

BAM-Dissertationsreihe, Band 50

Dipl.-Phys. Timo Wolff

Referenzprobenfreie quantitative Mikro-Röntgenfluoreszenzanalyse

ISBN 978-3-9812910-6-3

Die Röntgenfluoreszenzanalyse (RFA) ist ein Standardverfahren in der zerstörungsfreien Elementanalyse. Die Entwicklung von Polykapillaroptiken und von SDD-Halbleiterdetektoren, die ohne Stickstoff-Kühlung auskommen, ermöglicht eine breite Anwendung dieses Verfahrens z. B. in der Kunst- und Kulturgutanalyse. Die dafür entwickelten Spektrometer sind mobil und bieten die Möglichkeit der Analyse von kleinen Strukturen, da Untersuchungsflächen mit Durchmessern von 10-70 μm erzeugt werden.

Für quantitative RFA-Ergebnisse werden in den meisten Anwendungsfällen referenzprobenbasierte Auswertungsverfahren eingesetzt. Aufgrund von Absorptionsprozessen in der Probenmatrix ist die Genauigkeit und Verlässlichkeit der ermittelten Konzentrationen dabei stark von der Ähnlichkeit von Referenz- und Untersuchungsprobe abhängig. Liegen keine geeigneten Referenzmaterialien vor, stellt die „Fundamental Parameter (FP) Methode“ eine Alternative dar. Dabei werden die bei der Erzeugung und Detektion auftretenden Wechselwirkungen mit Hilfe geeigneter Datenbanken mathematisch beschrieben. In einem Iterationsverfahren können auf diese Weise die Elementkonzentrationen ermittelt werden. Voraussetzung ist eine genaue Kenntnis der Spektrometerparameter, u. a. der spektralen Verteilung der Anregungsstrahlung.

Da durch die Transmissionseigenschaften der Polykapillaroptiken die gut beschriebenen Röntgenröhrenspektren erheblich verändert werden, war eine Anwendung der FP-Methode für die Mikro-RFA bisher nicht möglich. Ziel dieser Arbeit ist es, die Transmission dieser Optik in einer Weise zu beschreiben, die eine routinemäßige Quantifizierung auf Basis der fundamentalen Parameter möglich ist. Die notwendigen Untersuchungen erfolgten an einem kommerziellen Mikro-RFA-Spektrometer, das für die Analyse im Kunst- und Kulturgutbereich entwickelt wurde.

Zum einen wurden im Rahmen der Arbeit umfangreiche Charakterisierungsmessungen an der zum Spektrometer gehörenden Linse durchgeführt, um die grundsätzlichen Prozesse bei Strahlungstransport in Polykapillarlinsen besser zu verstehen. Dabei wurde besonders auf den Einfluss messungsbedingter Artefakte bei der Bestimmung der Linsenparameter geachtet. Zusätzlich wurden an Polykapillarhalblinsen Charakterisierungsuntersuchungen am Rasterelektronenmikroskop und mit Synchrotronstrahlung durchgeführt. Die Ergebnisse ergänzen die Erkenntnisse der Vollinsencharakterisierung, insbesondere den starken Einfluss der Messbedingungen auf die ermittelten Parameter. Zum anderen wurde ein neues Kalibrierungsverfahren entwickelt, welches die Beschreibung der Linsentransmission ohne vorherige Linsencharakterisierung ermöglicht. Das Verfahren wurde an zertifizierten Referenzmaterialien getestet.

An verschiedenen Anwendungen aus dem Bereich der Archäometrie werden schließlich Quantifizierungsergebnisse präsentiert, so z. B. die Analyseergebnisse antiker römische Kupfermünzen, die im Rahmen eines Methodenvergleiches auch mit PIXE und Synchrotron-RFA untersucht wurden sowie Untersuchungsergebnisse historischer Pergamente und Schreibmaterialien.