

## ZUSAMMENFASSUNG

Ziel der Bachelorarbeit war die Durchführung einer Multielementanalyse mittels ICP-MS/MS (inductively coupled plasma-Tandem mass spectrometry) an insgesamt 38 ausgewählten Sedimentproben, die das gesamte Flusssystem der Weser repräsentieren. Ein Fokus lag in der Beurteilung der Elementfingerprints im gesamten Einzugsgebiet der Weser. Dabei richtete sich das Augenmerk speziell auf die Statusbeschreibung der einzelnen Stationen sowie auf ausgewählte Elemente (Arsen, Quecksilber, Phosphor und Blei) bzw. die Beschreibung möglicher Auffälligkeiten der Elementverteilungsmuster. Im Vergleich mit den Zielvorgaben der Bundesanstalt für Gewässerkunde zeigten sich für das Flusssystem der Weser deutlich auffällige, ökotoxikologisch bedenkliche Schwermetallkonzentrationen im Oberflächensediment, insbesondere bei Blei, Cadmium, Quecksilber und Zink an den östlichen Zubringern der Weser (Aller, Leine und Wietze).

Des Weiteren wurde eine Methodenentwicklung zur Messung von stabilen Blei-Isotopenverhältnissen mittels Tandem-Massenspektrometer mit induktiv gekoppeltem Plasma (ICP-MS/MS) durchgeführt. Blei hat vier natürlich vorkommende, stabile Isotopen mit den Massen 204, 206, 207 und 208 und unterliegt einer hohen Variabilität der natürlichen Isotopenzusammensetzung. Die Isotopensignatur kann abhängig von Alter und Zusammensetzung seines Ursprungsgesteins verschieden sein, sodass mit einer Analyse der Isotopenzusammensetzung die Bleiherkunft festgestellt werden kann. Dies ist insbesondere bei der Analyse von Umweltproben interessant. Bei der Analyse mittels ICP-MS basierter Verfahren wird die Erfassung des Isotops mit der Masse 204 durch ein Hg-Isotop der gleichen nominalen Masse gestört. Im Rahmen der Arbeit wurde überprüft, inwieweit durch die Nutzung einer Kollisions-/Reaktionszelle mit ausgewählten Gasen, die Störung eliminiert werden kann, ohne dass eine vorherige nasschemische Matrixabtrennung erfolgen muss. Es zeigte sich bei der Messung von Standards, dass die isobare  $^{204}\text{Hg}$ -Interferenz mithilfe von Ammoniak als Reaktionsgas bei einer  $\text{NH}_3$ -Flussrate von  $1,7 \text{ mL} \cdot \text{min}^{-1}$  verdünnt mit He ( $1 \text{ mL} \cdot \text{min}^{-1}$ ) vollständig eliminiert werden konnte, sogar in Anwesenheit von Hg und seltenen Erden im Konzentrationsbereich von  $0,01\text{-}100 \mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$ . Bei der Anwendung der Methode an ausgewählten Sedimentproben einer Pb-Konzentration von  $5 \mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$  zeigte der Vergleich der Präzisionen der Pb-Isotopenverhältnisse am Singlekollektor (ICP-MS/MS) eine schlechtere Präzision (1,3-6,5%) als am Multikollektor (MC ICP-MS) ( $<0,1\text{-}0,7\%$ ). Diese große Präzisionsvariabilität entstand durch die sequentielle Erfassung der Ionenströme, sodass Fluktuationen im ICP als Ionenquelle demnach zu einer starken Streuung der Messergebnisse führten.

## ABSTRACT

The aim of this bachelor thesis is on the one hand side focused on the multielement analysis of 38 sediment samples from the German river Weser by ICP-MS/MS. Further, one major aspect is the assessment of the ecotoxicological situation of this river on the example of arsenic, mercury, phosphorus and lead. The results of the multielement analysis show that there are certain heavy metal-concentration hot spots located within the east tributaries (Aller, Leine and Wietze) of the Weser showing high concentrations especially of the elements lead, cadmium, mercury and zinc.

On the other hand, a method for the analysis of isotope ratios of stable lead by ICP-MS/MS was developed. The method is based on the use of a reaction/collision cell, thus allowing for the interference-free analysis of all Pb isotopes without prior wet chemical matrix separation. First, the method was tested by measuring standard solutions. Then, sediment samples from the Elbe-River were measured and compared with data previously assessed by multicollector-ICP-MS after chemical matrix separation. Lead has four stable isotopes in nature, with the masses 204, 206, 207 and 208 and is known for the high isotope-abundance variation in the environment. Based on the isotope ratios of lead, one can assign a sample to a certain location of origin, as Pb isotope-abundance variations are strongly dependent on geochemical composition and geological age. This is of high interest in the field of environmental analysis. Having a closer look at the results, it becomes visible that the elimination of the isobaric mercury interference on the mass 204 works for both standard solutions and real sediment samples. In this thesis, the usage of a collision/reaction cell with ammonia is studied in order to eliminate the isobaric interference of  $^{204}\text{Hg}$  and to achieve stable lead-isotope ratios. As a result, the isobaric interference of  $^{204}\text{Hg}$  could be successfully eliminated using a  $\text{NH}_3$  flow rate of  $1.7 \text{ mL} \cdot \text{min}^{-1}$  diluted with a Helium flow of  $1.0 \text{ mL} \cdot \text{min}^{-1}$ . Even in the presence of Hg and rare earth elements at a concentration range of  $0.01\text{-}100 \mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$ , stable lead-isotope ratios could be analysed. The method was tested on a single collector (ICP-MS/MS) on selected sediment samples with a lead concentration of  $5 \mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$ , where a precision of lead-isotope ratios in a range of 1.3-6.5% was achieved. The precision of the multicollector (MC ICP-MS) is in a range of <math>0.1\text{-}0.7\%</math>. This large variability of precision is a result of the sequential detection of ion beams, so that fluctuations in ICP lead to a distribution of measurement data.