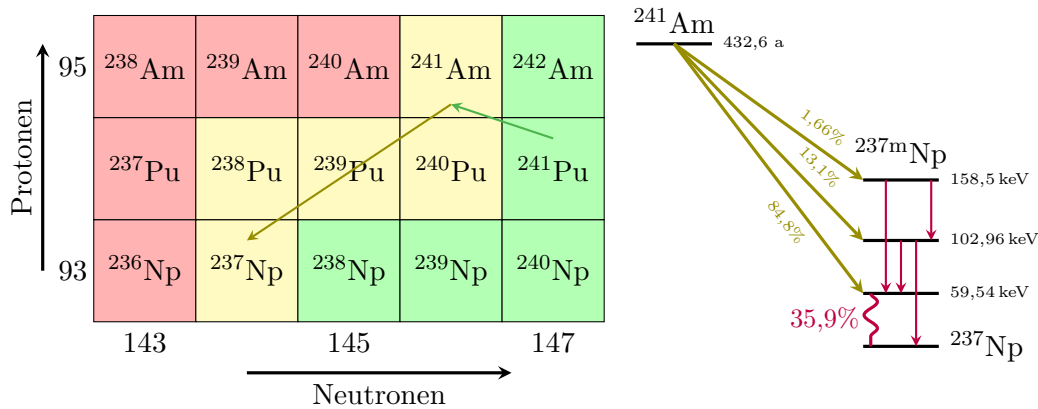


Abbildung 6.2.: *links:*  $^{241}\text{Am}$  wird durch den Zerfall von  $^{241}\text{Pu}$  mit einer Halbwertszeit von 14,329 a auch nach Reaktorabschaltung gebildet. Da sein eigener  $\alpha$ -Zerfall eine Halbwertszeit von 432,6 a besitzt, steigt seine Konzentration in Kernbrennstoff viele Jahre an. *rechts:* Zerfallsschema von  $^{241}\text{Am}$ . Ausgewertet wird das zu 35,9 % emittierte  $\gamma$ -Quant mit 59,54 keV.

Für die Auswertung der Röntgenlinien von Plutonium ist das Compton-Kontinuum von  $^{137}\text{Cs}$  zu hoch und die Übergangswahrscheinlichkeiten zu niedrig. Das gemessene  $\gamma$ -Quant von  $^{241}\text{Am}$  hingegen besitzt eine ausreichende Energie von 59,54 keV und wird mit einer Wahrscheinlichkeit von 35,9 % pro Alphazerfall emittiert.

Abbildung 6.2 zeigt den Produktions- und Zerfallsweg, sowie einen Ausschnitt des Zerfallsschema von  $^{241}\text{Am}$  zu  $^{237}\text{Np}$  auf der rechten Seite. Hierbei ist zu beachten, dass die Produktion von  $^{241}\text{Am}$  durch den Beta-Minus-Zerfall von  $^{241}\text{Pu}$  ( $T_{1/2}$  14,329 a) höher ist als seine Zerfallsrate. Somit steigt die Americiumkonzentration mit der Zeit nach Reaktorabschaltung im Kernbrennstoff an.

Die in dieser Arbeit gemessenen Aktivitäten und Konzentrationen sind dementsprechend eine Momentaufnahme für den Zeitpunkt 35 Jahre nach dem Unfall und nicht repräsentativ für Kernbrennstoff während oder direkt nach dem Reaktorbetrieb. Aufgrund der steigenden Konzentration wird  $^{241}\text{Am}$  nach einiger Zeit der dominierende Alphastrahler in abgebranntem Brennstoff. Es ist deshalb von großem Interesse, das Verhalten von Americium und einen eventuellen Eintrag in die Umwelt durch hot particles zu verstehen. Ein Großteil der in der Literatur gegebenen Americiumaktivitäten aus der Vergangenheit lassen sich aufgrund der unbekannt Menge von  $^{241}\text{Pu}$  in den Proben nicht auf das Messjahr 2021 zerfallskorrigieren.

**Cäsium** Mit einer hohen isobaren Spaltausbeute von 6,22(7) % der  $^{235}\text{U}$ -Spaltung und einer Halbwertszeit von 30,08 a ist  $^{137}\text{Cs}$  eines der wichtigsten Isotope in der Radioökologie [107, 9, 7]. Es zerfällt via Beta-Minus-Zerfall zum stabilen  $^{137}\text{Ba}$  und emittiert dabei mit einer Wahrscheinlichkeit von 85,1 % ein  $\gamma$ -Quant mit 661,7 keV (Abbildung 6.3). Benachbarte instabile Isotope sind entweder schon zer-

## 6. Gammaspektrometrie

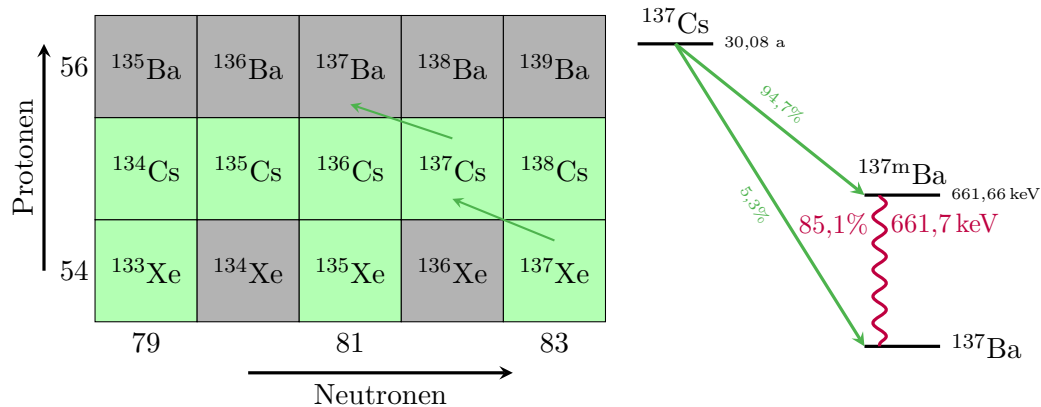


Abbildung 6.3.: *links*: Alle relevanten Cäsiumisotope in Kernbrennstoff sind Beta-Minus-Strahler und zerfallen zu stabilem Barium. Für die Gamma-spektrometrie ist 35 Jahre nach dem Unfall von Tschernobyl nur noch  $^{137}\text{Cs}$  mit einer Halbwertszeit von 30,08 a in hot particles messbar. *rechts*: Zerfallsschema von  $^{137}\text{Cs}$  mit dem detektierten  $\gamma$ -Quant bei 661,7 keV

fallen ( $^{134}\text{Cs}$  T<sub>1/2</sub> 2,07 a) oder zu langlebig ( $^{135}\text{Cs}$  T<sub>1/2</sub>  $2,3 \cdot 10^6$  a) für eine effiziente radiometrische Bestimmung. Die Halbwertszeit der Mutter  $^{137}\text{Xe}$  ist mit 3,8 min deutlich kürzer als die von  $^{137}\text{Cs}$ . Somit kann kurze Zeit nach Reaktorabschaltung die Menge im Kernbrennstoff als maximal angenommen und die zukünftige Konzentration durch das Zerfallsgesetz beschrieben werden. 35 Jahre nach dem Unfall stellt  $^{137}\text{Cs}$  den Hauptanteil der Gamma-Aktivität in Tschernobyls Sperrzone dar. Sein in Spektrum 6.1 deutlich zu erkennendes Compton-Kontinuum überdeckt dabei schwache, energieärmere Signale.

Cäsium ist in der Umwelt äußerst mobil und kann insbesondere über Pilze und Wildtiere in die Nahrungskette des Menschen gelangen [132, 133]. Im Körper wird es aufgrund seiner Ähnlichkeit zu Kalium gut absorbiert und in die Muskeln eingebaut. Der fortlaufende Eintrag von Radiocäsium durch hot particles in die Biosphäre stellt somit eine potentiell dosisrelevante Quelle in der Umwelt dar.

**Europium**  $^{154}\text{Eu}$  mit einer Halbwertszeit von 8,6 a ist das letzte Isotop, welches in einem Großteil der Partikel detektierbar ist. Im Gegensatz zu  $^{137}\text{Cs}$  ist die direkte Spaltausbeute unbedeutend, da die Spaltisobare 154 am stabilen  $^{154}\text{Sm}$  endet.  $^{154}\text{Eu}$  entsteht im Reaktor erst, nachdem das Spaltprodukt  $^{153}\text{Eu}$  ein zusätzliches Neutron absorbiert. Es ist somit ein Spaltaktivierungsprodukt. Da es mit 1446(80) b einen hohen Neutroneneinfangquerschnitt besitzt, wird es während des Reaktorbetriebs effektiv zum benachbarten  $^{155}\text{Eu}$  aktiviert. Dieses besitzt zusätzlich eine direkte Spaltausbeute von 0,31 % und akkumuliert sich somit ebenfalls in abgebranntem Brennstoff. Aufgrund seiner kürzeren Halbwertszeit von 4,7 a konnte dieses Isotop jedoch nur noch vereinzelt in Partikeln detektiert werden.

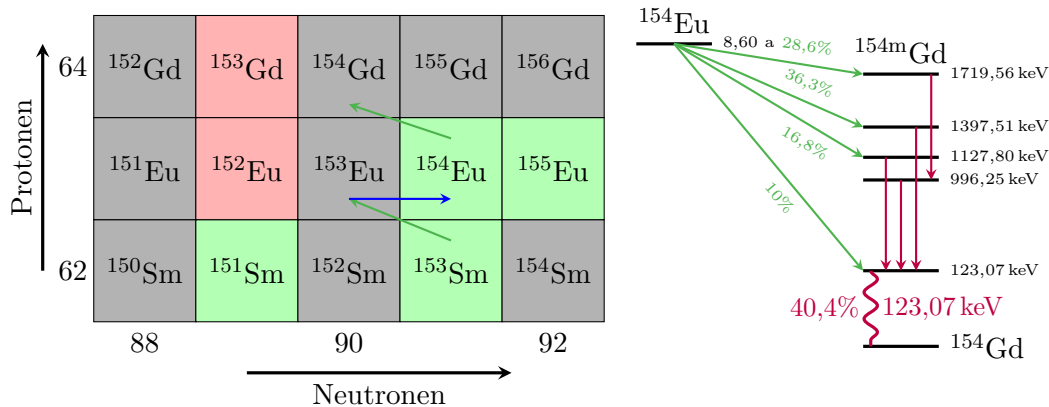


Abbildung 6.4.: *links:*  $^{154}\text{Eu}$  ist ein Spaltaktivierungsprodukt. Die Spaltisobare 154 endet beim stabilen  $^{154}\text{Sm}$ . Erst durch einen Neutroneneinfang des gebildeten  $^{153}\text{Eu}$  entsteht  $^{154}\text{Eu}$  während des Reaktorbetriebs. *rechts:* Ausschnitt des Zerfallsschemas von  $^{154}\text{Eu}$ . Die wichtigsten Zerfallskanäle für das mit 40,4 % Wahrscheinlichkeit emittierte  $\gamma$ -Quant bei 123,07 keV.

Beide Isotope zerfallen über einen Beta-Minus-Zerfall zu stabilem Gadolinium. Der in Abbildung 6.4 rechts gezeigte Ausschnitt des Zerfallsschemas von  $^{154}\text{Eu}$  ist deutlich komplexer als das von  $^{137}\text{Cs}$ . Die messbare  $\gamma$ -Strahlung mit 123,07 keV besitzt eine Emissionswahrscheinlichkeit von 40,4 %.

In radioökologischen Betrachtungen von Reaktorunfällen sind die radioaktiven Isotope des Europiums meist von untergeordneter Bedeutung. Im Vergleich zu den Beta-Strahlern des Cäsiums kommt es in geringeren Mengen in abgebranntem Brennstoff vor und ist weniger mobil in der Umwelt. Aufgrund seiner chemischen Ähnlichkeit zum Americium ist es dennoch ein guter Indikator, um Abweichungen in den Aktivitätsverhältnissen zu erkennen. Zusätzlich ist es im Gegensatz zum Americium möglich, alte Literaturangaben zu zerfallskorrigieren und so eventuelle Auslaugungseffekte zu beobachten.

**Kalibration** Für die Isotope  $^{137}\text{Cs}$  und  $^{241}\text{Am}$  standen zertifizierte Punktquellen der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt (PTB) am IRS zur Verfügung. Demnach war es möglich, die Nachweiseffizienzen des Detektors für die Gammaenergien direkt an den jeweils erzeugten Photopeaks zu bestimmen. Dabei ist sicherzustellen, dass Kalibrierstandard und Partikel in vergleichbarer Geometrie und Position über dem Messfenster positioniert werden.

Um dies zu gewährleisten, wurde im Zuge des SIRIUS Projektes gemeinsam mit Wolfgang Schulz vom *BioVestra* Projekt ein Probenadapter designt und in der internen Werkstatt hergestellt. Die aus Aluminium gefräste Fassung wird über den Detektor gesteckt und besitzt Aussparungen die sowohl die ringförmigen Kalibrierstandards als auch den Probenhalter inklusive Wolframnadel und Partikel aufnehmen kann.

## 6. Gammaspektrometrie

Die Position von Punktquelle und Partikel sind dabei auf etwa 2 mm gleich. Der Abstand zu dem Detektorfenster beträgt etwa 1 cm. Eine technische Zeichnung des Adapters ist in der Dissertation von Hauke Bosco zu finden [23].

Für  $^{154}\text{Eu}$  stand keine Punktquelle des gleichen Isotops am IRS zur Verfügung. Es wurde deshalb auf eine Punktquelle von  $^{152}\text{Eu}$  ( $T_{1/2}$  13,5 a) zurückgegriffen. Der detektierte Übergang liegt bei 121,78 keV und damit nur 1,29 keV unterhalb des Übergangs von  $^{154}\text{Eu}$ . Der Unterschied in Detektoreffizienz durch diese Verschiebung wird als vernachlässigbar angesehen. Alle berechneten Effizienzen und Details zur Kalibration sind in Anhang B als Datenbankbericht angegeben.

Als letzter Punkt muss die Selbstabsorption der niederenergetischen Strahlung von  $^{241}\text{Am}$  in Kernbrennstoff bestehend aus Elementen hoher Kernladungszahl ausgeschlossen werden. Jimenez-Ramos et al. geben eine fundierte Berechnungsmethode für die Berücksichtigung bei der Analyse von Röntgenpeaks ab einer Partikelgröße von 100  $\mu\text{m}$  an [48]. Die gemessene Transmission liegt bei 60 keV bei über 99,5 % und fällt erst bei niedrigeren Energien stark ab. Zwar wird dort eine geringere Partikeldichte von  $2,3\text{ g cm}^{-3}$  angenommen, andererseits besitzen die hier vermessenen Partikel einen deutlich kleineren Durchmesser als 100  $\mu\text{m}$ . Demnach wird der Effekt der Selbstabsorption vernachlässigt.

### 6.2. Messungen

Insgesamt wurden 34 Partikel mittels Gammaspektrometrie gemessen. 17 davon im Rahmen einer von mir betreuten Bachelorarbeit von Polina Fraatz [122]. Acht Partikel vom Versuchsfeld des *BioVestra* Projekts wurden parallel von Wolfgang Schulz ausgewertet und analysiert [111]. Die berechneten Aktivitäten gleichen sich innerhalb ihrer Messunsicherheiten.

Nicht bei allen Partikeln konnten Aktivitäten von allen drei Isotopen ermittelt werden. Insbesondere  $^{154}\text{Eu}$  als niedrig konzentriertes Isotop wurde nur bei 19 Partikeln detektiert. Aufgrund der Vielzahl von über 80 Einzelwerten wird auf eine tabellarische Auflistung der Messwerte im Text verzichtet. Alle gemessenen Aktivitäten, Unsicherheiten und das Datum der Messung sind jedoch in Anhang B als Datenbankbericht gegeben.

Um die unterschiedlichen Probenahmeorte zu kennzeichnen, sind die Messwerte der Partikel aus dem Roten Wald (RW) stets rot, des Testfeldes bei Kopatschi (KOP) grün, des Bohrkerns aus dem Marktplatz von Prypjat (BK) grau und des Kühlteichs (CP) blau. Gezeigte Literaturwerte für  $^{154}\text{Eu}$  und  $^{137}\text{Cs}$  wurden auf den 01.01.2021 zerfallskorrigiert. Die gemessenen Aktivitäten von  $^{154}\text{Eu}$  und  $^{241}\text{Am}$  der Partikel links in Abbildung 6.5 zeigen einen fast linearen Zusammenhang. Sie erstrecken sich ohne erkennbare Unterschiede zwischen den Probenahmeorten über zwei Größenordnungen. Ausschließlich der Partikel *KOP-004* zeigt ein leicht abweichendes Verhältnis zum Rest der Proben.

Da die  $^{241}\text{Am}$ -Aktivitäten der Messungen von Zheltonozhsky et al. nicht zerfallskorrigiert werden konnten, liegen die Messwerte aus dem Jahr 1997 wie erwartet unterhalb des Trends bei deutlich geringerer Varianz [49].

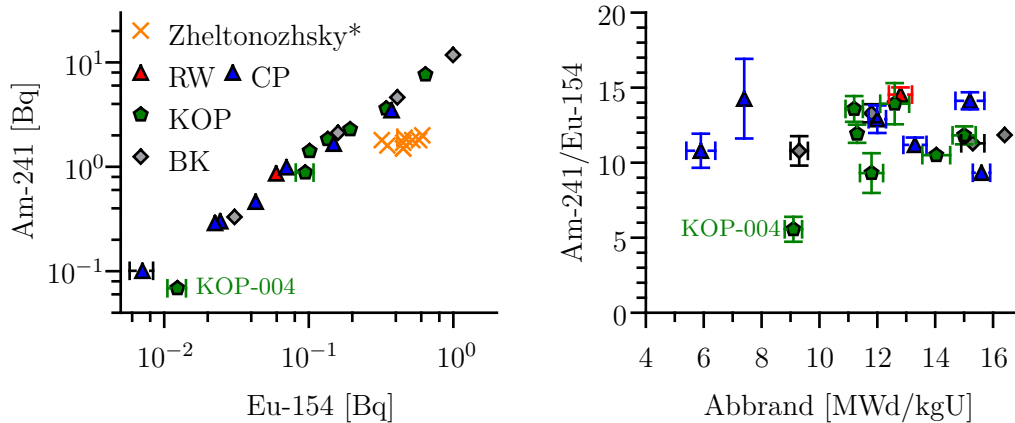


Abbildung 6.5.: *links*: Mit Ausnahme des Partikels *KOP-004* steigen die Aktivitäten von  $^{154}\text{Eu}$  und  $^{241}\text{Am}$  in einem festen Verhältnis zueinander an. \*Die  $^{241}\text{Am}$ -Aktivitäten von Zheltonozhsky sind aus dem Jahr 1997 und deshalb geringer [49]. *rechts*: Das durchschnittliche Verhältnis liegt bei 11,5(7) und zeigt keine Abhängigkeit von Probenahmeort oder Abbrand.

Die Streuung der absoluten Aktivitäten ist im Wesentlichen auf die Größe der Partikel und ihre Abbrände zurückzuführen. In den vorherigen Kapiteln wurde ausgiebig auf die Bestimmung des Abbrands eingegangen, sodass die Werte hier direkt übertragen werden.

Eine Möglichkeit zur Berücksichtigung der Partikelgröße besteht darin, die Verhältnisse der Aktivitäten zu bestimmen. Abbildungen 6.5 rechts zeigt keinen steigenden oder abfallenden Trend des Verhältnisses  $^{241}\text{Am}/^{154}\text{Eu}$  mit steigendem Abbrand. Trotz der unterschiedlichen Entstehungspfade scheinen  $^{154}\text{Eu}$  und  $^{241}\text{Pu}$  als Mutternuklid von  $^{241}\text{Am}$  in diesem Abbrandbereich etwa in gleichbleibendem Verhältnis zueinander produziert zu werden. Weiterhin zeigt die Stabilität, dass sich Europium und das Plutonium-Americium-Paar gleich an den unterschiedlichen Probenahmeorten in der Umwelt verhalten und auch 35 Jahre nach der Partikelemission keine selektive Auslaugung eines der Isotope stattfand. Die Streuung der absoluten Aktivitäten kann somit ausschließlich auf die Partikelgröße zurückgeführt werden.

Der Mittelwert des Verhältnisses liegt in dieser Arbeit bei 11,5(7). Aufgrund des einwachsenden  $^{241}\text{Am}$  und zerfallenden  $^{154}\text{Eu}$  steigt der Wert über die Jahre an. Dieser Anstieg ist gut in der Literatur dokumentiert und bestätigt den hier berechneten Wert für den Zeitraum 2019 bis 2021 (Tabelle 6.1). Ausschließlich der Partikel *KOP-004* zeigt ein niedrigeres Verhältnis von 5,6(8). Er besitzt weiterhin die bemerkenswerte Besonderheit, dass kein  $^{137}\text{Cs}$ -Signal detektiert werden konnte. Dies deutet darauf hin, dass es sich nicht um ein klassisches Kernbrennstofffragment handelt, sondern um eine sekundär gebildete Phase. Da dieser Partikel dem Versuchsfeld von *BioVestra* entstammt, wurde die mögliche chemische Zusammensetzung

## 6. Gammaspektrometrie

Tabelle 6.1.: Anwachsen des  $^{241}\text{Am} / ^{154}\text{Eu}$  Verhältnisses mit der Zeit in verschiedenen Literaturangaben

Messjahr	1986 [134]	1997 [49]	2000 [113]	2014 [135]	2015 [134]	2019-2021
$^{241}\text{Am}/^{154}\text{Eu}$	0,024	0,5(1)	1,5	6(1)	6,76	11,5(7)

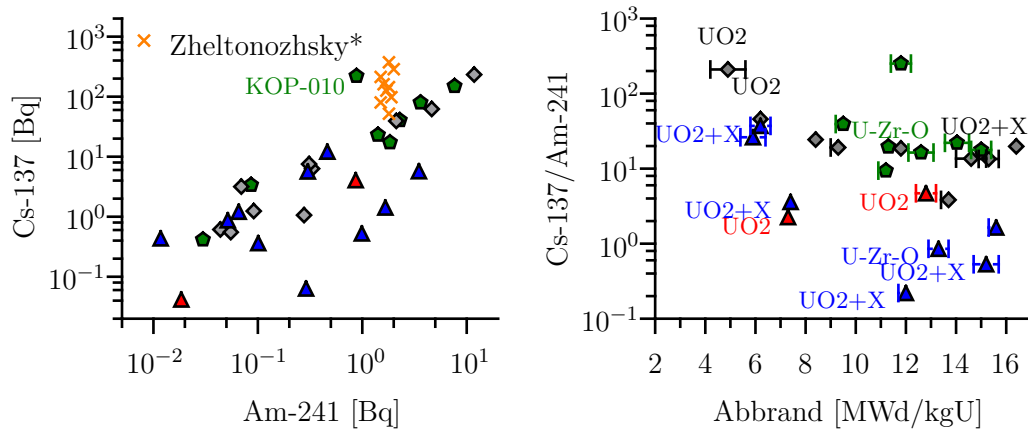


Abbildung 6.6.: links: Die Aktivitäten von  $^{137}\text{Cs}$  und  $^{241}\text{Am}$  zeigen keinen generellen Trend. Der Partikel KOP-010 zeigt ein äußerst untypisches zu hohes Verhältnis. \*Die  $^{241}\text{Am}$ -Aktivitäten von Zheltonozhsky et al. sind aus dem Jahr 1997 und deshalb geringer [49]. rechts: Auch unter Einbezug von Partikelklasse, Abbrand und Probenort bleibt das Verhältnis zwischen dem leicht flüchtigen Cäsium und Americium ohne eindeutigen Zusammenhang.

bereits umfangreich in der Dissertation von Wolfgang Schulz diskutiert [111]. Der Zusammenhang zwischen  $^{137}\text{Cs}$  und  $^{241}\text{Am}$  ist nicht so eindeutig wie von  $^{241}\text{Am}$  und  $^{154}\text{Eu}$ . Abbildung 6.6 links zeigt eine Streuung der Aktivitäten abseits eines generellen Trends über mehrere Größenordnungen. Dies deutet auf elementselektive Prozesse nach dem Reaktorbetrieb hin. Insbesondere die Hälfte der Partikel des Kühlteiches (blau) scheinen entweder zu wenig Cäsium oder zu viel Americium zu besitzen. Nur der Partikel KOP-010 weist eine genau umgekehrte Abweichung auf. Da Cäsium deutlich flüchtiger als Plutonium oder Americium ist, wurde erwartet, dass bei Partikeln, die hohen Temperaturen ausgesetzt waren, ein Teil des Cäsiums verdampft ist. Dies würde in der Folge zu einem niedrigeren  $^{137}\text{Cs}/^{241}\text{Am}$ -Verhältnis führen.

Diese Fraktionierung wurde bereits in den frühen 90er Jahren beschrieben [136, 124]. Kashparov et al. führen sie sowohl auf die Bedingungen während des Unfalls als auch auf die Auslaugung der Partikel in der Umwelt zurück [134]. Maßgeblich entscheidend für die umweltbedingte Auslaugung ist neben den ortsabhängigen Bedingungen wie pH-Wert des Bodens, auch die Beschaffenheit des Partikels selbst. Chemisch



besonders stabile Phasen aus zusammengeschmolzenem Uran und Zirkonium müssen beim Entstehungsprozess heißer als 2500 °C gewesen sein [137]. Dies sollte zur Verdampfung des Cäsiums aus dem Partikel noch während des Unfallgeschehens führen [19, 134]. Nach dem Erkalten ist die U-Zr-O Phase jedoch stabiler in der Umwelt als Uranoxid Partikel und sie zeigt eine deutlich verringerte Auflösungsgeschwindigkeit [113].

Bei Partikeln aus Urandioxid ist die Oxidationsstufe des Urans ein wichtiger Aspekt [138]. Bei der initialen Explosion des Reaktors sind größtenteils Partikel mit unveränderter  $\text{UO}_2$  Kristallstruktur in die Umwelt gelangt. Der darauffolgende Brand oxidierte das Urandioxid teilweise und Partikel der Form  $\text{UO}_{2+x}$  wurden über einen Zeitraum von zehn Tagen aus dem beschädigten Kern geschleudert [19]. Die oxidierten Partikel besitzt eine porösere Oberfläche und eine höhere Auflösungsrate in der Umwelt [10]. Je nach Windrichtung am Tag der Emission wurden die verschiedenen Partikelklassen in unterschiedliche Himmelsrichtungen verteilt [11].

Es sind demnach eine Vielzahl von Faktoren zur Beschreibung des Gehalts flüchtiger Elemente in den Partikeln zu beachten. Die Partikelklasse wurde in dieser Arbeit anhand von REM Aufnahmen festgelegt. Eine detailliertere Bestimmung der Oxidationsstufen per Röntgen-Nahkanten-Absorptions-Spektroskopie ist in der Dissertation von Martin Weiß beschrieben [24].

Abbildung 6.6 rechts gibt das Verhältnis von  $^{137}\text{Cs}$  zu  $^{241}\text{Am}$  in Abhängigkeit des Abbrands an. Ein Teil der Partikel des Bohrkerns (grau) und des Testfeldes (grün) zeigen den ungestörten Trend ohne Fraktionierung. Da  $^{137}\text{Cs}$  als direktes Spaltprodukt unmittelbar produziert wird und  $^{241}\text{Pu}$  erst nach mehreren Neutroneneinfängen entsteht, ist das Verhältnis höher bei niedrigen Abbränden.

Ausgewählte Partikel wurde in der Abbildung mit ihrer zugeordneten Klasse markiert. Die Ergebnisse widersprechen jedoch der Erwartung, da keine eindeutigen Unterschiede zwischen den Partikelklassen erkennbar sind. So besitzen einige der oxidierten und U-Zr-O Partikel das gleiche Cäsium zu Americium Verhältnis wie nicht-oxidierte, was im Kontrast zur Fraktionierung während des Entstehungsprozesses steht und mehr für Verwitterungs- und Auslaugungsprozesse spricht.

Für die Partikel mit niedrigerem Verhältnis lässt sich ebenfalls kein eindeutiger Zusammenhang erkennen. Zwar deutet das fehlende Cäsium in den Proben des Kühlteichs (blau) auf eine umweltbedingte Auslaugung hin, dennoch gibt es auch hier Partikel ohne Abweichung. Gleichermaßen lässt auch hier die zugeordnete Klasse keine vollständige Beschreibung zu. So gibt es oxidierte Partikel, die keine Fraktionierung zeigen, während nicht-oxidierte Partikel aus dem roten Wald ein deutlich niedrigeres Isotopenverhältnis besitzen. Um weitere Rückschlüsse aus der unklaren Datenlage zu gewinnen, sind Vergleichsdaten aus der Literatur unverzichtbar. Dies ist nur mit den zerfallskorrigierten Aktivitäten der zwei Spaltprodukte  $^{154}\text{Eu}$  und  $^{137}\text{Cs}$  möglich. Da nicht in jedem Partikel  $^{154}\text{Eu}$  gemessen werden konnte, verringert sich jedoch die Anzahl der Messpunkte.

Im Vergleich der absoluten Aktivitäten in Abbildung 6.7 ist zu erkennen, dass eine Vielzahl der zwischen 1986 und 1995 gemessenen Partikel aus der Datenbank von Kashparov et al. bereits die beschriebene Cäsiumfraktionierung aufweisen [123].

## 6. Gammaspektrometrie

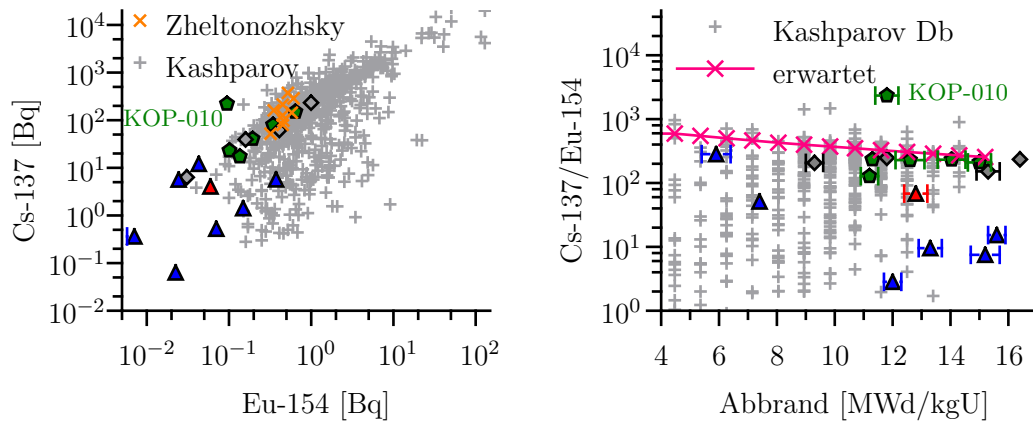


Abbildung 6.7.: *links*: Im Vergleich mit den zerfallskorrigierten Literaturangaben zeigt nur der Partikel *KOP-010* ein außergewöhnliches Verhältnis. Ein Teil der Partikel aus der Datenbank von Kashparov et al. zeigen Cäsiumfraktionierung [123]. *rechts*: Das Verhältnis der Spaltprodukte  $^{137}\text{Cs}$  zu  $^{154}\text{Eu}$  innerhalb des Reaktors ist in Abhängigkeit des Abbrands in der Literatur gegeben (pink) [123]. Eine Vielzahl der gemessenen Partikel besitzen dieses ungestörte Isotopenverhältnis und zeigen demnach keine Fraktionierungseffekte.

Aufgrund der kurzen Verweildauer in der Umwelt, deutet dies auf die temperaturbedingte Fraktionierung während des Unfallhergangs hin. Die Aktivitäten von Zheltonozhsky et al. zeigen 1997 keine Abweichung vom ungestörten Verhältnis unter den Umweltbedingungen des Kraftwerksgeländes [49].

Zusätzlich wird in der Abbildung deutlich, dass das Aktivitätsverhältnis des Partikels *KOP-010* weit außerhalb der fast 2000 Datenbankeinträge liegt. Dies bestätigt, dass es sich hier höchstwahrscheinlich nicht um eine klassische, sondern um eine sekundäre Partikelklasse handelt, welche sich deutlich später gebildet hat. Die Partikel dieser Arbeit mit der deutlichsten Fraktionierung entstammen alle dem Kühlteich. Die umgekehrte Schlussfolgerung, dass generell Partikel unter diesen Bedingungen besonders wenig Cäsium enthalten, ist jedoch falsch.

Für den RBMK Tschernobyls sind in der Literatur Angaben zur erwarteten Aktivitätskonzentration verschiedener Spaltprodukte gegeben [123]. Daraus ergibt sich nach Zerfallskorrektur der in Abbildung 6.7 rechts gezeigte Trend in pink. Je nach Abbrand liegt 2021 das erwartete ungestörte  $^{137}\text{Cs}/^{154}\text{Eu}$  Verhältnis bei 250 bis 900. Die Partikel von Zheltonozhsky et al. besitzen keine Angabe zu ihrem Abbrand, fügen sich mit einem Mittelwert von 356(38) jedoch gut in diesem Bereich ein [49]. Die Partikel dieser Arbeit ohne erkennbare Fraktionierung befinden nahezu ideal auf dem erwarteten Trend. Insbesondere die Proben des Bohrkerns und, mit Ausnahme des Sonderfalls *KOP-010*, die Proben des Testfeldes stimmen mit dem erwarteten Reaktorinventar überein. Die beobachtete Fraktionierung bei Partikeln des Kühl-

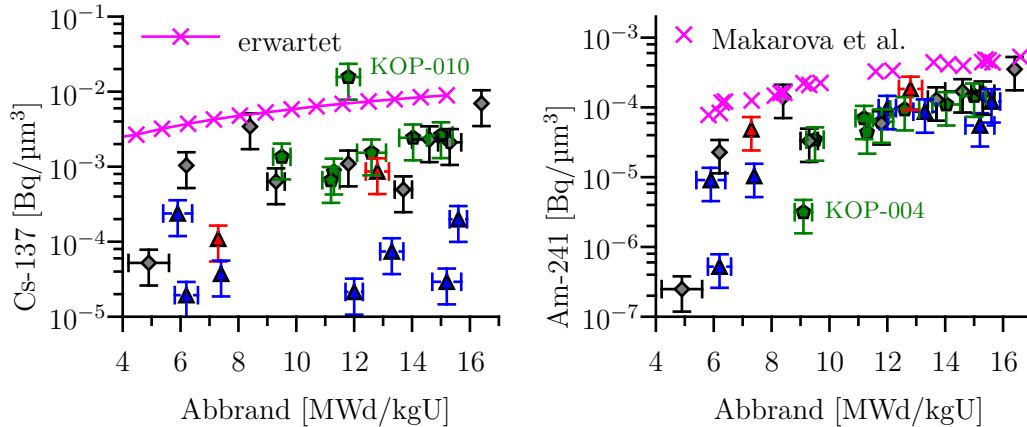


Abbildung 6.8.: *links*: Fast alle Partikel besitzen eine niedrigere  $^{137}\text{Cs}$ -Konzentration als erwartet [123]. Nur der Partikel *KOP-010* besitzt eine höhere, was auf eine sekundäre, kondensierte Partikelart hindeutet. *rechts*: Die  $^{241}\text{Am}$ -Konzentration liegt ebenfalls etwas unterhalb der Referenzwerte von Makarova et al. [38]. *KOP-004* besitzt eine deutlich geringere Konzentration, was angesichts der sekundären Bildung des Partikels sinnvoll erscheint.

teichs entspricht auch in ihrer Größenordnung den Werten der Datenbankeinträge (grau). Für den Bereich des roten Waldes kann keine Aussage getätigt werden, da nur bei einem Partikel  $^{154}\text{Eu}$  detektiert wurde. Um die Aktivitäten einzelner Isotope unabhängig von der Partikelgröße vergleichen zu können, besteht die Möglichkeit, das Volumen des Partikels anhand von REM-Aufnahmen abzuschätzen und eine Aktivitätskonzentration anzugeben. Dazu wurde jedem Partikel eine Form, sowie Länge und Breite zugeordnet. Das berechnete Volumen der Partikel ist mit auf dem Datenbankbericht der  $\gamma$ -Aktivitäten im Anhang B angegeben. Da die Tiefe des Partikels mittels 2D-Bildern nur schlecht bestimmt werden kann, wurde eine relative Volumenunsicherheit von 50% für die weiteren Berechnungen gewählt. Die daraus folgenden Unsicherheiten für die Aktivitätskonzentration erscheinen hoch, sind jedoch akzeptabel, da sich die Fraktionierung über mehrere Größenordnungen erstreckt.

Die von Kashparov et al. erwartete spezifische Aktivität des Reaktors ist in  $\text{Bq g}^{-1}$  gegeben und wird über die Dichte  $10,42 \text{ g cm}^{-3}$  in eine Aktivitätskonzentration  $\text{Bq } \mu\text{m}^{-3}$  umgerechnet [123, 112]. Daraus ergibt sich der in Abbildung 6.8 in pink gegebene Trend der  $^{137}\text{Cs}$ -Konzentration.

Trotz der erhöhten Unsicherheiten bestätigt sich die Erkenntnis, dass ein Großteil des Cäsiums in den Partikeln fehlt. Auch die Partikel des Testfeldes liegen unterhalb der erwarteten  $^{137}\text{Cs}$ -Konzentration. Die Ausnahme *KOP-010* besitzt dagegen einen zu hohen Wert, was eine sekundäre, mutmaßlich kondensierte Partikelart bestätigt. Für die Partikel des Kühlteichs bleibt ein unvollständiges Bild des Isotopeninventars.

## 6. Gammaspektrometrie

Trotz einer Vielzahl an Informationen wie Abbrand und Struktur zeigen sich noch immer Unterschiede im Gehalt, die auf einen anderen Mechanismus zurückzuführen sein müssen. Kashparov et al. beobachteten ein ähnlich heterogenes Verhalten bei sequenziellen Extraktionen zweier Sedimentproben [10]. Der dort spekulierte Grund von verschiedenen Mengen organischen Materials in den Sedimenten kann für diese Arbeit jedoch nicht übertragen werden, da direkt individuelle Partikel gemessen wurden.

Für Americium stehen die schon bekannten Werte von Makarova et al. als Literaturvergleich zur Verfügung [38]. Im Unterschied zu den meisten Literaturangaben stehen dort  $^{241}\text{Pu}$ -Konzentrationen in g/tU zu jeder Probe zur Verfügung. Dies erlaubt, unter Berücksichtigung von Kernbrennstoffdichte und spezifischer Aktivität von  $1,27 \cdot 10^{14} \text{ Bq kg}^{-1}$  [112, 139], die Berechnung der  $^{241}\text{Am}$ -Konzentration im Jahr 2021.

Abbildung 6.8 rechts gibt sie in pink an. Durch die Berücksichtigung der Partikelgröße lässt sich sehr gut die steigende  $^{241}\text{Am}$ -Konzentration mit steigendem Abbrand erkennen. Insgesamt liegt der Gehalt jedoch unterhalb des erwarteten Trends. Es ist möglich, dass es sich hierbei um einen systematischen Fehler in der Berechnung handelt. Jedoch zeigt die  $^{154}\text{Eu}$ -Konzentrationen in den Partikeln ein ganz ähnliches Verhalten und befindet sich unterhalb der erwarteten Reaktorkonzentration (Abbildung im Anhang A.23). Die Konzentrationen des schon im  $^{154}\text{Eu}/^{241}\text{Am}$ -Verhältnis gestörten Partikels *KOP-004* befinden sich beide deutlich unterhalb der restlichen Partikel, was ebenfalls sinnvoll erscheint, da es sich mutmaßlich um einen sekundär gebildeten Partikel handelt.

Zusammenfassend zeigen die Partikel generell eine zu niedrige Isotopenkonzentration im Vergleich mit der Literatur. Da das Verhältnis von  $^{137}\text{Cs}/^{154}\text{Eu}$  der ungestörten Partikel jedoch mit der Literatur übereinstimmt, liegt dies entweder an einer gleichberechtigten Auslaugung in der Umwelt oder es handelt sich um einen systematischen Fehler in der Volumenberechnung. Hier könnten gezielte Auslaugungsexperimente an individuellen Partikeln weitere Erkenntnisse liefern.

Das beobachtete Ausmaß der Fraktionierung flüchtiger Elemente stimmt mit der Literatur überein. Der zugrundeliegende Mechanismus konnte trotz einer Vielzahl an Informationen zu den individuellen Partikeln nicht abschließend aufgeklärt werden.

## 7. Fazit

In dieser Dissertation wurden zerstörungsfreie Messungen von hot particles aus der Sperrzone Tschernobyls beschrieben. Zur massenspektrometrischen Analyse dieser Mikrometer großen Kernbrennstofffragmente wurde Sekundärionen- und Sekundär-Neutralteilchen-Massenspektrometrie eingesetzt. Das für Letzteres benötigte Lasersystem wurde durch zwei neue Titan:Saphir-Laser erweitert.

Durch die Integration der Gitterlaser in das bestehende SNMS-System wurde ein breit durchstimmbarer Wellenlängenbereich von 370 nm bis 460 nm für Anregungsschemata diverser Elemente zugänglich. Die eigens entwickelte Steuersoftware CARO erlaubt dabei den vollautomatischen Wechsel der Anregungsschemata in wenigen Minuten bei gleichzeitiger Echtzeitkontrolle des Laserstatus. Der zeitintensive, manuelle Umbau der alten Titan:Saphir-Laser zum Wechsel des Anregungsschemas, sowie die resultierende Neuausrichtung über der Probe entfällt.

Es wurden mehrere Anregungsschemata auf ihre Sättigungsleistung und Isotopieverschiebung untersucht. Die gemessenen Isotopenverhältnisse von Uran und Plutonium wurden an Referenzproben überprüft. Die Ergebnisse zeigten, dass durch die geringere Laserlinienbreite eine gleichberechtigte Anregung aller relevanten Plutoniumisotope bei dem gewählten Anregungsschema nicht möglich ist. Durch die eingeführte Kalibration der Ionisationseffizienzen können die Isotopenverhältnisse dennoch korrekt bestimmt werden.

Für Uran wurde die Bestimmung der Isotopenverhältnisse an den Uranoxiden verifiziert. Zukünftige Proben mit signifikanten Isobaren oder geringerer Urankonzentration können analog zu Plutonium mit der kalibrierten SNMS gemessen werden.

Die Isotopenverhältnisse von Uran, Plutonium und Americium eines Kernbrennstofffragmentes aus der Umwelt können dank des neuen Systems innerhalb eines Tages bestimmt werden. Durch den Vergleich mit Literaturangaben konnten die Proben dieser Arbeit einem Reaktortyp und Anreicherungsgrad zugeordnet werden. Die exzellente Übereinstimmung mit den Angaben des RBMK-1000 zeigt, dass das System in der Lage ist, schnell und zuverlässig kleinste Proben für die nuklearen Forensik zu analysieren.

Zusätzlich gelang der weltweit erste zerstörungsfreie Nachweis von  $^{244}\text{Cm}$  in einem  $10\ \mu\text{m}$  kleinen Partikel bei einer abgeschätzten Konzentration von gerade einmal  $0,2\ \text{g/tU}$ .

Die hohe Ortsauflösung der primären Ionenquelle in Verbindung mit der geringen Nachweisgrenze und hohen isobaren Unterdrückung wurde verwendet, um Technetium in Querschnitten von kontaminierten Pflanzen des Projekts *Translara* zu lokalisieren. Die erfolgreiche Messung dieser sehr unterschiedlichen Probenart zeigt die Vielfältigkeit des SNMS Systems und eröffnet ein weites Feld in der Spurenanalyse.

## 7. Fazit

lytik. Durch die quasi-zerstörungsfreie Messmethode stehen die Proben anschließend für weitere Messungen zur Verfügung.

So konnte der bestimmte Abbrand in Verbindung mit gammaspektrometrischen Messungen genutzt werden, um den Gehalt der schwer flüchtigen Isotope  $^{154}\text{Eu}$  und  $^{241}\text{Am}$  in individuellen Partikeln zu beschreiben und Anomalien zu identifizieren. Das Verhalten des flüchtigen  $^{137}\text{Cs}$  konnte hingegen auch mit den zusätzlichen Informationen nicht vollständig beschrieben werden und benötigt weitere Forschung.

### 7.1. Ausblick

In Zukunft können SNMS Messungen verschiedenster Probenarten und Anregungsschemata in kurzer Abfolge hintereinander durchgeführt werden. Die in dieser Arbeit berechneten Resonanzen besitzen eine Unsicherheit von  $0,04\text{ cm}^{-1}$ , welche durch die Genauigkeit des Wavemeters *WS6-600* diktiert wird. Da die erreichte Langzeitstabilität durch die Steuersoftware *CARO* deutlich höher ist, wäre ein Modell mit höherer Präzision in der Lage, die Genauigkeit der Resonanzen um etwa eine Größenordnung zu verbessern. Dies würde ebenfalls das Problem des Laserdrifts innerhalb der Messunsicherheit zwischen Referenz- und Probenmessung bei der kalibrierten SNMS reduzieren.

Eine weitere, von Darcy van Eerten am IRS bereits begonnene Aufgabe wird die Herstellung geeigneter Standards sein. Für Americium und Curium ist kein Referenzmaterial vorhanden und für Plutonium nur eine schlecht dokumentierte Referenzlösung. An einer weiteren, neuen Probe mit anderen zertifizierten Isotopenverhältnissen sollte die Genauigkeit der kalibrierten SNMS überprüft werden. Zusätzlich werden Standards mit definiertem Elementverhältnis benötigt, damit die erreichte isobare Unterdrückung genau quantifizieren werden kann und nicht anhand von Literaturvergleichen abgeschätzt werden muss.

Mit dem vorgestellten zweistufigen Anregungsschema für Plutonium wurde eine durchschnittliche Uranunterdrückung von etwa 3400 erreicht. Das dreistufige Anregungsschema von Grüning et al. bietet eine bessere Unterdrückung und sollte verwendet werden, sobald das nicht-resonante Uran um mehr als vier Größenordnung unterdrückt werden soll [125, 126]. Allerdings empfiehlt sich auch hier eine Kalibration der Ionisationseffizienzen, da ansonsten die Isotopenverhältnisse verfälscht sind. Sowohl in der Dissertation von Hauke Bosco mit dem dreistufigen als auch in dieser Arbeit mit dem zweistufigen Anregungsschema gelang nur bei dem Partikel *RW-001* die erfolgreiche  $^{238}\text{Pu}$ -Detektion [23]. Dies ist vor allem auf das um eine Größenordnung höhere Gesamtsignal des Plutoniums zurückzuführen.

Dies kann zwei potenzielle Gründe haben. Der erste betrifft die Probenbefestigung. *RW-001* ist der einzige in Indium gepresste Partikel, wohingegen die anderen auf einer Wolframnadel kleben. Sollte die höhere elektrische Leitfähigkeit in Indium oder die bessere Extraktionsgeometrie für den Signalgewinn verantwortlich sein, könnte das Probenträgerdesign verbessert werden.

Die zweite, weitaus interessantere Möglichkeit ergibt sich aus den Ergebnissen der

Gammaspektrometrie. Da insgesamt eine zu geringe Konzentration von Radionukliden innerhalb der Partikel festgestellt wurde, könnte dies auf eine umweltbedingte Auslaugung aus der Urandioxidmatrix hindeuten. Es liegt nahe, dass diese insbesondere in den äußeren Atomschichten des Partikels stattgefunden hat. Da die SNMS ausschließlich die obersten Atomschichten analysiert, könnte der Plutoniumgehalt geringer als vermutet sein. Dies würde alle Partikel außer *RW-001* betreffen, da dieser bereits für mehrere hundert Stunden gemessen wurde und die obersten Atomschichten längst abgetragen sind.

Um diesen möglichen Konzentrationsgradienten zu untersuchen, gäbe es zwei Ansätze. Der erste betrifft die Probenvorbereitung. Indem ein Partikel mittels *Focused Ion Beam (FIB)* in zwei Teile geteilt wird, könnten an der Schnittfläche Unterschiede im Elementverhältnis zwischen dem Inneren und Äußeren des Partikels direkt eine Auslaugung bestätigen. Sollten die Proben zu klein oder der Effekt auf zu wenig Atomschichten an der Oberfläche begrenzt sein, können die Messwerte zwischen Querschnitts- und Oberflächenmessung verglichen werden. Die gezielte Partikelmanipulation per FIB ist im Zuge der Dissertation von Laura Leifermann am IRS angedacht.

Eine zweite Möglichkeit betrifft die Messmethode selbst. Die verwendete *TOF.SIMS 5* ist mit zwei Sputter-Kanonen ausgestattet. Beide wurden bisher nicht in die SNMS Routine eingebunden, da sie die Zykluszeit von  $100\ \mu\text{s} \hat{=} 10\ \text{kHz}$  Laser-Repetitionsrate verändern. Die dafür nötigen Anpassungen am Lasersystem würden es jedoch ermöglichen, schichtweise SNMS Messungen durchzuführen und ein größtenteils isobarenfreies Tiefenprofil aufzunehmen. Durch ein Upgrade auf die neuste Softwareversion *SurfaceLab 7.2 (IONTOF)* könnten direkt 3D-Modelle der Isotopenverteilung erstellt werden. Dies wäre auch für andere Probenarten und Elemente ein interessantes, neues Messgebiet. Insbesondere kann so die Actinidverteilung in Gesteinsproben einer möglichen Endlagerstätte dreidimensional dargestellt werden.





## A. Anhang

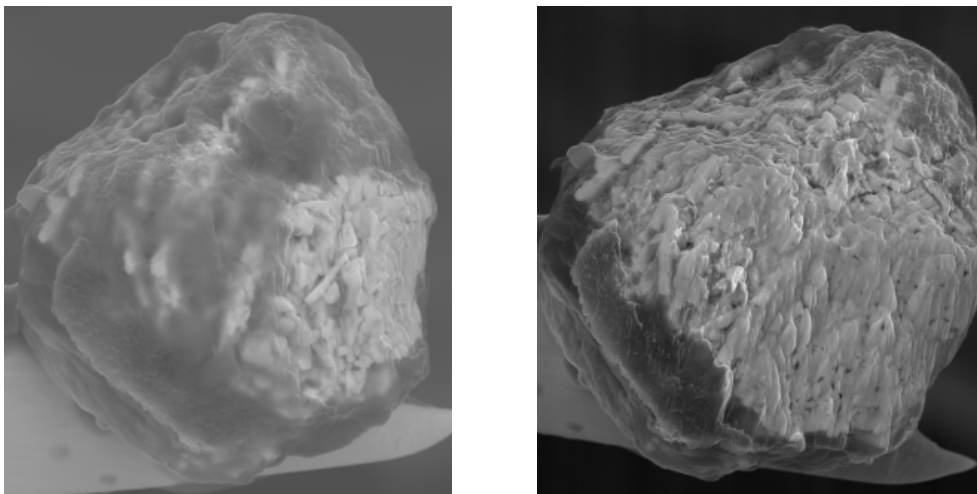


Abbildung A.1.: *links*: CP-025 vor der Messkampagne am 20.03.2019. Die Oberfläche ist teilweise mit Umweltmaterial bedeckt. *rechts*: Der gleiche Partikel 24.08.2021 nach dem Abtragen des Umweltmaterials mittels Argoncluster Kanone (GCIB) und anschließend etwa 50 h kombinierter Messzeit. Die Probenoberfläche zeigt erste Anzeichen des Probenkonsums. Da typische Messzeiten unter 5 h liegen, ist dieser im Normalfall vernachlässigbar.

A. Anhang

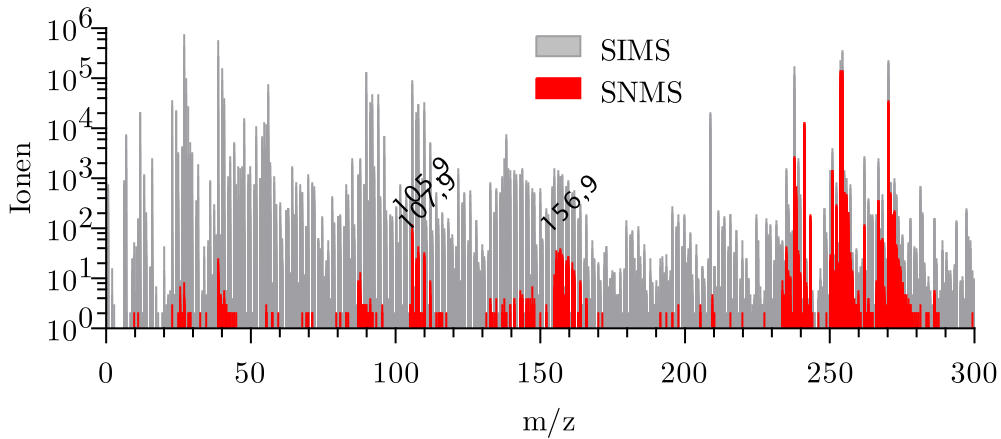


Abbildung A.2.: Vergleich zwischen Americium SNMS und SIMS des gleichen Brennstoffpartikels. Beide Messungen betragen 27 min bei einem Messfenster von  $16\ \mu\text{m} \times 16\ \mu\text{m}$ . Die SNMS zeigt deutlich weniger Untergrund. Neben dem resonant angeregtem Americium sind Uran und seine Oxide die dominanten Signale. Außerdem sind Peaks der leicht ionisierbaren Alkalimetalle Natrium und Kalium zu erkennen. Weiterhin sind die Oxide der Spaltprodukte messbar. Zirconiumoxid ist besonders prominent, da es zusätzlich als geschmolzenes Hüllmaterial auf hot particles zu finden ist.

Tabelle A.1.: Geographischen Koordinaten der Probenahmeorte

Kopatschi	51°20'54" N	30°07'41" E
Kühlteich	51°22'28.6" N	30°08'34.7" E
Prypiat	51°24'21.36" N	30°03'28.5" E
Roter Wald	51°22'59" N	30°04'42" E

Tabelle A.2.: Isotopenverhältnisse der IRMM-2029 Referenzlösung

Isotope	Anteil [mol mol <sup>-1</sup> ]	Unsicherheit [mol mol <sup>-1</sup> ]
U-234	0,000 800 07	0,000 000 35
U-235	0,041 737	0,000 012
U-236	0,010 017	0,000 002 1
U-238	0,947 461	0,000 012

Tabelle A.3.: Plutoniummassenanteile des MOX-Standards. Stand 24.04.2021

	Pu-238	Pu-239	Pu-240	Pu-241	Pu-242
rel. Anteil	2,45(1) %	57,3(3) %	26,9(2) %	5,48(3) %	7,83(5) %

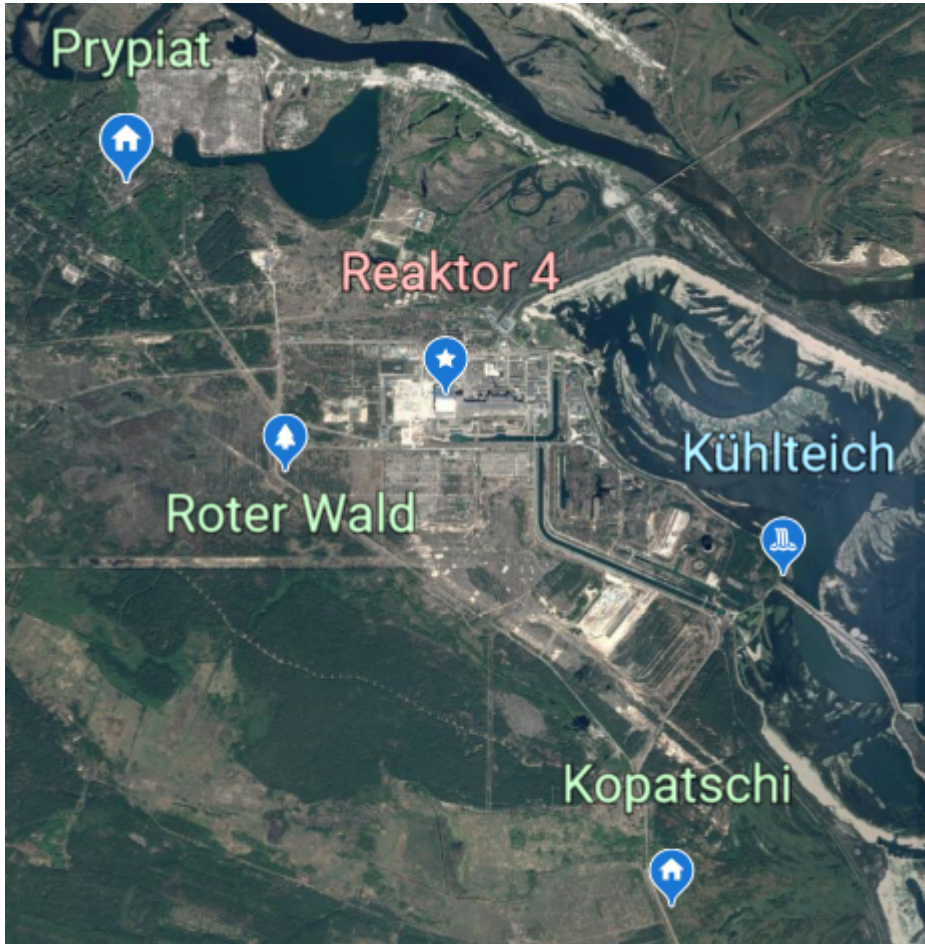


Abbildung A.3.: Karte der Probennameorte ©Google Earth

## A. Anhang

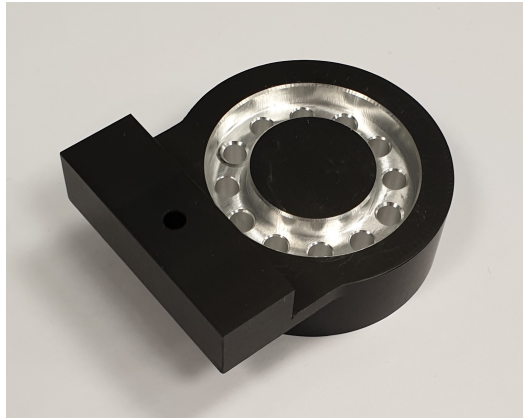


Abbildung A.4.: Verbindungsstück zwischen dem Drehtisch *DT-65N 2SM* (*PI miCos GmbH*) und der Gitterhalterung. Es ist so in die Tischaufnahme verbaut, dass das Gitter beim Systemstart von CARO nicht mit dem Laserchassis zusammenstößt. Durch den individuellen Versatz spiegelt die Drehtischposition nicht den Gitterwinkel  $\Theta$  wider.

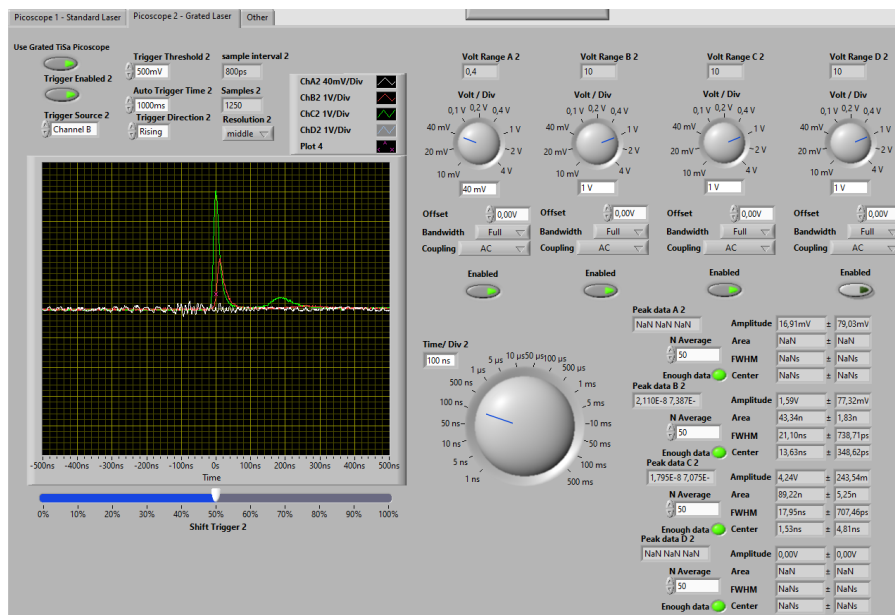


Abbildung A.5.: Die Pulslänge der neuen Gitter Laser beträgt etwa 20 ns. Die Pulsform überträgt sich entsprechend auf die Peakform der Laserionen im Massenspektrum.



Abbildung A.6.: Benutzeroberfläche von CARO

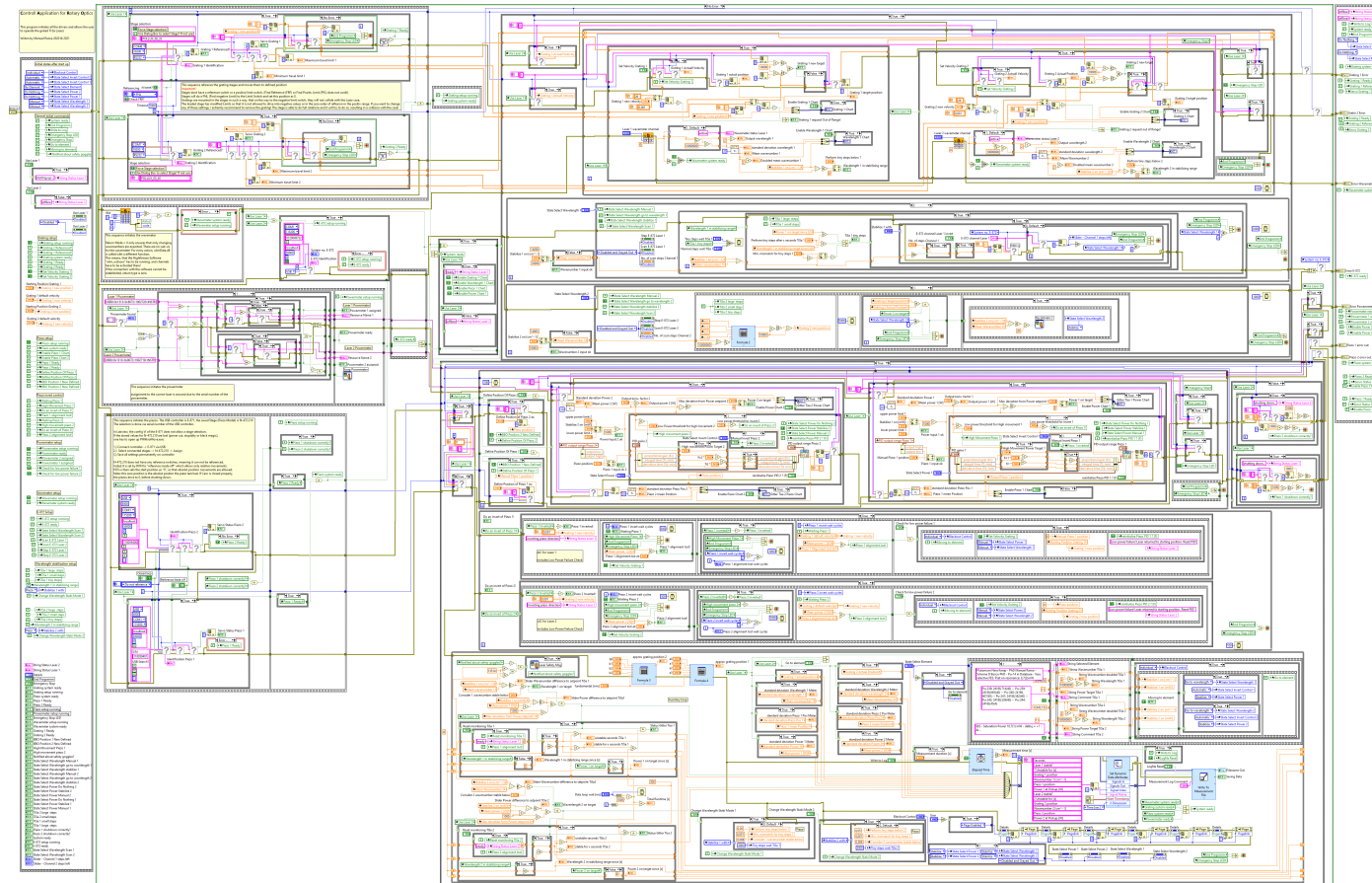


Abbildung A.7.: Blockdiagramm von CARO

Tabelle A.4.: CARO Standardeinstellungen

Parameter	Wert
Hilfsschleife	
data loop wait [ms]	1000
vertikale Linearaktuatoren	
S/N E-871 Ti:Sa 1	118059401
S/N E-871 Ti:Sa 2	118059406
Ti:Sa 1 piezo position limits high	2,4
Ti:Sa 1 piezo position limits low	-4,5
Ti:Sa 2 piezo position limits high	3
Ti:Sa 2 piezo position limits low	-3,4
set position to	0
PID-Regler	
PID gains $K_c$	0,01
PID gains $T_i$	0,002
PID gains $T_d$	0
high speed factor $K_c$	260
high speed factor $T_i$	22
lower power limit [mW]	3
upper power limit [mW]	45
Powermeter	
Powermeter 1	USB0::0x1313::0x8072::1902720::INSTR
Powermeter 2	USB0::0x1313::0x8072::1902719::INSTR
output conversion factor	17
high speed power target [W]	0,02
Ti:Sa 1 max dev. from power setpoint [W]	0,0004
Ti:Sa 2 max dev. from power setpoint [W]	0,0006
low power threshold for high speed [W]	0,0015
low power threshold for invert [W]	0,0005
piezo alignment lost at [W]	0,0001
Gittermotoren	
Referencing	FNL
Check FRF?	True
Force Stage selection	True
Ti:Sa 1 Forced Stage	POLLUX_00_35
Ti:Sa 2 Forced Stage	POLLUX_00_40
Ti:Sa 1 starting position	23,5
Ti:Sa 2 starting position	22,5
default grating velocity	0,02

Weiter auf der nächste Seite

A. Anhang

Parameter	Wert
Gitterkalibrierung	
a0	101,041
a1	-0,173956
a2	0,00017076
a3	-8,8132E-08
b0	95,1827
b1	-0,16129
b2	0,00015488
b3	-8,1447E-08
Wellenlänge	
Ti:Sa 1 wavemeter channel	4
Ti:Sa 2 wavemeter channel	5
grating step size large	0,002
wait time between steps [ms]	20000
small steps below [ $\text{cm}^{-1}$ ]	0,5
grating step size small	0,0005
stable before tiny steps [s]	30
Gitterstabilisierung	
tiny steps below [ $\text{cm}^{-1}$ ]	0,02
grating step size tiny	0,0001
wait time between tiny steps [ms]	4000
threshold for unstable wavenumber [ $\text{cm}^{-1}$ ]	0,01
nothing below [ $\text{cm}^{-1}$ ]	0,005
E-872 Stabilisierung	
E-872 S/N	0120049732
Ti:Sa 1 E-872 channel	1
Ti:Sa 2 E-872 channel	2
tiny steps below [ $\text{cm}^{-1}$ ]	0,05
steps per adjustment	40
wait time between tiny steps [ms]	3000
threshold for unstable wavenumber [ $\text{cm}^{-1}$ ]	0,008
nothing below [ $\text{cm}^{-1}$ ]	0,001



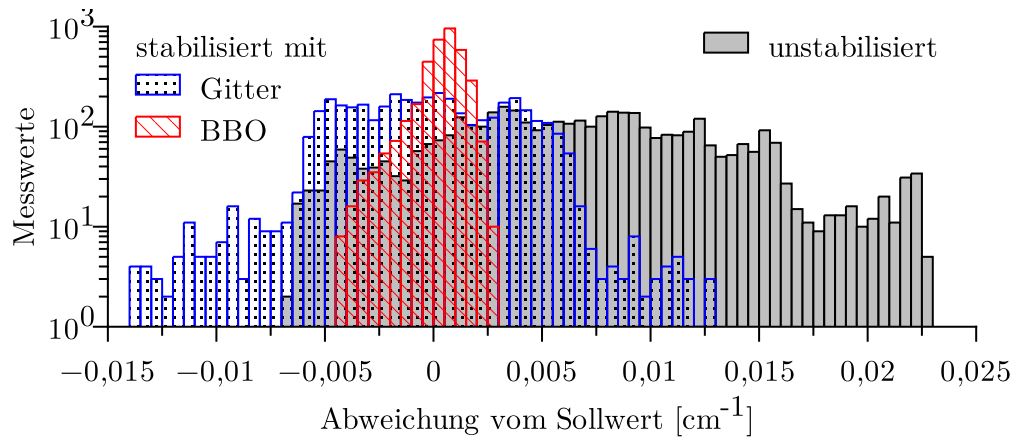


Abbildung A.8.: Verteilung der aufgenommenen Wellenlängenabweichung bei verschiedenen Stabilisierungsmethoden (Abbildung 3.12). Die Messdauer betrug jeweils eine Stunde bei einem Messwert pro Sekunde. Die Gitterstabilisierung kann den Drift, aber nicht das Oszillieren der Wellenlänge unterbinden. Die BBO-Stabilisierung liefert deutlich geringere Abweichungen zum Sollwert.

Tabelle A.5.: Unterdrückung von  $^{238}\text{U}$  des zweistufigen Anregungsschemas. Die Referenzwerte in *italic* sind übernommen aus [38]. Abbrand in MWd/kgU. \*Die Messung von *RW-001* war mit reduzierter Laserleistung unter 1,5 mW im FES und 5 mW im SES möglich.

Probe	non-res. $^{238}\text{U}$	$^{239}\text{Pu}$	Abbrand	<i>Probe</i>	<i>Abbrand</i>	$\frac{\text{Pu-239}}{\text{U-238}}$	Supp.
BK-012	4130	26095	14.8(4)	<i>17</i>	<i>14.8(1)</i>	<i>0.0025</i>	2510
BK-018	12455	124723	15.9(2)	<i>1</i>	<i>16.1(5)</i>	<i>0.0027</i>	3717
BK-023	61331	107159	8.1(1)	<i>11</i>	<i>8.2(2)</i>	<i>0.0023</i>	753
CP-008-1	9343	68442	11.6(3)	<i>9</i>	<i>11.2(1)</i>	<i>0.0023</i>	3121
CP-025	7731	38799	15.1(3)	<i>5</i>	<i>15.0(1)</i>	<i>0.0026</i>	1949
CP-033	2487	24804	11.5(6)	<i>9</i>	<i>11.2(1)</i>	<i>0.0023</i>	4249
KOP-001	45882	149753	11.0(2)	<i>9</i>	<i>11.2(1)</i>	<i>0.0023</i>	1391
KOP-012	7093	49775	10.9(3)	<i>9</i>	<i>11.2(1)</i>	<i>0.0023</i>	2990
RW-001	4609	128370	12.0(6)	<i>9</i>	<i>11.2(1)</i>	<i>0.0023</i>	11867*
RW-010	31732	96261	7.1(1)	<i>24</i>	<i>7.08(1)</i>	<i>0.0024</i>	1286

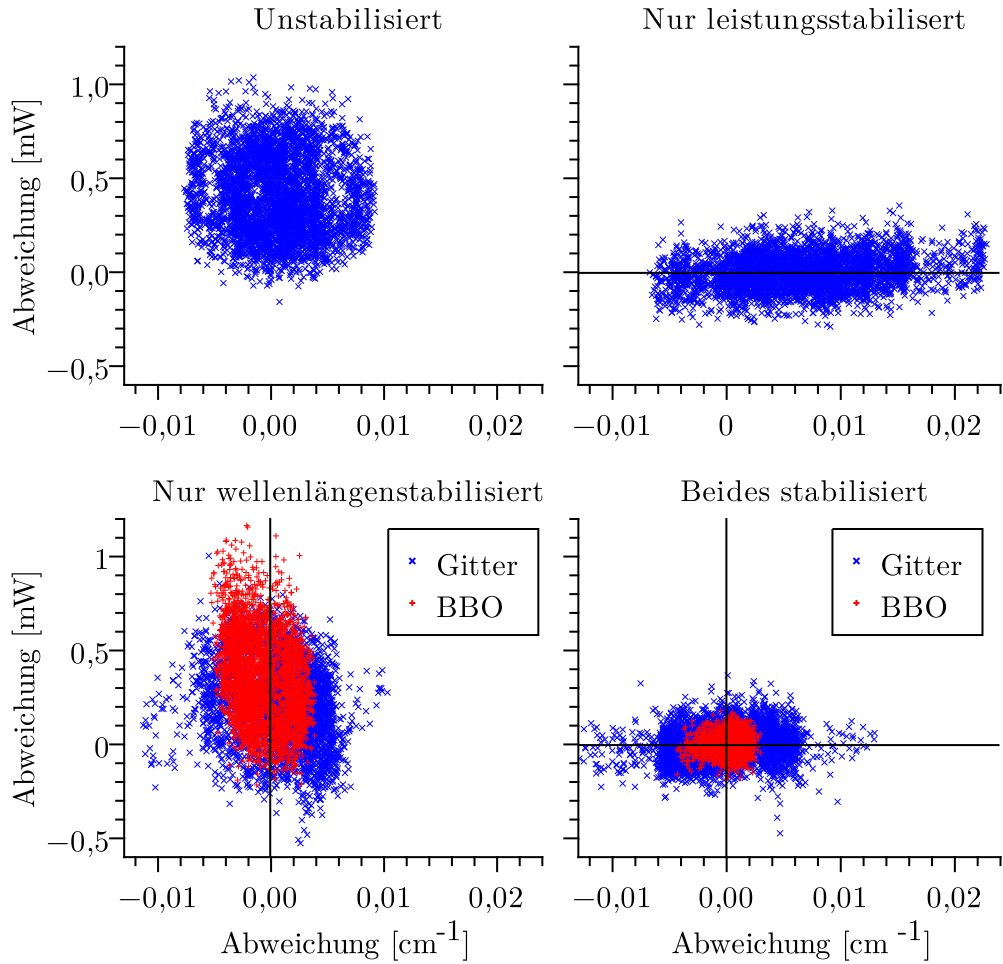


Abbildung A.9.: Langzeitmessungen über eine Stunde der verschiedenen Messmodi zeigen das Driftverhalten in Frequenz und Leistung. Zum Ausschluss einer Laufzeitstabilisierung des Signals wurde die vollständig stabilisierte Messung zuerst durchgeführt und anschließend sukzessiv die Stabilisierungen abgeschaltet. Die Sollwerte sind 11 630 cm<sup>-1</sup> und 9 mW als Kontrollleistung.

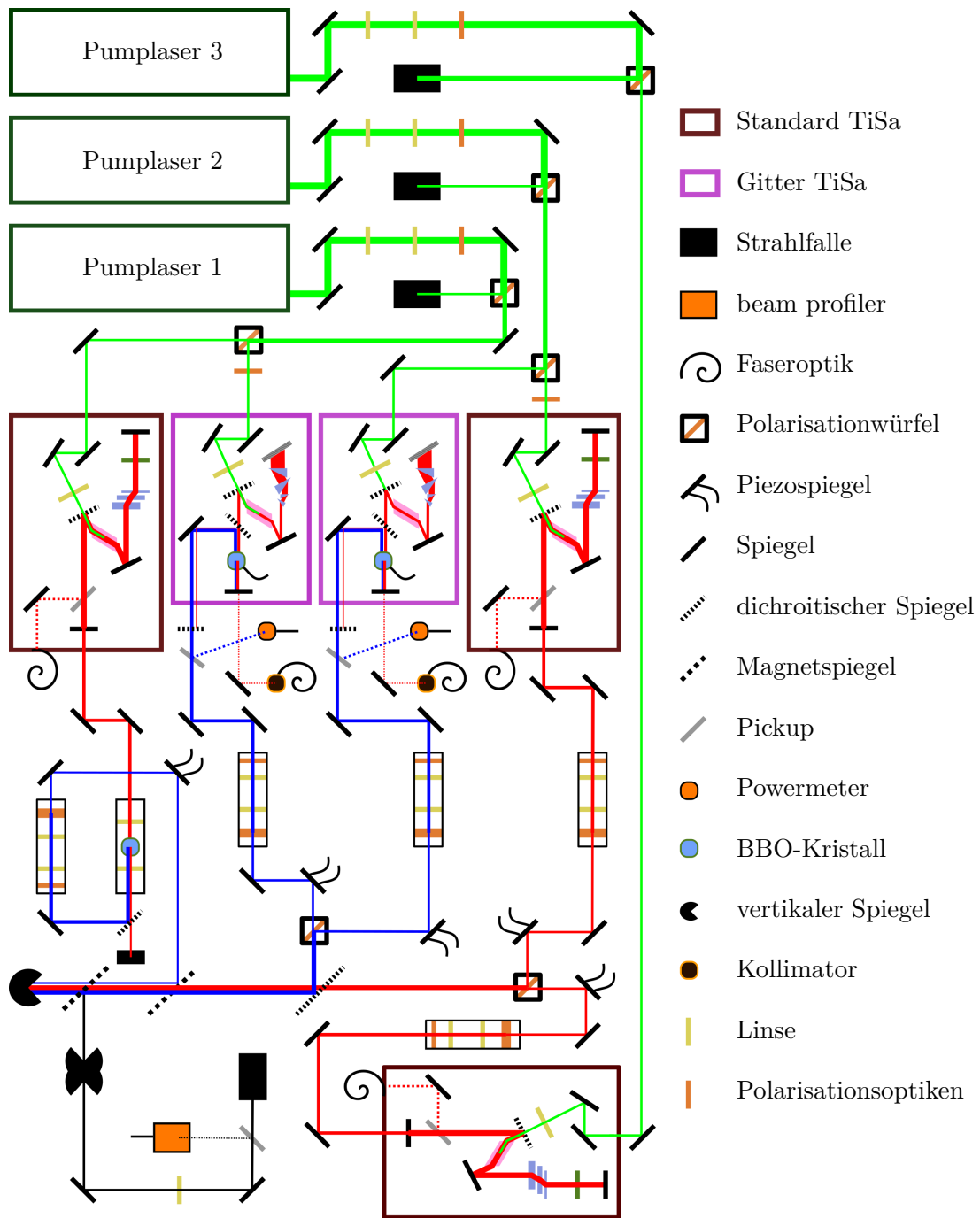


Abbildung A.10.: Aufbau und Einbindung der neuen Laser in das bestehende Lasersystem. Über einen Magnetspiegel kann zwischen einem extern frequenzverdoppelten Standard TiSa und den neuen Gitterlasern gewechselt werden.

A. Anhang

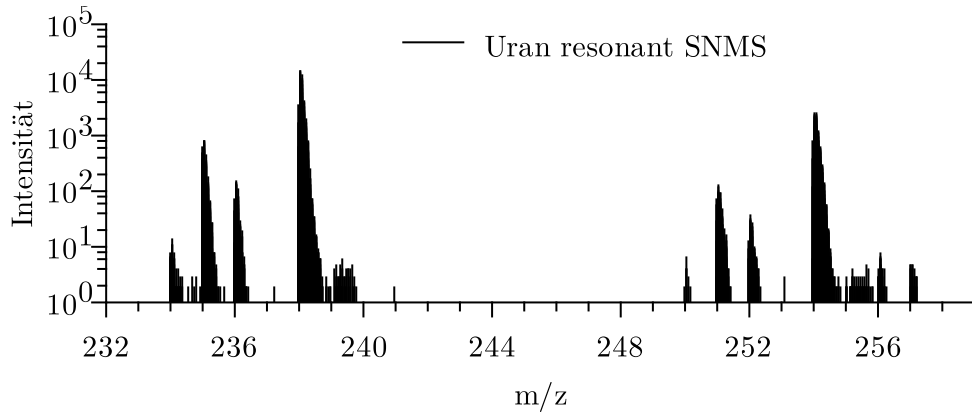


Abbildung A.11.: Massenspektrum des IRMM-2029 Referenzpartikels bei resonanter Uran SNMS. Verwendete Leistungen FES 10 mW und SES 30 mW. Es werden sowohl die Uranisotope  $^{234}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{236}\text{U}$  und  $^{238}\text{U}$  als auch deren Oxide ionisiert.

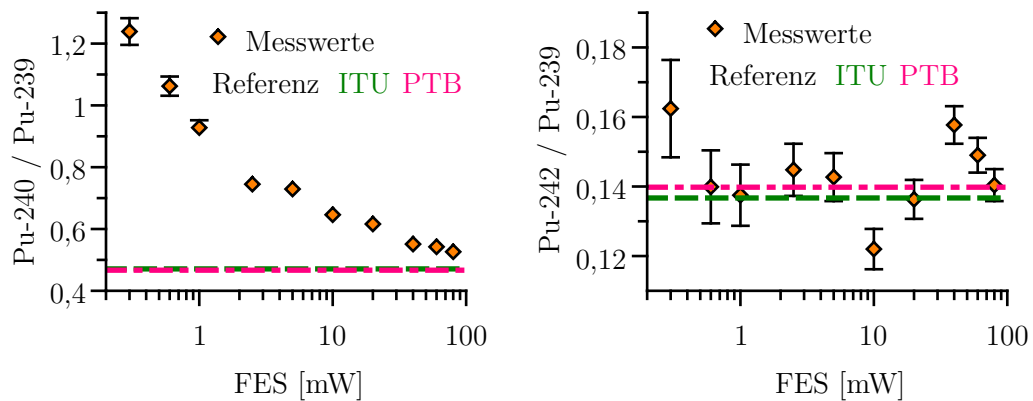


Abbildung A.12.: Plutoniumisotopenverhältnisse in Abhängigkeit der FES Leistung bei  $24\,188,62(4)\text{ cm}^{-1}$ . *links:* Das Verhältnis von  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  nähert sich dem wahren Wert an. Referenzwerte der MOX-Probe: 0,4703 angegeben von ITU und 0,4667(37) gemessen von der PTB. Erreicht wird der korrekte Wert auch mit sehr hohen Leistungen nicht. *rechts:* Die Isotope  $^{242}\text{Pu}$  und  $^{239}\text{Pu}$  besitzen Resonanzen oberhalb. bzw. unterhalb der gewählten FES Wellenlänge. Das Isotopenverhältnis schwankt mit steigender Leistung um den wahren Wert 0,1367 (ITU) und 0,1398(13) (PTB).

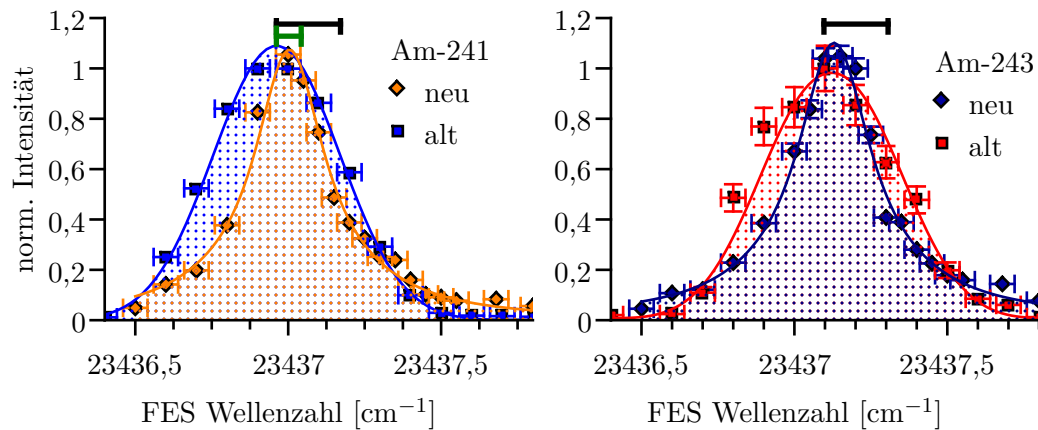


Abbildung A.13.: Vergleich zwischen den Standard TiSas und Gitterlasern. Die gezeigte Americiumresonanz wurde von beiden Lasersystemen mit 5 mW Leistung vermessen. Die geringere Laserlinienbreite der Gitterlaser erlaubt eine präzisere Bestimmung der Resonanz. Scan des alten Lasersystems aus [30]. Die Balken über den Peaks geben den in der Literatur angegebenen Bereich der Resonanz an. *Schwarz:* Fred et al. [106] *Grün:* Kneip et al. [95].

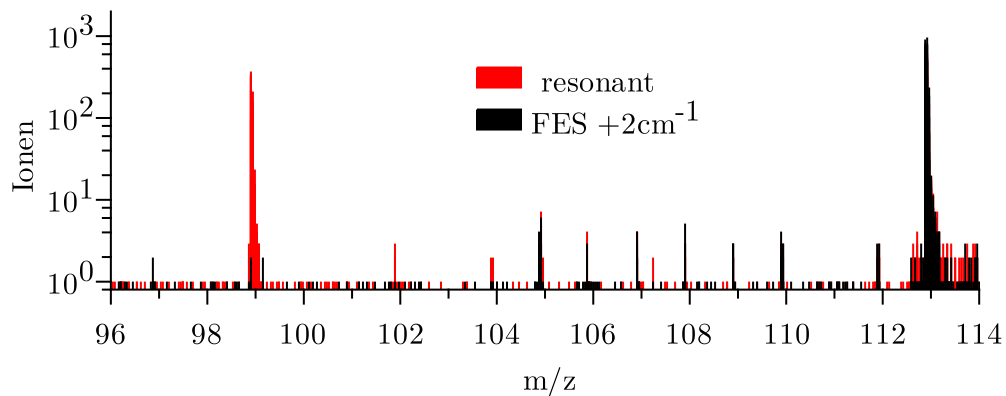


Abbildung A.14.: Massenspektren der Technetium *fast imaging* SNMS Messung 5.1 des Partikels *RW-001*. Das langlebige Spaltprodukt  $^{99}\text{Tc}$  kann frei von isobaren Interferenzen gemessen werden.

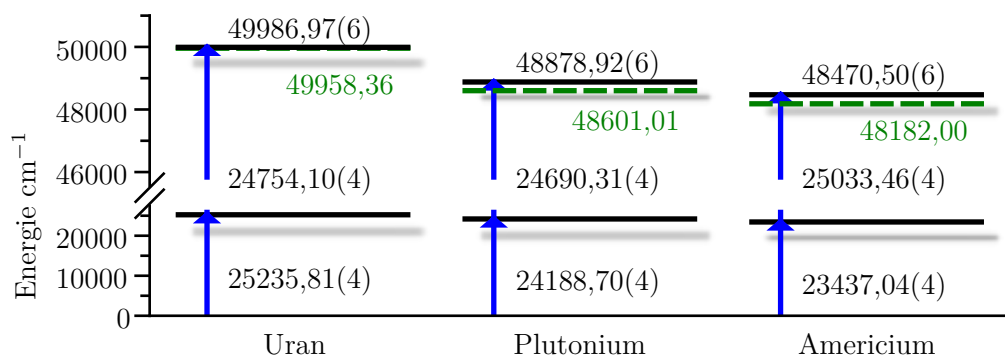


Abbildung A.15.: Die Anregungsschemata des *fast imaging* Actiniden Scans 5.3 wurden leicht zugunsten der Isotope  $^{238}\text{Pu}$  und  $^{234}\text{U}$  verschoben. Auf diese Weise wurde das Signal der niedrig konzentrierten Isotope maximiert. Alle Angaben in  $\text{cm}^{-1}$ . grün: Ionisationsenergie aus NIST Datenbank [109].

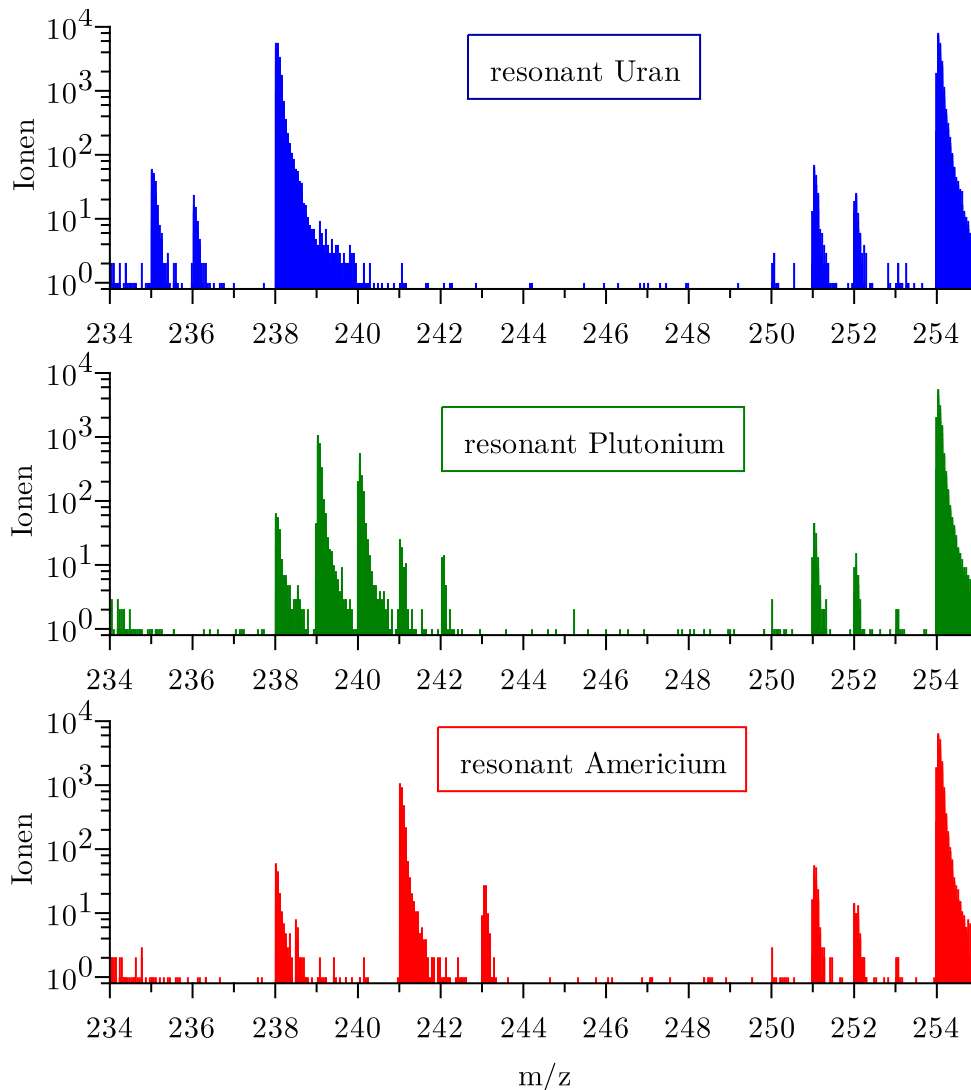


Abbildung A.16.: Die aus der Messung 5.3 resultierenden Massenspektren des Brennstoffpartikels *RW-001*. Das SNMS System liefert auch im *fast imaging* Modus ausreichend Signal, um die gering konzentrierten Isotope  $^{242}\text{Pu}$  und  $^{243}\text{Am}$  signifikant zu detektieren. Das Uranoxidsignal zeigt keinen Unterschied zwischen den verwendeten Resonanzen. Das Anregungsschema für Plutonium ionisiert eine geringe Menge an  $^{238}\text{U}$  nicht-resonant mit, sodass eine isobarenfreie Messung von  $^{238}\text{Pu}$  nicht möglich ist. Die anderen Isotope zeigen keine isobaren Interferenzen.

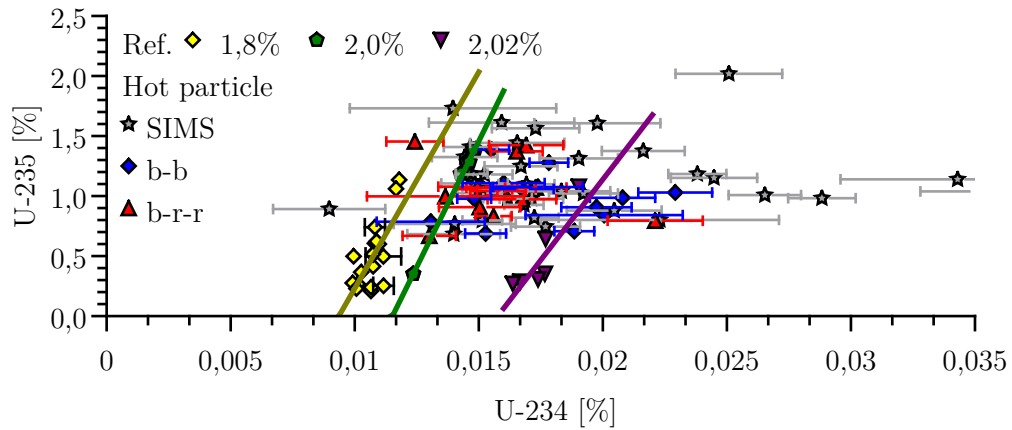


Abbildung A.17.: Während des Reaktorbetriebs sinkt sowohl der  $^{235}\text{U}$ - als auch der in Spuren vorhandene  $^{234}\text{U}$ -Anteil. Letzteres ist schlecht spaltbar und baut sich nur langsam durch Neutronenaktivierung zu  $^{235}\text{U}$  ab. Aufgrund des geringen Anteils und der damit verbundenen niedrigen Zählrate sind die gemessenen  $^{234}\text{U}$ -Anteile anfällig für überlagerndes Hintergrundsignal im SIMS Modus. Auch die Anteile der nicht resonanten SNMS fallen aufgrund von umweltbedingtem  $^{238}\text{U}^{12}\text{C}$  teilweise zu hoch aus. Das Abtragen der äußeren Atomschichten mit der Argoncluster Kanone (engl. GCIB) erwies sich als hilfreich, um den berechneten Anteil in die Region von 2,0% angereichertem RBMK-Brennstoff zu bringen. Zur präzisen Anteilsbestimmung von  $^{234}\text{U}$  wird eine höhere Uranzählrate benötigt. Dies kann zum Beispiel mittels kalibrierter SNMS bei hoher Laserleistung am elementaren Uran erreicht werden.



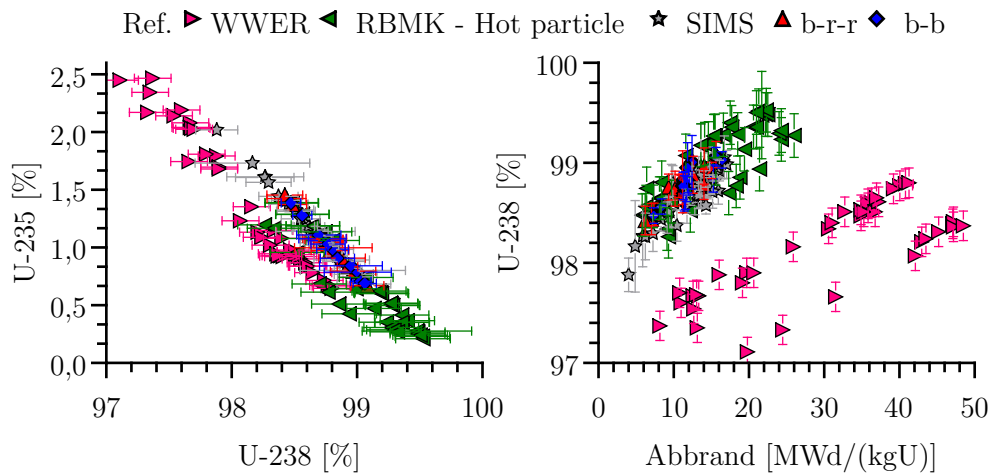


Abbildung A.18.: Während des Reaktorbetriebes verringert sich der  $^{235}\text{U}$ -Anteil. Dies geschieht effizienter als der Neutroneneinfang von  $^{238}\text{U}$ . Somit steigt der relative Anteil von  $^{238}\text{U}$  mit steigendem Abbrand. Ist nur noch wenig spaltbares  $^{235}\text{U}$  vorhanden, muss der Brennstoff gewechselt werden. Dies limitiert den erreichbaren maximalen Abbrand von niedrig angereichertem RBMK-Brennstoff. Höher angereicherter WWER-Brennstoff kann entsprechend höhere Werte erreichen. Die Unterscheidung zwischen SIMS und SNMS zur Anteilsbestimmung spielt eine untergeordnete Rolle, da es sich um die Hauptbestandteile von Kernbrennstoff ohne nennenswerte isobare Interferenz handelt.

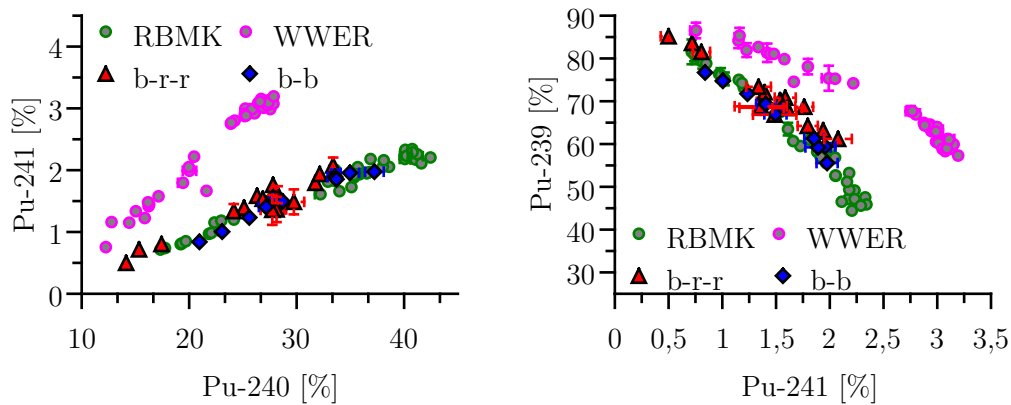


Abbildung A.19.: Ein Vergleich der Plutoniumisotopenverhältnisse von  $^{239-241}\text{Pu}$  zeigt, dass sowohl das unkalibrierte, dreistufige (b-r-r) als auch das kalibrierte, zweistufige (b-b) Anregungsschema die in der Resonanzmitte liegenden Anteile korrekt dem RBMK zuordnet.

A. Anhang

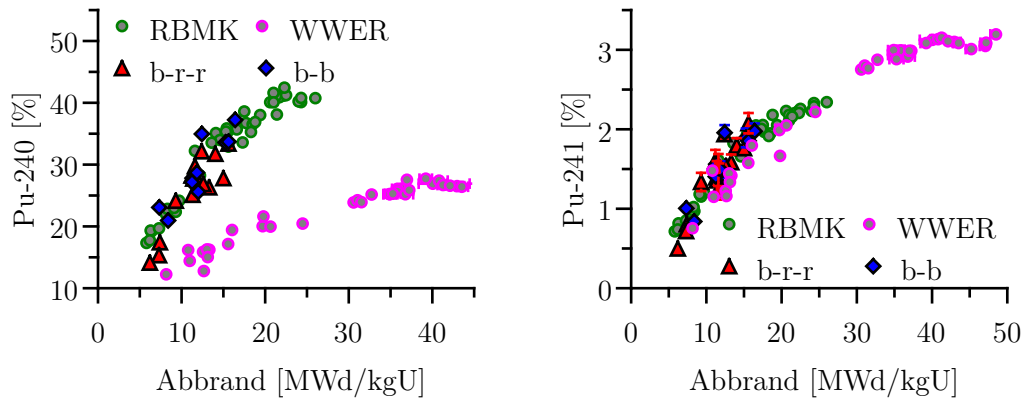


Abbildung A.20.: *links*: Mit steigendem Abbrand steigt der Anteil des  $^{240}\text{Pu}$  im RBMK deutlich schneller als beim WWER. Es ist kein Unterschied zwischen zwei und dreistufigem Anregungsschema zu erkennen. *rechts*: Die Referenzwerte des zerfallskorrigierten  $^{241}\text{Pu}$ -Anteils in Abhängigkeit des Abbrands sind zwischen den Reaktortypen nicht mehr unterscheidbar.

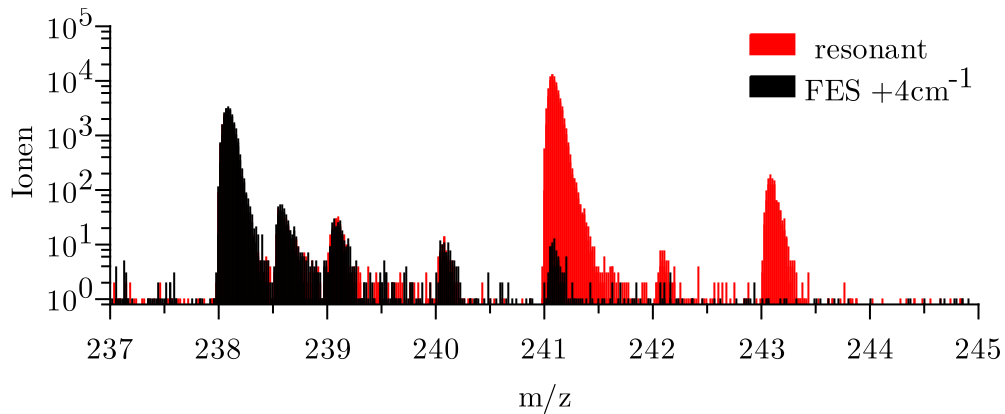


Abbildung A.21.: Massenspektrum der Americium SNMS von Partikel *KOP-001*. Es ist eine deutliche resonante Überhöhungen der Hauptisotope  $^{241}\text{Am}$  und  $^{243}\text{Am}$  zu erkennen. Die geringe Überhöhung auf  $m/z$  242 ist dem langlebigen, metastabilen  $^{242\text{m}}\text{Am}$  zuzuordnen.

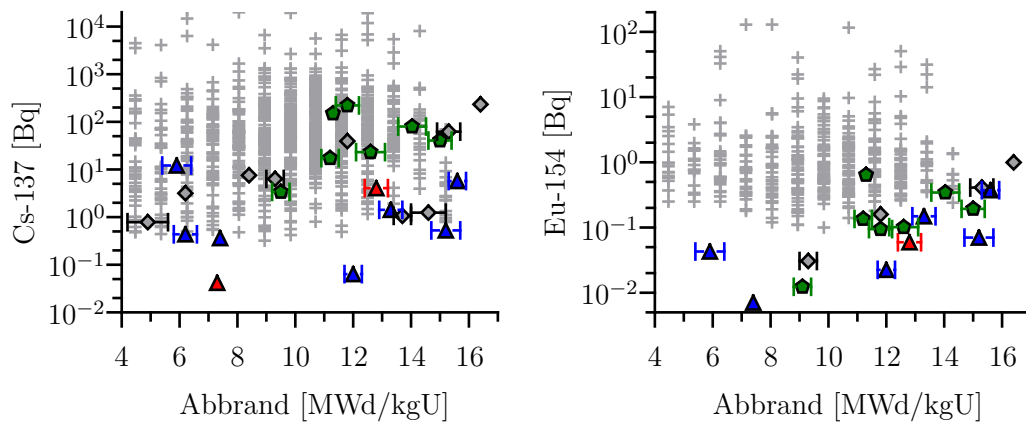


Abbildung A.22.: Ohne Berücksichtigung der Partikelgröße streuen die Aktivitäten über mehrere Größenordnungen. Im direkten Vergleich mit den Datenbankeinträgen von Kashparov et al. in grau (zerfallskorrigiert auf den 01.01.2021) konnten geringere Aktivitäten gemessen werden [123].

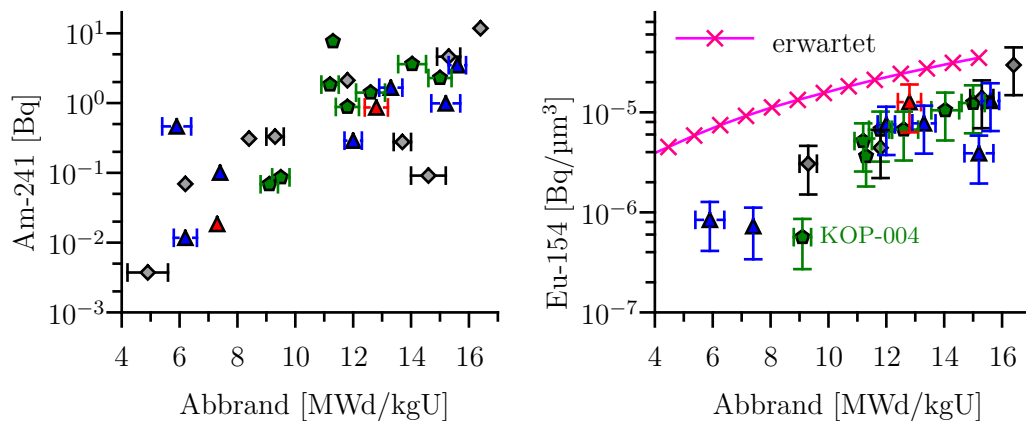


Abbildung A.23.: *links*: Die Americiumaktivitäten der Partikel zeigen auch ohne Berücksichtigung der Partikelgröße eine sichtbare Korrelation mit dem Abbrand. *rechts*: Die Europiumkonzentration zeigt eine klare Korrelation mit dem Abbrand und folgt dem erwarteten, zerfallskorrigierten Trend für Reaktorbrandstoff aus Tschernobyl [123]. Analog zum Americium scheint jedoch auch hier generell eine geringere Konzentration als erwartet vorzuliegen. Dabei ist keine Abhängigkeit zwischen Partikelart oder Probenahmeort zu erkennen. Wie auch beim Americium, besitzt der sekundär gebildete Partikel *KOP-004* eine deutlich geringere Konzentration.



## B. Datenbank

Scaled Plutonium SNMS			
Scaled Pu SNMS measurement:	3	RW-001	
Measured particle:	Bob	Measurement type	Spectrometry
Date measured:	26.02.2021	Measured area [µm]	16 x 16
Measured by:	Manuel Raiwa	Resolution	32
Show in report?	<input checked="" type="checkbox"/>	Scans	732
Consider in graphics?	<input checked="" type="checkbox"/>	Shots per pixel	8
Data File:	Bob-Resonant-12094-350		
Comments:			
Extraction Delay [ns]:	700	Extraction Bias [V]	500
Laser			
Excitation Scheme	17	for nuclide	Plutonium
FES [1/cm]	24188,68	Power FES [mW]	1,5
SES [1/cm]	24690,306	Power SES [mW]	10
TES [1/cm]	0	Power TES [mW]	0
Counts Plutonium			
Counts Pu-238	5.113	Background Pu-238	4.609
Counts Pu-239	128.441	Background Pu-239	71
Counts Pu-240	57.645	Background Pu-240	28
Counts Pu-241	2.827	Background Pu-241	9
Counts Pu-242	1.184	Background Pu-242	6
Counts MOX			
Used Mox sample	Al-Mox		
Counts MOX Pu-238	253	Background Pu-238	25
Counts MOX Pu-239	8821	Background Pu-239	6
Counts MOX Pu-240	3179	Background Pu-240	16
Counts MOX Pu-241	569	Background Pu-241	3
Counts Mox Pu-242	211	Background Pu-242	11

Um die zahlreichen Informationen zu den Partikeln sinnvoll miteinander zu verknüpfen, wurde von mir eine *Microsoft Access* Datenbank auf einem Server des IRS eingerichtet. Die Abbildung zeigt stellvertretend das Formular zum Erstellen einer kalibrierten Plutonium SNMS Messung. Nachdem die Messdaten eingetragen wurden, werden sie automatisch ausgewertet und die Ergebnisse stehen als pdf-Bericht bereit. Alternativ können sie von jedem Rechner des Instituts als Datenabfrage in *Microsoft Excel* eingebunden werden, wodurch sichergestellt ist, dass alle Mitarbeiter stets mit dem gleichen, aktuellen Datensatz arbeiten. Im Folgenden werden die Datenbankberichte zu den in dieser Arbeit verwendeten Messungen ausgegeben.

# Anregungsschema

Anzahl der Anregungsschema: 14 stand: 30.06.2021

## Americium

ID	Ionisation	entwickelt von				
1	Autoionizing	Nina Kneip				
	Tested?	getestet von	getestet an	Datum	Kommentare	
	<input checked="" type="checkbox"/>	Max Heller	RW-001		Used and tested by Max Heller (BA). Pu suppression better than with Rydberg SES	
		FES [1/cm]	23.436,980			
		Saturation Power FES [mW]	0,34	+/-	0,07	
		SES [1/cm]	25.033,520			
		Saturation Power SES [mW]	8,10	+/-	2,00	
		TES [1/cm]	0,000			
		Saturation Power TES [mW]	0,00	+/-	0,00	
		<i>Operation values</i>				
	Isotopic shift covered?	<input checked="" type="checkbox"/>		Für Gitterlaser	<input type="checkbox"/>	
	FES operated at [1/cm]	23437		Operated Power FES [mW]	5	
	SES operated at [1/cm]	25033,46		Operated Power SES [mW]	30	
	TES operated at [1/cm]	0		Operated Power TES [mW]	0	

ID	Ionisation	entwickelt von				
9		Sebastian Raeder				
	Tested?	getestet von	getestet an	Datum	Kommentare	
	<input checked="" type="checkbox"/>	Hauke Bosco	RW-001	19.02.2018	FES - SP2 OC3; SES - SP3; TES - SP1 OC2, Bosco Diss, Isotopic Shift not covered, Am-241 to Am-243 Shifts, FES +0,09cm <sup>-1</sup> , SES +0,5cm <sup>-1</sup> , TES, +0,5cm <sup>-1</sup>	
		FES [1/cm]	23.437,000			
		Saturation Power FES [mW]	0,00	+/-	0,00	
		SES [1/cm]	11.496,200			
		Saturation Power SES [mW]	0,00	+/-	0,00	
		TES [1/cm]	13.341,200			
		Saturation Power TES [mW]	0,00	+/-	0,00	
		<i>Operation values</i>				
	Isotopic shift covered?	<input type="checkbox"/>		Für Gitterlaser	<input type="checkbox"/>	
	FES operated at [1/cm]	0		Operated Power FES [mW]	0	
	SES operated at [1/cm]	0		Operated Power SES [mW]	0	
	TES operated at [1/cm]	0		Operated Power TES [mW]	0	

ID	Ionisation	entwickelt von			
12	Rydberg	Nina Kneip			
	Tested?	getestet von	getestet an	Datum	Kommentare
	<input checked="" type="checkbox"/>	Max Heller	RW-001		Used and tested by Max Heller (BA). Pu Background higher than on AI SES
		FES [1/cm]	23.436,980		
		Saturation Power FES [mW]	0,33	+/-	0,00
		SES [1/cm]	24.719,825		
		Saturation Power SES [mW]	13,20	+/-	0,00
		TES [1/cm]	0,000		
		Saturation Power TES [mW]	0,00	+/-	0,00
		<i>Operation values</i>			
	Isotopic shift covered?	<input checked="" type="checkbox"/>	Für Gitterlaser	<input type="checkbox"/>	
	FES operated at [1/cm]	23437	Operated Power FES [mW]	5	
	SES operated at [1/cm]	24719,78	Operated Power SES [mW]	30	
	TES operated at [1/cm]	0	Operated Power TES [mW]	0	

ID	Ionisation	entwickelt von			
19	Autoionizing	Nina Kneip			
	Tested?	getestet von	getestet an	Datum	Kommentare
	<input checked="" type="checkbox"/>	Manuel Raiwa	RW-001	06.01.2021	Same as Am-1 but for grating laser. values for Am-241, Am-243 FES: 23437,130(6), SES wide resonance
		FES [1/cm]	23.436,980		
		Saturation Power FES [mW]	0,23	+/-	0,03
		SES [1/cm]	25.033,520		
		Saturation Power SES [mW]	25,20	+/-	1,50
		TES [1/cm]	0,000		
		Saturation Power TES [mW]	0,00	+/-	0,00
		<i>Operation values</i>			
	Isotopic shift covered?	<input checked="" type="checkbox"/>	Für Gitterlaser	<input checked="" type="checkbox"/>	
	FES operated at [1/cm]	23437,04	Operated Power FES [mW]	10	
	SES operated at [1/cm]	25033,46	Operated Power SES [mW]	30	
	TES operated at [1/cm]	0	Operated Power TES [mW]	0	

## Curium

ID	Ionisation	entwickelt von		
4	Autoionizing	Nina Kneip		
	Tested?	getestet von	getestet an	Datum
	<input checked="" type="checkbox"/>	Manuel Raiwa	RW-001	06.07.2020
		FES [1/cm]	23.083,260	
	Saturation Power FES [mW]	51,00	+/-	10,00
		SES [1/cm]	25.409,200	
	Saturation Power SES [mW]	122,00	+/-	31,00
		TES [1/cm]	0,000	
	Saturation Power TES [mW]	0,00	+/-	0,00
		<i>Operation values</i>		
	Isotopic shift covered?	<input type="checkbox"/>	Für Gitterlaser	<input checked="" type="checkbox"/>
	FES operated at [1/cm]	23083,82	Operated Power FES [mW]	70
	SES operated at [1/cm]	25409,2	Operated Power SES [mW]	105
	TES operated at [1/cm]	0	Operated Power TES [mW]	0

## Plutonium

ID	Ionisation	entwickelt von		
5				
	Tested?	getestet von	getestet an	Datum
	<input checked="" type="checkbox"/>	Hauke Bosco	RW-001	27.07.2017
		FES [1/cm]	23.766,200	
	Saturation Power FES [mW]	0,00	+/-	0,00
		SES [1/cm]	12.371,700	
	Saturation Power SES [mW]	0,00	+/-	0,00
		TES [1/cm]	12.653,800	
	Saturation Power TES [mW]	0,00	+/-	0,00
		<i>Operation values</i>		
	Isotopic shift covered?	<input checked="" type="checkbox"/>	Für Gitterlaser	<input type="checkbox"/>
	FES operated at [1/cm]	23766,114	Operated Power FES [mW]	35
	SES operated at [1/cm]	12371,63	Operated Power SES [mW]	250
	TES operated at [1/cm]	12653,665	Operated Power TES [mW]	400



ID	Ionisation	entwickelt von		
6	Rydberg	Carsten Grüning		

Tested?	getestet von	getestet an	Datum	Kommentare
<input checked="" type="checkbox"/>	Hauke Bosco	KOP-008	01.05.2017	DOI: 10.1016/j.ijms.2004.04.013
	FES [1/cm]	23.766,160		
	Saturation Power FES [mW]	2,00	+/-	0,00
	SES [1/cm]	11.802,620		
	Saturation Power SES [mW]	30,00	+/-	0,00
	TES [1/cm]	13.329,130		
	Saturation Power TES [mW]	400,00	+/-	0,00

*Operation values*

Isotopic shift covered?	<input checked="" type="checkbox"/>	Für Gitterlaser	<input type="checkbox"/>
FES operated at [1/cm]	23766,057	Operated Power FES [mW]	32
SES operated at [1/cm]	11802,584	Operated Power SES [mW]	270
TES operated at [1/cm]	13329,143	Operated Power TES [mW]	370

ID	Ionisation	entwickelt von		
14	Autoionizing	Nina Kneip		

Tested?	getestet von	getestet an	Datum	Kommentare
<input checked="" type="checkbox"/>	Hauke Bosco	RW-001	25.01.2019	Bosco Diss, Schema E, delta j = -1, polarisation depending!
	FES [1/cm]	24.188,700		
	Saturation Power FES [mW]	0,00	+/-	0,00
	SES [1/cm]	24.482,180		
	Saturation Power SES [mW]	0,00	+/-	0,00
	TES [1/cm]	0,000		
	Saturation Power TES [mW]	0,00	+/-	0,00

*Operation values*

Isotopic shift covered?	<input type="checkbox"/>	Für Gitterlaser	<input type="checkbox"/>
FES operated at [1/cm]	24188,7	Operated Power FES [mW]	4,9
SES operated at [1/cm]	24482,18	Operated Power SES [mW]	11,2
TES operated at [1/cm]	0	Operated Power TES [mW]	0

ID	Ionisation	entwickelt von		
16	Autoionizing	Nina Kneip		

Tested?	getestet von	getestet an	Datum	Kommentare
<input checked="" type="checkbox"/>	Hauke Bosco	RW-001		Bosco Diss, Schema G, polarisation depended!, delta j = 0
	FES [1/cm]	24.188,700		
	Saturation Power FES [mW]	0,00	+/-	0,00
	SES [1/cm]	24.917,920		
	Saturation Power SES [mW]	0,00	+/-	0,00
	TES [1/cm]	0,000		
	Saturation Power TES [mW]	0,00	+/-	0,00
<i>Operation values</i>				
Isotopic shift covered?		<input type="checkbox"/>	Für Gitterlaser	<input type="checkbox"/>
FES operated at [1/cm]		0	Operated Power FES [mW]	0
SES operated at [1/cm]		0	Operated Power SES [mW]	0
TES operated at [1/cm]		0	Operated Power TES [mW]	0

ID	Ionisation	entwickelt von		
17	Autoionizing	Nina Kneip		

Tested?	getestet von	getestet an	Datum	Kommentare
<input checked="" type="checkbox"/>	Manuel Raiwa	RW-001	08.02.2021	Delta j = 1, not pol. depended, strong FES isotopic selectivity, Pu-238: 24188,714, delta n I.S. -0,044 to Pu-244: 24188,45
	FES [1/cm]	24.188,700		
	Saturation Power FES [mW]	1,10	+/-	0,10
	SES [1/cm]	24.690,306		
	Saturation Power SES [mW]	0,00	+/-	0,00
	TES [1/cm]	0,000		
	Saturation Power TES [mW]	0,00	+/-	0,00
<i>Operation values</i>				
Isotopic shift covered?		<input type="checkbox"/>	Für Gitterlaser	<input checked="" type="checkbox"/>
FES operated at [1/cm]		24188,68	Operated Power FES [mW]	1,5
SES operated at [1/cm]		24690,306	Operated Power SES [mW]	10
TES operated at [1/cm]		0	Operated Power TES [mW]	0

## Strontium

ID	Ionisation	entwickelt von			
8					
	Tested?	getestet von	getestet an	Datum	Kommentare
	<input checked="" type="checkbox"/>	Hauke Bosco	RW-001	01.02.2017	FES - SP4; SES - SP2; TES - SP1 OC2
		FES [1/cm]	21.698,480		
		Saturation Power FES [mW]	0,00	+/- 0,00	
		SES [1/cm]	13.029,010		
		Saturation Power SES [mW]	0,00	+/- 0,00	
		TES [1/cm]	11.119,650		
		Saturation Power TES [mW]	0,00	+/- 0,00	
		<i>Operation values</i>			
	Isotopic shift covered?	<input type="checkbox"/>	Für Gitterlaser	<input type="checkbox"/>	
	FES operated at [1/cm]	21698,48	Operated Power FES [mW]	0	
	SES operated at [1/cm]	13029,01	Operated Power SES [mW]	0	
	TES operated at [1/cm]	11119,65	Operated Power TES [mW]	0	

## Technetium

ID	Ionisation	entwickelt von			
7	Autoionizing	Klaus Wendt			
	Tested?	getestet von	getestet an	Datum	Kommentare
	<input checked="" type="checkbox"/>	Manuel Raiwa	RW-001	06.08.2020	Saturation Power for grating TiSa. TES shows no saturation trend. DOI 10.1007/s00216-012-6309-8
		FES [1/cm]	23.265,330		
		Saturation Power FES [mW]	0,33	+/- 0,07	
		SES [1/cm]	25.306,770		
		Saturation Power SES [mW]	1,08	+/- 0,20	
		TES [1/cm]	11.929,700		
		Saturation Power TES [mW]	0,00	+/- 0,00	
		<i>Operation values</i>			
	Isotopic shift covered?	<input checked="" type="checkbox"/>	Für Gitterlaser	<input checked="" type="checkbox"/>	
	FES operated at [1/cm]	23265,33	Operated Power FES [mW]	15	
	SES operated at [1/cm]	25306,77	Operated Power SES [mW]	20	
	TES operated at [1/cm]	11929,7	Operated Power TES [mW]	300	

## Uranium

ID	Ionisation	entwickelt von			
10	Autoionizing	Sebastian Raeder			
	Tested?	getestet von	getestet an	Datum	Kommentare
	<input checked="" type="checkbox"/>	Hauke Bosco	RW-001		isotopic shift to large, Bosco Diss, values for U-238, FES Shift to U-235 = $+0,4\text{cm}^{-1}$ , SES $+0,36\text{cm}^{-1}$ , TES $-0,1\text{cm}^{-1}$
		FES [1/cm]	24.066,570		
		Saturation Power FES [mW]	2,00	+/- 0,70	
		SES [1/cm]	13.029,970		
		Saturation Power SES [mW]	32,00	+/- 10,00	
		TES [1/cm]	13.346,860		
		Saturation Power TES [mW]	0,00	+/- 0,00	
		<i>Operation values</i>			
	Isotopic shift covered?	<input type="checkbox"/>	Für Gitterlaser	<input type="checkbox"/>	
	FES operated at [1/cm]	0	Operated Power FES [mW]	0	
	SES operated at [1/cm]	0	Operated Power SES [mW]	0	
	TES operated at [1/cm]	0	Operated Power TES [mW]	0	

ID	Ionisation	entwickelt von			
15	Autoionizing	Nina Kneip			
	Tested?	getestet von	getestet an	Datum	Kommentare
	<input checked="" type="checkbox"/>	Manuel Raiwa	RW-001		FES Shift to U-234 $+0,16(10)\text{cm}^{-1}$ , U-235 $+0,06(6)\text{cm}^{-1}$ , U-236 $+0,05(3)\text{cm}^{-1}$
		FES [1/cm]	25.235,620		
		Saturation Power FES [mW]	4,10	+/- 0,80	
		SES [1/cm]	24.754,100		
		Saturation Power SES [mW]	0,00	+/- 0,00	
		TES [1/cm]	0,000		
		Saturation Power TES [mW]	0,00	+/- 0,00	
		<i>Operation values</i>			
	Isotopic shift covered?	<input type="checkbox"/>	Für Gitterlaser	<input checked="" type="checkbox"/>	
	FES operated at [1/cm]	0	Operated Power FES [mW]	0	
	SES operated at [1/cm]	0	Operated Power SES [mW]	0	
	TES operated at [1/cm]	0	Operated Power TES [mW]	0	

# Uran SIMS

Anzahl der Messungen: 37

stand: 30.06.2021

## Alice RW-013

ID	gemessen von	Datum	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	Abbrand [MWd/(kgU)]
51	Polina Fraatz	21.05.2021	11 x 11	64	9697	1	12,8 +/- 0,4
	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare
U-234	0,0245%	0,0017%	7,13%	U-234/U-238	0,00025	0,00002	7,13%
U-235	1,1513%	0,0112%	0,97%	U-235/U-238	0,01167	0,00011	0,98%
U-236	0,1995%	0,0047%	2,38%	U-236/U-238	0,00202	0,00005	2,38%
U-238	98,6247%	0,1441%	0,15%				

## Amun-Ra M-SL6

ID	gemessen von	Datum	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	Abbrand [MWd/(kgU)]
38	Manuel Raiwa	05.11.2019	20 x 20	64	4000	1	13,6 +/- 0,3
	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare
U-234	0,0169%	0,0011%	6,70%	U-234/U-238	0,00017	0,00001	6,70% ROI U min 80% - from
U-235	1,0984%	0,0090%	0,82%	U-235/U-238	0,01113	0,00009	0,83% scan 1000
U-236	0,2096%	0,0040%	1,89%	U-236/U-238	0,00212	0,00004	1,90%
U-238	98,6751%	0,1191%	0,12%				

## Amun-Ra 2 SL-6.1

ID	gemessen von	Datum	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	Abbrand [MWd/(kgU)]
43	Manuel Raiwa	17.03.2020	20 x 20	64	2059	1	13,3 +/- 0,4
	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare
U-234	0,0148%	0,0013%	9,05%	U-234/U-238	0,00015	0,00001	9,05% ROI min 35% U
U-235	1,1049%	0,0101%	0,91%	U-235/U-238	0,01120	0,00010	0,92%
U-236	0,2057%	0,0044%	2,15%	U-236/U-238	0,00208	0,00004	2,16%
U-238	98,6745%	0,1328%	0,13%				

## Ares KOP-001

ID	gemessen von	Datum	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	Abbrand [MWd/(kgU)]
29	Manuel Raiwa	08.04.2019	20x20	32	8400	1	12,0 +/- 0,2
	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare
U-234	0,0150%	0,0009%	5,98%	U-234/U-238	0,00015	0,00001	5,98% ROI Min 87%U
U-235	1,0242%	0,0074%	0,72%	U-235/U-238	0,01037	0,00008	0,73%
U-236	0,1893%	0,0032%	1,68%	U-236/U-238	0,00192	0,00003	1,68%
U-238	98,7714%	0,1019%	0,10%				

Bellerophon		KOP-002					
-------------	--	---------	--	--	--	--	--

ID	gemessen von	Datum	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	Abbrand [MWd/(kgU)]
28	Manuel Raiwa	26.03.2019	20x20	64	5000	1	16,1 +/- 0,3
	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare
U-234	0,0172%	0,0010%	5,69%	U-234/U-238	0,00017	0,00001	5,69% ROI min 25%U
U-235	0,8196%	0,0067%	0,82%	U-235/U-238	0,00829	0,00007	0,83%
U-236	0,2410%	0,0037%	1,54%	U-236/U-238	0,00244	0,00004	1,55%
U-238	98,9221%	0,1035%	0,10%				

Bob		RW-001					
-----	--	--------	--	--	--	--	--

ID	gemessen von	Datum	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	Abbrand [MWd/(kgU)]
2	Hauke Bosco	12.02.2018	30 x 30	128	6500	1	15,8 +/- 0,3
	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare
U-234	0,0151%	0,0008%	5,26%	U-234/U-238	0,00015	0,00001	5,26%
U-235	0,7966%	0,0057%	0,71%	U-235/U-238	0,00805	0,00006	0,72%
U-236	0,2376%	0,0031%	1,30%	U-236/U-238	0,00240	0,00003	1,30%
U-238	98,9507%	0,0885%	0,09%				

Cate		CP-001					
------	--	--------	--	--	--	--	--

ID	gemessen von	Datum	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	Abbrand [MWd/(kgU)]
13	Manuel Raiwa	08.10.2018	20x20	128	1000	1	14,4 +/- 0,3
	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare
U-234	0,0265%	0,0015%	5,51%	U-234/U-238	0,00027	0,00001	5,51% An UO2 ausgewertet,
U-235	1,0080%	0,0077%	0,76%	U-235/U-238	0,01021	0,00008	0,77% wegen starkem Zr2O3
U-236	0,2203%	0,0038%	1,73%	U-236/U-238	0,00223	0,00004	1,74% Untergrund
U-238	98,7452%	0,1057%	0,11%				

Dave		CP-002					
------	--	--------	--	--	--	--	--

ID	gemessen von	Datum	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	Abbrand [MWd/(kgU)]
14	Manuel Raiwa	13.09.2018	20x20	128	500	1	15,2 +/- 0,6
	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare
U-234	0,0140%	0,0025%	17,49%	U-234/U-238	0,00014	0,00002	17,49% ROI 40%U
U-235	0,7675%	0,0107%	1,39%	U-235/U-238	0,00775	0,00011	1,40%
U-236	0,2305%	0,0077%	3,35%	U-236/U-238	0,00233	0,00008	3,36%
U-238	98,9879%	0,1699%	0,17%				

Dionysos		KOP-004					
----------	--	---------	--	--	--	--	--

ID	gemessen von	Datum	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	Abbrand [MWd/(kgU)]
30	Manuel Raiwa	10.12.2018	30x30	64	10000	1	9,1 +/- 0,3

	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare
U-234	0,0216%	0,0017%	7,73%	U-234/U-238	0,00022	0,00002	7,74% 70% - 100% ROI U
U-235	1,3751%	0,0132%	0,96%	U-235/U-238	0,01397	0,00014	0,97%
U-236	0,1510%	0,0044%	2,89%	U-236/U-238	0,00153	0,00004	2,90%
U-238	98,4523%	0,1563%	0,16%				

Dumah		BK-012					
-------	--	--------	--	--	--	--	--

ID	gemessen von	Datum	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	Abbrand [MWd/(kgU)]
45	Polina Fraatz	10.03.2021	14 x 14	64	5289	1	14,3 +/- 0,2

	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare
U-234	0,0168%	0,0008%	4,69%	U-234/U-238	0,00017	0,00001	4,69% ab scan 200, min 80%
U-235	0,9263%	0,0057%	0,62%	U-235/U-238	0,00937	0,00006	0,62% U
U-236	0,2184%	0,0028%	1,29%	U-236/U-238	0,00221	0,00003	1,29%
U-238	98,8385%	0,0829%	0,08%				

Eleleth		BK-013					
---------	--	--------	--	--	--	--	--

ID	gemessen von	Datum	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	Abbrand [MWd/(kgU)]
52	Polina Fraatz	21.06.2021	10 x 10	64	4239	5	14,6 +/- 0,6

	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare
U-234	0,0090%	0,0023%	25,15%	U-234/U-238	0,00009	0,00002	25,16%
U-235	0,8915%	0,0150%	1,69%	U-235/U-238	0,00902	0,00015	1,70%
U-236	0,2223%	0,0076%	3,43%	U-236/U-238	0,00225	0,00008	3,43%
U-238	98,8773%	0,2214%	0,22%				

Ellie		CP-003					
-------	--	--------	--	--	--	--	--

ID	gemessen von	Datum	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	Abbrand [MWd/(kgU)]
16	Manuel Raiwa	04.09.2018	25x25	128	2000	1	13,6 +/- 1,2

	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare
U-234	0,0223%	0,0048%	21,54%	U-234/U-238	0,00023	0,00005	21,55%
U-235	0,8009%	0,0271%	3,38%	U-235/U-238	0,00809	0,00028	3,41%
U-236	0,2105%	0,0148%	7,05%	U-236/U-238	0,00213	0,00015	7,06%
U-238	98,9663%	0,4192%	0,42%				

Faina		KOP-006					
-------	--	---------	--	--	--	--	--

ID	gemessen von	Datum	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	Abbrand [MWd/(kgU)]
36	Manuel Raiwa	12.04.2019	20x20	32	2761	50	9,5 +/- 0,3

	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare
U-234	0,0190%	0,0016%	8,31%	U-234/U-238	0,00019	0,00002	8,31% ROI min 30% U
U-235	1,3132%	0,0128%	0,97%	U-235/U-238	0,01333	0,00013	0,98%
U-236	0,1559%	0,0044%	2,83%	U-236/U-238	0,00158	0,00004	2,83%
U-238	98,5118%	0,1545%	0,16%				

Fred		CP-004					
------	--	--------	--	--	--	--	--

ID	gemessen von	Datum	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	Abbrand [MWd/(kgU)]
17	Manuel Raiwa	05.09.2018	23x23	128	5000	1	5,9 +/- 0,5

	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare
U-234	0,0159%	0,0029%	18,43%	U-234/U-238	0,00016	0,00003	18,44%
U-235	1,6116%	0,0282%	1,75%	U-235/U-238	0,01640	0,00029	1,77%
U-236	0,1052%	0,0072%	6,81%	U-236/U-238	0,00107	0,00007	6,81%
U-238	98,2673%	0,3066%	0,31%				

Gaia Spot 1		KOP-007-S1					
-------------	--	------------	--	--	--	--	--

ID	gemessen von	Datum	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	Abbrand [MWd/(kgU)]
41	Manuel Raiwa	20.02.2020	9.31 x 9.31	32	3259	4	11,4 +/- 0,3

	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare
U-234	0,0351%	0,0023%	6,42%	U-234/U-238	0,00035	0,00002	6,42% Spot 1, 4 Schuss Per
U-235	1,0386%	0,0100%	0,96%	U-235/U-238	0,01052	0,00010	0,97% Pixel, ROI min 70% U,
U-236	0,1817%	0,0043%	2,36%	U-236/U-238	0,00184	0,00004	2,36% Ausgewertet an Oxiden
U-238	98,7446%	0,1309%	0,13%				

Gaia Spot 2		KOP-007-S2					
-------------	--	------------	--	--	--	--	--

ID	gemessen von	Datum	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	Abbrand [MWd/(kgU)]
42	Manuel Raiwa	20.02.2020	15 x 15	32	5020	1	9,9 +/- 0,4

	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare
U-234	0,0569%	0,0036%	6,27%	U-234/U-238	0,00058	0,00004	6,27% Spot 2 auf Gaia ROI
U-235	0,9832%	0,0132%	1,34%	U-235/U-238	0,00995	0,00013	1,35% min 71%U ausgewertet
U-236	0,1617%	0,0054%	3,35%	U-236/U-238	0,00164	0,00005	3,36% an Oxiden
U-238	98,7983%	0,1731%	0,18%				



Geb T1-2							
ID	gemessen von	Datum	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	Abbrand [MWd/(kgU)]
40	Manuel Raiwa	07.11.2019	15 x15	64	8000	1	14,3 +/- 0,3

	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare
U-234	0,0238%	0,0012%	4,91%	U-234/U-238	0,00024	0,00001	4,91% ROI U-236 Background
U-235	1,1836%	0,0067%	0,57%	U-235/U-238	0,01201	0,00007	0,58% max 33%
U-236	0,2181%	0,0031%	1,43%	U-236/U-238	0,00221	0,00003	1,43%
U-238	98,5745%	0,0861%	0,09%				

Herakles KOP-008							
ID	gemessen von	Datum	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	Abbrand [MWd/(kgU)]
31	Manuel Raiwa	26.03.2019	15x15	64	5100	1	14,7 +/- 0,3

	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare
U-234	0,0162%	0,0010%	6,07%	U-234/U-238	0,00016	0,00001	6,07%
U-235	0,9806%	0,0069%	0,70%	U-235/U-238	0,00993	0,00007	0,71%
U-236	0,2240%	0,0033%	1,49%	U-236/U-238	0,00227	0,00003	1,49%
U-238	98,7791%	0,0968%	0,10%				

Horst CP-006							
ID	gemessen von	Datum	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	Abbrand [MWd/(kgU)]
19	Manuel Raiwa	04.12.2018	37x37	64	6500	1	6,2 +/- 0,4

	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare
U-234	0,0198%	0,0025%	12,83%	U-234/U-238	0,00020	0,00003	12,83%
U-235	1,6063%	0,0214%	1,33%	U-235/U-238	0,01635	0,00022	1,35%
U-236	0,1103%	0,0057%	5,14%	U-236/U-238	0,00112	0,00006	5,15%
U-238	98,2636%	0,2330%	0,24%				

James1 CP-008-1							
ID	gemessen von	Datum	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	Abbrand [MWd/(kgU)]
46	Polina Fraatz	17.03.2021	10 x 10	128	890	2	15,9 +/- 0,4

	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare
U-234	0,0192%	0,0014%	7,25%	U-234/U-238	0,00019	0,00001	7,26%
U-235	1,0216%	0,0097%	0,95%	U-235/U-238	0,01035	0,00010	0,96%
U-236	0,2388%	0,0047%	1,97%	U-236/U-238	0,00242	0,00005	1,97%
U-238	98,7204%	0,1340%	0,14%				

James2		CP-008-2					
--------	--	----------	--	--	--	--	--

ID	gemessen von	Datum	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	Abbrand [MWd/(kgU)]
48	Polina Fraatz	18.03.2021	15 x 15	64	728	10	15,2 +/- 0,5
	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare
U-234	0,0183%	0,0020%	10,77%	U-234/U-238	0,00019	0,00002	10,77% ROI 60% U thres
U-235	1,0399%	0,0122%	1,18%	U-235/U-238	0,01054	0,00013	1,19%
U-236	0,2294%	0,0058%	2,51%	U-236/U-238	0,00232	0,00006	2,52%
U-238	98,7123%	0,1663%	0,17%				

Japetos		KOP-010					
---------	--	---------	--	--	--	--	--

ID	gemessen von	Datum	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	Abbrand [MWd/(kgU)]
32	Manuel Raiwa	10.04.2019		0	0	1	11,8 +/- 0,4
	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare
U-234	0,0167%	0,0015%	8,82%	U-234/U-238	0,00017	0,00001	8,82% diverse
U-235	1,2478%	0,0124%	0,99%	U-235/U-238	0,01266	0,00013	1,00% Einzelmessungen
U-236	0,1861%	0,0048%	2,57%	U-236/U-238	0,00189	0,00005	2,57% aufaddiert wegen
U-238	98,5494%	0,1539%	0,16%				Softwareabstürze

Jequ		BK-018					
------	--	--------	--	--	--	--	--

ID	gemessen von	Datum	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	Abbrand [MWd/(kgU)]
47	Polina Fraatz	23.03.2021	30 x 30	64	1522	4	17,0 +/- 0,4
	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare
U-234	0,0177%	0,0014%	7,84%	U-234/U-238	0,00018	0,00001	7,84%
U-235	0,7451%	0,0086%	1,16%	U-235/U-238	0,00753	0,00009	1,17%
U-236	0,2529%	0,0051%	2,02%	U-236/U-238	0,00256	0,00005	2,03%
U-238	98,9842%	0,1395%	0,14%				

Johanna		BK-008					
---------	--	--------	--	--	--	--	--

ID	gemessen von	Datum	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	Abbrand [MWd/(kgU)]
27	Manuel Raiwa	25.09.2018	18x18	128	1000	1	11,6 +/- 0,3
	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare
U-234	0,0152%	0,0011%	7,49%	U-234/U-238	0,00015	0,00001	7,49%
U-235	1,1796%	0,0095%	0,80%	U-235/U-238	0,01196	0,00010	0,81%
U-236	0,1843%	0,0037%	2,03%	U-236/U-238	0,00187	0,00004	2,03%
U-238	98,6208%	0,1212%	0,12%				

**Jörmungandr CP-026**

ID	gemessen von	Datum	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	Abbrand [MWd/(kgU)]
35	Manuel Raiwa	29.03.2019	15x15	64	9136	1	8,3 +/- 0,2
	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare
U-234	0,0147%	0,0011%	7,31%	U-234/U-238	0,00015	0,00001	7,32% ROI Kreis
U-235	1,4084%	0,0102%	0,73%	U-235/U-238	0,01431	0,00011	0,74%
U-236	0,1399%	0,0032%	2,30%	U-236/U-238	0,00142	0,00003	2,30%
U-238	98,4370%	0,1197%	0,12%				

**Katy CP-009**

ID	gemessen von	Datum	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	Abbrand [MWd/(kgU)]
20	Manuel Raiwa	10.09.2018	20x20	128	1500	1	13,3 +/- 0,4
	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare
U-234	0,0205%	0,0019%	9,36%	U-234/U-238	0,00021	0,00002	9,36%
U-235	0,8786%	0,0113%	1,29%	U-235/U-238	0,00888	0,00012	1,30%
U-236	0,2066%	0,0055%	2,68%	U-236/U-238	0,00209	0,00006	2,68%
U-238	98,8943%	0,1678%	0,17%				

**Kronos KOP-011**

ID	gemessen von	Datum	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	Abbrand [MWd/(kgU)]
33	Manuel Raiwa	25.03.2019	15x15	64	5000	1	13,4 +/- 0,4
	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare
U-234	0,0171%	0,0013%	7,48%	U-234/U-238	0,00017	0,00001	7,49% ROI Min 35% U
U-235	0,9780%	0,0093%	0,95%	U-235/U-238	0,00990	0,00010	0,96%
U-236	0,2075%	0,0048%	2,29%	U-236/U-238	0,00210	0,00005	2,30%
U-238	98,7974%	0,1314%	0,13%				

**Lilith BK-007**

ID	gemessen von	Datum	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	Abbrand [MWd/(kgU)]
24	Manuel Raiwa	30.08.2019		128	6000	1	4,9 +/- 0,7
	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare
U-234	0,0140%	0,0042%	29,79%	U-234/U-238	0,00014	0,00004	29,80% ROI 20% - 100% U-238
U-235	1,7308%	0,0436%	2,52%	U-235/U-238	0,01763	0,00045	2,56%
U-236	0,0902%	0,0105%	11,67%	U-236/U-238	0,00092	0,00011	11,68%
U-238	98,1651%	0,4573%	0,47%				

Lykos		KOP-012					
-------	--	---------	--	--	--	--	--

ID	gemessen von	Datum	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	Abbrand [MWd/(kgU)]
49	Polina Fraatz	16.04.2021	22 x 22	64	1637	5	12,2 +/- 0,4

	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare
U-234	0,0158%	0,0015%	9,36%	U-234/U-238	0,00016	0,00001	9,36% ROI min 35% U
U-235	1,0540%	0,0120%	1,14%	U-235/U-238	0,01067	0,00012	1,15%
U-236	0,1928%	0,0052%	2,70%	U-236/U-238	0,00195	0,00005	2,71%
U-238	98,7374%	0,1622%	0,16%				

Marie		RW-010					
-------	--	--------	--	--	--	--	--

ID	gemessen von	Datum	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	Abbrand [MWd/(kgU)]
25	Manuel Raiwa	14.12.2018	10x10	32	30000	1	10,4 +/- 0,4

	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare
U-234	0,0165%	0,0019%	11,49%	U-234/U-238	0,00017	0,00002	11,49% 10x10 ROI -35%
U-235	1,4427%	0,0136%	0,94%	U-235/U-238	0,01467	0,00014	0,96% Interferenzen Threshold
U-236	0,1681%	0,0049%	2,94%	U-236/U-238	0,00171	0,00005	2,95%
U-238	98,3727%	0,1565%	0,16%				

Mjoellnir		CP-025					
-----------	--	--------	--	--	--	--	--

ID	gemessen von	Datum	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	Abbrand [MWd/(kgU)]
7	Manuel Raiwa	20.12.2018	18 x 18	64	14000	1	16,7 +/- 0,6

	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare
U-234	0,0140%	0,0019%	13,33%	U-234/U-238	0,00014	0,00002	13,34% ROI min 33% Uran
U-235	0,6826%	0,0127%	1,86%	U-235/U-238	0,00689	0,00013	1,87%
U-236	0,2493%	0,0077%	3,07%	U-236/U-238	0,00252	0,00008	3,08%
U-238	99,0540%	0,2145%	0,22%				

Mopsimilian		BK-006					
-------------	--	--------	--	--	--	--	--

ID	gemessen von	Datum	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	Abbrand [MWd/(kgU)]
44	Paul Hanemann	30.07.2020	10 x10	32	1660	10	7,2 +/- 0,3

	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare
U-234	0,0173%	0,0018%	10,18%	U-234/U-238	0,00018	0,00002	10,18% After HNO3 leaching
U-235	1,5642%	0,0163%	1,04%	U-235/U-238	0,01591	0,00017	1,06% from L. Leifermann.
U-236	0,1248%	0,0046%	3,71%	U-236/U-238	0,00127	0,00005	3,72% Less disturbing
U-238	98,2936%	0,1800%	0,18%				background ions.

Nala		RW-002					
------	--	--------	--	--	--	--	--

ID	gemessen von	Datum	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	Abbrand [MWd/(kgU)]
22	Manuel Raiwa	10.10.2018	20x20	128	3500	1	9,7 +/- 0,7

	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare
U-234	0,0343%	0,0047%	13,76%	U-234/U-238	0,00035	0,00005	13,77% Neu Ausgewertet an
U-235	1,1391%	0,0244%	2,14%	U-235/U-238	0,01155	0,00025	2,16% UO2
U-236	0,1592%	0,0095%	5,99%	U-236/U-238	0,00161	0,00010	6,00%
U-238	98,6673%	0,3169%	0,32%				

Ophaniel		BK-023					
----------	--	--------	--	--	--	--	--

ID	gemessen von	Datum	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	Abbrand [MWd/(kgU)]
50	Polina Fraatz	19.04.2021	30 x 30	64	1061	5	9,2 +/- 0,3

	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare
U-234	0,0144%	0,0013%	9,12%	U-234/U-238	0,00015	0,00001	9,12% ROI to interference
U-235	1,3247%	0,0121%	0,91%	U-235/U-238	0,01345	0,00012	0,92% free location
U-236	0,1528%	0,0042%	2,73%	U-236/U-238	0,00155	0,00004	2,73%
U-238	98,5081%	0,1457%	0,15%				

Osiris		SL-10					
--------	--	-------	--	--	--	--	--

ID	gemessen von	Datum	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	Abbrand [MWd/(kgU)]
39	Manuel Raiwa	07.11.2019	20 x 20	64	4000	1	4,0 +/- 0,2

	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare
U-234	0,0251%	0,0021%	8,55%	U-234/U-238	0,00026	0,00002	8,56% ROI U-236 Background
U-235	2,0182%	0,0173%	0,86%	U-235/U-238	0,02062	0,00018	0,87% not more than 13%
U-236	0,0765%	0,0037%	4,87%	U-236/U-238	0,00078	0,00004	4,87%
U-238	97,8802%	0,1676%	0,17%				

Pahalia		BK-024					
---------	--	--------	--	--	--	--	--

ID	gemessen von	Datum	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	Abbrand [MWd/(kgU)]
53	Polina Fraatz	08.05.2021	15 x 15	64	2655	5	11,8 +/- 0,2

	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare
U-234	0,0147%	0,0006%	4,36%	U-234/U-238	0,00015	0,00001	4,37%
U-235	1,1855%	0,0056%	0,47%	U-235/U-238	0,01202	0,00006	0,47%
U-236	0,1872%	0,0022%	1,18%	U-236/U-238	0,00190	0,00002	1,18%
U-238	98,6126%	0,0710%	0,07%				

Seraphiel

BK026

ID	gemessen von	Datum	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	Abbrand [MWd/(kgU)]
54	Polina Fraatz	09.05.2021	13 x 13	64	1610	5	13,7 +/- 0,3
	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare
U-234	0,0288%	0,0014%	4,73%	U-234/U-238	0,00029	0,00001	4,73%
U-235	0,9820%	0,0076%	0,77%	U-235/U-238	0,00994	0,00008	0,78%
U-236	0,2119%	0,0037%	1,76%	U-236/U-238	0,00215	0,00004	1,76%
U-238	98,7773%	0,1063%	0,11%				

# nicht-resonante Uran SNMS

Anzahl der Messungen: 40

stand: 30.06.2021

Amun-Ra 2

SL-6.1

ID	gemessen von	Datum	Schema	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
38	Manuel Raiwa	18.03.2020	6	10 x 10	64	9832	1	600

	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare
U-234	0,0152%	0,0011%	7,55%	U-234/U-238	0,00015	0,00001	7,55%
U-235	1,0570%	0,0090%	0,85%	U-235/U-238	0,01070	0,00009	0,86%
U-236	0,1760%	0,0037%	2,08%	U-236/U-238	0,00178	0,00004	2,09%
U-238	98,7518%	0,1212%	0,12%	Abbrand	11,0	0,3	[MWd/kgU]

Ares

KOP-001

ID	gemessen von	Datum	Schema	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
8	Hauke Bosco	04.06.2019	5	20 x 20	128	1100	1	600

	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare
U-234	0,0153%	0,0004%	2,69%	U-234/U-238	0,00016	0,00000	2,69% SES 250mW - Iontof
U-235	1,0435%	0,0034%	0,33%	U-235/U-238	0,01057	0,00004	0,33% Peakshape
U-236	0,1846%	0,0014%	0,78%	U-236/U-238	0,00187	0,00001	0,78%
U-238	98,7566%	0,0467%	0,05%	Abbrand	11,6	0,1	[MWd/kgU]

ID	gemessen von	Datum	Schema	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
19	Max Heller	23.07.2019	1	30 x 30	64	4000	1	700

	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare
U-234	0,0151%	0,0020%	13,54%	U-234/U-238	0,00015	0,00002	13,54%
U-235	1,0015%	0,0160%	1,59%	U-235/U-238	0,01014	0,00016	1,61%
U-236	0,1786%	0,0067%	3,77%	U-236/U-238	0,00181	0,00007	3,78%
U-238	98,8049%	0,2221%	0,22%	Abbrand	11,1	0,5	[MWd/kgU]

ID	gemessen von	Datum	Schema	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
25	Manuel Raiwa	28.04.2021	19	16 x 16	64	3925	1	700

	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare
U-234	0,0148%	0,0007%	4,61%	U-234/U-238	0,00015	0,00001	4,61% added resonant & non-
U-235	0,9777%	0,0055%	0,57%	U-235/U-238	0,00989	0,00006	0,57% resonant peaks
U-236	0,1808%	0,0024%	1,32%	U-236/U-238	0,00183	0,00002	1,32%
U-238	98,8267%	0,0783%	0,08%	Abbrand	11,3	0,2	[MWd/kgU]

**Bellerophon KOP-002**

ID	gemessen von	Datum	Schema	Fov [µm]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
7	Hauke Bosco	17.06.2019	5	20 x 20	128	800	1	600

	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare
U-234	0,0221%	0,0019%	8,67%	U-234/U-238	0,00022	0,00002	8,67% SES 273mW, TES
U-235	0,7943%	0,0116%	1,46%	U-235/U-238	0,00803	0,00012	1,47% 275mW - Iontof
U-236	0,2159%	0,0060%	2,79%	U-236/U-238	0,00218	0,00006	2,80% Peakshape - low
U-238	98,9677%	0,1809%	0,18%	Abbrand	14,0	0,5	[MWd/kgU] Countrate

ID	gemessen von	Datum	Schema	Fov [µm]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
18	Hauke Bosco	18.07.2019	1	15,15 x 15,15	64	8789	1	700

	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare
U-234	0,0108%	0,0022%	20,20%	U-234/U-238	0,00011	0,00002	20,21%
U-235	0,7895%	0,0176%	2,22%	U-235/U-238	0,00797	0,00018	2,24%
U-236	0,1723%	0,0082%	4,77%	U-236/U-238	0,00174	0,00008	4,77%
U-238	99,0274%	0,2757%	0,28%	Abbrand	10,6	0,6	[MWd/kgU]

**Bob RW-001**

ID	gemessen von	Datum	Schema	Fov [µm]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
2	Hauke Bosco	06.06.2019	5	20 x 20	128	250	1	600

	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare
U-234	0,0156%	0,0007%	4,68%	U-234/U-238	0,00016	0,00001	4,68% SES 280mW, TES
U-235	0,8328%	0,0053%	0,64%	U-235/U-238	0,00842	0,00005	0,65% 435mW - Peakshape
U-236	0,2282%	0,0028%	1,22%	U-236/U-238	0,00231	0,00003	1,22% IONTOF
U-238	98,9234%	0,0818%	0,08%	Abbrand	15,0	0,2	[MWd/kgU]

ID	gemessen von	Datum	Schema	Fov [µm]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
14	Hauke Bosco	05.08.2019	1	20 x 20	64	26266	1	700

	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare
U-234	0,0131%	0,0003%	2,64%	U-234/U-238	0,00013	0,00000	2,64% Langzeit Messung
U-235	0,7435%	0,0026%	0,35%	U-235/U-238	0,00751	0,00003	0,35% Hauke
U-236	0,2059%	0,0014%	0,66%	U-236/U-238	0,00208	0,00001	0,66%
U-238	99,0375%	0,0421%	0,04%	Abbrand	13,2	0,1	[MWd/kgU]

ID	gemessen von	Datum	Schema	Fov [µm]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
32	Manuel Raiwa	08.01.2021	19	20 x 20	32	351	5	600

	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare
U-234	0,0131%	0,0022%	16,67%	U-234/U-238	0,00013	0,00002	16,67% Am-Scan
U-235	0,7860%	0,0170%	2,16%	U-235/U-238	0,00794	0,00017	2,17%
U-236	0,1956%	0,0085%	4,33%	U-236/U-238	0,00198	0,00009	4,34%
U-238	99,0054%	0,2674%	0,27%	Abbrand	12,4	0,7	[MWd/kgU]



Cate CP-001								
-------------	--	--	--	--	--	--	--	--

ID	gemessen von	Datum	Schema	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
3	Marie Bullwinkel	30.07.2018	5	40 x 40	128	1000	1	600

	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare	
U-234	0,0137%	0,0032%	23,15%	U-234/U-238	0,00014	0,00003	23,15%	FES 267mW, TES
U-235	0,9972%	0,0222%	2,23%	U-235/U-238	0,01009	0,00023	2,25%	12653,8 $\text{cm}^{-1}$ - low
U-236	0,1790%	0,0095%	5,32%	U-236/U-238	0,00181	0,00010	5,33%	countrate
U-238	98,8102%	0,3095%	0,31%	Abbrand	11,2	0,7	[MWd/kgU]	

Dumah BK-012								
--------------	--	--	--	--	--	--	--	--

ID	gemessen von	Datum	Schema	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
36	Manuel Raiwa	07.05.2021	19	15 x 15	64	5381	1	700

	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare	
U-234	0,0197%	0,0014%	7,18%	U-234/U-238	0,00020	0,00001	7,18%	
U-235	0,9063%	0,0093%	1,03%	U-235/U-238	0,00917	0,00009	1,04%	
U-236	0,2310%	0,0047%	2,03%	U-236/U-238	0,00234	0,00005	2,04%	
U-238	98,8430%	0,1363%	0,14%	Abbrand	15,3	0,4	[MWd/kgU]	

Gaia Spot 1 KOP-007-S1								
------------------------	--	--	--	--	--	--	--	--

ID	gemessen von	Datum	Schema	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
28	Manuel Raiwa	03.05.2021	19	14 x 14	64	4831	1	700

	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare	
U-234	0,0167%	0,0013%	7,61%	U-234/U-238	0,00017	0,00001	7,62%	
U-235	1,0590%	0,0093%	0,88%	U-235/U-238	0,01072	0,00010	0,89%	
U-236	0,1856%	0,0039%	2,12%	U-236/U-238	0,00188	0,00004	2,12%	
U-238	98,7387%	0,1263%	0,13%	Abbrand	11,7	0,3	[MWd/kgU]	

ID	gemessen von	Datum	Schema	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
39	Manuel Raiwa	19.04.2020	6	15 x 15	32	7263	10	650

	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare	
U-234	0,0158%	0,0011%	7,09%	U-234/U-238	0,00016	0,00001	7,09%	
U-235	1,0425%	0,0085%	0,82%	U-235/U-238	0,01055	0,00009	0,83%	
U-236	0,1725%	0,0035%	2,02%	U-236/U-238	0,00175	0,00004	2,02%	
U-238	98,7692%	0,1161%	0,12%	Abbrand	10,7	0,3	[MWd/kgU]	

Gaia Spot 2 KOP-007-S2

ID	gemessen von	Datum	Schema	Fov [µm]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
29	Manuel Raiwa	03.05.2021	19	10 x 10	64	9114	1	700

	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare
U-234	0,0174%	0,0018%	10,42%	U-234/U-238	0,00018	0,00002	10,42%
U-235	1,0750%	0,0140%	1,31%	U-235/U-238	0,01089	0,00014	1,32%
U-236	0,1840%	0,0060%	3,26%	U-236/U-238	0,00186	0,00006	3,26%
U-238	98,7236%	0,1885%	0,19%	Abbrand	11,6	0,5	[MWd/kgU]

ID	gemessen von	Datum	Schema	Fov [µm]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
40	Manuel Raiwa	07.04.2020	6	8 x 8	16	30055	10	600

	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare
U-234	0,0159%	0,0014%	8,80%	U-234/U-238	0,00016	0,00001	8,80%
U-235	1,0694%	0,0113%	1,06%	U-235/U-238	0,01083	0,00012	1,07%
U-236	0,1789%	0,0047%	2,63%	U-236/U-238	0,00181	0,00005	2,64%
U-238	98,7358%	0,1520%	0,15%	Abbrand	11,2	0,4	[MWd/kgU]

Gaia Spot 3 KOP-007-S3

ID	gemessen von	Datum	Schema	Fov [µm]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
30	Manuel Raiwa	03.05.2021	19	8 x 8	64	8774	1	700

	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare
U-234	0,0160%	0,0017%	10,34%	U-234/U-238	0,00016	0,00002	10,34%
U-235	1,1079%	0,0133%	1,20%	U-235/U-238	0,01123	0,00014	1,22%
U-236	0,1819%	0,0055%	3,03%	U-236/U-238	0,00184	0,00006	3,03%
U-238	98,6942%	0,1763%	0,18%	Abbrand	11,4	0,4	[MWd/kgU]

ID	gemessen von	Datum	Schema	Fov [µm]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
41	Manuel Raiwa	09.04.2020	6	8 x 8	16	7917	30	650

	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare
U-234	0,0150%	0,0016%	10,62%	U-234/U-238	0,00015	0,00002	10,63%
U-235	1,0781%	0,0130%	1,21%	U-235/U-238	0,01092	0,00013	1,22%
U-236	0,1656%	0,0051%	3,10%	U-236/U-238	0,00168	0,00005	3,10%
U-238	98,7413%	0,1749%	0,18%	Abbrand	10,2	0,4	[MWd/kgU]

Gaia Spot 4 KOP-007-S4

ID	gemessen von	Datum	Schema	Fov [µm]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
31	Manuel Raiwa	03.05.2021	19	50 x 50	128	12547	1	700

	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare
U-234	0,0200%	0,0141%	70,71%	U-234/U-238	0,00020	0,00014	70,72% 50mW in both. Low
U-235	1,1027%	0,0762%	6,91%	U-235/U-238	0,01117	0,00078	6,99% Countrate
U-236	0,1946%	0,0403%	20,68%	U-236/U-238	0,00197	0,00041	20,71%
U-238	98,6828%	0,9900%	1,00%	Abbrand	12,4	3,1	[MWd/kgU]

Herakles		KOP-008						
----------	--	---------	--	--	--	--	--	--

ID	gemessen von	Datum	Schema	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
10	Hauke Bosco	19.07.2019	6	20 x 20	128	1100	1	700

	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare
U-234	0,0150%	0,0016%	10,91%	U-234/U-238	0,00015	0,00002	10,91% Iontof Peakshape
U-235	0,9074%	0,0127%	1,39%	U-235/U-238	0,00918	0,00013	1,41%
U-236	0,1972%	0,0059%	3,00%	U-236/U-238	0,00199	0,00006	3,01%
U-238	98,8803%	0,1854%	0,19%	Abbrand	12,6	0,5	[MWd/kgU]

ID	gemessen von	Datum	Schema	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
21	Max Heller	19.07.2019	1	15 x 15	128	1650	1	700

	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare
U-234	0,0174%	0,0025%	14,39%	U-234/U-238	0,00018	0,00003	14,39%
U-235	0,9016%	0,0175%	1,94%	U-235/U-238	0,00912	0,00018	1,96%
U-236	0,1718%	0,0076%	4,44%	U-236/U-238	0,00174	0,00008	4,45%
U-238	98,9092%	0,2569%	0,26%	Abbrand	10,6	0,6	[MWd/kgU]

James1		CP-008-1						
--------	--	----------	--	--	--	--	--	--

ID	gemessen von	Datum	Schema	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
27	Manuel Raiwa	30.04.2021	19	15 x 15	64	10960	1	700

	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare
U-234	0,0208%	0,0013%	6,32%	U-234/U-238	0,00021	0,00001	6,33%
U-235	0,9851%	0,0090%	0,92%	U-235/U-238	0,00997	0,00009	0,93%
U-236	0,1895%	0,0040%	2,09%	U-236/U-238	0,00192	0,00004	2,10%
U-238	98,8045%	0,1268%	0,13%	Abbrand	12,0	0,3	[MWd/kgU]

Jequun		BK-018						
--------	--	--------	--	--	--	--	--	--

ID	gemessen von	Datum	Schema	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
26	Manuel Raiwa	29.04.2021	19	20 x 20	64	6293	1	700

	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare
U-234	0,0189%	0,0008%	4,26%	U-234/U-238	0,00019	0,00001	4,27%
U-235	0,7068%	0,0049%	0,70%	U-235/U-238	0,00714	0,00005	0,70%
U-236	0,2455%	0,0029%	1,19%	U-236/U-238	0,00248	0,00003	1,19%
U-238	99,0289%	0,0822%	0,08%	Abbrand	16,4	0,2	[MWd/kgU]

Johanna		BK-008						
---------	--	--------	--	--	--	--	--	--

ID	gemessen von	Datum	Schema	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
6	Hauke Bosco	03.06.2019	5	20 x 20	128	4400	1	600

	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare	
U-234	0,0173%	0,0012%	7,16%	U-234/U-238	0,00018	0,00001	7,16%	FES 36mW, TES
U-235	1,0707%	0,0096%	0,90%	U-235/U-238	0,01084	0,00010	0,91%	350mW - Peakshape
U-236	0,1542%	0,0036%	2,36%	U-236/U-238	0,00156	0,00004	2,37%	IONTOF
U-238	98,7578%	0,1293%	0,13%	Abbrand	9,3	0,3	[MWd/kgU]	

ID	gemessen von	Datum	Schema	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
17	Max Heller	30.07.2019	1	20 x 20	32	60000	1	700

	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare	
U-234	0,0218%	0,0045%	20,66%	U-234/U-238	0,00022	0,00005	20,66%	
U-235	1,0756%	0,0277%	2,58%	U-235/U-238	0,01090	0,00028	2,60%	
U-236	0,2036%	0,0122%	5,98%	U-236/U-238	0,00206	0,00012	5,99%	
U-238	98,6990%	0,3711%	0,38%	Abbrand	13,1	1,0	[MWd/kgU]	

Jörmungandr		CP-026						
-------------	--	--------	--	--	--	--	--	--

ID	gemessen von	Datum	Schema	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
12	Hauke Bosco	05.06.2019	5	20 x 20	128	1500	1	300

	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare	
U-234	0,0165%	0,0010%	6,32%	U-234/U-238	0,00017	0,00001	6,33%	Iontof Peakshape
U-235	1,3721%	0,0095%	0,69%	U-235/U-238	0,01393	0,00010	0,70%	
U-236	0,1269%	0,0029%	2,27%	U-236/U-238	0,00129	0,00003	2,27%	
U-238	98,4844%	0,1128%	0,11%	Abbrand	7,4	0,2	[MWd/kgU]	

ID	gemessen von	Datum	Schema	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
23	Max Heller	31.07.2019	1	20 x 20	64	25000	1	700

	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare	
U-234	0,0138%	0,0058%	41,66%	U-234/U-238	0,00014	0,00006	41,66%	
U-235	1,3147%	0,0413%	3,14%	U-235/U-238	0,01334	0,00042	3,18%	
U-236	0,1546%	0,0151%	9,80%	U-236/U-238	0,00157	0,00015	9,81%	
U-238	98,5169%	0,4960%	0,50%	Abbrand	9,4	1,1	[MWd/kgU]	

Kronos		KOP-011						
--------	--	---------	--	--	--	--	--	--

ID	gemessen von	Datum	Schema	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
11	Hauke Bosco	05.07.2019	6	20 x 20	128	1300	1	300

	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare
U-234	0,0192%	0,0015%	7,91%	U-234/U-238	0,00019	0,00002	7,91% Iontof Peakshape
U-235	0,9678%	0,0108%	1,12%	U-235/U-238	0,00980	0,00011	1,13%
U-236	0,2152%	0,0051%	2,38%	U-236/U-238	0,00218	0,00005	2,39%
U-238	98,7977%	0,1536%	0,16%	Abbrand	14,0	0,4	[MWd/kgU]

ID	gemessen von	Datum	Schema	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
13	Hauke Bosco	06.07.2019	5	20 x 20	128	600	1	600

	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare
U-234	0,0167%	0,0014%	8,28%	U-234/U-238	0,00017	0,00001	8,28% SES 275 mW - Iontof
U-235	0,9727%	0,0106%	1,09%	U-235/U-238	0,00985	0,00011	1,10% Peakshape
U-236	0,2270%	0,0051%	2,26%	U-236/U-238	0,00230	0,00005	2,26%
U-238	98,7835%	0,1500%	0,15%	Abbrand	15,0	0,4	[MWd/kgU]

ID	gemessen von	Datum	Schema	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
22	Max Heller	18.07.2019	1	20 x 20	128	1750	1	700

	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare
U-234	0,0191%	0,0026%	13,70%	U-234/U-238	0,00019	0,00003	13,71%
U-235	0,9398%	0,0179%	1,90%	U-235/U-238	0,00951	0,00018	1,92%
U-236	0,2026%	0,0083%	4,08%	U-236/U-238	0,00205	0,00008	4,09%
U-238	98,8385%	0,2566%	0,26%	Abbrand	13,0	0,7	[MWd/kgU]

Lykos		KOP-012						
-------	--	---------	--	--	--	--	--	--

ID	gemessen von	Datum	Schema	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
37	Manuel Raiwa	10.05.2021	19	20 x 20	64	3852	1	700

	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare
U-234	0,0229%	0,0015%	6,49%	U-234/U-238	0,00023	0,00002	6,50% non resonant +3,4cm <sup>^-</sup>
U-235	1,0292%	0,0099%	0,96%	U-235/U-238	0,01042	0,00010	0,97% <sup>1</sup>
U-236	0,1799%	0,0042%	2,32%	U-236/U-238	0,00182	0,00004	2,32%
U-238	98,7680%	0,1361%	0,14%	Abbrand	11,2	0,3	[MWd/kgU]

Marie		RW-010						
ID	gemessen von	Datum	Schema	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
5	Hauke Bosco	11.06.2019	5	15 x 15	128	2200	1	600
	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare	
U-234	0,0169%	0,0015%	8,85%	U-234/U-238	0,00017	0,00002	8,85%	SES 266mW -
U-235	1,4237%	0,0134%	0,94%	U-235/U-238	0,01446	0,00014	0,95%	Peakshape IONTOF
U-236	0,1222%	0,0039%	3,21%	U-236/U-238	0,00124	0,00004	3,22%	
U-238	98,4372%	0,1553%	0,16%	Abbrand	7,0	0,3	[MWd/kgU]	
ID	gemessen von	Datum	Schema	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
16	Max Heller	01.08.2019	1	10 x 10	64	17500	1	700
	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare	
U-234	0,0180%	0,0012%	6,92%	U-234/U-238	0,00018	0,00001	6,93%	
U-235	1,3612%	0,0106%	0,78%	U-235/U-238	0,01382	0,00011	0,79%	
U-236	0,1258%	0,0032%	2,57%	U-236/U-238	0,00128	0,00003	2,57%	
U-238	98,4949%	0,1265%	0,13%	Abbrand	7,3	0,2	[MWd/kgU]	
ID	gemessen von	Datum	Schema	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
34	Manuel Raiwa	05.05.2021	19	10 x 10	64	13000	1	700
	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare	
U-234	0,0155%	0,0007%	4,49%	U-234/U-238	0,00016	0,00001	4,50%	
U-235	1,3857%	0,0066%	0,48%	U-235/U-238	0,01407	0,00007	0,48%	
U-236	0,1264%	0,0020%	1,58%	U-236/U-238	0,00128	0,00002	1,58%	
U-238	98,4724%	0,0777%	0,08%	Abbrand	7,3	0,1	[MWd/kgU]	

Mjoellnir CP-025

ID	gemessen von	Datum	Schema	Fov [µm]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
9	Hauke Bosco	14.05.2019	5	20 x 20	64	8789	1	600

	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare
U-234	0,0130%	0,0011%	8,27%	U-234/U-238	0,00013	0,00001	8,27% FES 44,8mW - SES
U-235	0,6684%	0,0076%	1,14%	U-235/U-238	0,00675	0,00008	1,15% 380mW - TES 610
U-236	0,2359%	0,0046%	1,93%	U-236/U-238	0,00238	0,00005	1,94% mW - Iontof Peakshape
U-238	99,0827%	0,1308%	0,13%	Abbrand	15,6	0,4	[MWd/kgU]

ID	gemessen von	Datum	Schema	Fov [µm]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
20	Max Heller	30.07.2019	1	20 x 20	32	27000	1	700

	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare
U-234	0,0141%	0,0030%	21,54%	U-234/U-238	0,00014	0,00003	21,54%
U-235	0,6822%	0,0198%	2,90%	U-235/U-238	0,00688	0,00020	2,91%
U-236	0,1990%	0,0106%	5,35%	U-236/U-238	0,00201	0,00011	5,36%
U-238	99,1047%	0,3340%	0,34%	Abbrand	12,7	0,8	[MWd/kgU]

ID	gemessen von	Datum	Schema	Fov [µm]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
24	Manuel Raiwa	26.04.2021	19	18 x 18	64	7886	1	700

	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare
U-234	0,0153%	0,0008%	5,40%	U-234/U-238	0,00015	0,00001	5,40% added both Am Counts
U-235	0,6880%	0,0055%	0,80%	U-235/U-238	0,00695	0,00006	0,80%
U-236	0,2358%	0,0032%	1,36%	U-236/U-238	0,00238	0,00003	1,37%
U-238	99,0609%	0,0926%	0,09%	Abbrand	15,6	0,3	[MWd/kgU]

Mopsimilian BK-006

ID	gemessen von	Datum	Schema	Fov [µm]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
4	Hauke Bosco	05.06.2019	5	20 x 20	128	2200	1	600

	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare
U-234	0,0124%	0,0011%	9,24%	U-234/U-238	0,00013	0,00001	9,25% SES 245mW -
U-235	1,4540%	0,0124%	0,85%	U-235/U-238	0,01477	0,00013	0,87% Peakshape IONTOF
U-236	0,1102%	0,0034%	3,08%	U-236/U-238	0,00112	0,00003	3,09%
U-238	98,4233%	0,1428%	0,15%	Abbrand	6,2	0,2	[MWd/kgU]

ID	gemessen von	Datum	Schema	Fov [µm]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
15	Max Heller	02.08.2019	1	15 x 15	64	26400	1	700

	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare
U-234	0,0191%	0,0022%	11,71%	U-234/U-238	0,00019	0,00002	11,71%
U-235	1,4647%	0,0183%	1,25%	U-235/U-238	0,01489	0,00019	1,27%
U-236	0,1207%	0,0053%	4,39%	U-236/U-238	0,00123	0,00005	4,39%
U-238	98,3955%	0,2095%	0,21%	Abbrand	6,9	0,4	[MWd/kgU]

Ophaniel		BK-023						
----------	--	--------	--	--	--	--	--	--

ID	gemessen von	Datum	Schema	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
35	Manuel Raiwa	06.05.2021	19	15 x 15	64	5000	1	700

	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare
U-234	0,0178%	0,0008%	4,37%	U-234/U-238	0,00018	0,00001	4,37%
U-235	1,2779%	0,0062%	0,48%	U-235/U-238	0,01297	0,00006	0,49%
U-236	0,1412%	0,0021%	1,46%	U-236/U-238	0,00143	0,00002	1,46%
U-238	98,5630%	0,0760%	0,08%	Abbrand	8,4	0,2	[MWd/kgU]

Thor		CP-033						
------	--	--------	--	--	--	--	--	--

ID	gemessen von	Datum	Schema	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
33	Manuel Raiwa	04.05.2021	19	11 x 11	64	9999	1	700

	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare
U-234	0,0201%	0,0032%	15,79%	U-234/U-238	0,00020	0,00003	15,80%
U-235	0,8413%	0,0166%	1,97%	U-235/U-238	0,00850	0,00017	1,99%
U-236	0,1878%	0,0079%	4,22%	U-236/U-238	0,00190	0,00008	4,22%
U-238	98,9509%	0,2504%	0,25%	Abbrand	11,8	0,6	[MWd/kgU]



# Unkalibrierte Plutonium SNMS

Anzahl der Messungen: 17

stand: 30.06.2021

Amun-Ra 2 SL-6.1

ID	gemessen von:	Datum	Schema	FoV [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
18	Manuel Raiwa	18.03.2020	6	10 x10	64	5.000	1	600
	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare	
Pu-239	70,84%	0,81%	1,14%					
Pu-240	26,32%	0,42%	1,59%	Pu-240/Pu-239	0,3715	0,0073	1,95%	
Pu-241	1,59%	0,10%	6,16%	Pu-241/Pu-239	0,0224	0,0014	6,27%	
Pu-242	1,25%	0,08%	6,71%	Pu-242/Pu-239	0,0177	0,0012	6,81%	

Ares KOP-001

ID	gemessen von:	Datum	Schema	FoV [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
11	Hauke Bosco	04.06.2019	5	20 x 20	128	1.100	1	600
	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare	
								TES 436 mW
Pu-239	72,09%	0,27%	0,37%					
Pu-240	25,11%	0,13%	0,53%	Pu-240/Pu-239	0,3483	0,0023	0,65%	
Pu-241	1,39%	0,03%	2,07%	Pu-241/Pu-239	0,0193	0,0004	2,10%	
Pu-242	1,41%	0,03%	2,02%	Pu-242/Pu-239	0,0196	0,0004	2,06%	

Bellerophon KOP-002

ID	gemessen von:	Datum	Schema	FoV [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
10	Hauke Bosco	17.06.2019	5	20 x 20	128	800	1	600
	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare	
								SES 273mW, TES 275mW
Pu-239	64,23%	0,70%	1,09%					
Pu-240	31,75%	0,44%	1,39%	Pu-240/Pu-239	0,4943	0,0087	1,77%	
Pu-241	1,79%	0,09%	5,22%	Pu-241/Pu-239	0,0279	0,0015	5,34%	
Pu-242	2,23%	0,10%	4,65%	Pu-242/Pu-239	0,0348	0,0017	4,77%	

Bob RW-001								
ID	gemessen von:	Datum	Schema	FoV [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
4	Hauke Bosco	06.06.2019	5	20 x 20	128	250	1	600
	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare	
Pu-239	63,22%	0,21%	0,33%					SES 280 mW, TES
Pu-240	32,15%	0,13%	0,42%	Pu-240/Pu-239	0,5085	0,0027	0,53%	435mW, matching non
Pu-241	1,94%	0,03%	1,49%	Pu-241/Pu-239	0,0307	0,0005	1,53%	resonant Messung 11,
Pu-242	2,67%	0,03%	1,27%	Pu-242/Pu-239	0,0422	0,0006	1,32%	2,5+2 inverse cm
								verstimmt
ID	gemessen von:	Datum	Schema	FoV [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
17	Hauke Bosco	05.07.2019	6	20 x 20	128	1.400	1	700
	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare	
Pu-238	<b>0,28%</b>	0,05%	18,03%					Pu-238 test, FES
Pu-239	61,74%	0,43%	0,70%	Pu-238/Pu-239	<b>0,0046</b>	0,0008	18,05%	23766,114 at 5mW, SES
Pu-240	33,35%	0,29%	0,86%	Pu-240/Pu-239	0,5402	0,0060	1,11%	53mW, TES 116mW
Pu-241	2,23%	0,07%	2,93%	Pu-241/Pu-239	0,0362	0,0011	3,01%	
Pu-242	2,40%	0,07%	2,82%	Pu-242/Pu-239	0,0389	0,0011	2,91%	

Cate CP-001								
ID	gemessen von:	Datum	Schema	FoV [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
5	Marie Bullwinkel	30.07.2018	5	40 x 40	128	1.000	1	600
	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare	
Pu-239	68,39%	1,10%	1,61%					FES 23766,2 at 26mW,
Pu-240	28,23%	0,61%	2,18%	Pu-240/Pu-239	0,4128	0,0112	2,70%	SES 12371,7 ,TES
Pu-241	1,60%	0,14%	8,55%	Pu-241/Pu-239	0,0234	0,0020	8,70%	12653,8 $\text{cm}^{-1}$ TES
Pu-242	1,77%	0,14%	7,80%	Pu-242/Pu-239	0,0259	0,0021	7,97%	467mW, Floodgun on

Gaia Spot 1 KOP-007-S1								
ID	gemessen von:	Datum	Schema	FoV [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
20	Manuel Raiwa	08.04.2020	6	15 x 15	32	3.515	1	650
	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare	
Pu-239	68,48%	1,65%	2,41%					SI Background exploded
Pu-240	28,13%	0,90%	3,20%	Pu-240/Pu-239	0,4108	0,0165	4,01%	after 1100s. Probably a
Pu-241	1,36%	0,21%	15,07%	Pu-241/Pu-239	0,0199	0,0030	15,26%	timing issue
Pu-242	2,03%	0,24%	11,68%	Pu-242/Pu-239	0,0296	0,0035	11,93%	

Gaia Spot 2		KOP-007-S2						
-------------	--	------------	--	--	--	--	--	--

ID	gemessen von:	Datum	Schema	FoV [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
19	Manuel Raiwa	07.04.2020	6	10 x 10	16	2.474	50	600
	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare	
							Spot 2	
Pu-239	66,87%	1,68%	2,51%					
Pu-240	29,74%	0,97%	3,25%	Pu-240/Pu-239	0,4447	0,0182	4,10%	
Pu-241	1,49%	0,20%	13,59%	Pu-241/Pu-239	0,0222	0,0031	13,82%	
Pu-242	1,90%	0,23%	12,33%	Pu-242/Pu-239	0,0284	0,0036	12,58%	

Gaia Spot 3		KOP-007-S3						
-------------	--	------------	--	--	--	--	--	--

ID	gemessen von:	Datum	Schema	FoV [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
21	Manuel Raiwa	09.04.2020	6	8 x 8	16	4.687	1	650
	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare	
Pu-239	68,82%	1,98%	2,88%					
Pu-240	27,74%	1,09%	3,94%	Pu-240/Pu-239	0,4031	0,0196	4,87%	
Pu-241	1,36%	0,24%	17,85%	Pu-241/Pu-239	0,0197	0,0036	18,08%	
Pu-242	2,09%	0,28%	13,31%	Pu-242/Pu-239	0,0303	0,0041	13,62%	

Herakles		KOP-008						
----------	--	---------	--	--	--	--	--	--

ID	gemessen von:	Datum	Schema	FoV [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
13	Hauke Bosco	19.07.2019	6	20 x 20	128	1.100	1	700
	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare	
Pu-239	70,23%	0,42%	0,60%					
Pu-240	26,85%	0,23%	0,84%	Pu-240/Pu-239	0,3823	0,0040	1,04%	
Pu-241	1,54%	0,05%	3,16%	Pu-241/Pu-239	0,0219	0,0007	3,22%	
Pu-242	1,39%	0,05%	3,32%	Pu-242/Pu-239	0,0197	0,0007	3,37%	

Johanna		BK-008						
---------	--	--------	--	--	--	--	--	--

ID	gemessen von:	Datum	Schema	FoV [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
9	Hauke Bosco	03.06.2019	5	20 x 20	128	4.400	1	600
	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare	
							größere Intervalle, SES 207 mW, TES 350mW	
Pu-239	73,38%	0,97%	1,33%					
Pu-240	24,15%	0,47%	1,95%	Pu-240/Pu-239	0,3291	0,0078	2,36%	
Pu-241	1,34%	0,11%	8,60%	Pu-241/Pu-239	0,0182	0,0016	8,70%	
Pu-242	1,13%	0,11%	9,28%	Pu-242/Pu-239	0,0155	0,0014	9,37%	

**Jörmungandr CP-026**

ID	gemessen von:	Datum	Schema	FoV [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
16	Hauke Bosco	05.06.2019	5	20 x 20	128	1.500	1	600
	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare	
							FES 30mW, SES 198mW, TES 465mW	
Pu-239	81,53%	0,99%	1,22%					
Pu-240	17,43%	0,37%	2,11%	Pu-240/Pu-239	0,2138	0,0052	2,44%	
Pu-241	0,81%	0,08%	10,04%	Pu-241/Pu-239	0,0099	0,0010	10,11%	
Pu-242	0,23%	0,04%	17,14%	Pu-242/Pu-239	0,0029	0,0005	17,19%	

**Kronos KOP-011**

ID	gemessen von:	Datum	Schema	FoV [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
14	Hauke Bosco	17.06.2019	5	20 x 20	128	600	1	600
	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare	
							SES 275mW, TES 291mW	
Pu-239	68,70%	0,66%	0,95%					
Pu-240	27,81%	0,36%	1,31%	Pu-240/Pu-239	0,4047	0,0065	1,62%	
Pu-241	1,76%	0,08%	4,71%	Pu-241/Pu-239	0,0256	0,0012	4,80%	
Pu-242	1,73%	0,08%	4,69%	Pu-242/Pu-239	0,0252	0,0012	4,78%	

**ID 15 Hauke Bosco 05.07.2019 6 20 x 20 128 1.300 1 600**

ID	gemessen von:	Datum	Schema	FoV [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
15	Hauke Bosco	05.07.2019	6	20 x 20	128	1.300	1	600
	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare	
							FES 23766,114,	
Pu-239	68,16%	0,62%	0,92%					
Pu-240	28,23%	0,35%	1,24%	Pu-240/Pu-239	0,4141	0,0064	1,54%	
Pu-241	1,89%	0,08%	4,35%	Pu-241/Pu-239	0,0278	0,0012	4,45%	
Pu-242	1,71%	0,08%	4,52%	Pu-242/Pu-239	0,0251	0,0012	4,61%	

**Marie RW-010**

ID	gemessen von:	Datum	Schema	FoV [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
8	Hauke Bosco	11.06.2019	5	15 x 15	128	2.200	1	600
	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare	
							TES 306mW	
Pu-239	83,63%	0,76%	0,91%					
Pu-240	15,34%	0,26%	1,69%	Pu-240/Pu-239	0,1834	0,0035	1,92%	
Pu-241	0,72%	0,05%	7,47%	Pu-241/Pu-239	0,0086	0,0006	7,52%	
Pu-242	0,31%	0,04%	11,64%	Pu-242/Pu-239	0,0038	0,0004	11,67%	

Mjoellnir		CP-025						
ID	gemessen von:	Datum	Schema	FoV [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
12	Hauke Bosco	14.05.2019	5	20 x 20	64	8.789	1	600
	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare	
							FES 44,8mW - SES 380mW - TES 610 mW	
Pu-239	61,19%	0,86%	1,40%					
Pu-240	33,40%	0,57%	1,70%	Pu-240/Pu-239	0,5457	0,0120	2,20%	
Pu-241	2,08%	0,13%	6,16%	Pu-241/Pu-239	0,0339	0,0021	6,32%	
Pu-242	3,33%	0,16%	4,76%	Pu-242/Pu-239	0,0545	0,0027	4,96%	

Mopsimilian		BK-006						
ID	gemessen von:	Datum	Schema	FoV [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
7	Hauke Bosco	05.06.2019	5	20 x 20	128	2.200	1	600
	Anteil	u	relativ	Verhältnis	u	relativ	Kommentare	
							TES 476mW	
Pu-239	85,18%	1,16%	1,36%					
Pu-240	14,14%	0,37%	2,62%	Pu-240/Pu-239	0,1659	0,0049	2,95%	
Pu-241	0,50%	0,07%	14,56%	Pu-241/Pu-239	0,0059	0,0009	14,62%	
Pu-242	0,18%	0,04%	23,20%	Pu-242/Pu-239	0,0022	0,0005	23,24%	

# kalibrierte Plutonium SNMS

Anzahl der Messungen: 10

stand: 30.06.2021

Dumah

BK-012

ID	gemessen von	Datum	Schema	FoV [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
11	Manuel Raiwa	07.05.2021	17	15 x 15	64	4.150	1	700
	Skalierfaktor	u	relativ	Anteil	u	relativ	Kommentare	
Pu-238	1,214	0,047	3,87%	0,00%	0,00%	0,00%	Non Resonant $+3,5\text{cm}^{-1}$	
Pu-239	0,777	0,008	1,01%	59,21%	0,96%	1,61%		
Pu-240	1,321	0,019	1,42%	33,58%	0,70%	2,09%		
Pu-241	1,692	0,052	3,07%	1,89%	0,12%	6,24%		
Pu-242	12,136	0,818	6,74%	5,31%	0,58%	10,97%		

Jejun

BK-018

ID	gemessen von	Datum	Schema	FoV [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
7	Manuel Raiwa	28.04.2021	17	17 x 17	64	3.838	1	700
	Skalierfaktor	u	relativ	Anteil	u	relativ	Kommentare	
Pu-238	1,477	0,092	6,26%	0,00%	0,00%	0,00%	Non-Resonant $+3\text{cm}^{-1}$	
Pu-239	0,775	0,010	1,32%	55,56%	0,99%	1,78%		
Pu-240	1,340	0,026	1,97%	37,24%	0,87%	2,33%		
Pu-241	1,630	0,070	4,30%	1,97%	0,10%	4,98%		
Pu-242	8,387	0,670	7,99%	5,23%	0,45%	8,64%		

Ophaniel

BK-023

ID	gemessen von	Datum	Schema	FoV [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
10	Manuel Raiwa	06.05.2021	17	15 x 15	64	4.509	1	700
	Skalierfaktor	u	relativ	Anteil	u	relativ	Kommentare	
Pu-238	1,080	0,038	3,56%	0,77%	0,34%	44,18%	Non-resonant $+3,5\text{cm}^{-1}$	
Pu-239	0,796	0,008	0,95%	76,71%	1,03%	1,34%		
Pu-240	1,251	0,016	1,28%	20,95%	0,36%	1,73%		
Pu-241	1,679	0,046	2,76%	0,84%	0,04%	5,33%		
Pu-242	8,163	0,404	4,94%	0,72%	0,08%	11,73%		

James1		CP-008-1						
ID	gemessen von	Datum	Schema	FoV [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
9	Manuel Raiwa	06.05.2021	17	20 x 20	64	6.103	1	700
	Skalierfaktor	u	relativ	Anteil	u	relativ	Kommentare	
Pu-238	1,386	0,058	4,20%	0,00%	0,00%	0,00%	Non_resonant +3cm <sup>-1</sup>	
Pu-239	0,826	0,009	1,03%	71,75%	1,02%	1,42%		
Pu-240	1,138	0,016	1,37%	25,60%	0,46%	1,80%		
Pu-241	1,429	0,041	2,88%	1,23%	0,06%	4,94%		
Pu-242	5,963	0,285	4,78%	1,42%	0,13%	8,94%		

Mjoellnir		CP-025						
ID	gemessen von	Datum	Schema	FoV [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
4	Manuel Raiwa	27.04.2021	17	13 x 13	64	5.033	1	700
	Skalierfaktor	u	relativ	Anteil	u	relativ	Kommentare	
Pu-238	1,322	0,041	3,07%	0,00%	0,00%	0,00%	non-resonant +2,5cm <sup>-1</sup>	
Pu-239	0,813	0,007	0,86%	61,29%	0,79%	1,29%		
Pu-240	1,175	0,013	1,10%	33,71%	0,54%	1,60%		
Pu-241	1,526	0,034	2,24%	1,85%	0,09%	4,90%		
Pu-242	6,844	0,262	3,83%	3,15%	0,25%	7,95%		

Thor		CP-033						
ID	gemessen von	Datum	Schema	FoV [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
6	Manuel Raiwa	04.05.2021	17	10 x 10	64	8.789	1	700
	Skalierfaktor	u	relativ	Anteil	u	relativ	Kommentare	
Pu-238	1,417	0,058	4,09%	0,55%	0,35%	63,82%	Non Resonant +3cm <sup>-1</sup>	
Pu-239	0,785	0,008	0,99%	66,94%	1,09%	1,63%		
Pu-240	1,264	0,017	1,37%	28,69%	0,62%	2,17%		
Pu-241	1,569	0,045	2,89%	1,49%	0,10%	6,92%		
Pu-242	17,368	1,397	8,04%	2,33%	0,48%	20,68%		

Ares		KOP-001						
ID	gemessen von	Datum	Schema	FoV [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
5	Manuel Raiwa	05.05.2021	17	15 x 15	64	2.855	1	700
	Skalierfaktor	u	relativ	Anteil	u	relativ	Kommentare	
Pu-238	1,151	0,056	4,85%	0,00%	0,00%	0,00%	Non-Resonant + 3cm <sup>-1</sup>	
Pu-239	0,793	0,008	1,05%	68,59%	0,95%	1,39%		
Pu-240	1,239	0,018	1,45%	27,81%	0,49%	1,77%		
Pu-241	1,744	0,057	3,28%	1,56%	0,07%	4,30%		
Pu-242	10,349	0,676	6,53%	2,03%	0,18%	8,63%		

Lykos		KOP-012						
ID	gemessen von	Datum	Schema	FoV [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
12	Manuel Raiwa	10.05.2021	17	22 x 22	64	4.882	1	700
	Skalierfaktor	u	relativ	Anteil	u	relativ	Kommentare	
Pu-238	1,530	0,102	6,66%	0,61%	0,33%	53,55%	Non Resonant $+3,4\text{cm}^{-1}$	
Pu-239	0,786	0,011	1,35%	69,33%	1,30%	1,87%		
Pu-240	1,279	0,025	1,98%	27,16%	0,68%	2,50%		
Pu-241	1,557	0,067	4,31%	1,40%	0,09%	6,39%		
Pu-242	8,693	0,729	8,39%	1,49%	0,20%	13,70%		

Bob		RW-001						
ID	gemessen von	Datum	Schema	FoV [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
3	Manuel Raiwa	26.02.2021	17	16 x 16	32	732	8	700
	Skalierfaktor	u	relativ	Anteil	u	relativ	Kommentare	
Pu-238	1,393	0,103	7,39%	0,39%	0,08%	20,95%		
Pu-239	0,843	0,013	1,51%	59,42%	1,16%	1,95%		
Pu-240	1,105	0,023	2,08%	34,96%	0,85%	2,44%		
Pu-241	1,264	0,055	4,36%	1,96%	0,10%	4,90%		
Pu-242	5,077	0,382	7,53%	3,28%	0,27%	8,17%		

Marie		RW-010						
ID	gemessen von	Datum	Schema	FoV [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
8	Manuel Raiwa	05.05.2021	17	10 x 10	64	4.882	1	700
	Skalierfaktor	u	relativ	Anteil	u	relativ	Kommentare	
Pu-238	1,195	0,027	2,22%	0,00%	0,00%	0,00%	Non-resonant $+3\text{cm}^{-1}$	
Pu-239	0,779	0,006	0,75%	74,76%	0,80%	1,07%		
Pu-240	1,273	0,012	0,93%	23,07%	0,32%	1,38%		
Pu-241	1,926	0,037	1,90%	1,00%	0,05%	4,89%		
Pu-242	22,826	1,187	5,20%	1,16%	0,18%	15,46%		



# Americium SNMS

Anzahl der Messungen: 24

stand: 30.06.2021

Ares

KOP-001

ID	gemessen von	Datum	Schema	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
2	Max Heller	23.07.2019	1	30 x 30	64	4.000	1	700

	Anteil	u	relativ	Kommentare
Am-241	98,63%	0,75%	0,76%	
Am-242m	0,04%	0,013%	31,95%	
Am-243	1,33%	0,06%	4,69%	
Am-241/Am-243	74,3	3,5	4,76%	

ID	gemessen von	Datum	Schema	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
15	Manuel Raiwa	28.04.2021	19	16 x 16	64	3.925	1	700

	Anteil	u	relativ	Kommentare
Am-241	98,60%	0,37%	0,37%	Non Resonant FES + $4\text{cm}^{-1}$
Am-242m	0,05%	0,007%	14,26%	
Am-243	1,35%	0,03%	2,29%	
Am-241/Am-243	73,0	1,7	2,32%	

Bellerophon

KOP-002

ID	gemessen von	Datum	Schema	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
3	Hauke Bosco	18.07.2019	1	15 x 15	64	8.789	1	700

	Anteil	u	relativ	Kommentare
Am-241	98,23%	0,91%	0,92%	Non-Res + $2\text{cm}^{-1}$
Am-242m	0,08%	0,021%	24,50%	
Am-243	1,69%	0,09%	5,13%	
Am-241/Am-243	58,3	3,0	5,22%	

Bob

RW-001

ID	gemessen von	Datum	Schema	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
7	Max Heller	26.07.2019	1	20 x 20	64	1.100	1	700

	Anteil	u	relativ	Kommentare
Am-241	97,69%	0,83%	0,85%	
Am-242m	0,00%	0,000%	0,00%	
Am-243	2,31%	0,09%	3,96%	
Am-241/Am-243	42,3	1,7	4,05%	

ID	gemessen von	Datum	Schema	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
13	Manuel Raiwa	08.01.2021	19	20 x 20	32	351	5	700

	Anteil	u	relativ	Kommentare
Am-241	97,66%	0,71%	0,73%	Grating Test
Am-242m	0,10%	0,017%	17,31%	
Am-243	2,25%	0,08%	3,45%	
Am-241/Am-243	43,4	1,5	3,53%	

ID	gemessen von	Datum	Schema	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
27	Hauke Bosco	08.06.2020	1	22 x 22	64	12.695	1	700

	Anteil	u	relativ	Kommentare
Am-241	97,73%	0,14%	0,14%	Hauke Langzeitmessung 2020
Am-242m	0,04%	0,002%	6,23%	
Am-243	2,23%	0,02%	0,68%	
Am-241/Am-243	43,8	0,3	0,70%	

### Dumah BK-012

ID	gemessen von	Datum	Schema	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
24	Manuel Raiwa	07.05.2021	19	15 x 15	64	2.876	1	700

	Anteil	u	relativ	Kommentare
Am-241	98,53%	0,80%	0,82%	Non-resonant $+3,2\text{cm}^{-1}$
Am-242m	0,07%	0,017%	24,06%	
Am-243	1,39%	0,07%	4,93%	
Am-241/Am-243	70,7	3,5	5,00%	

### Gaia Spot 1 KOP-007-S1

ID	gemessen von	Datum	Schema	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
18	Manuel Raiwa	03.05.2021	19	14 x 14	64	4.831	1	700

	Anteil	u	relativ	Kommentare
Am-241	98,46%	1,71%	1,74%	Non-Resonant $+3\text{cm}^{-1}$
Am-242m	0,10%	0,045%	42,87%	
Am-243	1,44%	0,15%	10,38%	
Am-241/Am-243	68,5	7,2	10,53%	

### Gaia Spot 2 KOP-007-S2

ID	gemessen von	Datum	Schema	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
19	Manuel Raiwa	03.05.2021	19	10 x 10	64	4.394	1	700

	Anteil	u	relativ	Kommentare
Am-241	98,73%	3,10%	3,14%	Non Resonant $+3\text{cm}^{-1}$
Am-242m	0,00%	0,000%	0,00%	
Am-243	1,27%	0,28%	21,87%	
Am-241/Am-243	77,8	17,2	22,09%	

Gaia Spot 3 KOP-007-S3

ID	gemessen von	Datum	Schema	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
20	Manuel Raiwa	03.05.2021	19	8 x 8	64	4.450	1	700

	Anteil	u	relativ	Kommentare
Am-241	98,95%	2,56%	2,58%	Non-Resonant $+3\text{cm}^{-1}$
Am-242m	0,00%	0,000%	0,00%	
Am-243	1,05%	0,19%	18,31%	
Am-241/Am-243	93,9	17,4	18,49%	

Herakles KOP-008

ID	gemessen von	Datum	Schema	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
5	Max Heller	19.07.2019	1	15 x 15	128	1.650	1	700

	Anteil	u	relativ	Kommentare
Am-241	98,79%	0,75%	0,76%	Am-241 Tailing!
Am-242m	0,00%	0,000%	0,00%	
Am-243	1,21%	0,06%	4,90%	
Am-241/Am-243	81,6	4,0	4,96%	

James1 CP-008-1

ID	gemessen von	Datum	Schema	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
17	Manuel Raiwa	30.04.2021	19	15 x 15	64	5.283	1	700

	Anteil	u	relativ	Kommentare
Am-241	98,76%	0,70%	0,71%	non-resonant $+7,5\text{cm}^{-1}$
Am-242m	0,03%	0,014%	41,65%	
Am-243	1,20%	0,06%	4,60%	
Am-241/Am-243	82,2	3,8	4,65%	

Jequin BK-018

ID	gemessen von	Datum	Schema	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
16	Manuel Raiwa	29.04.2021	19	20 x 20	64	3.218	1	700

	Anteil	u	relativ	Kommentare
Am-241	97,07%	0,41%	0,42%	Non-Resonant $+5\text{cm}^{-1}$
Am-242m	0,06%	0,011%	16,96%	
Am-243	2,87%	0,05%	1,79%	
Am-241/Am-243	33,8	0,6	1,84%	

**Johanna BK-008**

ID	gemessen von	Datum	Schema	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
11	Max Heller	30.07.2019	1	20 x 20	32	60.000	1	700

	Anteil	u	relativ	Kommentare
Am-241	99,19%	1,83%	1,84%	Am-241 Tailing!
Am-242m	0,00%	0,000%	0,00%	
Am-243	0,81%	0,13%	15,64%	
Am-241/Am-243	122,8	19,3	15,75%	

**Jörmungandr CP-026**

ID	gemessen von	Datum	Schema	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
12	Max Heller	31.07.2019	1	20 x 20	64	25.000	1	700

	Anteil	u	relativ	Kommentare
Am-241	99,71%	1,76%	1,76%	
Am-242m	0,14%	0,067%	48,45%	
Am-243	0,15%	0,08%	54,79%	
Am-241/Am-243	646,2	354,2	54,81%	

**Kronos KOP-011**

ID	gemessen von	Datum	Schema	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
1	Max Heller	18.07.2019	1	20 x 20	128	1.750	1	700

	Anteil	u	relativ	Kommentare
Am-241	98,19%	0,81%	0,82%	Non-Res $+2\text{cm}^{-1}$
Am-242m	0,06%	0,015%	26,96%	
Am-243	1,76%	0,08%	4,46%	
Am-241/Am-243	55,9	2,5	4,53%	

**Lykos KOP-012**

ID	gemessen von	Datum	Schema	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
25	Manuel Raiwa	10.05.2021	19	20 x 20	64	5.459	1	700

	Anteil	u	relativ	Kommentare
Am-241	99,03%	0,84%	0,85%	non resonant $+3,4\text{cm}^{-1}$
Am-242m	0,12%	0,022%	19,27%	
Am-243	0,86%	0,06%	6,59%	
Am-241/Am-243	115,7	7,7	6,65%	

Marie RW-010

ID	gemessen von	Datum	Schema	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
8	Max Heller	01.08.2019	1	10 x 10	64	17.500	1	700

	Anteil	u	relativ	Kommentare
Am-241	99,63%	1,07%	1,07%	
Am-242m	0,06%	0,020%	34,65%	
Am-243	0,32%	0,05%	14,68%	
Am-241/Am-243	314,8	46,3	14,72%	

ID	gemessen von	Datum	Schema	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
22	Manuel Raiwa	05.05.2021	19	10 x 10	64	6.996	1	700

	Anteil	u	relativ	Kommentare
Am-241	99,68%	0,72%	0,72%	Non Resonant $+3\text{cm}^{-1}$
Am-242m	0,05%	0,014%	27,39%	
Am-243	0,26%	0,03%	10,15%	
Am-241/Am-243	376,3	38,3	10,17%	

Mjoellnir CP-025

ID	gemessen von	Datum	Schema	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
6	Max Heller	30.07.2019	1	20 x 20	32	27.000	1	700

	Anteil	u	relativ	Kommentare
Am-241	97,22%	1,10%	1,13%	
Am-242m	0,07%	0,023%	31,19%	
Am-243	2,71%	0,13%	4,95%	
Am-241/Am-243	35,9	1,8	5,07%	

ID	gemessen von	Datum	Schema	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
14	Manuel Raiwa	26.04.2021	19	18 x 18	64	7.886	1	700

	Anteil	u	relativ	Kommentare
Am-241	97,06%	0,50%	0,51%	non resonant $+4\text{cm}^{-1}$
Am-242m	0,05%	0,011%	22,36%	
Am-243	2,89%	0,06%	2,14%	
Am-241/Am-243	33,6	0,7	2,20%	

Mopsimilian BK-006

ID	gemessen von	Datum	Schema	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
9	Max Heller	02.08.2019	1	15 x 15	64	26.400	1	700

	Anteil	u	relativ	Kommentare
Am-241	100,00%	2,12%	2,12%	Low Burnup
Am-242m	0,00%	0,000%	0,00%	
Am-243	0,00%	0,00%	0,00%	
Am-241/Am-243	#Div/0!	#Div/0!	2,12%	

Ophaniel		BK-023						
----------	--	--------	--	--	--	--	--	--

ID	gemessen von	Datum	Schema	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
23	Manuel Raiwa	06.05.2021	19	15 x 15	64	4.550	1	700

	Anteil	u	relativ	Kommentare
Am-241	99,53%	0,82%	0,83%	non resonant $+3,5\text{cm}^{-1}$
Am-242m	0,11%	0,024%	22,54%	
Am-243	0,36%	0,04%	10,26%	
Am-241/Am-243	277,5	28,6	10,30%	

Thor		CP-033						
------	--	--------	--	--	--	--	--	--

ID	gemessen von	Datum	Schema	Fov [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	SpP	extr. delay [ns]
21	Manuel Raiwa	04.05.2021	19	11 x 11	64	4.969	1	700

	Anteil	u	relativ	Kommentare
Am-241	98,36%	1,07%	1,08%	Non-Resonant $+3\text{cm}^{-1}$
Am-242m	0,19%	0,047%	25,40%	
Am-243	1,46%	0,10%	6,77%	
Am-241/Am-243	67,6	4,6	6,86%	

# Gamma Kalibrationen

Anzahl der Kalibrationen: 6 stand: 30.06.2021

## Am-241

Id	verwendeter Standard	Standard Isotop	Halbwertszeit [a]	Referenzdatum	Referenzaktivität [Bq]	u
1	PTB 569-81 Am241-07	Am-241	432,6	01.01.1985	29200	0,58%
	Kalibrationsdatum	26.02.2019	Aktivität am Kalibrationstag [Bq]	27645	+ / -	161
	Kalibrierte Linie [keV]	59,54	Line probability kalibrierte Linie	0,359	+ / -	0,004
	für Nuklid	Am-241	gemssene Counts	95170	+ / -	311,3
	für Linie [keV]	59,54	Countrate [Counts/s]	3017,92	+ / -	9,87
	Messdauer [s]	31,54	Efficiency [Counts/Bq]	0,3041	+ / -	0,0040
Id	verwendeter Standard	Standard Isotop	Halbwertszeit [a]	Referenzdatum	Referenzaktivität [Bq]	u
6	PTB 569-81 Am241-07	Am-241	432,6	01.01.1985	29200	0,58%
	Kalibrationsdatum	18.01.2021	Aktivität am Kalibrationstag [Bq]	27561	+ / -	160
	Kalibrierte Linie [keV]	59,54	Line probability kalibrierte Linie	0,359	+ / -	0,004
	für Nuklid	Am-241	gemssene Counts	535200	+ / -	739,79
	für Linie [keV]	59,54	Countrate [Counts/s]	3045,58	+ / -	4,21
	Messdauer [s]	175,73	Efficiency [Counts/Bq]	0,3078	+ / -	0,0039

## Cs-137

Id	verwendeter Standard	Standard Isotop	Halbwertszeit [a]	Referenzdatum	Referenzaktivität [Bq]	u
2	PTB 246-83 Cs137-06	Cs-137	30,08	01.01.1985	29900	0,58%
	Kalibrationsdatum	26.02.2019	Aktivität am Kalibrationstag [Bq]	13611	+ / -	79
	Kalibrierte Linie [keV]	661,65	Line probability kalibrierte Linie	0,851	+ / -	0,002
	für Nuklid	Cs-137	gemssene Counts	47040	+ / -	216,63
	für Linie [keV]	661,65	Countrate [Counts/s]	474,76	+ / -	2,19
	Messdauer [s]	99,08	Efficiency [Counts/Bq]	0,0410	+ / -	0,0003
Id	verwendeter Standard	Standard Isotop	Halbwertszeit [a]	Referenzdatum	Referenzaktivität [Bq]	u
5	PTB 246-83 Cs137-06	Cs-137	30,08	01.01.1985	29900	0,58%
	Kalibrationsdatum	18.01.2021	Aktivität am Kalibrationstag [Bq]	13029	+ / -	76
	Kalibrierte Linie [keV]	661,65	Line probability kalibrierte Linie	0,851	+ / -	0,002
	für Nuklid	Cs-137	gemssene Counts	131400	+ / -	362,28
	für Linie [keV]	661,65	Countrate [Counts/s]	457,28	+ / -	1,26
	Messdauer [s]	287,35	Efficiency [Counts/Bq]	0,0412	+ / -	0,0003

## Eu-154

Id	verwendeter Standard	Standard Isotop	Halbwertszeit [a]	Referenzdatum	Referenzaktivität [Bq]	u
3	PTB 228-94 Eu-152-03	Eu-152	13,517	01.01.1995	42800	0,67%
	Kalibrationsdatum	26.02.2019	Aktivität am Kalibrationstag [Bq]	12403	+ / -	83
	Kalibrierte Linie [keV]	121,781	Line probability kalibrierte Linie	0,285	+ / -	0,002
	für Nuklid	Eu-154	gemessene Counts	44360	+ / -	215,18
	für Linie [keV]	123,07	Countrate [Counts/s]	573,94	+ / -	2,78
	Messdauer [s]	77,29	Efficiency [Counts/Bq]	0,1622	+ / -	0,0016
Id	verwendeter Standard	Standard Isotop	Halbwertszeit [a]	Referenzdatum	Referenzaktivität [Bq]	u
4	PTB 228-94 Eu-152-03	Eu-152	13,517	01.01.1995	42800	0,67%
	Kalibrationsdatum	18.01.2021	Aktivität am Kalibrationstag [Bq]	11255	+ / -	75
	Kalibrierte Linie [keV]	121,781	Line probability kalibrierte Linie	0,285	+ / -	0,002
	für Nuklid	Eu-154	gemessene Counts	313500	+ / -	572
	für Linie [keV]	123,07	Countrate [Counts/s]	525,71	+ / -	0,96
	Messdauer [s]	596,34	Efficiency [Counts/Bq]	0,1637	+ / -	0,0015



# Gammaspektrometrie

Gammaktivitäten: 84 stand: 30.6.2021

gemessene Partikel: 39

Alice RW-013 Volumen [ $\mu\text{m}^3$ ] 4704 Klasse UO2 (?)

Datum		05.05.2021		gemessen von		Polina Fraatz	
ID	Kalibration	Isotop	Aktivität [Bq]	u	relativ	Konzentration [ $\text{Bq}/\mu\text{m}^3$ ]	u
88	6	Am-241	0,864	0,015	1,70%	1,84E-04	9,19E-05
87	5	Cs-137	4,056	0,030	0,75%	8,62E-04	4,31E-04
86	4	Eu-154	0,059	0,002	2,81%	1,26E-05	6,33E-06

Ares KOP-001 Volumen [ $\mu\text{m}^3$ ] 176000 Klasse UZrO

Datum		18.03.2019		gemessen von		Manuel Raiwa	
ID	Kalibration	Isotop	Aktivität [Bq]	u	relativ	Konzentration [ $\text{Bq}/\mu\text{m}^3$ ]	u
19	1	Am-241	7,646	0,135	1,77%	4,34E-05	2,17E-05
20	2	Cs-137	149,928	1,239	0,83%	8,52E-04	4,26E-04
21	3	Eu-154	0,641	0,030	4,75%	3,64E-06	1,83E-06

Ariel BK-009 Volumen [ $\mu\text{m}^3$ ] 210 Klasse

Datum		03.02.2021		gemessen von		Polina Fraatz	
ID	Kalibration	Isotop	Aktivität [Bq]	u	relativ	Konzentration [ $\text{Bq}/\mu\text{m}^3$ ]	u
54	6	Am-241	0,030	0,001	2,02%	1,42E-04	7,09E-05
53	5	Cs-137	0,416	0,005	1,21%	1,98E-03	9,91E-04

Bellerophon KOP-002 Volumen [ $\mu\text{m}^3$ ] 32805 Klasse UO2

Datum		01.04.2019		gemessen von		Manuel Raiwa	
ID	Kalibration	Isotop	Aktivität [Bq]	u	relativ	Konzentration [ $\text{Bq}/\mu\text{m}^3$ ]	u
16	1	Am-241	3,611	0,063	1,75%	1,10E-04	5,51E-05
17	2	Cs-137	79,711	0,654	0,82%	2,43E-03	1,22E-03
18	3	Eu-154	0,344	0,012	3,55%	1,05E-05	5,26E-06

<b>Camael</b>		<b>BK-011</b>	Volumen [ $\mu\text{m}^3$ ]		<b>960</b>	Klasse	<b>UO2?</b>	
Datum		<b>26.02.2021</b>			gemessen von		<b>Polina Fraatz</b>	
ID	Kalibration	Isotop	Aktivität [Bq]	u	relativ	Konzentration [ $\text{Bq}/\mu\text{m}^3$ ]	u	
76	6	Am-241	0,044	0,001	1,98%	4,56E-05	2,28E-05	
75	5	Cs-137	0,612	0,007	1,15%	6,37E-04	3,19E-04	
<b>Dionysos</b>		<b>KOP-004</b>	Volumen [ $\mu\text{m}^3$ ]		<b>21814</b>	Klasse	<b>Unknown (UOPO4+UO2?)</b>	
Datum		<b>05.04.2019</b>			gemessen von		<b>Manuel Raiwa</b>	
ID	Kalibration	Isotop	Aktivität [Bq]	u	relativ	Konzentration [ $\text{Bq}/\mu\text{m}^3$ ]	u	
25	1	Am-241	0,069	0,002	2,72%	3,14E-06	1,57E-06	
26	3	Eu-154	0,012	0,002	14,68%	5,65E-07	2,95E-07	
<b>Dumah</b>		<b>BK-012</b>	Volumen [ $\mu\text{m}^3$ ]		<b>29494</b>	Klasse	<b>UO2+X</b>	
Datum		<b>28.01.2021</b>			gemessen von		<b>Polina Fraatz</b>	
ID	Kalibration	Isotop	Aktivität [Bq]	u	relativ	Konzentration [ $\text{Bq}/\mu\text{m}^3$ ]	u	
50	6	Am-241	4,624	0,079	1,70%	1,57E-04	7,84E-05	
49	5	Cs-137	62,235	0,455	0,73%	2,11E-03	1,06E-03	
48	4	Eu-154	0,410	0,011	2,65%	1,39E-05	6,95E-06	
<b>Eleleth</b>		<b>BK-013</b>	Volumen [ $\mu\text{m}^3$ ]		<b>540</b>	Klasse	<b>UO2</b>	
Datum		<b>12.02.2021</b>			gemessen von		<b>Polina Fraatz</b>	
ID	Kalibration	Isotop	Aktivität [Bq]	u	relativ	Konzentration [ $\text{Bq}/\mu\text{m}^3$ ]	u	
72	6	Am-241	0,091	0,002	1,70%	1,69E-04	8,46E-05	
71	5	Cs-137	1,241	0,012	0,99%	2,30E-03	1,15E-03	
<b>Ellie2</b>		<b>C003</b>	Volumen [ $\mu\text{m}^3$ ]		<b>210</b>	Klasse	<b>UO2+X</b>	
Datum		<b>20.01.2021</b>			gemessen von		<b>Manuel Raiwa</b>	
ID	Kalibration	Isotop	Aktivität [Bq]	u	relativ	Konzentration [ $\text{Bq}/\mu\text{m}^3$ ]	u	
46	5	Cs-137	1,563	0,014	0,89%	7,44E-03	3,72E-03	
<b>Faina</b>		<b>KOP-006</b>	Volumen [ $\mu\text{m}^3$ ]		<b>2500</b>	Klasse	<b>UO2+X</b>	
Datum		<b>05.06.2019</b>			gemessen von		<b>Manuel Raiwa</b>	
ID	Kalibration	Isotop	Aktivität [Bq]	u	relativ	Konzentration [ $\text{Bq}/\mu\text{m}^3$ ]	u	
38	1	Am-241	0,086	0,002	2,55%	3,44E-05	1,72E-05	
39	2	Cs-137	3,380	0,030	0,90%	1,35E-03	6,76E-04	

<b>Faniel</b>	<b>BK-014</b>	<b>Volumen [<math>\mu\text{m}^3</math>]</b>			<b>125</b>	<b>Klasse</b>	
	Datum	<b>05.03.2021</b>			gemessen von	<b>Polina Fraatz</b>	
ID	Kalibration	Isotop	Aktivität [Bq]	u	relativ	Konzentration [ $\text{Bq}/\mu\text{m}^3$ ]	u
77	5	Cs-137	0,123	0,003	2,40%	9,87E-04	4,94E-04
<b>Fred</b>	<b>CP-004</b>	<b>Volumen [<math>\mu\text{m}^3</math>]</b>			<b>50965</b>	<b>Klasse</b>	<b>UO2+X Fe Cladding</b>
	Datum	<b>26.04.2019</b>			gemessen von	<b>Manuel Raiwa</b>	
ID	Kalibration	Isotop	Aktivität [Bq]	u	relativ	Konzentration [ $\text{Bq}/\mu\text{m}^3$ ]	u
1	1	Am-241	0,463	0,009	1,93%	9,08E-06	4,54E-06
2	2	Cs-137	12,121	0,102	0,84%	2,38E-04	1,19E-04
3	3	Eu-154	0,043	0,004	10,35%	8,41E-07	4,30E-07
<b>Freya</b>	<b>CP-028</b>	<b>Volumen [<math>\mu\text{m}^3</math>]</b>			<b>524</b>	<b>Klasse</b>	<b>UO2?</b>
	Datum	<b>17.12.2019</b>			gemessen von	<b>Polina Fraatz</b>	
ID	Kalibration	Isotop	Aktivität [Bq]	u	relativ	Konzentration [ $\text{Bq}/\mu\text{m}^3$ ]	u
62	1	Am-241	0,301	0,005	1,78%	5,74E-04	2,87E-04
63	2	Cs-137	5,663	0,047	0,83%	1,08E-02	5,41E-03
64	3	Eu-154	0,024	0,001	5,04%	4,66E-05	2,34E-05
<b>Gabriel</b>	<b>BK-015</b>	<b>Volumen [<math>\mu\text{m}^3</math>]</b>			<b>780</b>	<b>Klasse</b>	<b>UO2?</b>
	Datum	<b>18.02.2021</b>			gemessen von	<b>Polina Fraatz</b>	
ID	Kalibration	Isotop	Aktivität [Bq]	u	relativ	Konzentration [ $\text{Bq}/\mu\text{m}^3$ ]	u
74	6	Am-241	0,055	0,001	2,37%	7,05E-05	3,53E-05
73	5	Cs-137	0,552	0,006	1,14%	7,08E-04	3,54E-04
<b>Herakles</b>	<b>KOP-008</b>	<b>Volumen [<math>\mu\text{m}^3</math>]</b>			<b>15080</b>	<b>Klasse</b>	<b>UO2</b>
	Datum	<b>19.03.2019</b>			gemessen von	<b>Manuel Raiwa</b>	
ID	Kalibration	Isotop	Aktivität [Bq]	u	relativ	Konzentration [ $\text{Bq}/\mu\text{m}^3$ ]	u
27	1	Am-241	1,412	0,027	1,89%	9,36E-05	4,68E-05
28	2	Cs-137	23,117	0,199	0,86%	1,53E-03	7,67E-04
29	3	Eu-154	0,101	0,010	9,68%	6,72E-06	3,42E-06

<b>Hermod</b>		<b>CP-031</b>		<b>Volumen [<math>\mu\text{m}^3</math>]</b>		<b>390</b>	<b>Klasse</b>	<b>UO2</b>
Datum		21.01.2020		gemessen von		Polina Fraatz		
ID	Kalibration	Isotop	Aktivität [Bq]	u	relativ	Konzentration [ $\text{Bq}/\mu\text{m}^3$ ]	u	
67	1	Am-241	0,065	0,001	2,28%	1,68E-04	8,41E-05	
68	2	Cs-137	1,208	0,012	0,98%	3,10E-03	1,55E-03	
<b>Horst</b>		<b>CP-006</b>		<b>Volumen [<math>\mu\text{m}^3</math>]</b>		<b>22449</b>	<b>Klasse</b>	<b>UO2+X</b>
Datum		17.05.2019		gemessen von		Manuel Raiwa		
ID	Kalibration	Isotop	Aktivität [Bq]	u	relativ	Konzentration [ $\text{Bq}/\mu\text{m}^3$ ]	u	
4	1	Am-241	0,012	0,001	5,36%	5,22E-07	2,63E-07	
5	2	Cs-137	0,435	0,005	1,21%	1,94E-05	9,70E-06	
<b>James1</b>		<b>CP-008-1</b>		<b>Volumen [<math>\mu\text{m}^3</math>]</b>		<b>2970</b>	<b>Klasse</b>	<b>UO2+X</b>
Datum		18.03.2021		gemessen von		Polina Fraatz		
ID	Kalibration	Isotop	Aktivität [Bq]	u	relativ	Konzentration [ $\text{Bq}/\mu\text{m}^3$ ]	u	
58	6	Am-241	0,289	0,005	1,75%	9,75E-05	4,88E-05	
57	5	Cs-137	0,064	0,003	4,63%	2,14E-05	1,08E-05	
56	4	Eu-154	0,022	0,002	6,90%	7,56E-06	3,81E-06	
<b>James2</b>		<b>CP-008-2</b>		<b>Volumen [<math>\mu\text{m}^3</math>]</b>		<b>18000</b>	<b>Klasse</b>	<b>UO2+X</b>
Datum		23.04.2021		gemessen von		Polina Fraatz		
ID	Kalibration	Isotop	Aktivität [Bq]	u	relativ	Konzentration [ $\text{Bq}/\mu\text{m}^3$ ]	u	
85	6	Am-241	0,990	0,017	1,69%	5,50E-05	2,75E-05	
84	5	Cs-137	0,526	0,007	1,25%	2,92E-05	1,46E-05	
83	4	Eu-154	0,070	0,003	3,66%	3,89E-06	1,95E-06	
<b>Japetos</b>		<b>KOP-010</b>		<b>Volumen [<math>\mu\text{m}^3</math>]</b>		<b>14137</b>	<b>Klasse</b>	<b>unknown klumpen</b>
Datum		26.02.2019		gemessen von		Manuel Raiwa		
ID	Kalibration	Isotop	Aktivität [Bq]	u	relativ	Konzentration [ $\text{Bq}/\mu\text{m}^3$ ]	u	
30	1	Am-241	0,880	0,019	2,14%	6,23E-05	3,12E-05	
31	2	Cs-137	221,048	1,804	0,82%	1,56E-02	7,82E-03	
32	3	Eu-154	0,095	0,013	14,06%	6,69E-06	3,47E-06	

<b>Jejun</b>		<b>BK-018</b>	<b>Volumen [<math>\mu\text{m}^3</math>]</b>		<b>33510</b>	<b>Klasse</b>	<b>UO2</b>
	Datum	<b>26.03.2021</b>			gemessen von	<b>Polina Fraatz</b>	
ID	Kalibration	Isotop	Aktivität [Bq]	u	relativ	Konzentration [ $\text{Bq}/\mu\text{m}^3$ ]	u
61	6	Am-241	11,784	0,199	1,69%	3,52E-04	1,76E-04
60	5	Cs-137	233,040	1,691	0,73%	6,95E-03	3,48E-03
59	4	Eu-154	0,995	0,016	1,60%	2,97E-05	1,49E-05
<b>Johanna</b>		<b>BK-008</b>	<b>Volumen [<math>\mu\text{m}^3</math>]</b>		<b>10000</b>	<b>Klasse</b>	<b>UO2+X</b>
	Datum	<b>12.06.2019</b>			gemessen von	<b>Manuel Raiwa</b>	
ID	Kalibration	Isotop	Aktivität [Bq]	u	relativ	Konzentration [ $\text{Bq}/\mu\text{m}^3$ ]	u
13	1	Am-241	0,331	0,006	1,93%	3,31E-05	1,65E-05
14	2	Cs-137	6,323	0,055	0,87%	6,32E-04	3,16E-04
15	3	Eu-154	0,031	0,003	8,89%	3,06E-06	1,56E-06
<b>Jörmungandr</b>		<b>CP-026</b>	<b>Volumen [<math>\mu\text{m}^3</math>]</b>		<b>9720</b>	<b>Klasse</b>	<b>UO2+X</b>
	Datum	<b>08.03.2019</b>			gemessen von	<b>Manuel Raiwa</b>	
ID	Kalibration	Isotop	Aktivität [Bq]	u	relativ	Konzentration [ $\text{Bq}/\mu\text{m}^3$ ]	u
36	1	Am-241	0,101	0,002	2,16%	1,04E-05	5,19E-06
37	2	Cs-137	0,363	0,005	1,36%	3,73E-05	1,87E-05
42	3	Eu-154	0,007	0,001	18,47%	7,27E-07	3,88E-07
<b>Katy</b>		<b>CP-009</b>	<b>Volumen [<math>\mu\text{m}^3</math>]</b>		<b>19175</b>	<b>Klasse</b>	<b>UO2+UZrO</b>
	Datum	<b>15.04.2019</b>			gemessen von	<b>Manuel Raiwa</b>	
ID	Kalibration	Isotop	Aktivität [Bq]	u	relativ	Konzentration [ $\text{Bq}/\mu\text{m}^3$ ]	u
6	1	Am-241	1,663	0,030	1,79%	8,67E-05	4,34E-05
7	2	Cs-137	1,420	0,019	1,35%	7,41E-05	3,70E-05
8	3	Eu-154	0,149	0,006	3,99%	7,75E-06	3,89E-06
<b>Kronos</b>		<b>KOP-011</b>	<b>Volumen [<math>\mu\text{m}^3</math>]</b>		<b>15599</b>	<b>Klasse</b>	<b>UO2</b>
	Datum	<b>04.03.2019</b>			gemessen von	<b>Manuel Raiwa</b>	
ID	Kalibration	Isotop	Aktivität [Bq]	u	relativ	Konzentration [ $\text{Bq}/\mu\text{m}^3$ ]	u
33	1	Am-241	2,284	0,040	1,77%	1,46E-04	7,33E-05
34	2	Cs-137	40,540	0,336	0,83%	2,60E-03	1,30E-03
35	3	Eu-154	0,193	0,009	4,74%	1,24E-05	6,22E-06

<b>Lilith</b>	<b>BK-007</b>	<b>Volumen [<math>\mu\text{m}^3</math>]</b>			<b>15000</b>	<b>Klasse</b>	<b>UO2</b>
	Datum	<b>18.06.2019</b>			gemessen von	<b>Manuel Raiwa</b>	
ID	Kalibration	Isotop	Aktivität [Bq]	u	relativ	Konzentration [ $\text{Bq}/\mu\text{m}^3$ ]	u
9	1	Am-241	0,004	0,001	15,61%	2,49E-07	1,30E-07
10	2	Cs-137	0,782	0,009	1,11%	5,22E-05	2,61E-05
<b>Lykos</b>	<b>KOP-012</b>	<b>Volumen [<math>\mu\text{m}^3</math>]</b>			<b>26250</b>	<b>Klasse</b>	<b>UO2</b>
	Datum	<b>13.04.2021</b>			gemessen von	<b>Polina Fraatz</b>	
ID	Kalibration	Isotop	Aktivität [Bq]	u	relativ	Konzentration [ $\text{Bq}/\mu\text{m}^3$ ]	u
80	6	Am-241	1,839	0,033	1,77%	7,00E-05	3,50E-05
79	5	Cs-137	17,295	0,133	0,77%	6,59E-04	3,29E-04
78	4	Eu-154	0,135	0,008	6,06%	5,16E-06	2,60E-06
<b>Marie</b>	<b>RW-010</b>	<b>Volumen [<math>\mu\text{m}^3</math>]</b>			<b>382</b>	<b>Klasse</b>	<b>UO2</b>
	Datum	<b>18.04.2019</b>			gemessen von	<b>Manuel Raiwa</b>	
ID	Kalibration	Isotop	Aktivität [Bq]	u	relativ	Konzentration [ $\text{Bq}/\mu\text{m}^3$ ]	u
11	1	Am-241	0,018	0,001	3,40%	4,84E-05	2,43E-05
12	2	Cs-137	0,042	0,002	3,71%	1,09E-04	5,48E-05
<b>Mjoellnir</b>	<b>CP-025</b>	<b>Volumen [<math>\mu\text{m}^3</math>]</b>			<b>28731</b>	<b>Klasse</b>	<b>UO2+X? Fe Cladding</b>
	Datum	<b>25.01.2019</b>			gemessen von	<b>Manuel Raiwa</b>	
ID	Kalibration	Isotop	Aktivität [Bq]	u	relativ	Konzentration [ $\text{Bq}/\mu\text{m}^3$ ]	u
22	1	Am-241	3,485	0,060	1,72%	1,21E-04	6,07E-05
23	2	Cs-137	5,716	0,049	0,85%	1,99E-04	9,95E-05
24	3	Eu-154	0,374	0,007	1,83%	1,30E-05	6,51E-06
<b>Mopsimilian</b>	<b>BK-006</b>	<b>Volumen [<math>\mu\text{m}^3</math>]</b>			<b>3054</b>	<b>Klasse</b>	<b>UO2</b>
	Datum	<b>27.05.2019</b>			gemessen von	<b>Manuel Raiwa</b>	
ID	Kalibration	Isotop	Aktivität [Bq]	u	relativ	Konzentration [ $\text{Bq}/\mu\text{m}^3$ ]	u
40	1	Am-241	0,069	0,002	2,77%	2,27E-05	1,14E-05
41	2	Cs-137	3,168	0,029	0,91%	1,04E-03	5,19E-04

Odin							
CP-030		Volumen [ $\mu\text{m}^3$ ]		500	Klasse		
Datum		07.01.2020		gemessen von		Polina Fraatz	
ID	Kalibration	Isotop	Aktivität [Bq]	u	relativ	Konzentration [ $\text{Bq}/\mu\text{m}^3$ ]	u
65	1	Am-241	0,051	0,001	2,26%	1,03E-04	5,15E-05
66	2	Cs-137	0,872	0,009	0,98%	1,74E-03	8,72E-04
Ophaniel							
BK-023		Volumen [ $\mu\text{m}^3$ ]		2200	Klasse		UO2+X (?)
Datum		16.04.2021		gemessen von		Polina Fraatz	
ID	Kalibration	Isotop	Aktivität [Bq]	u	relativ	Konzentration [ $\text{Bq}/\mu\text{m}^3$ ]	u
82	6	Am-241	0,309	0,006	1,87%	1,41E-04	7,04E-05
81	5	Cs-137	7,533	0,058	0,77%	3,42E-03	1,71E-03
Pahalia							
BK-024		Volumen [ $\mu\text{m}^3$ ]		36000	Klasse		UO2+X
Datum		21.05.2021		gemessen von		Polina Fraatz	
ID	Kalibration	Isotop	Aktivität [Bq]	u	relativ	Konzentration [ $\text{Bq}/\mu\text{m}^3$ ]	u
91	6	Am-241	2,115	0,036	1,72%	5,87E-05	2,94E-05
90	5	Cs-137	39,342	0,289	0,73%	1,09E-03	5,46E-04
89	4	Eu-154	0,159	0,007	4,19%	4,42E-06	2,22E-06
Seraphiel							
BK026		Volumen [ $\mu\text{m}^3$ ]		2145	Klasse		UO2+X
Datum		27.05.2021		gemessen von		Polina Fraatz	
ID	Kalibration	Isotop	Aktivität [Bq]	u	relativ	Konzentration [ $\text{Bq}/\mu\text{m}^3$ ]	u
93	6	Am-241	0,277	0,005	1,74%	1,29E-04	6,46E-05
92	5	Cs-137	1,061	0,011	1,05%	4,95E-04	2,47E-04





# Literaturverzeichnis

- [1] E. M. Pazukhin. Fuel-containing lavas of the Chernobyl NPP fourth block: Topography, physicochemical properties, and formation scenario. *Radiochemistry*, 36(2), 1994.
- [2] Peter C. Burns, Rodney C. Ewing, and Alexandra Navrotsky. Nuclear fuel in a reactor accident. *Science (New York, N.Y.)*, 335(6073):1184–1188, 2012.
- [3] Konstantin Borozdin, Steven Greene, Zarija Lukić, Edward Milner, Haruo Miyadera, Christopher Morris, and John Perry. Cosmic ray radiography of the damaged cores of the Fukushima reactors. *Physical review letters*, 109(15):152501, 2012.
- [4] Hirofumi Fujii, Kazuhiko Hara, Kohei Hayashi, Hidekazu Kakuno, Hideyo Kodama, Kanetada Nagamine, Kotaro Sato, Shin-Hong Kim, Atsuto Suzuki, Takayuki Sumiyoshi, Kazuki Takahashi, Fumihiko Takasaki, Shuji Tanaka, and Satoru Yamashita. Investigation of the Unit-1 nuclear reactor of Fukushima Daiichi by cosmic muon radiography. *Progress of Theoretical and Experimental Physics*, 2020(4), 2020.
- [5] Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH. *Tschernobyl, zehn Jahre danach: Der Unfall und die Sicherheit der RBMK-Anlagen*, volume 121 of *GRS*. GRS, Köln, 1996.
- [6] L. R. Anspaugh, R. J. Catlin, and M. Goldman. The global impact of the Chernobyl reactor accident. *Science (New York, N.Y.)*, 242(4885):1513–1519, 1988.
- [7] F. A. Tikhomirov and A. I. Shcheglov. Main investigation results on the forest radioecology in the Kyshtym and Chernobyl accident zones. *Science of The Total Environment*, 157:45–57, 1994.
- [8] Anna Burger and Irene Lichtscheidl. Stable and radioactive cesium: A review about distribution in the environment, uptake and translocation in plants, plant reactions and plants' potential for bioremediation. *The Science of the total environment*, 618:1459–1485, 2018.
- [9] National Council on Radiation Protection and Measurements. *Cesium-137 in the environment: radioecology and approaches to assessment and management: Recommendations of the National Council on Radiation Protection and Measurements*, volume 154 of *NCRP report*. NCRP, Bethesda, Md, 2007.

- [10] Valerii Kashparov, Brit Salbu, Sviatoslav Levchuk, Valentyn Protsak, Igor Maloshtan, Caroline Simonucci, Christelle Courbet, Huong Lien Nguyen, Natalia Sanzharova, and Vladislav Zabrotsky. Environmental behaviour of radioactive particles from chernobyl. *Journal of environmental radioactivity*, 208-209:106025, 2019.
- [11] V.A Kashparov, S.M Lundin, S.I Zvarych, V.I Yoshchenko, S.E Levchuk, Y.V Khomutinin, I.M Maloshtan, and V.P Protsak. Territory contamination with the radionuclides representing the fuel component of Chernobyl fallout. *Science of The Total Environment*, 317(1-3):105–119, 2003.
- [12] M. W. Charles and J. D. Harrison. Hot particle dosimetry and radiobiology—past and present. *Journal of radiological protection : official journal of the Society for Radiological Protection*, 27(3A):A97–109, 2007.
- [13] Megan Cook, Barbara Etschmann, Rahul Ram, Konstantin Ignatyev, Gediminas Gervinskas, Steven D. Conradson, Susan Cumberland, Vanessa N. L. Wong, and Joel Brugger. The nature of Pu-bearing particles from the Maralinga nuclear testing site, Australia. *Scientific reports*, 11(1):10698, 2021.
- [14] Ian Byrnes, Ole Christian Lind, Elisabeth Lindbo Hansen, Koen Janssens, and Brit Salbu. Characterization of radioactive particles from the Dounreay nuclear reprocessing facility. *The Science of the total environment*, 727:138488, 2020.
- [15] Deborah H. Oughton and Valery Kashparov, editors. *Radioactive Particles in the Environment*. NATO Science for Peace and Security Series C: Environmental Security. Springer Netherlands, Dordrecht, 2009.
- [16] J. J. Bellucci, M. J. Whitehouse, M. Aleshin, and M. Eriksson. Simultaneous Pu and U Isotope Nuclear Forensics on an Environmentally Recovered Hot Particle. *Analytical chemistry*, 91(9):5599–5604, 2019.
- [17] Noriko Yamaguchi, Masanori Mitome, Akiyama-Hasegawa Kotone, Maki Asano, Kouji Adachi, and Toshihiro Kogure. Internal structure of cesium-bearing radioactive microparticles released from Fukushima nuclear power plant. *Scientific reports*, 6:20548, 2016.
- [18] Marco Kaltofen and Arnie Gundersen. Radioactively-hot particles detected in dusts and soils from Northern Japan by combination of gamma spectrometry, autoradiography, and SEM/EDS analysis and implications in radiation risk assessment. *The Science of the total environment*, 607-608:1065–1072, 2017.
- [19] Brit Salbu, Valery Kashparov, Ole Christian Lind, Rafael Garcia-Tenorio, Mathew P. Johansen, David P. Child, Per Roos, and Carlos Sancho. Challenges associated with the behaviour of radioactive particles in the environment. *Journal of environmental radioactivity*, 186:101–115, 2018.

- [20] M. W. Charles, A. J. Mill, and P. J. Darley. Carcinogenic risk of hot-particle exposures. *Journal of radiological protection : official journal of the Society for Radiological Protection*, 23(1):5–28, 2003.
- [21] Linda Hamann. *Untersuchung radioaktiver Partikel mittels Sekundärionen-Flugzeit-Massenspektrometrie*. Dissertation, Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover, Hannover, 2017.
- [22] Michael Franzmann. *A new tool for ultra-trace analysis of radionuclides: Setup, optimization and characterization of the resonant Laser-SNMS System for IRS Hannover*. Dissertation, Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover, Hannover, 2018.
- [23] Hauke Bosco. *Ortsaufgelöste Analyse von Aktiniden mittels resonanter ToF-Laser-SNMS*. Dissertation, Leibniz Universität Hannover, Hannover, 2020.
- [24] Martin Weiß. *Extraction and Analysis of Nuclear Fuel Fragments from the Chernobyl Exclusion Zone*. Dissertation, Leibniz Universität Hannover, Hannover, 2022.
- [25] Laura Leifermann. *Extraktion und Speziationsanalytik von Brennstoffpartikeln aus der Chernobyl Exclusion Zone*. Masterarbeit, Leibniz Universität Hannover, Hannover, 15.12.2020.
- [26] Paul Hanemann. *Herstellung und Charakterisierung partikelförmiger Isotopenstandards für die SIMS und SNMS*. Masterarbeit, Leibniz Universität Hannover, Hannover, 2022.
- [27] Laura Leifermann. *Lokalisierung und Vergleich uranhaltiger Partikel in Bodenproben*. Bachelorarbeit, Leibniz Universität Hannover, Hannover, 4.10.2018.
- [28] Marie Bullwinkel. *Ortsaufgelöste Massenspektrometrie auf nicht leitenden Umweltproben*. Bachelorarbeit, Leibniz Universität Hannover, Hannover, 2018.
- [29] Paul Hanemann. *Extraktion und Analyse uranhaltiger Partikel aus Bodenproben*. Bachelorarbeit, Leibniz Universität Hannover, Hannover, 31.1.2019.
- [30] Maximilian Heller. *Entwicklung und Test eines Anregungsschemas für Am zur Spurenanalyse an Brennstoffpartikeln*. Bachelorarbeit, Leibniz Universität Hannover, Hannover, 12.01.2020.
- [31] Theo Mayer-Kuckuk. *Atomphysik: Eine Einführung ; mit 7 Tabellen und 1 Spektraltafel*. Teubner-Studienbücher Physik. Teubner, Stuttgart, 5., durchges. und erw. aufl. edition, 1997.
- [32] Wolfgang Nolting. *Quantenmechanik - Methoden und Anwendungen*, volume 5,2 of *Springer-Lehrbuch*. Springer, Berlin, 7., aktualisierte aufl. edition, 2012.

- [33] Sabahat Bokhari, Adam Castaño, Ted Pozniakoff, Susan Deslisle, Farhana Latif, and Mathew S. Maurer. (99m)Tc-pyrophosphate scintigraphy for differentiating light-chain cardiac amyloidosis from the transthyretin-related familial and senile cardiac amyloidoses. *Circulation. Cardiovascular imaging*, 6(2):195–201, 2013.
- [34] Wolfgang Demtröder. *Kern-, Teilchen- und Astrophysik: Mit 62 Tabellen, zahlreichen durchgerechneten Beispielen und 104 Übungsaufgaben mit ausführlichen Lösungen*, volume Bd. 4 of *Springer-Lehrbuch*. Springer, Berlin and Heidelberg, 2., überarbeitete auflage edition, 2005.
- [35] OECD Nuclear Energy Agency. *Fuels and Materials for Transmutation: A Status Report*. SourceOECD. OECD, Paris, 2005.
- [36] G. Kepisty and J. Cetnar. On the discrepancies between FIMA and specific burnup. *Progress in Nuclear Energy*, 98:187–192, 2017.
- [37] J. Spino, J. Rest, W. Goll, and C. T. Walker. Matrix swelling rate and cavity volume balance of UO<sub>2</sub> fuels at high burn-up. *Journal of Nuclear Materials*, 346(2-3):131–144, 2005.
- [38] T. P. Makarova, B. A. Bibichev, and v. d. Domkin. Destructive analysis of the nuclide composition of spent fuel of WWER-440, WWER-1000, and RBMK-1000 reactors. *Radiochemistry*, 50(4):414–426, 2008.
- [39] R. Plukienė, A. Plukis, D. Germanas, and V. Remeikis. Numerical sensitivity study of irradiated nuclear fuel evolution in the RBMK reactor. *Lithuanian Journal of Physics*, 49(4):461–469, 2009.
- [40] V. P. Mironov, J. L. Matusevich, V. P. Kudrjashov, P. I. Ananich, V. V. Zhuravkov, S. F. Boulyga, and J. S. Becker. Determination of uranium concentration and burn-up of irradiated reactor fuel in contaminated areas in Belarus using uranium isotopic ratios in soil samples. *Radiochimica Acta*, 93(12):781–784, 2005.
- [41] M. Wallenius, P. Peerani, and L. Koch. Origin Determination of Plutonium Material in Nuclear Forensics. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry Articles*, 246(2):317–321, 2000.
- [42] I. Lantzou, Ch Kouvalaki, and G. Nicolaou. Plutonium fingerprinting in nuclear forensics of spent nuclear fuel. *Progress in Nuclear Energy*, 85:333–336, 2015.
- [43] T. Shinonaga, D. Donohue, A. Ciurapinski, and D. Klose. Age determination of single plutonium particles after chemical separation. *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*, 64(1):95–98, 2009.
- [44] Jürgen H. Gross. *Massenspektrometrie: Ein Lehrbuch*. Springer Spektrum, Berlin and Heidelberg, 2013.

- [45] E. Hrnccek, P. Steier, and A. Wallner. Determination of plutonium in environmental samples by AMS and alpha spectrometry. *Applied radiation and isotopes : including data, instrumentation and methods for use in agriculture, industry and medicine*, 63(5-6):633–638, 2005.
- [46] M.A.C. Hotchkis, D. P. Child, M. B. Froehlich, A. Wallner, K. Wilcken, and M. Williams. Actinides AMS on the VEGA accelerator. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 438:70–76, 2019.
- [47] M. Eriksson, J. Osán, J. Jernström, D. Wegrzynek, R. Simon, E. Chinea-Cano, A. Markowicz, S. Bamford, G. Tamborini, S. Török, G. Falkenberg, A. Alsecz, H. Dahlgaard, P. Wobrauschek, C. Strelis, N. Zoeger, and M. Betti. Source term identification of environmental radioactive Pu/U particles by their characterization with non-destructive spectrochemical analytical techniques. *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*, 60(4):455–469, 2005.
- [48] M. C. Jiménez-Ramos, S. Hurtado, E. Chamizo, R. García-Tenorio, L. León-Vintró, and P. I. Mitchell.  $(^{239}\text{Pu})$ ,  $(^{240}\text{Pu})$ , and  $(^{241}\text{Am})$  determination in hot particles by low level gamma-spectrometry. *Environmental science & technology*, 44(11):4247–4252, 2010.
- [49] V. Zheltonozhsky, K. Mück, and M. Bondarkov. Classification of hot particles from the Chernobyl accident and nuclear weapons detonations by non-destructive methods. *Journal of environmental radioactivity*, 57(2):151–166, 2001.
- [50] S. Salminen-Paatero, U. Nygren, and J. Paatero.  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  mass ratio in environmental samples in Finland. *Journal of environmental radioactivity*, 113:163–170, 2012.
- [51] Stefanie Konegger-Kappel and Thomas Prohaska. Spatially resolved analysis of plutonium isotopic signatures in environmental particle samples by laser ablation-MC-ICP-MS. *Analytical and bioanalytical chemistry*, 408(2):431–440, 2016.
- [52] Maria Betti, Gabriele Tamborini, and Lothar Koch. Use of Secondary Ion Mass Spectrometry in Nuclear Forensic Analysis for the Characterization of Plutonium and Highly Enriched Uranium Particles. *Analytical Chemistry*, 71(14):2616–2622, 1999.
- [53] Ruth S. Kips and Michael J. Kristo. Investigation of chemical changes in uranium oxyfluoride particles using secondary ion mass spectrometry. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 282(3):1031–1035, 2009.

- [54] Hannah E. Hocking, Larry W. Burggraf, Xiaofeng F. Duan, Joseph A. Gardella, Brett P. Yatzor, and Wesley A. Schuler. Composition of uranium oxide particles related to TOF-SIMS ion distributions. *Surface and Interface Analysis*, 45(1):545–548, 2013.
- [55] Clemens Walther. Actinide Nanoparticle Characterization by Mass Spectrometry. In Stepan N. Kalmykov and Melissa A. Denecke, editors, *Actinide Nanoparticle Research*, pages 137–160. Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg, 2011.
- [56] A. Benninghoven. Beobachtung von oberflächenreaktionen mit der statischen methode der sekundärionen-massenspektroskopie. I die methode. *Surface Science*, 28(2):541–562, 1971.
- [57] P. M. L. Hedberg, P. Peres, F. Fernandes, and L. Renaud. Multiple ion counting measurement strategies by SIMS – a case study from nuclear safeguards and forensics. *Journal of Analytical Atomic Spectrometry*, 30(12):2516–2524, 2015.
- [58] Deutsches Institut für Normung e.V. Grundlagen der Meßtechnik: Teil 3 - Auswertung von Messungen einer einzelnen Meßgröße Meßunsicherheit, Mai 1996.
- [59] JCGM. *Evaluation of measurement data: Guide to the expression of uncertainty in measurement*. Bureau International des Poids et Mesures, Frankreich, 2008.
- [60] J. Malvy McKibben. Chemistry of the Purex Process. *raet*, 36(1-2):3–16, 1984.
- [61] E.Philip Horwitz, Mark L. Dietz, Renato Chiarizia, Herbert Diamond, Sherrod L. Maxwell, and Matthew R. Nelson. Separation and preconcentration of actinides by extraction chromatography using a supported liquid anion exchanger: application to the characterization of high-level nuclear waste solutions. *Analytica Chimica Acta*, 310(1):63–78, 1995.
- [62] Silvia Diez-Fernández, Hélène Isnard, Anthony Nonell, Carole Bresson, and Frédéric Chartier. Radionuclide analysis using collision–reaction cell ICP-MS technology: a review. *Journal of Analytical Atomic Spectrometry*, 35(12):2793–2819, 2020.
- [63] A. Gourgiotis, M. Granet, H. Isnard, A. Nonell, C. Gautier, G. Stadelmann, M. Aubert, D. Durand, S. Legand, and F. Chartier. Simultaneous uranium/plutonium separation and direct isotope ratio measurements by using CO<sub>2</sub> as the gas in a collision/reaction cell based MC-ICPMS. *Journal of Analytical Atomic Spectrometry*, 25(12):1939, 2010.
- [64] D. Alamelu, P. S. Khodade, P. M. Shah, and S. K. Aggarwal. Investigations on atomic and oxide ion formation of plutonium and uranium in thermal ionization mass spectrometry (TIMS) for determination of <sup>238</sup>Pu. *International journal of mass spectrometry*, 239(1):51–56, 2004.

- [65] Wolfgang Demtröder. *Atome, Moleküle und Festkörper*, volume / Wolfgang Demtröder ; Bd. 3 of *Springer-Lehrbuch*. Springer, Berlin, 4., überarb. Aufl. edition, 2010.
- [66] S. Köhler, R. Deißberger, K. Eberhardt, N. Erdmann, G. Herrmann, G. Huber, J. V. Kratz, M. Nunnemann, G. Passler, P. M. Rao, J. Riegel, N. Trautmann, and K. Wendt. Determination of the first ionization potential of actinide elements by resonance ionization mass spectroscopy. *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*, 52(6):717–726, 1997.
- [67] S. Hayashi, Y. Hashiguchi, K. Suzuki, T. Ohtsubo, and B. J. McIntosh. Quantitative trace analysis by non-resonant laser post-ionization. *Surface and Interface Analysis*, 17(11):773–778, 1991.
- [68] M. Wahl, D. Koch, W. Berthold, and A. Wucher. Relative elemental sensitivity factors in non-resonant laser-SNMS. *Fresenius' Journal of Analytical Chemistry*, 353(3-4):354–359, 1995.
- [69] R. V. Ambartzumian and V. S. Letokhov. Selective Two-Step (STS) Photoionization of Atoms and Photodissociation of Molecules by Laser Radiation. *Applied optics*, 11(2):354–358, 1972.
- [70] Sebastian Raeder. *Spurenanalyse von Aktiniden in der Umwelt mittels Resonanzionisations-Massenspektrometrie*. Dissertation, Johannes Gutenberg-Universität, Mainz, 20.11.2010.
- [71] Hermann Haken and Hans Christoph Wolf. *Atom- und Quantenphysik: Einführung in die experimentellen und theoretischen Grundlagen : mit 32 Tabellen, 177 Aufgaben und vollständigen Lösungen*. Springer-Lehrbuch. Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg, achte, aktualisierte und erweiterte Auflage edition, 2004.
- [72] Thomas Stephan, Reto Trappitsch, Andrew M. Davis, Michael J. Pellin, Detlef Rost, Michael R. Savina, Reika Yokochi, and Nan Liu. CHILI – the Chicago Instrument for Laser Ionization – a new tool for isotope measurements in cosmochemistry. *International journal of mass spectrometry*, 407:1–15, 2016.
- [73] Daniela Schönenbach, Felix Berg, Markus Breckheimer, Daniel Hagenlocher, Pascal Schönberg, Raphael Haas, Samer Amayri, and Tobias Reich. Development, characterization, and first application of a resonant laser secondary neutral mass spectrometry setup for the research of plutonium in the context of long-term nuclear waste storage. *Analytical and bioanalytical chemistry*, 413(15):3987–3997, 2021.
- [74] Michael R. Savina, Brett H. Isselhardt, Andrew Kucher, Reto Trappitsch, Bruce V. King, David Ruddle, Raja Gopal, and Ian Hutcheon. High Useful Yield and Isotopic Analysis of Uranium by Resonance Ionization Mass Spectrometry. *Analytical chemistry*, 89(11):6224–6231, 2017.

- [75] Michael R. Savina, Brett H. Isselhardt, and Reto Trappitsch. Simultaneous Isotopic Analysis of U, Pu, and Am in Spent Nuclear Fuel by Resonance Ionization Mass Spectrometry. *Analytical Chemistry*, 93(27):9505–9512, 2021.
- [76] Tetsuo Sakamoto, Masato Morita, Keita Kanenari, Hideki Tomita, Volker Sonnenschein, Kosuke Saito, Masaya Ohashi, Kotaro Kato, Tetsuo Iguchi, Toshihide Kawai, Takeo Okumura, Yukihiro Satou, and Ikuo Wakaida. Isotope-selective Microscale Imaging of Radioactive Cs without Isobaric Interferences Using Sputtered Neutral Mass Spectrometry with Two-step Resonant Ionization Employing Newly-developed Ti:Sapphire Lasers. *Analytical sciences : the international journal of the Japan Society for Analytical Chemistry*, 34(11):1265–1270, 2018.
- [77] G. Vering, C. Crone, P. Kathers, J. Bijma, and H. F. Arlinghaus. Resonant laser-SNMS of boron for analysis of paleoceanographic samples. *Applied Surface Science*, 252(19):7163–7166, 2006.
- [78] Masato Morita, Hideki Tomita, Ryohei Ohtake, Keita Kanenari, Atsushi Nakamura, Kosuke Saito, Toshihide Kawai, Takeo Okumura, Volker Sonnenschein, and Tetsuo Sakamoto. Development of a micro imaging system for element-selective analysis by coupling of focused ion beam and resonance ionization mass spectrometry. *Progress in Nuclear Science and Technology*, 5(0):179–182, 2018.
- [79] N. Kubota and S. Hayashi. Application of resonant laser postionization SNMS for quantitative depth profiling in stainless steel with oxide film. *Applied Surface Science*, 255(4):1516–1518, 2008.
- [80] Michael Franzmann, Hauke Bosco, Clemens Walther, and Klaus Wendt. A new resonant Laser-SNMS system for environmental ultra-trace analysis: Installation and optimization: Installation and optimization. *International journal of mass spectrometry*, 423:27–32, 2017.
- [81] Michael Franzmann, Hauke Bosco, Linda Hamann, Clemens Walther, and Klaus Wendt. Resonant laser-SNMS for spatially resolved and element selective ultra-trace analysis of radionuclides. *Journal of Analytical Atomic Spectrometry*, 33(5):730–737, 2018.
- [82] Christian Rauth, Christopher Geppert, Roland Horn, Jens Lassen, Pierre Bricault, and Klaus Wendt. First laser ions at an off-line mass separator of the ISAC facility at TRIUMF. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 215(1-2):268–277, 2004.
- [83] Christopher Geppert, Pierre Bricault, Roland Horn, Jens Lassen, Christian Rauth, and Klaus Wendt. Resonance Ionization Laser Ion Source - Off-line tests at TRIUMF. *Nuclear Physics A*, 746:631–634, 2004.



- [84] J. Lassen, P. Bricault, M. Dombisky, J. P. Lavoie, Ch. Geppert, and K. Wendt. Resonant Ionization Laser Ion Source Project at TRIUMF. *Hyperfine Interactions*, 162(1-4):69–75, 2006.
- [85] Sebastian Rothe. *An all-solid state laser system for the laser ion source RILIS and in-source laser spectroscopy of astatine at ISOLDE/CERN*. Dissertation, Johannes Gutenberg-Universität, Mainz, 2012.
- [86] P. F. Moulton. Spectroscopic and laser characteristics of  $\text{Ti:Al}_2\text{O}_3$ . *Journal of the Optical Society of America B*, 3(1):125, 1986.
- [87] C. Mattolat, S. Rothe, F. Schwellnus, T. Gottwald, S. Raeder, K. Wendt, Tetuso Iguchi, and Kenichi Watanabe. An All-Solid-State High Repetition Rate Titanium:Sapphire Laser System For Resonance Ionization Laser Ion Sources. In *AIP Conference Proceedings*, pages 114–119. AIP, 6–10 October 2008.
- [88] Peter Moulton. Ti-doped sapphire: tunable solid-state laser. *Optics News*, 8(6):9, 1982.
- [89] Dieter Meschede. *Optik, Licht und Laser*. Vieweg+Teubner Verlag / GWV Fachverlage GmbH Wiesbaden, Wiesbaden, 3., durchgesehene auflage edition, 2008.
- [90] Chuangtian Chen, Bochang Wu, Aidong Jiang, and Guiming You. A New-Type Ultraviolet SHG Crystal -  $\beta\text{-BaB}_2\text{O}_4$ . *Science in China Series B-Chemistry, Biological, Agricultural, Medical & Earth Sciences*, 28(3):235–243, 1985.
- [91] A. Teigelhöfer, P. Bricault, O. Chachkova, M. Gillner, J. Lassen, J. P. Lavoie, R. Li, J. Meißner, W. Neu, and K. D. A. Wendt. Grating tuned Ti:Sa laser for in-source spectroscopy of Rydberg and autoionizing states. *Hyperfine Interactions*, 196(1-3):161–168, 2010.
- [92] Christoph Mattolat. *Spektroskopische Untersuchungen an Technetium und Silizium: Ein Festkörperlasersystem für die Resonanzionisationsspektroskopie*. Dissertation, Johannes Gutenberg-Universität, Mainz, 2010.
- [93] Ekbert Hering, Klaus Bressler, and Jürgen Gutekunst. *Elektronik für Ingenieure und Naturwissenschaftler*. Springer-Lehrbuch. Springer, Berlin and Heidelberg, 5., aktualisierte aufl. edition, 2005.
- [94] Karl J. Aström and Tore Hägglund. *PID controllers: Theory, design, and tuning*. Instrument Society of America, Research Triangle Park, NC, 2. ed. edition, 1995.
- [95] Nina Kneip, Christoph E. Düllmann, Vadim Gadelshin, Reinhard Heinke, Christoph Mokry, Sebastian Raeder, Jörg Runke, Dominik Studer, Norbert Trautmann, Felix Weber, and Klaus Wendt. Highly selective two-step laser ionization schemes for the analysis of actinide mixtures. *Hyperfine Interactions*, 241(1), 2020.

- [96] Ruohong Li, Jens Lassen, Sebastian Rothe, Andrea Teigelhöfer, and Maryam Mostamand. Continuously tunable pulsed Ti:Sa laser self-seeded by an extended grating cavity. *Optics express*, 25(2):1123–1130, 2017.
- [97] F. Schneider, K. Chrysalidis, H. Dorrer, Ch.E. Düllmann, K. Eberhardt, R. Haas, T. Kieck, C. Mokry, P. Naubereit, S. Schmidt, and K. Wendt. Resonance ionization of holmium for ion implantation in microcalorimeters. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 376:388–392, 2016.
- [98] C. C. Kiess, C. J. Humphreys, and D. D. Laun. Preliminary description and analysis of the first spectrum of uranium. *Journal of research of the National Bureau of Standards*, 37(1):57–72, 1946.
- [99] Jean Blaise and Leon J. Radziemski. Energy levels of neutral atomic uranium (U). *Journal of the Optical Society of America*, 66(7):644, 1976.
- [100] Michael R. Savina, Reto Trappitsch, Andrew Kucher, and Brett H. Isselhardt. New Resonance Ionization Mass Spectrometry Scheme for Improved Uranium Analysis. *Analytical Chemistry*, 90(17):10551–10558, 2018.
- [101] Reto Trappitsch, Michael R. Savina, and Brett H. Isselhardt. Resonance ionization of titanium: high useful yield and new autoionizing states. *Journal of Analytical Atomic Spectrometry*, 33(11):1962–1969, 2018.
- [102] Hauke Bosco, Martin Weiss, Manuel Raiwa, Clemens Walther, Nina Kneip, and Klaus Wendt. Influence of the hyperfine structure on plutonium in resonant laser-SNMS. *Hyperfine Interactions*, 241(1), 2020.
- [103] N. Alex Zirakparvar, Tyler L. Spano, Andrew Miskowiec, Julie B. Smith, Cole R. Hexel, Michael Ambrogio, and Roger Kapsimalis. Insights into secondary ion formation during dynamic SIMS analysis: Evidence from sputtering of laboratory synthesized uranium compounds with a high-energy  $O^-$  primary beam on a NanoSIMS 50L. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 502:164–175, 2021.
- [104] Robert G. Denning. Electronic structure and bonding in actinyl ions and their analogs. *The journal of physical chemistry. A*, 111(20):4125–4143, 2007.
- [105] Jean Blaise, Mark Fred, and Ralph G. Gutmacher. Term analysis of the spectrum of neutral plutonium, Pu i. *Journal of the Optical Society of America B*, 3(3):403, 1986.
- [106] Mark Fred and Frank S. Tomkins. Preliminary Term Analysis of Am i and Am ii Spectra\*. *Journal of the Optical Society of America*, 47(12):1076, 1957.

- [107] Arjan Koning, Robin Forrest, Mark Kellett, Robert Mills, Hans Henriksson, and Yolanda Rugama. Joint Evaluated Fission and Fusion File: The JEFF-3.1 Nuclear Data Library.
- [108] C. Mattolat, T. Gottwald, S. Raeder, S. Rothe, F. Schwellnus, K. Wendt, P. Thörle-Pospiech, and N. Trautmann. Determination of the first ionization potential of technetium. *Physical Review A*, 81(5), 2010.
- [109] Alexander Kramida and Yuri Ralchenko. NIST Atomic Spectra Database, NIST Standard Reference Database 78.
- [110] K. Wendt, C. Geppert, C. Mattolat, G. Passler, S. Raeder, F. Schwellnus, K. Wies, and N. Trautmann. Progress of ultra trace determination of technetium using laser resonance ionization mass spectrometry. *Analytical and bioanalytical chemistry*, 404(8):2173–2176, 2012.
- [111] Wolfgang Schulz. *Untersuchung des Migrationsverhaltens von Radionukliden in Umweltkompartimenten mit spektroskopischen und massenspektrometrischen Methoden*. Dissertation, Leibniz Universität Hannover, Hannover, 2020.
- [112] Eric Lindgren, Samuel Durbin, Jason Wilke, J. Margraf, and T. Dunn. Numerical Estimation of the Spent Fuel Ratio.
- [113] N. Ahamdach. The Chernobyl pilot site project: Isolation and microscopic characterisation of fuel particles: Isolation and microscopic characterisation of fuel particles. *Radioprotection*, 37(C1):C1–1055–C1–1060, 2002.
- [114] J. P. Icenhower, N. P. Qafoku, J. M. Zachara, and W. J. Martin. The biogeochemistry of technetium: A review of the behavior of an artificial element in the natural environment. *American Journal of Science*, 310(8):721–752, 2010.
- [115] Matthew Isaacs, Steve Lange, Guido Deissmann, Dirk Bosbach, Antoni E. Milodowski, and David Read. Retention of technetium-99 by grout and backfill cements: Implications for the safe disposal of radioactive waste. *Applied Geochemistry*, 116:104580, 2020.
- [116] A. V. Makarov, A. V. Safonov, Yu V. Konevnik, Yu A. Teterin, K. I. Maslakov, A. Yu Teterin, Ya Yu Karaseva, K. E. German, and E. V. Zakharova. Activated carbon additives for technetium immobilization in bentonite-based engineered barriers for radioactive waste repositories. *Journal of Hazardous Materials*, 401:123436, 2021.
- [117] Linus Holtmann. *Bestimmung endlagerrelevanter Radionuklide in Pflanzenteilen mittels ortsaufgelöster Massenspektrometrie*. Masterarbeit, Leibniz Universität Hannover, Hannover, 1.3.2021.
- [118] Marcus Mandel. *Untersuchung der Speziation und des Transferverhaltens von Tc-99 im System Boden - Pflanze zur Dosisabschätzung beim Anbau von Nutzpflanzen*. Dissertation, Leibniz Universität Hannover, Hannover, 2022.

- [119] Marcus Mandel, Linus Holtmann, Manuel Raiwa, Annika Wunnenberg-Gust, Beate Riebe, and Clemens Walther. Imaging of I, Re and Tc plant uptake on the single-cell scale using SIMS and rL-SNMS. *Journal of Hazardous Materials*, page 127143, 2021.
- [120] L. Desgranges, B. Pasquet, Ch. Valot, and I. Roure. SIMS characterisation of actinide isotopes in irradiated nuclear fuel. *Journal of Nuclear Materials*, 385(1):99–102, 2009.
- [121] Michael Savina and Reto Trappitsch. Resonance Ionization Mass Spectrometry (RIMS): Fundamentals and Applications Including Secondary Neutral Mass Spectrometry. In Ralf Zimmermann and Luke Hanley, editors, *Photoionization and Photo-Induced Processes in Mass Spectrometry*, pages 215–244. Wiley, 2021.
- [122] Polina Fraatz. *Quantitative massenspektrometrische Analyse von hot particles aus der CEZ*. Bachelorarbeit, Leibniz Universität Hannover, Hannover, 9.7.2021.
- [123] Valery Kashparov, Sviatoslav Levchuk, Marina Zhurba, Valentyn Protsak, Yuri Khomutinin, Nicholas Beresford, and Jacqueline Chaplow. Spatial datasets of radionuclide contamination in the Ukrainian Chernobyl Exclusion Zone.
- [124] v.d. Kuriny, Yu.A. Ivanov, V. A. Kashparov, N. A. Loshchilov, V. P. Protsak, E. B. Yudin, M. A. Zhurba, and A. E. Parshakov. Particle-associated Chernobyl fall-out in the local and intermediate zones. *Annals of Nuclear Energy*, 20(6):415–420, 1993.
- [125] C. Grüning, G. Huber, P. Klopp, J.V Kratz, P. Kunz, G. Passler, N. Trautmann, A. Waldek, and K. Wendt. Resonance ionization mass spectrometry for ultra-trace analysis of plutonium with a new solid state laser system. *International journal of mass spectrometry*, 235(2):171–178, 2004.
- [126] Hauke Bosco, Linda Hamann, Nina Kneip, Manuel Raiwa, Martin Weiss, Klaus Wendt, and Clemens Walther. New horizons in microparticle forensics: Actinide imaging and detection of  $^{238}\text{Pu}$  and  $^{242\text{m}}\text{Am}$  in hot particles. *Science Advances*, 7(44), 2021.
- [127] Manuel Raiwa, Sebastian Büchner, Nina Kneip, Martin Weiß, Paul Hanemann, Polina Fraatz, Maximilian Heller, Hauke Bosco, Felix Weber, Klaus Wendt, and Clemens Walther. Actinide imaging in environmental hot particles from Chernobyl by rapid spatially resolved resonant laser secondary neutral mass spectrometry. *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*, 190:106377, 2022.
- [128] A. Šmaižys, P. Poškas, E. Narkūnas, and G. Bartkus. Numerical modelling of radionuclide inventory for RBMK irradiated nuclear fuel. *Nuclear Engineering and Design*, 277:28–35, 2014.

- [129] Jerzy W. Mietelski and Bogdan Was. Americium, Curium and rare earths radionuclides in forest litter samples from Poland. *Applied radiation and isotopes : including data, instrumentation and methods for use in agriculture, industry and medicine*, 48(5):705–713, 1997.
- [130] Susanna Salminen, J. Paatero, T. Jaakkola, and Jukka Lehto. Americium and curium deposition in Finland from the Chernobyl accident. *ract*, 93(12):771–779, 2005.
- [131] E. Holm, P. Roos, A. Aarkrog, A. Mitchell, and L. L. Vintro. Curium isotopes in Chernobyl fallout. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 252(2):211–214, 2002.
- [132] Pavel Kalač. A review of edible mushroom radioactivity. *Food Chemistry*, 75(1):29–35, 2001.
- [133] Chikako Kuwahara, Atsushi Fukumoto, Ayako Ohson, Nobutaka Furuya, Hisashi Shibata, Hideo Sugiyama, and Fumio Kato. Accumulation of radiocesium in wild mushrooms collected from a Japanese forest and cesium uptake by microorganisms isolated from the mushroom-growing soils. *The Science of the total environment*, 345(1-3):165–173, 2005.
- [134] V. Kashparov, B. Salbu, C. Simonucci, S. Levchuk, E. Reinoso-Maset, O. C. Lind, I. Maloshtan, V. Protsak, C. Courbet, and H. Nguyen. Validation of a fuel particle dissolution model with samples from the Red Forest within the Chernobyl exclusion zone. *Journal of environmental radioactivity*, page 106387, 2020.
- [135] Irina Vlasova, Andrey Shiryaev, Boris Ogorodnikov, Boris Burakov, Ekaterina Dolgopolova, Roman Senin, Alexey Averin, Yan Zubavichus, and Stepan Kalmykov. Radioactivity distribution in fuel-containing materials (Chernobyl “lava”) and aerosols from the Chernobyl “Shelter”. *Radiation Measurements*, 83:20–25, 2015.
- [136] E. Piasecki, P. Jaracz, and S. Mirowski. Analysis of gamma-radioactivity of “hot particles” released after the Chernobyl accident. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry Articles*, 141(2):221–242, 1990.
- [137] B. E. Burakov, E. B. Anderson, B. Ya. Galkin, E. M. Pazukhin, and S. I. Shabalev. Study of Chernobyl "Hot" Particles and Fuel Containing Masses: Implications for Reconstructing the Initial Phase of the Accident. *ract*, 65(3):199–202, 1994.
- [138] V. Kashparov, V. Yoschenko, S. Levchuk, D. Bugai, N. van Meir, C. Simonucci, and A. Martin-Garin. Radionuclide migration in the experimental polygon of the Red Forest waste site in the Chernobyl zone – Part 1: Characterization of the waste trench, fuel particle transformation processes in soils, biogenic fluxes and effects on biota. *Applied Geochemistry*, 27(7):1348–1358, 2012.

*Literaturverzeichnis*

- [139] Agency for Toxic Substances and Disease Registry. Toxicological profile for Americium.

## Wissenschaftliche Veröffentlichungen

Orcid ID: [0000-0001-7260-942X](https://orcid.org/0000-0001-7260-942X)

- M. Raiwa, S. Büchner, N. Kneip, M. Weiß, P. Hanemann, P. Fraatz, M. Heller, H. Bosco, F. Weber, K. Wendt, and C. Walther. Actinide imaging in environmental Hot Particles from Chernobyl by rapid spatially resolved resonant laser secondary neutral mass spectrometry. *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*, 190:106377, **2022**.
- H. Bosco, L. Hamann, N. Kneip, M. Raiwa, M. Weiss, K. Wendt, and C. Walther. New horizons in microparticle forensics: Actinide imaging and detection of  $^{238}\text{Pu}$  and  $^{242\text{m}}\text{Am}$  in hot particles. *Science Advances*, 7(44), **2021**.
- M. Mandel, L. Holtmann, M. Raiwa, A. Wunnenberg-Gust, B. Riebe, and C. Walther. Imaging of I, Re and Tc plant uptake on the single-cell scale using SIMS and rL-SNMS. *Journal of Hazardous Materials*, page 127143, **2021**.
- A. Weller, T. Ramaker, F. Stäger, T. Blenke, M. Raiwa, I. Chyzhevskiy, S. Kirieiev, S. Dubchak, and G. Steinhauser. Detection of the Fission Product Palladium-107 in a Pond Sediment Sample from Chernobyl. *Environmental Science & Technology Letters*, 8(8):656–661, **2021**.
- H. Bosco, M. Weiss, M. Raiwa, C. Walther, N. Kneip, and K. Wendt. Influence of the hyperfine structure on plutonium in resonant laser-SNMS. *Hyperfine Interactions*, 241(1), **2020**.
- H. Lösch, M. Raiwa, N. Jordan, M. Steppert, R. Steudtner, T. Stumpf, and N. Huittinen. Temperature-dependent luminescence spectroscopic and mass spectrometric investigations of U(VI) complexation with aqueous silicates in the acidic pH-range. *Environment International*, 136:105425, **2020**.
- H. Brinkmann, M. Patzschke, P. Kaden, M. Raiwa, A. Rossberg, R. Kloditz, K. Heim, H. Moll, and T. Stumpf. Complex formation between  $\text{UO}_2^{2+}$  and  $\alpha$ -isosaccharinic acid: insights on a molecular level. *Dalton transactions (Cambridge, England:2003)*, 48(35):13440–13457, **2019**.
- E. Hoyer, J. Knöppel, M. Liebmann, M. Steppert, M. Raiwa, O. Herczynski, E. Hanspach, S. Zehner, M. Göttfert, S. Tsushima, K. Fahmy, and J. Oertel. Calcium binding to a disordered domain of a type III-secreted protein from a coral pathogen promotes secondary structure formation and catalytic activity. *Scientific reports*, 9(1):7115, **2019**.

## **Wissenschaftliche Beiträge**

**Konferenzvortrag** 2018 SIMS Europe, Münster, Deutschland - *Analysis of radionuclide containing particles from Chernobyl by resonant Laser-SNMS*

**Konferenzvortrag** 2018 ATAS, Nizza, Frankreich - *Analysis of radionuclide containing particles from Chernobyl by resonant Laser-SNMS*

**Posterpräsentation** 2019 PLATAN, Mainz, Deutschland - *Non-destructive isotope analysis of micrometer sized hot particles from the Chernobyl environment by rL-SNMS*

**Posterpräsentation** 2019 Migration, Kyoto, Japan - *Non-destructive isotope analysis of micrometer sized hot particles from the Chernobyl environment by rL-SNMS*



# Danksagung

Mein größter Dank für meine Zeit am IRS geht an **Sebastian Büchner**. Als Techniker des Instituts habe ich von dir die Dinge gelernt, die einem nicht in Vorlesungen beigebracht werden. Vom Ölwechsel der Vakuumpumpen bis hin zur Kaufberatung von Linearaktuatoren warst du eine unverzichtbare Hilfe bei den alltäglichen Problemen im Labor.

Bei **Prof. Clemens Walther** möchte ich mich für die Chance bedanken, meine Doktorarbeit am IRS zu schreiben und für das Vertrauen, welches du stets in meine Arbeit und Ideen hattest.

Ich möchte **Prof. Klaus Wendt** und **Prof. Uwe Morgner** danken, dass sie sich bereiterklärt haben die Rolle des Prüfers zu übernehmen.

Ein großer Dank geht an meine Mitstreiter des *SIRIUS* Projekts für die gute Zusammenarbeit. Insbesondere **Nina Kneip** für deine unverzichtbare Arbeit zu zweistufigen Anregungsschemata, **Hauke Bosco** für deine Einführung ins Arbeiten im Laserlabor und **Martin Weiß** für die Entwicklung der Probenpräparation, ohne die ich nicht eine Messreihen hätte durchführen können. Dank euch waren Dienstreisen und Projekttreffen nie langweilig und die Fahrten nach Mainz im klapperigsten Dienstfahrzeug Deutschlands immer mehr Abenteuer als dröge Pflicht.

Ich danke meinen Bachelor- und Masteranden **Marie Bullwinkel**, **Maximilian Heller**, **Polina Fraatz** und **Paul Hanemann** für ihr Interesse an dem Themengebiet der SIMS und SNMS. Ich hoffe ich konnte euch einen guten Einblick ins wissenschaftliche Arbeiten geben.

Meiner langjährigen Büropartnerin **Sandra Reinhard** danke ich fürs Korrekturlesen der Doktorarbeit und für die gemeinsamen Feierabendbiere. Sowohl bei guten als auch bei schlechten Labortagen.

Ein besonderer Dank geht an **Annika Wunnenberg**. Ohne dich wäre meine Zeit am Institut sicherlich effektiver, aber auch nur halb so schön gewesen. Bitte bleib genau so wie du bist.

Abschließend möchte ich meinen Eltern danken.  
Für alles.



# Eigenständigkeitserklärung

Hiermit versichere ich, dass ich die vorliegende Dissertation selbständig verfasst habe. Ich versichere, dass ich keine anderen als die angegebenen Quellen benutzt und alle wörtlich oder sinngemäß aus anderen Werken übernommenen Aussagen als solche gekennzeichnet habe, und dass die eingereichte Arbeit weder vollständig noch in wesentlichen Teilen Gegenstand eines anderen Prüfungsverfahrens gewesen ist.

Unterschrift 13. Juni 2022