



## BACHELORARBEIT

---

Entwicklung und Test eines Anregungsschemas für Am zur  
Spurenanalyse an Brennstoffpartikeln

---

Maximilian Heller  
Matrikelnummer: 3229490  
12. Januar 2020

Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover  
Fakultät für Mathematik und Physik  
Institut für Radioökologie und Strahlenschutz

Prüfer: Prof. Dr. Clemens Walther

Betreuer: M.Sc. Manuel Raiwa, M.Sc. Hauke Bosco



# Eigenständigkeitserklärung

Erklärung über das selbstständige Verfassen von Maximilian Heller

Ich versichere hiermit, dass ich die vorstehende Bachelorarbeit selbstständig verfasst und keine anderen als die angegebenen Hilfsmittel benutzt habe. Die Stellen dieser Arbeit zum Thema „Entwicklung und Test eines Anregungsschemas für Am zur Spurenanalyse an Brennstoffpartikeln“, die anderen Werken dem Wortlaut oder dem Sinn nach entnommen wurden, habe ich in jedem einzelnen Fall durch die Angabe der Quelle bzw. der Herkunft, auch der benutzten Sekundärliteratur, als Entlehnung kenntlich gemacht.

Dies gilt auch für Zeichnungen, Skizzen, bildliche Darstellungen sowie für Quellen aus dem Internet und anderen elektronischen Text- und Datensammlungen und dergleichen. Die eingereichte Arbeit ist nicht anderweitig als Prüfungsleistung verwendet worden oder in deutscher oder in einer anderen Sprache als Veröffentlichung erschienen.

Mir ist bewusst, dass wahrheitswidrige Angaben als Täuschung behandelt werden.

Hannover, den 12. Januar 2020

---

(Maximilian Heller)



# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Theorie</b>	<b>3</b>
2.1	Wechselwirkung von Licht und Atomen . . . . .	3
2.2	Laser . . . . .	4
2.2.1	Der Titan:Saphir Laser . . . . .	5
2.3	Resonante Laserionisation . . . . .	7
2.3.1	Rydberg und Autoionisierender Zustand . . . . .	7
2.3.2	Sättigungsleistung und Resonanzfrequenz . . . . .	7
2.4	Flugzeit-Sekundärionenmassenspektrometrie . . . . .	9
2.4.1	Resonante Laserionisations-Sekundärneutralteilchenmassenspektrometrie	10
2.5	Brennstoffpartikel aus Tschernobyl . . . . .	10
2.5.1	Unfall in Tschernobyl . . . . .	10
2.5.2	Brennstoffpartikel . . . . .	11
2.6	Americium . . . . .	12
<b>3</b>	<b>Experimenteller Aufbau</b>	<b>15</b>
3.1	Lasersystem . . . . .	15
3.1.1	Anregungsschemata . . . . .	16
3.2	TOF-SIMS . . . . .	16
3.3	Kopplung von Lasern und TOF-SIMS . . . . .	17
<b>4</b>	<b>Ergebnisse</b>	<b>19</b>
4.1	Charakterisierung . . . . .	19
4.1.1	Sättigungsleistung . . . . .	19
4.1.2	Resonanzfrequenz . . . . .	20
4.2	Vergleich zwischen AI und Rydberg Anregungsschema . . . . .	24
4.3	Messung der Isotopenverhältnisse von Brennstoffpartikeln . . . . .	25
<b>5</b>	<b>Fazit und Ausblick</b>	<b>27</b>
<b>A</b>	<b>Anhang</b>	
A.1	Ungeeignetes dreistufiges Anregungsschema für Americium . . . . .	
A.2	Americiummesswerte der Brennstoffpartikel . . . . .	



# 1 Einleitung

Immer wieder gelangt durch unvorhergesehene Ereignisse radioaktives Material in die Umwelt. Um die daraus resultierenden Gefahren für Menschen und Umwelt abzuschätzen, ist es notwendig, genaue Informationen über die Menge, Aktivität und chemische Spezies des freigesetzten Materials zu sammeln. Außerdem ist Kenntnis über die Ausbreitung verschiedener Radionuklide in Böden und Gewässern nötig. Diese Freisetzungen bestehen, neben flüchtigen Radionukliden, auch aus Partikeln [Salbu, 2009]. Die Untersuchung dieser Partikel auf ihre isotopische Zusammensetzung lässt Rückschlüsse auf ihre Herkunft und damit auch auf mögliche Migrationspfade zu [Salbu and Kreckling, 1998, Kashparov et al., 2009]. Außerdem erlaubt die Ultrapurenanalyse die Bestimmung einiger Isotope, deren Aktivität direkt gemessen werden kann. Ist die Aktivität eines Isotops bestimmbar, kann aus dem Isotopenverhältnis des Elements die absolute Aktivität aller anderen Isotope dieses Elements berechnet werden. Eine Methode zur Bestimmung von Isotopenverhältnissen ist die Sekundärionenmassenspektrometrie (SIMS). Ein gepulster Primärionenstrahl löst Atome aus der Probenoberfläche und die dabei entstehenden Sekundärionen werden massenpektrometrisch analysiert. SIMS benötigt im Gegensatz zu anderen Methoden, wie zum Beispiel die Massenspektrometrie mit induktiv gekoppeltem Plasma (ICP-MS) [Entwistle et al., 2003], kaum Vorbereitung und ist nahezu zerstörungsfrei. Allerdings ist die Trennung von Isobaren mit dieser Methode nur durch chemische Probenseparation oder genügend hohe Massenaufösung, die mit enormem technischem Aufwand verbunden ist, möglich. Wird die SIMS jedoch mit resonanter Laserionisation kombiniert, können Isotopenverhältnisse elementselektiv bestimmt werden. Der Nutzen dieser resonanten Laser-Sekundärneutralteilchenmassenspektrometrie (rL-SNMS) wurde bereits an Elementen mit isobaren Interferenzen wie Plutonium gezeigt [Bosco, 2016]. Das Ziel dieser Arbeit ist es, die Anwendung dieser Methode zur Bestimmung eines Americiumisotopenverhältnisses zu ermöglichen. Americium ist einer der wichtigsten Alphastrahler, der in Kernreaktoren durch Neutroneneinfang von Uran und Plutonium entsteht. Die massenspektrometrische Untersuchung von Americium ist anspruchsvoll und die etablierten Methoden beinhalten die Zerstörung der Probe [Aggarwal, 2018]. Um die relevanten Isotope  $^{241}\text{Am}$  und  $^{243}\text{Am}$  von ihren Isobaren  $^{241}\text{Pu}$  und  $^{243}\text{Cm}$  zu trennen, ist die Entwicklung eines angepassten Anregungsschemas nötig. Ein dreistufiges Schema wurde bereits getestet [Bosco, 2020]. Allerdings zeigte dies (Abb. 13) zu große Differenzen zwischen den Anregungsfrequenzen der Isotope  $^{241}\text{Am}$  und  $^{243}\text{Am}$ . Um ein geeigneteres Schema zu finden werden vielversprechende Übergänge charakterisiert, um die optimalen Einstellungen des verwendeten Lasersystems zu finden. Weiterhin werden die Anregungsschemata hinsichtlich ihrer Eigenschaften, Ionenausbeute und Selektivität, verglichen, um das geeignetste auszuwählen und an realen Brennstoffpartikeln aus Tschernobyl zu testen.





---

## 2 Theorie

In diesem Teil wird eine Einführung in die benutzte Methode rL-SMNS gegeben. Dazu werden zunächst die relevanten Wechselwirkungen zwischen Licht und Atomen und deren Anwendung in Form von Lasern und resonanter Laserionisation beschrieben. Es folgt eine Beschreibung des Aufbaus und der Funktion von rL-SMNS. Außerdem wird die Herkunft der Proben aus der Sperrzone Tschernobyl und die Bedeutung des untersuchten Elements Americium erläutert.

### 2.1 Wechselwirkung von Licht und Atomen

Elektronen sind quantenmechanische Teilchen, das heißt sie lassen sich durch eine Wellenfunktion  $\psi(r, t)$  mathematisch beschreiben. Für stationäre Probleme, wie ein an einen Atomkern gebundenes Elektron, gilt die zeitunabhängige Schrödingergleichung.

$$\frac{-\hbar^2}{2m}\Delta\psi(r) + E_{pot}(r)\psi(r) = E \cdot \psi(r) \quad (1)$$

Diese Gleichung lässt sich nur für Atome mit einem Elektron, wie H und  $\text{He}^+$  analytisch lösen. Die Lösung dieser Systeme zeigt aber Eigenschaften, die sich auf komplexere Systeme übertragen lassen. Das Elektron kann entweder gebunden mit  $E < 0$  oder ungebunden mit  $E > 0$  vorliegen. Die Energieeigenwerte der ungebundenen Elektronen sind kontinuierlich, d.h. das Elektron kann beliebige Energiezustände einnehmen. Ist das Elektron jedoch gebunden, kann es nur bestimmte Zustände oder Energieniveaus annehmen. In realen Atomen führen relativistische Effekte und der Spin, eine Eigenschaft aller Elementarteilchen, die die Schrödingergleichung nicht berücksichtigt zu einer Aufspaltung bzw. Entartung der Energieniveaus. Aufgrund der Abhängigkeit einiger dieser Effekte von Kernspin, Kernmasse, Kernvolumen und der Wechselwirkung von Elektronen untereinander und der Bedeutung des Coulomb-Potentials des Kerns für die Lösungen der Schrödingergleichung ist die Verteilung der Energieniveaus für jedes Isotop einzigartig. Die elektronischen Zustände eines Atoms können durch die Quantenzahlen  $n, l, m_l, m_s$  parametrisiert werden. Bei Atomen mit mehreren Elektronen wirkt das Pauli-Prinzip, welches besagt, dass die Zustände zweier Elektronen sich in mindestens einer Quantenzahl unterscheiden müssen. In Atomen im Grundzustand sind alle Elektronen unter Berücksichtigung des Pauli-Prinzips auf die niedrigsten Energieniveaus verteilt.

Unter Einfluss eines äußeren elektromagnetischen Feldes kann sich diese Verteilung ändern. Ein Atom kann nur mit einem Photon wechselwirken, dessen Energie

$$E_{photon} = \hbar\omega = \frac{hc}{\lambda} \quad (2)$$

genau der Differenz zweier Energieniveaus entspricht. Trifft ein Photon mit dieser Energie auf ein Atom, kann es absorbiert werden. Bei dieser (resonanten) Absorption geht ein Elektron in den energetisch höheren Zustand über, das Atom wird angeregt. Ein solcher Übergang ist nicht zwischen allen Energieniveaus gleich wahrscheinlich. Symmetriebedingungen und die

Erhaltung des Drehimpulses des Photons führen zu folgenden Auswahlregeln für erlaubte Übergänge. Für elektrische Dipolübergänge gelten die Regeln:

$$\Delta l = \pm 1; \quad \Delta m_l = 0, \pm 1; \quad \Delta j = 0, \pm 1; \quad j = 0 \not\rightarrow j = 0 \quad (3)$$

Die Übergangswahrscheinlichkeiten erlaubter Dipolübergänge sind mehrere Größenordnungen größer als die anderer Übergänge, wie z.B. elektrische Quadrupol- oder magnetische Dipolübergänge. Angeregte Atome können die aufgenommene Energie wieder in Form eines Photons emittieren. Dabei unterscheidet man die spontane und die stimulierte Emission. Zur spontanen Emission kommt es, da angeregte Zustände nicht stabil sind, das heißt, sie fallen mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit nach einer bestimmten Zeit wieder in den Grundzustand zurück. Bei stimulierter Emission löst ein, auf das Atom treffendes Photon, die Emission eines identischen Photons aus [Demtröder, 2016].

## 2.2 Laser

Der Laser ist eine Quelle intensiven kohärenten Lichts. Das Wort Laser ist ein Akronym für *Light Amplification by Stimulated Emission of Radiation*. Die drei Bestandteile eines Lasers sind die Pumpquelle, der Resonator und das Lasermedium (Abb. 1). Die Pumpe regt Atome des Lasermediums mit Photonen oder Stößen an. Die angeregten Zustände zerfallen und es findet spontane Emission statt. Die emittierten Photonen werden dann mit Hilfe des Resonators immer wieder durch das Lasermedium geführt. Trifft ein Photon auf ein angeregtes Atom des Lasermediums kommt es zur stimulierten Emission. Die emittierten Photonen lösen weitere stimulierte Emissionen aus. Es kommt zu einer exponentiellen Verstärkung des Lichtes, bis sich ein Gleichgewicht zwischen stimulierter Emission und Resonatorverlusten einstellt. Sind die Verluste von Beginn an größer als die Pumpleistung kann kein Laserbetrieb stattfinden, es gibt also eine Laserschwelle.

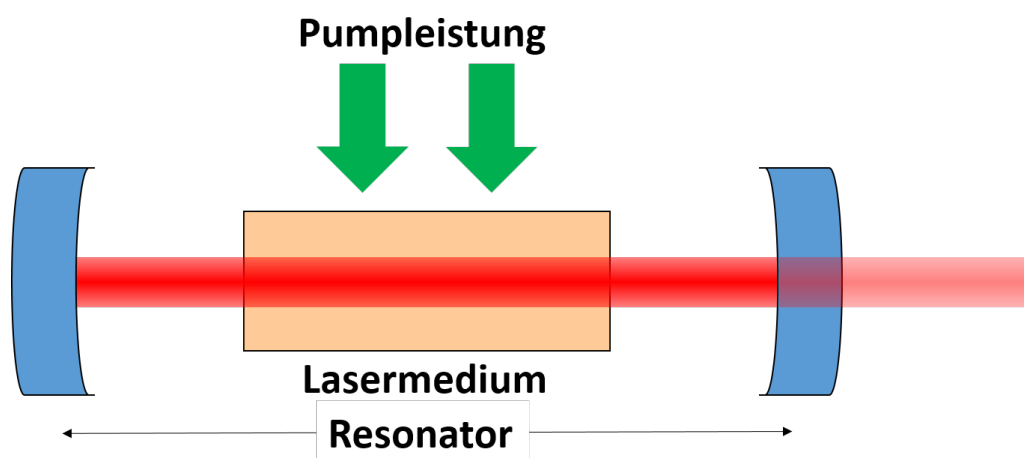


Abb. 1: Schematischer Aufbau eines Lasers

Diese Verluste haben viele Ursachen. Ein Teil des Lichtes geht durch die Auskopplung aus dem Resonator, ungewollt durch imperfekte Optiken und gewollt zur Nutzung des Lichts, verloren. Ein weiterer Teil des Lichts wird absorbiert. Trifft ein Photon auf ein Atom kann es nicht nur zur stimulierten Emission, sondern auch zum umgekehrten Effekt der stimulierten Absorption kommen. Damit mehr Photonen emittiert als absorbiert werden, müssen sich mehr Elektronen im angeregten als im abgeregten Zustand befinden. Befindet sich das System in einer solchen Konfiguration, spricht man von einer Besetzungsinversion. Der Übergang zwischen zwei Energieniveaus des Lasermediums  $|i\rangle$  und  $|k\rangle$  durch Absorption, stimulierte und spontane Emission können mit Hilfe einer Rategleichung beschrieben werden:

$$\frac{dN_i(t)}{dt} = \underbrace{-\rho(\nu)B_{ik}N_i}_{\text{Absorption}} + \underbrace{\rho(\nu)B_{ki}N_k}_{\text{stimulierte Emission}} + \underbrace{A_{ki}N_k}_{\text{spontane Emission}} \quad (4)$$

mit den Einsteinkoeffizienten  $A_{ik}$ ,  $B_{ik}$  und spektraler Energiedichte  $\rho(\nu)$

Daraus folgt, dass eine Besetzungsinversion nur in Systemen möglich ist, in denen sich Anregungsübergang und Emissionsübergang unterscheiden, es also mindestens drei beteiligte Niveaus existieren. Abhängig von der Wellenlänge führt auch destruktive Interferenz zu Verlusten. Destruktive Interferenzen entstehen, wenn die Resonatorlänge kein ganzes Vielfaches der Wellenlänge ist oder durch Bauteile wie ein Etalon, welche gezielt zum Filtern der Wellenlänge in dem Resonator platziert werden. Daraus folgt eine enorm hohe Laserschwelle für nahezu alle Wellenlängen, bis auf wenige Moden [Meschede, 2015].

### 2.2.1 Der Titan:Saphir Laser

Das Lasermedium des Titan:Saphir Lasers besteht aus einem Saphir-Kristall  $\text{Al}_2\text{O}_3$  in dem einige Aluminium- durch Titanionen ersetzt sind. Die Titanionen ermöglichen einen Laserbetrieb mit Vier-Niveau-System (Abb. 2). Der Vorteil gegenüber dem theoretischen Minimum eines Drei-Niveau-Systems ist, dass ab dem ersten angeregten Atom eine Besetzungsinversion besteht und es somit kaum Verluste durch stimulierte Absorption gibt.

Eine weitere nützliche Eigenschaft des Ti:Sa Lasers ist, dass die Atomzustände durch Kopplung an die Vibrationsmoden der Kristallstruktur starke Verbreiterungen aufweisen. Das führt zu einem Emissionsspektrum (Abbildung 3) von 670–1070 nm.

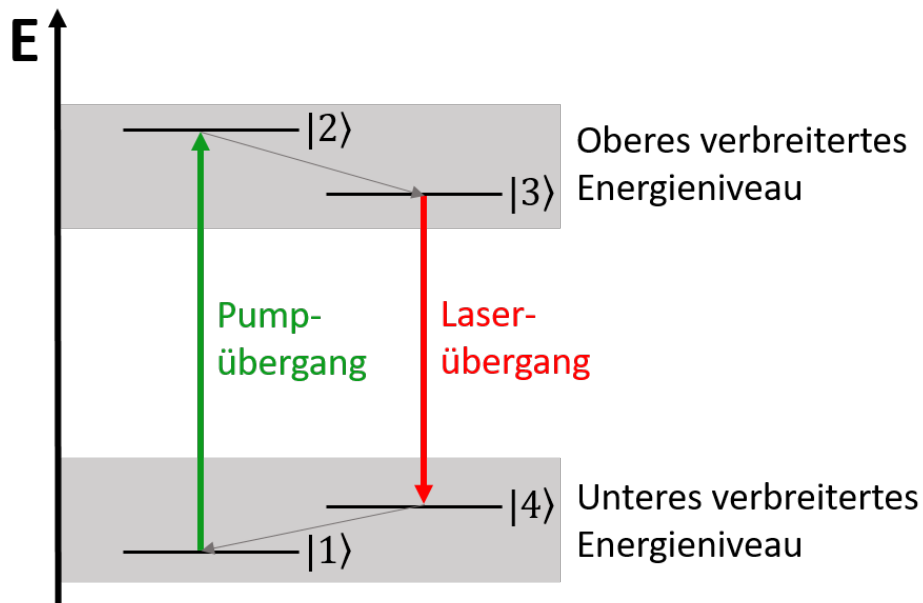
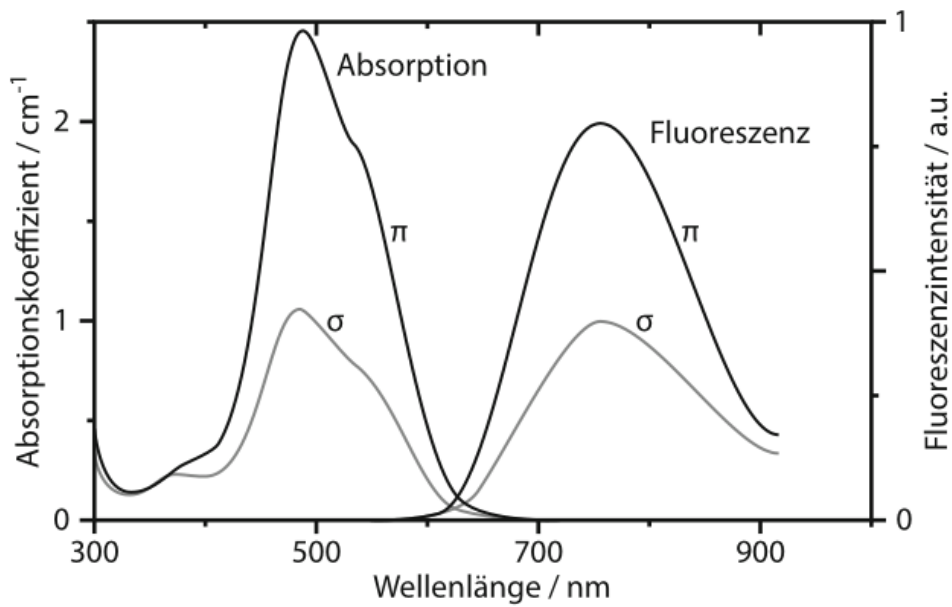


Abb. 2: Schematische Darstellung des Vier-Niveau-Systems des Ti:Sa Lasers

Abb. 3: Absorption und Emission eines Ti:Sa-Kristalls für parallel ( $\pi$ ) und senkrecht ( $\sigma$ ) polarisiertes Licht [Eichler and Eichler, 2015]

## 2.3 Resonante Laserionisation

Wird einem Atom durch Absorption von Photonen genug Energie zugeführt, kann ein Elektron von einem gebundenen in einen ungebundenen Zustand wechseln. Dieser Vorgang nennt sich Ionisation und die benötigte Energie Ionisierungsenergie oder Ionisationspotential(IP). Es wird hierbei zwischen resonanter und nicht resonanter Ionisation unterschieden. Im Falle der nicht resonanten Ionisation wird ein Elektron direkt von einem gebundenen in einen ungebundenen Zustand gehoben. Aufgrund der kontinuierlichen Energieverteilung der ungebundenen Zustände, muss das absorbierte Photon zwar genug, aber keine genau definierte Energie besitzen. Bei resonanter Ionisation erfolgt erst eine Anregung in einen gebundenen Zustand. Das kann über einen Rydberg oder einen autoionisierenden Zustand geschehen (vgl. 2.3.1). Aufgrund der einzigartigen Energieniveaus verschiedener Elemente, hat jedes Element charakteristische Übergänge. Da ein Laser, wie in 2.2 beschrieben, viele identische Photonen einer bestimmten Wellenlänge produziert, können durch ihn diese Übergänge gezielt angesprochen werden. Es ist also möglich, mit Hilfe eines Lasers selektiv bestimmte Elemente resonant zu ionisieren. Die Selektivität erhöht sich weiter, wenn die Ionisation nicht aus dem Grundzustand, sondern aus einem bereits angeregtem Zustand erfolgt. Bei einer solchen Anregung über mehrere Ionisationsschritte können Photonenenergien benutzt werden, die nicht ausreichen, um ein Atom jeglichen Elements im Grundzustand zu ionisieren, sodass die nicht resonante Ionisation minimiert wird.

### 2.3.1 Rydberg und Autoionisierender Zustand

Der Rydbergzustand, benannt nach dem Physiker Johannes Rydberg (1854-1919), bezeichnet einen Zustand besonders hoher Anregung, mit einem Elektron mit sehr hoher Hauptquantenzahl  $n$ . Das Elektron hat nur eine geringe Aufenthaltswahrscheinlichkeit in der Nähe des Kerns und eine Energie etwas unterhalb des IP. Dadurch kann ein Atom in diesem Zustand schon durch schwache elektrische Felder oder thermische Stöße ionisiert werden. Eine resonante Anregung in einen Rydberg Zustand führt häufig zur Ionisation des Atoms.

Eine weitere Möglichkeit resonant zu ionisieren, ist mittels eines Autoionisierenden Zustands(AI). Es ist möglich, ein Atom in einen Energiezustand anzuregen, der über dem Ionisationspotential liegt. Dabei wird entweder ein Elektron auf einem niedrigen Energieniveau oder mehrere Elektronen unabhängig von ihrem Energieniveau angeregt. Die angeregten Elektronen können ihre Energie an ein äußeres Elektron abgeben, dies führt zu einer Ionisation des Atoms. Ein Atom kann mittels Laserlicht resonant in AI Zustände angeregt werden, sodass die gesamte, zur Ionisation nötige Energie auf das Atom übertragen wird.

### 2.3.2 Sättigungsleistung und Resonanzfrequenz

Zur effektiven Laserionisation ist eine effiziente Energieabgabe an das zu ionisierende Medium wichtig. Mathematisch wird dies durch den frequenzabhängigen Absorptionskoeffizienten  $\alpha(\omega)$  beschrieben. Je schlechter das Verhältnis der Absorptionskoeffizienten für resonante und nicht resonante Anregung des gewünschten Elements bei verwendeter Leistung und Frequenz, desto

schlechter ist das Verhältnis von resonant und nicht resonant ionisierten Atomen. Die zu beachtenden Effekte sollen hier stellvertretend an einem Übergang zwischen zwei Niveaus  $|i\rangle$  und  $|k\rangle$  gezeigt werden. Der Absorptionskoeffizient eines solchen Übergangs für eine ebene Welle der Intensität  $I$  und der Frequenz  $\omega$  lautet:

$$\alpha(\omega) = \Delta N \cdot \sigma(\omega) \quad (5)$$

mit  $\sigma(\omega)$ : Absorptionsquerschnitt,  $\Delta N$ : Besetzungsdifferenz

Der Absorptionsquerschnitt eines Elements weist nahe einer Übergangsfrequenz ein Resonanzverhalten auf. Er kann deshalb lokal durch eine Lorentz-Kurve beschrieben werden:

$$\sigma(\omega) = \sigma_0 \frac{(\gamma/2)^2}{(\omega - \omega_0)^2 + (\gamma/2)^2} \quad (6)$$

mit  $\omega_0$ : Resonanzfrequenz,  $\sigma_0 = \sigma(\omega_0)$

Daraus folgt, dass die Laserfrequenz möglichst nahe an der Resonanzfrequenz des anzuregenden Übergangs liegen sollte. Bezüglich der Isotopenverhältnismessung ist dabei zu beachten, dass aufgrund der Kopplung von Kernspin und Drehimpuls des Elektrons eine Entartung, genannt Hyperfeinstruktur, entsteht. Diese Entartung unterscheidet sich bei verschiedenen Isotopen des selben Elements. Zudem gibt es weitere Unterschiede zwischen den Energieniveaus verschiedener Isotope. Bei leichten Elementen hat Kernmasse einen nicht vernachlässigbaren Einfluss auf die reduzierte Masse und damit auf die kinetische Energie des Elektrons. Bei schweren Elementen, wie z. B. Americium, führt hingegen der Unterschied des Kernvolumens zu einer Verschiebung der Energieniveaus. Ein höheres Kernvolumen bei gleicher Kernladung führt zu einer geringeren Ladungsdichte, also zu einer Veränderung des Kernpotentials. Diese Unterschiede kann eine Isotopenverhältnismessung verfälschen, da sich die Resonanzfrequenzen zwischen den Isotopen leicht verschieben (isotopic shift) [Mayer-Kuckuk, 1997].

Auch die Laserleistung ist wichtig, denn bei genügend hoher Leistung, wie sie mit einem Laser leicht realisierbar ist, ändert sich die Besetzungsdifferenz  $\Delta N$  und damit nach Gleichung 5 der Absorptionskoeffizient. Für die Besetzungsdifferenz im Gleichgewicht gilt:

$$\Delta N = \frac{\Delta N_0}{1 + \frac{2P}{R_i + R_k}} \quad (7)$$

$$P = \frac{\sigma(\omega)I(\omega)}{\hbar\omega} \text{ Pumprate} \quad (8)$$

$R_i$  und  $R_k$  Relaxionsraten für  $|i\rangle, |k\rangle$

Daraus folgt, dass die Besetzungsdifferenz mit steigender Intensität abnimmt. Die Auswirkungen auf den Absorptionskoeffizienten zeigen sich mit Einführung eines Sättigungsparameters  $S$ .

$$S(\omega) = \frac{2P}{R_1 + R_2} = S_0 \frac{(\gamma/2)^2}{(\omega - \omega_0)^2 + (\gamma/2)^2} \quad (9)$$

$$\Delta N = \frac{\Delta N_0}{1 + S} \Rightarrow \alpha_s = \frac{\alpha}{1 + S} \quad (10)$$

Die Leistungsabhängigkeit der Anregung zeigt ein Sättigungsverhalten. Außerdem muss für hohe Leistungen der Absorptionskoeffizient mit einem Sättigungsfaktor modifiziert werden, der wiederum vom Absorptionsquerschnitt abhängt und sich dadurch wieder durch eine Lorentz-Kurve beschreiben lässt.

$$\alpha_s(\omega) = \alpha_0(\omega_0) \frac{(\gamma_s/2)^2}{(\omega - \omega_0)^2 + (\gamma_s/2)^2} \quad (11)$$

mit  $\gamma_s = \gamma(1 + S_0)^{1/2}$

Der korrigierte Absorptionskoeffizient ist wieder eine Lorentz-Kurve, allerdings mit größerer Breite  $\gamma_s$ . Diese Sättigungsverbreiterung wirkt dem isotopic shift entgegen. Eine tiefere Beschreibung findet sich in der Fachliteratur [Demtröder, 2007, Demtröder, 2016]. Daraus folgt, dass für eine optimale Laserionisation eine Abwägung der Laserleistung getroffen werden muss. Ist die Laserleistung zu hoch, sinkt die Ionisationseffizienz und das Verhältnis zur nichtresonanten Ionisation wird schlechter. Da die nichtresonante Ionisation nicht Elementselektiv ist, verschlechtert sich das Signal-zu-Untergrund-Verhältnis bei der Messung. Ist die Leistung zu niedrig, kann durch unverbreiterte Absorptionslinien der isotopic shift das Isotopenverhältnis verfälschen.

## 2.4 Flugzeit-Sekundärionenmassenspektrometrie

Zum Nachweis von Radionukliden, die aufgrund von langer Halbwertszeit, nicht radiometrisch messbar sind, ist Massenspektrometrie nötig. Bei der Massenspektrometrie wird die Probe ionisiert und werden die Ionen nach Masse-zu-Ladung-Verhältnis separiert. In der Flugzeit Sekundärionenmassenspektrometrie (TOF-SIMS) geschieht die Ionisation durch einen fokussierten und gepulsten Primärionenstrahl. Beim Auftreffen des Strahls auf die Probe lösen sich Atome aus den obersten Atomlagen und gehen in die Gasphase über. Ein Teil der Atome wird dabei durch Stöße ionisiert. Diese sogenannten Sekundärionen lassen sich dann mit einem elektrischem Feldimpuls in einen Massenseparator leiten. Aufgrund der bereits gepulsten Ionisation der SIMS bietet sich die simple Flugzeit-Massenseparation (TOF-MS) an. Dabei durchfliegen die Ionen eine feldfreie Driftstrecke. Die Zeit, die die Ionen bis zum Detektor benötigen, lässt auf das Masse-zu-Ladung-Verhältnis schließen. [Gross and Beifuss, 2013]

Die Vorteile von TOF-SIMS gegenüber anderen massenspektrometrischen Verfahren sind die orts aufgelöste und minimalinvasive Analyse. Aus diesen Gründen eignet es sich für die Messung des, in dieser Arbeit untersuchten,  $^{243}\text{Am}/^{241}\text{Am}$  Isotopenverhältnisses von Brennstoffpartikeln. Aufgrund der geringen spezifischen Aktivität des  $^{243}\text{Am}$  ist es nicht radiometrisch messbar, sodass ein massenspektrometrisches Verfahren nötig ist. Die räumlichen Informationen der SIMS können Auskunft über die Struktur geben. Außerdem können die Partikel nach der Messung weiteren Messungen unterzogen werden.

### 2.4.1 Resonante Laserionisations-Sekundärneutralteilchenmassenspektrometrie

Die Massenauflösung von TOF-SIMS reicht nicht aus, die geringen Massenunterschiede zweier Isobare, also Atome mit gleicher Massenzahl, zu detektieren. Sie liefert keine Information über das chemische Element der Ionen. Das führt zu isobaren Interferenzen bei der Messung von Isotopenverhältnissen eines Elements, also zur Verfälschung der Messergebnisse durch Isotope verschiedener Elemente mit gleicher Masse. Um dieses Problem zu lösen, wird SIMS mit der resonanten Laserionisation kombiniert. Bei der rL-SNMS werden Atome eines bestimmten Elements aus der Teilchenwolke nach dem Sputterprozess, gezielt mit Hilfe eines Lasers, resonant ionisiert. Außerdem werden die entstehenden Sekundärionen unterdrückt. So gelangen fast nur Ionen des gesuchten Elements in den Massenseparator und es kommt nicht zu isobaren Interferenzen.

## 2.5 Brennstoffpartikel aus Tschernobyl

### 2.5.1 Unfall in Tschernobyl

Im Kernkraftwerk Tschernobyl in der heutigen Ukraine ereignete sich am 26. April 1986 ein schwerer Unfall, mit der bisher größten Freisetzung radioaktiven Materials. In Tschernobyl handelte es sich um einen RBMK-1000 Reaktor, einen graphitmoderierten Siedewasser-Druckröhrenreaktor. Diese Bauweise ermöglicht das flexible Erweitern des Reaktors um die Leistung zu steigern und den Austausch einzelner Brennstoffelemente während des laufenden Betriebs. Die Neutronenmoderation mittels Graphit ermöglicht die Verwendung von Uran mit einem Anreicherungsgrad von ein bis zwei Prozent als Brennstoff, sorgt aber für große Mengen brennbaren Materials im Reaktor. Eine weitere ausschlaggebende ungünstige Eigenschaft des Reaktors war der positive Dampfblasenkoeffizient, d.h. die Reaktivität des Reaktors steigt bei fehlendem oder verdampfendem Kühlwasser.

Der Unfall ereignete sich während eines Tests des Notstromsystems in dem die Hauptstromversorgung der Kühlmittelpumpen abgeschaltet wurde. Zur Vorbereitung auf den Test, wurde die Leistung des Reaktors am 25. April 1986 um 13:00 Uhr reduziert. Kurz darauf musste der Reaktor zur Stromproduktion wieder auf volle Leistung gefahren werden und das Experiment wurde auf 23:10 Uhr verschoben. Nach der erneuten Reduzierung der Leistung auf 720 MW fiel die Leistung durch eine Xenonvergiftung auf nur 30 MW ab [Grishanin, 2010]. Um die Leistung zu stabilisieren wurden Steuerstäbe aus dem Reaktor entfernt, bis sie um 01:00 Uhr 200 MW betrug. Um 01:23 Uhr wurde der Test durchgeführt, obwohl der Reaktor in einem instabilen Zustand war und die Leistung und die Anzahl der Steuerstäbe unterhalb des vorgeschriebenen Wertes lagen. Um den Test dennoch durchzuführen, musste das Team einige Sicherheitssysteme abschalten und Warnungen ignorieren. Durch die vorherige Variation der Reaktorleistung, war die Hitze inhomogen im Reaktor verteilt, was ca. 30 s nach dem Abschalten der Kühlmittelpumpen zur Bildung von Dampfblasen führte. Die darauf folgende plötzliche Leistungssteigerung löste eine heftige Dampfexplosion aus, die den Reaktor beschädigte und das Kühlsystem zerstörte. Die Temperatur des nun ungekühlten Brennstoffs stieg



immer weiter an, bis es zu einer Explosion kam, die das gesamte Reaktorgebäude zerstörte und Reaktortrümmer auf dem Kraftwerksgelände verteilte. Der geschmolzene Reaktorkern setzte den Graphitmoderator in Brand [Smith and Beresford, 2006]. Da die Kernreaktion weiter Hitze produzierte, konnte der Brand erst nach einigen Tagen und mit Hilfe von, aus Helikoptern abgeworfenen Reaktions- und Brand hemmenden Mitteln, gelöscht werden. Die Freisetzung von Radionukliden stoppte erst nach 10 Tagen.

Während der Explosion und dem folgenden Brand wurden sechs bis acht Tonnen radioaktives Material mit einer Aktivität von ca. 5300 PBq freigesetzt [UNSCEAR, 2000]. Das führte zu einer stark erhöhten Dosisleistung in der Umgebung. Bei der evakuierten Bevölkerung wurden effektive Dosen von 35-1600 mSv bei Kindern und 15-440 mSv bei Erwachsenen festgestellt [Pröhl et al., 2002]. Der größten Anteil geht auf die Radionuklide  $^{131}\text{I}$  und  $^{137}\text{Cs}$  zurück. Aufgrund der Strahlenbelastung wurden am 27. April 50.000 Bewohner der nahegelegenen Stadt Prypjat und bis September 1986 116.000 Menschen aus der Umgebung des Kraftwerkes evakuiert. 1996 wurde die chernobyl exclusion zone, eine 4300 km<sup>2</sup> große Sperrzone, eingerichtet. Der Großteil des freigesetzten Materials wurde innerhalb von 20 km um den Reaktor deponiert, aber flüchtige Radionuklide und radioaktive Aerosole breiteten sich durch den Wind in nordwestlicher Richtung über den europäischen Kontinent aus.

### 2.5.2 Brennstoffpartikel

Bei der Freisetzung radioaktiven Materials kommt es immer auch zur Freisetzung radioaktiver Partikel. Daraus resultiert eine inhomogene Verteilung von Radioisotopen. Die physikalisch-chemische Form dieser, in diesen Partikeln gebundenen, Radionuklide unterscheiden sich von gasförmigen oder in Lösung vorliegenden Spezies. Das Verhalten in der Umwelt und die damit einhergehende Gefahr dieser Radionuklide hängt von den Eigenschaften der Partikel ab. Also sind Informationen über chemische-, physische- und Transporteigenschaften der Partikel notwendig, für die Einschätzung der Gefahrenlage.

Aufgrund ihrer hohen spezifischen Aktivität besteht besondere Gefahr durch Inhalation und Ingestion. Eine Verwitterung der Partikel kann Radioisotope mobilisieren, was zu einer kurzfristigen Überschätzung und langfristigen Unterschätzung der Gefahr einer Freisetzung führen kann. Dabei hängt die Verwitterung von der Komposition und Struktur des Partikels und den lokalen chemischen Gegebenheiten ab. So wird zum Beispiel bei Brennstoffpartikeln aus Plutonium die inerte PuO<sub>2</sub> Matrix nicht vom Körper aufgenommen. Durch Verwitterung kann es allerdings zur Bildung von Pu(V) und Pu(VI) kommen, welches bei Ingestion in den Körper aufgenommen wird.

Als hot particles werden Gruppierungen radioaktiver Teilchen zwischen 0,45µm-2mm bezeichnet. Partikel aus Freisetzungen unter geringer Temperatur, z.B. durch den Brand im Windscale Reaktor 1957 unterscheiden sich in Struktur und Form von Partikeln aus Freisetzungen unter höherer Temperatur, z.B. in Tschernobyl 1986 [Salbu et al., 1994]. Nach dem Unfall in Tschernobyl wurden die gefundenen hot particles in drei Kategorien unterteilt: Monoelementare Partikel, Brennstoffpartikel und Kondensationspartikel [IAE, 2011]. Bei den in der vorliegenden Arbeit verwendeten Proben handelt es sich um Brennstoffpartikel. Sie entstan-

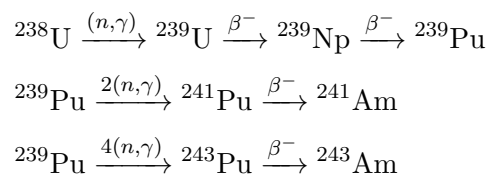
den durch die mechanische Zerstörung und das Schmelzen des Brennstoffes bei der Explosion. Diese Partikel bestehen aus Uran und enthalten nicht-flüchtige Spalt- und Aktivierungsprodukte.

Die in dieser Arbeit untersuchten Partikel sind mehrere Mikrometer groß und unregelmäßig geformt. Sie stammen aus Bodenproben aus Bereichen der Sperrzone Tschernobyl mit erhöhter Ortsdosisleistung. Die Partikel wurden mithilfe von alpha-Track- und energy dispersive X-ray analysis (EDX) identifiziert. Anschließend erfolgte die Extraktion mit Hilfe eines Mikromanipulators in einem Rasterelektronenmikroskop (REM) und die Befestigung auf Wolframnadeln zur einfachen Handhabung und Untersuchung mit der TOF-SIMS. Genauere Informationen und Abläufe finden sich in den Arbeiten [Leifermann, 2018, Hamann, 2017].

## 2.6 Americium

Americium ist ein Actinid mit der Ordnungszahl 95. Es ist auf der Erde ausschließlich anthropogenen Ursprungs und kommt in sehr geringen Konzentrationen im Boden und Gewässern durch den Fallout atmosphärischer Kernwaffentests vor. Nur in der Umgebung von Wiederaufbereitungsanlagen und Kernkraftwerken in denen ein Störfall vorgekommen ist, wie z.B. Tschernobyl, sind durch unbeabsichtigte Freisetzungen höhere Aktivitäten zu finden [Atwood, 2010].  $^{241}\text{Am}$  und  $^{243}\text{Am}$  sind Alphastrahler, mit einer kleinen Wahrscheinlichkeit auf Spontanspaltung. Aufgrund der hohen Ionisationsdichte der Alphastrahlung stellt die Inkorporation von Americium eine große Gefahr dar. Sie zerstört lebenswichtige Biomoleküle, sodass es zum Tod von Zellen und damit zu deterministischen Strahlenschäden kommen kann. Oder es entstehen Schädigungen des Erbgutes, die Krebs zur Folge haben können (stochastische Strahlenschäden). Dies kann zum Einen durch Inhalation kontaminierter Partikel und Stäube geschehen, zum Anderen wird Americium auch von Pflanzen aufgenommen und kann deshalb über die Nahrungsaufnahme in den Körper gelangen.

Americium entsteht bei der Kernspaltung von Uran oder Plutonium durch Neutroneneinfang und anschließendem  $\beta^-$ -Zerfall. Die beiden dadurch gebildeten Isotope sind  $^{241}\text{Am}$  und  $^{243}\text{Am}$ .



Der Großteil des  $^{241}\text{Am}$  entsteht erst nach der Entfernung aus dem Reaktor, weil sich Kernbrennstoff deutlich kürzer als die Halbwertszeit von  $^{241}\text{Pu}$  von 14,3 a im Reaktor befindet. Dabei hängt das Isotopenverhältnis vom Burnup ab, also von der Dauer und Intensität des auf den Brennstoff gewirkten Neutronenflusses. Da sich zuerst  $^{241}\text{Pu}$  bilden muss, gibt es bei geringem Burnup kaum  $^{243}\text{Am}$ . Steigt der Burnup, steigt auch die Menge an  $^{243}\text{Am}$  an. Zu einer Sättigung kommt es dabei aufgrund der langen Halbwertszeit einiger Plutonium Isotope im Reaktionsweg im Realfall nicht.

Durch die relativ lange Halbwertszeit von 432,2 a bei  $^{241}\text{Am}$  bzw. 7370 a bei  $^{243}\text{Am}$  ist es für ca. 1000 Jahre von großer Bedeutung für die Radiotoxizität von Kernbrennstoff, nachdem die im Verhältnis dazu kurzlebigen Spaltprodukte  $^{137}\text{Cs}$  und  $^{90}\text{Sr}$  mit ca. 30 Jahren Halbwertszeit abgeklungen sind.



---

## 3 Experimenteller Aufbau

Im Folgenden wird der experimentelle Aufbau beschrieben, wie er am Institut für Radioökologie und Strahlenschutz der Leibniz Universität Hannover installiert wurde.

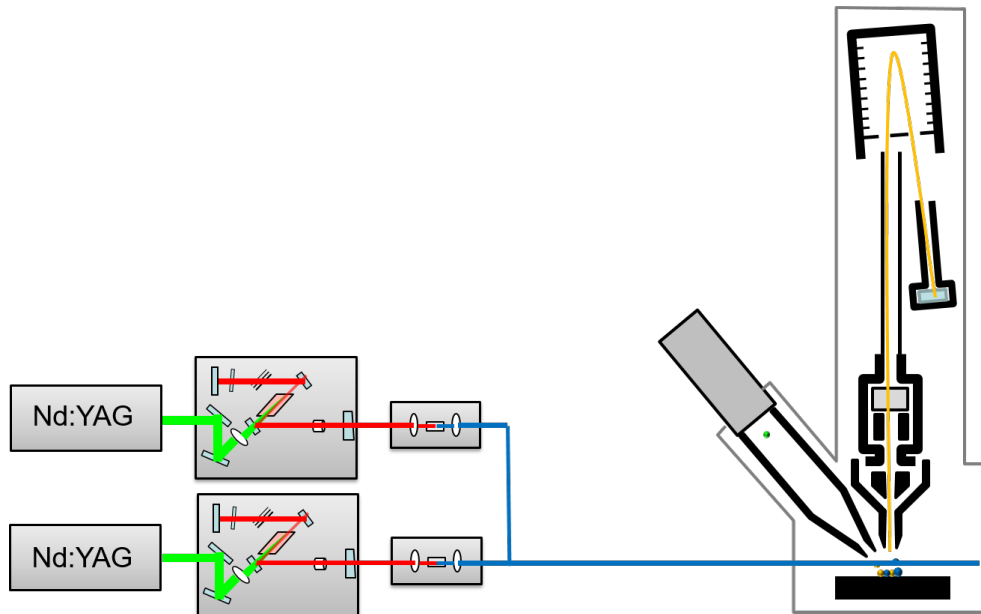


Abb. 4: Schematische Darstellung des Lasersystems und der TOF-SIMS

### 3.1 Lasersystem

Das Kernstück des Lasersystems sind drei speziell für die Anforderungen der rL-SNMS entwickelten Ti:Sa Laser (vgl. 2.2.1). Das breite Emissionsspektrum der mit Titan dotierten Saphir Kristalle von 670-1070 nm ermöglicht die Untersuchung verschiedener Elemente. Außerdem haben Kristalllaser einen vergleichsweise geringen Wartungsaufwand und sind einfach in der Bedienung.

Individuelle Pumpelaser ermöglichen eine präzise Kontrolle über das Timing der Laser. Benutzt wurden Nd:YAG-Laser von Photonics Industries mit einer Repititionsrate von 10 kHz, einer eingestellten Pumpleistung von 15 W und Wellenlänge von 532 nm. Der Resonator der Ti:Sa-Laser in Z-Form ermöglicht einen Wechsel der Spiegelsätze zur Anpassung an den jeweils benötigten Wellenlängenbereich. Zur feineren Frequenzselektion sind im Resonator ein Fabry-Perot-Etalon und ein Lyot-Filter mit Piezokristall zur aktiven Stabilisierung verbaut. Durch diese Elemente weist das Laserlicht eine spektrale Breite von ca. 5 GHz oder  $0,16 \text{ cm}^{-1}$  auf [Mattolat, 2010]. Ein kleiner Teil des Laserlichts wird kurz hinter dem Resonator mit einem Pickup abgegriffen, um den zeitlichen Intensitätsverlauf mit einem Oszilloskop PicoScope6403C und die Wellenlänge mit einem Wavemeter WS-6 von Highfinesse zu analysieren. Außerhalb des Resonators wird der Strahl mit einem Beta-Barium-Borat-Kristall frequenzverdoppelt. Der Schnitt des Ti:Sa Kristalls im Brewster Winkel sorgt für p-polarisiertes Licht und ermöglicht eine Abschwächung und Überlagerung der Laserstrahlen mittels Polarisationsoptik. Mit einem Teleskop und Spiegeln wird der Strahl über eine ca. 6m lange Strecke in die TOF-SIMS geleitet und fokussiert.

### 3.1.1 Anregungsschemata

Dieser Arbeit vorangegangen wurde Resonanzionisationsspektroskopie an Americium von Nina Kneip von der Johannes Gutenberg Universität Mainz durchgeführt. Es wurden zwei potentielle Anregungsschemata gefunden, das IP von Americium von ca. 5.97eV zu erreichen. Es handelt sich um zweistufige Anregung mit jeweils zwei blauen Photonen. Dadurch wird die Ionisation noch selektiver, da es unwahrscheinlich ist, dass beide Übergänge genau identisch zu einem anderem Element sind. Der erste Anregungsschritt ist identisch. Der zweite Schritt regt das Americium in einen Rydberg-Zustand in dem einen Schema und in einen AI-Zustand in dem anderen Schema an (Abb. 5). Da es sich um ein zweistufige Anregungsschemata handelt, wurden zwei der drei Laser benutzt, um je einen Anregungsschritt durchzuführen.

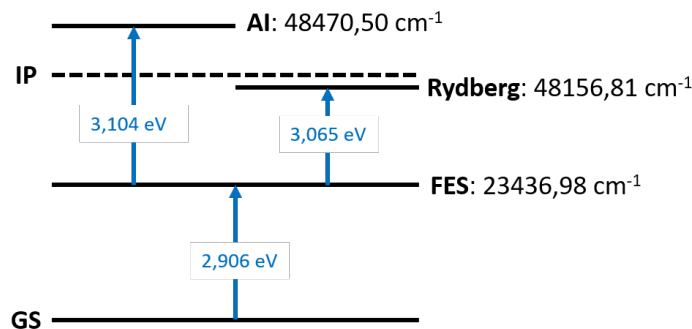


Abb. 5: AI- und Rydberg-Anregungsschema mit Wellenzahlen

## 3.2 TOF-SIMS

Benutzt wurde eine TOF-SIMS 5 von IONTOF. Die Erzeugung der Primärionen findet in der Flüssigmetallionenkanone (LMIG) statt. Eine Bismut Spitze wird verflüssigt und ein feiner Ionenstrahl durch elektrische Felder extrahiert. Der kontinuierliche Strahl wird durch weitere elektrische Felder und Blenden in Pakete aufgeteilt, abgeschwächt und auf die Probenoberfläche fokussiert und gerastert. Dadurch ist es möglich, ein Massenspektrum zu jeder Koordinate des Messfensters zu erhalten. Dabei können die Eigenschaften des Ionenstrahls für verschiedene Anwendungen optimiert werden. Im Imaging-Modus ist der Primärionenstrahl für eine möglichst hohe laterale Auflösung von bis zu 80nm optimiert, im Spectrometry-Modus für eine möglichst hohe Massenauflösung von ca  $m/\Delta m = 12.000$ . Um sicher die untersuchten Massen trennen zu können wurde im Spectrometry-Modus gearbeitet. Beim Auftreffen auf die Probe lösen sich Sekundärteilchen aus der Oberfläche. Die dabei entstehenden Sekundärionen bei SIMS oder die nachträglich ionisierten Sekundärneutralteilchen bei SNMS werden von einer kegelförmigen Extraktionselektrode in das TOF-MS geleitet und beschleunigt. Dort erfolgt die Massenseparation wie in 2.4 beschrieben. Um die Auflösung weiter zu verbessern und Unterschiede in der Startenergie auszugleichen, besitzt das TOF-MS ein Reflektron, ein der Flugrichtung entgegengesetztes elektrisches Feld, welches die Ionen zurück wirft. Ionen mit höherer Startenergie dringen dabei tiefer in das Reflektron ein, durchfliegen so einen weiteren Weg als Ionen der selben Masse mit geringerer Startenergie. Auf diese Art wird die Energiedispersion vermindert. Nach erfolgter Massenseparation werden die Ionen in den Detektor

geleitet. Der Detektor besteht aus einem Kanalelektronenvervielfacher, in dem jedes Ion einen verstärkten Elektronenimpuls auslöst. Dieser wird von einer Photodiode mit Szintillationskristall detektiert. Ein time-to-digital-Konverter wandelt die Impulse in digitale Signale, aus denen die Messsoftware Flugzeiten und damit das Masse-zu-Ladung-Verhältnis interpretiert [Franzmann, 2018].

Neben den zwei Hauptbestandteilen besitzt die TOF-SIMS weitere Funktionen. Die einzige für diese Arbeit verwendete Zusatzfunktion ist eine Argon-Gasclusterquelle (GCIB) zur Reinigung und Freisetzung der Probe. Dabei sputtern die, von der GCIB erzeugten, Argon-Cluster die Verunreinigungen auf der Oberfläche ab. Bei Transport durch die Raumluft und Extraktion lagern sich organische Moleküle und Kleber auf der Probe ab. Die Argoncluster lösen diese organischen Schichten sehr gut ab, allerdings werden Kristallstrukturen, wie der untersuchte Brennstoff, kaum angegriffen. Dadurch ist das Sputtern mit der GCIB schneller als mit der LMIG und führt aufgrund der geringen Eindringtiefe und der Verwendung des Edelgases Argon kaum zu Veränderungen innerhalb der Probe.

### 3.3 Kopplung von Lasern und TOF-SIMS

Die TOF-SIMS (s. 3.2) und das Lasersystem (s. 3.1) wurden kombiniert, um zusätzlich zu SIMS auch rL-SNMS Messungen durchführen zu können [Franzmann, 2018]. Die überlagerten Laser können bei Bedarf zugeschaltet werden. Der gesamte Pfad des Laserstrahls verläuft, zur erhöhten Lasersicherheit, durch Aluminiumrohre und Gehäuse. Um den Laser genau über den Probenhalter der TOF-SIMS positionieren zu können, wurde der letzte Spiegel des Laserpfades mit einem Piezo-Aktuator versehen. Neben der räumlichen Überlagerung der Laser und der Teilchenwolke ist auch die zeitliche Überlagerung wichtig. Der elektrische Impuls von der Steuereinheit der TOF-SIMS, der den Primärionenstrahl der LMIG auslöst, löst dazu ebenfalls die Laserpulse aus. Zudem wird der Extraktionspuls verzögert, sodass ein Zeitraum für die Interaktion zwischen Laser und Sekundärteilchen und der Unterdrückung der Sekundärionen entsteht (Abb. 6).

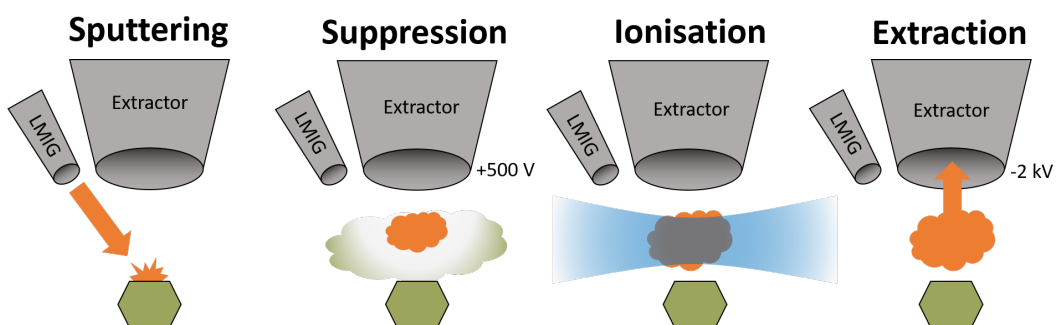


Abb. 6: Ablauf des rL-SNMS Vorgangs





---

## 4 Ergebnisse

### 4.1 Charakterisierung

Zur Charakterisierung der beiden untersuchten Anregungsschemata wurde die Sättigungsleistung und die Frequenzabhängigkeit der Resonanzionisation beider Schemata bestimmt. Es wurde ein großer Partikel  $9 \times 12 \mu\text{m}$  mit hohem Burnup benutzt. Dieser wurde im Unterschied zu den anderen Partikeln in Indium gepresst, sodass er aufgrund der erhöhten Leitfähigkeit besonders viel Signal liefert.

#### 4.1.1 Sättigungsleistung

Die resonante Laserionisation hängt wie in 2.3.2 beschrieben von der Lichtintensität ab. Die Lichtintensität in der Atomwolke in der TOF-SIMS hängt bei gegebener Laserleistung erheblich von dem Laserfokus und Strahlprofil ab. Deshalb muss die Sättigungsleistung speziell für den Aufbau am IRS ermittelt werden. Zur Bestimmung der Sättigungsleistung wurden die Laser auf die in 3.1.1 angenommenen Resonanzfrequenzen der Anregungsschemata gestellt. Die Laserleistung wurde stufenweise verstellt und jeweils nach 100 s Messdauer die Anzahl detektierter Am-241 und Am-243 Ionen gemessen (Abb. 7).

Im ersten Übergang in den *first excited state* (FES) war ein schneller Anstieg auf die Maximalzählrate schon bei wenigen Milliwatt zu sehen. Dann war die Sättigungsleistung erreicht und die Anzahl blieb annähernd konstant. Bei dem zweiten Übergang in den *second excited state* (SES) war auch ein Sättigungsverlauf erkennbar. Weiterhin war eine positive Steigung nach der Sättigung im Übergang in den AI Zustand zu beobachten.

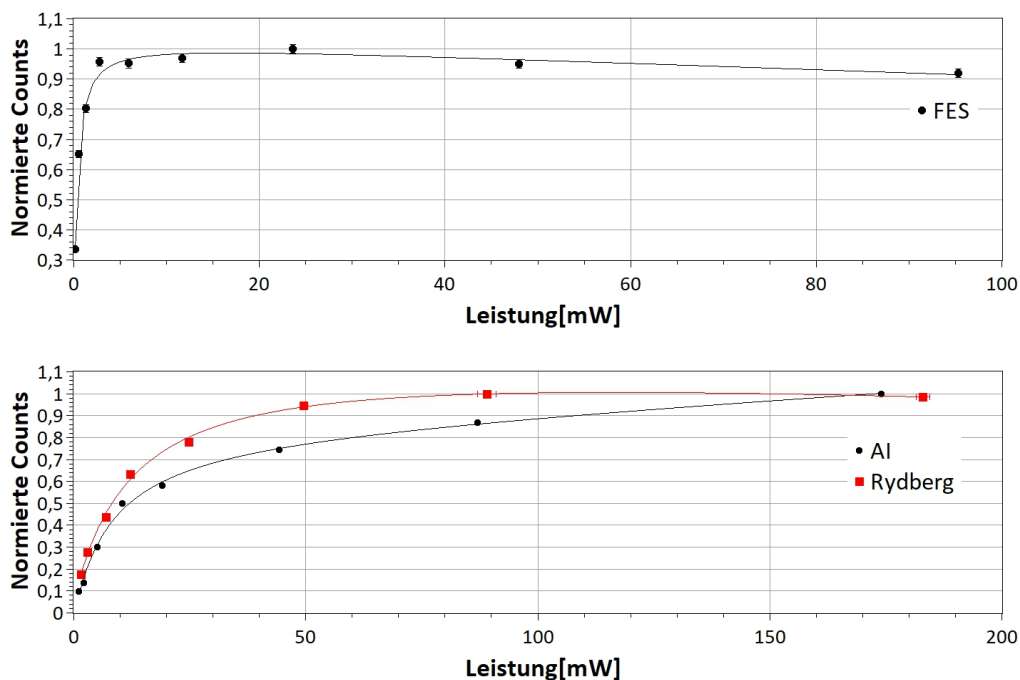


Abb. 7: Verlauf der Leistungsabhängigkeit des FES und SES

Die genauen Sättigungsleistungen  $P_s$  (Tab. 1) wurden mit Hilfe eines Fits bestimmt. Die Fitgleichung ist übernommen von Michael Franzmann und ist zusammengesetzt aus der linearen Abhängigkeit der nicht resonanten Ionisation und der gesättigten Abhängigkeit der resonanten Ionisation [Franzmann, 2018]:

$$I(P) = \underbrace{I_0 + m \cdot P}_{\text{linearer Anteil}} + \underbrace{\frac{A \cdot P/P_s}{1 + P/P_s}}_{\text{gesättigter Anteil}} \quad (12)$$

Tab. 1: Sättigungsleistungen für jeden Anregungsschritt der gestesteten Ionisationsschemata

Anregungsschritt	$^{241}\text{Am}$	$^{243}\text{Am}$	verwendete Werte
FES	$0,34 \pm 0,07 \text{ mW}$	$0,01 \pm 0,1 \text{ mW}$	5 mW
AI	$8,1 \pm 2 \text{ mW}$	$19 \pm 11 \text{ mW}$	30 mW
Rydberg	$13 \pm 2 \text{ mW}$	$43 \pm 63 \text{ mW}$	30 mW

Die errechneten Sättigungsleistungen für  $^{243}\text{Am}$  waren, aufgrund von hohen Unsicherheiten in Folge von zu geringen Counts, nicht aussagekräftig. Deshalb wurden nur die Sättigungsleistungen von  $^{241}\text{Am}$  bei der Entscheidung der Messparameter berücksichtigt. Die Sättigungsleistung des FES lag unter der Schwelle auf die sich die Laser abschwächen lassen. Die Abschwächung durch den verwendeten Polarisationsfilter ermöglicht nur bei sehr genauer Justage eine Abschwächung auf ein Minimum von ein bis zwei Milliwatt, also wurde die kleinste zuverlässig erreichbare Leistung von 5 mW für die weitere Verwendung ausgewählt. Auch bei der Anregung in den SES wurde eine Leistung, die über der Sättigungsleistung liegt, gewählt, obwohl es die Unterdrückung der nicht resonanten Isobaren verringert. Der Grund dafür ist, dass eine Sättigungsverbreiterung der Übergänge zum Ausgleich des isotopic shifts gewünscht ist und die fast doppelte Zählrate genauere Ergebnisse für das Isotopenverhältnis bei gleicher Messdauer liefert. In den nächsten Abschnitten zeigt sich, dass mit diesen Leistungen eine gleichberechtigte Laserionisation möglich ist und der nicht resonante Untergrund gering im Vergleich zu den statistischen Unsicherheiten ist.

#### 4.1.2 Resonanzfrequenz

Ein weiterer wichtiger Faktor für optimale Laserionisation ist die Laserwellenlänge. Zum Einen nimmt die Anregungswahrscheinlichkeit eines Atoms, auf welches ein Photon trifft, zu, je näher die Photonenfrequenz bei der jeweiligen Übergangsfrequenz liegt. Zum Anderen ist das Ausmaß des isotopic shifts relevant. In den Ergebnissen des früher getesteten dreistufigen Schemas (Abb. 8) zeigt sich insbesondere in den Übergängen SES und TES (*third excited state*) eine geringe bis keine Überlappung der Resonanzpeaks. Der isotopic shift ermöglicht also keine gleichberechtigte resonante Ionisation der Isotope  $^{241}\text{Am}$  und  $^{243}\text{Am}$ .

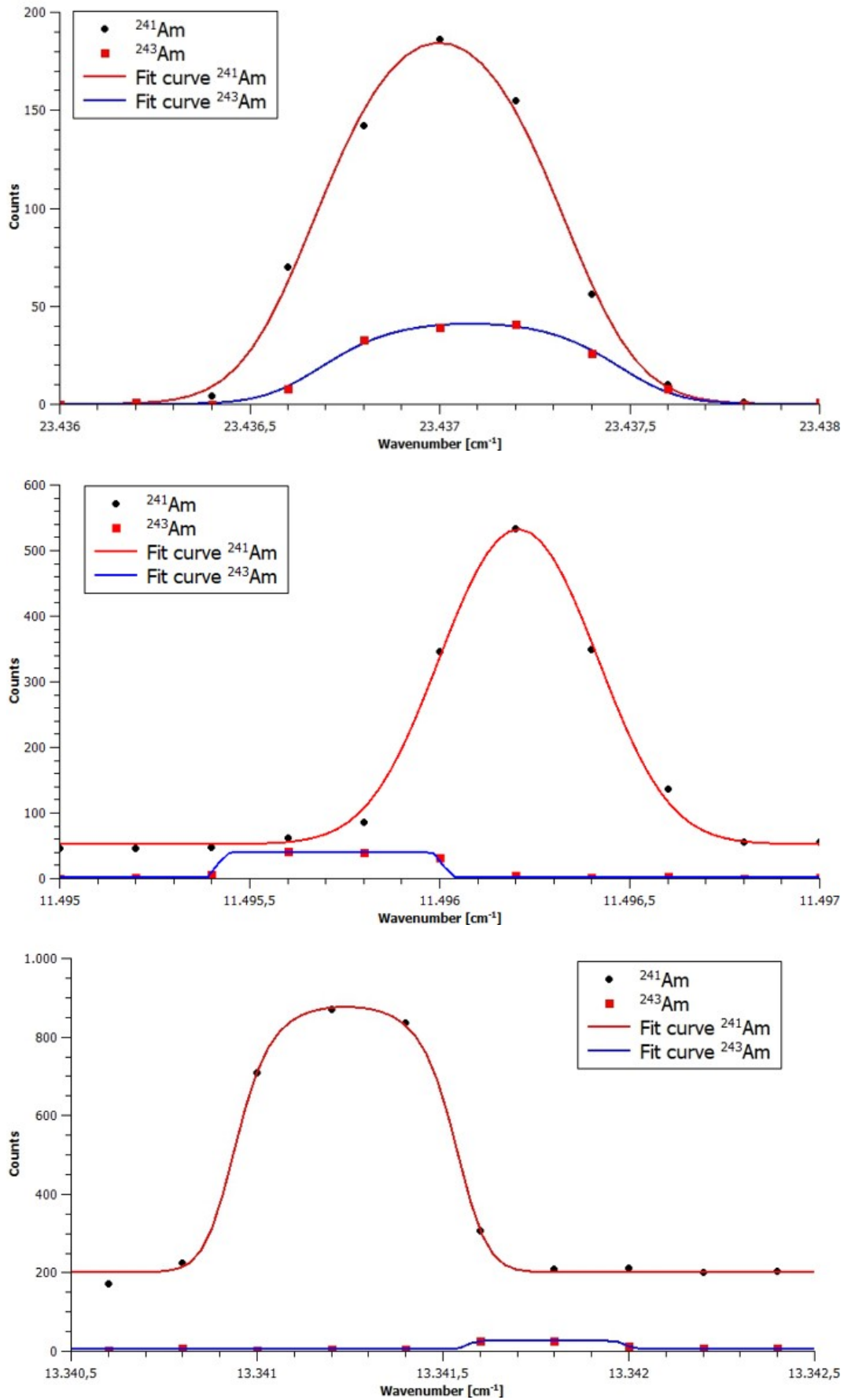


Abb. 8: Frequenzabhängigkeit der Zählrate der drei Übergänge FES, SES und TES (von oben nach unten) des früher getesteten dreistufigen Schemas [Bosco, 2020]

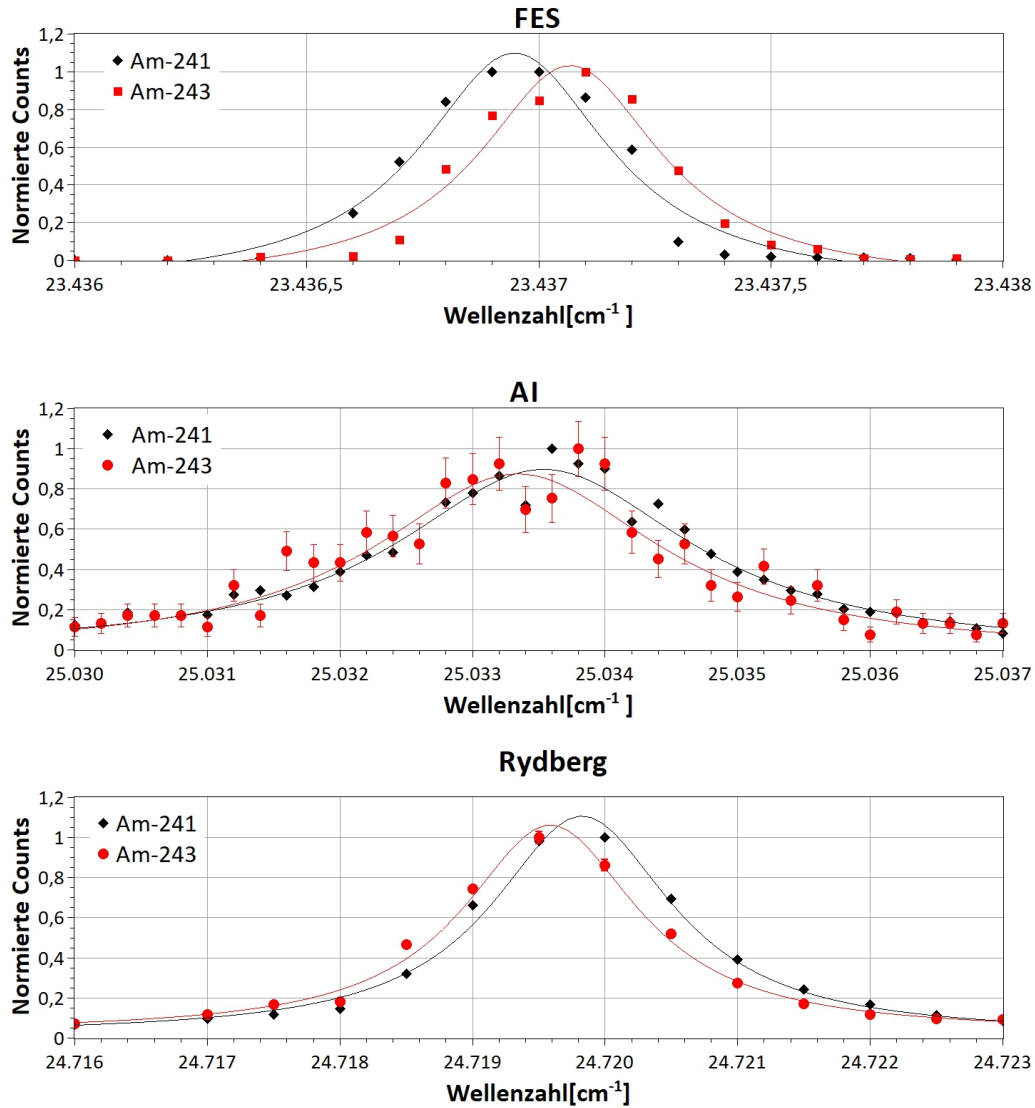


Abb. 9: Frequenzabhängigkeit der Zählrate der drei Übergänge FES und SES der neuen zweistufigen Rydberg- und AI-Schemata

Um die genaue Resonanzfrequenz und die Eignung der zweistufigen Anregung zu ermitteln, wurde die Laserleistung etwas über die ermittelte Sättigungsleistung gestellt und die Anzahl detektierter Ionen nach 100 s bei verschiedenen Frequenzen des Laserlichts gemessen (Abb.9). Sowohl beim AI als auch beim Rydbergschema waren deutliche Resonanzpeaks zu erkennen. Im FES wurde abseits der Resonanz nur ein Maschinenuntergrund von einzelnen Ionen, die auch ohne Laser detektiert werden, gemessen. Im SES gab es einen geringen Untergrund, aufgrund nicht resonanter Ionisation. Es war trotzdem eine deutliche Überhöhung zu erkennen. Die Frequenzabhängigkeit der Übergänge wurde mit einer Lorentzfunktion gefittet (vgl. Gleichung 11):

$$I(\omega) = I_0 + 2 \cdot \frac{A}{\pi} \frac{\gamma}{(4(\omega - \omega_0)^2 + \gamma^2)} \quad (13)$$

Aus der resultierenden Lorentzkurve wurden die Resonanzfrequenzen (Tab. 2) ermittelt. Für eine gleichberechtigte resonante Laserionisation wurde der Mittelwert der Resonanzfrequenzen der beiden Isotope gewählt. Aus der Differenz der Resonanzfrequenzen von  $^{243}\text{Am}$  zu  $^{241}\text{Am}$  ergab sich der isotopic shift (Tab. 3). Bezogen auf die Breite des jeweiligen  $^{241}\text{Am}$  Resonanzpeaks, ist der isotopic shift im FES Übergang am größten und im Rydberg Übergang am kleinsten. Allerdings wird er bei allen drei Übergängen von der Linienbreite des Lasers von  $0,16\text{ cm}^{-1}$  überdeckt, sodass er in der weiteren Evaluierung der Anregungsschemata nicht von Bedeutung ist.

Beide Schemata sind also klare Verbesserungen gegenüber dem vorherigen dreistufigen Anregungsschema. Die Resonanzpeaks des zweistufigen Schemas besitzen bei allen Anregungsschritten einen großen Überlapp im Gegensatz zum dreistufigen Schema (Abb. 8).

Tab. 2: Resonanzwellenzahlen für jeden Anregungsschritt der Ionisationsschemata

Anregungsschritt	$^{241}\text{Am}$	$^{243}\text{Am}$	verwendete Werte
FES	$23436,948 \pm 0,008\text{ cm}^{-1}$	$23437,064 \pm 0,008\text{ cm}^{-1}$	$23436,00\text{ cm}^{-1}$
AI	$25033,57 \pm 0,03\text{ cm}^{-1}$	$25033,35 \pm 0,06\text{ cm}^{-1}$	$25033,46\text{ cm}^{-1}$
Rydberg	$24719,80 \pm 0,02\text{ cm}^{-1}$	$24719,77 \pm 0,02\text{ cm}^{-1}$	$24719,78\text{ cm}^{-1}$

Tab. 3: isotopic shift und Halbwertsbreite für jeden Anregungsschritt der Ionisationsschemata

Anregungsschritt	isotopic shift	Halbwertsbreite	isotopic shift/Halbwertsbreite
FES	$0,11 \pm 0,02\text{ cm}^{-1}$	$0,48 \pm 0,05\text{ cm}^{-1}$	$0,23 \pm 0,07$
AI	$-0,22 \pm 0,09\text{ cm}^{-1}$	$2,7 \pm 0,1\text{ cm}^{-1}$	$-0,08 \pm 0,04$
Rydberg	$-0,03 \pm 0,04\text{ cm}^{-1}$	$1,6 \pm 0,1\text{ cm}^{-1}$	$-0,02 \pm 0,03$

### Sättigungsverbreiterung

Einige der Resonanzfrequenzmessungen wurden bei verschiedenen Leistungen durchgeführt. Dabei konnte die Sättigungsverbreiterung beobachtet werden (Abb. 10). Eine Erhöhung der Leistung von 7,7 auf 14,8 mW führte zu einer Erhöhung der Halbwertsbreite von  $3,3 \pm 0,2$  zu  $4,8 \pm 1$ . Diese Verbreiterung wurde nicht genauer gemessen, da, wie im vorangegangenen Abschnitt berichtet, die Resonanzfrequenzen der Isotope so dicht beieinander liegen, dass die Sättigungsverbreiterung nicht notwendig ist.

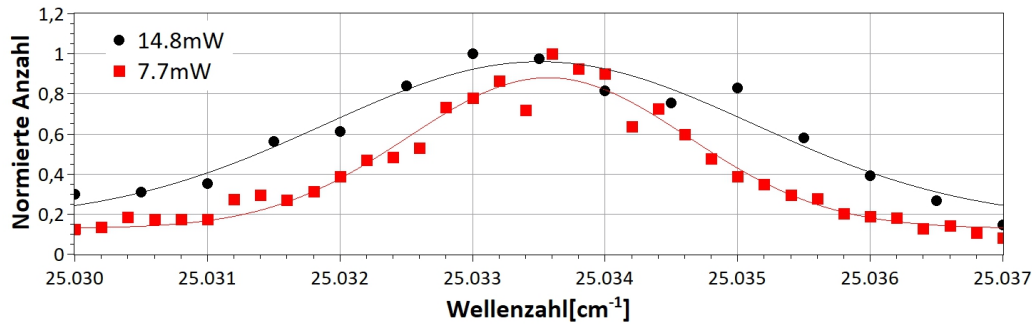


Abb. 10: Vergleich der Sättigungsverbreiterung bei verschiedenen Leistungen des SES des AI-Schemas

## 4.2 Vergleich zwischen AI und Rydberg Anregungsschema

Zum direkten Vergleich der beiden Anregungsschemata wurde jeweils ein Spektrum mit der selben Lasergeometrie und den in Tabellen 1 und 2 aufgeführten Einstellungen aufgenommen (Abbildung 11). Bei beiden Schemata waren deutlich die Americium Peaks auf  $m/z$  241 und 243 zu erkennen. Das Verhältnis der Peakflächen 243 zu 241 lag bei beiden Schemata im Rahmen der Messunsicherheiten gleich bei 0,022. Dies bestätigt, dass die gewählten Frequenzen und Leistungen eine gleichberechtigte Ionisation beider Isotope ermöglicht. Des Weiteren waren noch Peaks auf  $m/z$  238 und 238,5 zu finden. Dabei handelt es sich um  $^{238}\text{U}$ . Es wird bei  $m/z$  238 detektiert, weil der hohe Überschuss an Uran die Unterdrückung der Sekundärionen und die geringe Wahrscheinlichkeit für nicht resonante Ionisation ausgleicht. Das Masse-zu-Ladung-Verhältnis verschiebt sich bei Sekundärionen allerdings auf  $m/z$  238,5, aufgrund des längeren Weges nach der Unterdrückung. Dazu kommen einzelne Counts auf den Plutoniummassen 239, 240 und eine kleine Überhöhung auf bei  $m/z$  242. Dabei handelt es sich um  $^{242m}\text{Am}$ . Es entsteht durch die  $(n,\gamma)$  Reaktion von  $^{241}\text{Am}$  und besitzt eine Halbwertszeit von 141 Jahren. Da  $^{241}\text{Am}$  wie in 2.6 beschrieben kaum während des Reaktorbetriebes gebildet wird, findet diese Reaktion sehr selten statt. Die weitere Analyse des  $^{242m}\text{Am}$  Signals ist Teil der laufenden Dissertation am IRS von Hauke Bosco [Bosco, 2020].

Es zeigten sich auch Unterschiede. Das Rydbergschema lieferte ca. die doppelte Zählrate wie das AI-Schema. Dies ließe sich mit längerer Messdauer kompensieren. Allerdings war der isobare Untergrund des Rydbergschemas ca. fünf mal höher. Dies wurde durch das Verhältnis der Counts auf  $m/z$  240 und 241 bestimmt. Nur Plutonium kommt mit einer Masse von 240 vor, sodass ein hohes Signal mit dieser Masse auf eine hohe Wahrscheinlichkeit, Plutonium nicht resonant zu ionisieren, schließen lässt. Dies führt zu isobaren Interferenzen zwischen  $^{241}\text{Am}$  und  $^{241}\text{Pu}$ . Zusätzlich zu der in 4.1.2 ermittelten höheren Breite des Resonanzpeaks des AI-Schemas überwiegen die Vorteile des AI-Schemas und für die weiteren Messungen wurde dieses verwendet.

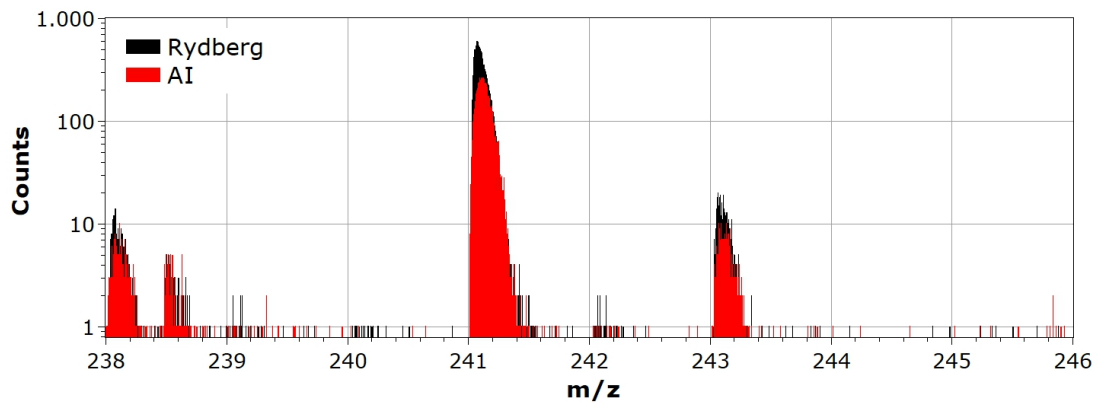


Abb. 11: Vergleich der Massenspektren mit Rydberg und AI Anregungsschema

### 4.3 Messung der Isotopenverhältnisse von Brennstoffpartikeln

Zur Erprobung des ausgewählten AI-Anregungsschema wurden Massenspektren von 10 Brennstoffpartikeln aus Umweltproben aus Tschernobyl aufgenommen. Daraus konnten die Isotopenverhältnisse  $^{243}\text{Am}$  zu  $^{241}\text{Am}$  von 0,002 bis 0,03 bestimmt werden. Diese Spanne der gemessenen Werte kann durch die Eigenschaft des RBMK Reaktors (vgl. 2.5.1) erklärt werden, dass einzelne Brennelemente im Betrieb ausgetauscht werden können. Zum Zeitpunkt der Explosion befanden sich Brennelemente mit vielen unterschiedlichen Graden des Burnups im Reaktor. Im Rahmen der laufenden Dissertation von Manuel Raiwa wurden vorläufige Werte für den Burnup der Partikel aus Uran-Isotopenverhältnissen ermittelt. Der Vergleich mit diesen Daten zeigt, je größer der Burnup, desto verhältnismäßig mehr  $^{243}\text{Am}$  wurde gefunden (Abb. 12). Dies stimmt mit den theoretischen Überlegungen überein. Der Anstieg ist erst sehr gering. Dies lässt sich dadurch erklären, dass zuerst  $^{242}\text{Pu}$  gebildet werden muss, es also eine Zeit lang dauert bis der Neutroneneinfang zur Bildung von  $^{243}\text{Am}$  stattfinden kann. Außerdem waren die Isotopenverhältnisse der Partikel mit geringem Burnup sehr ähnlich. Dies ist auf die geringen Counts von  $^{243}\text{Am}$  und der damit verbundenen Ungenauigkeit bei diesen Partikeln zurückzuführen. Auch bei den anderen Partikeln unterschied sich die Unsicherheit stark, da die Gesamtzahl gemessener Ionen sehr unterschiedlich war. Die Zählrate unterschied sich, abhängig von Größe, Form und Klebermenge, um das bis zu fünfzigfache zwischen den Partikeln, sodass geringe Zählraten nicht vollständig durch Messdauer ausgeglichen werden konnten. Makarova et al. bestimmten 2008 Isotopenverhältnisse von frisch aus dem Reaktor entnommenen Brennstoff des gleichen Reaktortyps RBMK-1000. Wird der radioaktive Zerfall seit 1986 mit einberechnet, zeigen die Daten ebenfalls einen Anstieg von  $^{243}\text{Am}$  mit Burnup [Makarova et al., 2008]. Außerdem liegen die gemessenen Werte in der selben Größenordnung. Da es sich bei  $^{243}\text{Am}$  und  $^{241}\text{Am}$  um Isotope des selben Elements handelt, ist davon auszugehen, dass ihr Verhalten während der Freisetzung und unter den anschließenden Umwelteinflüssen identisch war. Aus der Ähnlichkeit der gemessenen Verhältnisse lässt sich schließen, dass die eigenen Messungen wahrscheinlich keine systematischen Fehler enthalten.

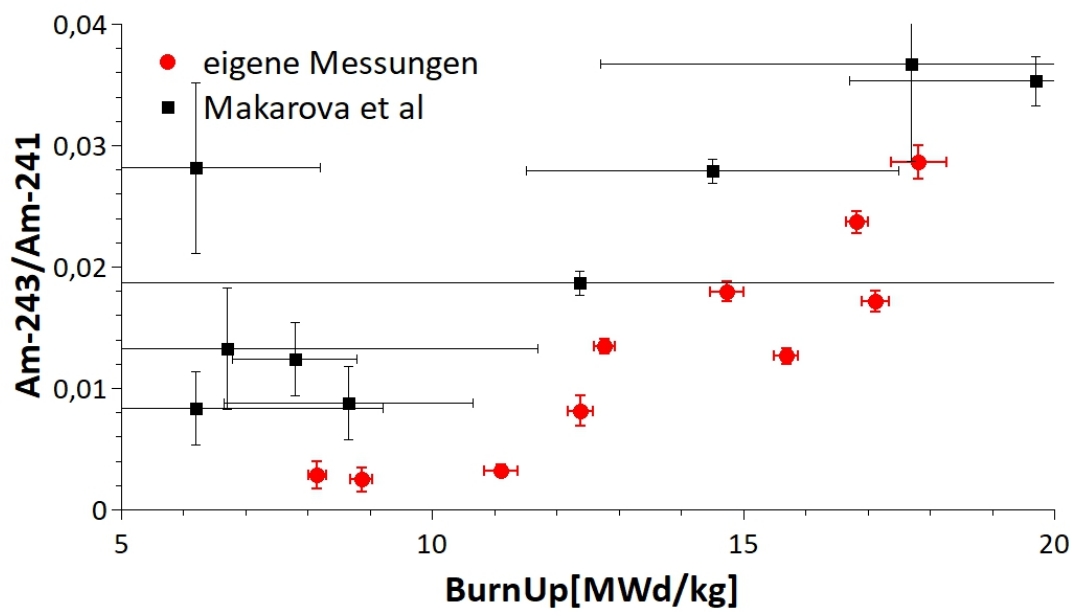


Abb. 12: Americium Isotopenverhältnisse von 10 Brennstoffpartikeln in Abhängigkeit von ihrem Burnup, verglichen mit existierenden Daten zu Brennstoffpartikeln aus einem RBMK-1000 Reaktor von Makarova et al.



---

## 5 Fazit und Ausblick

Das Ziel dieser Arbeit war die Entwicklung eines Anregungsschemas für Americium zur Ultraspurenanalyse. Dazu wurden zwei potentielle zweistufige Anregungsschemata getestet. Zuerst wurden Sättigungleistung und Resonanzfrequenzen beider Schemata speziell für den Aufbau am IRS in Hannover ermittelt, um eine resonante Laserionisation mit möglichst hoher Effizienz und gleichberechtigter Ionisation von den Isotopen  $^{243}\text{Am}$  und  $^{241}\text{Am}$  zu erreichen. Durch den Vergleich der Schemata bezüglich Ionenausbeute, Massenauflösung und isobarem Untergrund wurde das AI-Schema für weitere Erprobung ausgewählt. Es besteht aus den zwei Anregungsschritten FES und SES mit den Laserparametern  $23436,00\text{ cm}^{-1}$  bei 5 mW und  $225033,46\text{ cm}^{-1}$  bei 30 mW. Es ermöglicht im Gegensatz zu dem früher getesteten dreistufigen Anregungsschema (s. A.1) eine gleichberechtigte Anregung der Isotope, sodass das Isotopenverhältnis  $^{243}\text{Am}/^{241}\text{Am}$  unverfälscht gemessen werden kann. Dieses Isotopenverhältnis eines hot particles lässt Rückschlüsse auf seinen Ursprung zu. Es wurden mit den ermittelten Einstellungen 10 hot particles auf das Isotopenverhältnis untersucht und beim Auftragen gegenüber dem Burnup zeigt sich der erwartete Anstieg von  $^{243}\text{Am}$  mit steigendem Burnup. Das gemessene Isotopenverhältnis ist vergleichbar mit anderen Messungen an Brennstoff des gleichen Reaktortyps und zeigt auch den gleichen Trend.

Es konnte also ein Schema gefunden werden, mit dem Americium Isotopenverhältnisse in radioaktiven Partikeln minimalinvasiv gemessen werden können. Geplant ist die Ergänzung des Lasersystem mit weiteren Ti:Sa Lasern, die den Wechsel zwischen den Anregungsschemata verschiedener Elemente vereinfachen. Die Frequenz des Laserlichts, wird über eine Software mithilfe von Gittern einstellbar sein, ohne die Notwendigkeit Optiken zu wechseln. So wird es möglich sein, aufeinanderfolgend verschiedene Isotopenverhältnisse eines Partikels zu messen. Weiterführend könnten die gemessenen Isotopenverhältnisse an einer synthetischen Probe mit genau bekanntem Isotopenverhältnis verifiziert werden. Dadurch ließe sich bestätigen, dass das entwickelte Anregungsschema korrekte Isotopenverhältnisse liefert. Außerdem könnte das Am-242m weiter untersucht werden.



## Literatur

- [IAE, 2011] (2011). *Radioactive Particles in the Environment: Sources, Particle Characterization and Analytical Techniques*. Number 1663 in TECDOC Series. INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, Vienna.
- [Aggarwal, 2018] Aggarwal, S. K. (2018). A review on the mass spectrometric studies of americium: Present status and future perspective. *Mass Spectrometry Reviews*, 37(1):43–56.
- [Atwood, 2010] Atwood, D. A. (2010). *Radionuclides in the Environment*. John Wiley & Sons.
- [Bosco, 2016] Bosco, H. (2016). *Erarbeitung eines Anregungsschemas zum Strontiumnachweis mittels resonanter Laser-SNMS*. Masterarbeit, Leibniz Universität Hannover.
- [Bosco, 2020] Bosco, H. (voraussichtlich 2020). *laufende Arbeit*. Dissertation, Leibniz Universität Hannover.
- [Demtröder, 2007] Demtröder, W. (2007). *Laserspektroskopie - Grundlagen und Techniken*. Springer-Verlag, 5. edition.
- [Demtröder, 2016] Demtröder, W. (2016). *Experimentalphysik 3 - Atome, Moleküle und Festkörper*. Springer-Verlag, 5. edition.
- [Eichler and Eichler, 2015] Eichler, J. and Eichler, H. J. (2015). *Laser - Bauformen, Strahlführung, Anwendungen*. Springer-Verlag.
- [Entwistle et al., 2003] Entwistle, J. A., Flowers, A. G., Nageldinger, G., and Greenwood, J. C. (2003). Identification and characterization of radioactive ‘hot’ particles in Chernobyl fallout-contaminated soils: the application of two novel approaches. *Mineralogical Magazine*, 67(2):183–204.
- [Franzmann, 2018] Franzmann, M. (2018). *A New Tool for Ultra-Trace Analysis of Radionuclides – Setup, Optimization and Characterization of the Resonant Laser-SNMS System for IRS Hannover*. Dissertation, Leibniz Universität Hannover.
- [Grishanin, 2010] Grishanin, E. I. (2010). The role of chemical reactions in the chernobyl accident. *Physics of Atomic Nuclei*, 73(14):2296–2300.
- [Gross and Beifuss, 2013] Gross, J. H. and Beifuss, K. (2013). *Massenspektrometrie - Ein Lehrbuch*. Springer-Verlag.
- [Hamann, 2017] Hamann, L. (2017). *Untersuchung radioaktiver Partikel mittels Sekundärionen-Flugzeit-Massenspektrometrie*. Dissertation, Leibniz Universität Hannover.

- [Kashparov et al., 2009] Kashparov, V., Ahamdach, N., Levchuk, S., Yoschenko, V., Fesenko, S., and Maloshtan, I. (2009). Dissolution of particles of irradiated nuclear fuel in the temporary storages of radioactive waste in chernobyl zone: Sources for radionuclides migration. In Oughton, D. H. and Kashparov, V., editors, *Radioactive Particles in the Environment*, pages 139–156, Dordrecht. Springer Netherlands.
- [Leifermann, 2018] Leifermann, L. (2018). *Lokalisierung und Vergleich uranhaltiger Partikel in Bodenproben*. Bachelorarbeit, Leibniz Universität Hannover.
- [Makarova et al., 2008] Makarova, T. P., Bibichev, B. A., and Domkin, V. D. (2008). Destructive analysis of the nuclide composition of spent fuel of wwer-440, wwer-1000, and rbmk-1000 reactors. *Radiochemistry*, 50(4):414–426.
- [Mattolat, 2010] Mattolat, C. (2010). *Spektroskopische Untersuchungen an Technetium und Silizium-Ein Festkörperlaser-System für die Resonanzionisationsspektroskopie*. Masterarbeit, Johannes Gutenberg-Universität Mainz.
- [Mayer-Kuckuk, 1997] Mayer-Kuckuk, T. (1997). *Atomphysik: eine Einführung*. Teubner, Stuttgart, 5. edition.
- [Meschede, 2015] Meschede, D. (2015). *Optik, Licht und Laser*. Springer-Verlag, 2. edition.
- [Pröhl et al., 2002] Pröhl, G., Mück, K., Likhtarev, I., Kovgan, L., and Golikov, V. (2002). Reconstruction of the ingestion doses received by the population evacuated from the settlements in the 30-km zone around the chernobyl reactor. *Health Physics*, 82(2):173–181.
- [Raeder, 2010] Raeder, S. (2010). *Spurenanalyse von Aktiniden in der Umwelt mittels Resonanzionisations-Massenspektrometrie*. Dissertation, Johannes Gutenberg-Universität Mainz.
- [Salbu, 2009] Salbu, B. (2009). Radioactive particles released from different nuclear sources. In Oughton, D. H. and Kashparov, V., editors, *Radioactive Particles in the Environment*, pages 3–13, Dordrecht. Springer Netherlands.
- [Salbu and Krekling, 1998] Salbu, B. and Krekling, T. (1998). Characterisation of radioactive particles in the environment†. *Analyst*, 123:843–850.
- [Salbu et al., 1994] Salbu, B., Krekling, T., Oughton, D. H., Østby, G., Kashparov, V. A., Brand, T. L., and Day, J. P. (1994). Hot particles in accidental releases from chernobyl and windscale nuclear installations. *Analyst*, 119:125–130.
- [Smith and Beresford, 2006] Smith, J. and Beresford, N. A. (2006). *Chernobyl - Catastrophe and Consequences*. Springer Science & Praxis Publishing.
- [UNSCEAR, 2000] UNSCEAR (2000). Exposures and effects of the chernobyl accident. Technical report, United Nations.

# Abbildungen

1	Schematischer Aufbau eines Lasers . . . . .	4
2	Schematische Darstellung des Vier-Niveau-Systems des Ti:Sa Lasers . . . . .	6
3	Absorbtion und Emission eines Ti:Sa-Kristalls für parallel ( $\pi$ ) und senkrecht ( $\sigma$ ) polarisiertes Licht [Eichler and Eichler, 2015] . . . . .	6
4	Schematische Darstellung des Lasersystems und der TOF-SIMS . . . . .	15
5	AI- und Rydberg-Anregungsschema mit Wellenzahlen . . . . .	16
6	Ablauf des rL-SNMS Vorgangs . . . . .	17
7	Verlauf der Leistungsabhängigkeit des FES und SES . . . . .	19
8	Frequenzabhängigkeit der Zählrate der drei Übergänge FES, SES und TES (von oben nach unten) des früher getesteten dreistufigen Schemas [Bosco, 2020] . . . . .	21
9	Frequenzabhängigkeit der Zählrate der drei Übergänge FES und SES der neuen zweistufigen Rydberg- und AI-Schemata . . . . .	22
10	Vergleich der Sättigungsverbreiterung bei verschiedenen Leistungen des SES des AI-Schemas . . . . .	24
11	Vergleich der Massenspektren mit Rydberg und AI Anregungsschema . . . . .	25
12	Americium Isotopenverhältnisse von 10 Brennstoffpartikeln in Abhängigkeit von ihrem Burnup, verglichen mit existierenden Daten zu Brennstoffpartikeln aus einem RBMK-1000 Reaktor von Makarova et al. . . . .	26
13	Für rL-SNMS am IRS nicht geeignetes dreistufiges Anregungsschema für Americium [Raeder, 2010] . . . . .	

# Tabellen

1	Sättigungsleistungen für jeden Anregungsschritt der gestesteten Ionisations-schemata . . . . .	20
2	Resonanzwellenzahlen für jeden Anregungsschritt der Ionisationsschemata . . . . .	23
3	isotopic shift und Halbwertsbreite für jeden Anregungsschritt der Ionisations-schemata . . . . .	23
4	Messparameter und $^{241}\text{Am}$ und $^{243}\text{Am}$ Meswerte für 10 Brennstoffpartikel . . . . .	

## A Anhang

### A.1 Ungeeignetes dreistufiges Anregungsschema für Americium

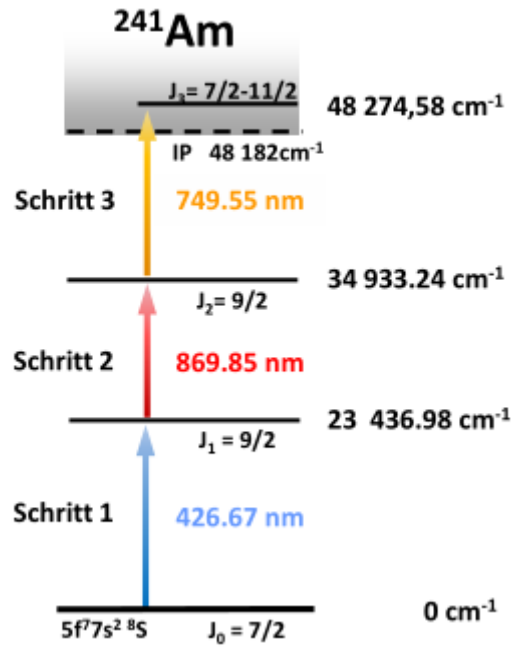


Abb. 13: Für rL-SNMS am IRS nicht geeignetes dreistufiges Anregungsschema für Americium [Raeder, 2010]

## A.2 Americiummesswerte der Brennstoffpartikel

Tab. 4: Messparameter und  $^{241}\text{Am}$  und  $^{243}\text{Am}$  Meswerte für 10 Brennstoffpartikel

Nr.	Größe [ $\mu\text{m}$ ]	Messfenster [ $\mu\text{m}$ ]	Auflösung	Scans	Power FES [mW]	Power SES [mW]	$^{241}\text{Am}$	$^{243}\text{Am}$
1	10 x 10	10 x 10	64	17500	5,03(4)	30,05(5)	17314	56
2	9 x 12	20 x 20	64	1100	5,2(1)	30,3(1)	27674	655
3	19 x 17	15 x 15	64	26400	5,00(5)	30,01(5)	4590	13
4	25 x 20	20 x 20	32	60000	5.10(5)	31,0(2)	5896	48
5	45 x 27	15 x 15	64	8789	5.5(1)	30.8(1)	23375	401
6	55 x 65	30 x 30	64	4000	5.05(5)	30.0(2)	34155	460
7	39 x 37	20 x 20	32	27000	5.0(1)	30(1)	15037	430
8	29 x 26	15 x 15	128	1650	5.55(5)	29.95(5)	33240	420
9	30 x 32	20 x 20	128	1750	5.10(5)	29.8(1)	28767	517
10	18 x 30	20 x 20	64	25000	5,05(5)	31,1(2)	6465	16
		FES [ $\text{cm}^{-1}$ ]	SES [ $\text{cm}^{-1}$ ]	Extraction Bias [V]	Extraction Delay [ns]			
		23437	25033,46	500	700			