

## MS 3 Laser-Massenspektrometrie

Zeit: Dienstag 14:00–15:30

Raum: H1

MS 3.1 Di 14:00 H1

**Adaption einer kommerziellen TOF-SIMS Anlage zur resonanten Laser-Nachionisation gesputterter Neutralteilchen** — ●FLORIAN MARTIN ENGELBERGER, NICOLE ERDMANN, JENS VOLKER KRATZ, NORBERT TRAUTMANN und THOMAS JOACHIM WUNDERLICH — Fritz-Straßmannweg 2, D 55099 Mainz

Zur Identifizierung langlebiger radioaktiver Isotope in Umweltproben benötigt man sehr empfindliche Nachweisverfahren. Dies trifft besonders auf die Partikelanalyse zu. Ein für die Spurenanalytik von Aktiniden hochempfindliches Verfahren ist die Resonanzionisations-Massenspektrometrie (RIMS), die in den Instituten für Kernchemie und Physik der Universität Mainz bisher hauptsächlich zur Bulk-Analyse eingesetzt wurde. Zur Identifizierung von Partikeln, ist die Sekundärionen-Massenspektrometrie (SIMS) gut geeignet. Ein Problem hierbei stellen jedoch isobare Interferenzen dar, wie zum Beispiel  $^{238}\text{Pu}$  /  $^{238}\text{U}$  oder  $^{241}\text{Pu}$  /  $^{241}\text{Am}$ . Zur Lösung dieses Problems wird ein Gerät zur Kopplung von Ionenstrahl-Sputtern mit resonanter Nachionisation der erzeugten Neutralteilchen aufgebaut. Damit soll eine elementselektive Partikelanalyse ohne Isobareninterferenzen ermöglicht werden. Der Apparat besteht aus einem kommerziellen TOF-SIMS Gerät mit einer Gallium-Flüssigmetall-Ionenquelle, die gepulst im kHz-Bereich arbeitet und so eine optimale Kopplung mit einem hochrepetierenden Ti:Sa-Lasersystem ermöglicht. Die Apparatur wird vorgestellt und erste Ergebnisse zur nichtresonanten Ionisation ( $532\text{ nm}$ ) an  $\text{U3O8}$ -Partikeln werden präsentiert.

MS 3.2 Di 14:15 H1

**Bestimmung von Plutonium in Umweltproben mit Resonanzionisations-Massenspektroskopie** — ●THOMAS JOACHIM WUNDERLICH, FLORIAN MARTIN ENGELBERGER, NICOLE ERDMANN, JENS VOLKER KRATZ und NORBERT TRAUTMANN — Universität Mainz, Institut für Kernchemie, Fritz-Straßmann-Weg 2, D-55099 Mainz

Plutonium ist in der Umwelt hauptsächlich auf Grund von technischer und militärischer Nutzung vorhanden. Um überprüfen zu können, welche Nutzung seiner Verbreitung vorangegangen ist, muss man das Plutonium aus den unterschiedlichen Matrices chemisch isolieren und auf seinen Gehalt in der Probe sowie seine Isotopenzusammensetzung analysieren. Ein geeignetes Bestimmungsverfahren, welches eine hohe Effizienz, große Elementselektivität und die Möglichkeit zur Bestimmung der Isotopenzusammensetzung liefert, ist die Resonanzionisations-Massenspektroskopie (RIMS). RIMS beruht auf einer dreistufigen, resonanten optischen Anregung von Atomen, wobei im letzten Anregungsschritt ionisiert wird. Das verwendete Laser-Anregungsschema ist hoch elementselektiv. Anschließend erfolgt ein massenspektrometrischer Nachweis der erzeugten Ionen in einem Flugzeitmassenspektrometer. Dadurch ist eine Bestimmung der Isotopenzusammensetzung möglich. Der experimentelle Aufbau wird vorgestellt und jüngste Ergebnisse zur Bestimmung von Plutonium aus verschiedenen Matrices werden präsentiert.

MS 3.3 Di 14:30 H1

**Hochselektive Isotopenanalyse von Uran  $^{236}\text{U}$  mittels HR-RIMS** — ●SEBASTIAN RAEDER<sup>1</sup>, PHILIPP SCHUMANN<sup>1</sup>, KLAUS WENDT<sup>1</sup>, BRUCE BUSHAW<sup>2</sup> und SERGEI BOULYGA<sup>3</sup> — <sup>1</sup>WA LARISSA, Institut für Physik, Johannes Gutenberg-Universität, D-55099 Mainz — <sup>2</sup>Chemical Sciences Division, Pacific Northwest National Laboratory, Richland, WA 99352, USA — <sup>3</sup>Institut für Anorganische Chemie und Analytische Chemie, Johannes Gutenberg-Universität D-55099 Mainz

Das langlebige Spurenisotop  $^{236}\text{U}$  entsteht durch Neutroneneinfang aus  $^{235}\text{U}$ , ist aber in natürlichen Uranvorkommen nur in Konzentrationen von  $< 10^{-10}$  anzutreffen. Ein erhöhtes Vorkommen dieses Isotops weist auf eine Neutronenexposition und damit eine anthropogene Herkunft des uranhaltigen Materials hin. Über die Bestimmung des Isotopenverhältnisses  $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$  lassen sich Fragestellungen zu Migration und Speziation von Kernbrennstoff in der Umwelt beantworten. Die hochauflösende Resonanzionisations-Massenspektrometrie (HR-RIMS) stellt ein spezialisiertes Verfahren zur empfindlichen Isotopenanalyse bei geringsten Verhältnissen dar, wobei die notwendige Isobarenunterdrückung und Isotopenselektivität erreicht wird. Das speziell zum  $^{236}\text{U}$ -Nachweis an der Universität Mainz entwickelte System kombiniert die resonante, isotopenselektive optische Anregung und Ionisation der Probenatome mittels schmalbandiger kontinuierlicher Laser mit der Massentrennung in

einem Quadrupolmassenspektrometer. Erste analytische Messungen an synthetischen Proben haben die Anwendbarkeit des Verfahrens gezeigt. Dabei wurde eine optische Selektivität von  $< 10^8$  und eine Effizienz von  $< 10^{-7}$  demonstriert.

MS 3.4 Di 14:45 H1

**Online Lasermassenspektrometrie von Einzelpartikeln mit UV- und IR-Laserpulsen** — ●THORSTEN SCHRAMM<sup>1</sup>, WERNER BOUSCHEN<sup>1</sup>, ARNE LEISNER<sup>1</sup>, KLAUS-PETER HINZ<sup>1</sup>, KLAUS DREISEWERD<sup>2</sup> und BERNHARD SPENGLER<sup>1</sup> — <sup>1</sup>Institut für Anorganische und Analytische Chemie, Universität Gießen — <sup>2</sup>Institut für medizinische Physik und Biophysik, Universität Münster

Das mobile, bipolare online-Lasermassenspektrometer 'LAMPAS 2' erlaubt die chemische und physikalische Charakterisierung individueller luftgetragener Partikel im Mikro- und Nanometer-Bereich. Die Partikel werden nach Eintritt in das Massenspektrometer mittels eines UV-Laserpulses ( $\lambda = 337\text{ nm}$ ) verdampft und ionisiert. Die dabei erzeugten positiv und negativ geladenen Ionen werden in einem elektrischen Feld beschleunigt und in zwei Flugzeit-Analysatoren simultan nachgewiesen.

Ein Infrarot-Laser (Er:YSGG,  $\lambda = 2790\text{ nm}$ ) wurde alternativ zum UV-Laser zur Partikelverdampfung und -ionisation eingesetzt, um so einen tieferen Einblick in fundamentale Prozesse der Laserdesorption und Ionisation zu gewinnen und um aus analytischer Sicht die Vor- und Nachteile der beiden verwendeten Wellenlängen zu beurteilen. Vergleichende Messungen unter Nutzung beider Wellenlängen werden vorgestellt und die Ergebnisse diskutiert.

MS 3.5 Di 15:00 H1

**Schneller simultaner Nachweis von Stickoxiden: Anwendung von Methoden der MS-Grundlagenforschung** — ●ULRICH BOESL, ALEXANDER BORNSCHLEGL, RARES VINTAN und MICHAELA ENTFELLNER — Department Chemie der TU München, Physikalische Chemie

Stickoxide stehen in der Rangliste der Luftschadstoffe mit an oberster Stelle. Hauptquelle sind Verbrennungsmotoren. Um diese zu optimieren, müssen vor allem NO und  $\text{NO}_2$  simultan und sehr schnell nachgewiesen werden. Erheblich erschwert wird dies durch die Zusammensetzung von Motor-Emissionen aus vielen chemischen Komponenten mit teils um Größenordnungen höherer Konzentration. Konventionelle Methoden, z.B. IR-Absorption, Chemolumineszenz oder Elektronenionisation, können dies nicht leisten. Selbst die für solche Fälle optimale Resonanzionisation kombiniert mit Flugzeit-MS versagt hier wegen des sehr schnellen Zerfalls von  $\text{NO}_2$  bei Wellenlängen, die sowohl von NO wie  $\text{NO}_2$  absorbiert werden. Damit ist im Massenspektrum  $\text{NO}_2$  nicht von primärem NO zu unterscheiden. Hier wenden wir einen Trick aus der massenspektrometrischen Grundlagenforschung an. Wir nutzen die freiwerdende kinetische Energie der Fragmente NO und O, um primäres und sekundäres NO unterscheiden zu können. Die vorgestellte Methode kann im Prinzip auch auf andere molekulare Systeme angewendet werden, bei denen schnelle Dissoziation einen eindeutigen Nachweis erschwert oder vereitelt. Ein Beispiel sind Nitroaromaten.

MS 3.6 Di 15:15 H1

**Flugzeitmassenspektrometer mit orthogonaler Ionenextraktion und elektronenstrahlgepumpten VUV-Excimerlampe zur Einphotonenionisation: Technische Ausführungen und erste Messergebnisse** — ●M. SARAJI-BOZORGZAD<sup>1</sup>, F. MÜHLBERGER<sup>1</sup>, K. FUHRER<sup>2</sup>, M. GONIN<sup>2</sup>, J. WIESER<sup>3</sup>, A. ULRICH<sup>4</sup> und R. ZIMMERMANN<sup>1,5,6</sup> — <sup>1</sup>GSF-Forschungszentrum, Neuherberg — <sup>2</sup>TOFWERK AG, Thun, CH — <sup>3</sup>Tuilaser, Germering — <sup>4</sup>TU-München, Physik E12, Garching — <sup>5</sup>BIFA, Augsburg — <sup>6</sup>Universität Augsburg

Mit Hilfe der Einphotonenionisationsmassenspektrometrie (Single Photon Ionization Mass Spectrometry) lassen sich komplexe Gasgemische, die oft für die industrielle Fertigung und Qualitätssicherung von Interesse sind, auf ihre organischen Spurenkomponenten untersuchen. Für die hierbei notwendige weiche und teilelektive Ionenerzeugung stellen elektronenstrahlgepumpte VUV-Lampen als Photonenquellen eine sinnvolle Alternative zu Lasern dar. Im zeitlichen Mittel lassen sich mit der Lampe im Vergleich zu einem VUV-Lasersystem mehr Photonen dieses Spektralbereiches erzeugen. Dieser Vorteil lässt sich durch die Verbindung mit einem Flugzeitmassenspektrometer mit orthogonaler Extraktion (O-TOF) in der Massenspektrometrie ausnützen. Durch die Kombina-

tion einer kontinuierlich betriebenen Excimer-Lampe und einem kompakten O-TOF können vollständige Massenspektren mit einer Wiederholrate von bis zu 100kHz erzeugt werden. In dem Beitrag wird das System vorgestellt und es werden erste Anwendungen diskutiert. Gefördert durch die Bayerische Forschungstiftung.