

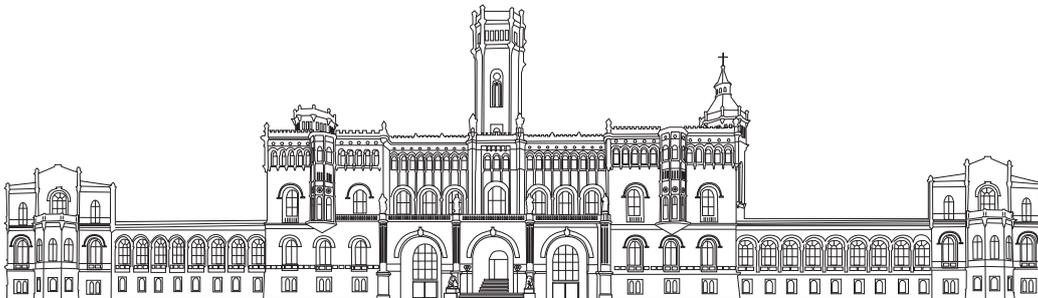


LEIBNIZ UNIVERSITÄT HANNOVER

-Institut für Radioökologie und Strahlenschutz-

BACHELORARBEIT

Quantitative
massenspektrometrische
Analyse von „*hot particles*“
aus der CEZ



Autor:
POLINA FRAATZ

9. Juli 2021

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	2
1.1	Unfall von Tschernobyl	2
1.2	Theorie radioaktiver Elemente	4
2	Gammapektrometrie	7
2.1	Funktionsweise des Detektors und Grundlagen des Gamma- spektrums	7
2.2	Aufbau	10
2.3	Kalibrierung des Spektrometers	11
3	Tof-SIMS	14
3.1	Aufbau und Funktionsweise	14
3.2	Massenspektrum	19
4	Partikel	22
5	Messungen mit dem Gammapektrometer	24
5.1	Kalibrierung	24
5.2	Auswertungen	25
5.3	Messunsicherheiten	27
5.4	Messungen	29
6	Tof-SIMS Messungen	33
6.1	Einstellungen	33
6.2	Auswertung	34
6.3	Unsicherheiten	36
6.4	Messwerte	38
7	Ergebnisse und Diskussion	40
7.1	Vergleich der Aktivitäten	40
7.2	Vergleich der Aktivitätskonzentrationen mit dem Abbrand	44
7.3	Isotopenverhältnis mit Vergleichswerten	46
8	Fazit und Ausblick	48
9	Anhang	49
9.1	Tabellenverzeichnis	49
9.2	Abbildungsverzeichnis	58

1 Einleitung

In der vorliegenden Arbeit wurden Partikel, welche aus der Sperrzone von dem havarierten Reaktor in Tschernobyl stammen, untersucht. Im Verlauf der Katastrophe änderte sich die Beschaffenheit der freigesetzten Partikel durch die Kernschmelze und äußere Einflüsse [VK19]. Um Aussagen über die Gefahren, die von diesen Partikeln ausgehen, zu erhalten, müssen diese untersucht und verstanden werden. Die Partikel liefern Informationen über den Reaktor, sowie Aussagen über die durch Sie hervorgerufene Strahlenbelastung. Ihr Verhalten in der Umwelt ist ebenso von Interesse, da sich durch Migration und Auflösung das radioaktive Material ausbreiten kann. Forschungen zur Partikelart, deren Auslaugung und Zersetzung finden statt. In dieser Arbeit geht es um die Zusammensetzung und Auslaugung der Partikel. Die Partikel werden mithilfe von gammaspektrometrischen und massenspektrometrischen Messungen untersucht.

1.1 Unfall von Tschernobyl

Am 26.04.1986 ereignete sich im Kernkraftwerk Tschernobyl, in der heutigen Ukraine, ein Unfall im Reaktorblock 4 [Ebe11]. Die Anlage sollte planmäßig für eine Revision abgefahren werden. Währenddessen wurde ein Test durchgeführt, um bestimmte Sicherheitseigenschaften des Reaktors nachzuweisen. Bei dem Reaktortyp handelte es sich um einen RBMK (Reaktor Bolschoi Moschtschnosti Kanalny, zu deutsch: Hochleistungs-Reaktor mit Kanälen). Der RBMK Reaktor ist ein wassergekühlter Siedewasser-Druckröhrenreaktor, welcher mit Graphit moderiert wird und sich von westlichen Reaktoren unterscheidet, in denen Wasser zur Moderation verwendet wird.

Es sollte getestet werden, ob bei einem totalen Stromausfall die Rotationsenergie der Turbinen reicht, um die Zeit zu überbrücken, die es braucht, die Notstromaggregate hochzufahren. Das Hochfahren der installierten Aggregate hätte 40-50 Sekunden benötigt. Für den Test wurde die Leistung des Reaktors schrittweise heruntergefahren, denn das Ziel war es, eine Nennleistung von 25 % zu erreichen. Die Leistung des Reaktors fiel auf unter 1 %, welches hauptsächlich an zwei Gründen lag. Einerseits kam es zu einer Xenonvergiftung. Der Reaktor wurde wegen einer Anfrage aus der Stromleitzentrale doch noch mit hoher Leistung betrieben, dabei entstand sehr viel Iod 135, welches mit einer Halbwertszeit von 6,5 Stunden zu Xenon 135 zerfällt. Dieses ist ein starker Neutronenabsorber, welcher im normalen Betrieb durch Neutroneneinfang abgebaut wird. Durch die anschließende Reduzierung der Leistung konnte das Xenon 135 schlecht abgebaut werden,

sodass es sich drastisch vermehren konnte, da es durch Zerfall von Iod 135 weiterhin entstand. Das Xenon sorgte dafür, dass durch Neutroneneinfang die Kettenreaktion zusammenbrach, wodurch die Leistung rapide abfiel. Andererseits lag es an dem positiven Dampfblasenkoeffizienten des RBMKs: in einem RBMK, welcher durch Grafit moderiert wird, hat Wasser die Funktion Neutronen einzufangen und somit die Reaktion zu bremsen. Im normalen Betrieb siedet das Wasser im Reaktor, jedoch wurde der Test bei voller Wasserpumpleistung durchgeführt, sodass das Wasser im Reaktor unter dem Siedepunkt war. Es hatte daher eine höhere Dichte als im Normalbetrieb, was die Reaktion weiter ausbremste. Leistungsbetrieb unter 20 % war nicht zugelassen und der Test hätte abgebrochen werden müssen. Es gelang, den Reaktor durch Hochfahren der Steuerstäbe auf einer niedrigen Leistung zu stabilisieren, jedoch hatte der Reaktorkern eine enorm inhomogene Leistungsdichte. Trotz alledem wurde mit dem Test begonnen. Während des Testes kam es zu einem Anstieg der Leistung. Dies lag daran, dass die auf voller Leistung laufenden Wasserpumpen zur Simulation des Stromausfalles ausgeschaltet werden sollten. Durch den niedrigeren Wasserdruck begann das Wasser zu siedeln. Die Dichte des Wassers sank und das verstärkte die Reaktion im Reaktor. Die höhere Aktivität sorgte dafür, dass mehr Xenon abgebaut wurde. So kam es zu einem sich gegenseitig erheizenden Kreislauf, welcher die Leistung weiter und weiter steigerte. Der Schichtleiter befahl aufgrund der bemerkten Leistungssteigerung die Notabschaltung des Reaktors. Diese scheinbar richtige Reaktion beschleunigte jedoch die Katastrophe. An den Spitzen der Steuerstäbe waren bei diesem Reaktortyp Graphitblöcke angebracht, die im Normalbetrieb beim Einfahren für eine doppelte Bremswirkung sorgten, da moderierendes Graphit heraus- und absorbierendes Bor hineingefahren wurden. Da aber infolge des Leistungsabfalls alle Steuerstäbe herausgefahren waren, fielen bei der Notabschaltung zuerst die Graphitblöcke in den Reaktor, sodass durch diesen *Konstruktionsmangel* die Reaktivität kurzzeitig verstärkt wurde und die Leistung sprunghaft stieg. Infolgedessen erhöhte sich die Leistung dramatisch und dies führte zur Explosion [Vol93].

Der Reaktorkern wurde durch die Leistungsexkursion zerstört. Es kam zu einer Dampfexplosion, welche den Reaktor mitsamt Gebäude zertrümmerte. Der Graphitmoderator führte zu einem schwerwiegenden Brand und einer Freisetzung und Ausbreitung von radioaktivem Material [Mü96]. Es wurden Gas, Aerosole, sowie Partikel und Fragmente in verschiedenen Größen, durch die Explosion und den Brand in die Umgebung freigesetzt. Die hierbei verbreiteten radioaktiven Partikel in der Größe von wenigen Nanometern bis einigen Millimetern nennt man *Hot Particles*. Diese

Partikel können eine Gefahr für den Menschen und die Umwelt darstellen [F.S88]. Besonders kleine Partikel können z.B. durch die Luft getragen werden. Inhaliert man solche Partikel, ist man Strahlung von anthropogenen radioaktiven Elementen ausgesetzt. Außerdem können sich diese Partikel langsam in der Umwelt auflösen und verteilen. Somit gelangen ständig radioaktive Isotope in die Biosphäre, in das Grundwasser und in den Boden. Der Unfall hatte weitere schwerwiegende Folgen für Mensch und Umwelt, die sich bis heute in der Sperrzone beobachten lassen. Ausführlichere Informationen hierzu lassen sich finden in [BS05] [fRGm86].

1.2 Theorie radioaktiver Elemente

Natürliche Radioaktivität

In der Natur, vor der Einwirkung des Menschen, existieren drei Zerfallsreihen radioaktiver Nuklide. Die Zerfallsreihen beinhalten 46 unterschiedliche Nuklide deren Halbwertszeiten von einigen Nanosekunden bis hin zu mehreren Millionen Jahren reichen [Dem14]. Diese natürlichen radioaktiven Nuklide werden *primordial* (Lateinisch für ursprünglich) genannt. Die Zerfallsreihen beginnen bei Thorium 232, Uran 235 und Uran 238 und enden alle in stabilen Blei Isotopen. Durch anthropogene Einwirkungen wie Kernwaffentests oder Unfälle in Kernreaktoren gibt es nun eine Vielzahl weiterer radioaktiver Nuklide, welche natürlich nicht vorkommen. Ein bekanntes Beispiel hierfür ist Cäsium 137.

Theorie der radioaktiven Elemente des Brennstoffes

Für den Brennstoff eines Kernreaktors wird Urandioxid verwendet. Im Natururan ist lediglich 0,72% Uran 235 enthalten. Dies ist für einen Kernreaktor zu wenig. Somit ist eine Anreicherung von Uran 235 für die Brennelemente erforderlich, da dieses ausschließlich mit thermischen Neutronen spaltbar ist und für die Kettenreaktion im Reaktor sorgt. Die benötigte Anreicherung ist abhängig vom jeweiligem Reaktortyp. So lag der Anreicherungsgrad vom havarierten Reaktor in Tschernobyl bei etwa 2%, wobei ein westlicher Leichtwasserreaktor der damaligen Zeit eine Anreicherung von mindestens 4% benötigte [Mü96].

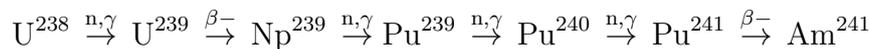
Im Kernreaktor finden neben der erwünschten Spaltung von Uran 235 auch viele weitere Prozesse durch Neutroneneinfang und durch natürlichen Zerfall statt. Im Folgenden werden weitere, für die Arbeit wichtige, Isotope genauer betrachtet.

Uran

Die durch Spaltung von U-235 erzeugten Neutronen führen zur gewünschten Kernreaktion. Die Uranisotope und deren Verhältnis sind entscheidend für die Kernreaktion in einem Kernkraftwerk. Des Weiteren entsteht aus U-235 durch Neutroneneinfang das Uranisotop 236. Ebenso wird aus U-238 das U-239 erbrütet. Aus dieser Arbeit lassen sich Informationen über die Uranverhältnisse des Reaktorbrandstoffes gewinnen.

Americium

Americium 241 ist das Tochternuklid von Plutonium 241. Es entsteht durch Neutroneneinfang von U-238, doppelten Betazerfall und einem doppelten Neutroneneinfang [N.S18] Eine schematische Darstellung ist hier gegeben:



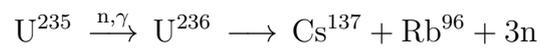
Im laufenden Betrieb ist die Am-241 Konzentration sehr gering, da es nur sehr langsam aus Pu-241 entsteht und nicht aktiv erbrütet wird. Das entstehende Americium wird zudem durch Neutroneneinfang zu Am-242 aktiviert. Außerdem wird Pu-241 im laufenden Reaktor zu Pu-242 aktiviert, welches nicht zu Am-241 zerfällt. Der bei laufendem Reaktor kleine Am-241 Anteil steigt nach Entnahme aus dem Reaktor. Am-241 entwickelt sich in den Jahren nach der Entnahme von Kernbrennstoff mit geringem Abbrand zum dominanten Alphastrahler in der CEZ (*Chernobyl-Exclusion-Zone*, siehe Kapitel 4) und ist daher von großem Interesse. Die Halbwertszeit von Am-241 beträgt etwa 432 Jahre.

Europium

Thermische Neutronen erzeugen in einem Reaktor Spaltprodukte. So entstehen durch den Spaltprozess unterschiedliche Nuklide, wie zum Beispiel das Eu-154. Ausgehend vom kurzlebigen Zerfallsprodukt Nd-153 entsteht das stabile Eu-153 durch eine Betazerfallskette. Durch Einfangen eines Neutrons wird dieses zu Eu-154 aktiviert. Die Halbwertszeit von Eu-154 beträgt etwa 8 Jahre [DW63].

Caesium

Unter den Spaltprodukten finden sich auch Cäsiumisotope, wobei das Cs-137 mit einer langen Halbwertszeit von 30 Jahren von Bedeutung ist. Zu Einem entsteht Cs-137 direkt aus der Spaltung von U-235:



zum Anderen entsteht es durch Betazerfall anderer Spaltprodukte der Isobare $A=137$.

2 Gammaspektrometrie

Durch die Gammaspektrometrie wird die Gammastrahlung eines radioaktiven Nuklids gemessen. Man erhält Intensität und Energie der Strahlung. Besonders gut lassen sich hiermit Radionuklide mit einer Halbwertszeit von einigen Stunden bis zu einigen Jahren vermessen. Bei größeren Halbwertszeiten verschwindet die Strahlung meist im Untergrund und die benötigte Messzeit wäre zu lang. Es gibt jedoch auch langlebige Nuklide, welche über Gammaspektrometrie gut messbar sind. Bei kleineren Halbwertszeiten sind die Nuklide sehr kurzlebig, sodass diese nicht mehr nachzuweisen sind, da sie nach kürzester Zeit schon weitestgehend zerfallen sind. Die in dieser Arbeit verwendeten Proben sind seit über 30 Jahren nicht mehr in dem Reaktor, sodass kurzlebiges Nuklide nicht mehr nachzuweisen sind. Als Gammaspektrometer eignet sich ein Halbleiterdetektor. Für die Messung in dieser Arbeit wurde ein auf dotiertem Germanium basierender Detektor verwendet, dessen Aufbau und Funktionsweise im Folgenden näher erläutert werden.

2.1 Funktionsweise des Detektors und Grundlagen des Gammaspektrums

Die Strahlung wird bei der Gammaspektrometrie über die Wechselwirkung der Gammaquanten mit einem Halbleitermaterial detektiert. Fällt Gammastrahlung auf ein Halbleitermaterial, so kann ein Elektron aus dem Valenzband in das Leitungsband des Halbleiterkristalls gehoben werden und es entsteht ein Elektronen-Lochpaar. Bei einem Halbleiterdetektor fällt die Strahlung auf einen möglichst großen p-n-Übergang, an dem eine Spannung in Sperrrichtung angelegt ist. Der Aufbau ist genauer in Kapitel 2.2 beschrieben. Entsteht nun ein Elektronen-Lochpaar, so lässt sich ein Stromfluss detektieren. Dieser Stromfluss wird von einem Vielkanalanalysator analysiert, und je nach Höhe des Stromstoßes wird dem ionisierenden Gammaquant seine Energie zugeordnet. Trägt man die Häufigkeit der Energiemessergebnisse graphisch auf, so erhält man das sogenannte Gammaspektrum. Ein solches ist in Abbildung 1 exemplarisch dargestellt.

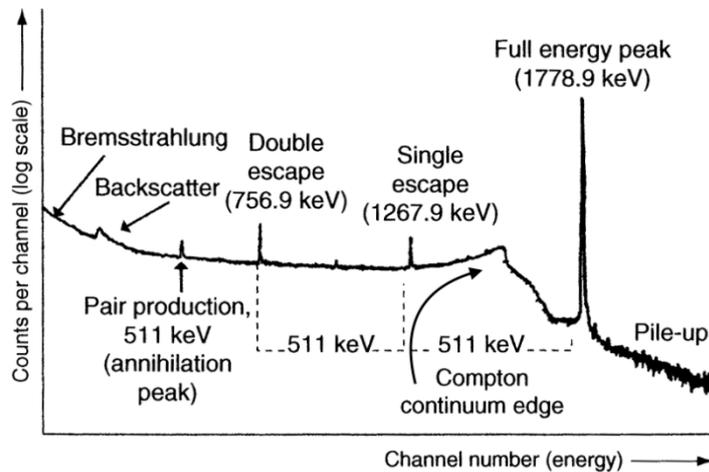


Abbildung 1: Beispiel eines Gammaskpektrums nach [G.G08].

Das Gammaquant wechselwirkt über den Photoeffekt, den Compton-Effekt und die Paarbildung mit dem Detektormaterial. Auf diese drei grundlegenden Wechselwirkungsmechanismen und ihre Wirkung auf das Gammaskpektrum wird im Folgenden kurz eingegangen [F.T12].

Photoeffekt

Bei dem photoelektrischen Effekt nimmt ein Elektron die Energie des Photons auf und wird ionisiert. Im Falle des Halbleiterdetektors ist der innere photoelektrische Effekt von Interesse. Dabei absorbiert ein Elektron im Valenzband das Photon und wird in ein Leitungsband gehoben. Der im Spektrum zu sehende *Full-Energy-Peak*, ist durch den Photoeffekt erzeugt. Dieser Peak gibt die gesamte Energie des Photons an.

Compton-Effekt

Bei dem Compton-Effekt streut ein Photon mit einem Elektron. Dabei ändern sich die Bewegungsrichtung und Energie des Photons und des Elektrons. Es handelt sich um einen elastischen Stoß, da die Gesamtenergie und der Impuls erhalten bleiben. Die Energieänderung des Elektrons ist bei dem Stoß

abhängig vom Stoßwinkel ϕ , der gegeben ist durch die Gleichung:

$$\Delta E(\phi) = E_\gamma \left(1 - \frac{1}{1 + \frac{E_\gamma}{m_e c^2} (1 - \cos(\phi))} \right), \quad (1)$$

wobei E_γ die Energie des streuenden Photons und m_e die Elektronenmasse ist. Es ist zu sehen, dass auch bei maximalem Streuwinkel nicht die ganze Energie des Photons abgegeben wird. Photonen, die ihre maximale Energie nach dem Compton-Effekt abgeben, sind im aufgenommenen Spektrum bei der Comptonkante zu finden (siehe Abbildung 1). Unterhalb dieser Energie befindet sich im Spektrum das Comptonkontinuum (*engl. Compton-Continuum-Edge*), welches durch Photonen erzeugt wird, die in kleinerem Winkel streuen.

Der *Backscatter-Peak*, welcher im Spektrum bei niedrigeren Energien zu sehen ist, wird ebenfalls durch den Comptoneffekt hervorgerufen. Streuen Photonen, die das Detektormaterial bereits verlassen haben, mit Elektronen der Beschichtung oder der Hülle im maximalen Winkel $\phi = 180^\circ$ und treten danach wieder in den Detektor ein, erzeugen sie im Spektrum den *Backscatter-Peak*. Photonen, die im Material gestreut werden und danach detektiert werden, tragen auch zum *Backscatter-Peak* bei.

Paarbildung

Bei der Paarbildung entsteht aus einem Photon in der Nähe eines Atomkerns ein reales Elektron-Positron Paar. Damit dies stattfindet, muss das Photon mindestens die Summe der Ruheenergien des Positrons und des Elektrons haben. Diese ist etwa 1,022 MeV. Die überschüssige Energie des Photons wird dabei in die kinetische Energie des Elektron-Positron Paares umgewandelt. Das entstandene Positron kann mit einem bereits vorhandenen Elektron zu zwei Photonen mit je 511 keV zerstrahlen. Verlässt eins davon den Detektor ohne Wechselwirkung, so ist die detektierte Energie niedriger und es wird der *Single-Escape-Peak* gemessen. Verlassen beide undetektiert den Halbleiter, so entsteht der *Double-Escape-Peak*.

Bei sehr niedrigen Energien misst man Bremsstrahlung, welche durch Beschleunigung und Abbremsung von Elektronen im Material entsteht. Da die Bandlücke eines Halbleiters relativ schmal ist, entsteht bei Zimmertemperatur ein Strom, der durch die thermische Energie der Elektronen erzeugt wird. Es ist daher notwendig, den Halbleiter zu kühlen, um dieses Rauschen zu vermeiden. Treffen zwei Photonen innerhalb eines sehr kurzen

Zeitabstandes auf den Detektor, wird fälschlicherweise die Summe der Energien beider Photonen detektiert. Dies wird als Summenpeak bezeichnet [Kam16].

2.2 Aufbau

Das Detektormaterial besteht meistens aus hochreinem Silizium oder Germanium. Das Material wird mit Fremdatomen dotiert, sodass eine möglichst große Sperrschicht als Arbeitsvolumen entsteht. Weitere Informationen zum Aufbau und zu den verwendeten Halbleitern lassen sich finden in [Bü71].

Das Detektormaterial ist durch eine Abschirmung von der Umgebungsstrahlung isoliert und wird durch flüssigen Stickstoff gekühlt, welcher am Siedepunkt eine Temperatur von 77 K hat. Die Abschirmung besteht meistens aus Blei. Ein schematischer Aufbau ist in Abbildung 2 zu sehen.

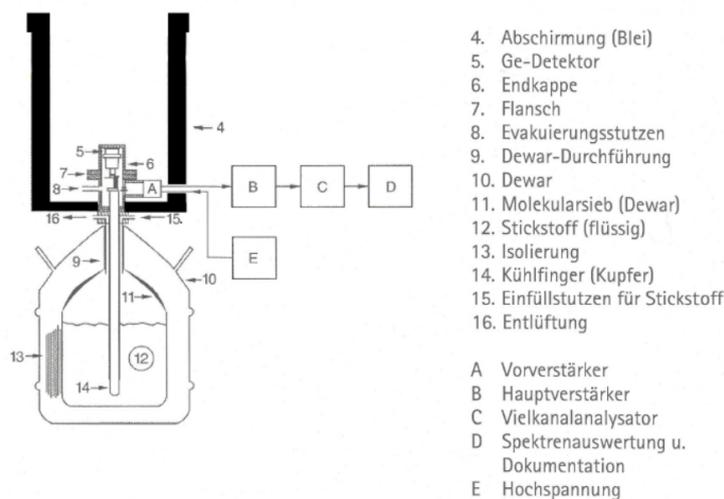


Abbildung 2: Aufbau eines Halbleiterdetektors nach [Wil08].

An das Detektormaterial sind Hauptverstärker, Signalverstärker und ein Vielkanalanalysator angeschlossen. Hierdurch wird der von Photonen ausgelöste Stromfluss verstärkt und Kanälen zugeordnet. Die verschiedenen Kanäle sind wiederum den tatsächlichen Energien der Photonen zugeordnet. Der Vielkanalanalysator zählt die Häufigkeit der angesprochenen Kanäle, woraus sich die Intensität der jeweiligen Energie bestimmen lässt. Angeschlossen ist er an einen Computer, sodass sich die Daten auslesen und bearbeiten lassen.

2.3 Kalibrierung des Spektrometers

Um die tatsächlichen Werte für Energie und Intensität aus dem Gamma-spektrometer zu erhalten, muss das Spektrum kalibriert werden. Hierzu wird die Energiekalibrierung, die Auflösungskalibrierung und die Wirkungsgradkalibrierung durchgeführt.

Energiekalibrierung

Bei der Energiekalibrierung wird den Kanälen die richtige Energie zugeordnet. Kanalnummer und Energie stehen in einem linearen Zusammenhang, sodass eine Kalibrierung über eine affin-lineare Funktion reicht. Hierzu werden zwei Kalibrierungspunkte benötigt und es gilt der Zusammenhang:

$$N = a \cdot E + b. \quad (2)$$

N ist hier die Kanalnummer und E die Energie.

Auflösungskalibrierung

Bei der Auflösungskalibrierung, welche auch Halbwertsbreitenkalibrierung genannt wird, geht es darum, die Peakflächen der einzelnen Nuklide richtig zu bestimmen. Die Halbwertsbreite ist die Breite eines Peaks auf halber Höhe. Sie wird dafür verwendet, die Peakfläche eines Peaks, z.B. des „Full-Energy-Peaks“, zu bestimmen und verschiedene Peaks voneinander zu trennen. Die Halbwertsbreite $h(E)$ eines Peaks wächst energieabhängig nach

$$h(E) = \sqrt{a + b E}. \quad (3)$$

Die beiden Parameter a und b müssen bei der Kalibrierung ermittelt werden [Wil08].

Wirkungsgradkalibrierung

Nicht alle Photonen, die emittiert werden, werden detektiert. Der Wirkungsgrad ε (engl. *efficiency*) ist das Verhältnis von emittierten zu detektierten Photonen:

$$\varepsilon = \frac{\#Photonen_{detektiert}}{\#Photonen_{emittiert}}. \quad (4)$$

Der Wirkungsgrad ist wichtig, um die wahre Aktivität der Probe festzustellen. Er wird ermittelt, indem mit Quellen bereits bekannter Aktivität kalibriert wird. Der Wirkungsgrad ist unter anderem abhängig von der Messgeometrie des Gammaskpektrometers und der Energie der Strahlung. Es gibt jedoch weitere Abhängigkeiten wie z.B. die von dem Detektormaterial und die von der Größe der verwendeten Probe.

Die Abhängigkeit des Wirkungsgrades von der Energie wird über die Jäckel-Westmeier-Funktion approximiert [Kam16]:

$$\varepsilon(E) = e^{\frac{2}{\pi}(a+b\ln(E)+c\ln(E)^2)} \arctan\left(e^{d+f\ln(E)+g\ln(E)^3}\right) - 25 \quad (5)$$

Die sechs freien Parameter müssen durch Referenzmessung bestimmt werden. Alternativ lässt sich der Wirkungsgrad nur auf den Energien kalibrieren, die von Interesse für die Messung sind. Stehen hierzu genug Referenzquellen zur Verfügung, so ist keine Interpolation erforderlich. Diese Art der Kalibrierung wurde in der Arbeit vorgenommen.

Um die Aktivität eines Partikels aus der gemessenen Peakfläche zu bestimmen, wird zusätzlich zum Wirkungsgrad noch die Emissionswahrscheinlichkeit $P(E)$ benötigt. Die Emissionswahrscheinlichkeit gibt an, mit welcher Wahrscheinlichkeit bei einem Zerfall ein Photon mit der Energie E emittiert wird und kann aus einer Nuklidkarte entnommen werden [Nuc18]. Die Aktivität der Probe lässt sich aus der Messung wie folgt berechnen [Wal]:

$$A = \frac{n_{np}}{t_m \cdot \varepsilon(E) \cdot P(E)}. \quad (6)$$

Wobei n_{np} die Nettopeakfläche der zu messenden Probe ist und t_m die Messdauer der Messung. In der Formel wird ein bestimmtes E eingesetzt, weshalb die Abhängigkeit der Aktivität von E nicht mitgeschrieben ist. Der Wirkungsgrad $\varepsilon(E)$ bei der Energie E lässt sich daher schreiben als:

$$\varepsilon(E) = \frac{\text{Impulse}}{a \cdot t \cdot P(E)}, \quad (7)$$

wobei a die Aktivität der Referenzquelle ist. Die Messzeit t und die Impulse werden ebenfalls mit der Referenzquelle gemessen. Diese Formel wird dann zur Kalibrierung verwendet. Die Aktivität lässt sich auch schreiben als

$$A = w \frac{n_{np}}{t_m} \quad (8)$$

mit dem Kalibrierfaktor

$$w = \frac{1}{\varepsilon(E) \cdot P(E)}. \quad (9)$$

3 ToF-SIMS

Die Flugzeit-Sekundärionen-Massenspektrometrie ToF-SIMS (*engl. Time-of-Flight Secondary-Ion-Mass-Spetrometry*) ist ein Analyseverfahren zur Charakterisierung von Festkörperoberflächen. Es lässt sich insbesondere die laterale Zusammensetzung auf Skalen unter 100 Nanometern auf den ersten drei atomaren Schichten der Probe bestimmen. Das Messverfahren der statischen SIMS schädigt die Probe kaum und es lassen sich Isotopenverhältnisse der gemessenen Probe bestimmen [Edi].

3.1 Aufbau und Funktionsweise

Bei der Massenspektrometrie wird das Masse-zu-Ladungsverhältnis $\frac{m}{z}$ der ionisierten Bestandteile einer Probe gemessen. Hier ist z der Betrag der Ladungszahl d.h. z gibt die Ladung des Ions in Vielfachen der Elementarladung wieder und m ist die Masse des Ions. Es werden diese Größen betrachtet, da die ToF-SIMS, oder allgemeiner, jede Art von Massenspektrometer, die direkte Masse nicht auflösen kann. Bei der ToF-SIMS ist z innerhalb einer Messung jedoch meistens eins [Gro17].

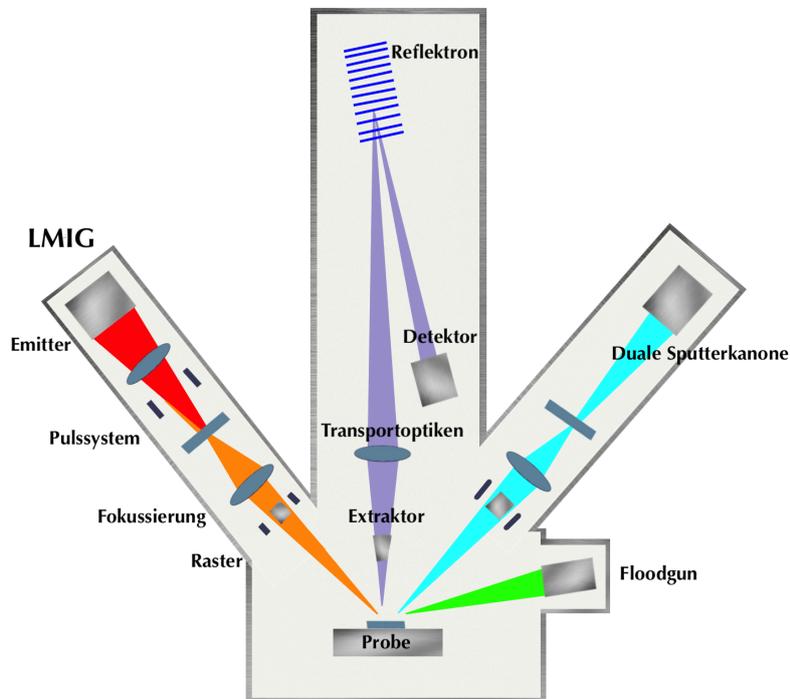


Abbildung 3: Eine Darstellung einer ToF-SIMS. Es werden durch die LMIG Primärionen in kurzen Pulsen über verschiedene Optiken auf eine Probe fokussiert. Aus der Oberfläche lösen sie Sekundärionen aus, die mit einem Flugzeitmassenspektrometer analysiert werden.

Eine skizzenhafte Veranschaulichung einer ToF-SIMS ist in Abbildung 3 zu sehen. Die Probe befindet sich in der ToF-SIMS in einem Hochvakuum. Um eine Probe auf ihre einzelnen Bestandteile mit der ToF-SIMS zu untersuchen, wird sie mit einem Ionenstrahl beschossen [Bro]. Bei der in dieser Arbeit verwendeten ToF-SIMS besteht der Ionenstrahl aus Bismut-Ionen und diese werden durch eine Ionenkanone der sogenannte *Liquid-Metal-Ion-Gun* (kurz LMIG) erzeugt. Der Ionenstrahl wird beschleunigt und durch Ionenoptiken mit hoher örtlicher Auflösung auf die Probe fokussiert. Dieser Primärionenstrahl löst Material aus der oberen Schicht der Probe durch Stöße ab. Dieser Prozess wird Sputtern genannt und wird in Abbildung 4 schematisch dargestellt.

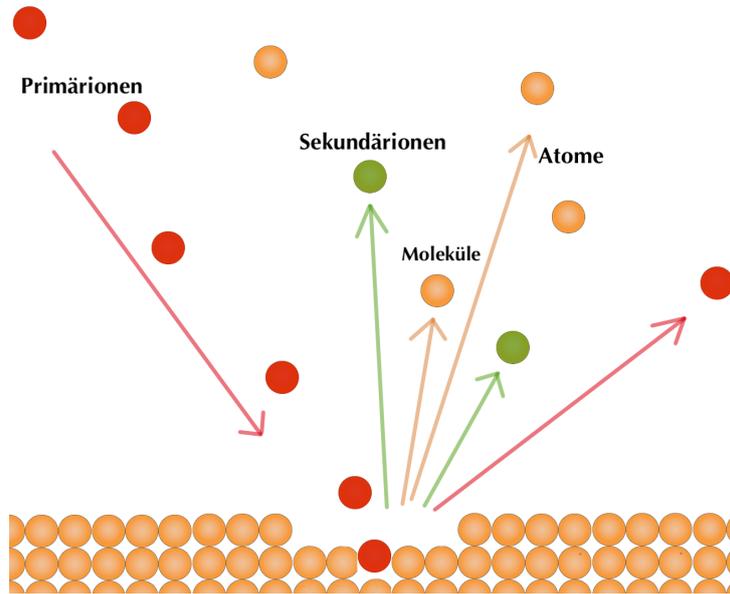


Abbildung 4: Veranschaulichung des Sputtervorgangs. Rot abgebildet sind die Primärionen. Die Sekundärionen sind grün und weitere Moleküle, Atome und neutrale Teilchen sind in orange.

Bei dem abgelösten Material handelt es sich um Atome, Moleküle und Ionen. Für den Messprozess werden hiervon nur die Ionen weiter betrachtet. Von den gesputterten Teilchen sind 0,001% – 1% ionisiert [Fra18]. Diese heißen Sekundärionen, nach ihnen ist die Methode SIMS benannt.

Die entstandenen Sekundärionen werden von einem Flugzeitmassenanalysator untersucht. In diesem werden die Ionen über eine Beschleunigungsspannung in einem elektrischen Feld beschleunigt. Auf die Beschleunigung folgt eine Flugzeit, bei der keine Kräfte auf die Ionen wirken. Sei U_B die verwendete Beschleunigungsspannung, so ist die kinetische Energie der Ionen hinter dem Feld:

$$E_{\text{kin}} = \frac{1}{2}mv^2 = q_e z U_B \quad (10)$$

mit der Geschwindigkeit v und der Elementarladung q_e . Hierbei wurde angenommen, dass die Ionen keine Anfangsgeschwindigkeit haben.

Gleichung (10) ist äquivalent zu:

$$v = \sqrt{\frac{q_e z U_B}{m}} \quad (11)$$

Für unbeschleunigte Bewegungen folgt aus der Bewegungsgleichung nach Newton [Dem13]:

$$x(t) = x_0 + v_0 t \quad (12)$$

Durch Umformen für unterschiedliche Orte nach der Zeit, ergibt sich die Flugzeit proportional zu $\sqrt{\frac{m}{z}}$

$$t_{\text{Flug}} \sim \sqrt{\frac{m}{z}} \quad (13)$$

Auf diesem Zusammenhang beruht das Messen des Masse-zu-Ladungsverhältnisses $\frac{m}{z}$ in der ToF-SIMS.

Da die Ionen nach dem Sputterprozess schon eine gewisse Energieverteilung besitzen, würde die über die Flugzeit bestimmte Masse durch unterschiedliche Startenergien verfälscht werden. Um dem entgegenzuwirken, ist in der hier verwendeten ToF-SIMS ein Reflekttron verbaut, das die beschleunigten Ionen durchlaufen müssen. Dies ist ein Ionenspiegel bei dem das elektrische Feld einen nichtverschwindenden Gradienten besitzt. Ein Ionenspiegel ist ein homogenes elektrisches Umlenkfeld, das Ionen analog zu Lichtstrahlen reflektiert. Besitzt dieses Feld jedoch einen fallenden Gradienten, so dringen Ionen höherer Startenergie tiefer ein und werden wegen der fallenden Feldstärke nicht auf die ursprüngliche Geschwindigkeit beschleunigt. Durch diesen Bremsprozess und durch die verlängerte Driftstrecke werden sie an die anderen Ionen angepasst. Darüber hinaus wird die Flugstrecke durch das Reflekttron verlängert, was das Auflösungsvermögen erhöht, die Abmessung des Messgeräts jedoch nicht nennenswert vergrößert.

Je nach Messaufgabe besitzt die SIMS verschiedene Standardeinstellungen (*engl. settings*) [Ham17], von denen drei hier vorgestellt werden. Die drei Einstellungen sind veranschaulicht in Abbildung 5.

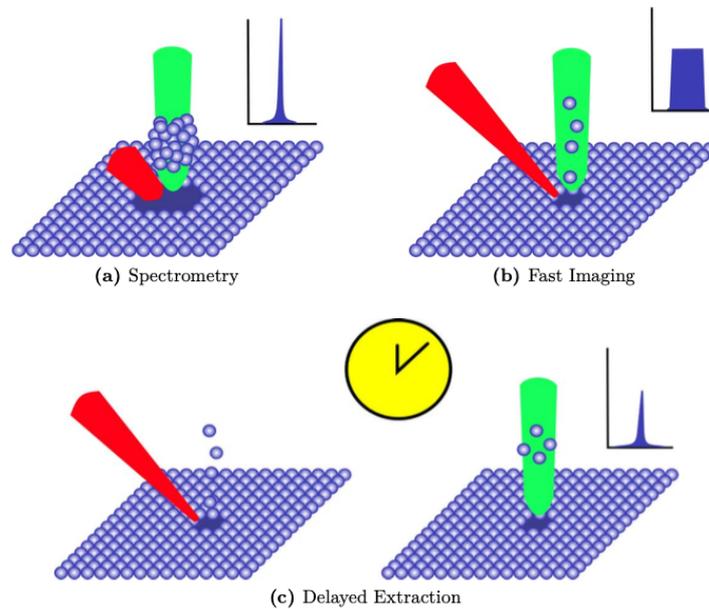


Abbildung 5: LMIG und Analyse Einstellungsmöglichkeiten bei der ToF-SIMS Messung [Ham17]

Spectrometry-Setting

Das *Spectrometry-Setting* ist die Standardeinstellung der verwendeten ToF-SIMS. Bei dieser Einstellung werden kurze Primärionenpulse auf die Probe geschossen. Die örtliche Auflösung ist dabei mit ungefähr $0,3 \mu\text{m}$ relativ gering. Sie dient dazu, eine möglichst hohe Massenauflösung von $\frac{m}{\Delta m} = 12000$ zu erreichen [Ham17]. Sie ist jedoch aufgrund der geringen lateralen Auflösung schlecht, um Informationen über die örtliche Struktur des Partikels herauszufinden. Das Prinzip ist veranschaulicht in Abbildung 5 Teil a).

Fast Imaging

Die Einstellung *Fast Imaging* liefert hingegen eine hohe örtliche Auflösung, jedoch eine relativ geringe Massenauflösung. Dies wird dadurch erreicht, dass ein langer schwächerer Ionenpuls auf einen Punkt der Probe fokussiert wird, siehe Abbildung 5 Teil b).

Delayed Extraction

Die *Delayed Extraction* ist eine Einstellung des Flugzeit Analysators, welche zusätzlich gewählt werden kann. Sie ist veranschaulicht in Abbildung 5 Teil c). Bei ihr wird die Probe mit dem Ionenstrahl beschossen und erst nach einer einstellbaren Wartezeit werden die Ionen durch ein elektrisches Feld in den Flugzeitanalysator transferiert. Dies liefert einen exakten Startzeitpunkt für die Flugzeitmessung. Außerdem ist durch die Wartezeit der Anfangsimpuls der Ionen nach dem Sputtern vernachlässigbar. Dies verbessert die Massenauflösung im *Fast Imaging-Modus*. Im *Spectrometry-Modus* kann diese Einstellung hilfreich sein, da Proben mit einer sehr inhomogenen Geometrie, bzw. sehr unebenen Oberfläche ein stärkeres Signal geben.

Floodgun und GCIB

Damit keine unerwünschten Effekte bei der Messung durch Aufladen der Probe unter dem Ionenstrahl auftreten, besitzt die ToF-SIMS eine *Floodgun*, welche das Aufladen kompensiert. Die Aufladungseffekte können bei nichtleitenden Proben auftreten. Die *Floodgun* schießt Elektronen auf die Probe, um ein mögliches Aufladen durch die Primärionen zu kompensieren. Geschieht diese Kompensation nicht, führt die Aufladung der Probenoberfläche zu einer Ablenkung des Primärionenstrahls, was wiederum die Intensität des Messsignals drastisch reduziert.

Bei der in dieser Arbeit verwendeten ToF-SIMS gibt es neben der LMIG noch eine weitere Sputterquelle: die Argon-Cluster-Ionenkanone (*engl. Gas-Cluster-Ion-Beams*, kurz GCIB). Die GCIB beschießt die Probe mit ionisierten Argon-Clustern, welche einen Durchmesser von einigen Nanometern haben. Sie entstehen, wenn Argon von sehr hohem Druck in ein Vakuum übergeht [Swe04]. Im Vergleich zu der LMIG trägt die GCIB mehr Oberfläche von der Probe ab. Es entstehen jedoch, wie bei der LMIG, keine Schäden im Inneren der Probe. Die GCIB eignet sich daher, um die Probe vor dem Messprozess von Oberflächenverunreinigungen zu befreien.

3.2 Massenspektrum

Mit Hilfe der ToF-SIMS lässt sich das Massenspektrum der Probe messen. Abbildung 6 zeigt ein für Kernbrennstoffpartikel typisches Massenspektrum. Es wird die Signalintensität bzw. die Anzahl an Impulsen gegen das Masse-zu-Ladungs-Verhältnis $\frac{m}{z}$ aufgetragen. Für einfach geladene Ionen ist dieses Verhältnis äquivalent zur Masse.

Die Signalfäche ist proportional zur Menge der gemessenen Ionen. Der Partikel, dessen Massenspektrum in Abbildung 6 aufgetragen ist, stammt aus einer Bodenprobe aus der CEZ. Die im Spektrum gefundenen Uranisotope deuten darauf hin, dass es sich um ein freigesetztes Brennstofffragment des Kernreaktors handelt. Das komplette Spektrum zeigt, dass es zu fast jeder Massenzahl ein Signal gibt. Links im Spektrum sind die Alkalimetalle mit den höchsten Peaks bei Natrium mit $\frac{m}{z}$ 23 und Kalium bei $\frac{m}{z}$ 39. Ein weiterer hoher Peak im linken Abschnitt ist Eisen bei einem Ladungs-zu-Masseverhältnis von 56. Da diese Elemente im Sputterprozess effizient ionisiert werden und in Umweltproben verhältnismäßig häufig vorkommen, weisen sie hohe Intensitäten im Spektrum auf. Im mittleren Teil des Spektrums sind die aus dem Kernbrennstoff gebildeten Spaltprodukte zu erkennen. Ein Maximum der Spaltausbeute sollte um die atomaren Massen 90 und 100 liegen und ein weiteres Maximum, das gut in der Abbildung 6 zu sehen ist, um die Massen 140. Bei dem zweiten Maximum ist zu erkennen, dass sich die Abfolge der Peaks bei einem um 16 erhöhten Ladungs-zu-Masseverhältnis wiederholt. Bei diesen Peaks handelt es sich um die jeweiligen Oxide der Spaltprodukte, da Sauerstoff eine Massenzahl von 16 hat. Der Peak bei $\frac{m}{z}$ 209 entsteht durch das zum Sputtern verwendete Bismut. Im Bereich der hohen Masse-zu-Ladungs-Verhältnisse dominieren die Uranisotope mit dem Hauptpeak bei $\frac{m}{z}$ 238, sowie die zwei Uranoxide UO^+ und UO_2^+ mit der Masse $\frac{m}{z}$ 254 und $\frac{m}{z}$ 270. Der Fokus der ToF-SIMS Messung liegt in dieser Arbeit ausschließlich auf den Uranisotopen.

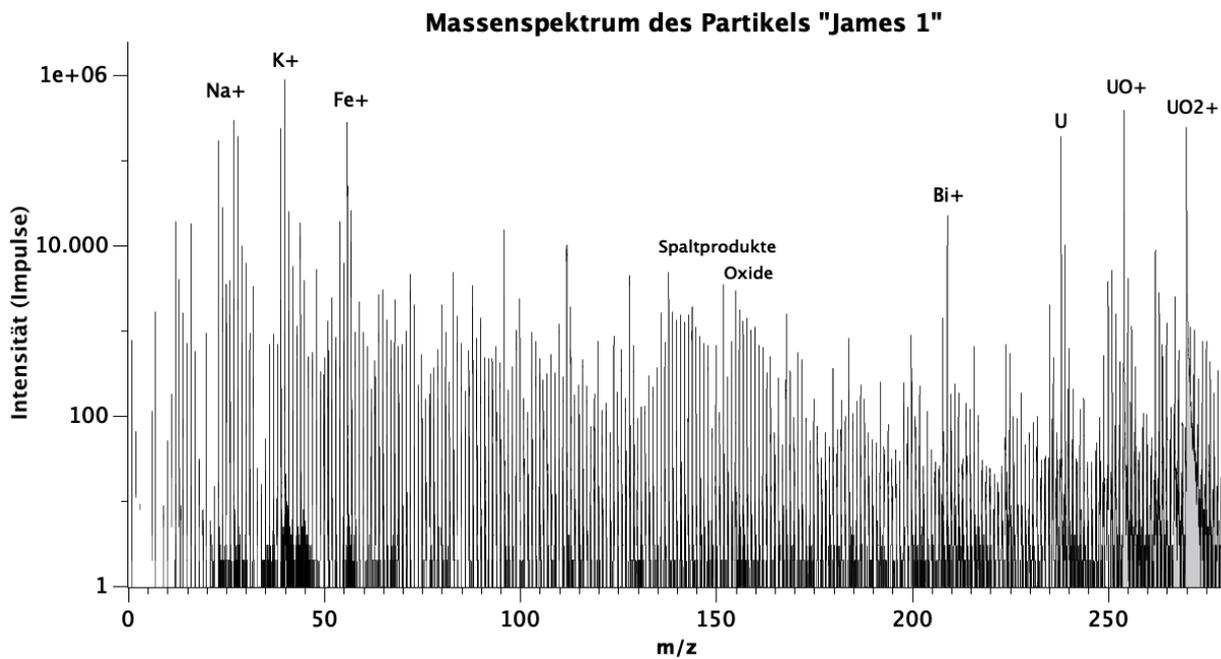


Abbildung 6: Ein mit der ToF-SIMS aufgenommenes Massenspektrum des Partikels James-1, welches aus dem Kernbrennstoff des havarierten Reaktors in CEZ besteht. Links im Spektrum sind die gut ionisierbaren Alkalimetalle und Eisen zu erkennen. Im mittleren Bereich zwischen $\frac{m}{z}$ 90 – 100 und um der $\frac{m}{z}$ 140 liegen die Spaltprodukte und hinter diesen folgt ein Bereich mit den Oxiden der jeweiligen Spaltprodukte. Des Weiteren ist Bismut auf der $\frac{m}{z}$ 209 zu erkennen sowie als Hauptpeaks die Uranisotope und Uranoxide.

4 Partikel

Es wurden Proben innerhalb der Sperrzone (*Chernobyl-Exclusion-Zone*, kurz CEZ), welche um den havarierten Reaktor liegt, entnommen. Entnahmeort war zum einen ein Bohrkern, der im Marktplatz von der evakuierten Stadt Prypjat liegt. Zum anderen wurde Moos aus dem umliegenden Nadelwald genommen, der sich westlich von dem Reaktor befindet. Dieser wird wegen der roten Färbung der Nadeln, welche nach dem Reaktorunglück auftrat, Roter Wald genannt. Außerdem wurden in der Stadt Kopachi Sedimente aus dem zum Reaktor gehörenden Kühlteich sowie Proben aus dem Boden eines Versuchsfeldes genommen [L.L18].

Nach gründlicher Vorbereitung dieser Proben wurden die radioaktiven Partikel mithilfe eines Rasterelektronenmikroskops (kurz REM) gefunden und anschließend mittels eines Mikromanipulators auf Wolframnadeln geklebt.

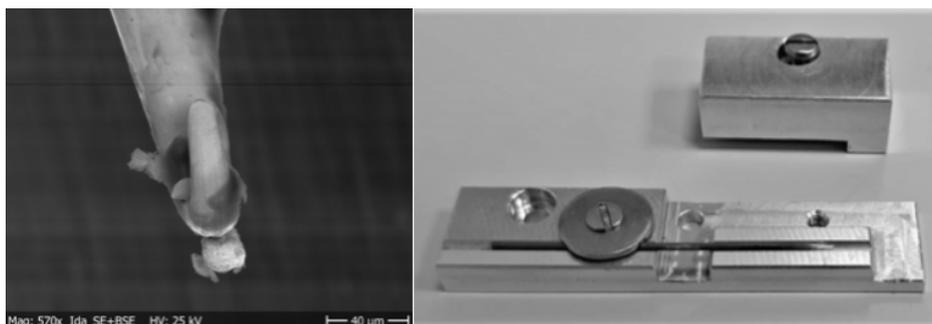


Abbildung 7: Bild wurde aus der Arbeit von L. Leifermann entnommen. Links abgebildet ist eine Aufnahme eines Partikels, welcher auf der Nadel haftet. Rechts ist die Nadelhalterung zu sehen [L.L20].

Um sichere Transportwege und eine komfortable Nutzung zu gewährleisten, wird die Nadel auf eine dafür angefertigte Nadelhalterung mit Deckel gesetzt. Zu sehen ist dies in der Abbildung 7. Das ist jedoch nicht Bestandteil dieser Arbeit sondern wird ausführlich in der Arbeit [L.L20] erklärt. Jeder gefundene Partikel wurde mit einem Namen und einer Nummer gekennzeichnet und seinem Ursprungsort zugeordnet (siehe Tabelle 1).

Tabelle 1: Eine Auflistung der gemessenen Partikel anhand ihres Ursprungs-ortes. Gefunden und extrahiert wurden die Partikel von Tobias Weissenborn und Laura Leifermann.

Name	Nr.	Ursprungsort
Dumah	BK-012	Bohrkern
Ariel	BK-09	Bohrkern
Eleleth	BK-013	Bohrkern
Gabriel	BK-015	Bohrkern
Camael	BK-011	Bohrkern
Fanuel	BK-014	Bohrkern
James-1	CP-08-1	Kühlteich
James-2	CP-08-2	Kühlteich
Jaqun	BK-018	Bohrkern
Ophaniel	BK-023	Bohrkern
Lykos	KOP-012	Kopachi
Alice	RW-013	Roter Wald
Pahalia	BK-024	Bohrkern
Seraphiel	BK-026	Bohrkern

Überwiegend wurden in dieser Arbeit Partikel aus dem Bohrkern verwendet. Zwei Partikel kommen aus dem Kühlteich, einer aus Kopachi und einer aus dem Roten Wald. Die Auswahl richtete sich nach der vorangehenden Extrahierung.

5 Messungen mit dem Gammaspektrometer

Die gammaspektrometrischen Messungen erfolgen mit einem coaxialen Halbleiterdetektor. Die Nuklide, die gemessen werden sollen, müssen in der Spaltausbeute ausreichend vorhanden sein. Für die verwendeten Partikel sind es zum einen Cs-137 mit 661 keV als Hauptnuklid mit der größten Aktivität, Am-241 mit 59 keV als Tochter von Plutonium und Eu-154 mit 123 keV. Zur genauen Identifizierung der Nuklide und um danach ihre Aktivität zu bestimmen, muss vor Messbeginn, wie in Kapitel 2.3 beschrieben, der Detektor kalibriert werden. Als Detektor wurde der Germaniumdetektor Nr. 5 verwendet. Dieser hat eine gute Effizienz im niedrigen Energiebereich, so dass Americium bei 59 keV gemessen werden kann. Die technischen Spezifikationen des verwendeten Detektors befinden sich im Anhang in Tabelle 9.

Damit die Partikel sinnvoll in dem Gammadetektor positioniert werden können, gibt es eine spezielle Probeträgerhalterung für die Nadel, wodurch die Partikel zentriert und immer auf der selben Höhe detektiert werden können. Diese Probenhalterung ist in Abbildung 8 zu sehen.

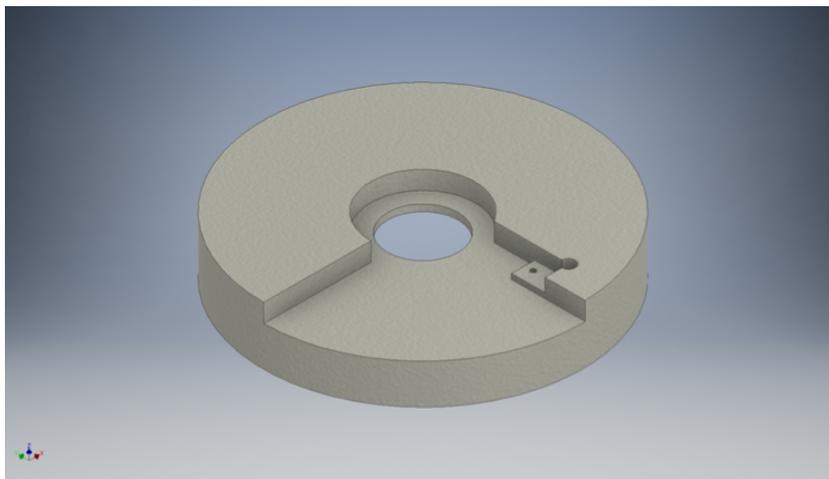


Abbildung 8: Der Probeträgerhalter für die Gammamessungen. Der Nadelträger ist auf diesen Adapter abgestimmt, wodurch der Partikel mittig in den Detektor gelegt werden kann [Bos20].

5.1 Kalibrierung

Zur Kalibrierung des Detektors werden Referenzquellen benutzt. Es handelt sich um radioaktive Standardpräparate, welche in Form von Punktquellen gegeben sind. Die verwendeten Standards sind wie folgt gekennzeichnet:

PTB 569-81 - Am-241-07

PTB 246-83 - Cs-137-06

PTB 228-94 - Eu-152-03.

Auszüge der Referenzquellen und ihre vollständigen Daten sind im Anhang Kapitel 9.1 in den Abbildungen 21, 22 und 23 zu finden. Zum Einsetzen der Punktkalibrierquellen gibt es in der Probenträgerhalterung eine Vertiefung, sodass die kreisförmigen Referenzproben platziert werden können. Da kein Standardpräparat für Eu-154 zur Verfügung stand, wird Eu-152 als Referenzquelle verwendet. Der Energiepeak von Eu-152 liegt bei 121,78 keV und für Eu-154 bei 123,07 keV. Die Differenz durch den geringen Energieunterschied kann an dieser Stelle vernachlässigt werden. Die unterschiedlichen Emissionswahrscheinlichkeiten werden in der Auswertung berücksichtigt.

Für die in der Arbeit dokumentierten Messreihen reicht es den Wirkungsgrad auf den Energien der „Full-Energy-Peaks“ dieser drei Nuklide zu kalibrieren. Dies liegt daran, dass nur auf diese Nuklide eingegangen wird. Die Jäckel-Westmeier-Funktion wird daher nicht zum Interpolieren benötigt.

5.2 Auswertungen

Nach durchgeführter Kalibrierung wurden die Partikel gamma-spektrometrisch untersucht. Der Träger, auf dem die Nadel mit dem Partikel sitzt, wurde auf dem Probenträgerhalter platziert. Folgend wurde der Partikel gamma-spektrometrisch gemessen. Die Auswertung der Messungen erfolgte mit dem Programm GENIE 2000. Der Untergrund wird bestimmt und innerhalb des Programms manuell abgezogen. Dies ist notwendig, da trotz guter Abschirmung eine Umgebungsstrahlung im Detektor vorhanden ist. Außerdem wird durch eine abschließende Untergrundmessung festgestellt, ob es während der Messreihe durch abgefallene Partikel zu einer Verunreinigung des Detektors gekommen ist. Im Durchschnitt war jeder Partikel etwa eine Woche lang im Detektor. In der Abbildung 9 ist ein Gammaspektrum zu sehen. Bei langen Messungen, wie dieser, erkennt man gut, wie im theoretischen Teil beschrieben, die Comptonkante, den *Full-Energy-Peak* von Cs-137, den *Backscatter-Peak* und bei niedrigen Energien die Bremsstrahlung und die Röntgenlinien. Die *Single-* und *Double-Escape-Peaks* sind nicht zu erkennen, da keine Gammastrahlung oberhalb einer Energie von 1022 keV von den Proben emittiert wird. Bei Betrachtung mit höherer Auflösung erscheint der *Full-Energy-Peak* von Am-241 und Eu-154.

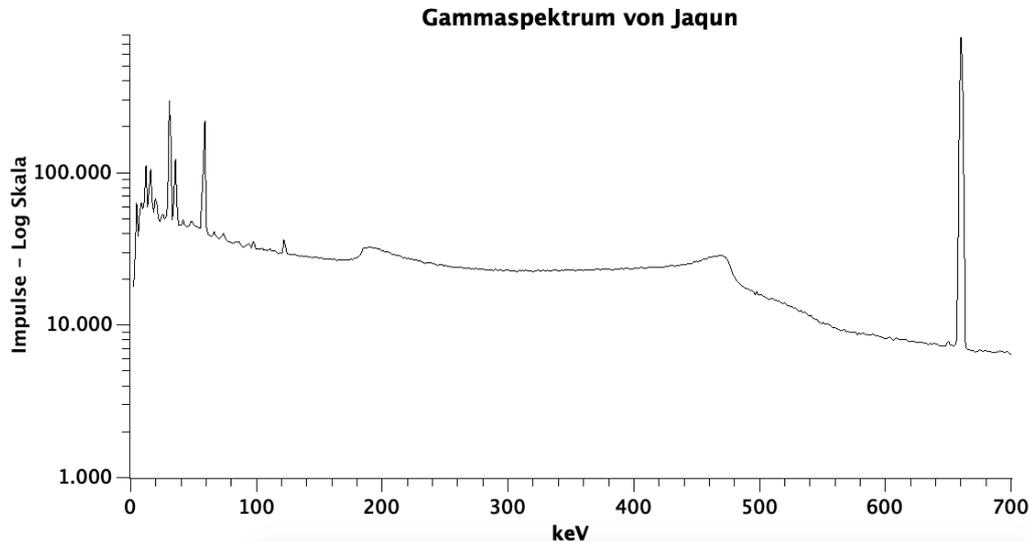


Abbildung 9: Aufnahme des Gammaskpektrums von dem Partikel Jaqun. Zu erkennen ist die Comptonkante, der Full-Energy-Peak von Cs-137, der Backscatter-Peak und bei niedrigen Energien die Bremsstrahlung, sowie die Röntgenlinien.

Mit der Gleichung (6) wurden die Aktivitäten berechnet. Die Nettopeakflächen und die Zeit wurden automatisch von GENIE 2000 bestimmt. Aus der Nuklidkarte [Sec] wurde die Emissionswahrscheinlichkeit entnommen und für die weiteren Rechnungen, wie die Berechnung des Wirkungsgrades, verwendet. Um die Partikel trotz ihrer unterschiedlichen Beschaffenheit nach den Messungen vergleichen zu können, wird die Aktivitätskonzentration $A_{\text{konzentration}}$ berechnet. Diese ist das Verhältnis der Aktivität zum Volumen des Partikels,

$$A_{\text{konzentration}} = \frac{A}{V}. \quad (14)$$

Die Aktivitätskonzentration wird in $\frac{\text{Bq}}{\mu\text{m}^3}$ angegeben.

Zur Messung des Volumens dienen aufgenommene zweidimensionale Bilder der Partikel, welche ausschließlich mit dem REM aufgenommen wurden. Auf Grund der kleinen Größe, welche im Mikrometerbereich liegt, ist es schwer, die Maße der Teilchen zu messen. Deswegen werden die Partikel jeweils durch ein Quadervolumen oder ein Kugelvolumen angenähert. Gegebenenfalls wird zwischen dem Volumen von der größten Kugel, die im Teilchen enthalten ist, und dem kleinsten Rechteck, welches das Teilchen

enthält, gemittelt. Anschaulich wird das Verfahren durch ein Beispiel in Abbildung 10 dargestellt. Eine Länge ist als Maßstab auf den Bildern gegeben. Somit werden Höhe, Breite und Länge des Partikels mit großer Unsicherheit abgelesen. Offensichtlich ist das Partikelvolumen nicht durch das Volumen eines Quaders oder einer Kugel gegeben. Bei jedem Partikel wird geschaut, welches Volumen den Partikel am besten approximiert. In der Tabelle 2 ist das Ergebnis dieses Approximationsverfahrens für den Partikel Lykos zu entnehmen.

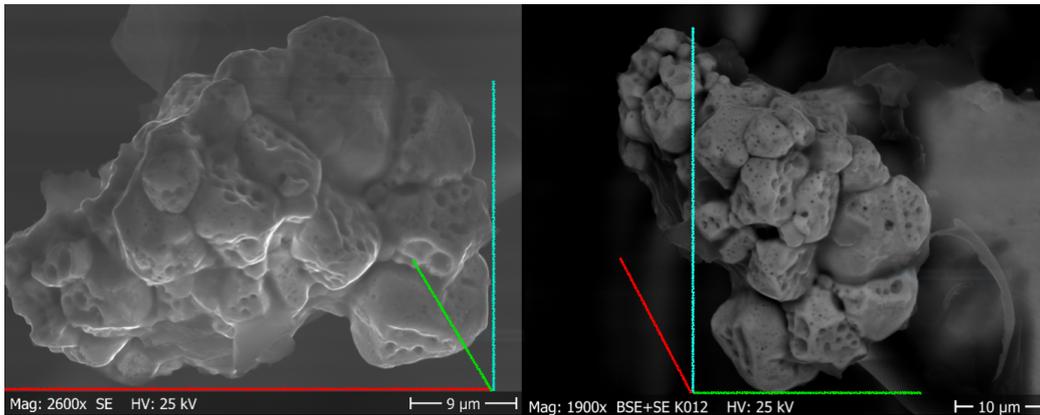


Abbildung 10: Bilder des Partikels Lykos *K010*, aufgenommen von Tobias Weissenborn. Die zusätzlich eingezeichneten Achsen dienen zur Verdeutlichung der Abschätzung der Längen. Die Höhe ist in Blau eingezeichnet, die Länge in Grün und die rote Achse stellt die Breite dar. Mehrere verschiedene Perspektiven helfen, das Volumen zu konkretisieren. Für die Kugel würde man die kleinste Länge als Durchmesser verwenden. In diesem Fall wurde zwischen Quader und Kugel gemittelt.

Tabelle 2: Das berechnete Volumen von Lykos und seine Unsicherheit. Maße entnommen von Abbildung 10.

Partikel	Höhe in μm	Länge in μm	Breite in μm	Volumen in μm^3	Δ Volumen in μm^3
Lykos	31	30	32	29760	5952

5.3 Messunsicherheiten

Messungen sind immer mit Fehlern behaftet, deswegen ist es wichtig, Messunsicherheiten zu berücksichtigen und Statistik zu betreiben. Bei den

Standardpräparaten für die Kalibrierung sind relative Unsicherheiten mit angegeben. Hier wird beachtet, dass die relative Unsicherheit, je nach Präparat, durch ein Vertrauensniveau von 99 Prozent bzw. die dreifache Standardabweichung gegeben ist. Die zu den Nettopeakflächen gehörigen Unsicherheiten werden von GENIE 2000 bestimmt.

Der Fehler wurde für den Wirkungsgrad und anschließend für die Aktivität bestimmt [JCG08]. Der Fehler der Aktivität ist gegeben durch:

$$\Delta(A) = \sqrt{(\Delta_{rel}P(E))^2 + (\Delta_{rel}A_{Ref})^2 + (\Delta_{rel}n_{np}^{Ref})^2} \quad (15)$$

Δ_{rel} bezeichnet den relativen Fehler der jeweiligen Größe, A_{Ref} ist die Aktivität der Referenzquelle und n_{np}^{Ref} bezeichnet die Nettopeakfläche am Kalibrierungstag.

Die Fehler von Funktionen von Messgrößen lassen sich mithilfe der Gaußschen Fehlerfortpflanzung berechnen [Sch13],:

$$\Delta F(\vec{x}) = \sqrt{\sum_k \left(\frac{\partial}{\partial x_k} F(\vec{x}) \Delta(x_k) \right)^2}. \quad (16)$$

Anwendung findet die Gleichung (16) bei der Bestimmung der Unsicherheit der Aktivitätskonzentration. Offensichtlich sind die Messgrößen gegeben durch Aktivität und Volumen,:

$$\Delta(A_{konzentration}) = \sqrt{\left(\frac{\Delta A}{V} \right)^2 + \left(\frac{A \cdot \Delta V}{V^2} \right)^2}. \quad (17)$$

Hier kommt es zu erhöhten Unsicherheiten, da das Volumen aufgrund eines zweidimensionalen Bildes abgeschätzt wird.

5.4 Messungen

In diesem Abschnitt werden die Messwerte der Partikel, welche gamma-spektrometrisch untersucht wurden, zusammengefasst. Die Aktivität wurde ausgewertet und in der Tabelle 3 dargestellt. Das Volumen kann im Anhang aus der Tabelle 10 entnommen werden. Die Auswertung der Aktivitätskonzentration ist in der Tabelle 4 zu sehen. Es werden zu allen Werten die Unsicherheiten angegeben, die im vorherigen Kapitel 5.3 besprochen wurden.

Die Aktivitäten wurden in Abbildung 11 grafisch dargestellt. Ophaniel, Jaqun und Ariel haben somit die größte Cs-137 Aktivität, während James die Kleinste aufweist. Die Größenordnung der Aktivität liegt zwischen 10^{-3} bis 10^{-6} Bq. Der Am-241 Anteil bei James 1 und James 2 liegt über dem von Cs-137. Auffällig ist, dass bei mehreren Partikeln kein Europium Peak gefunden wurde. Bei diesen handelt es sich um die kleinsten der Messreihe (siehe Tabelle 10), sodass vermutlich das Europiumsignal zu schwach war. In Abbildung 12 sind die auf Cs-137 normierten Werte von Am-241 und Eu-154 zu sehen. Die Partikel James-1 und James-2 haben die größten Werte. Dies liegt an der, durch die Auslaugung verursachten, geringen Cs-137 Konzentrationen, auf welches in Kapitel 7 genauer eingegangen wird.

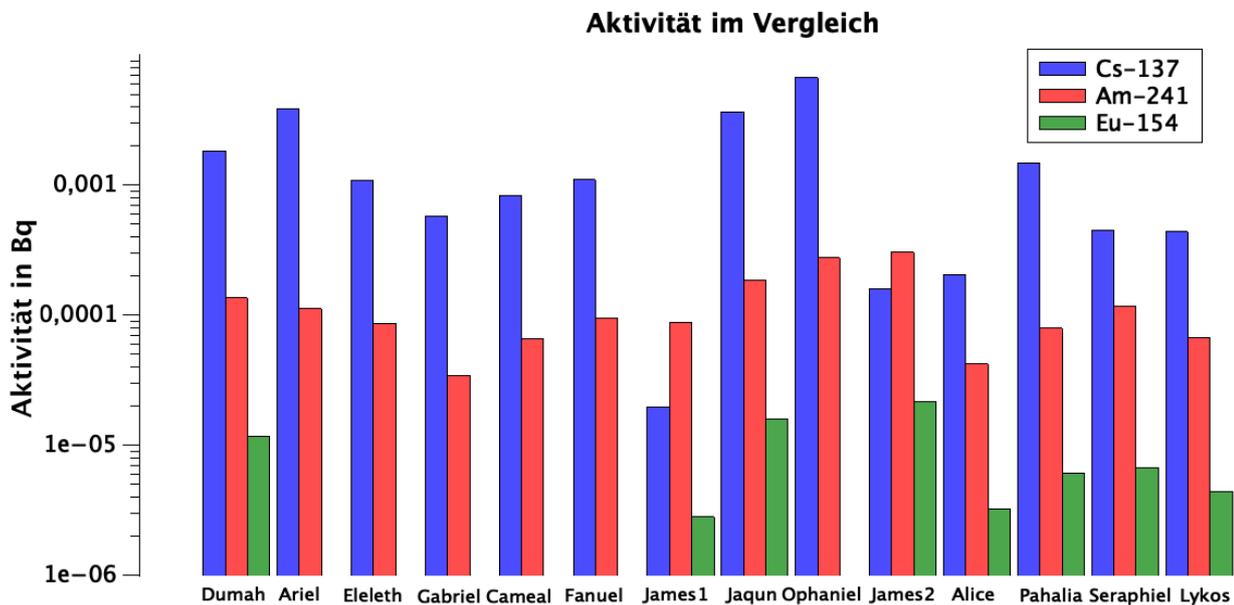


Abbildung 11: Die Aktivität von Cs-137, Am-241 und Eu-154 auf einer logarithmischen Skala aufgetragen.

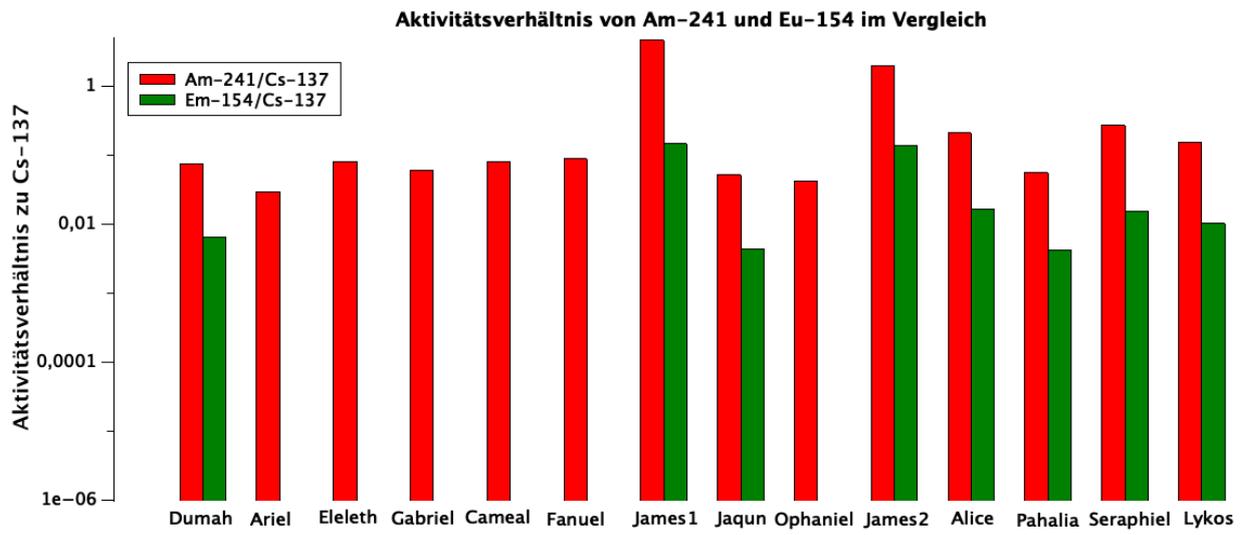


Abbildung 12: Das Verhältnis von Am-241 und Eu-154 zu Cs-137.

Tabelle 3: Ausgewertet wurde die jeweilige Aktivität. Der absolute Fehler wurde hier mit angegeben. Weitere Partikel, insbesondere, die ohne Europium, sind in Tabelle 11 zu finden.

Nuklide	Am-241	Cs-137	Eu-154
Dumah			
Aktivität in Bq	4,607	62,140	0,397
$\Delta_{absolut}$ der Aktivität	0,033	0,407	0,022
James			
Aktivität in Bq	0,300	0,067	0,025
$\Delta_{absolut}$ der Aktivität	0,003	0,006	0,003
Jaqun			
Aktivität in Bq	11,795	232,726	1,007
$\Delta_{absolut}$ der Aktivität	0,073	1,504	0,025
Ophaniel			
Aktivität in Bq	0,311	7,527	$< lod$
$\Delta_{absolut}$ der Aktivität	0,003	0,053	
James2			
Aktivität in Bq	0,994	0,518	0,070
$\Delta_{absolut}$ der Aktivität	0,007	0,013	0,004
Alice			
Aktivität in Bq	0,835	4,035	0,064
$\Delta_{absolut}$ der Aktivität	0,005	0,028	0,003
Pahalia			
Aktivität in Bq	2,117	39,289	0,163
$\Delta_{absolut}$ der Aktivität	0,018	0,259	0,015
Seraphiel			
Aktivität in Bq	0,280	1,056	0,016
$\Delta_{absolut}$ der Aktivität	0,003	0,013	0,004
Lykos			
Aktivität in Bq	1,829	17,239	0,121
$\Delta_{absolut}$ der Aktivität	0,020	0,126	0,017

Tabelle 4: Gelistet ist hier die Aktivitätskonzentration zu den jeweiligen Partikeln. Alle Partikel sind in der Tabelle 12 zu finden.

Partikel/ Nuklide	Aktivitätskonzentra- tion Bq/ μm^3	Δ Aktivitätskonzentra- tion Bq/ μm^3
Dumah		
Cs-137	1,824E-03	7,298E-04
Am-241	1,352E-04	5,411E-05
Eu-154	1,166E-05	4,706E-06
James		
Cs-137	1,779E-05	3,953E-06
Am-241	7,990E-05	1,600E-05
Eu-154	2,545E-06	1,525E-06
Jaqun		
Cs-137	3,636E-03	7,276E-04
Am-241	1,843E-04	3,688E-05
Eu-154	1,574E-05	3,172E-06
Ophaniel		
Cs-137	6,645E-03	2,659E-03
Am-241	2,744E-04	1,098E-04
James2		
Cs-137	3,094E-04	1,240E-04
Am-241	5,931E-04	2,373E-04
Eu-154	4,203E-05	1,702E-05
Pahalia		
Cs-137	1,460E-03	5,840E-04
Am-241	7,867E-05	3,148E-05
Eu-154	6,072E-06	2,492E-06
Seraphiel		
Cs-137	4,411E-04	5,550E-06
Am-241	1,167E-04	1,251E-06
Eu-154	6,669E-06	1,522E-06
Lykos		
Cs-137	4,344E-04	1,585E-05
Am-241	6,620E-05	2,305E-04
Eu-154	4,377E-06	1,524E-05

6 ToF-SIMS Messungen

Die Untersuchung der Oberflächen der Partikeln erfolgt mit einer *TOF-SIMS 5* von der Firma IONTOF GmbH. Zum Auswerten und Bearbeiten der Daten wird das Programm *Surface Lab* benutzt. Um die Partikel in der ToF-SIMS zu messen, wird die Nadelhalterung auf ein sogenanntes *Topmount* geschraubt. Das Topmount ist eine für die ToF-SIMS konstruierte Probenhalterung (siehe Abbildung 13). Diese wird über eine Vakuumschleuse in die Hauptkammer geführt und die Probe über eine Steuervorrichtung bewegt, sodass durch eine Kamera und einen Laser die Nadel angefahren wird und der Partikel mithilfe eines Ionenbildes gefunden werden kann. Die ToF-SIMS misst, wie im Theorieteil (Kapitel 3) besprochen, das Massenspektrum der Partikel.

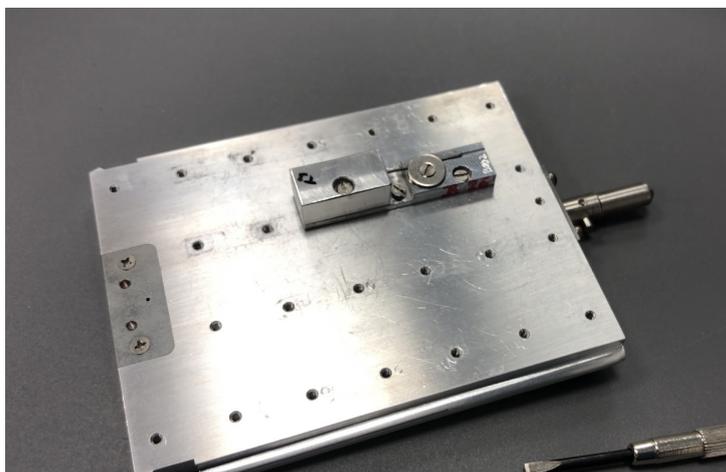


Abbildung 13: Das Topmount, auf das die Nadelhalterung wie gewünscht angeschraubt werden kann.

6.1 Einstellungen

Damit es zu einer Analyse der Probe kommen kann, müssen verschiedene Parameter und Einstellungen getätigt werden. In vergangenen Arbeiten wurde bereits an bestmöglichen Grundeinstellungen gearbeitet. In dieser Arbeit wurden die Standard bzw. Voreinstellungen übernommen [M.B18].

Die Primärionenquelle war bei jeder Messung auf den *Spectrometry-Modus* gesetzt und wurde in Kombination mit der *Delayed Extraction* verwendet. Andere Arten der Analyseeinstellung wie der *Fast Imaging Modus* werden nicht benutzt, da keine örtlich hochauflösenden Aufnahmen

gebraucht wurden.

Während des Extraktionsprozesses kann es dazu kommen, dass der Partikel mit einer Schicht Kleber ummantelt wird. Je nach Schichtdicke führt dies zu einem Signalverlust, der den Partikel schwer auffindbar macht. Da ein Uransignal in der Größenordnung ab etwa 10^3 Impulsen nötig ist, um aussagekräftige Messergebnisse zu erhalten, wird mittels einer zusätzlichen Sputterquelle gearbeitet, die diese Schicht gezielt abträgt. So kann man mit der *GCIB* eine Probenoberfläche erzeugen, die nach einiger Zeit ein ausreichendes Signal liefert.

Das Kalibrieren des aufgenommenen Massenspektrums, durch Identifizieren der Peaks erfolgt manuell. Angefangen wird mit dem ersten Peak, der zu H^+ gehören muss. Des Weiteren können Bismut 209, sowie die Wolframnadel mit Wolfram 184 als Kalibrierungspeak verwendet werden, wobei das Bismut aus der verwendeten Primärionenquelle kommt. Um eine optimale Auflösung der Peaks zu erhalten, werden in den Einstellungen an einer sogenannten *Lense* (zu deutsch: Linse) und an einer *VDP* (Variable-drift-path) des Analysators feinjustiert. Diese Optimierungen stellen sicher, dass die Sekundärionen korrekt gebündelt und zeitlich passend auf den Detektor fokussiert werden, was eine hohe Transmission und eine hohe Massenauflösung ermöglicht [Q.P15]. Nach einer Messung von 1-2 Stunden ergibt sich bei dem Hauptisotop Uran 238 eine Bruttopeakfläche von ungefähr einer Million Impulse. Danach kann das Spektrum mit einem von *Surface Lab* gegebenen Editor bearbeitet werden, wodurch das Uransignal von Störungen bereinigt wird.

6.2 Auswertung

In der Abbildung 14 ist ein gemessenes Massenspektrum zu sehen. Gut zu erkennen sind die Hauptpeaks U-238 und die Uranisotope U-234, U-235, U-236, welche mit verschiedenen Farben gekennzeichnet wurden. Bei U-236 und bei $\frac{m}{z}$ 237 ist ein links, neben der nominellen Masse, auftauchender extra Peak zu erkennen. Dadurch, dass Umweltproben gemessen werden, treten auch zahlreiche Kohlenstoff und Siliziumverbindungen im Spektrum auf, jedoch lassen sich diese durch optimieren der Massenauflösung von dem Uransignal trennen. Bei der Masse 237 handelt es sich hier nicht mehr um Uran, da U-237 sehr kurzlebig ist. Deswegen muss es Neptunium 237 mit einer Halbwertszeit von $2,144 \cdot 10^6$ Jahren sein, welches aus U-237 durch Betazerfall entsteht. Genau so kurzlebig wie U-237 ist U-239, welches schnell zu Neptunium zerfällt und anschließend mit einer Halbwertszeit von 2,4 Tagen durch

Betazerfall in das langlebige Pu-239 umgewandelt wird. In diesem Peak sollten auch Hydridanteile von U-238 enthalten sein, wodurch der Peak größer erscheint. Des Weiteren ist in der Massenzahl 240 und 242 überwiegend Plutonium enthalten. Bei der Massenzahl 241 handelt es sich um Am-241 und Pu-241, wobei Pu-241, mit einer Halbwertszeit von 14,5 Jahren nach etwa zwei Halbwertszeiten, wenn angenommen wird, dass zu Beginn kein Am-241 vorhanden war, einen Anteil von ungefähr 1/4 belegt.

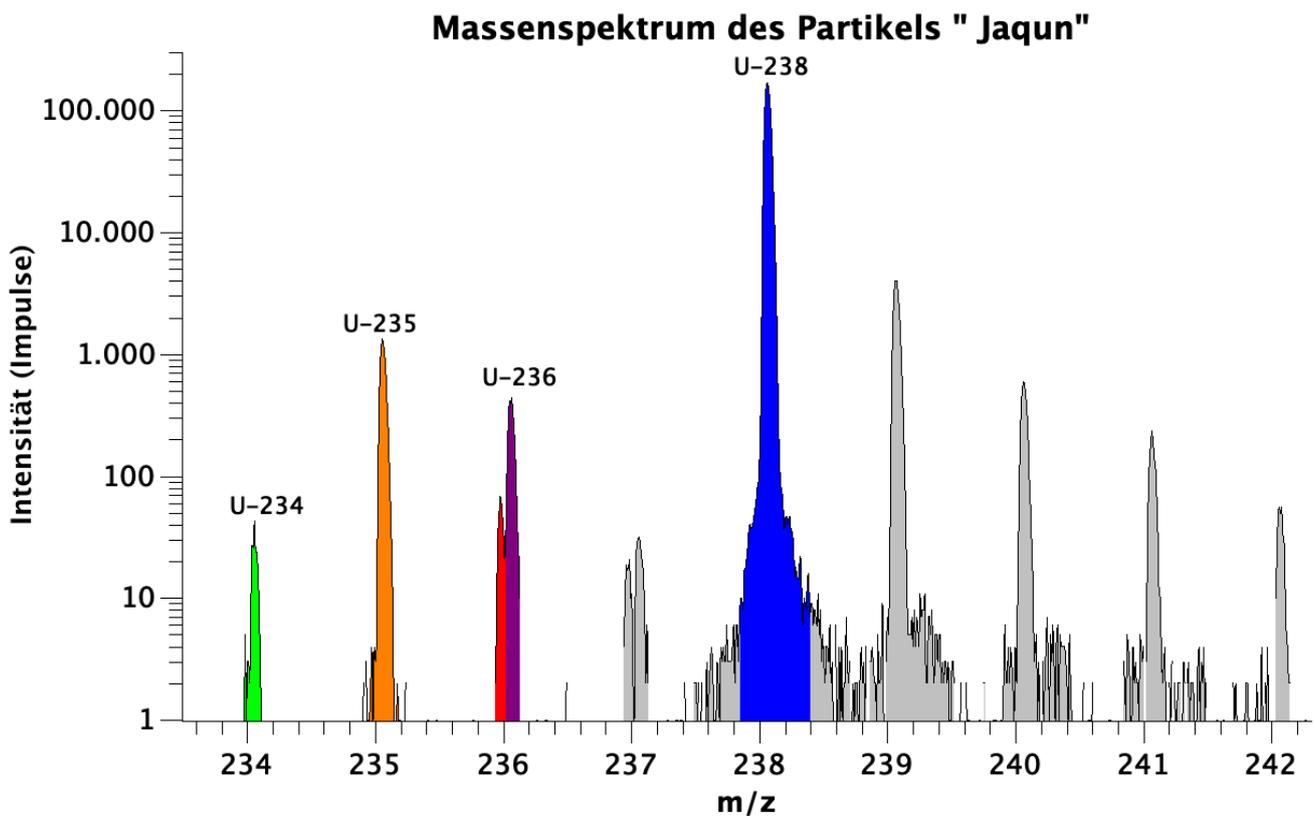


Abbildung 14: Ein mit der ToF-SIMS aufgenommenes Spektrum des Partikels Jaqu. Aufgetragen ist die Intensität und das Masse-zu-Ladungs-Verhältnis. Farblich markiert sind die zu untersuchenden Uranisotope U-234, U-235, U-236 und U-238. Bei U-236 taucht eine in Rot gekennzeichnete Störung auf, welche durch Optimierungen getrennt wird. Die weiteren Peaks sind mit Np-237 (mit einer nach links auftauchenden Störung), Pu-239, Pu-240, Am-241/Pu-241 und Pu-242 zu identifizieren.

Aus dem Massenspektrum kann die Bruttopeakfläche und der Untergrund der zu untersuchenden Uranisotope entnommen und ausgewertet werden. Es werden die Nettopeakflächen n_{np} bestimmt und die Isotopenverhältnisse über

die Summe der Anteile der einzelnen Uranisotope berechnet:

$$\rho_{Isotop} = \frac{n_{np}^{Isotop}}{\sum_{j=1}^4 n_{np}^j} \quad (18)$$

Die Isotopenverhältnisse ändern sich mit Verweildauer im Reaktor. Über die gemessenen Isotopenverhältnisse lässt sich der Abbrand berechnen. Mit dem Abbrand können Rückschlüsse über den Reaktor und über den Kernbrennstoff gezogen werden. Der Abbrand wird mit der Formel abgeschätzt [VPMB05]:

$$B = \left(\frac{\rho_{238}}{\rho_{236}} \frac{1}{4180} \right)^{-\frac{1}{0,817}} \quad (19)$$

mit der Einheit $\frac{\text{MWd}}{\text{kg U}}$.

6.3 Unsicherheiten

Der statistische Fehler der Bruttopeakfläche n_{bf} und des Untergrunds ist durch die jeweilige Wurzel gegeben [JCG08]:

$$\Delta(n_{bf}) = \sqrt{n_{bf}} \quad (20)$$

$$\Delta(\text{Untergrund}) = \sqrt{\text{Untergrund}} \quad (21)$$

Der Fehler der Nettopeakfläche n_{np} folgt sofort aus der Gaußschen Fehlerfortpflanzung (Gleichung 16):

$$\Delta(n_{np}) = \sqrt{\Delta(n_{bf})^2 + \Delta(\text{Untergrund})^2} \quad (22)$$

Die Unsicherheiten des Isotopenverhältnisses $\rho_{Isotop} = \frac{Isotop}{Gesamt}$ folgen ebenfalls als:

$$\Delta\rho_{Isotop} = \sqrt{\left(\frac{\Delta n_{np}^{(Isotop)}}{n_{np}^{(Gesamt)}} \right)^2 + \left(\frac{n_{np}^{(Isotop)} \Delta n_{np}^{(Gesamt)}}{(n_{np}^{(Gesamt)})^2} \right)^2}. \quad (23)$$

Die Unsicherheit des Isotopenverhältnisses zu U-238 $\rho_{Isotop/U-238} = \frac{\rho_{Isotop}}{\rho_{U-238}}$ ist mit selbiger Formel durch Ersetzen der Gesamtnettopeakfläche mit der von U-238 zu erhalten:

$$\Delta\rho_{\text{Isotop/U-238}} = \sqrt{\left(\frac{\Delta n_{np}^{(Isotop)}}{n_{np}^{(U-238)}}\right)^2 + \left(\frac{n_{np}^{(Isotop)} \Delta n_{np}^{(U-238)}}{(n_{np}^{(U-238)})^2}\right)^2}. \quad (24)$$

Der Fehler des Abbrands berechnet sich ebenso mit der Fehlerfortpflanzung:

$$\Delta(B) = \sqrt{\sum_k \left(\frac{\partial}{\partial x_k} B(x_k) \Delta(x_k)\right)^2} \quad (25)$$

$$= \sqrt{\left(\frac{1}{4180 \cdot 0,817} \left(\frac{1}{4180} \frac{\rho_{238}}{\rho_{236}}\right)^{-\frac{1,817}{0,817}}\right)^2 \Delta^2 \left(\frac{\rho_{238}}{\rho_{236}}\right)}. \quad (26)$$

Die Unsicherheit des Isotopenverhältnisses $\frac{\rho_{238}}{\rho_{236}}$ berechnen sich wie oben:

$$\Delta\rho_{\text{U-238/U-236}} = \sqrt{\left(\frac{\Delta n_{np}^{(U-238)}}{n_{np}^{(U-236)}}\right)^2 + \left(\frac{n_{np}^{(U-238)} \Delta n_{np}^{(U-236)}}{(n_{np}^{(U-236)})^2}\right)^2}. \quad (27)$$

6.4 Messwerte

An dieser Stelle werden Messdaten zweier Partikel präsentiert. Zum einen vom Partikel James-1 und zum anderen von seinem Bruder mit dem Namen James-2. Bei der Extrahierung zerbrach der Partikel *James* in zwei Stücke. Die Messparameter sind in der Tabelle 5 gegeben, und deren Isotopenverhältnisse befinden sich in Tabelle 6 und Tabelle 7. Da es sich um Bruchstücke desselben Brennstofffragments handelt, ist zu erwarten, dass die Isotopenverhältnisse übereinstimmen.

Tabelle 5: ToF-SIMS Einstellung bei der Messung von James-1 und James-2

Partikel	Messdatum	Auflösung	Fov in μm	Scans	Shot per pixel
James2	18.03.21	64	15x15	738	10
James1	17.03.21	128	10x10	890	2

Tabelle 6: Das Isotopenverhältnis von James-1.

Isotop	Anteil	$\Delta(\text{Anteil})$	Verhältnis zu U238	$\Delta(\text{Verhältnis zu U238})$
U234	0,0192%	0,0014%	0,00019	0,000014
U235	1,0214%	0,0097%	0,01035	0,000099
U236	0,2388%	0,0047%	0,00242	0,000048
U238	98,7205%	0,1340%	1,00000	0,001362

Tabelle 7: Das Isotopenverhältnis von James-2

Isotop	Anteil	$\Delta(\text{Anteil})$	Verhältnis zu U238	$\Delta(\text{Verhältnis zu U238})$
U234	0,0227%	0,0015%	0,00023	0,000015
U235	1,0342%	0,0096%	0,01048	0,000097
U236	0,2280%	0,0045%	0,00231	0,000046
U238	98,7152%	0,1306%	1,00000	0,001327

Im Rahmen der Unsicherheiten stimmen die Anteile von U-235 und U-238 der beiden Partikel überein, wohingegen die Isotope mit den geringsten Anteilen U-234 und U-236 minimale Abweichungen zueinander haben, was vermutlich auf unzureichende Optimierungen und Nichtbereinigung aller

Störquellen am Partikel zurückzuführen ist. Zum Beispiel hat die obere Unsicherheitsschranke von James-2 bei U-236/U-238 den Wert 0,00235 und die untere Unsicherheitsschranke von James-1 liegt bei 0,00237. Dennoch zeigen diese beiden Messungen die gute Vergleichbarkeit und Zuverlässigkeit der Messmethode um verschiedene Partikelwerte miteinander zu vergleichen. Messungen aller Partikel, die im Rahmen dieser Arbeit untersucht wurden, befinden sich in Tabelle 13 im Anhang.

Mithilfe der ToF-SIMS Messung wird der Abbrand berechnet, welcher aus der Tabelle 8 entnommen werden kann. Es wurden nicht alle gamma-spektrometrisch untersuchten Partikel gemessen. Einige Partikel hatten ein sehr kleines Volumen, sodass sie ein zu schwaches Signal bei der ToF-SIMS Analyse hatten.

Tabelle 8: Es wurde der Abbrand der gemessenen Partikel aufgetragen mit ihren Unsicherheiten

Partikel	Abbrand in $\frac{\text{MWd}}{\text{kg U}}$	Δ Abbrand in $\frac{\text{MWd}}{\text{kg U}}$
Ophaniel	8,91	0,33
James-2	14,58	0,39
James-1	15,44	0,41
Jaqun	16,83	0,45
Dumah	13,81	0,24
Alice	12,40	0,40
Lykos	11,87	0,43
Pahalia	11,38	0,18
Seraphiel	13,33	0,32
Eleleth	14,30	0,65

7 Ergebnisse und Diskussion

Im Folgenden werden die Gammamessungen grafisch dargestellt, diskutiert und bewertet. Anschließend werden die massenspektrometrischen Messungen in Bezug auf die Aktivitätskonzentration und zu Vergleichswerten betrachtet.

7.1 Vergleich der Aktivitäten

Am-241 gegen Eu-154 In Abbildung 15 sind Am-241 und Eu-154 gegeneinander aufgetragen. Americium und Europium sind chemisch dreiwertig und verhalten sich deshalb homolog [DW63]. Sie reagieren daher auf ähnliche Weise mit der Umwelt. Somit ist eine große Auslaugung beider Isotope, welche das Verhältnis ändert, unwahrscheinlich. Bei Betrachtung der Daten ergibt sich ein offensichtlicher linearer Zusammenhang. Die Isotope Am-241 und Eu-154 entstehen zwar im Reaktor unabhängig voneinander, scheinen dies aber, in dem betrachteten Bereich des Abbrands, in einem konstanten Verhältnis zueinander zu tun. Dieses konstante Verhältnis geht auf den Entstehungsprozess der Nuklide zurück. Beide werden im konstanten Verhältnis im Reaktor durch Neutroneneinfang erzeugt. In der Abbildung 15 tauchen nicht alle Partikel auf, da bei Partikeln kleiner Aktivitäten Europium nicht nachweisbar gewesen ist.

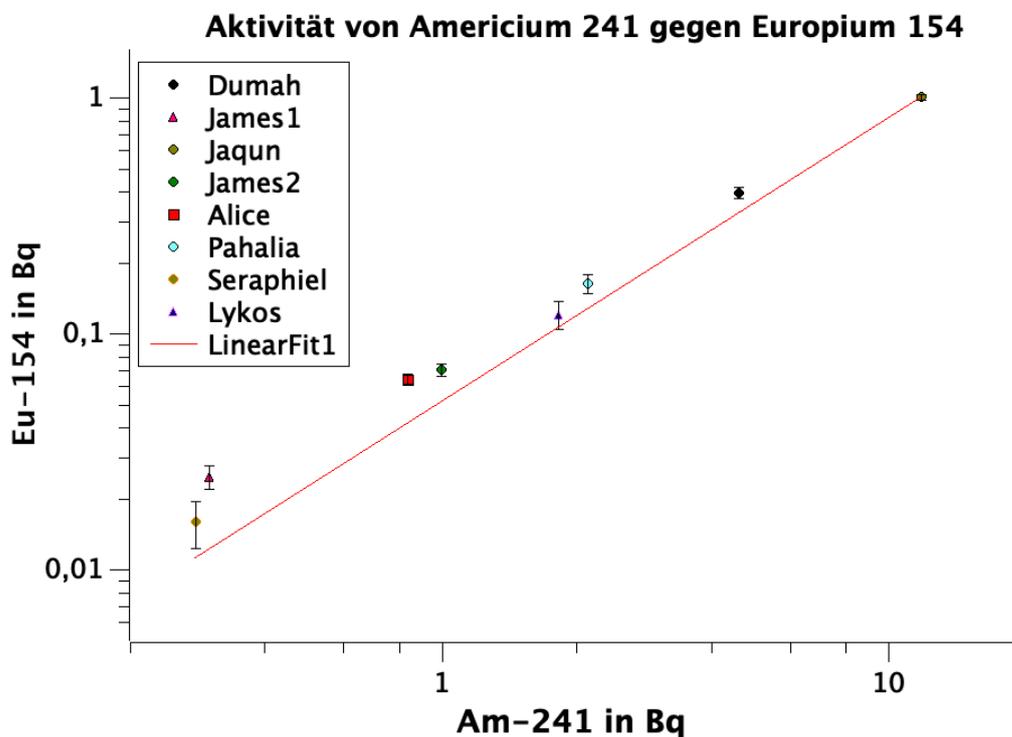


Abbildung 15: Die absoluten Aktivitäten von Eu-154 auf der X-Achse und Am-241 auf der Y-Achse. Beide Skalen sind logarithmiert. Der lineare Fit ist mit $Ax + B$ gegeben. $A = 8,65 \cdot 10^{-2}$ und $B = -1,29 \cdot 10^{-2}$. Der R^2 Wert liegt bei 99,8%.

Der doppelte logarithmische Auftrag sorgt für eine große Übersichtlichkeit der Messwerte, welche sich im Bereich von mehreren Größenordnungen befinden. Er lässt jedoch auch lineare Fits verzerrt aussehen, da minimale Abstände bei Punkten, die bei höheren Werten liegen, Auswirkungen auf die Güte des Fits haben. Es wurde vor dem doppelt logarithmischen Auftrag gefittet. Trotz Abweichungen ist zu erkennen, dass sich Europium und Americium linear verhalten und das Verhältnis die Geradensteigung ist.

Am-241 gegen Cs-137 Des Weiteren können Europium und Americium gegen Cäsium aufgetragen werden, was in Abbildung 16 und Abbildung 17 geschehen ist. Das Cs-137 entsteht ab Reaktorbeginn. Am-241 entsteht erst maßgeblich nach der Entnahme des Brennstoffs aus dem Reaktor durch Zerfall von Pu-241, welches seinerseits erst nach dreifachem Neutroneneinfang des U-238 gebildet wird. Das Verhältnis von Am-241 zu Cs-137 sollte stark vom Abbrand abhängen und nicht in einem festen Verhältnis zueinander stehen. Es ist ein nicht linearer steigender Zusammenhang zwischen Am-241

und Cs-137 zu sehen.

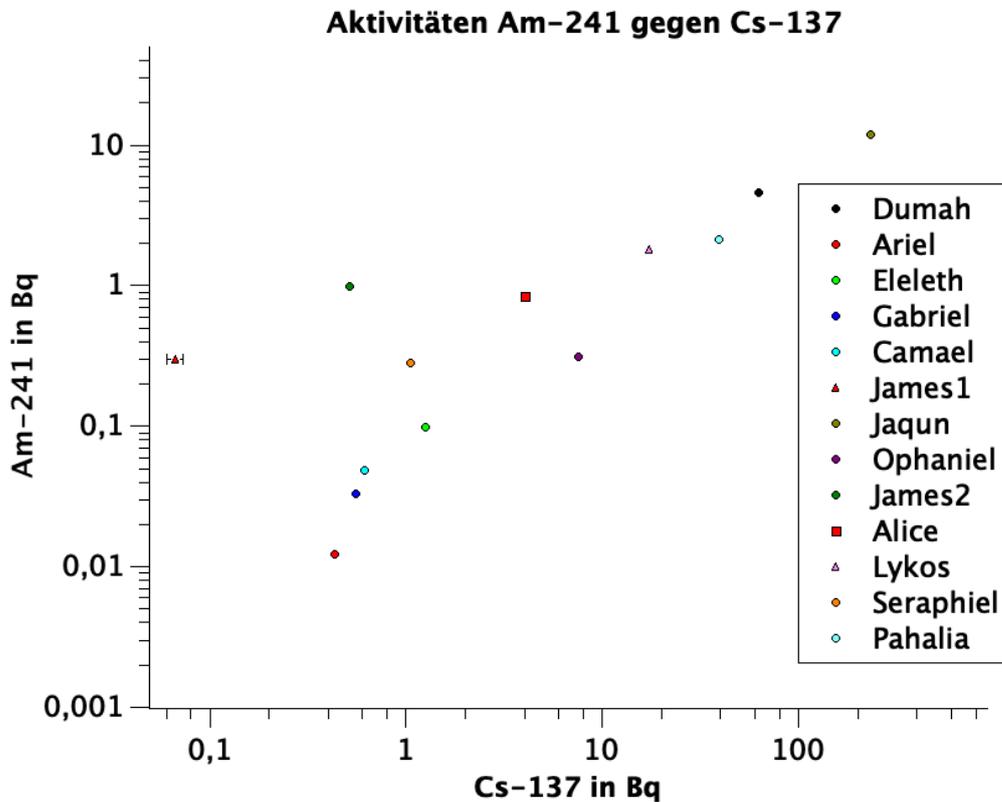


Abbildung 16: Auf der X-Achse liegt Am-241 und Cs-137 ist auf der Y-Achse. Beide Skalen sind logarithmiert.

Die Partikel verlaufen in einem zu erwartenden nicht linearen Trend. Dabei fällt das Americium Signal bei niedrigen Cs-137 Aktivitäten stark ab. Im Rahmen einer laufenden Dissertation sind bereits Auffälligkeiten bezüglich der Linearität bei zuvor gemessenen Kühlteichpartikel beschrieben worden. Die Partikel, die deutlich davon abwichen, hatten eine sehr niedrige Cs-137 Aktivität. In dieser Arbeit stammen die Partikel James 1 und James 2 aus dem Kühlteich. Ihre Am-241 Aktivitäten liegen bei kleinen Cs-137 Werten überdurchschnittlich hoch, obwohl sie einen hohen Abbrand haben, der bei etwa $15 \frac{\text{MWd}}{\text{kgU}}$ liegt. Cäsium ist sehr wasserlöslich und scheint schnell in der flüssigen Umgebung diffundiert zu sein. Bei den anderen Partikeln sieht man das zu erwartende Verhalten, dass Partikel mit hohem Abbrand ein großes Verhältnis aufweisen. Die hier gemessenen Partikel sind überwiegend vom Bohrkern. Wie sich die Partikel in dieser Umgebung verhalten, ob z.B. eine starke Auslaugung im Bohrkern statt gefunden hat, wird hier jedoch nicht

deutlich.

Eu-154 gegen Cs-137 Eu-154 verhält sich gegen Cs-137 ähnlich wie Am-241 gegen Cs-137. Dies liegt an dem linearen Verhalten von Am-241 zu Eu-154. Dass der Graph der Messwerte anders aussieht, liegt daran, dass bei Eu-154 mehrere Messwerte fehlen. Messpunkte, die in Abbildungen 16 und der Auftragung von Eu-154 gegen Cs-137 in Abbildung 17 vorhanden sind, zeigen ähnliches Verhalten.

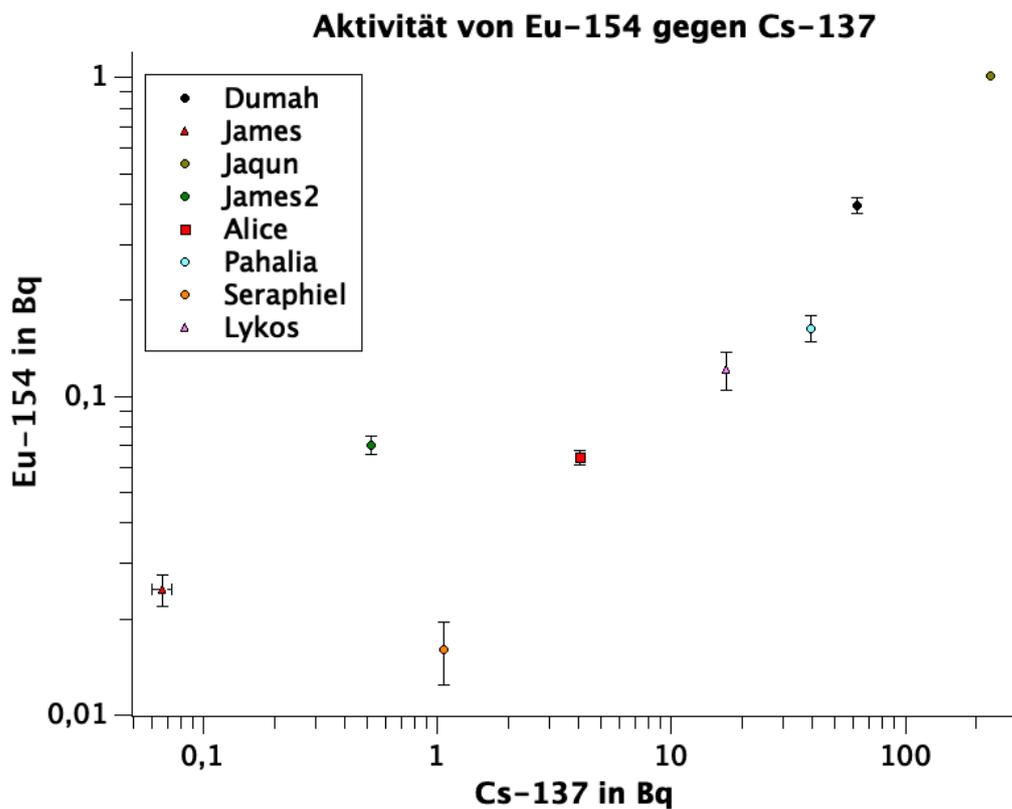


Abbildung 17: Aufgetragen ist die Aktivität von Am-241 gegen die Aktivität von Cs-137 der gemessenen Partikel. Beide Skalen sind logarithmiert.

7.2 Vergleich der Aktivitätskonzentrationen mit dem Abbrand

Als nächstes wird der Abbrand gegen die Aktivitätskonzentration von Am-241 und Cs-137 geplottet.

Am-241 gegen den Abbrand Die Aktivitätskonzentration steigt mit dem Abbrand. Je höher der Abbrand, desto höher die Menge an Pu-241 im Brennstoff, welches zu einer höheren Menge an Am-241 führt. Trotz hoher Unsicherheiten der Aktivitätskonzentration ist der steigende Trend in Abbildung 18 zu erkennen.

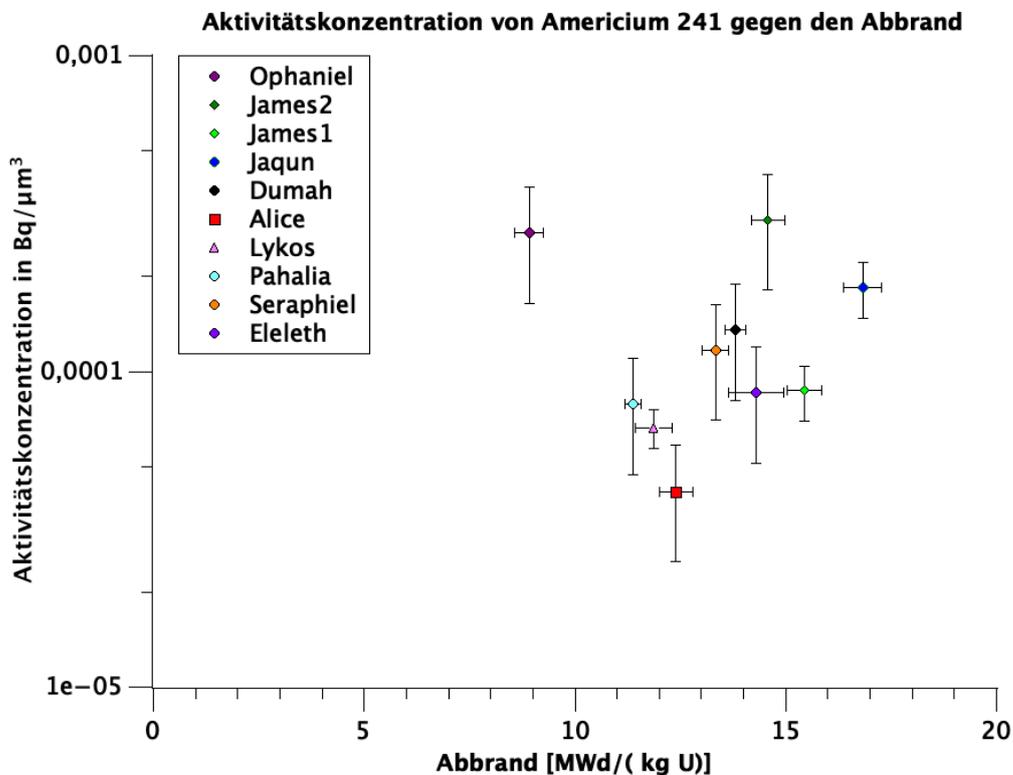


Abbildung 18: Aufgetragen ist die Aktivitätskonzentration von Am-241 der Partikel gegen ihren Abbrand. Diese weisen hohe Unsicherheiten auf.

Der Partikel Ophaniel wirkt im Bild als Ausreißer. Er hat mit $9 \frac{\text{MWd}}{\text{KgU}}$ den kleinsten Abbrand aber eine hohe Aktivitätskonzentration. Da der Wert zu hoch liegt, ist eine Auslaugung bei diesem Partikel keine Erklärung. Eine andere Möglichkeit wäre, dass alle anderen, bis auf diesen Partikel, im gleichen Maß ausgelaugt worden sind. Dies ist jedoch aufgrund unterschiedlicher

Fundorte und Umweltbedingungen unwahrscheinlich. Womöglich wurde das Volumen des Partikels falsch eingeschätzt.

Cs-137 gegen den Abbrand Bei steigendem Abbrand sollte die Cs-137 Konzentration zunehmen, da dieses Isotop beim Spaltprozess erzeugt wird. Das entsprechende Verhalten ist in Abbildung 19 kaum zu erkennen. Dennoch ist zu sehen, dass bei den Kühlteich-Partikeln James-1 und James-2 die Cäsium Konzentration enorm gering ist. Dies liegt an der bereits beschriebenen Auslaugung jener Partikel. Werden nur die anderen Partikel betrachtet, so wird das zu erwartende exponentiell abflachende Verhalten klarer sichtbar. Ophaniel scheint wie auch in vorhergegangenen Betrachtungen mit seiner hohen Aktivitätskonzentration ein Ausreißer zu sein, was dafür spricht, dass das Volumen zu gering abgeschätzt wurde.

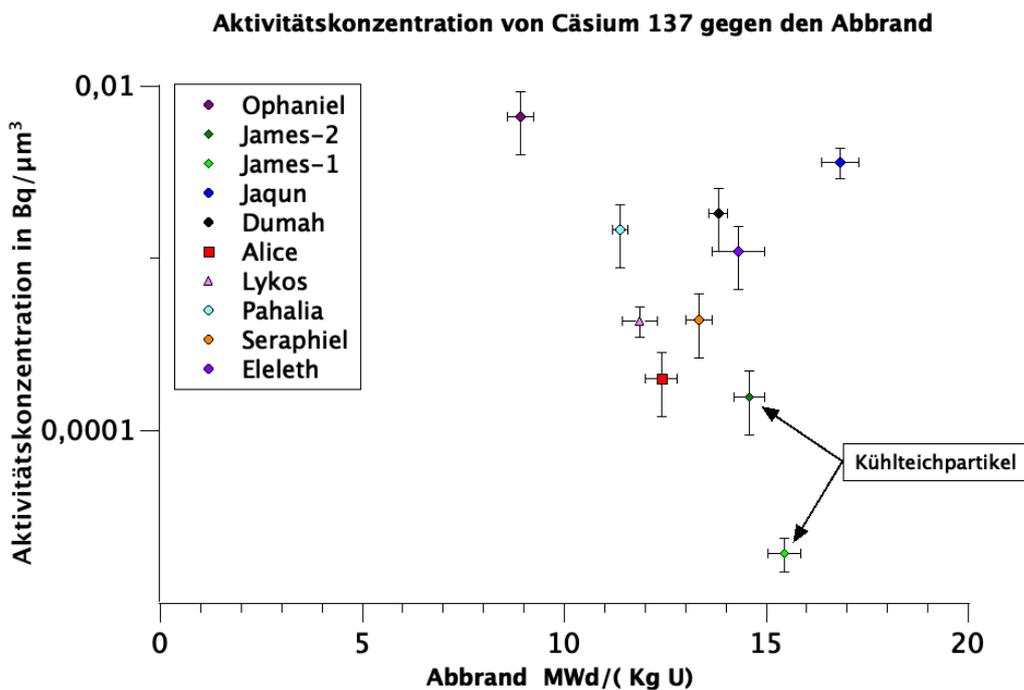


Abbildung 19: Aufgetragen ist die Aktivitätskonzentration von Cs-137 der Partikel gegen ihren Abbrand. Hervorgehoben sind die Kühlteichpartikel James-1 und James-2.

7.3 Isotopenverhältnis mit Vergleichswerten

Gegenüberstellung von U-235/U-236 zu Vergleichswerten

Das U-235 wird im Reaktor entweder gespalten oder durch Neutroneneinfang zu U-236 aktiviert. Je geringer die Steigung des Verhältnisses zueinander ist, desto weniger wird gespalten und desto mehr wird im Reaktor gebrütet. Der Y-Achsenabschnitt gibt die initiale Anreicherung des U-235 wieder, da U-236 erst im Reaktor entsteht. In der Veröffentlichung von Makarova et al. [Mak08] wurden Proben den einzelnen Reaktorbrennstäben zugeordnet und somit der Reaktor klassifiziert. Die Ergebnisse der Arbeit werden mit den dort präsentierten Daten verglichen und eingeordnet (siehe Abbildung 20).

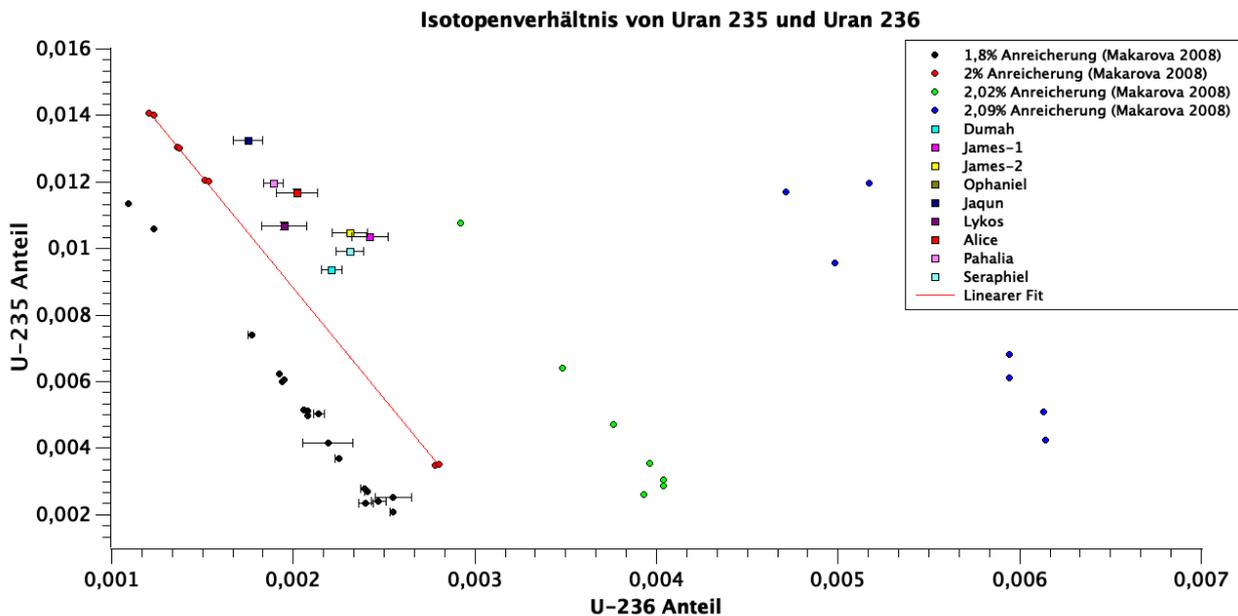


Abbildung 20: Aufgetragen sind die Isotopenverhältnisse zwischen Uran 235 und Uran 236. Aus den Makarov Daten zu dem 2% Brennstoff wurde ein linearer Fit gesetzt. Die Werte für eine Anreicherung von 1.8%, 2.02% und 2.09% sind auf den anderen Geraden zu finden. Sie stammen von Brennstäben der jeweiligen Anreicherung. Der Fit ist mit $Ax + B$ gegeben. $A = -6,65$ und $B = 2,21 \cdot 10^{-2}$. Der R^2 Wert liegt bei 99,5%.

Die Uranverhältnisse der gemessenen Partikel verhalten sich annähernd linear und die gemessenen Partikel sind dem 2% Brennstoff zuzuordnen. Die zu erwartenden Messwerte müssten dann jedoch auf der Gerade des eingezeichneten Fits liegen. Zu erkennen ist, dass sich die Messwerte leicht oberhalb

dieser Gerade befinden. Es liegt hier kein rein statistischer Fehler vor, da die Messwerte der Partikel sich sonst um die Gerade verstreuen würden. Warum sich die gemessenen Partikel oberhalb der Linie befinden liegt an einem systematischen Fehler, der durch die Messung gegeben ist. Der U-236 Anteil wird dadurch höher, da sich das Uran 235 Hydrid um 1% in der Peakhöhe des U-236 Anteils wieder gibt [Ham17]. Dies liegt daran, dass das Spektrometer nur das Masse-zu-Ladungs-Verhältnis $\frac{m}{z}$ misst, welches bei beiden identisch ist. Das Gleiche gilt für hydridisiertes U-236 und U-238, welche sich in den Ergebnissen nicht wieder finden. Ein weiterer Grund sind organische Untergrundpeaks, die auf Umweltproben auf fast jeder Masse zu finden sind (vergleiche Kapitel 3.2 Massenspektrum). Die Isotope mit geringen Zählraten sind anfällig für isobare Interferenzen, welche nicht durch die Massenaufösung voneinander getrennt werden können und somit zu einer Überschätzung der Peakfläche führen. Daraus folgt ein scheinbar hoher Abbrand der Partikel. Werden die genannten Fehler berücksichtigt, stimmen die gemessenen Werte mit denen von Makarova et al. im Rahmen der Unsicherheiten überein. Die Partikel stammen deshalb mit großer Sicherheit aus dem Brennstoff des havarierten RBMK-Reaktors.

8 Fazit und Ausblick

In dieser Arbeit wurden 14 Partikel aus der CEZ gammaspektrometrisch und 8 Partikel mittels der Tof-SIMS untersucht. Es konnte bestätigt werden, dass die Proben aus der CEZ des Reaktorblocks 4 stammen. Die Messwerte passen zu anderen Forschungsergebnissen, die sich auf diese Region beziehen. Die *Hot Particles* konnten erfolgreich gammaspektrometrisch und massenspektrometrisch untersucht werden. Somit konnten die Aktivität und die jeweiligen Urananteile bestimmt werden. Probleme entstanden nur bei den Messungen der Partikel mit sehr kleiner Größe. Zum einen wurde bei diesen Partikeln Europium 154 nicht detektiert, weil der Cäsium 137 Comptonuntergrund zu hoch war. Zum anderen kam es zu Problemen bei der Tof-SIMS Messung, da das Signal zu schwach gewesen ist. Des Weiteren ist das Bestimmen des Volumens auf diese Weise mit großen Fehlern behaftet. Zur Verbesserung der Messung mit dem Gammadetektor könnte ein Standardpräparat für Europium 154 verwendet werden, dadurch könnte eventuell das Europium 154 besser nachgewiesen werden. Ein genaues Volumen ist maßgeblich zur Bestimmung der Aktivitätskonzentration. Um so wichtiger ist es, die Fehler bei der Volumenbestimmung klein zu halten. Es sollte daher eine neue Methode zum Ausmessen des Partikels verwendet werden. Um die massenspektrometrische Messung in Hinblick auf kleine Partikel zu verbessern, könnte auf längere Messzeiten gesetzt werden z.B. über einen Tag hinaus. Vielleicht würden auch spezielle Einstellung der Tof-SIMS helfen, die kleineren Partikel besser zu messen. Um eine höhere statistische Aussagekraft der Messung zu erreichen, werden mehr *Hot Particles* benötigt.

9 Anhang

9.1 Tabellenverzeichnis

Tabellen für die gammaspektrometrischen Messungen

Tabelle 9: Technische Spezifikationen des Detektors Nr. 5

Art	
Halbleiterdetektortyp	N-Typ
Hersteller	Canberra
Modellnummer	GL2820R
Seriennummer	b 97611
Betriebsspannung	-3000V
Kristalldurchmesser	60mm
Kristalllänge	20mm
Fenstermaterial	Carbon-Epoxid
Abstand Kristall zu Fenster	5mm
Rel. Efficiency	23,1%
Kristallaufbau	Planar

Tabelle 10: Das Volumen aller gemessenen Partikel. Aufgelistet sind die Höhe, Länge und Breite und das ausgerechnete Volumen.

Partikel	Höhe in μm	Länge in μm	Breite in μm	Volumen in μm^3	Δ Volumen in μm^3
Dumah	30	40	45	34065,000	1,363E+04
Ariel	3	10	7	112,07	4,483E+01
Eleleth	15	6	6	1153,13	4,613E+02
Gabriel	13	12	5	964,88	3,860E+02
Camael	10	12	8	741,67	2,967E+02
Fanuel	5	5	5	125,00	2,500E+01
James1	10	25	15	3750,00	7,500E+02
James2	9	22	15	1675,76	6,703E+02
Jaqun	39	40	41	64000,00	1,280E+04
Ophaniel	5	20	22	1132,71	4,531E+02
Lykos	31	40	32	39680,00	7,936E+03
Alice	38	15	20	20058,17	8,023E+03
Pahalia	28	36	42	26912,11	1,076E+04
Seraphiel	13	20	14	3640,00	8,000E+00

Tabelle 11: Dargestellt ist die Aktivität und ihre Unsicherheit

Nuklide		Am-241	Cs-137	Eu-154
Dumah				
Aktivität Bq	in	4,607	62,140	0,397
Δ absolut Aktivität	der	0,033	0,407	0,022
Ariel				
Aktivität Bq	in	0,012	0,430	< <i>LOD</i>
Δ absolut Aktivität	der	0,000	0,005	
Eleleth				
Aktivität Bq	in	0,099	1,252	< <i>LOD</i>
Δ absolut Aktivität	der	0,002	0,012	
Gabriel				
Aktivität Bq	in	0,033	0,552	< <i>LOD</i>
Δ absolut Aktivität	der	0,001	0,007	
Camael				
Aktivität Bq	in	0,048	0,611	< <i>LOD</i>
Δ absolut Aktivität	der	0,001	0,007	
Lykos				
Aktivität Bq	in	1,829	17,239	0,121
Δ absolut Aktivität	der	0,020	0,126	0,017

Nuklide		Am-241	Cs-137	Eu-154
James				
Aktivität Bq	in	0,300	0,067	0,025
Δ absolut Aktivität	der	0,003	0,006	0,003
Jaqu				
Aktivität Bq	in	11,795	232,726	1,007
Δ absolut Aktivität	der	0,073	1,504	0,025
Ophaniel				
Aktivität Bq	in	0,311	7,527	< <i>LOD</i>
Δ absolut Aktivität	der	0,003	0,053	
James2				
Aktivität Bq	in	0,994	0,518	0,070
Δ absolut Aktivität	der	0,007	0,013	0,004
Alice				
Aktivität Bq	in	0,835	4,035	0,064
Δ absolut Aktivität	der	0,005	0,028	0,003

Nuklide		Am-241	Cs-137	Eu-154
Pahalia				
Aktivität Bq	in	2,117	39,289	0,163
Δ absolut Aktivität	der	0,018	0,259	0,015
Seraphiel				
Aktivität Bq	in	0,280	1,056	0,016
Δ absolut Aktivität	der	0,003	0,013	0,004

Tabelle 12: Verzeichnet ist die Aktivitätskonzentration und ihre Unsicherheit

Partikel/ Nuklide	Aktivitäts- konzentration Bq/ μm^3	Δ Aktivitäts- konzentration Bq/ μm^3
Dumah		
Cs-137	1,82E-03	7,30E-04
Am-241	1,35E-04	5,41E-05
Eu-154	1,17E-05	4,71E-06
Ariel		
Cs-137	3,84E-03	1,54E-03
Am-241	1,11E-04	4,45E-05
Eleleth		
Cs-137	1,09E-03	4,34E-04
Am-241	8,54E-05	3,42E-05
Gabriel		
Cs-137	5,72E-04	2,29E-04
Am-241	3,41E-05	1,36E-05
Camael		
Cs-137	8,23E-04	3,29E-04
Am-241	6,52E-05	2,61E-05
Alice		
Cs-137	2,01E-04	8,05E-05
Am-241	4,16E-05	1,67E-05
Eu-154	3,21E-06	1,29E-06
Pahalia		
Cs-137	1,46E-03	5,84E-04
Am-241	7,87E-05	3,15E-05
Eu-154	6,07E-06	2,49E-06
Seraphiel		
Cs-137	4,41E-04	1,77E-04
Am-241	1,17E-04	4,67E-05
Eu-154	6,67E-06	3,07E-06

Partikel/ Nuklide	Aktivitäts- konzentration Bq/ μm^3	Δ Aktivitäts- konzentration Bq/ μm^3
Lykos		
Cs-137	4,34E-04	8,69E-05
Am-241	6,62E-05	9,23E-06
Eu-154	4,38E-06	7,39E-07
Faniel		
Cs-137	1,09E-03	2,19E-04
Am-241	9,44E-05	6,53E-05
James1		
Cs-137	1,93E-05	4,30E-06
Am-241	8,68E-05	1,74E-05
Eu-154	2,77E-06	1,66E-06
Jaqun		
Cs-137	3,64E-03	7,28E-04
Am-241	1,84E-04	3,69E-05
Eu-154	1,57E-05	3,17E-06
Ophaniel		
Cs-137	6,65E-03	2,66E-03
Am-241	2,74E-04	1,10E-04
James2		
Cs-137	1,57E-04	6,30E-05
Am-241	3,01E-04	1,20E-04
Eu-154	2,13E-05	8,64E-06

Tabellen zur ToF-SIMS Auswertung

Tabelle 13: Gelistet ist der Uranisotopenanteil der Partikel. Ebenso ist hier das Verhältnis zu U-238 zu sehen. Hinzu kommen die entsprechenden Unsicherheiten.

Partikel Lykos	Anteil	Δ Anteil	Verhältnis zu U-238	Δ Verhältnis zu U-238
U234	0,0002	0,0000	0,00016	0,000015
U235	0,0105	0,0001	0,01067	0,000122
U236	0,0019	0,0001	0,00195	0,000053
U238	0,9874	0,0016	1,00000	0,001648
Ophaniel				
U234	0,0001	0,0000	0,00015	0,000013
U235	0,0132	0,0001	0,01343	0,000123
U236	0,0015	0,0000	0,00155	0,000042
U238	0,9851	0,0015	1,00000	0,001484
Jaqun				
U234	0,0002	0,0000	0,00018	0,000014
U235	0,0075	0,0001	0,00753	0,000087
U236	0,0026	0,0001	0,00260	0,000051
U238	0,9898	0,0014	1,00000	0,001413
Dumah				
U234	0,0002	0,0000	0,00017	0,000008
U235	0,0093	0,0001	0,00937	0,000058
U236	0,0022	0,0000	0,00221	0,000028
U238	0,9884	0,0008	1,00000	0,000841
Alice				
U234	0,0002	0,0000	0,00025	0,000018
U235	0,0115	0,0001	0,01167	0,000113
U236	0,0020	0,0000	0,00202	0,000048
U238	0,9862	0,0014	1,00000	0,001466

	Anteil	Δ Anteil	Verhältnis zu U-238	Δ Verhältnis zu U-238
Pahalia				
U234	0,0001	0,0000	0,00015	0,000007
U235	0,0118	0,0001	0,01196	0,000056
U236	0,0019	0,0000	0,00189	0,000022
U238	0,9862	0,0007	1,00000	0,000723
Seraphiel				
U234	0,0003	0,0000	0,00028	0,000014
U235	0,0098	0,0001	0,00991	0,000077
U236	0,0021	0,0000	0,00215	0,000038
U238	0,9878	0,0011	1,00000	0,001080
Eleleth				
U234	0,0001	0,0000	0,00014	0,000020
U235	0,0089	0,0002	0,00903	0,000152
U236	0,0022	0,0001	0,00227	0,000077
U238	0,9887	0,0022	1,00000	0,002246

9.2 Abbildungsverzeichnis

Physikalisch-Technische Bundesanstalt

Am 241-07



Radioaktives Standardpräparat

Radionuklid: Americium-241
Halbwertszeit: 432,0 Jahre

Präparat Nr.: 569-81
Typ: punktförmig
Abdeckfolie: Polyäthylen, beidseitig 22 mg cm⁻²

Aktivität: 29,2 kBq
Relative Unsicherheit: 1,5 %
(Vertrauensniveau 99 %)

Bezugszeit: 1. 1. 1985

Dichtheitsprüfung
ausgeführt am: 10. 7. 1985
Prüfverfahren: Wischtest
Ergebnis: Aktivität kleiner als 4 Bq

Braunschweig, 16.07.85
Im Auftrag



(Dr. K. Debertin)

Abbildung 21: Das Zertifikat des radioaktiven Americium 241 Standardpräparats für die Kalibrierung des Gammadetektors.

Physikalisch-Technische Bundesanstalt



CS 137 - 06

Radioaktives Standardpräparat

Radionuklid: Caesium-137
Halbwertszeit: 30,0 Jahre 10958d
Präparat Nr.: 246-83
Typ: punktförmig
Abdeckfolie: Polyäthylen, beidseitig 22 mg cm⁻²
Aktivität: 29,9 kBq
Relative Unsicherheit: 1,5 %
(Vertrauensniveau 99 %)
Bezugszeit: 1. 1. 1985

Dichtheitsprüfung

ausgeführt am: 10. 7. 1985
Prüfverfahren: Wischtest
Ergebnis: Aktivität kleiner als 4 Bq

Braunschweig, 16.07.85

Im Auftrag

(Dr. K. Debertin)

Abbildung 22: Das Zertifikat des radioaktiven Cäsium 137 Standardpräparats für die Kalibrierung des Gammadetektors.

Braunschweig und Berlin



Em 152-03

Zertifikat

Aktivitätsnormal

Radionuklid: Europium-152
Typ: punktförmiges Präparat
Präparat Nr.: 228-94
Abdeckfolie: Polyethylen,
beidseitig 22 mg·cm⁻²
Aktivität: 42,8 kBq
Relative Unsicherheit: 2 %
(dreifache Standardabweichung)
Bezugszeit: 01.01.1995

Dichtheitsprüfung
ausgeführt am: 14.02.1995
Prüfverfahren: Wischtest
Ergebnis: Aktivität kleiner als 4 Bq

Braunschweig, 16.02.1995
Im Auftrag

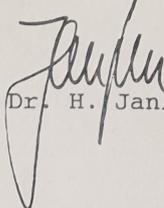

Dr. H. Janßen



Abbildung 23: Das Zertifikat des radioaktiven Europium Standardpräparats für die Kalibrierung des Gammadetektors.

Erklärung

Hiermit versichere ich, dass die vorliegende Arbeit selbstständig verfasst wurde, keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel benutzt wurden, alle Stellen der Arbeit, die wörtlich oder sinngemäß aus anderen Quellen übernommen wurden, als solche kenntlich gemacht sind und die Arbeit in gleicher oder ähnlicher Form noch keiner Prüfungsbehörde vorgelegen hat.

Ort, Datum:

Unterschrift:

Literatur

- [Bos20] H. Bosco. *Ortsaufgelöste Analyse von Aktiniden mittels resonanter ToF-Laser-SNMS*. PhD thesis, Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover, 2020.
- [Bro] ION-TOF GmbH Brochure. *Superior Performance for all SIMS Applications, TOF-SIMS5* Online erhältlich auf der Website www.iontof.com [Online; Stand 12 Mai 2021].
- [BS05] N. A. Beresford and J. T. Smith. *Chernobyl - catastrophe and consequences, Springer-Praxis books in environmental sciences*. Springer, Berlin, 2005.
- [Bü71] H. Büker. *Der Halbleiterdetektor*. Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg, 1971.
- [Dem13] W. Demtröder. *Experimentalphysik / Wolfgang Demtröder ; Bd. 1: Mechanik und Wärme, Springer-Lehrbuch*. Springer Spektrum, Berlin u.a., 2013.
- [Dem14] W. Demtröder. *Experimentalphysik / Wolfgang Demtröder ; Bd. 4: Kern-, Teilchen- und Astrophysik, Springer-Lehrbuch*. Springer Spektrum, Berlin u.a., 2014.
- [DW63] F. Dr. Weigel. *Die Chemie der Transplutoniumelemente*. In *Fortschritte der Chemischen Forschung*, volume 4/1. Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg, 1963.
- [Ebe11] L. Ebermann. *Der Reaktorunfall 1986 in Tschernobyl*. Bundesamt für Strahlenschutz, Salzgitter, 2011.
- [Edi] Universität Edinburgh. *Secondary Ion Mass Spectrometry (SIMS)*. Online erhältlich auf der Website www.ed.ac.uk. [Online; Stand 12 Mai 2021].
- [Fra18] M. Franzmann. *Setup, Optimization and Characterization of the Resonant Laser-SNMS System for IRS Hannover*. PhD thesis, Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover, 2018.
- [fRGm86] Gesellschaft für Reaktorsicherheit (GRS) mbH. *Der Unfall im Kernkraftwerk Tschernobyl*, 1986.

- [F.S88] P. Henning F. Steinhäusler. *Hot particles from the Chernobyl fallout: proceedings, International Workshop on Hot Particles from the Chernobyl Fallout, Schriftenreihe des Bergbau- und Industriemuseums Ostbayern*, volume 16. Verein d. Freunde u. Förderer d. Bergbau- u. Industriemuseums Ostbayern, Theuern, 1988. International Workshop on Hot Particles from the Chernobyl Fallout.
- [F.T12] F. Tawussi. *Gammaspektrometrische Untersuchung von Umweltproben - Von der natürlichen Radioaktivität bis zum Fallout von Fukushima*. Master's thesis, Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover, 2012.
- [G.G08] G. Gordon. *Practical gamma-ray spectrometry*. Wiley, Chichester u.a., 2008.
- [Gro17] J. H. Gross. *Mass spectrometry: a textbook*. Springer International Publishing, Cham, 2017.
- [Ham17] L. Hamann. *Untersuchung radioaktiver Partikel mittels Sekundärionen-Flugzeit-Massenspektrometrie*. PhD thesis, Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover, 2017.
- [JCG08] JCGM. *Evaluation of measurement data — Guide to the expression of uncertainty in measurement*, 2008.
- [Kam16] T. Kampmeier. *Gammaspektrometrische Untersuchungen von Sedimentproben aus ehemaligen Uranabbaugebieten (Mulderegion)*, Bachelor's Thesis, Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover, 2016.
- [L.L18] L. Leifermann. *Lokalisierung und Vergleich uranhaltiger Partikel in Bodenproben*, Bachelor's Thesis, Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover, 2018.
- [L.L20] L. Leifermann. *Extraktion und Speziationsanalytik von Brennstoffpartikeln aus der CEZ*. Master's thesis, Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover, 2020.
- [Mak08] Bibichev B.A. Domkin V.D. Makarova, T.P. *Destructive analysis of the nuclide composition of spent fuel of WWER-440, WWER-1000, and RBMK-1000 reactors*. Radiochemistry, 2008.

- [M.B18] M.Bullwinkel. *Ortsaufgelöste Massenspektrometrie auf nicht leitenden Umweltproben*, Bachelor's Thesis, Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover, 2018.
- [Mü96] K. Mück. *10 Jahre nach Tschernobyl, Strahlenbelastung, Gesundheitseffekte, Sicherheitsaspekte, OEFZS*, volume 4785. Austrian Research Centre Seibersdorf, Wien, 1996.
- [N.S18] N.Schumann. *Abtrennung und radiochemische Analyse von Europium-154 und Americium-241 in Umweltproben aus Tschernobyl*. Master's thesis, Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover, 2018.
- [Nuc18] Nucleonica. *Karlsruher Nuklidkarte*, 2018.
- [Q.P15] M.J. Eller, S. Della-Negra, D. Touboul, A. Brunelle, Q.P. Vanbelingen, N. Elie. Time-of-flight secondary ion mass spectrometry imaging of biological samples with delayed extraction for high mass and high spatial resolutions. *Rapid Communications in Mass Spectrometry*, 2015.
- [Sch13] R. Scholz. *Analyse und Präsentation von Messdaten*, Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover, 2013.
- [Sec] IAEA Nuclear Data Section. *Isotope Browser-Livechart-table of Nuclides*.
- [Swe04] D.R. Swenson. *Measurement of averages of charge, energy and mass of large, multiply charged cluster ions colliding with atoms. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 2004.
- [VK19] S. Levchuka, V. Protsaka, I. Maloshtana, C. Simonuccic, C. Courbetc, H.L. Nguyenc, N.Sanzharovad, V. Zabrotskye, V. Kashparova, B. Salub. *Environmental behaviour of radioactive particles from chernobyl. Journal of Environmental Radioactivity*, 2019.
- [Vol93] M. Volkmer. *Basiswissen zum Thema Kernenergie: die wichtigsten Erkenntnisse aus Kernphysik und Kerntechnik*. Hamburgische Electricitäts-Werke-Aktienges, Hamburg, 1993.
- [VPMB05] V.P. Kudrjashov, P.I. Ananich, V.V. Zhuravkov, S.F. Boulyga, V.P. Mironov, J.L. Matusevich, J.S. Becker. *Determination of*

uranium concentration and burn-up of irradiated reactor fuel in contaminated areas in Belarus using uranium isotopic ratios in soil samples. Oldenbourg Wissenschaftsverlag, München, 2005.

- [Wal] C. Walther. *Kerne, Teilchen (Physik IV - Teil A)*. Vorlesung, Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover.
- [Wik21] Wikipedia. *Massenspektrometrie-Wikipedia, Die freie Enzyklopädie*, 2021. [Online; Stand 18 Juni 2021].
- [Wil08] D. Arnold K. Debertin A. Heckel G. Kanisch H. Wershofen C. Wilhelm. *Grundlagen der Gammaskpektrometrie*. 2008.