



**Arbeitskreis „Analytik mit Radionukliden
und Hochleistungsstrahlenquellen (ARH)“**

ARH-Newsletter XXIII - 2019

Liebe Mitglieder des ARH,

ein reich gefülltes Jahr neigt sich seinem Ende zu. Davor wollen wir mit der XXIII. Ausgabe unseres Newsletters den Kontakt in unserem Arbeitskreis fördern und über neuere Entwicklungen sowie anstehende Tagungen berichten.

Wir vom Vorstand wünschen uns mehr Beiträge aus unserem Arbeitskreis, denn wir sind ja nicht die einzig Aktiven! Manchmal ist es schon schwierig Berichte über interessante Arbeiten und Themen zusammenzustellen.

Wir wünschen allen eine besinnliche Vorweihnachtszeit, frohe Weihnachten und Alles Gute für das Neue Jahr 2020!

Für den Vorstand

Ulrich W. Scherer

iii

Stark erweiterte Möglichkeiten zur Elementanalyse mit Neutronen am Heinz Maier-Leibnitz Zentrum (MLZ)

(Christian Stieghorst)

Für die Elementanalyse mit Neutronen bietet das Heinz Maier-Leibnitz Zentrum (MLZ) seinen Messgästen neuerdings ein stark erweitertes Repertoire von verschiedenen Methoden an. Zwei von der Technischen Universität München betriebene Instrumente sind bereits lange am MLZ etabliert – die Neutronenaktivierungsanalyse (NAA) und in Kooperation mit der Kernphysik der Universität zu Köln die Prompte-Gamma-Aktivierungsanalyse (PGAA). Neue Setups am PGAA-Instrument sind die Tiefenprofilanalyse, auch Neutron Depth Profiling (NDP) genannt, und das Prompt Gamma Activation Imaging + Neutronentomographie (PGAI-NT). In Entwicklung befindet sich das vom Jülich Centre for

Neutron Science (JCNS) betriebene Instrument Fast Neutron-induced Gamma Spectrometry (FaNGaS). Der nachfolgende Text bietet dem geneigten Leser einen kompakten Überblick über die aktuell am MLZ angebotenen Elementanalysemethoden.

NAA und PGAA nutzen jeweils durch Neutroneneinfang induzierte Gammastrahlung, welche für jedes Element spezifisch ist. Wie der Name bereits verrät, ist für die PGAA die prompte Gammastrahlung maßgeblich, die vom kurzlebigen Compound-Zustand (Zwischenkern) innerhalb von maximal 10-14 s abgegeben wird. Die Bestrahlung der Probe im kalten oder thermischen Neutronenstrahl und die Messung der resultierenden Strahlung müssen also gleichzeitig geschehen. Bei der NAA ist die Bestrahlung und Messung in der Regel räumlich und zeitlich getrennt. Die Bestrahlung kann an der Forschungs-Neutronenquelle Heinz Maier-Leibnitz (FRM II) mit hohem thermischen Neutronenfluss neben dem Reaktorkern (bis $1,3 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$) oder im kalten Neutronenstrahl des PGAA-Instruments als in-beam-NAA (äquivalent zu max. $6 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ thermischem Fluss) durchgeführt werden. Beide Methoden sind Multielementanalyseverfahren mit niedrigen Nachweisgrenzen – für einige Elemente bis in den ppbw-Bereich (PGAA) oder sogar in den ppqw-Bereich (NAA). Außerdem ermöglichen sie eine zerstörungsarme bis zerstörungsfreie Analyse, sind so gut wie nicht abhängig von der Probenmatrix und kommen quasi ohne Probenaufbereitung aus. Da keine chemische Aufbereitung notwendig ist, können damit auch ansonsten schwer aufzuschließende Verbindungen wie Carbide analysiert werden. Weil die Methoden teilweise komplementär sind – PGAA erreicht z.B. einige leichte Elemente besser, die NAA ist z.B. für Seltene Erden besonders empfindlich – kann eine Kombination die Anzahl an nachweisbaren Elementen in einer Probe erhöhen. Die maximale Probengröße für Standard-PGAA beträgt etwa $3 \times 2 \times 1 \text{ cm}^3$. Im modifizierten Setup sind wesentlich größere Proben (z.B. ein antikes Schwert, ein größeres Werkstück, ein Steinartefakt) analysierbar, von denen dann ein oder mehrere Teilbereiche bestrahlt und gemessen werden. Für die NAA sind die Abmessungen auf ca. 2 cm Durchmesser begrenzt.

Während NAA und PGAA die Methoden zur Analyse der Bulkkonzentrationen sind, erlaubt die PGAI-NT durch weitere Kollimation von Neutronenstrahl und resultierender Gammastrahlung eine räumliche Verteilung in Probenobjekten zerstörungsfrei zu erfassen. Damit lässt sich z.B. der Inhalt von archäologischen Objekten wie Amulettkapseln hinsichtlich Struktur und Elementgehalt untersuchen ohne es öffnen zu müssen. Dies ist insbesondere für Fundstücke interessant, die einen gewissen Grad an Korrosion aufweisen und eine mechanische Öffnung zu irreparablen Schäden führen würde. Die räumliche Auflösung der Elementverteilung liegt bei ca. 3 mm Kantenlänge, die Tomographie zur Strukturdarstellung erreicht etwa 80 µm. In einigen Fällen lassen sich die Informationen der Absorptionskoeffizienten aus der Tomographie und den Elementkonzentrationsdaten direkt miteinander verknüpfen, und somit die Auflösung der Elementverteilung ebenfalls in den sub-mm-Bereich bringen. Das PGAI-NT-Setup ist für kleinere Objekte bis etwa 7 cm Kantenlänge ausgelegt.

Mit der Tiefenprofilanalyse NDP lassen sich dünne oberflächennahe Schichten (max. Dicke ~50 µm, probenabhängig) untersuchen. Dies funktioniert mit Atomkernen, die nach einem Neutroneneinfang geladene Teilchen freisetzen. Die Größe des Energieverlusts dieser Partikel korreliert mit der durchflogenen Materie, sodass daraus unter bestimmten Voraussetzungen (z.B. bekannte Dichte) Informationen über die Schichttiefe gewonnen werden können. Je nach Probe können Auflösungen bis in den nm-Bereich erreicht werden. Das Verfahren ist für eine Handvoll Elemente bzw. Nuklide geeignet – am besten lassen sich Profile von Lithium und Bor erstellen. Die Methode findet ihre Hauptanwendung in der Erforschung von Akkumulatoren auf Lithium-Basis.

FaNGaS ist ein weltweit einmaliger Prototyp der auf der Induzierung prompter Gammastrahlung durch inelastische Streuung schneller Spaltneutronen basiert. Vorteile sind unter anderem, dass sich das Probenmaterial im Vergleich zu NAA und PGAA kaum aktiviert und sich Proben bis etwa 8 cm Kantenlänge analysieren lassen. Außerdem lassen sich problemlos Materialien untersuchen, die eine im Vergleich sehr hohes

Einfangsvermögen für kalte und thermische Neutronen aufweisen, wodurch unter anderem die Analyse mit PGAA und NAA erschwert werden würde. Mögliche zukünftige Anwendungen sind im Bereich des Recyclings sowie der Transmutationsforschung (Actinoide) zu finden.

Der Zugang zu Messzeit erfolgt über das Proposalsystem des MLZ. Neben der PGAA sind jetzt auch NAA, NDP sowie PGAI-NT erreichbar, FaNGaS sowie weitere Neuentwicklungen in naher Zukunft. Der Einfachheit halber erfolgt die Beantragung momentan noch über das PGAA-Instrument und wird dann je nach Fragestellung intern auf die verschiedenen Instrumente und Setups verteilt. Für wissenschaftliche Arbeiten sind Messzeiten immer kostenfrei, wenn der Messgast bereit ist seine Ergebnisse im Anschluss zu veröffentlichen. Nutzer aus der industriellen Forschung und Entwicklung können darüber hinaus Messzeit erwerben und von einer Publikation absehen. Nähere Informationen zu Messzeitanträgen sind unter <https://www.mlz-garching.de/deutsch/user-office> zu finden und zur Elementanalyse unter <https://www.mlz-garching.de/elementanalyse>. Am PGAA-Instrument sind außerdem weitere Setups für die Nutzung des kalten Neutronenstrahls geplant – eine Kombination von in-beam-NAA mit Liquid Scintillation Counting sowie eine zyklische in-beam-NAA – diese werden dann zu gegebener Zeit ebenfalls auf den genannten Seiten veröffentlicht.

iii

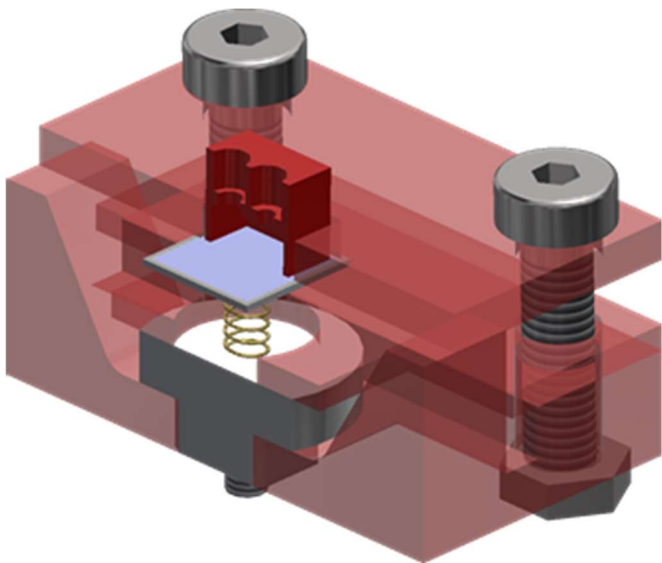
Neuartige Messmethode für Alphastrahler erlaubt die direkte Messung aus wässrigen Proben

(Ulrich W. Scherer)

Die Präparation von Alphastrahlern zur quantitativen Radioaktivitätsmessung erfordert neben langwierigen radiochemischen Anreicherungs- und Trennschritten noch die elektrochemische Deposition auf Messronden. Die Messungen erfolgt dann mit Siliziumdetektoren in Vakuumkammern. Hier gibt es eine interessante Neuentwicklung: Es ist gelungen, ultradünne Schichten von selektiv chemisch bindender funktionaler Gruppen auf Alphadetektoren zu

binden (1). Dadurch können Alphastrahler selektiv auf der Detektoroberfläche gebunden werden und die beim Zerfall abgestrahlten Alpha-Teilchen mit hoher Nachweiswahrscheinlichkeit erfasst werden. Die Messung lässt sich einerseits aus der Gasphase, aber auch direkt aus einer Lösung durchführen. Die spektrale Auflösung ist teilweise besser als bei herkömmlich präparierten Messproben. In einer Durchflusszelle (s. Abb) kann der Alphastrahler innerhalb weniger Minuten aus einer Lösung zur Messung an den Detektor gebunden werden. Dabei lassen sich mehrere Detektoren mit unterschiedlicher Selektivität in eine Messzelle einbauen.

Anwendungen dieser neuen Technologie sind in der Messung von Proben aus der Kerntechnik, natürlicher radioaktiver Stoffe (NORM), der radiopharmazeutischen Qualitätskontrolle alpha-strahlender Radiopharmaka sowie in der Erforschung der chemischen Eigenschaften der Transactiniden.



Schnittzeichnung einer Messzelle, die durch Lithographie 3D-Druck hergestellt wurde. Im Zentrum sieht man den modifizierten Alphadetektor-Chip mit dem zentralen Messkontakt. Darüber befinden sich Zu- und Abführung der Lösung in die Zelle.

- (1) D. Krupp, U. W. Scherer, Prototype development of ion exchanging alpha detectors. Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A 897, 120-128 (2018).

Externe Empfindlichkeiten und Nachweisgrenzen im Umweltmonitoring von Radionukliden

(Georg Steinhauser)

Im Umweltmonitoring erreichen nukleare Methoden unerreichte Empfindlichkeiten und Nachweisgrenzen. Seit dem Unfall von Tschernobyl wurde in Europa ein Netzwerk („Ring of Five“) aus Messstationen für atmosphärische Radionuklidfreisetzungen aufgebaut, das derzeit Nachweisgrenzen von 0,1 Mikrobecquerel pro m^3 Luft erreicht, was z.B. für Iod-131 der bemerkenswerten Stoffmenge von 1 Atom pro 10^3 Luft entspricht. Der Ring of Five spielte eine wesentliche Rolle bei der Verfolgung und Aufdeckung einer beträchtlichen Freisetzung von Ruthenium-106 ($T_{1/2} = 373$ Tage) im Herbst 2017. In einer Studie mit 70 Co-Autoren lieferten über 1200 Messwerte wichtige Hinweise auf die Quelle der bis heute nicht deklarierten Freisetzung (2). Sie dürfte im Südrural (in der russischen Wiederaufbereitungsanlage Majak) ihren Ursprung genommen haben. Die radioaktive Wolke zog von dort über das Schwarze Meer und vom Balkan ausgehend über ganz Mitteleuropa. Auch wenn die Aktivitätskonzentrationen in Europa keine gesundheitsschädlichen Levels erreichten, ist die Aufklärung der beträchtlichen Freisetzung dennoch wichtig für die nukleare Sicherheit in Europa.

- (2) O. Masson et al., Airborne concentrations and chemical considerations of radioactive ruthenium from an undeclared major nuclear release in 2017. Proc. Natl. Acad. Sci. USA 116, 16750-16759 (2019).

...im Dezember 2019

U.W. Scherer, F. Quinto, G. Steinhauser, R. Steudtner, Ch. Stieghorst.

Ausblick auf fachnahe Veranstaltungen:

11th International Meeting on Recent Developments in the Study of Radiation Effects in Matter, 15.-15.01.2020, Cozumel, Mexico.
<http://www.uknibc.co.uk/REM11/>

ACCAPP'20: 14th International Topical Meeting on Nuclear Applications of Accelerators
5. – 9. April, Wien, Österreich

IPAC'20 : 11th international particle Accelerator conference, 10. – 15. Mai 2020, Caen, Frankreich, <https://www.ipac20.org/>

9. RCA Workshop, Dresden-Rossendorf, 15. – 17.6. 2020. www.vkta.de

CAARI (SNEAP) - 26th Conference on Applications of Accelerators in Research and Industry & the 52nd Symposium of North Eastern Accelerator Personnel, 2. – 7. August 2020, Las Vegas, USA <https://caari-sneap.com/>

15th International Conference on Accelerator Mass Spectrometry AMS-15, John Niland Scientia Conference Centre, Sydney, Australien, 6. – 11.9.2020. www.ams15.sydney .

ICNMTA (Slovenia) – 17th International Conference on Nuclear Microprobe Technology and Applications, 13. -18.9.2020, Bled, Slowenien, <https://icnmta2020.org/en/>

Applied Nuclear Physics Conference 2020

Topic 1: Ion Beam Analytical Methods in Material Science

Topic 2: Ion and Neutron Beam Irradiation of Materials

13. -19. September 2020, Prag, Tschechische Republik, <https://www.anpc2020.cz/>

1st ENVIRA2020 Summer School,

It consists of plenary lectures delivered by prominent scientists and is organized in series of several courses on the following topics.

- Atmospheric Radioactivity
- Terrestrial and Marine Radioactivity
- Natural and Anthropogenic Radionuclides
- Transport of Radionuclides in the Environment
- Radionuclides as Tracers of Environmental Processes

- Modelling of Environmental Processes
- Radioecology and Dose Assessment
- Radionuclides in Climate Change Studies

Nea Epivates, Thessaloniki, Griechenland, 28.9. – 2.10.2020

<http://envira2020summerschool.physics.auth.gr/>

PIXE2021 and IBA2021 11. – 16. Juli 2021
IAEA Wien. <https://pixe2019.org/>