

# Ungeduldige Forscher träumen mit DREAMS

## Bestimmung langlebiger Radionuklide mit Beschleunigermassenspektrometrie



Das Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf hat sein Spektrum ionenanalytischer Verfahren um eine weitere hochsensitive Methode erweitert: die Beschleunigermassenspektrometrie (accelerator mass spectrometry = AMS). Die AMS ist prädestiniert zur Bestimmung langlebiger Radionuklide (Halbwertszeit  $\geq 100$  Jahre). Diese werden nicht, wie allgemein üblich, mittels Zerfallszählung detektiert. Vielmehr bestimmen die „ungeduldigen Forscher“ die noch nicht zerfallenen Nuklide wesentlich effizienter massenspektrometrisch.

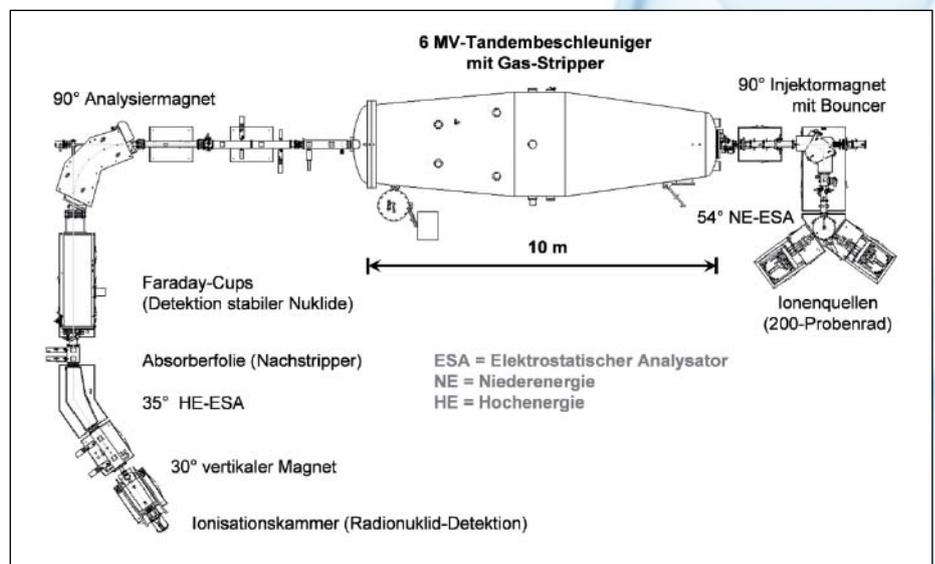


Abb. 1: Schematischer Aufbau von DREAMS.

### Beschleunigermassenspektrometrie mit DREAMS

Weltweit existieren nur etwa 80 AMS-Anlagen. Im Gegensatz zu den in Europa gängigen niederenergetischen AMS-Anlagen, die sich weitgehend auf die Bestimmung von Radiokohlenstoff <sup>14</sup>C (Halbwertszeit: 5730 Jahre) spezialisiert haben, wird die AMS-Anlage des HZDR – DREAMS (DREsden AMS) – als erste moderne Anlage in der EU mit einer Terminalspannung von 6 Millionen Volt betrieben [1]. DREAMS ist mit seinen ca. (15 x 25) m<sup>2</sup> großen Ausmaßen (Abb. 1) kein besonders kleines oder einfach zu bedienendes Massenspektrometer. Nur ein interdisziplinär arbeitendes Team von Physikern, Chemikern und Ingenieuren, gemeinsam mit Kollegen aus den angewandten Wissenschaften, produziert präzise und sinnvoll interpretierbare AMS-Daten.

Der große Vorteil der AMS gegenüber der konventionellen Massenspektrometrie (MS) ist die effiziente Unterdrückung von Störsignalen von Molekülionen und Isobaren. Dies liegt vor allen Dingen an der höheren Energie, auf die die Ionen

beschleunigt werden: MeV statt keV. Die AMS liefert somit weitaus niedrigere Nachweisgrenzen (ca.  $1 \times 10^6$  Atome oder  $10^{-8}$  Bq) als die MS. Auch gegenüber den Verfahren der klassischen Zerfallszählung ist die AMS bei Proben geringer (spezifischer) Aktivität wegen ihrer höheren Empfindlichkeit überlegen. Insbesondere wenn die zu bestimmenden Nuklide keine günstig zu detektierende Strahlung emittieren, z.B. reine  $\beta$ -Emitter wie <sup>10</sup>Be oder reine Elektroneneinfang-Nuklide wie <sup>53</sup>Mn sind, haben MS-Verfahren die Nase vorn. Zudem gilt, je langlebiger ein Radionuklid ist, desto günstiger sind MS-Verfahren gegenüber der Zerfallszählung. Demnach hat sich vor allen Dingen die AMS bei der Bestimmung besonders langlebiger Radionuklide (Abb. 2) wie der Aktinide Uran und Plutonium [2] durchgesetzt.

Eine instrumentelle Besonderheit von DREAMS ist die quasi-simultane Messung der stabilen und radioaktiven Isotope durch ein schnelles „Bouncing“-Magnetsystem auf der Niederenergieseite zur Erhöhung der Präzision. Zudem dient eine dünne Absorberfolie (Siliziumnitrid, Dicke 1  $\mu$ m) auf der Hochenergieseite



► (vlnr) Dr. Silke Merchel, Dr. Georg Rugel, Mag. Stefan Pavetich, Dr. Shavkat Akhmadaliev

zur weiteren Unterdrückung von Isobaren, d.h. <sup>10</sup>B bei <sup>10</sup>Be-Messungen bzw. <sup>36</sup>S bei <sup>36</sup>Cl-Messungen. Darüber hinaus wird für die eindeutige Identifikation des Radionuklids ein Gasionisationsdetektor mit vier Segmenten verwendet. Aufgrund dieser und anderer instrumenteller Weiterentwicklungen der AMS, sind nun Bestimmungen von Isotopenverhältnissen (radioaktiv/stabil) im Bereich von  $10^{-16}$  möglich [1,3]. Typische Messzeiten niedrigkonzentrierter Proben liegen im Bereich von einer Stunde.

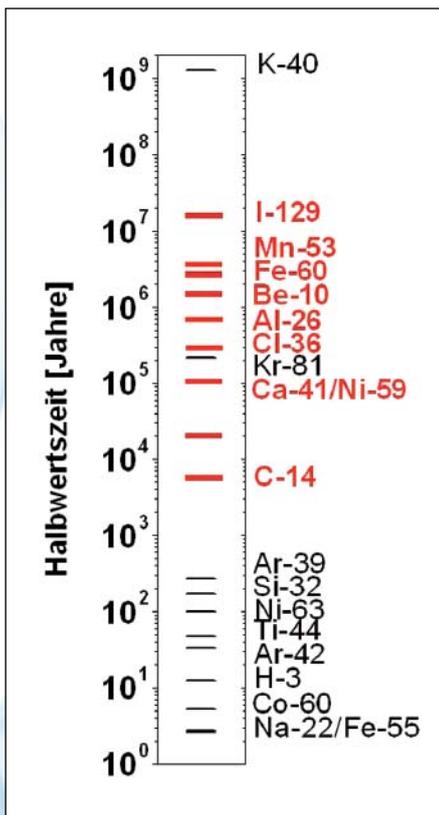


Abb. 2: Übersicht langlebiger Radionuklide mit Halbwertszeiten größer als 1 Jahr. Die rot markierten Nuklide werden routinemäßig mittels AMS bestimmt. Isotope von Uran (<sup>233,234,236</sup>U) und Plutonium (<sup>239,240,241,242,244</sup>Pu) sind nicht dargestellt.

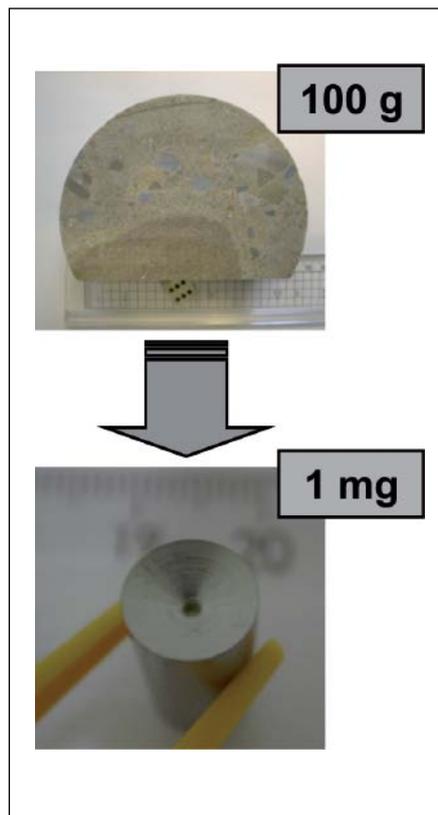


Abb. 3: Radionuklidanreicherung: Vom Bohrkern zur AMS-Probe.

### Nasschemische Probenvorbereitung

Neben einer „State-of-the-art“-AMS-Anlage, ist die Installation radiochemischer Probenpräparationslabore eine weitere zwingende Voraussetzung für ein erfolgreiches AMS-Labor. Die Durchführung der AMS zur Bestimmung langlebiger Radionuklide ist ausschließlich an chemisch vorpräparierten Proben möglich, da die Originalproben (Wasser, Gestein, etc.), die ausreichende Gesamtmengen des Radionuklides enthalten, zu groß (100 g – 10 kg) sind. Oder anders formuliert, die Radionuklidkonzentrationen von sub-ppq sind zu gering, um die Analyse typischer 1 mg-Targets zu ermöglichen. Eine Anreicherung um bis zu einen Faktor 10<sup>6</sup> ist somit erforderlich (Abb. 3). Zudem leistet die chemische Aufbereitung den essentiellen Schritt zur Isobarenunterdrückung und entfernt ggf. Kontaminationen anderen Ursprungs. So kann z.B. die Analyse des auf der Erde „in-situ“ gebildeten <sup>10</sup>Be in Quarzgestein nur erfolgen, nachdem die Proben von der um mehrere Größenordnungen höheren <sup>10</sup>Be-Komponente – aus der Produktion an den Gasen in der Erdatmosphäre – befreit worden sind.

### Applikationen

Anfänglich bevorzugt untersuchte Proben aus der Kosmochemie, der Astro- und Kernphysik werden zunehmend von Proben aus den Bereichen Strah-

lenschutz, Nuklearsicherheit, Nuklearentsorgung, Radioökologie, Phytologie, Ernährungswissenschaften, Toxikologie und Pharmakologie verdrängt. Das größte Interesse an AMS-Messungen kommt seit einigen Jahren aus den Geowissenschaften [5]. Dies spiegelt sich auch in den ersten an DREAMS durchgeführten Projekten wieder.

Kollegen der TU Bergakademie Freiberg, der Universität Rennes, der Universität Bayreuth, der Universität Newcastle und der Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe Hannover untersuchen z.B. <sup>10</sup>Be und <sup>26</sup>Al in quarzreichen Proben aus Flusssedimenten und Moränen (von Gletschern zurückgelassenes Material). Die kosmische Strahlung erreicht die Erde hauptsächlich als sekundär produzierte hochenergetische Neutronen und Myonen; und diese induzieren in (Oberflächen-)Material Kernreaktionen. Die Produkte dieser Reaktionen, z.B. <sup>10</sup>Be, archivieren zeitliche Informationen über die vergangenen geomorphologischen Vorgänge. Die so abgeleiteten Gletscherbewegungen und Erosionsraten lassen somit Rückschlüsse auf das Klima der letzten Tausend bis wenige Millionen Jahre zu. In Analogie können auch frische Oberflächen hervorgerufen durch Erdbeben, Vulkanausbrüche (Abb. 4), Bergstürze (Abb. 4), Meteoriteneinschläge oder Tsunamis datiert werden.

Eine Rekonstruktion des Klimas durch die Bestimmung von <sup>10</sup>Be, welches direkt in der Erdatmosphäre erzeugt und in Eisbohrkerne inkorporiert wurde ist ebenfalls möglich. Das Alfred-

Abb. 4: Mittels AMS datierbare geomorphologische Vorgänge: Gletscherbewegungen (links), Bergstürze (oben), Vulkanausbrüche (unten), durch Tsunami ausgelöste Bergstürze (rechts).



Wegener-Institut und die Universität Heidelberg untersuchen Proben aus der russischen Arktis an DREAMS.

Durch die Bestimmung mehrerer Nuklide, d.h. Radionuklide mit AMS an DREAMS und der TU München bzw. Edelgase mittels MS am MPI Mainz, kann die Bestrahlungsgeschichte von Meteoriten z. B. „Ksar Ghelane 002“ [6] und „Gebel Kamil“ [7] vollständig aufgeklärt werden.

### Teilen Sie mit uns auch Ihre Träume

Wie die oben angeführte Beispiele zeigen, steht DREAMS und seine Chemielaboratorien externen Nutzern, insbesondere denen von anderen Helmholtz-Zentren, außeruniversitären Forschungseinrichtungen und Universitäten, zur Verfügung. Interdisziplinäre Projekte aus allen Forschungsbereichen sind willkommen. Kommerzielle Proben aus Rückbau und Hydrogeologie werden das DREAMS-Profil abrunden.

### Danksagung

Der Erfolg eines Großgerätes steht und fällt mit dem Teamwork. Deshalb möchten wir uns bei der DREAMS-Operator-Crew, W. Möller (HZDR), R. Michel (U Hannover), den Kollegen der AMS-Anlagen in Wien (VERA) und Aix-en-Provence (ASTER) und all unseren bisherigen Nutzern für ihre Arbeit und ihr Vertrauen bedanken.

### Literatur

- [1] Akhmadaliev S. et al.: Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B, im Druck (2012)
- [2] Fifield L. K.: Quaternary Geochronology 3, 276–290 (2008)
- [3] Merchel S. et al.: Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B 266, 4921–4926 (2008)
- [4] Merchel S.; Herperts, U.: Radiochim. Acta 84, 215–219 (1999)

### Funktionsweise einer AMS-Anlage

Grundsätzlich besteht eine AMS-Anlage, also auch DREAMS, immer aus denselben Komponenten. In der Ionenquelle werden meist durch Beschuss mit Cs<sup>+</sup>-Ionen aus den festen Proben einfach negative Element- oder Molekülionen, z.B. BeO<sup>-</sup>, erzeugt und extrahiert. Störende Isobare, die keine stabilen negativen Ionen bilden können, z.B. das zum <sup>26</sup>Al<sup>-</sup> isobare <sup>26</sup>Mg<sup>-</sup>, werden in diesem Schritt schon weitestgehend unterdrückt. Mittels elektrostatischer und magnetischer Analysatoren werden die negativen Ionen mit der gewünschten Energie, Masse und Ladung ausgewählt und diese zu messenden Isotope (stabil – radioaktiv) in den Tandembeschleuniger eingeschossen. Die Ionen werden im Tandembeschleuniger zum positiv geladenen Hochspannungsterminal beschleunigt, wo sich ein „Stripper“ (Folie und/oder Gas) befindet. Damit werden nicht nur Hüllenelektronen entfernt, so dass eine Ladungsumkehr zu mehrfach positiven Ionen erfolgt, darüber hinaus brechen bei diesem Vorgang auch alle Molekülbindungen auf. Die nun positiv geladenen Atomionen (Be<sup>2+</sup>, Cl<sup>5+</sup>) werden zum

anderen, auf Erdpotential liegenden Ende des Tandems, beschleunigt. Der Ionenstrahl, der den Beschleuniger verlässt, besteht aus verschiedenen Ionensorten mit unterschiedlichen Ladungszuständen und Energien. Ein Analysiermagnet auf der Hochenergieseite separiert die Ionen nach ihrem Impuls zu Ladungsverhältnis, d.h. ihrer magnetischen Steifigkeit, und ist somit ein zweiter Massenseparator. Ein elektrostatischer Analysator, der die Ionen nach ihrem Energie- zu Ladungsverhältnis, d.h. ihrer elektrischen Steifigkeit, trennt, beseitigt die Ionen mit „falscher“ Energie. Beide Schritte dienen der weiteren Reduzierung des Untergrundes. Das Detektorsystem, in dem die Isotope identifiziert werden, ist den spezifischen Anforderungen angepasst. Meist werden Gasionisationsdetektoren für die Zählung der radioaktiven Isotope verwendet, wohingegen der makroskopische Strom der stabilen Isotope über sog. Faraday-Cups gemessen wird. Aus den Ergebnissen ergibt sich dann das für die Probe charakteristische Verhältnis von radioaktivem zu stabilem Isotop.



- [5] Gosse, J. C.; Phillips, F. M.: Quaternary Science Reviews 20, 1475–1560 (2001)
- [6] Llorca J. et al.: Meteorit. Planet. Sci., submitted
- [7] Folco L. et al.: Science 329, 804 (2010)

### Autoren

Dr. Silke Merchel, Dr. Shavkat Akhmadaliev, Mag. Stefan Pavetich, Dr. Georg Rugel



### Keywords:

AMS, Radionuklide

### KONTAKT

#### Kontakt

Dr. Silke Merchel  
Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf (HZDR)  
s.merchel@hzdr.de  
www.hzdr.de/ams