



Leibniz Universität Hannover

Fakultät für Mathematik und Physik

Institut für Radioökologie und Strahlenschutz

Bachelorarbeit

Extraktion und Analyse uranhaltiger Partikel aus
Bodenproben

Vorgelegt von: Paul Hanemann

Matrikelnummer: 3227810

31. Januar 2019

Erstprüfer: Prof. Dr. Clemens Walther

Betreuer: Martin Weiß, MSc.

Eigenständigkeitserklärung

Hiermit versichere ich, dass ich die vorliegende Arbeit selbstständig verfasst habe. Ich versichere, dass ich keine anderen als die angegebenen Quellen benutze und alle wörtlich oder sinngemäß aus anderen Werken übernommenen Aussagen als solche gekennzeichnet habe und dass die eingereichte Arbeit weder vollständig noch in wesentlichen Teilen Gegenstand eines anderen Prüfungsverfahrens gewesen ist.

Hannover, den 31. Januar 2019.

Paul Hanemann

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Technischer Aufbau	3
2.1	Rasterelektronenmikroskop (REM)	3
2.2	Mikromanipulator	7
2.3	Wolframnadeln	8
2.4	REM kompatibler Klebstoff	9
2.5	α -track-Detektor	10
2.6	Time of Flight Secondary Ion Mass Spectrometry	10
2.7	SNMS	11
2.8	γ -Spektrometrie	12
3	Experimentelle Durchführung	13
3.1	Experiment: Nadelätzen	13
3.2	Experiment: Probenvorbereitung	13
3.3	Experiment: Extraktion der uranhaltigen Partikel	15
3.4	Experiment: Probenträger	18
3.5	Experiment: SIMS und SNMS Messungen	19
3.6	Experiment: γ -Spektrometrie	19
4	Ergebnisse	21
4.1	Ergebnisse: Nadelätzen	21
4.2	Ergebnisse: Probenvorbereitung	26
4.3	Ergebnisse: Extraktion der uranhaltigen Partikel	27
4.4	Ergebnisse: Probenträger	27
4.5	Ergebnisse: SIMS und SNMS Messungen	28
4.6	Ergebnisse: γ -Spektrometrie	34
5	Diskussion	35
5.1	Diskussion: Nadelätzen	35
5.2	Diskussion: Probenvorbereitung	36
5.3	Diskussion: Extraktion der uranhaltigen Partikel	37

5.4	Diskussion: Probenträger	37
5.5	Diskussion: SIMS und SNMS Messungen	38
5.6	Diskussion: γ -Spektrometrie	42
6	Fazit	45
7	Ausblick	47
8	Anhang	49
8.1	Quellcode zum Nadelätzen	49
8.2	Ringelektrode	54
8.3	Probennahmeort	55
8.4	Bilder von den Nadeln	56
8.5	Spannungs- und Stromverlauf des Nadelätzen	67
8.6	EDX-Spektren der Partikel	72

1 Einleitung

Uran ist in der Umwelt in verschiedenen Formen omnipräsent. So besitzt Uran einen Massenanteil an der Erdhülle von 3,2 ppm [1]. Uran liegt jedoch auch teilweise in partikulärer Form in der Umwelt vor. Uranhaltige Partikel sind meistens anthropogen. Ursprung für diese können Kernwaffentests, zivile und militärische kerntechnische Unfälle, der Einsatz von abgereichertem Uran als Munition oder Uranbergbau, sein.

Der UNSCEAR Report von 1993 [2] gibt an, dass weltweit 520 nukleare Explosionen atmosphärisch (davon 8 unter Wasser) gezündet wurden. Die bei diesen Tests freigesetzten Partikel enthalten sowohl Spaltprodukte als auch das zur Spaltung verwendete Uran oder Plutonium [3].

Darüber hinaus wurden Uran und Plutonium aus Kernwaffen durch nichtnukleare Explosionen in der Umwelt freigesetzt. So wurde zum Beispiel 1966, aufgrund eines Zusammenstoßes eines mit Kernwaffen bestückten Bombers der US-Luftwaffe mit einem Tankflugzeug und der anschließenden konventionellen Explosion, eine Fläche von etwa 2,3 km² in der Nähe des spanischen Ortes Palomares durch uran- und plutoniumhaltige Partikel kontaminiert [4].

Uranhaltige Partikel wurden auch bei zivilen kerntechnischen Unfällen freigesetzt, das wohl prominenteste Beispiel hierfür ist der Unfall im Kernkraftwerk Tschernobyl am 26. April 1986. Bei einem außer Kontrolle geratenem Testlauf explodierte der Reaktor 4 der Anlage infolge eines unkontrollierten Leistungsanstiegs. Aufgrund der Explosion und anschließender Brände im Reaktor wurden flüchtige Spaltprodukte wie Cäsium und Jod und Kernbrennstofffragmente freigesetzt. Der UNSCEAR Report von 2008 [5] bezeichnet diesen Unfall als den schwersten in der Geschichte der zivilen Kernenergie. Im Rahmen dieses Unfalls wurde etwa 3 % des Brennstoffinventars des Reaktors in partikulärer Form freigesetzt [6].

Aufgrund seiner panzerbrechenden Eigenschaften wurde Munition mit einem Kern aus abgereichertem Uran in verschiedenen bewaffneten Konflikten, wie zum Beispiel dem zweiten Golfkrieg 1991, eingesetzt. Beim Auftreffen der Geschosse werden uranhaltige Partikel mit einer Größe von bis zu 30 µm [7] freigesetzt.

Uranbergbau stellt ebenfalls eine Möglichkeit für die Freisetzung von uranhaltigen Partikeln dar.

Die weite Verbreitung von uranhaltigen Partikeln aus verschiedenen Quellen macht eine effiziente Analyse dieser notwendig.

Im Rahmen dieser Arbeit sollen exemplarisch uranhaltige Partikel aus der *Chernobyl exclusion zone* (Sperrzone Tschernobyl) (CEZ) extrahiert und analysiert werden. Die freigesetzten Partikel sind bis heute in der CEZ zu finden und werden im Rahmen verschiedener wissenschaftlicher Arbeiten (zum Beispiel von Kashparov et al. [8]) untersucht. Bei bisherigen Untersuchungen wurden die Partikel mithilfe von invasiven Methoden wie sequenzielles Auslaugen oder *Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry* (Massenspektrometrie mit induktiv gekoppeltem Plasma) (ICP-MS) analysiert. Hierbei werden die Partikel jedoch während der Analyse zerstört, sodass keine vollständige Charakterisierung der Partikel möglich ist. Die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Partikel sollen nach der Analyse unbeschädigt für weitere Experimente zur Verfügung stehen. Um diese Partikel analysieren zu können, müssen sie zunächst in der Probenmatrix identifiziert werden. Je nach Methode ist es notwendig oder hilfreich, die Partikel aus der Probenmatrix zu extrahieren. Die Extraktion der uranhaltigen Partikel soll mithilfe eines Rasterelektronenmikroskops (REM) und eines darin verbauten Mikromanipulators durchgeführt werden. Hiermit sollen die Partikel auf Wolframnadeln fixiert werden. Außerdem soll ein Verfahren entwickelt werden, mit dem die dafür verwendeten Wolframnadeln durch elektrochemisches Ätzen hergestellt werden können. Die extrahierten Partikel sollen durch γ -Spektroskopie, Sekundärionen-Massenspektrometrie (SIMS) und Sekundärneutralteilchen-Massenspektrometrie (SNMS) untersucht werden. Befinden sich hohe Konzentrationen γ -Strahlung emittierender Nuklide (zum Beispiel ^{137}Cs) in der Probenmatrix, ist γ -Spektroskopie von Partikeln nur nach einer Extraktion aus der Probe praktikabel. SIMS und SNMS Messungen sind prinzipiell an nicht extrahierten Partikeln möglich, es ist jedoch äußerst schwierig, diese in der Probenmatrix zu identifizieren. Da statische SIMS und SNMS quasi nichtinvasive Messmethoden sind, steht der extrahierte Partikel nach der Untersuchung für weitere Analysemethoden zur Verfügung. So können nach dem Fixieren auf Wolframnadeln und der Charakterisierung der Partikel, zum Beispiel durch sequenzielles Auslaugen, Informationen über die chemischen Eigenschaft der Partikel gewonnen werden. Da nach der Extraktion keine Störeffekte durch die Probenmatrix auftreten, sind hiernach Analysemethoden an den Partikeln möglich, die in-situ nicht funktionieren. Die Extraktion der Partikel benötigt keine vorherige chemische Probenpräparation, sodass die Partikel ohne strukturelle Veränderung von der Probenmatrix separiert werden. Diese Vorteile machen die Extraktion mithilfe von Mikromanipulatoren zu einem effizienten Werkzeug der Radiopartikelanalyse.

2 Technischer Aufbau

2.1 Rasterelektronenmikroskop (REM)

Zur Identifikation von uranhaltigen Partikeln in Bodenproben wurde ein Rasterelektronenmikroskop (REM) benutzt. In einem REM werden Elektronen aus einer Kathode durch eine Spannung im Bereich von 20 kV - 30 kV beschleunigt und mithilfe von elektronenoptischen Linsen fokussiert. Mit elektrischen beziehungsweise magnetischen Feldern wird der fokussierte Strahl über die Probe gerastert. Die in der Probe auftretenden Wechselwirkungen der Elektronen werden detektiert (siehe Abbildung 2.1). Aus der Zusammensetzung der einzelnen abgerasterten Positionen entsteht ein Bild der Probe. Das im Rahmen dieser Arbeit verwendete REM vom Typ „XL30 ESEM“ besitzt drei verschiedene Detektoren. Der erste Detektor ist der Sekundärelektronen (SE)-Detektor. Die Elektronen aus dem Strahl dringen in die Probe ein und verteilen sich birnenförmig, wie in Abbildung 2.2 dargestellt ist. Wenn die beschleunigten Elektronen mit den Atomen in der Probe wechselwirken, können sie ein Elektron aus den unteren Schalen aus einem Atom herausschlagen. Diese Sekundärelektronen besitzen deutlich weniger kinetische Energie als die Elektronen aus dem Primärelektronenstrahl, sodass sie mithilfe von elektrischen Feldern in den seitlich angebrachten SE-Detektor gezogen werden können. Bedingt durch eine geringe kinetische Energie, erreichen nur SE aus den obersten Probenschichten den Detektor, die SE aus tieferen Schichten werden in der Probe absorbiert. Daher liefert das SE-Signal einen besonders hohen Oberflächenkontrast, wie in Abbildung 2.3a zu erkennen ist.

Der zweite Detektor ist der sogenannte *backscattered electrons* (Rückstreuelektronen) (BSE)-Detektor. Bei der Wechselwirkung mit den Atomen in der Probe können Elektronen aus dem Primärelektronenstrahl zurück gestreut werden. Diese Rückstreuelektronen besitzen eine deutlich höhere kinetische Energie als die SE und kommen daher auch aus tieferen Probenschichten. Sie werden üblicherweise mit einem Detektor, der über der Probe um den Primärelektronenstrahl ringförmig angeordnet ist, nachgewiesen. Hier können, aufgrund des steilen Einfallswinkels der Primärelektronen, die meisten Rückstreuelektronen detektiert werden. Da Elemente mit hoher Ordnungszahl die Elektronen stärker zurückstreuen, gibt die Intensität des BSE-Signals Rückschluss auf die Zusammensetzung der Probe. Dieser

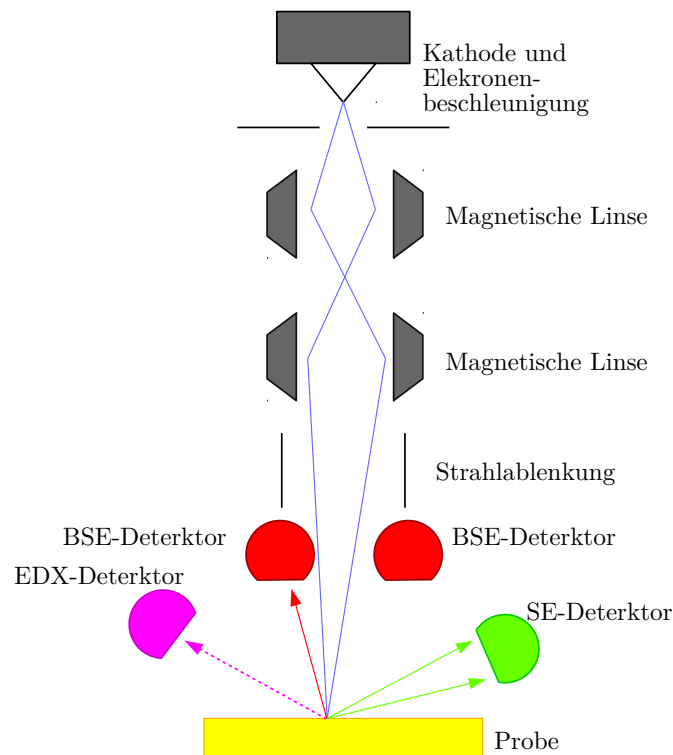


Abbildung 2.1: **Der schematische Aufbau eines REM**

Materialkontrast ist bei der Suche nach uranhaltigen Partikel vorteilhaft, da diese in einer Matrix aus Silikatpartikeln deutlich heller erscheinen, wie in Abbildung 2.3b zu sehen ist. Der dritte verbaute Detektor ist ein *energy dispersive X-ray spectroscopy* (Energiedispersive Röntgenspektroskopie) (EDX)-Detektor. Wenn die beschleunigten Elektronen ein Sekundärelektron erzeugen, fällt ein Elektron, unter Aussendung eines Photons, aus der äußeren Schale auf das freigewordene tiefere Niveau. Die Wellenlänge des Photons liegt hierbei im Röntgenbereich und ist charakteristisch für das Element. Durch Energieauflösung der emittierten Röntgenstrahlung liefert der EDX-Detektor Rückschlüsse über die elementare Zusammensetzung der Probe.

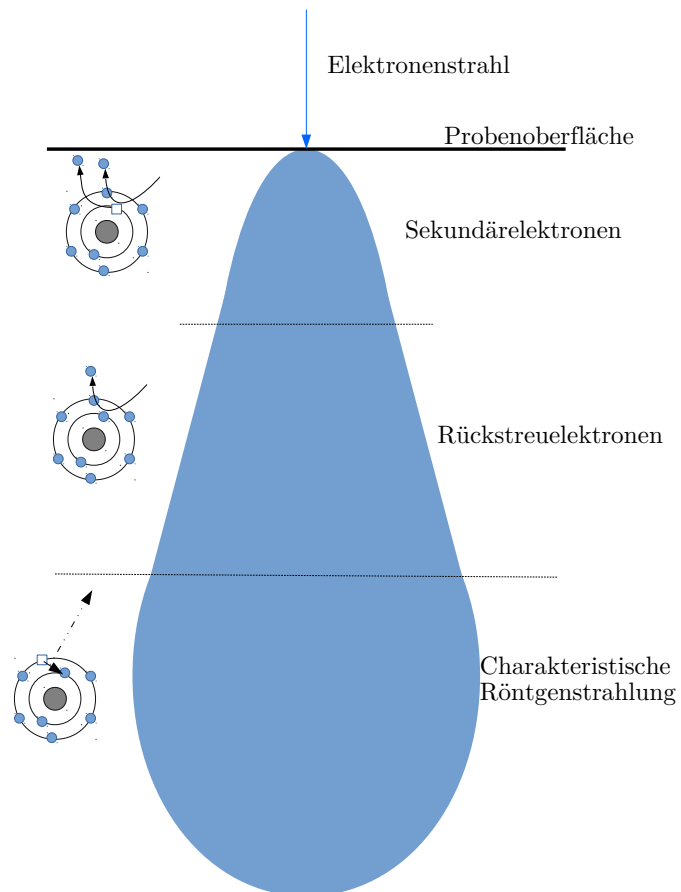
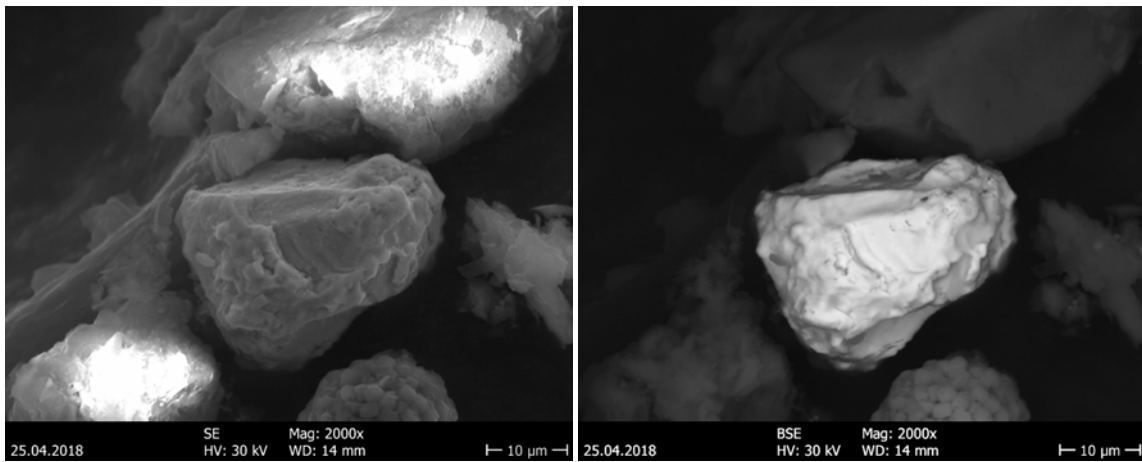


Abbildung 2.2: **Schematische Wechselwirkung der Elektronen in der Probe**

Es ist die typische Birnenform des Wechselwirkungsraums zu erkennen. Die verschiedenen Wechselwirkungsmechanismen sind in den jeweiligen Zonen eingezeichnet.



(a) **Sekundärelektronen-Aufnahme**

Der hohe Oberflächenkontrast der SE-Aufnahme ist an der Oberflächenstruktur des Partikels zu erkennen.

(b) ***backscattered electrons* (Rückstreuelektronen)-Aufnahme**

Es ist zu erkennen, dass der Partikel in der Mitte des Bildes deutlich heller als die Umgebung erscheint, daher muss er aus Material mit höherer Ordnungszahl bestehen. Durch nachfolgende Untersuchungen wurde gezeigt, dass es sich um einen uranhaltigen Partikel handelt.

Abbildung 2.3: SE und BSE Modus

Da das im Rahmen dieser Arbeit verwendete Gerät bezüglich Röntgenstrahlung eine niedrige Signalausbeute besitzt, muss die Intensität über einen Bereich von einigen Mikrometern über einen Zeitraum von einigen Sekunden bis Minuten integriert werden. Daher eignet sich das EDX-Signal des verwendeten Detektors nicht für die Bildgebung. Bei vielen modernen Geräten ist es aufgrund der höheren Signalintensität möglich, durch Abrastern die elementare Zusammensetzung der Probe räumlich darzustellen.

2.2 Mikromanipulator

Zur Extraktion der uranhaltigen Partikel aus den Bodenproben wurde ein Mikromanipulator der Firma „kleindiek nanotechnik“ vom Typ „MM3A-EM“, der im REM verbaut ist, eingesetzt. Dieser ist in Abbildung 2.4 zu sehen. Mithilfe dieses Mikromanipulators lassen sich die Wolframnadeln auf wenige Nanometer genau bewegen [9].

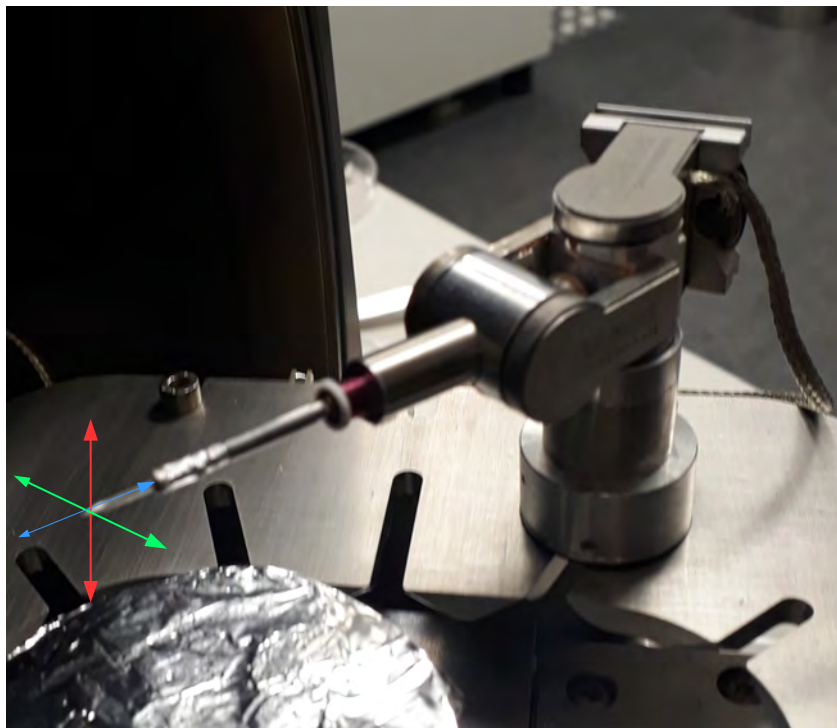


Abbildung 2.4: **Der im REM installierte Mikromanipulator**

Es wurden die Achsen, auf denen die Spitze des Manipulators bewegt werden kann, farbig eingezeichnet

2.3 Wolframnadeln

Die zur Extraktion der uranhaltigen Partikel eingesetzten Nadeln bestehen aus Wolfram. Die hohe Dichte des Wolframs ermöglicht eine Anpassung des Kontrasts der BSE-Aufnahmen für Elemente mit hoher Ordnungszahl. Dies erreicht eine Diskriminierung der gesuchten uranhaltigen Partikeln gegenüber der deutlich leichteren, häufig aus Silikaten bestehenden, Probenmatrix. Darüber hinaus lassen sich Wolframnadeln mit verhältnismäßig geringem Aufwand durch elektrochemisches Ätzen herstellen. Die verwendete Methode wurde auf Basis der von Van Well et al. [10] beschriebenen Methode entwickelt. Es wurde Wolframdraht mit einem Durchmesser von 0,75 mm und einer Länge von 35 mm durch eine Ringelektrode aus Kupfer geschoben, als Elektrolyt wurde Natronlauge (NaOH) mit $c = 1,5 \text{ mol/l}$ benutzt. Diese wurde mithilfe eines Tropftrichters auf die Ringelektroden gegeben, wobei darauf geachtet wurde, dass die Tropfrate konstant blieb und der Abfließrate der Natronlauge entsprach. Der verwendete Versuchsaufbau ist in Abbildung 2.5 gezeigt. Die Abmessungen der Kupferelektrode sind im Anhang (8.1) aufgeführt. Zur Stromversorgung wurde ein Gleichstromlabornetzgerät der Firma „RND“ vom Typ „RND 320-KD30000“ eingesetzt, welches sich mithilfe einer seriellen Schnittstelle durch einen Computer steuern lässt. Der Ätzprozess wurde automatisch beendet, wenn kein Strom mehr floss.



Abbildung 2.5: **Aufbau zum Ätzen der Wolframnadeln**

Der Wolframdraht (1) ist durch ein Loch in der Kupferplatte, die als Ringkathode eingesetzt wird (2), geschoben. Mithilfe eines Tropftrichters wird Natronlauge als Elektrolyt eingesetzt (3).

2.4 REM kompatibler Klebstoff

Die Firma „kleindiek nanotechnik“ vertreibt einen REM kompatiblen Klebstoff. Dieser kann in Hochvakuum eingesetzt werden und besitzt die Eigenschaft, unter Einwirkung eines Elektronenstrahls auszuhärten. Um ihn auszuhärten, muss somit lediglich der Elektronenstrahl des REM auf die Klebestelle fokussiert werden. Daher eignet er sich hervorragend, um uranhaltige Partikel aus einer Probenmatrix zu extrahieren, indem die Partikel durch den Kleber an eine Wolframnadel fixiert werden und wurde im Rahmen dieser Arbeit verwendet.

2.5 α -track-Detektor

Die Positionen möglicher uranhaltiger Partikel auf den Bodenproben wurden durch sogenannte α -track-Detektion eingegrenzt. Bei den hierfür verwendeten Detektoren handelt es sich um Platten aus Polycarbonat, welche für mehrere Stunden oder sogar Tage auf die Proben aufgelegt werden. Durch die α -Strahlung der uranhaltigen Partikel entstehen Schäden in der Struktur des Polycarbonats, welche durch Ätzen in Natronlauge ($c = 6 \text{ mol/l}$) so aufgeweitet werden können, dass sie mithilfe eines Lichtmikroskops auffindbar sind. Auf diese Art lässt sich die Position von potentiellen Partikeln auf eine Fläche mit einem Durchmesser von wenigen Millimetern eingrenzen.

2.6 Time of Flight Secondary Ion Mass Spectrometry

Time-of-Flight Secondary-Ion Mass-Spectrometry (Flugzeit-Sekundärionen-Massenspektrometrie) (TOF-SIMS) ist eine Variante der Sekundärionen-Massenspektrometrie (SIMS) die als Analysator ein Flugzeit-Massenspektrometer benutzt. Bei der SIMS wird die Probe durch einen rasterbaren Primärionenstrahl beschossen, wodurch aufgrund von Stoßkaskaden teilweise ionisierte atomare und molekulare Fragmente aus den obersten Probenschichten herausgeschlagen werden. Im Gegensatz zu der dynamischen SIMS ist der Primärionenstrahl bei der hier verwendeten statischen SIMS gepulst, sodass die Beschädigung der untersuchten Oberfläche gering gehalten wird. Die so entstandenen Sekundärionen können durch verschiedene massenspektrometrische Verfahren untersucht werden. Im Fall einer TOF-SIMS wird das Masse zu Ladungsverhältnis (m/z) der Sekundärionen durch eine Flugzeitanalyse bestimmt. Hierbei werden die Ionen mithilfe eines elektrischen Feldes aus der Ionisationszone extrahiert und so beschleunigt, dass sie die gleiche kinetische Energie besitzen. In einer feldfreien Driftstrecke trennen sich die Ionen aufgrund ihres unterschiedlichen Masse zu Ladungsverhältnisses und der daraus resultierenden unterschiedlichen Geschwindigkeit auf. Der Einsatz eines elektrischen Reflektors, der die Ionen nach einer bestimmten Wegstrecke in eine andere Richtung reflektiert, erhöht das Massenauflösungsvermögen eines Flugzeit-Massenspektrometers, da Ionen mit einer größeren kinetischen Energie tiefer in das Reflektron eindringen und somit eine längere Flugbahn haben. Bei optimaler Einstellung des Reflektors können so Fehler aufgrund von unterschiedlichen Startenergien der verschiedenen Ionen ausgeglichen werden, sodass alle Ionen mit gleichem Masse zu Ladungsverhältnis gleiche Flugzeiten haben. Hierdurch wird eine Korrektur der Flugzeitdispersion erreicht. Darüber hinaus wird das Auflösungsvermögen durch das Reflektron ebenfalls aufgrund der verlängerten Flugbahn erhöht. Neben der hohen Auf-

lösung ist ein weiterer Vorteil der Flugzeit-Massenspektrometrie, dass sie eine simultane Messung verschiedener Masse zu Ladungsverhältnisse ermöglicht [11]. Die Kombination aus Flugzeit-Massenspektrometrie und SIMS erlaubt Oberflächenuntersuchungen mit hohem Massenaufklärungsvermögen und guter lateraler Auflösung [12].

Bei dem im Rahmen dieser Arbeit verwendeten TOF-SIMS-Gerät handelt es sich um ein „TOF-SIMS 5“ der Firma „ION-TOF“. Dieses verwendet eine *liquid metal ion gun* (Flüssigmetall Ionenkanone) (LMIG) als Primärionenquelle, welche Bismut- und Manganionen fokussiert und gepulst beschleunigt. Der Primärionenstrahl kann über die Oberfläche gerastert werden, um so orts aufgelöste Massenspektren von der zu untersuchenden Probe aufnehmen zu können. Die verwendete TOF-SIMS besitzt ein maximales Massenaufklärungsvermögen von $m/\Delta m = 12000$, dieses wird jedoch nur bei einer verhältnismäßig schlechten lateralen Auflösung von etwa $3\ \mu\text{m}$ erreicht [13], daher wird dieser Messmodus nur bei glatten und homogenen Proben eingesetzt. Durch geeignete Wahl der Messparameter können Massenaufklärung und laterale Auflösung an die Messanforderungen angepasst werden.

2.7 Sekundärneutralteilchen-Massenspektrometrie (SNMS)

Bei Sekundärneutralteilchen-Massenspektrometrie (SNMS) wird, wie bei SIMS, die Probenoberfläche mit einem Primärionenstrahl beschossen. Im Gegensatz zur SIMS werden jedoch nicht die beim Sputtern erzeugten Ionen, sondern die entstandenen neutralen Teilchen nachionisiert und analysiert. Der Anteil der beim Sputtern ionisierten Teilchen liegt, abhängig von der Probe, bei etwa einem Prozent [14], daher kann durch eine geeignete Nachionisationsmethode bei SNMS eine höhere Ionenausbeute gegenüber SIMS erreicht werden.

Das in Abschnitt 2.6 vorgestellte TOF-SIMS-System wurde durch die Verbindung mit einem optimierten Lasersystem zu einem resonanten-Laser-SNMS-System modifiziert. Hierbei werden die erzeugten Sekundärionen mithilfe eines elektrischen Felds, dem sogenannten *bias*, verdrängt und die Sekundärneutralteilchen mithilfe des Lasersystems resonant ionisiert. Da die resonante Ionisation elementspezifisch ist, kann mit geeigneten Anregungsschemata durch die resonanten Laser SNMS eine Isobarenunterdrückung erreicht werden. Durch ein Anregungsschema wie es durch Raeder et al. [15] beschrieben wurde, können die Plutoniumisotope massenspektrometrisch trotz der isobaren Interferenz von ^{238}U untersucht werden. Ein detaillierter Aufbau des Messsystems ist durch Franzmann et al. [16] beschrieben.

2.8 γ -Spektrometrie

γ -Spektrometrie gehört zu den radiometrischen Standardanalysemethoden. Hierbei wird die Eigenschaft von γ -Strahlung ausgenutzt, dass sie monoenergetisch und für das Radionuklid charakteristisch ist. Die γ -Quanten werden mithilfe eines Halbleiterdetektors energieaufgelöst gemessen und die Signale durch eine nachgeschaltete Auswertelektronik zu einem Spektrum verarbeitet. Eine Energiekalibrierung mithilfe Kalibrationsstandards ermöglicht eine Zuordnung der *Peaks* im Spektrum zu den korrespondierenden Radionukliden. Da die Detektionseffizienz für die verschiedenen Energiebereiche nicht konstant ist und von der Geometrie der Probe abhängig ist, muss, um die Aktivität der verschiedenen Radionuklide bestimmen zu können, eine entsprechende Effizienzkalibration durchgeführt werden.

3 Experimentelle Durchführung

3.1 Experiment: Nadelätzen

Zum Ätzen der Wolframnadeln wurden der angelegte Strom und die Spannung durch das Netzteil auf verschiedene Werte begrenzt. Der zeitliche Verlauf von Strom und Spannung wurde durch ein Steuerprogramm dokumentiert. Der im Rahmen dieser Arbeit verfasste Quellcode der Steuerprogramme ist im Anhang (8.1) zu finden. Auf Grund der Resultate des Nadelätzens, welche im Abschnitt 4.1 zu finden sind und in Abschnitt 5.1 diskutiert werden, wurde bei weiteren Ätzversuchen die maximale Spannung während des Ätzprozesses verändert. Anschließend wurden die Wolframnadeln mithilfe eines Lichtmikroskops charakterisiert. Hierbei wurde überprüft, ob die Nadelspitzen insgesamt nach innen (konkav) oder außen (konvex) gewölbt sind, die Spitzen auf Unregelmäßigkeiten und Schäden überprüft und der Zulaufwinkel ab dem halben Durchmesser bis zur Spitze der Nadeln gemessen. Um den Zulaufwinkel der Nadeln zu bestimmen, wurde das *open-source*-Programm Fiji [17] verwendet.

Insgesamt wurden 8 Nadeln mit einer maximalen Spannung von 12 V und einem maximalen Strom von 0,6 A geätzt. 12 weitere Nadeln wurden mit einer maximalen Spannung von 24 V und einem maximalen Strom von 1,2 A geätzt. Zuletzt wurden 12 Nadeln geätzt, bei denen zu Beginn die maximale Spannung auf 30 V und der maximale Strom auf 5 A begrenzt wurde. Während des Ätzprozesses wurde die maximale Spannung um 0,13 V/s reduziert.

3.2 Experiment: Probenvorbereitung

Die im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Proben kamen aus der CEZ, welche zum größten Teil im Rahmen der Bachelorarbeit von Laura Leifermann [18] untersucht und präpariert wurden. Bei diesen Proben waren die uranhaltigen Partikel bereits mithilfe von α -track-Detektion und REM Untersuchungen identifiziert. Darüber hinaus wurde ein Asphaltbohrkern aus der CEZ im Rahmen dieser Arbeit untersucht. Der Asphaltbohrkern

besitzt einen Durchmesser von circa 2,5 cm und eine Höhe von circa 2 cm und ist in Abbildung 3.1 zu sehen. Er wurde im Rahmen einer Forschungsexpedition in die CEZ im



Abbildung 3.1: **Der verwendete Asphaltbohrkern**

Der Bohrkern ist circa 2 cm hoch und hat eine Radius von circa 1,25 cm

Jahr 2015 von einem Probenahmeort, welcher ungefähr 3,5 km westlich vom Kernkraftwerk Tschernobyl entfernt liegt, genommen. Eine genaue Position des Probenahmeorts des Bohrkerns ist im Anhang (8.2) zu finden, die Probenhistorie wird in der Dissertation von Linda Hamann [13] beschrieben. Auf dem Bohrkern konnten mithilfe des REM verschiedene uranhaltige Partikel identifiziert, aufgrund der Probengeometrie und Topografie jedoch nicht extrahiert werden. Aufgrund der Probenhöhe konnte mit der im Mikromanipulator befestigten Nadel nur in einem sehr spitzen Winkel gearbeitet werden. Die unterschiedliche Topografie des Bohrkerns macht es jedoch in diesem Winkel unmöglich, Partikel zu erreichen, die in einer Vertiefung der Oberfläche lagen. Daher wurde der Bohrkern in einem Becherglas mit Reinstwasser in einem Ultraschallbad behandelt. Auf diese Weise wurden locker anhaftende Partikel von dem Asphaltbohrkern gelöst und im Wasser aufgeschlämmt. Das so entstandene Sediment wurde getrocknet und auf einem 2 cm breiten und 4 cm langen Kohlenstoffklebeband verteilt. Eine Überprüfung durch einen Kontaminationsmonitor ergab, dass hierdurch Radioaktivität auf dem Kohlenstoffklebeband deponiert wurde. Um potentiell uranhaltige Partikel auf dieser, für ein REM sehr großen, Probe zu finden, wurde eine α -track-Analyse durchgeführt, die dazugehörige Detektorplatte wurde mithilfe

eines Lichtmikroskops untersucht. Das so entstandene Bild (Siehe Abbildung 4.2) der Detektorplatte wurde als Karte eingesetzt, um mit dem REM die Positionen der *spots* zu untersuchen. Auf diese Weise wurden 5 Partikel auf der Probe lokalisiert.

3.3 Experiment: Extraktion der uranhaltigen Partikel

Nach der Lokalisierung und Identifikation uranhaltiger Partikel wurde versucht, diese mithilfe der Wolframnadeln, des Mikromanipulators und des REM-kompatiblen Klebers zu extrahieren. Das verwendete Verfahren wurde analog zu Martin et al. [19] durchgeführt. Zunächst wird eine geeignete Wolframnadel in den Arm des im REM verbauten Mikromanipulators gesteckt, sowie die Probe und der REM kompatible Kleber in die Vakuumkammer des REM eingebaut.

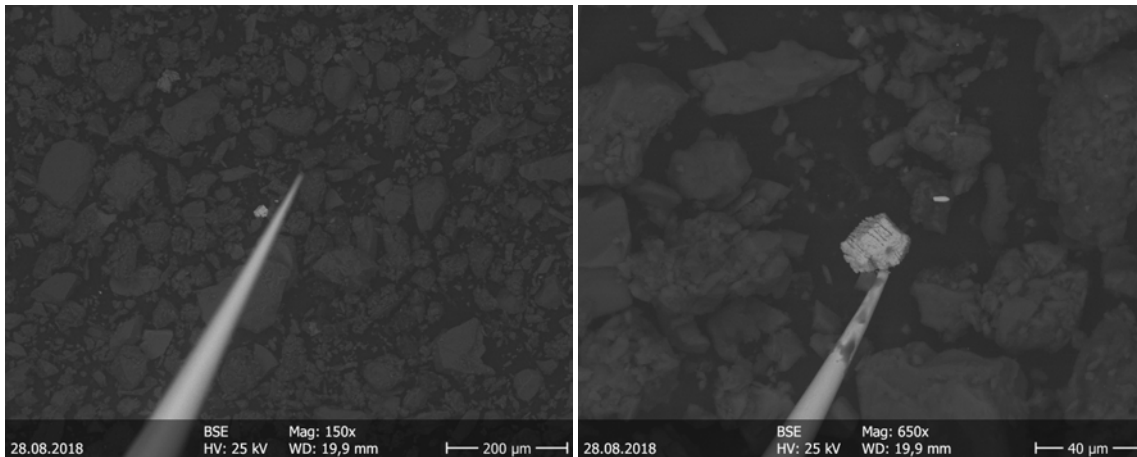
Hiernach wird, wie in Abbildung 3.2a dargestellt, die Probe und die Wolframnadel so navigiert, dass beide zu erkennen sind. Da das im Rahmen dieser Arbeit verwendete REM ein Einzelstrahlrasterelektronenmikroskop ist, können Höhenunterschiede nur mithilfe der Schärfenebene abgeschätzt werden.

Im folgenden Schritt, der in Abbildung 3.2b gezeigt ist, werden mithilfe der Wolframnadel die um den uranhaltigen Partikel liegenden anderen Partikel aus dem Weg geräumt. Auf diese Weise wird Platz zum Agieren geschaffen und sichergestellt, dass am Ende nur der uranhaltige Partikel extrahiert wird. Wenn bei dem Freiräumen des Partikels Schäden an der Wolframnadel entstanden sind, wird diese ausgewechselt. Bevor mit dem Einsatz von Kleber begonnen wird, wird sichergestellt, dass die Spitze der Nadel den uranhaltigen Partikel berühren kann.

Als nächstes wird zu dem REM kompatiblen Kleber navigiert. Dieser erscheint, wie in Abbildung 3.2c zu sehen ist, im BSE Modus sehr dunkel, wodurch es relativ einfach ist, die Spitze der Wolframnadel in den Kleber einzutauchen und herauszuziehen, um so Kleber auf die Spitze aufzutragen. Aufgrund des hohen Kontrasts zwischen Kleber und Wolframspitze ist, wie in Abbildung 3.2d dargestellt ist, gut zu erkennen, wenn der Kleber auf der Spitze aufgebracht wurde.

Mit dieser mit Kleber bedeckten Spitze wird dann, wie in Abbildung 3.2e zu sehen ist, eine möglichst große Kontaktfläche zum uranhaltigen Partikel hergestellt. Da der Kleber unter Einwirkung des Elektronenstrahls aushärtet, wird soweit wie möglich auf die Kontaktfläche vergrößert und fokussiert. Die Beschleunigungsspannung wird erhöht und die Fokussierung des REM so eingestellt, dass die Intensität des Elektronenstrahls auf der Probe maximal wird. Aufgrund der hohen Intensität und starken Vergrößerung ist das Aufnehmen von scharfen REM-Aufnahmen während des Aushärtvorgangs nicht möglich. Auf diese Weise wird der Elektronenstrahl für einige Minuten über die Kontaktfläche bewegt.

Wenn der Kleber ausgehärtet ist, wird die Nadel senkrecht von der Probe wegbewegt um so den uranhaltigen Partikel zu extrahieren. Der schließlich an der Nadel haftende Partikel ist in Abbildung 3.2f zu erkennen. Anschließend kann die Nadel mit Partikel nach Belüften der Vakuumkammer aus dem Mikromanipulator für weitere Untersuchungen ausgebaut werden.

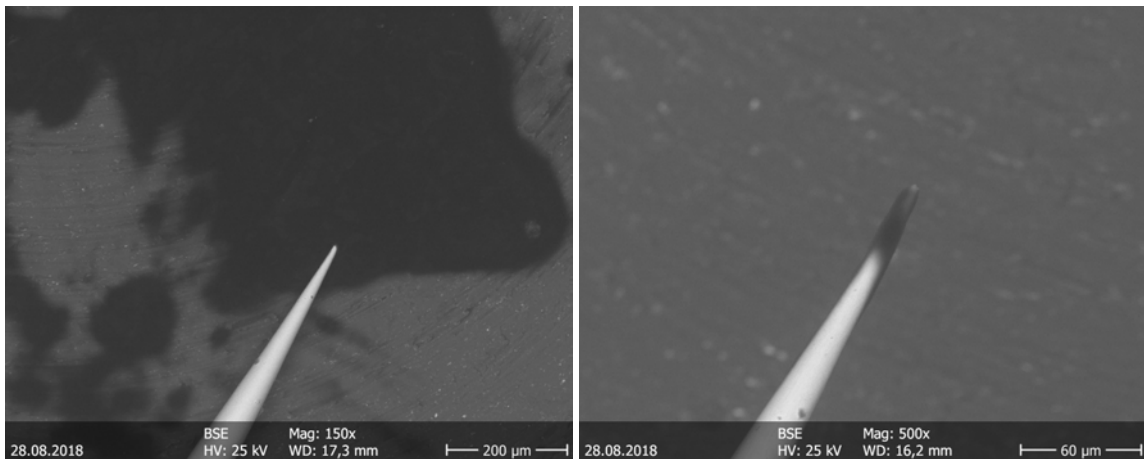


(a) **Schritt 1**

Zu Beginn wird die Wolframnadel und die Probe so navigiert, dass beide im Bildausschnitt des REM zu erkennen sind.

(b) **Schritt 2**

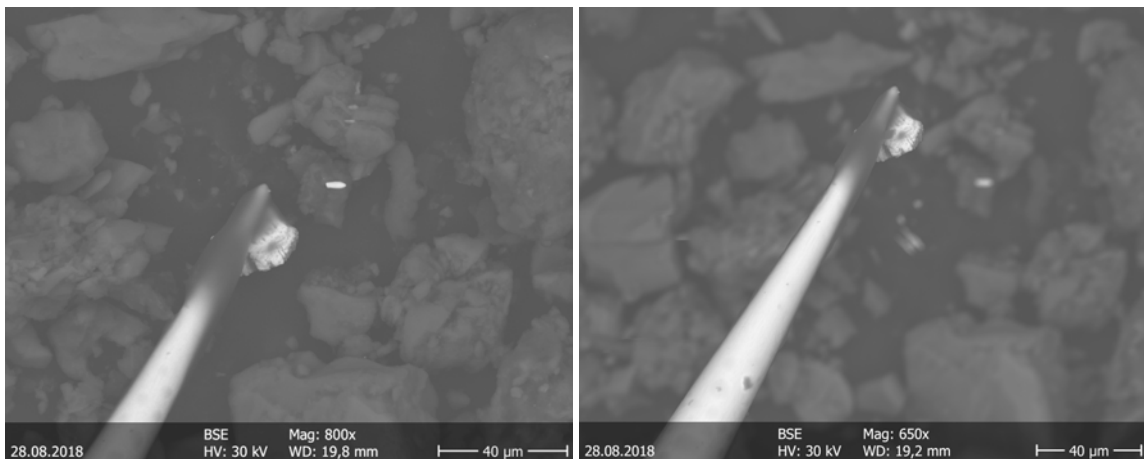
Als nächstes wird mithilfe der Wolframnadel der Bereich um den uranhaltigen Partikel freigeräumt.

**(c) Schritt 3**

In diesem Schritt wird zu dem REM kompatiblen Kleber navigiert. Da dieser aus einem homogenen Material besteht, ist im BSE Modus des REM kaum Materialkontrast vorhanden. Anhand der sehr dunklen Farbe des Klebers im BSE Modus ist zu erkennen, dass der Kleber aus relativ leichtem Material besteht. Zusätzlich ist, aufgrund der geringen Leitfähigkeit des Klebers im Hochvakuum ein Aufladen der Oberfläche zu erkennen, was sich in Bildfehlern bei allen REM-Detektoren äußert. Da die Wolframnadel im BSE Modus deutlich heller als der Kleber erscheint, ist der Moment des Eintauchens der Nadel in den Kleber relativ einfach zu erkennen.

(d) Schritt 4

Im BSE Modus ist der Kleber an der Spitze der Wolframnadel aufgrund des hohen Kontrasts zu erkennen.

**(e) Schritt 5**

Um den Partikel mit der Wolframnadel zu verbinden, muss eine möglichst große Kontaktfläche zwischen der mit Kleber belegten Spitze und dem Partikel gegeben sein. Um den Kleber auszuhärten, muss der Elektronenstrahl auf diesen fokussiert werden.

(f) Schritt 6

Nach erfolgreichem Aushärten ist der uranhaltige Partikel an der Nadel fixiert und kann so extrahiert werden.

Abbildung 3.2: **Extraktion uranhaltiger Partikel**

3.4 Experiment: Probenträger

Für die Untersuchung mit SIMS und SNMS wird ein Probenträger benötigt, mit dem die Nadeln, auf denen die Partikel fixiert sind, in die Messkammer der TOF-SIMS eingebaut werden können. Dieser Probenträger muss die Nadeln sicher aufbewahren und so gebaut sein, dass es einfach ist, Nadeln mit fixierten Partikeln einzubauen, ohne diese von der Nadel zu brechen. Darüber hinaus muss der Probenträger so gebaut sein, dass die elektrischen Felder zur Extraktion der erzeugten Ionen nicht gestört werden. Aufgrund dieser Anforderungen wurde der in Abbildung 3.3a gezeigte Probenträger entworfen. Dieser besitzt Rillen, in die die Wolframnadeln gelegt werden können. Die Spitze der Nadel soll dann über der in den Probenträger eingefrästen Vertiefung hängen. Diese Vertiefung soll die Gefahr minimieren, dass die Spitze der Nadel, während des Einbauens in den Probenträger diesen berührt und so der an der Nadel fixierte Partikel abbricht. Sollte dies entgegen aller Vorsichtsmaßnahmen passieren, kann der Partikel aus der Vertiefung verhältnismäßig einfach geborgen werden. Um die Nadeln im Probenträger zu fixieren, kann ein Blechstreifen quer über die Rillen in vorgefertigten Gewinden verschraubt werden, um die Nadeln festzuklemmen. Der Probenträger wurde aus Aluminium gefräst und getestet. Hierzu wurden mehrere SIMS Messungen an einem Partikel mit identischen Messparametern durchgeführt, wobei die Position der Nadelspitze variiert wurde. Aufgrund der Ergebnisse dieser Messungen, die in Abschnitt 4.4 zu finden sind und in Abschnitt 5.4 diskutiert werden, wurde ein zweiter Probenträger entworfen. Dieses Modell ist in Abbildung 3.3b gezeigt und besitzt im Gegensatz zum ersten Probenträger anstelle einer Vertiefung durchgehende Rillen.



(a) **Probenträger Model 1**

Die Nadelspitze mit dem fixierten Partikel hängt in der Mitte der Aussparung frei im Raum.

(b) **Probenträger Model 2**

Die Nadelspitze mit dem fixierten Partikel liegt in der Rille.

Abbildung 3.3: **Die beiden Probenträger Modelle**

Beide Modelle sind bei einer Höhe von 0,4 cm 2 cm breit und 4 cm lang. Sie können bis zu 3 auf Nadeln fixierte Partikel halten.

3.5 Experiment: SIMS und SNMS Messungen

An den extrahierten Partikeln wurden durch Manuel Raiwa und Hauke Bosco SIMS- und SNMS-Messungen durchgeführt. An dem Partikel BK-006 (Mopsimilian) wurden mithilfe von SIMS-Messungen die Verhältnisse der verschiedenen Uranisotope bestimmt. Durch SNMS-Messungen wurden die Verhältnisse der verschiedenen Plutoniumisotope bestimmt. Darüber hinaus wurden die Isotopenverhältnisse von $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ und $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ für insgesamt 11 extrahierte Partikel auf Basis von SIMS-Messungen berechnet.

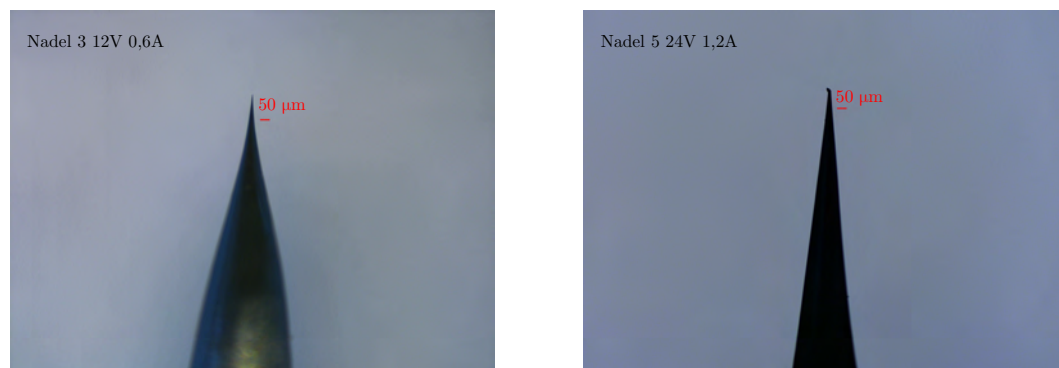
3.6 Experiment: γ -Spektrometrie

Die ^{241}Am und ^{137}Cs Aktivität der extrahierten uranhaltigen Partikel wurde mithilfe von γ -Spektrometrie bestimmt. Hierzu wurden die Nadeln, an denen die Partikel fixiert wurden, in den Probenträger Typ 1 3.3a eingebaut und mithilfe von Abstandshaltern auf einer definierten Höhe über dem Detektor gehalten. Da die uranhaltigen Partikel näherungsweise punktförmig sind, wurde die Energie und Effizienzkalibration mit punktförmigen Referenzstrahlern mit bekannter ^{241}Am und ^{137}Cs Aktivität durchgeführt, die im selben Abstand vom Detektor entfernt waren.

4 Ergebnisse

4.1 Ergebnisse: Nadelätzen

Die Lichtmikroskopieaufnahmen der Nadeln sind im Anhang (Abschnitt 8.4) zu finden. Es fällt auf, dass die Zulaufwinkel der einzelnen Nadeln untereinander stark variieren. Ebenfalls variieren die Krümmungswinkel unterschiedlich stark zwischen konkav und konvex für die unterschiedlichen Spitzen. Es ist zu erkennen, dass einige Nadeln nicht kontinuierlich zulaufen, sondern eine tropfenförmige Verdickung an der Spitze aufweisen. Ein Beispiel hierfür ist Nadel 7 aus der $U_{max} = 24\text{ V}$ -Reihe (Abbildung 8.4n). In Abschnitt 8.5 sind die Strom- und Spannungsverläufe des Nadelätzens zu finden. Insgesamt fällt auf, dass



(a) Nadel 3 mit $U_{max} = 12\text{ V}$
Zulaufwinkel: $22,74^\circ$

(b) Nadel 5 mit $U_{max} = 24\text{ V}$
Zulaufwinkel: $12,33^\circ$

Abbildung 4.1: Nadeln aus der $U_{max} = 12\text{ V}$ - und $U_{max} = 24\text{ V}$ -Reihe

Es ist an diesen beiden Nadeln zu erkennen, dass die Nadel aus der $U_{max} = 24\text{ V}$ -Reihe einen spitzeren Zulaufwinkel als die Nadel aus der $U_{max} = 12\text{ V}$ -Reihe besitzt. Bilder von allen, im Rahmen dieser Arbeit hergestellten Nadeln, sind im Anhang (Abschnitt 8.4) zu finden.

die Nadeln aus der $U_{max} = 24\text{ V}$ -Reihe im Durchschnitt einen spitzeren Zulaufwinkel als die Nadeln aus der $U_{max} = 12\text{ V}$ -Reihe aufweisen. Gleichzeitig besitzen die Nadeln aus der $U_{max} = 24\text{ V}$ -Reihe jedoch häufiger eine tropfenartige Spitze als die Nadeln aus der

$U_{max} = 12$ V-Reihe. Dies ist exemplarisch Abbildung 4.1 dargestellt.

Im Gegensatz hierzu weisen Nadeln die aus der $U_{max-Start} = 30$ V-Reihe stammen, einen mit den Nadeln aus der $U_{max} = 24$ V-Reihe vergleichbar spitzen durchschnittlichen Zulaufwinkel auf. Sie besitzen gleichzeitig eine vergleichbar niedrige Rate an tropfenförmigen Spitzen wie die Nadeln der $U_{max} = 12$ V-Reihe. Die bestimmten Parameter der einzelnen Nadeln, sowie die Mittelwerte, Standardabweichungen und Konfidenzintervalle, sind für die $U_{max} = 12$ V-Reihe in Tabelle 4.1, für die $U_{max} = 24$ V-Reihe in Tabelle 4.2 und für die $U_{max-Start} = 30$ V-Reihe in Tabelle 4.3 zu finden.

Tabelle 4.1: **Ergebnisse für $U_{max} = 12\text{ V}$ und $I_{max} = 0,6\text{ A}$**

Es sind der Zulaufwinkel, gemessen von der halben Dicke des Drahtes bis zur Spitze der jeweiligen Nadel, der Gesamteindruck über die Krümmung, die Beschaffenheit der Spitze und die Dauer des Ätzprozesses aufgetragen. In den unteren Zeilen sind der Mittelwert des Zulaufwinkels und der Ätzdauer, die Verhältnisse von konkaven und konvexen Nadeln und Spitzenformen, sowie die dazugehörigen Standardabweichungen und 95%-Intervalle aufgetragen. Aufgrund eines Fehlers im Ablauf des Programms, welches die Ätzdauer dokumentieren sollte, konnte diese nicht bei allen Nadeln aus dieser Reihe bestimmt werden.

Ergebnisse für $U_{max} = 12\text{ V}$ und $I_{max} = 0,6\text{ A}$						
Nadel	Zulaufwinkel	Gesamteindruck	Spitze	Ätzdauer		
1	16,93°	konkav	mit Tropfen	206,8 s		
2	27,94°	konvex	ohne Tropfen	-		
3	22,74°	konkav	ohne Tropfen	-		
4	24,08°	konvex	mit Tropfen	-		
5	14,58°	konkav	ohne Tropfen	229,4 s		
6	21,15°	konvex	ohne Tropfen	209,8 s		
7	15,23°	konkav	ohne Tropfen	195,8 s		
8	18,37°	konvex	ohne Tropfen	-		
Mittelwert	20,13°	konkav/ konvex Verhält- nis	0,5	mit/ohne Tropfen Verhält- nis	0,25	Mittelwert 210,45 s
Standard- abweichung	4,37°	Standard- abweichung	0,5	Standard- abweichung	0,43	Standard- abweichung 12,12 s
95%- Intervall	3,03°	95%- Intervall	0,35	95%- Intervall	0,30	95%- Intervall 11,88 s

Tabelle 4.2: **Ergebnisse für $U_{max} = 24\text{ V}$ und $I_{max} = 1,2\text{ A}$**

Es sind der Zulaufwinkel, gemessen von der halben Dicke des Drahtes bis zur Spitze der jeweiligen Nadel, der Gesamteindruck über die Krümmung, die Beschaffenheit der Spitze und die Dauer des Ätzprozesses aufgetragen. In den unteren Zeilen sind der Mittelwert des Zulaufwinkels und der Ätzdauer, die Verhältnisse von konkaven und konvexen Nadeln und Spitzenformen, sowie die dazugehörigen Standardabweichungen und 95%-Intervalle aufgetragen.

Ergebnisse für $U_{max} = 24\text{ V}$ und $I_{max} = 1,2\text{ A}$							
Nadel	Zulaufwinkel	Gesamteindruck	Spitze	Ätzdauer			
1	6,77°	konkav	mit Tropfen	139,9 s			
2	17,58°	konvex	ohne Tropfen	123,5 s			
3	18,06°	konvex	ohne Tropfen	123,4 s			
4	12,59°	konkav	mit Tropfen	115,1 s			
5	12,33°	konkav	mit Tropfen	116,6 s			
6	18,44°	konvex	ohne Tropfen	121,7 s			
7	14,12°	konvex	mit Tropfen	135,1 s			
8	14,47°	konkav	mit Tropfen	121,6 s			
9	16,93°	konkav	ohne Tropfen	130,8 s			
10	9,61°	konkav	ohne Tropfen	135,9 s			
11	18,02°	konvex	mit Tropfen	132,4 s			
12	11,05°	konkav	ohne Tropfen	131,7 s			
Mittelwert	14,1°	konkav/ konvex Verhält- nis	0,58	mit/ohne Tropfen Verhält- nis	0,5	Mittelwert	127,31 s
Standard- abweichung	3,59°	Standard- abweichung	0,49	Standard- abweichung	0,5	Standard- abweichung	7,68 s
95%- Intervall	2,03°	95%- Intervall	0,28	95%- Intervall	0,28	95%- Intervall	4,35 s

Tabelle 4.3: **Ergebnisse für $U_{max-start} = 30\text{ V}$ und $I_{max} = 5\text{ A}$**

Es sind der Zulaufwinkel, gemessen von der halben Dicke des Drahtes bis zur Spitze der jeweiligen Nadel, der Gesamteindruck über die Krümmung, die Beschaffenheit der Spitze und die Dauer des Ätzprozesses aufgetragen. In den unteren Zeilen sind der Mittelwert des Zulaufwinkels und der Ätzdauer, die Verhältnisse von konkaven und konvexen Nadeln und Spitzenformen, sowie die dazugehörigen Standardabweichungen und 95%-Intervalle aufgetragen.

Ergebnisse für $U_{max-start} = 30\text{ V}$ und $I_{max} = 5\text{ A}$							
Nadel	Zulaufwinkel	Gesamteindruck	Spitze	Ätzdauer			
1	17,05°	konvex	ohne Tropfen	124,7 s			
2	12,09°	konkav	ohne Tropfen	131,4 s			
3	10,31°	konkav	ohne Tropfen	126,2 s			
4	15,26°	konvex	ohne Tropfen	131,7 s			
5	13,76°	konvex	ohne Tropfen	142,7 s			
6	14,50°	konkav	mit Tropfen	99,9 s			
7	15,28°	konkav	mit Tropfen	134,5 s			
8	13,16°	konvex	ohne Tropfen	135,6 s			
9	7,85°	konkav	ohne Tropfen	136,1 s			
10	21,49°	konvex	ohne Tropfen	113,6 s			
11	15,76°	konkav	ohne Tropfen	80,5 s			
12	14,23°	konkav	mit Tropfen	73,9 s			
Mittelwert	14,23°	konkav/ konvex Verhält- nis	0,58	mit/ohne Tropfen Verhält- nis	0,25	Mittelwert	119,23 s
Standard- abweichung	3,26°	Standard- abweichung	0,49	Standard- abweichung	0,43	Standard- abweichung	21,75 s
95%- Intervall	1,84°	95%- Intervall	0,28	95%- Intervall	0,24	95%- Intervall	12,31 s

4.2 Ergebnisse: Probenvorbereitung

Auf der Lichtmikroskopieaufnahme (Abbildung 4.2) der α -track-Detektorplatte vom Bohrkernsediment sind eine Reihe von Tracks zu erkennen. An fünf der Spots wurden auf der Probe uranhaltige Partikel gefunden. Die Partikel besitzen Durchmesser im Bereich von 5 μm bis 20 μm und weisen sehr unterschiedliche Oberflächenstrukturen auf. Im Abschnitt 8.6 sind die EDX-Spektren der Partikel aufgeführt, aus denen hervorgeht, dass die Partikel Uran enthalten. An den weiteren, auf der Detektorplatte erkennbaren, Spots wurden keine uranhaltigen Partikel gefunden.

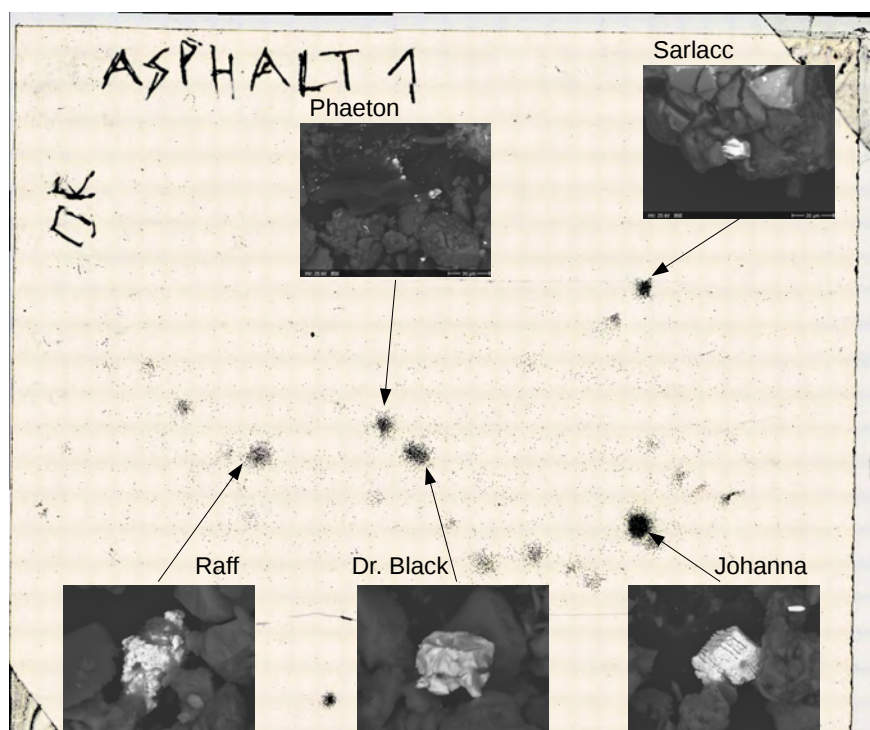


Abbildung 4.2: **Lichtmikroskopieaufnahme des α -track-Detektors vom Bohrkernsediment**

Es sind eine Reihe von verschieden stark ausgeprägten Spots zu erkennen. Die Markierungen in der oberen linken Ecke wurden in die Detektorplatte eingeritzt, um sie identifizieren zu können und um ihre Ausrichtung im Bezug zur Probe festzuhalten. Mithilfe dieser Abbildung konnten die uranhaltigen Partikel auf der Bohrkernsedimentprobe unter Verwendung des REM gesucht werden. Die fünf gefundenen Partikel wurden in die Abbildung eingezeichnet und den korrespondierenden spots zugeordnet.

4.3 Ergebnisse: Extraktion der uranhaltigen Partikel

Mit dem in Abschnitt 3.3 beschriebenen Verfahren konnten eine Reihe von uranhaltigen Partikeln aus verschiedenen Proben aus der CEZ extrahiert werden. Es war jedoch nicht möglich, jeden Partikel zu extrahieren. Dies lag zum Teil daran, dass die Partikel zu fest in dem Kohlenstoffklebeband oder der Probenmatrix steckten, sodass es nicht möglich war, die Partikel herauszuziehen. Zum Teil lagen die Partikel auch von so großen Sedimentstücken umgeben, dass es nicht möglich war, Kontakt zwischen Nadelspitze und Partikel herzustellen.

4.4 Ergebnisse: Probenträger

Bei ersten, versuchsweisen SIMS-Messungen mit dem Probenträger Modell 1 fiel eine relativ niedrige Zählrate in allen Kanälen auf. Da trotz funktionierender Primärionenquelle kein starkes Wolframsignal von der Nadel detektiert werden konnte, legte dies die Vermutung nahe, dass die erzeugten Sekundärionen nicht in den Analysator extrahiert werden. Eine mögliche Ursache hierfür kann eine Verzerrung der zur Extraktion verwendeten elektrischen Felder sein. Um diese Hypothese zu überprüfen wurden mehrere SIMS-Messungen durchgeführt, bei denen nur die Position der Nadelspitze im Probenträger variiert wurde um so die zur Extraktion angelegten Elektrischen Felder zu verändern. In Tabelle 4.4 sind die Ergebnisse der SIMS Vergleichsmessung am Probenträger Modell 1 aufgeführt. Es wurde bei jeder Messung die Fläche des Peaks, bei einem Masse zu Ladungsverhältnis von $m/z = 238$, bestimmt, da dieses Signal hauptsächlich von dem in der Probe vorhandenen ^{238}U Isotop erzeugt wird. Die Positionen, an denen sich der extrahierte Partikel während der Messung befand, sind in Abbildung 4.3 eingezeichnet.

Tabelle 4.4: **Vergleichsmessung mit SIMS an Probenträger 1**

In der Tabelle ist die Fläche des Peaks bei dem Masse zu Ladungsverhältnis von $m/z = 238$ für die verschiedenen Positionen der Nadelspitze im Probenträger aufgetragen.

Ergebnisse der Vergleichsmessung mit SIMS (1500 scans pro Messung, 128 Pixel x 128 Pixel) an den verschiedenen Positionen	
Position	Peakfläche für $m/z = 238$
1	6982 counts
2	88737 counts
3	162004 counts

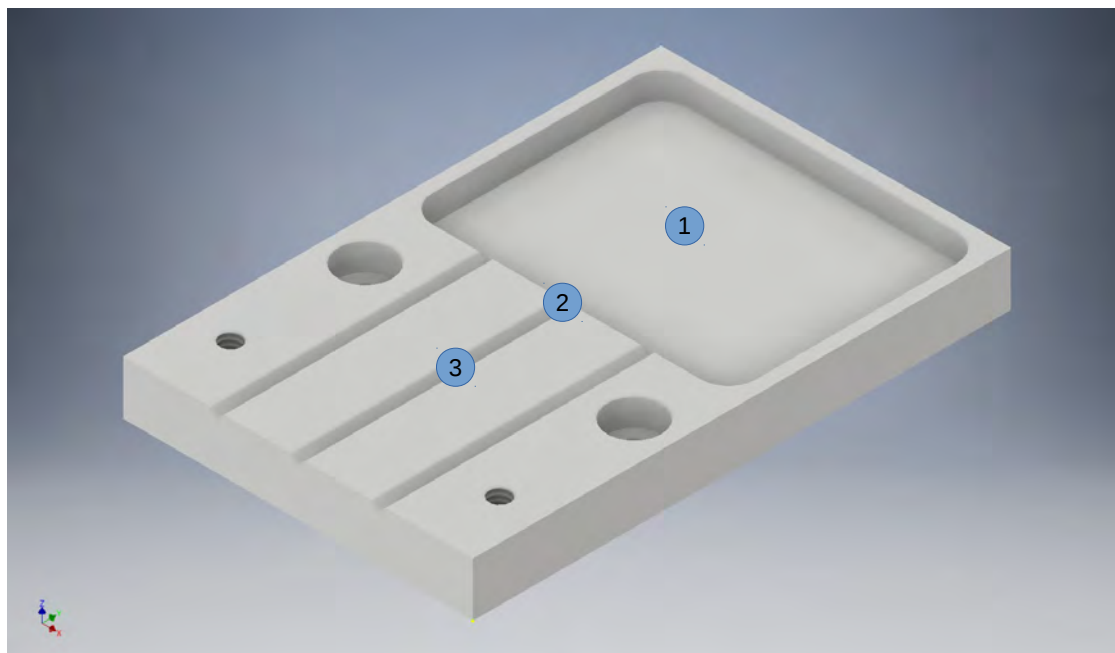


Abbildung 4.3: **Probenträger 1 mit Messpositionen**

Es sind die einzelnen Positionen, an denen sich die Nadelspitze mit dem uranhaltigen Partikel bei den Vergleichsmessungen befunden hat, eingezeichnet.

4.5 Ergebnisse: SIMS und SNMS Messungen

In Abbildung 4.4 ist das vom Partikel „BK-006 (Mopsimilian)“ aufgenommene SIMS-Spektrum zu sehen. Es ist zu erkennen, dass sowohl bei den Masse zu Ladungsverhältnissen $m/z = 235$, $m/z = 236$ und $m/z = 238$, als auch bei $m/z = 235 + 16$, $m/z = 236 + 16$, $m/z = 238 + 16$ und $m/z = 235 + 32$, $m/z = 236 + 32$, $m/z = 238 + 32$ Peaks zu finden sind. Basierend auf den Ergebnissen von Standardpartikelanalysen [13] und den Ergebnissen der EDX-Analyse, die im Rahmen dieser Arbeit ermittelt wurden, können die Peakflächen Uran und seinen Oxiden zugeschrieben werden. Aus den Peakflächen der elementaren Signale wurde nach Abzug eines Untergrundes mithilfe der Software „Measurement Explorer“ von „ION-TOF“ das relative Isotopenverhältnis der Uranisotope ermittelt. Die Verhältnisse von $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ und $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ für die verschiedenen extrahierten Partikel sind in Abbildung 4.6 und Tabelle 4.5 aufgetragen.

Tabelle 4.5: **Ergebnisse der SIMS Messungen am Partikel „BK-006 (Mopsimilian)“**

Der Partikel „BK-006 (Mopsimilian)“ wurde im Rahmen dieser Arbeit von der Bohrkernprobe extrahiert. In der Tabelle sind die mit SIMS gemessenen Anteile der Uranisotope sowie ihre Verhältnisse und die dazugehörigen relativen Unsicherheiten aufgetragen.

Ergebnisse der SIMS Messungen am Partikel „BK-006 (BK-006 (Mopsimilian))“			
Anteil ^{234}U	0,00025	$u_{rel}(^{234}\text{U})$	0,046
Anteil ^{235}U	0,01556	$u_{rel}(^{235}\text{U})$	0,0058
Anteil ^{236}U	0,00131	$u_{rel}(^{236}\text{U})$	0,0204
Anteil ^{238}U	0,98290	$u_{rel}(^{238}\text{U})$	0,0010
$^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$	0,01582	$u_{rel}(^{235}\text{U}/^{238}\text{U})$	0,0058
$^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$	0,00026	$u_{rel}(^{234}\text{U}/^{238}\text{U})$	0,0464
$^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$	0,00133	$u_{rel}(^{236}\text{U}/^{238}\text{U})$	0,0204

Für die Bestimmung der relativen Isotopenverhältnisse der Plutoniumisotope wurde das Resonanzionisationslasersystem mit der TOF-SIMS gekoppelt, um aus der neutralen Fraktion selektiv die vorhandenen Plutoniumisotope zu ionisieren. Es wurde ein dreistufiges Anregungsschema verwendet, wobei die Leistung der einzelnen Laser knapp oberhalb der Sättigungsleistung der einzelnen Übergänge lag. Daher können die Peaks im Spektrum (Abbildung 4.5) den Plutoniumisotopen zugeordnet werden. Aufgrund eines trotz resonanter Ionisation verbliebenen Uranuntergrunds ist der Peak bei $m/z = 238$ aufgrund der isobaren Interferenz zu ^{238}U nicht eindeutig zuzuordnen. Dies wird im Abschnitt 5.5 diskutiert.

Die mit SNMS bestimmten Isotopenverhältnisse für Plutonium sind in Tabelle 4.6 aufgetragen.

Tabelle 4.6: **Ergebnisse der SNMS Messungen am Partikel „BK-006 (Mopsimilian)“**

Der Partikel „BK-006 (Mopsimilian)“ wurde im Rahmen dieser Arbeit von der Bohrkernprobe extrahiert. In der Tabelle sind die mit SNMS gemessenen Anteile der Plutoniumisotope sowie ihre Verhältnisse und die dazugehörigen relativen Unsicherheiten aufgetragen. Aufgrund des Uranuntergrunds konnte der Anteil von ^{238}Pu nicht eindeutig bestimmt werden.

Ergebnisse der SNMS Messungen am Partikel „BK-006 (Mopsimilian)“			
Anteil ^{238}Pu	-	$u_{rel}(^{238}\text{Pu})$	-
Anteil ^{239}Pu	0,7960	$u_{rel}(^{239}\text{Pu})$	0,009
Anteil ^{240}Pu	0,1522	$u_{rel}(^{240}\text{Pu})$	0,030
Anteil ^{241}Pu	0,0495	$u_{rel}(^{241}\text{Pu})$	0,142
Anteil ^{242}Pu	0,0023	$u_{rel}(^{241}\text{Pu})$	0,342
$^{238}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$	-	$u_{rel}(^{238}\text{Pu}/^{239}\text{Pu})$	-
$^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$	0,1912	$u_{rel}(^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu})$	0,032
$^{241}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$	0,0622	$u_{rel}(^{241}\text{Pu}/^{239}\text{Pu})$	0,143
$^{242}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$	0,0029	$u_{rel}(^{242}\text{Pu}/^{239}\text{Pu})$	0,342

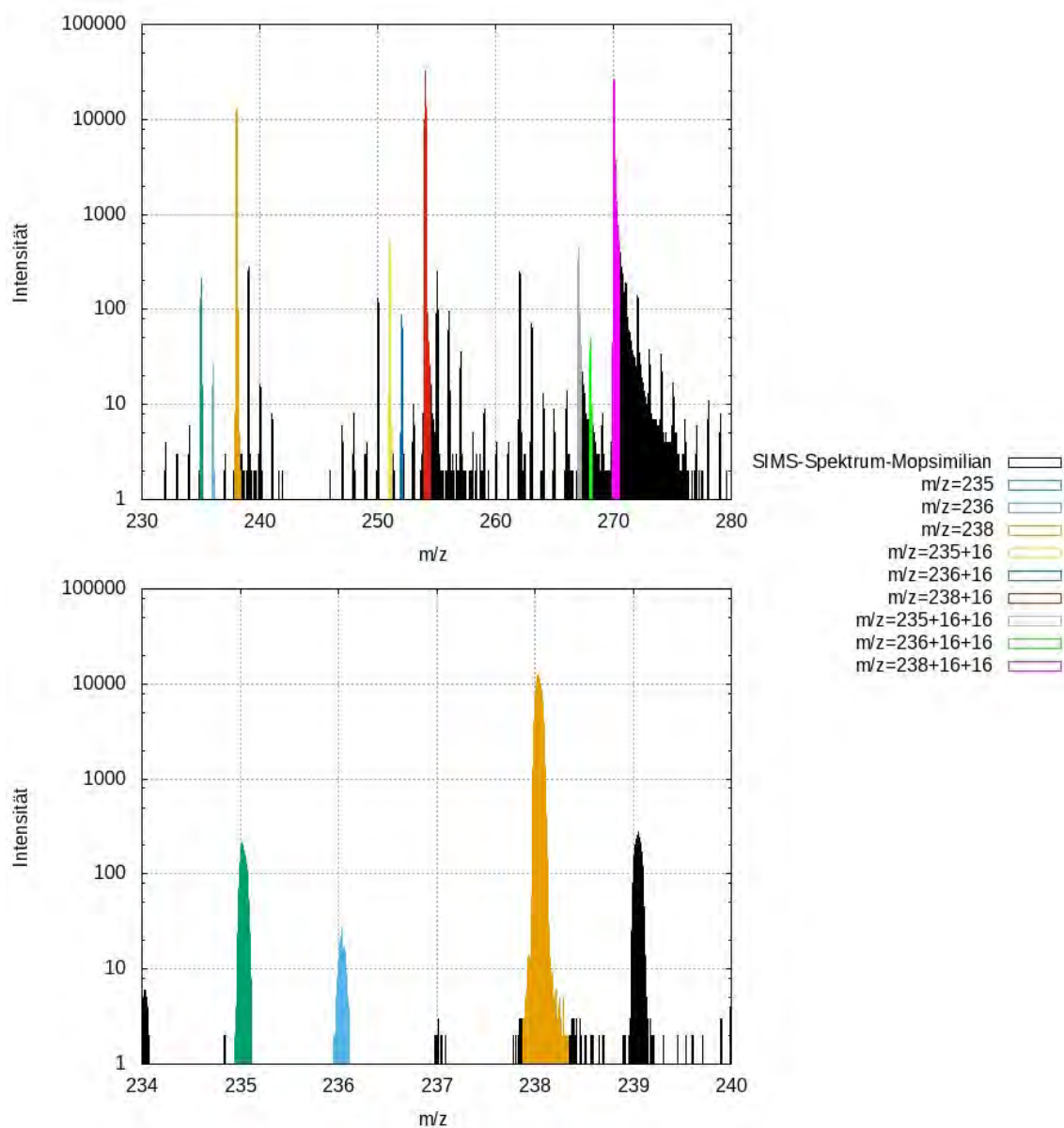


Abbildung 4.4: SIMS-Spektrum des Partikels „BK-006 (Mopsimilian)“
 Es wurden die Peaks, bei denen die Uranisotope und ihre Oxide liegen, farblich markiert.

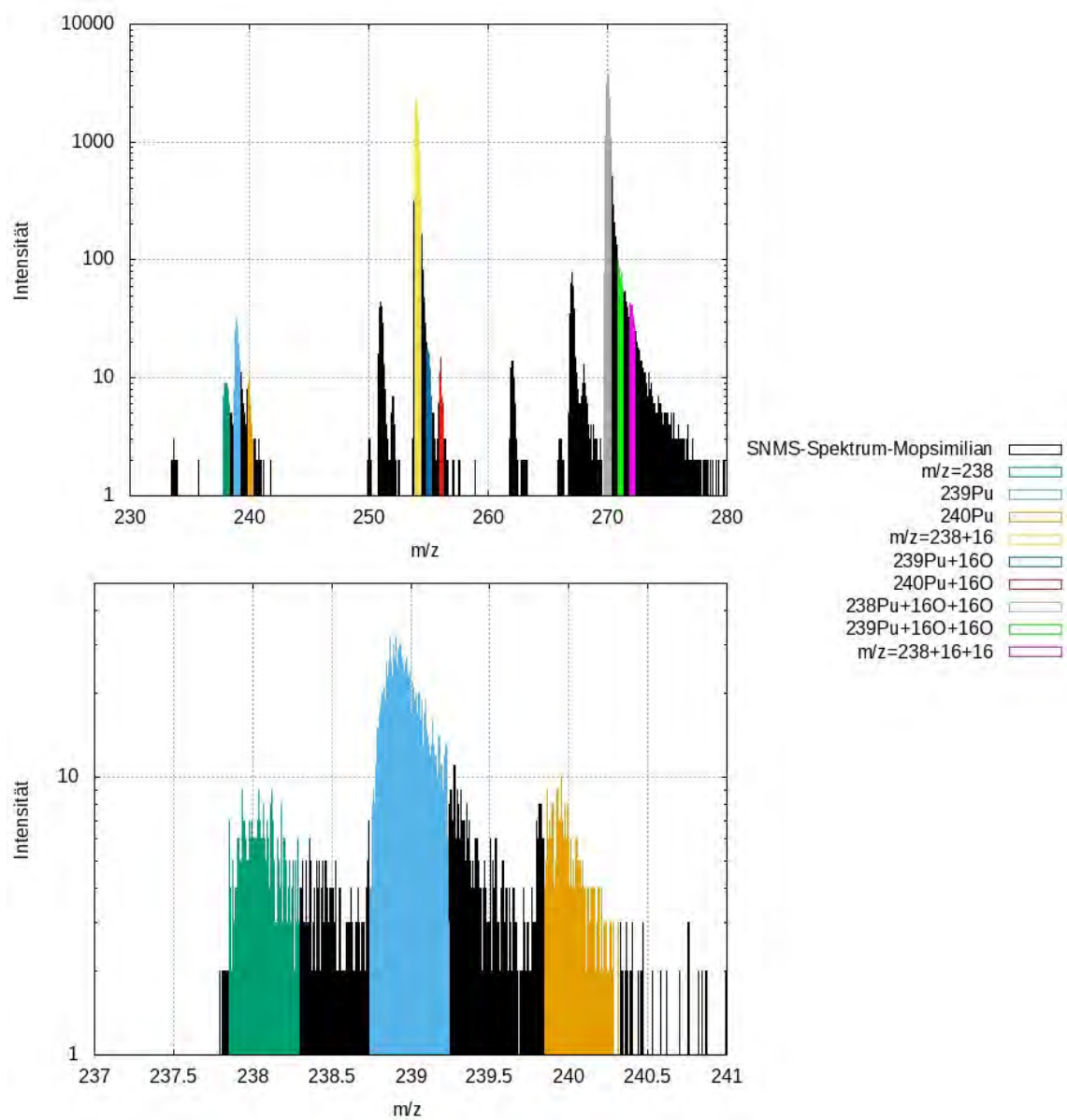


Abbildung 4.5: SNMS-Spektrum des Partikels „BK-006 (Mopsimilian)“
 Es wurden die *Peaks* der Plutoniumisotope und der Oxide farblich markiert.

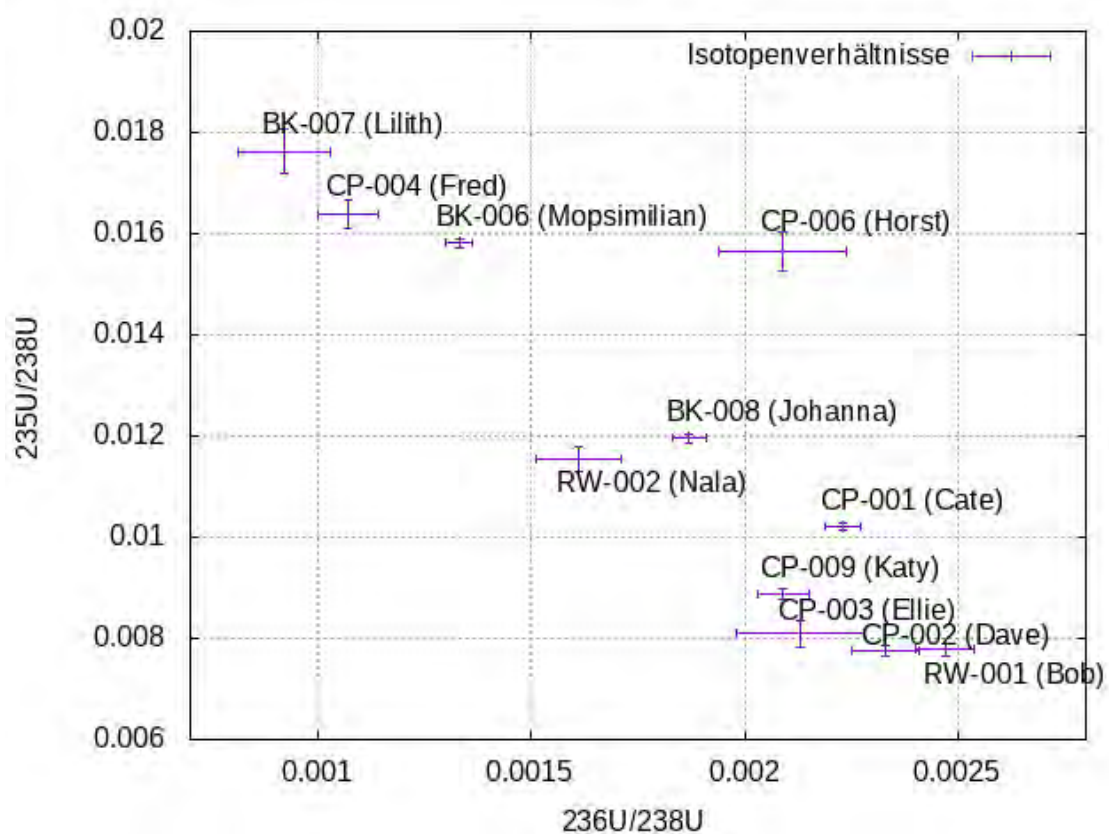


Abbildung 4.6: **Uranisotopenverhältnisse der extrahierten Partikel**

Es sind das $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ und das $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ Verhältnis für die verschiedenen Partikel aufgetragen.

4.6 Ergebnisse: γ -Spektrometrie

Die durch γ -Spektrometrie bestimmte ^{241}Am und ^{137}Cs Aktivität für die extrahierten Partikel, die Namen, die Probenherkunft und ihre ungefähre Größe sind in Tabelle 4.7 aufgetragen. Aufgrund der geringen ^{241}Am Aktivität konnte diese nur bei den beiden aktivsten Partikeln bestimmt werden.

Tabelle 4.7: **Ergebnisse der γ -Spektrometrie**

In der Tabelle sind die Namen, die Probenherkunft, die ungefähre Größe, und die mithilfe von γ -Spektrometrie bestimmten ^{241}Am und ^{137}Cs Aktivitäten der extrahierten Partikel aufgetragen.

Ergebnisse der γ -Spektrometrie				
Name	Herkunft	Größe	Aktivität ^{241}Am	Aktivität ^{137}Cs
CP-003 (Ellie)	<i>cooling pond</i>	40 μm x 20 μm	6,61 Bq	56,86 Bq
CP-006 (Horst)	<i>cooling pond</i>	40 μm x 40 μm	0,27 Bq	20,11 Bq
CP-009 (Katy)	<i>cooling pond</i>	20 μm x 20 μm	-	1,49 Bq
BK-006 (Mopsimilian)	Bohrkern	16 μm x 16 μm	-	3,85 Bq
RW-010 (Marie)	Roter Wald	10 μm x 10 μm	-	0,06 Bq
BK-008 (Johanna)	Bohrkern	25 μm x 20 μm	-	6,9 Bq

5 Diskussion

5.1 Diskussion: Nadelätzen

Aufgrund der Ergebnisse der Nadeln aus der $U_{max} = 12\text{ V}$ -Reihe und der $U_{max} = 24\text{ V}$ -Reihe ist davon auszugehen, dass bei einer Erhöhung der Leistung, mit denen die Nadeln geätzt werden, eine Reduzierung der durchschnittlichen Ätzdauer erfolgt. Gleichzeitig wird der durchschnittliche Zulaufwinkel der Nadeln spitzer. Anhand der in Abschnitt 8.5 zu findenden Strom- und Spannungsverläufe ist zu erkennen, dass die Leistung mit der die Nadeln aus der $U_{max} = 12\text{ V}$ -Reihe und der $U_{max} = 24\text{ V}$ -Reihe geätzt wurden zwar über den zeitlichen Verlauf variiert, jedoch zum Ende des Ätzprozesses höchstens auf den halben Maximalwert gefallen und in einigen Fällen sogar noch gestiegen ist. Da gleichzeitig der Querschnitt der Spitze der Nadel im fortlaufenden Ätzprozess sinkt, liegt die Vermutung nahe, dass die tropfenförmigen Spitzen aufgrund von thermischen Effekten wegen der hohen Leistungsdichte in der Spitze entstehen.

Da für die Extraktion der uranhaltigen Partikel besonders spitze Nadeln benötigt werden, ist keine der beiden Methoden ideal, um geeignete Nadeln effizient herzustellen. Daher wurde die $U_{max-Start} = 30\text{ V}$ -Reihe durchgeführt, da vermutet wurde, dass die so hergestellten Nadeln aufgrund der besonders hohen Spannung zu Beginn einen besonders spitzen Zulaufwinkel aufweisen und aufgrund der Reduktion der Leistung während des Ätzprozesses weniger tropfenartige Spitzen entstehen. Die Ergebnisse der Untersuchung der Nadeln aus der $U_{max-Start} = 30\text{ V}$ -Reihe bestätigen dies. Die Konfidenzintervalle der ermittelten Werte zeigen jedoch, dass eine zu geringe Anzahl an Spitzen für eine verlässliche Aussage erzeugt wurden. Gleichzeitig lassen die hohen Schwankungen in allen ermittelten Werten, insbesondere bei der Ätzdauer, vermuten, dass weitere Parameter, die im Rahmen dieser Versuche nicht untersucht und kontrolliert worden sind ebenfalls einen Einfluss auf die Ergebnisse haben. Es wurde zum Beispiel der Einfluss der Flussrate der Natronlauge im Rahmen dieser Arbeit nicht untersucht.

Insgesamt lässt sich sagen, dass für ein volles Verständnis aller Prozesse während des Ätzens weitere Versuche notwendig sind, was jedoch über den Rahmen dieser Arbeit hinausginge. Es wurde eine ausreichende Anzahl für die Extraktion von uranhaltigen Partikel geeigneter Nadeln, produziert und mit der $U_{max-Start} = 30\text{ V}$ -Reihe wurde ein effizientes Verfahren zur Herstellung dieser Nadeln entwickelt.

5.2 Diskussion: Probenvorbereitung

Durch das Behandeln des Bohrkerns in einem Ultraschallbad und das anschließende Aufkleben des getrockneten Sediments auf Kohlenstoffklebeband war es möglich, eine Reihe von uranhaltigen Partikeln für die Extraktion vorzubereiten. Durch den Einsatz des α -track-Detektors wurden diese Partikel identifiziert. Beim Vergleich der REM-Bilder der extrahierten uranhaltigen Partikel fällt auf, dass diese sich in ihrer äußeren Form, zum Teil deutlich unterscheiden.

Salbu et al. [20] unterteilt die uranhaltigen Partikel in vier Kategorien, die UZrO Partikel, die UO₂Partikel, die UO_{2+X} Partikel und alle weiteren. Die unterschiedlichen chemischen Zusammensetzungen der Partikel bedingen laut Salbu et al. eine unterschiedlich schnelle Zersetzung der Partikel, was zu unterschiedlicher Morphologie dieser führt. Dies lässt vermuten, dass die auf der Bohrkernsedimentprobe gefundenen uranhaltigen Partikel unterschiedliche chemische Zusammensetzungen aufweisen, was jedoch nicht mit den im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Messmethoden überprüfbar war. Als möglicher Ansatz zur Ermittlung der chemischen Zusammensetzung könnten *near-edge X-ray absorption fine structure* (Röntgen-Nahkanten-Absorptions-Spektroskopie) (XANES)-Messungen zur Speziationsanalytik vorgenommen werden. Es ist jedoch zu beachten, dass mithilfe des EDX kein Zirkonium in den Partikeln gefunden werden konnte. Daher ist zu vermuten, dass die Partikel nur zu geringem Anteil aus UZrO bestehen.

Dass trotz der großen Anzahl an Spots auf der Detektorplatte nur fünf Partikel gefunden wurden, kann mehrere Gründe haben. Die zusätzlichen Spots können durch uranhaltige Partikel erzeugt worden sein, die nach der α -track-Detektion auf der Probe verdeckt wurden und hierdurch mit dem REM nicht auffindbar waren. Dies könnte zum Beispiel durch auf der Probe vorhandene größere Sedimentpartikel beim Einsetzen der Probe in das REM geschehen. Ebenfalls ist es denkbar, dass uranhaltige Partikel, falls sie nicht ausreichend stark durch das Kohlenstoffklebeband fixiert waren, zwischen α -track-Detektion und REM-Untersuchung ihre Position verändert haben und daher an der Stelle der Spots nicht auffindbar waren. Räumlich große *spots* mit einer geringen Intensität können durch nichtpartikulär vorliegendes Uran erzeugt worden sein. Aufgrund der geringen Urankonzentration wäre dies mithilfe des REM nicht detektierbar. Darüber hinaus ist es möglich, dass andere α -strahlende Nuklide, wie zum Beispiel natürlich vorkommendes Thorium, in der Probe vorhanden sind und *spots* erzeugen.

Insgesamt stellt das Auffinden der uranhaltigen Partikel mithilfe der α -track-Detektoren trotz der zusätzlichen *spots* eine effiziente Methode dar. Um eine befriedigende Erklärung für die unterschiedliche Morphologie der uranhaltigen Partikel zu erhalten, müssten weitere Messungen durchgeführt werden, die über den Umfang dieser Arbeit hinausgehen.

5.3 Diskussion: Extraktion der uranhaltigen Partikel

Durch das Fixieren der Partikel an den Nadeln mit dem im Abschnitt 3.3 beschriebenen Verfahren ist es möglich, verschiedene Messungen an den uranhaltigen Partikeln durchzuführen, die vor der Extraktion gar nicht, oder nur deutlich erschwert möglich waren.

Durch die Extraktion ist es möglich, EDX-Spektren der uranhaltigen Partikel mit deutlich geringerem Untergrund aufzunehmen, da die Partikel nicht mehr von der Probenmatrix umgeben sind.

Die auf der Wolframnadel fixierten Partikel sind in den meisten Fällen elektrisch leitend, daher ist es möglich, von den extrahierten Partikeln hochaufgelöste REM-Aufnahmen ohne störende Aufladungseffekte zu machen, da Ladung über die Nadel abfließen kann. Dies ist auch bei vielen weiteren Messmethoden, bei denen die Probe mit geladenen Teilchen beschossen wird, von Vorteil. So kann mit den auf Wolframnadeln fixierten Partikeln SIMS und SNMS durchgeführt werden, worauf in Abschnitt 5.5 im Detail eingegangen wird.

Da es sehr schwierig ist, uranhaltige Partikel in einer Sedimentprobe optisch von den anderen Partikeln zu unterscheiden, ist es erst nach der Extraktion möglich, effizient die uranhaltigen Partikel lichtmikroskopisch zu untersuchen.

Durch die Extraktion der uranhaltigen Partikel ist es darüber hinaus möglich, diese mithilfe von radiometrischen Verfahren, wie α - und γ -Spektroskopie zu vermessen. Dies ist vor der Extraktion unmöglich, da aufgrund der in der Probenmatrix befindlichen Radionuklide eine exakte Zuordnung der Zählereignisse zu der Quelle unmöglich ist und zum Teil Abschirmungseffekte aufgrund des Probenvolumens auftreten können.

Wegen der in Abschnitt 4.3 genannten Gründe ist es jedoch nicht in allen Fällen möglich, uranhaltige Partikel zu extrahieren. Wenn der uranhaltige Partikel aufgrund der ihn umgebenden Strukturen nicht mit der Wolframnadel berührt werden kann, sollte versucht werden, die Nadel in einem steileren Winkel einzusetzen. Diese Vorgehensweise hat den Nachteil, dass sich das vom EDX aufgenommene Bild durch den dafür größeren Abstand des Detektors zur Probe drastisch verschlechtert. Darüber hinaus ist ein Verfahren der Probenbühne im REM nur innerhalb eines bestimmten Bereichs möglich. Daher kann es sinnvoll sein, die Probe anzukippen, indem diese auf einen Winkel gestellt wird, um so den Winkel zwischen Probenoberfläche und Nadel steiler werden zu lassen.

Insgesamt stellt die in Abschnitt 3.3 beschriebene Methode ein effizientes Verfahren zur Extraktion von uranhaltigen Partikeln aus Bodenproben dar.

5.4 Diskussion: Probenträger

An den in Abschnitt 4.4 aufgetragenen Ergebnissen ist zu sehen, dass die Position der Nadelspitze im Probenträger einen erheblichen Unterschied auf die bei der SIMS-Messung erreichte Zählrate hat. Die Nadelspitze in der Rille liefert gegenüber der freihängenden Na-

delspitze eine Zählratensteigerung um einem Faktor von über 20. Eine mögliche Erklärung ist, dass die freihängende Spitze als geerdete Singularität die für die Ionenextraktion nötigen elektrischen Felder so stark verzerrt, dass das inhomogene elektrische Feld die Flugbahn der Sekundärionen stark beeinflusst, sodass diese nicht zum Detektor gelangen. Im Gegensatz hierzu ist die Probengeometrie beinahe vollständig flach, wenn die Nadelspitze in der Rille liegt. Daher sind die elektrischen Felder bei der Extraktion deutlich homogener, was die erhöhte Zählrate erklären kann.

Aufgrund dieser Ergebnisse und Überlegungen wurde das Probenträgermodell 2 entworfen, welches in Abbildung 3.3b zu sehen ist. Da dieses Modell vollständig durchgehende Rillen und keine Vertiefung hat, ist es deutlich schwieriger, die Nadel in den Probenträger einzubauen, ohne durch versehentliches Aufsetzen der Spitze den Partikel am Probenträger abzustreifen. In der Praxis hat sich gezeigt, dass es am einfachsten ist, zuerst das Ende der Nadel so in die Rille zu legen, dass die Spitze mit dem extrahierten Partikel weit über den Probenträger herrausragt und dann mit den Rillen als Führung die Nadelspitze in Position zu ziehen. Insgesamt rechtfertigt die viel höhere Ionenausbeute bei SIMS und SNMS-Messungen des zweiten Probeträgermodells die Nachteile gegenüber dem ersten Modell.

Bei Messungen, wie zum Beispiel γ -Spektrometrie, bei der keine Ionen mithilfe von elektrischen Feldern vom Probenträger extrahiert werden müssen, ist der Probenträger 1 aufgrund der einfacheren Handhabbarkeit deutlich von Vorteil.

5.5 Diskussion: SIMS und SNMS Messungen

Die Ergebnisse der SIMS-Messungen (Tabelle 4.5) des Partikels „BK-006 (Mopsimilian)“ lassen vermuten, dass es sich bei dem Partikel um Kernbrennstoff aus einem Kernreaktor handelt. Der Anteil von ^{235}U liegt mit 1,556 % deutlich über dem natürlichen Anteil von 0,720 % [21], was zeigt, dass es sich um angereichertes Material handelt. Der Anteil von ^{235}U ist jedoch so niedrig, dass eine Kernwaffe als Quelle für den Partikel ausgeschlossen werden kann. Da die Probe, aus der der Partikel extrahiert wurde, aus der CEZ stammt, kann davon ausgegangen werden, dass es sich um einen im Rahmen des Reaktorunglücks von Tschernobyl freigesetzten Partikel handelt. Dies gilt ebenfalls für die weiteren extrahierten und untersuchten Partikel.

Bei den Ergebnissen der SNMS-Messung (Tabelle 4.6) ist zu erkennen, dass trotz der resonanten Anregung von Plutonium kleine Mengen von Uran detektiert wurden. Dies kann an dem Peak bei $m/z = 235$ erkannt werden. Aufgrund seiner kurzen Halbwertszeit von etwa 25 min ([21]) kann ausgeschlossen werden, dass in der Probe ^{235}Pu vorhanden ist, daher ist davon auszugehen, dass der Peak durch ^{235}U entstanden ist. Da durch die EDX-Messungen Uran als Hauptbestandteil des Partikels identifiziert wurde, kann davon ausgegangen werden, dass Teile des Urans nichtresonant ionisiert worden sind. Dies legt

jedoch die Vermutung nahe, dass ein erheblicher Teil des Peaks bei $m/z = 238$ durch ^{238}U und nicht durch ^{238}Pu erzeugt wurde.

In der Auftragung der Isotopenverhältnisse von $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ und $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ in Abbildung 4.6 ist zu erkennen, dass eine Abnahme des $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ Verhältnisses ein Zuwachs des $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ Verhältnisses zur Folge hat. Dieser Zusammenhang wird verständlich, wenn die in einem Kernreaktor ablaufenden Prozesse genauer betrachtet werden. Bei Neutroneneinfang eines ^{235}U -Kerns werden im Wesentlichen zwei konkurrierende Prozesse hervorgerufen. Durch den Neutroneneinfang erhält der entstandene ^{236}U -Kern die freigesetzte Bindungsenergie von 6,5 MeV [22] als Anregungsenergie. Einerseits kann der Kern diese Energie durch Emission eines γ -Quants abgeben, in diesem Fall entsteht ^{236}U , andererseits kann es aufgrund des Energiegewinns zur Spaltung des ^{235}U Kerns kommen. Durch kontinuierliche Spaltung und Neutroneneinfang des ^{235}U nimmt sein Anteil am Gesamtinventar des Reaktors ab, während das nicht spaltbare ^{236}U durch Neutroneneinfang von ^{235}U kontinuierlich gebildet wird. Das so entstandene ^{236}U kann wiederum durch Neutroneneinfang in ^{237}U umgewandelt werden. Dies kann jedoch in erster Näherung, aufgrund des relativ kleinen Einfangsquerschnitts von ^{236}U vernachlässigt werden. Verschiebungen des Isotopenverhältnisses, durch radioaktiven Zerfall kann aufgrund der langen Halbwertszeiten ebenfalls in erster Näherung ignoriert werden. Die Steigung dieses Verhältnisses von $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ gegenüber $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ ist somit näherungsweise nur von dem Verhältnis der Rate der ^{235}U -Spaltung und der ^{236}U -Entstehungsrate linear abhängig. Dieses Verhältnis ist abhängig von den Wirkungsquerschnitten von ^{235}U für Spaltung und Neutroneneinfang, welche von der Energie der Neutronen abhängig sind. Das Energiespektrum der Neutronen ist wiederum von der Bauweise und der Zusammensetzung des Kernreaktors sowie der Position innerhalb des Kerns abhängig. Daher sind exakte Prognosen für die Isotopenzusammensetzung des Kernbrennstoffs nur durch aufwendige Verfahren, wie Monte-Carlo-Simulationen oder schrittweises numerisches Lösen von Differenzialgleichungen möglich und bedürfen genauer Information, wie Position des zu untersuchenden Brennstoffs im Kern und die Historie der Betriebszustände des Reaktors. In Abbildung 5.1 sind die in Abschnitt 4.5 vorgestellten Ergebnisse für die Isotopenverhältnisse für die verschiedenen am Institut für Radioökologie und Strahlenschutz (IRS) extrahierten Partikel dargestellt. Sie liegen, mit Ausnahme eines Partikels, wie erwartet auf einer Geraden. Der Partikel, der nicht auf der Geraden liegt, wurde als erster der auf Wolframnadeln fixierten Partikel, mithilfe SIMS analysiert. Da Messparameter bei dieser Messung noch nicht optimal eingestellt waren, wurden die Peaks bei $m/z = 235$ und $m/z = 236$ nicht vollständig getrennt. Daher ist davon auszugehen, dass es sich bei der Abweichung gegenüber den anderen Partikel um Fehler bei der Auswertung des Isotopenverhältnisses handelt.

In der Abbildung 5.1 sind ebenfalls die Isotopenverhältnisse aufgetragen, die durch Makarova et al. bei der Analyse von Kernbrennstoff aus Kernreaktoren vom Typ

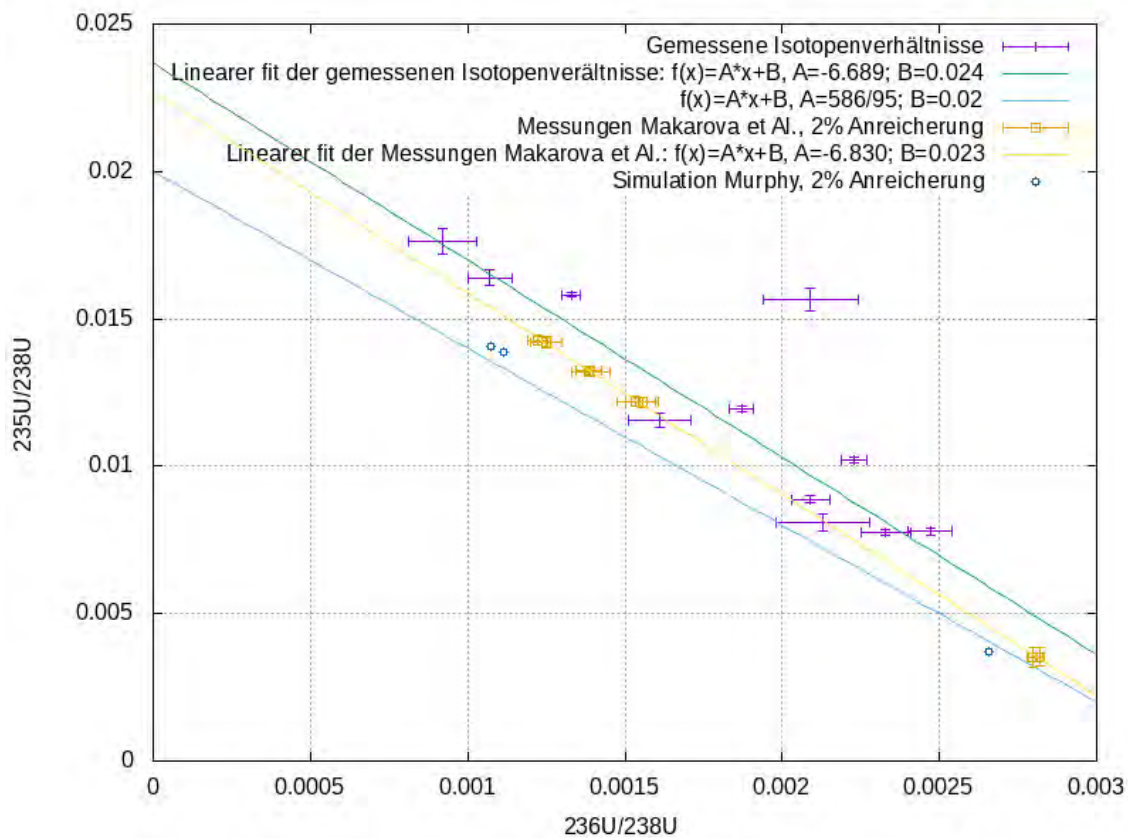


Abbildung 5.1: **Uranisotopenverhältnisse der extrahierten Partikel**

Es sind das $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ und das $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ Verhältnis für die verschiedenen extrahierten Partikel aufgetragen. Darüber hinaus sind die Isotopenverhältnisse, der durch Makarova et al. [23] analysierten Kernbrennstoffproben, als Vergleich aufgetragen.

„RBMK-1000“, welche baugleich mit dem Kernreaktor Tschernobyl-4 sind, bestimmt wurden. Die aufgetragen Ergebnisse von Makarova et al. stammen alle von Kernbrennstoff mit einem initialen Anreicherungsgrad von 2% ^{235}U und unterschiedlich starkem Abbrand. Da es sich nicht um wiederaufbereitetes Material handelt, kann davon ausgegangen werden, dass keine Erhöhung des $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ Verhältnis stattgefunden hat.

In Abbildung 5.1 sind ebenfalls lineare Fits für die mit SIMS bestimmten Isotopenverhältnisse und die, von Makarova et al. bestimmten Daten eingetragen. Wie bereits beschrieben wurde, sollte die Steigung in erster Näherung dem effektiven Verhältnis von ^{235}U Spaltung und ^{236}U Produktion im „RBMK-1000“ Reaktor entsprechen. Diese Vermutung wird dadurch unterstützt, dass die linearen Regressionen der Isotopenverhältnisse von den am IRS analysierten Partikeln und den Ergebnissen von Makarova et al. im Rahmen der Unsicherheiten vergleichbare Steigungen haben (siehe Tabelle 5.1). Die aus den Fits hervorgehenden initialen Anreicherungsgrade für ^{235}U sind für die Daten der am IRS analysierten Partikeln und von Makarova et al., im Rahmen der Unsicherheiten vergleichbar

(siehe Tabelle 5.1). Hierbei fällt jedoch auf, dass beide mit den linearen Fits berechnete Werte klar über dem initialen Anreicherungsgrad von 2% ^{235}U liegen. Dies ist darauf zurückzuführen, dass, wie bereits erwähnt, der lineare Zusammenhang der $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ und $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ Verhältnisse nur in erster Näherung gültig ist. Da die Regressionen der Daten von Makarova et al. und den am IRS analysierten Partikel sehr ähnlich sind, ist zu vermuten, dass der Brennstoff, aus dem die Partikel stammen, ebenfalls eine initiale Anreicherung von 2% ^{235}U besaß. Diese Vermutung wird durch den Bericht GRS-S-40 [24] der Gesellschaft für Reaktorsicherheit unterstützt, welcher einen Anreicherungsgrad von ca. 2% ^{235}U nennt. Im Bericht GRS 121 [25] gibt die Gesellschaft für Reaktorsicherheit, für die Reaktoren Tschernobyl-1 und Tschernobyl-3, einem Anreicherungsgrad von exakt 2% ^{235}U an. In einem Bericht zum Expertentreffen der Internationalen Atomenergie Organisation im August 1986 [26] wird angegeben, dass Reaktoren der „RBMK-1000“ Klasse prinzipiell mit auf 2% ^{235}U angereichertem Kernbrennstoff betrieben wurden. Ein exakter Wert für den initialen Anreicherungsgrads des im Reaktor Tschernobyl-4 zum Zeitpunkt des Unfalls verwendeten Brennstoffs konnte in der Fachliteratur nicht gefunden werden.

In zukünftigen Messungen könnte durch geeignetere Wellenlängen und Leistungen eine genauere Bestimmung der Isotopenverhältnisse von Plutonium erfolgen. Grundsätzlich wurde jedoch gezeigt, dass sowohl SIMS als auch SNMS an extrahierten Partikeln möglich ist. Derartige Messungen sind ohne eine Extraktion der Partikel wesentlich erschwert, da es kompliziert ist, einen in der Probenmatrix gebundenen uranhaltigen Partikel zu identifizieren. Des Weiteren können Aufladungseffekte bei den nichtleitenden Proben zu Problemen führen, wie elektrostatischer Abstoßung von Partikeln untereinander und elektrostatischer Ablenkung des Ionen/Elektronenstrahls, was bei bildgebenden Verfahren zu einer gestörten Bildaufnahme führt. Zusammengefasst kann gesagt werden, dass die Extraktion der Partikel mit Wolframnadeln eine effiziente Probenpräparation für SIMS- und SNMS-Messungen darstellt.

Tabelle 5.1: **Die Fitparameter für die am IRS und durch Makarova et al. analysieren Partikel**

Fitparameter	
IRS	Makarova et al.
$\frac{d(^{235}\text{U}/^{238}\text{U})}{d(^{236}\text{U}/^{238}\text{U})} = -6.689 \pm 0.635$	$\frac{d(^{235}\text{U}/^{238}\text{U})}{d(^{236}\text{U}/^{238}\text{U})} = -6.830 \pm 0.040$
$\frac{^{235}\text{U}}{^{238}\text{U}}(0) = 2.368 \pm 0.119\%$	$\frac{^{235}\text{U}}{^{238}\text{U}}(0) = 2.271 \pm 0.007\%$

Aus einer Modellierung des Neutronenspektrums für einen Reaktor der „RBMK-1500“ Klasse durch Barkauskas et al. [27] geht hervor, dass der größte Anteil der Neutronen eine Energie im Bereich von 10^{-2} eV bis 1 eV haben. Es ist davon auszugehen, dass das

Neutronenspektrum für Reaktoren der „RBMK-1000“ Klasse sich hiervon nicht grundlegend unterscheidet. Daher kann das Verhältnis von $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ und $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ durch das Verhältnis von Neutroneneinfangsquerschnitt und Spaltquerschnitt von ^{235}U für thermische Neutronen näherungsweise beschrieben werden. Mit den Daten für die Wirkungsquerschnitte für Neutronen mit einer Energie von 0,0253 eV aus der Karlsruher Nuklidkarte [21] kann die Abhängigkeit der Isotopenverhältnisse mit $\frac{d(^{235}\text{U}/^{238}\text{U})}{d(^{236}\text{U}/^{238}\text{U})} = -586/95$ beschrieben werden. In Abbildung 5.1 wurde eine Gerade mit dieser Steigung und einem initialen $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ Verhältnis von 2% eingetragen. Diese folgt zwar näherungsweise den durch Makarova et al. und am IRS gemessenen Ergebnissen, es ist jedoch zu erkennen, dass eine befriedigende Modellierung der Isotopenverhältnisse, aufgrund der komplexen Vorgänge im Reaktor, nicht durch die Wirkungsquerschnitte für thermische Neutronen möglich ist. Durch Murphy et al. [28] wurden Isotopenverhältnisse für Kernbrennstoff mit initialem Anreicherungsgrad von 2% ^{235}U in „RBMK-1000“ Reaktoren simuliert. Diese Ergebnisse sind ebenfalls in Abbildung 5.1 aufgetragen, es ist zu erkennen, dass sie gut zu den experimentell erhaltenen Daten passen.

Insgesamt ergeben die am IRS gemessenen Daten, die Daten von Makarova et al., theoretische Überlegungen und die Simulation von Murphy et al. ein kohärentes Bild.

5.6 Diskussion: γ -Spektrometrie

^{137}Cs entsteht in Kernreaktor als Spaltprodukt, ^{241}Am als Zerfallsprodukt des ^{241}Pu , das wiederum durch mehrfachen Neutroneneinfang aus dem Kernbrennstoff entsteht. Daher ist es nicht verwunderlich, dass diese Radionuklide in den uranhaltigen Partikeln vorhanden sind. Es fällt auf, dass die ^{137}Cs und ^{241}Am Aktivitäten in den Partikeln stark variieren. Die Aktivität ist von dem Abbrand des Brennstoffs, aus dem der Partikel stammt, seiner Größe, dem Zerfall der Radionuklide und dem Austrag der Radionuklide aus dem Partikel, auf Grund von Umwelteinflüssen zwischen Freisetzung und Probennahme, abhängig. Es ist anzunehmen, dass die starke Varianz in den Ergebnissen der γ -spektrometrischen Untersuchung der ^{137}Cs und ^{241}Am Aktivität in den verschiedenen Partikeln aufgrund von Unterschieden in diesen Parametern entsteht.

Die Anwesenheit von ^{241}Am in den Partikeln unterstützt die Ergebnisse der SIMS Messungen, die nahelegen, dass es sich bei den Partikeln um Teile von Kernbrennstoff handelt, da ^{241}Am nicht natürlich vorkommt und im Gegensatz zu ^{137}Cs nicht als Kernwaffenfallout in der Umwelt verteilt wurde. Da ^{241}Am auf Grund der niedrigen Aktivität nicht in allen Partikeln nachgewiesen wurde, sind die γ -spektrometrischen Untersuchungen der Partikel nicht allein ausreichend, um Aussagen über die Herkunft der Partikel machen zu können. Wie bereits in Abschnitt 5.3 erwähnt, sind die γ -spektrometrischen Untersuchungen der Partikel erst durch die Extraktion aus der Probenmatrix möglich. Da verschiedene Radionuklide, wie zum Beispiel ^{137}Cs , nichtpartikulär in der Probenmatrix gebunden sind, ist es

unmöglich, den Anteil dieser Radionuklide in dem Partikel abzuschätzen, wenn dieser noch in der Probenmatrix steckt, da die gemessenen Zählereignisse nicht eindeutig dem Partikel oder der Matrix zugeordnet werden können.

Wenn deutlich mehr Partikel von den verschiedenen Probenahmeorten extrahiert werden, könnte der Vergleich der ^{137}Cs und ^{241}Am Aktivitäten möglicherweise Rückschlüsse über die Umwelteinflüsse an den Probenahmeorten liefern.

6 Fazit

Es hat sich gezeigt, dass mit dem im Rahmen dieser Arbeit entwickelten und beschriebenen Verfahren Wolframnadeln hergestellt werden können, die für die Extraktion von uranhaltigen Partikeln geeignet sind. Das eingesetzte Verfahren zur Extraktion der Partikel mithilfe des im REM verbauten Mikromanipulators war ebenfalls erfolgreich. Da jede Probe individuelle Herausforderungen bei der Extraktion der Partikel darstellt, kann eine Anpassung des Verfahrens an spezielle Situationen notwendig sein. Das modifizierte Probenträgerdesign ermöglichte SIMS und SNMS Messungen an den extrahierten Partikeln. Das charakteristische Isotopenverhältnis der Partikel bestätigt die Annahme, dass es sich dabei um im Rahmen des Reaktorunglücks von Tschernobyl freigesetzte Partikel handelt. Die Ergebnisse dieser Analysen lassen verschiedene Rückschlüsse auf die Historie der Kernbrennstofffragmente zu. Bei der SNMS-Messung ist jedoch noch Potential für Optimierung der Messparameter, um eine höhere Unterdrückung von nichtresonant ionisierten Uranisotopen zu ermöglichen. Aufgrund der Extraktion der Partikel waren γ -spektrometrische Untersuchungen möglich, mithilfe derer die ^{137}Cs und ^{241}Am Aktivität in den verschiedenen Partikeln quantifiziert werden konnte.

Insgesamt hat sich gezeigt, dass die verschiedenen Teile der Extraktion und Analyse der uranhaltigen Partikel gut aufeinander abgestimmt sind, eine Übertragung der Methode auf andere Arten von Partikeln aus verschiedenen Quellen ist möglich.

7 Ausblick

Da die Partikel nach der Extraktion und den SIMS, SNMS und γ -Messungen weiterhin intakt vorliegen, sind weitere Analysen an den Partikeln möglich. Durch Bulgakov et al. [29] wurde ^{90}Sr in Brennstoffpartikeln aus dem Kühlwasserteich des Kernkraftwerks Tschernobyl untersucht. Da am IRS resonante Anregung von ^{90}Sr für SNMS bereits eingesetzt wurde [30], könnte der Strontiumgehalt in den extrahierten Partikeln bestimmt werden. Ortsaufgelöste Speziationsanalytik wie XANES an den extrahierten Partikeln würde zusätzliche Informationen über die elementare Zusammensetzung der Partikel geben. Laut Makarova et al. [23] kann der Abbrand des Kernbrennstoffs mithilfe der Isotopenverhältnisse von Neodym bestimmt werden. Mithilfe eines geeigneten Anregungsschemas wären SNMS Messungen für Neodym an den extrahierten Partikeln möglich. Mit Informationen über den Abbrand der Kernbrennstoffpartikel könnten die Verhältnisse von verschiedenen Isotopen und dem Abbrand mit Werten aus der Fachliteratur verglichen werden. Darüber hinaus sollten weitere Partikel aus den zur Verfügung stehenden Bodenproben extrahiert und analysiert werden, um den Datensatz zu ergänzen. Sequenzielles Auslaugen an den extrahierten Partikeln würde Aussagen über ihre chemischen Eigenschaften zulassen. Da die Partikel beim sequenziellen Auslaugen jedoch zerstört werden, sollte diese Messung erst nach der vollständigen Charakterisierung der uranhaltigen Partikel erfolgen.

8 Anhang

8.1 Quellcode zum Nadelätzen

Der folgende Python™-Quellcode wurde für das Ätzen der Nadeln mit einer maximalen Spannung von 12 V und einem maximalen Strom von 0,6 A benutzt:

```
import serial
import time

def main():
    ser = serial.Serial('/dev/ttyUSB0')
    ser.timeout=0.1
    x=ser.write(b'OUT0')
    utar=12
    itar=0.6

    print("Proben Nr.?",)
    samplenr=input()
    filename='ProbeNr'+str(samplenr)+'.txt'
    f=open(filename,"w")
    f.write("# "+str(time.gmtime()[2])+". "+time.strftime("%b",time.gmtime())
           +". "+str(time.gmtime()[0])+" "+str(time.gmtime()[3]+2)+": "
           +str(time.gmtime()[4])+"\n")
    f.write("# "+"Probe Nr.:"+str(samplenr)+"\n")
    f.write("# "+"U="+str(utar)+"V\n")
    f.write("# "+"I="+str(itar)+"A\n")
    f.write("# t[s] U[V] I[A]\n")
    x=ser.write(b'VSET1:'+str(utar))
    time.sleep(0.1)
    x=ser.write(b'ISET1:'+str(itar))
    time.sleep(0.1)
    start=time.time()
```

```
x=ser.write(b'OUT1')
time.sleep(0.1)
x=ser.write(b'IOUT1?')
time.sleep(0.1)
try:
i=float(ser.read(5))
    except:
pass
    while i!=0.0:
        runtime=time.time()-start
        x=ser.write(b'IOUT1?')
        time.sleep(0.1)
        try:
i=float(ser.read(5))
    except:
pass
        x=ser.write(b'VOUT1?')
        time.sleep(0.1)
try:
        u=float(ser.read(5))
except:
pass
        f.write(str(round(runtime,1))+ " "+str(u)+" "+str(i)+"\n")
    totaltime=time.time()-start
    x=ser.write(b'OUT0')
    f.write("# Totale Laufzeit:"+str(round(totaltime,1))+ "s")
    print("Totale Laufzeit:"+str(round(totaltime,1))+ "s")
    f.close()

if(__name__=="__main__"):
    main()
```

Für das Nadelätzen mit maximalen Spannung von 12 V und einem maximalen Strom von 0,6 A wurde der folgende Python™-Quellcode eingesetzt:

```
import serial
import time
```



```
def main():
    ser = serial.Serial('/dev/ttyUSB0')
    ser.timeout=0.1
    x=ser.write(b'OUT0')
    utar=24
    itar=1.2

    print("Proben Nr.??")
    samplenr=input()
    filename='ProbeNr'+str(samplenr)+'.txt'
    f=open(filename,"w")
    f.write("# "+str(time.gmtime()[2])+"."+time.strftime("%b",time.gmtime())
            +"."+str(time.gmtime()[0])+" "+str(time.gmtime()[3]+2)
            +":"+str(time.gmtime()[4])+"\n")
    f.write("# "+"Probe Nr.:"+str(samplenr)+"\n")
    f.write("# "+"U="+str(utar)+"V\n")
    f.write("# "+"I="+str(itar)+"A\n")
    f.write("# t[s] U[V] I[A]\n")
    x=ser.write(b'VSET1:'+str(utar))
    time.sleep(0.1)
    x=ser.write(b'ISET1:'+str(itar))
    time.sleep(0.1)
    start=time.time()
    x=ser.write(b'OUT1')
    time.sleep(0.1)
    x=ser.write(b'IOUT1?')
    time.sleep(0.1)
    try:
i=float(ser.read(5))
    except:
pass
    while i!=0.0:
        runtime=time.time()-start
        x=ser.write(b'IOUT1?')
        time.sleep(0.1)
        try:
i=float(ser.read(5))
    except:
```

```
pass
    x=ser.write(b'VOOUT1?')
    time.sleep(0.1)
try:
    u=float(ser.read(5))
except:
pass
    f.write(str(round(runtime,1))+ " "+str(u)+" "+str(i)+"\n")
    totaltime=time.time()-start
    x=ser.write(b'OUT0')
    f.write("# Totale Laufzeit:"+str(round(totaltime,1))+ "s")
    print("Totale Laufzeit:"+str(round(totaltime,1))+ "s")
    f.close()

if(__name__=="__main__"):
    main()
```

Um während des Nadelätzens die maximale Spannung zu reduzieren wurde der folgende Python™-Quellcode verwendet:

```
import serial
import time

def main():
    ser = serial.Serial('/dev/ttyUSB0')
    ser.timeout=0.1
    x=ser.write(b'OUT0')
    utar=30
    itar=5

    print("Proben Nr.?",)
    samplenr=input()
    filename='ProbeNr'+str(samplenr)+'.txt'
    f=open(filename,"w")
    f.write("# "+str(time.gmtime()[2])+ "."+time.strftime("%b",time.gmtime())
            + "."+str(time.gmtime()[0])+ " "+str(time.gmtime()[3]+2)
            + ":"+str(time.gmtime()[4])+ "\n")
```

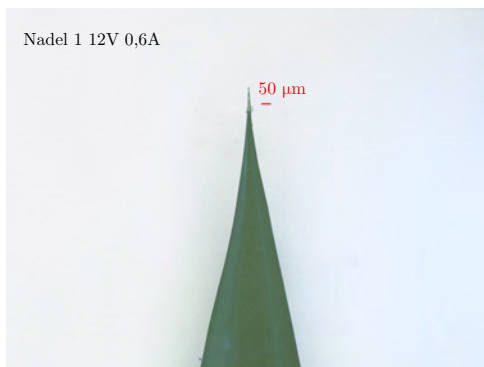
```
f.write("# "+"Probe Nr.:"+str(samplennr)+"\n")
f.write("# "+"U="+str(utar)+"V\n")
f.write("# "+"I="+str(itar)+"A\n")
f.write("# t[s] U[V] I[A]\n")
x=ser.write(b'VSET1:'+str(utar))
time.sleep(0.1)
x=ser.write(b'ISET1:'+str(itar))
time.sleep(0.1)
start=time.time()
lasttime=0
x=ser.write(b'OUT1?')
time.sleep(0.1)
x=ser.write(b'IOUT1?')
time.sleep(0.1)
try:
i=float(ser.read(5))
except:
pass
while i!=0.0:
runtime=time.time()-start
x=ser.write(b'IOUT1?')
time.sleep(0.1)
try:
i=float(ser.read(5))
except:
pass
x=ser.write(b'VOUT1?')
time.sleep(0.1)
try:
u=float(ser.read(5))
except:
pass
f.write(str(round(runtime,1))+ " "+str(u)+" "+str(i)+"\n")
if runtime-lasttime>1:
lasttime=runtime
utar=utar-0.13
x=ser.write(b'VSET1:'+str(utar))
time.sleep(0.1)
totaltime=time.time()-start
```


8.3 Probenahmeort

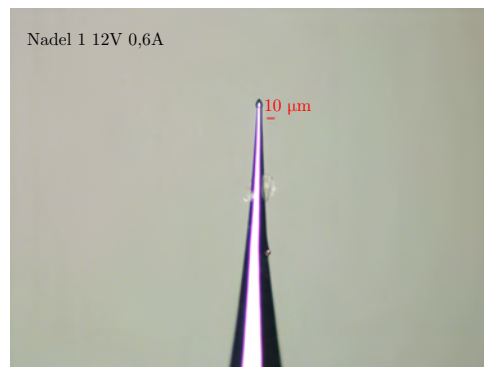


Abbildung 8.2: Die Lage des Probenahmeorts für den Bohrkerne in der CEZ

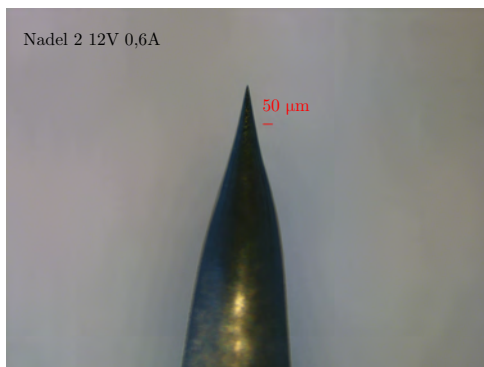
8.4 Bilder von den Nadeln



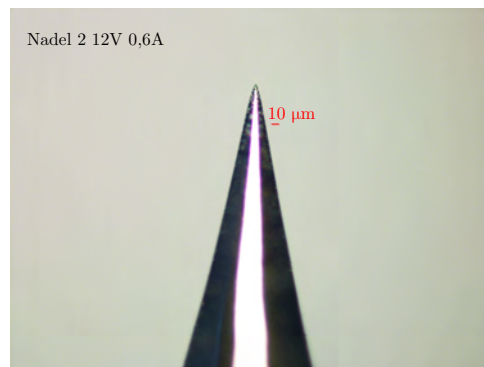
- (a) Nadel 1 mit $U_{max} = 12\text{ V}$
und $I_{max} = 0,6\text{ A}$
Zulaufwinkel: $16,93^\circ$
Gesamteindruck: konkav



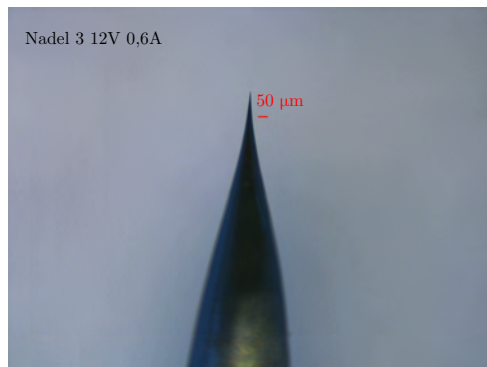
- (b) Nadel 1 mit $U_{max} = 12\text{ V}$
und $I_{max} = 0,6\text{ A}$
Spitze: mit Tropfen



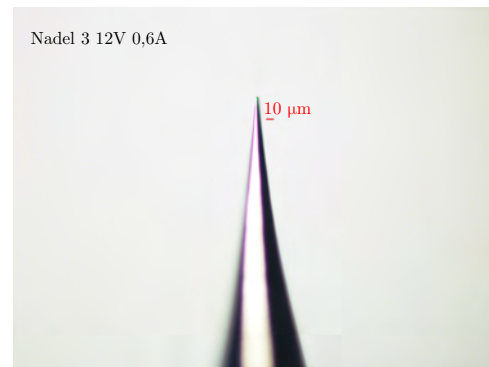
- (c) Nadel 2 mit $U_{max} = 12\text{ V}$
und $I_{max} = 0,6\text{ A}$
Zulaufwinkel: $27,94^\circ$
Gesamteindruck: konvex



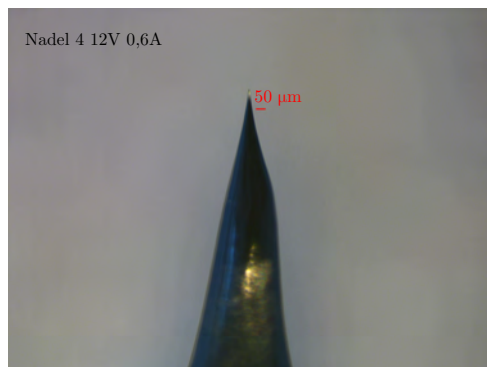
- (d) Nadel 2 mit $U_{max} = 12\text{ V}$
und $I_{max} = 0,6\text{ A}$
Spitze: ohne Tropfen



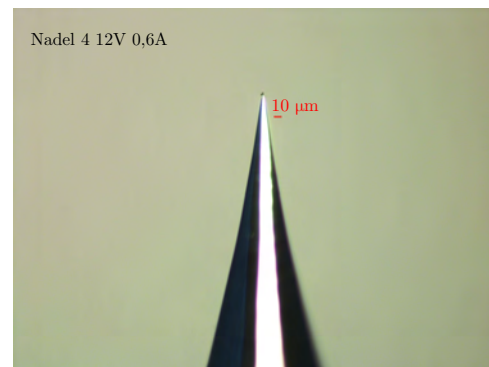
(e) Nadel 3 mit $U_{max} = 12\text{ V}$
und $I_{max} = 0,6\text{ A}$
Zulaufwinkel: $22,74^\circ$
Gesamteindruck: konkav



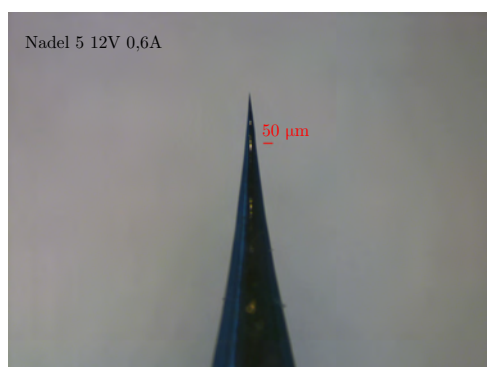
(f) Nadel 3 mit $U_{max} = 12\text{ V}$
und $I_{max} = 0,6\text{ A}$
Spitze: ohne Tropfen



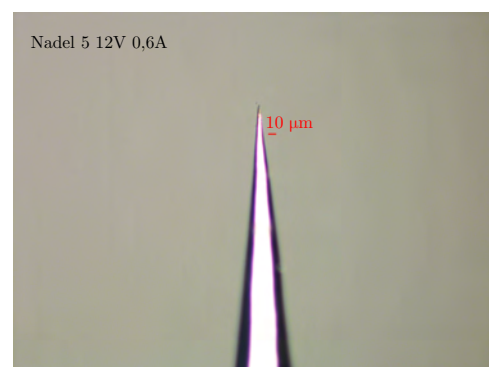
(g) Nadel 4 mit $U_{max} = 12\text{ V}$
und $I_{max} = 0,6\text{ A}$
Zulaufwinkel: $24,08^\circ$
Gesamteindruck: konvex



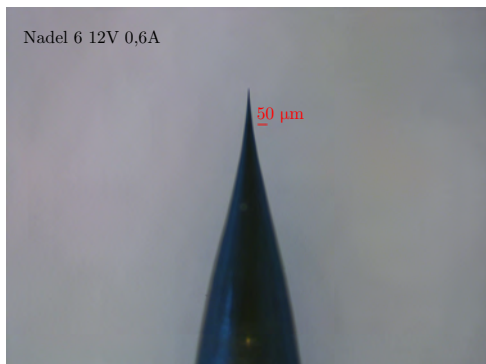
(h) Nadel 4 mit $U_{max} = 12\text{ V}$
und $I_{max} = 0,6\text{ A}$
Spitze: mit Tropfen



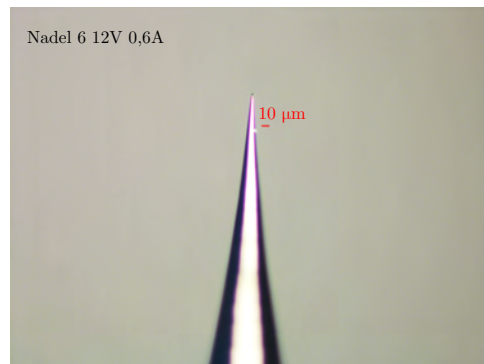
(i) Nadel 5 mit $U_{max} = 12\text{ V}$
und $I_{max} = 0,6\text{ A}$
Zulaufwinkel: $14,58^\circ$
Gesamteindruck: konkav



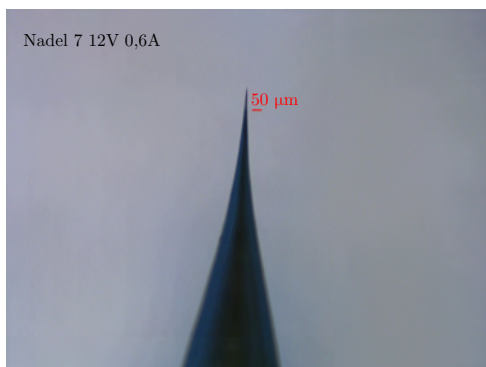
(j) Nadel 5 mit $U_{max} = 12\text{ V}$
und $I_{max} = 0,6\text{ A}$
Spitze: ohne Tropfen



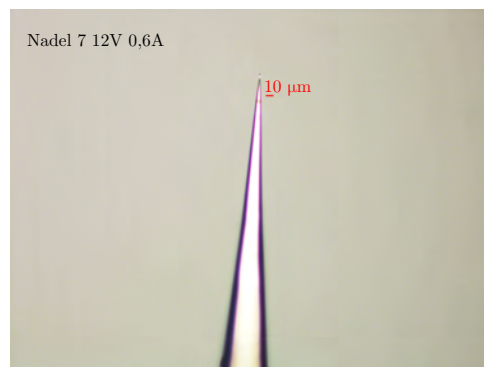
- (k) Nadel 6 mit $U_{max} = 12\text{ V}$
 und $I_{max} = 0,6\text{ A}$
 Zulaufwinkel: $21,15^\circ$
 Gesamteindruck: konvex



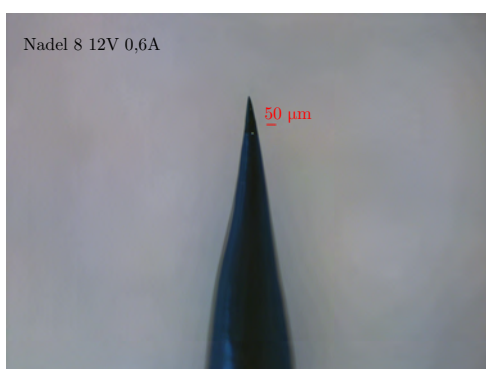
- (l) Nadel 6 mit $U_{max} = 12\text{ V}$
 und $I_{max} = 0,6\text{ A}$
 Spitze: ohne Tropfen



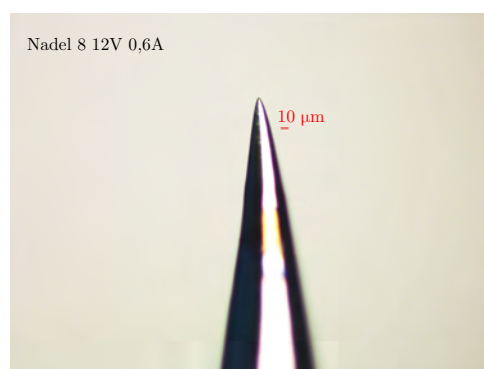
- (m) Nadel 7 mit $U_{max} = 12\text{ V}$
 und $I_{max} = 0,6\text{ A}$
 Zulaufwinkel: $15,23^\circ$
 Gesamteindruck: konkav



- (n) Nadel 7 mit $U_{max} = 12\text{ V}$
 und $I_{max} = 0,6\text{ A}$
 Spitze: ohne Tropfen



- (o) Nadel 8 mit $U_{max} = 12\text{ V}$
 und $I_{max} = 0,6\text{ A}$
 Zulaufwinkel: $18,37^\circ$
 Gesamteindruck: konvex

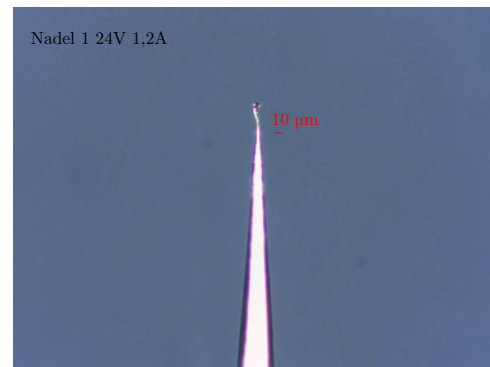


- (p) Nadel 8 mit $U_{max} = 12\text{ V}$
 und $I_{max} = 0,6\text{ A}$
 Spitze: ohne Tropfen

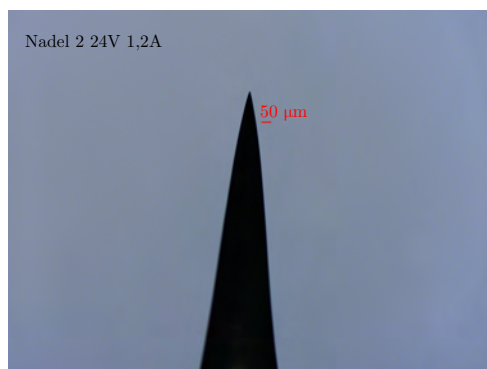
Abbildung 8.3: Alle Nadeln mit $U_{max} = 12\text{ V}$ und $I_{max} = 0,6\text{ A}$



(a) Nadel 1 mit $U_{max} = 24\text{ V}$
und $I_{max} = 1,2\text{ A}$
Zulaufwinkel: $6,77^\circ$
Gesamteindruck: konkav



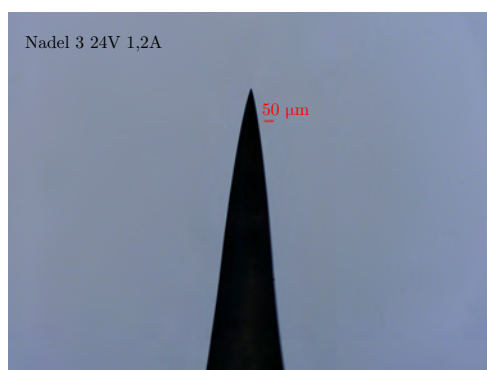
(b) Nadel 1 mit $U_{max} = 24\text{ V}$
und $I_{max} = 1,2\text{ A}$
Spitze: mit Tropfen



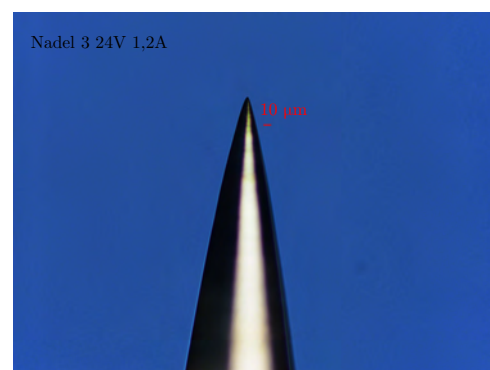
(c) Nadel 2 mit $U_{max} = 24\text{ V}$
und $I_{max} = 1,2\text{ A}$
Zulaufwinkel: $17,58^\circ$
Gesamteindruck: konvex



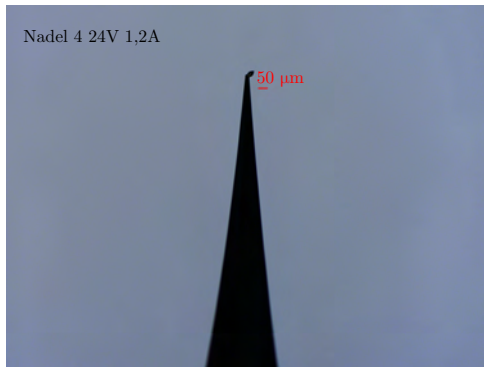
(d) Nadel 2 mit $U_{max} = 24\text{ V}$
und $I_{max} = 1,2\text{ A}$
Spitze: ohne Tropfen



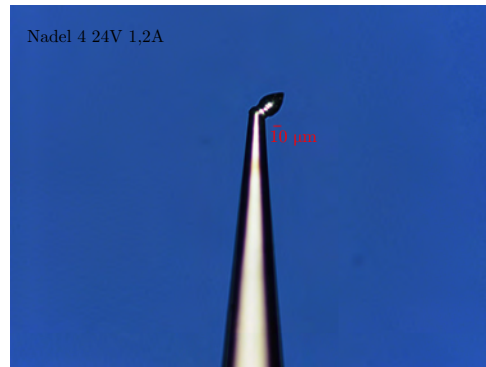
(e) Nadel 3 mit $U_{max} = 24\text{ V}$
und $I_{max} = 1,2\text{ A}$
Zulaufwinkel: $18,06^\circ$
Gesamteindruck: konvex



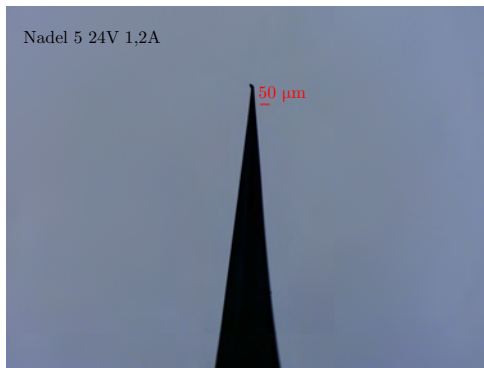
(f) Nadel 3 mit $U_{max} = 24\text{ V}$
und $I_{max} = 1,2\text{ A}$
Spitze: ohne Tropfen



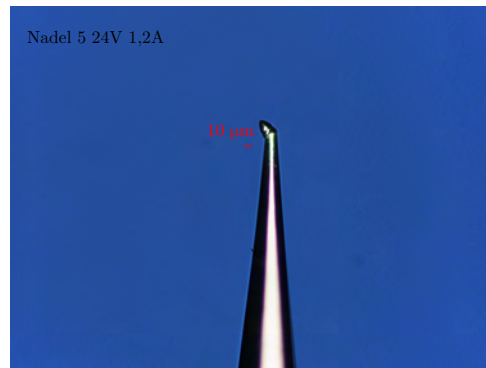
(g) Nadel 4 mit $U_{max} = 24\text{ V}$
und $I_{max} = 1,2\text{ A}$
Zulaufwinkel: $12,59^\circ$
Gesamteindruck: konkav



(h) Nadel 4 mit $U_{max} = 24\text{ V}$
und $I_{max} = 1,2\text{ A}$
Spitze: mit Tropfen



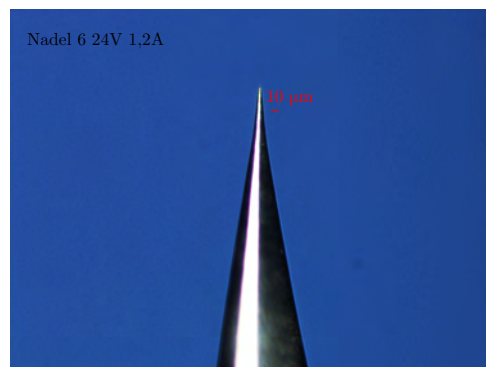
(i) Nadel 5 mit $U_{max} = 24\text{ V}$
und $I_{max} = 1,2\text{ A}$
Zulaufwinkel: $12,33^\circ$
Gesamteindruck: konkav



(j) Nadel 5 mit $U_{max} = 24\text{ V}$
und $I_{max} = 1,2\text{ A}$
Spitze: mit Tropfen



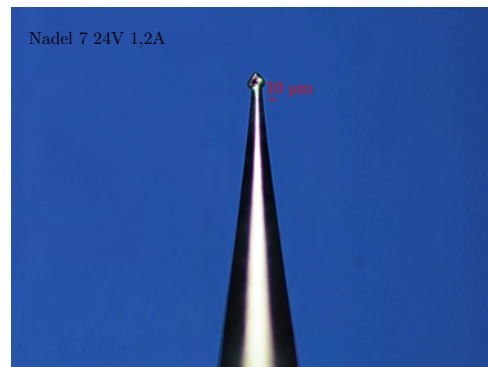
(k) Nadel 6 mit $U_{max} = 24\text{ V}$
und $I_{max} = 1,2\text{ A}$
Zulaufwinkel: $18,44^\circ$
Gesamteindruck: konvex



(l) Nadel 6 mit $U_{max} = 24\text{ V}$
und $I_{max} = 1,2\text{ A}$
Spitze: ohne Tropfen



(m) Nadel 7 mit $U_{max} = 24\text{ V}$
und $I_{max} = 1,2\text{ A}$
Zulaufwinkel: $14,12^\circ$
Gesamteindruck: konvex



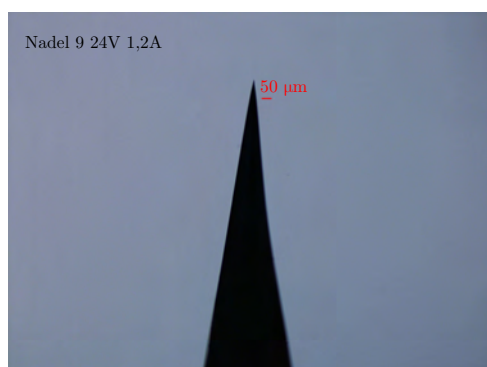
(n) Nadel 7 mit $U_{max} = 24\text{ V}$
und $I_{max} = 1,2\text{ A}$
Spitze: mit Tropfen



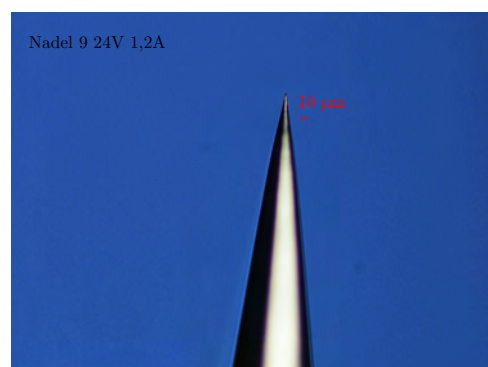
(o) Nadel 8 mit $U_{max} = 24\text{ V}$
und $I_{max} = 1,2\text{ A}$
Zulaufwinkel: $14,48^\circ$
Gesamteindruck: konkav



(p) Nadel 8 mit $U_{max} = 24\text{ V}$
und $I_{max} = 1,2\text{ A}$
Spitze: mit Tropfen



(q) Nadel 9 mit $U_{max} = 24\text{ V}$
und $I_{max} = 1,2\text{ A}$
Zulaufwinkel: $16,17^\circ$
Gesamteindruck: konkav



(r) Nadel 9 mit $U_{max} = 24\text{ V}$
und $I_{max} = 1,2\text{ A}$
Spitze: ohne Tropfen



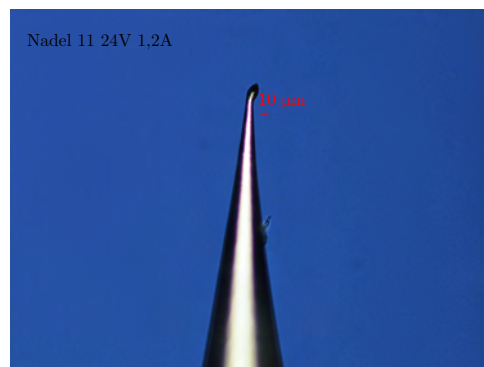
- (s) Nadel 10 mit $U_{max} = 24 \text{ V}$
und $I_{max} = 1,2 \text{ A}$
Zulaufwinkel: $9,61^\circ$
Gesamteindruck: konkav



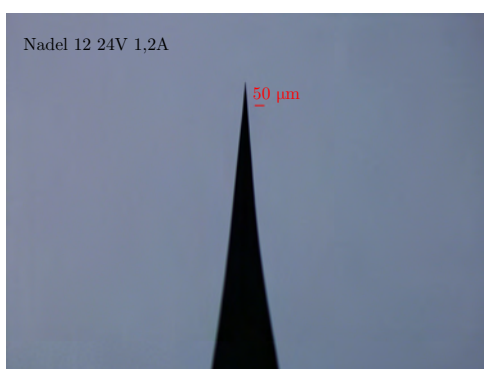
- (t) Nadel 10 mit $U_{max} = 24 \text{ V}$
und $I_{max} = 1,2 \text{ A}$
Spitze: ohne Tropfen



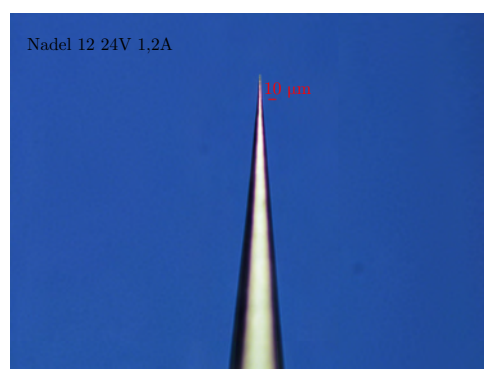
- (u) Nadel 11 mit $U_{max} = 24 \text{ V}$
und $I_{max} = 1,2 \text{ A}$
Zulaufwinkel: $18,02^\circ$
Gesamteindruck: konvex



- (v) Nadel 11 mit $U_{max} = 24 \text{ V}$
und $I_{max} = 1,2 \text{ A}$
Spitze: mit Tropfen

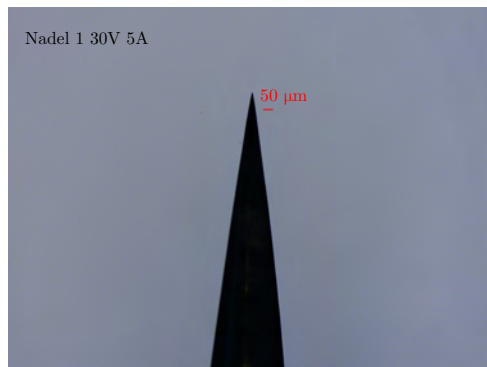


- (w) Nadel 12 mit $U_{max} = 24 \text{ V}$
und $I_{max} = 1,2 \text{ A}$
Zulaufwinkel: $11,05^\circ$
Gesamteindruck: konkav

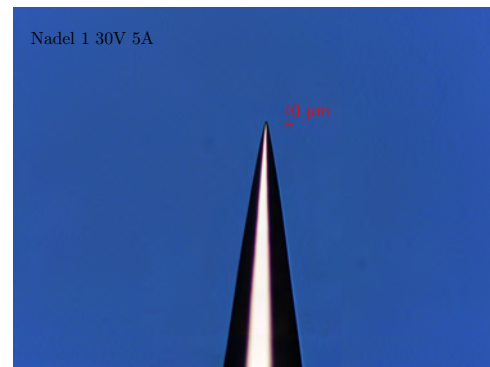


- (x) Nadel 12 mit $U_{max} = 24 \text{ V}$
und $I_{max} = 1,2 \text{ A}$
Spitze: ohne Tropfen

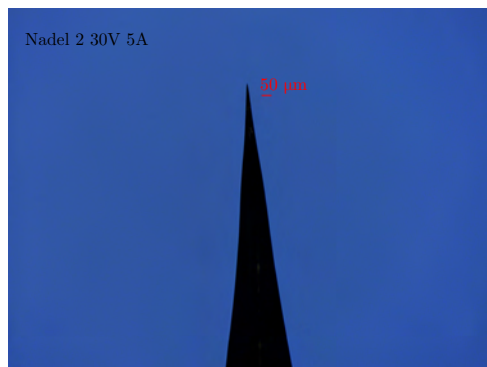
Abbildung 8.4: Alle Nadeln mit $U_{max} = 24 \text{ V}$ und $I_{max} = 1,2 \text{ A}$



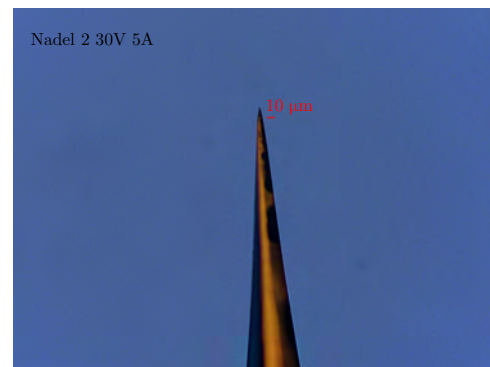
(a) Nadel 1 mit $U_{max-Start} = 30\text{ V}$
und $I_{max} = 5\text{ A}$
Zulaufwinkel: $17,05^\circ$
Gesamteindruck: konvex



(b) Nadel 1 mit $U_{max-Start} = 30\text{ V}$
und $I_{max} = 5\text{ A}$
Spitze: ohne Tropfen



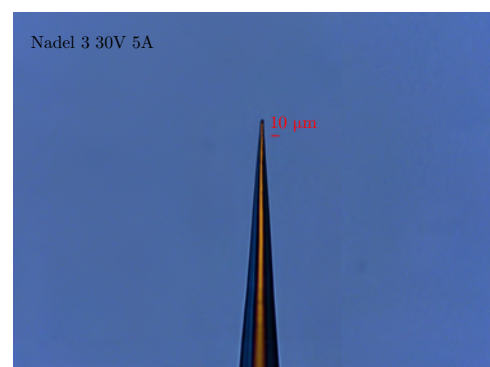
(c) Nadel 2 mit $U_{max-Start} = 30\text{ V}$
und $I_{max} = 5\text{ A}$
Zulaufwinkel: $12,09^\circ$
Gesamteindruck: konkav



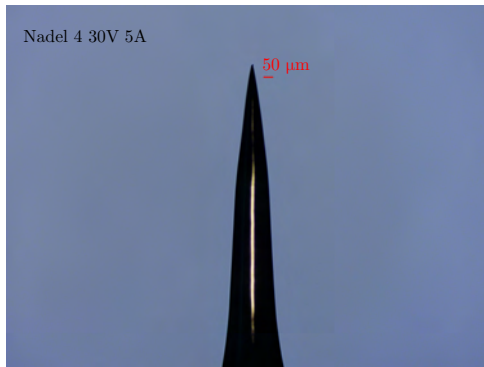
(d) Nadel 2 mit $U_{max-Start} = 30\text{ V}$
und $I_{max} = 5\text{ A}$
Spitze: ohne Tropfen



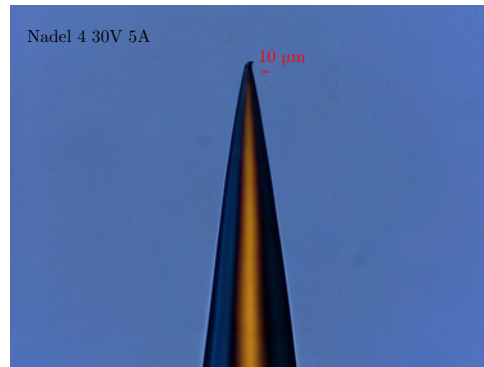
(e) Nadel 3 mit $U_{max-Start} = 30\text{ V}$
und $I_{max} = 5\text{ A}$
Zulaufwinkel: $10,31^\circ$
Gesamteindruck: konkav



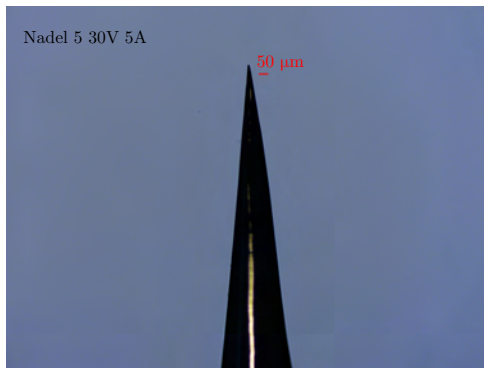
(f) Nadel 3 mit $U_{max-Start} = 30\text{ V}$
und $I_{max} = 5\text{ A}$
Spitze: ohne Tropfen



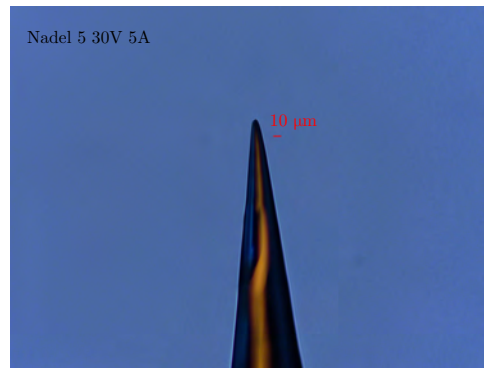
- (g) Nadel 4 mit $U_{max-Start} = 30\text{ V}$
und $I_{max} = 5\text{ A}$
Zulaufwinkel: $15,26^\circ$
Gesamteindruck: konvex



- (h) Nadel 4 mit $U_{max-Start} = 30\text{ V}$
und $I_{max} = 5\text{ A}$
Spitze: ohne Tropfen



- (i) Nadel 5 mit $U_{max-Start} = 30\text{ V}$
und $I_{max} = 5\text{ A}$
Zulaufwinkel: $13,76^\circ$
Gesamteindruck: konvex



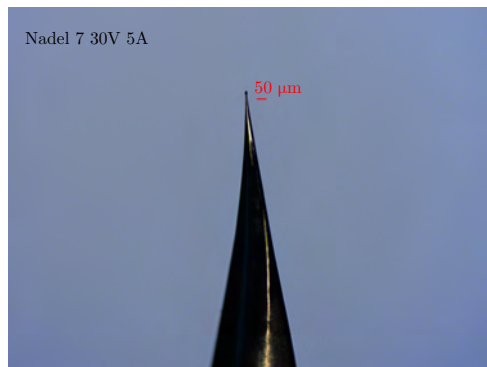
- (j) Nadel 5 mit $U_{max-Start} = 30\text{ V}$
und $I_{max} = 5\text{ A}$
Spitze: ohne Tropfen



- (k) Nadel 6 mit $U_{max-Start} = 30\text{ V}$
und $I_{max} = 5\text{ A}$
Zulaufwinkel: $14,50^\circ$
Gesamteindruck: konkav



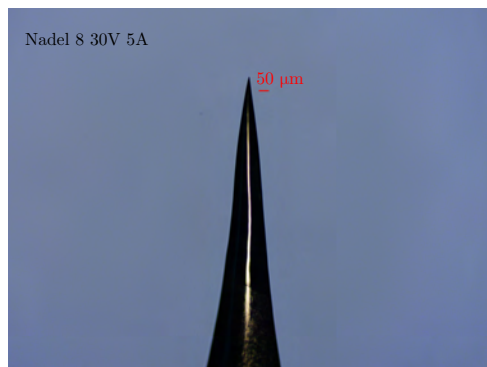
- (l) Nadel 6 mit $U_{max-Start} = 30\text{ V}$
und $I_{max} = 5\text{ A}$
Spitze: mit Tropfen



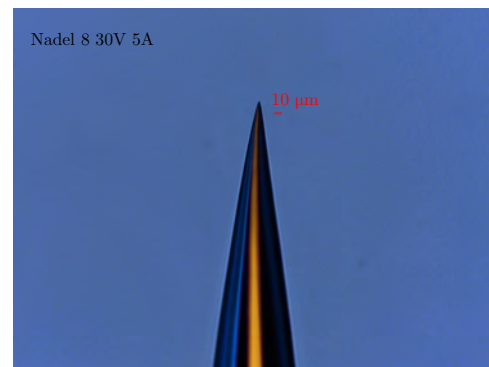
(m) Nadel 7 mit $U_{max-Start} = 30\text{ V}$
und $I_{max} = 5\text{ A}$
Zulaufwinkel: $15,28^\circ$
Gesamteindruck: konkav



(n) Nadel 7 mit $U_{max-Start} = 30\text{ V}$
und $I_{max} = 5\text{ A}$
Spitze: mit Tropfen



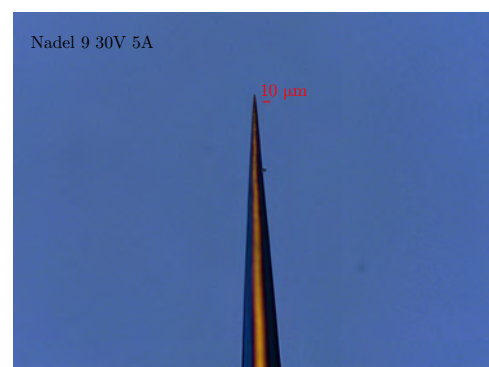
(o) Nadel 8 mit $U_{max-Start} = 30\text{ V}$
und $I_{max} = 5\text{ A}$
Zulaufwinkel: $13,16^\circ$
Gesamteindruck: konkav



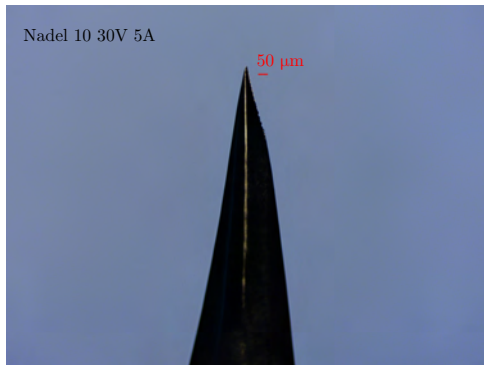
(p) Nadel 8 mit $U_{max-Start} = 30\text{ V}$
und $I_{max} = 5\text{ A}$
Spitze: ohne Tropfen



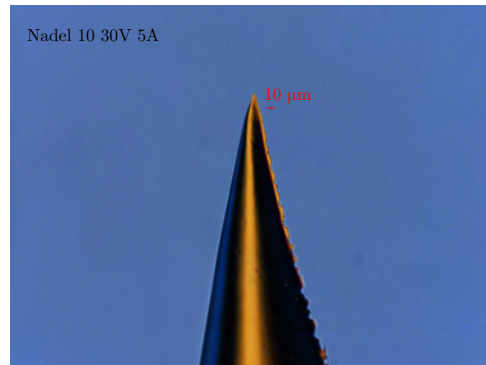
(q) Nadel 9 mit $U_{max-Start} = 30\text{ V}$
und $I_{max} = 5\text{ A}$
Zulaufwinkel: $7,85^\circ$
Gesamteindruck: konkav



(r) Nadel 9 mit $U_{max-Start} = 30\text{ V}$
und $I_{max} = 5\text{ A}$
Spitze: ohne Tropfen



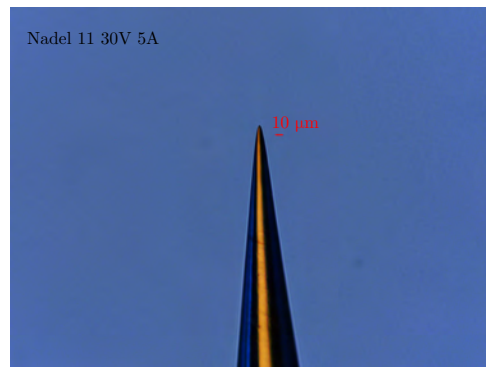
- (s) Nadel 10 mit $U_{max-Start} = 30\text{ V}$
und $I_{max} = 5\text{ A}$
Zulaufwinkel: $21,49^\circ$
Gesamteindruck: konvex



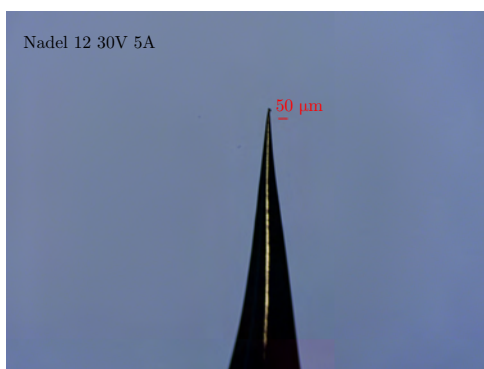
- (t) Nadel 10 mit $U_{max-Start} = 30\text{ V}$
und $I_{max} = 5\text{ A}$
Spitze: ohne Tropfen



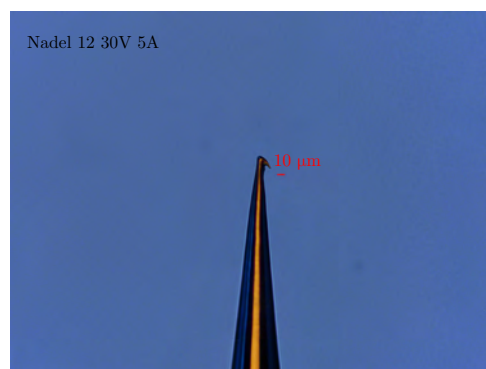
- (u) Nadel 11 mit $U_{max-Start} = 30\text{ V}$
und $I_{max} = 5\text{ A}$
Zulaufwinkel: $15,76^\circ$
Gesamteindruck: konkav



- (v) Nadel 11 mit $U_{max-Start} = 30\text{ V}$
und $I_{max} = 5\text{ A}$
Spitze: ohne Tropfen



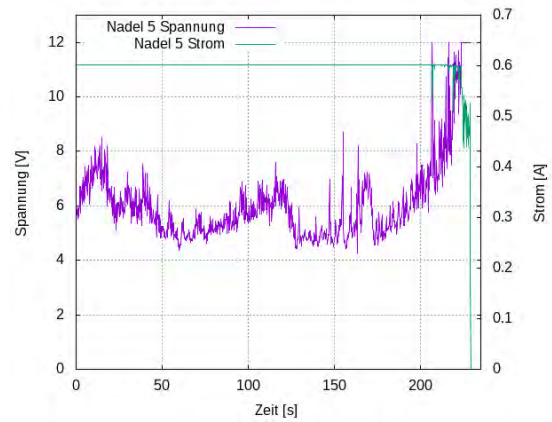
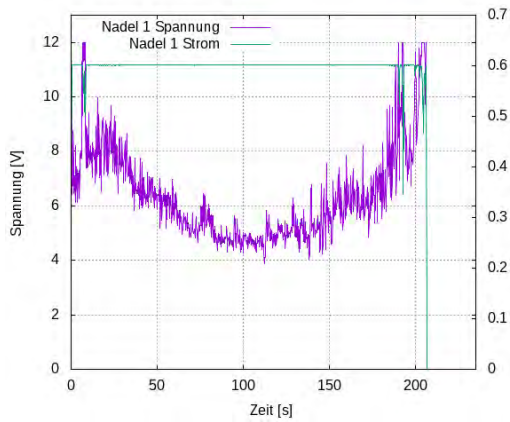
- (w) Nadel 12 mit $U_{max-Start} = 30\text{ V}$
und $I_{max} = 5\text{ A}$
Zulaufwinkel: $14,23^\circ$
Gesamteindruck: konkav



- (x) Nadel 12 mit $U_{max-Start} = 30\text{ V}$
und $I_{max} = 5\text{ A}$
Spitze: mit Tropfen

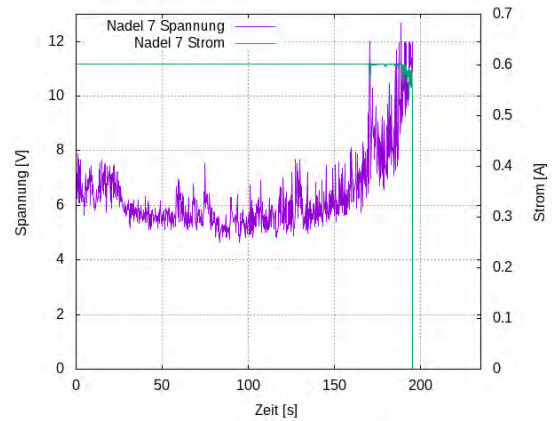
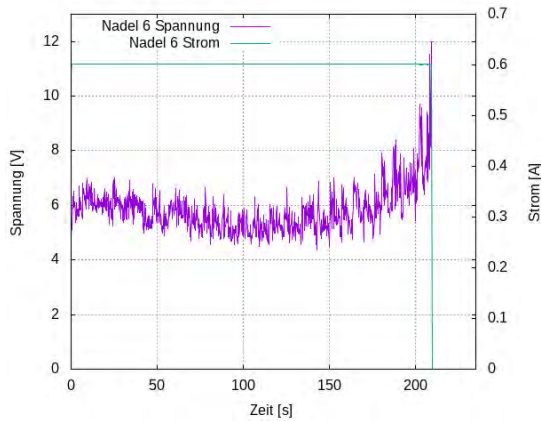
Abbildung 8.5: Alle Nadeln mit $U_{max-Start} = 30\text{ V}$ und $I_{max} = 5\text{ A}$

8.5 Spannungs- und Stromverlauf des Nadelätzen



- (a) Spannungs- und Stromverlauf des Nadelätzens von Nadel 1 mit $U_{max} = 12\text{ V}$ und $I_{max} = 0,6\text{ A}$

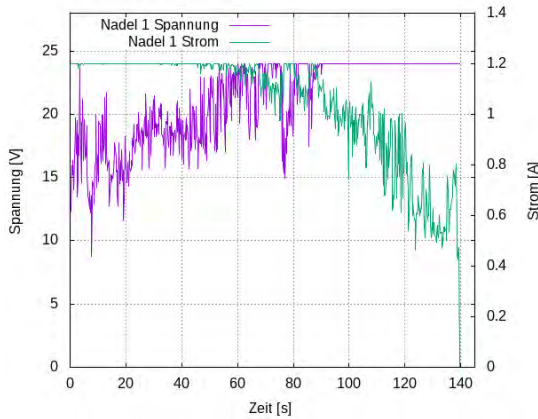
- (b) Spannungs- und Stromverlauf des Nadelätzens von Nadel 5 mit $U_{max} = 12\text{ V}$ und $I_{max} = 0,6\text{ A}$



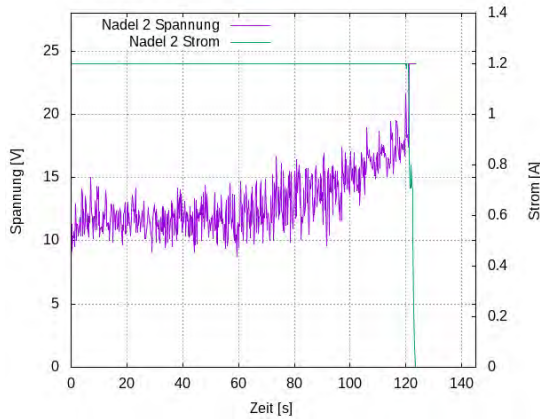
- (c) Spannungs- und Stromverlauf des Nadelätzens von Nadel 6 mit $U_{max} = 12\text{ V}$ und $I_{max} = 0,6\text{ A}$

- (d) Spannungs- und Stromverlauf des Nadelätzens von Nadel 7 mit $U_{max} = 12\text{ V}$ und $I_{max} = 0,6\text{ A}$

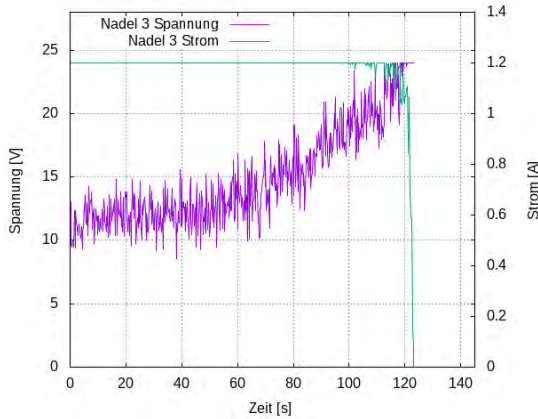
Abbildung 8.6: Spannungs- und Stromverlauf des Nadelätzens mit $U_{max} = 12\text{ V}$ und $I_{max} = 0,6\text{ A}$



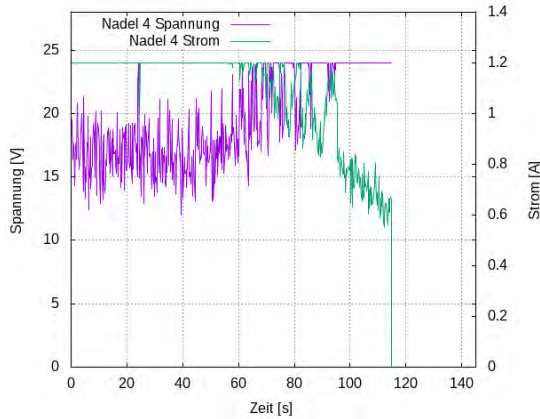
(a) Spannungs- und Stromverlauf des Nadelätzens von Nadel 1 mit $U_{max} = 24\text{ V}$ und $I_{max} = 1,2\text{ A}$



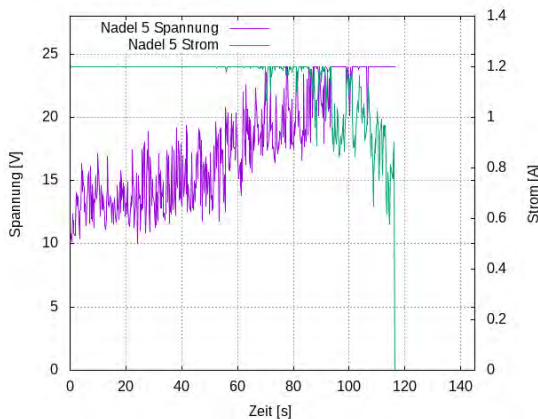
(b) Spannungs- und Stromverlauf des Nadelätzens von Nadel 2 mit $U_{max} = 24\text{ V}$ und $I_{max} = 1,2\text{ A}$



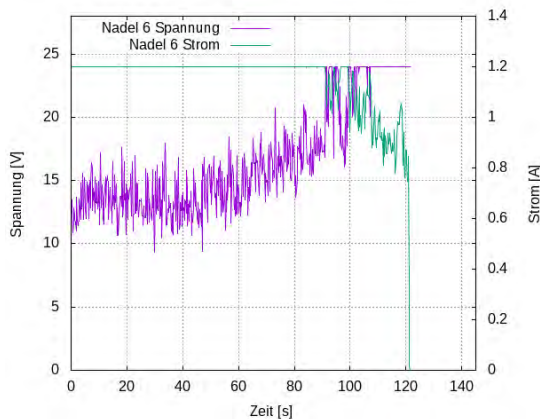
(c) Spannungs- und Stromverlauf des Nadelätzens von Nadel 3 mit $U_{max} = 24\text{ V}$ und $I_{max} = 1,2\text{ A}$



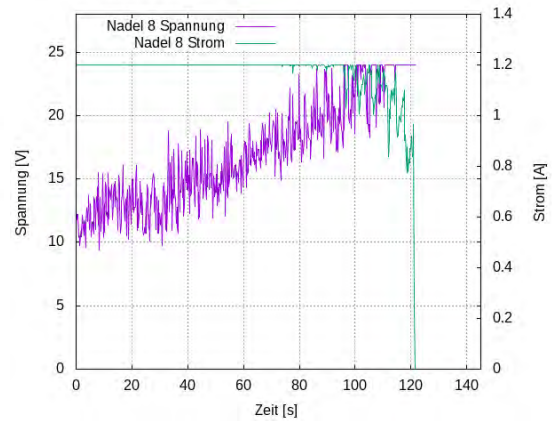
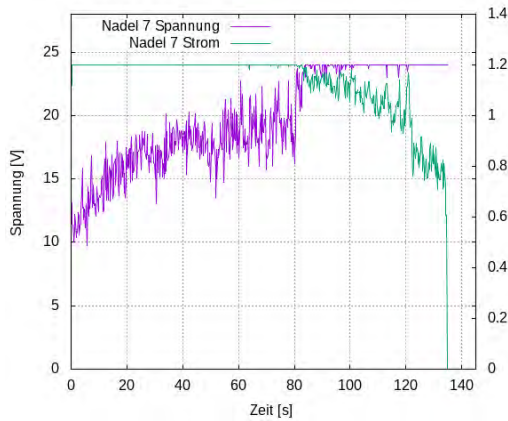
(d) Spannungs- und Stromverlauf des Nadelätzens von Nadel 4 mit $U_{max} = 24\text{ V}$ und $I_{max} = 1,2\text{ A}$



(e) Spannungs- und Stromverlauf des Nadelätzens von Nadel 5 mit $U_{max} = 24\text{ V}$ und $I_{max} = 1,2\text{ A}$

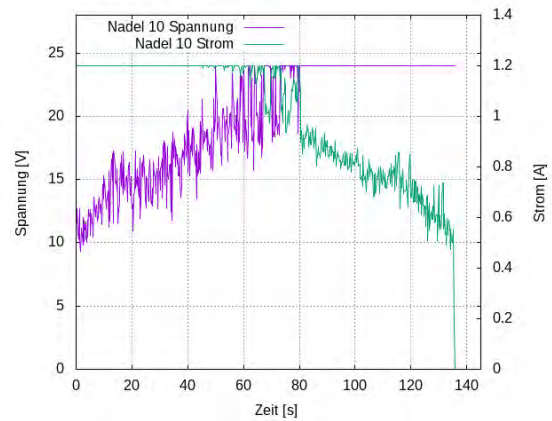
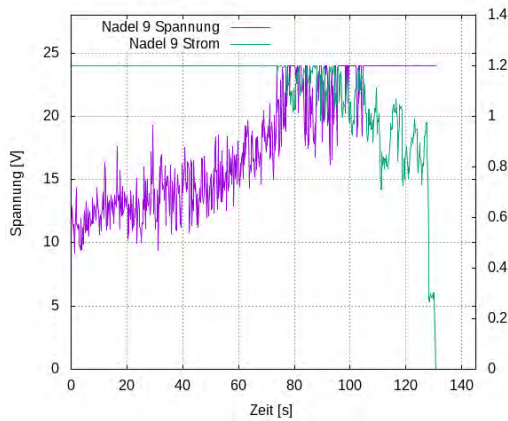


(f) Spannungs- und Stromverlauf des Nadelätzens von Nadel 6 mit $U_{max} = 24\text{ V}$ und $I_{max} = 1,2\text{ A}$



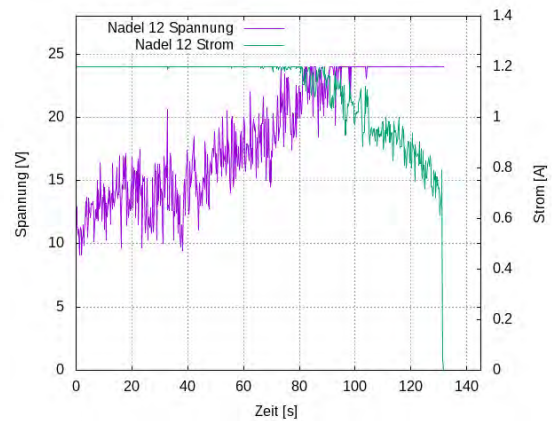
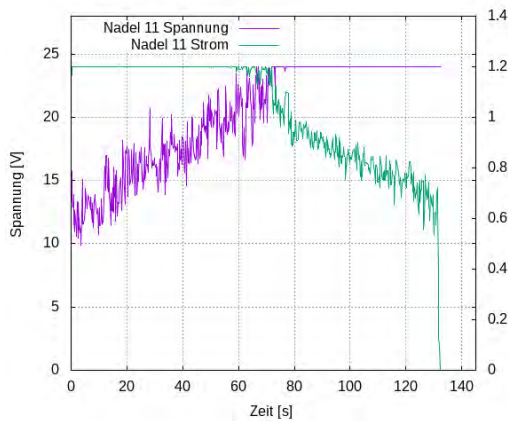
(g) Spannungs- und Stromverlauf des Nadelätzens von Nadel 7 mit $U_{max} = 24\text{ V}$ und $I_{max} = 1,2\text{ A}$

(h) Spannungs- und Stromverlauf des Nadelätzens von Nadel 8 mit $U_{max} = 24\text{ V}$ und $I_{max} = 1,2\text{ A}$



(i) Spannungs- und Stromverlauf des Nadelätzens von Nadel 9 mit $U_{max} = 24\text{ V}$ und $I_{max} = 1,2\text{ A}$

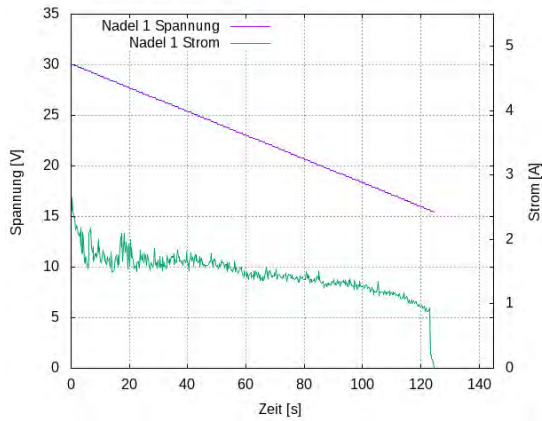
(j) Spannungs- und Stromverlauf des Nadelätzens von Nadel 10 mit $U_{max} = 24\text{ V}$ und $I_{max} = 1,2\text{ A}$



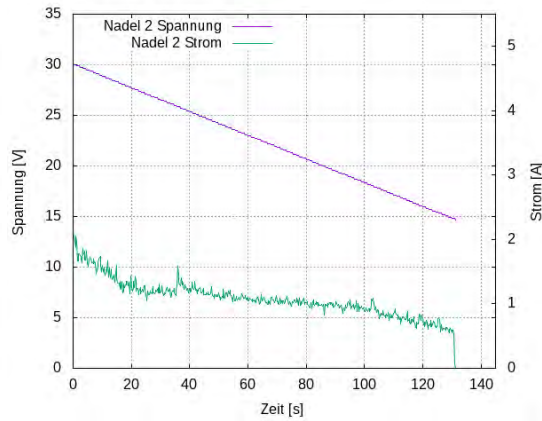
(k) Spannungs- und Stromverlauf des Nadelätzens von Nadel 11 mit $U_{max} = 24\text{ V}$ und $I_{max} = 1,2\text{ A}$

(l) Spannungs- und Stromverlauf des Nadelätzens von Nadel 12 mit $U_{max} = 24\text{ V}$ und $I_{max} = 1,2\text{ A}$

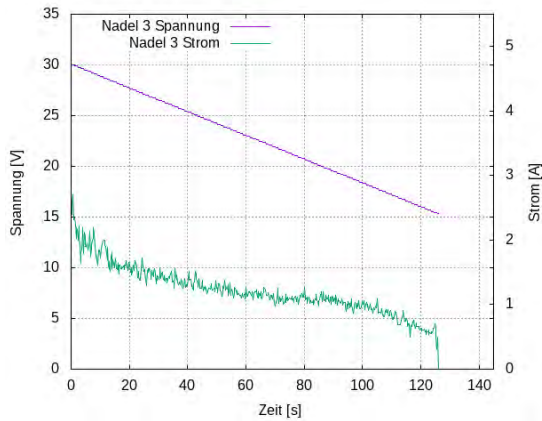
Abbildung 8.7: Spannungs- und Stromverlauf des Nadelätzens mit $U_{max} = 24\text{ V}$ und $I_{max} = 1,2\text{ A}$



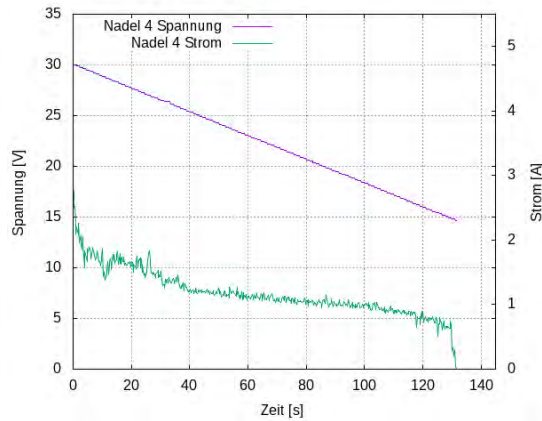
(a) Spannungs- und Stromverlauf des Nadelzählens von Nadel 1 mit $U_{max-Start} = 30\text{ V}$ und $I_{max} = 5\text{ A}$



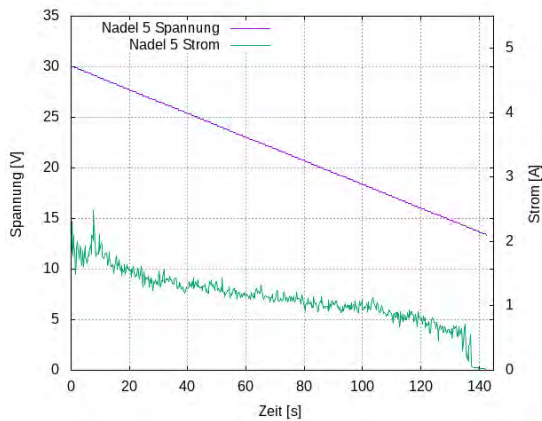
(b) Spannungs- und Stromverlauf des Nadelzählens von Nadel 2 mit $U_{max-Start} = 30\text{ V}$ und $I_{max} = 5\text{ A}$



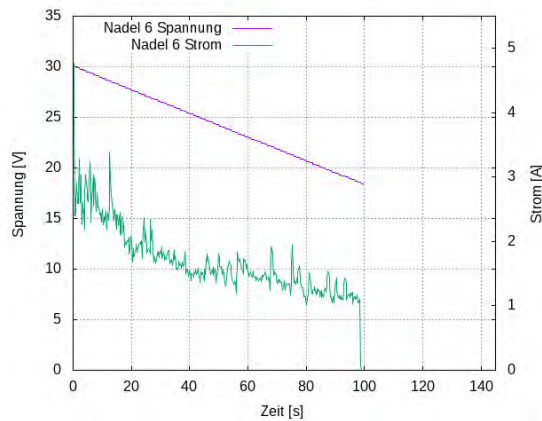
(c) Spannungs- und Stromverlauf des Nadelzählens von Nadel 3 mit $U_{max-Start} = 30\text{ V}$ und $I_{max} = 5\text{ A}$



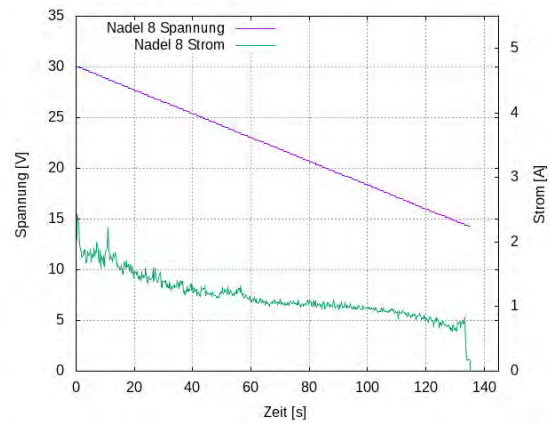
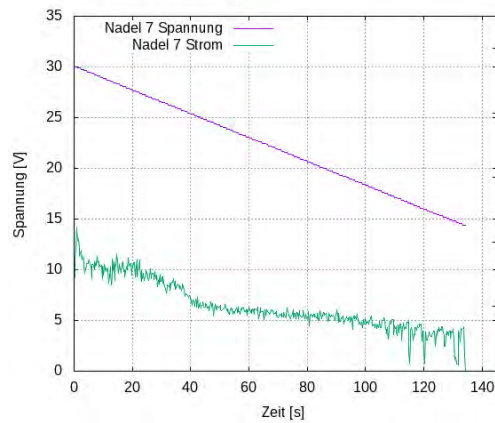
(d) Spannungs- und Stromverlauf des Nadelzählens von Nadel 4 mit $U_{max-Start} = 30\text{ V}$ und $I_{max} = 5\text{ A}$



(e) Spannungs- und Stromverlauf des Nadelzählens von Nadel 5 mit $U_{max-Start} = 30\text{ V}$ und $I_{max} = 5\text{ A}$

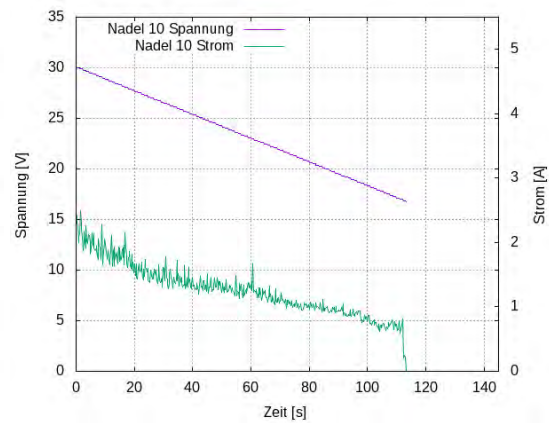
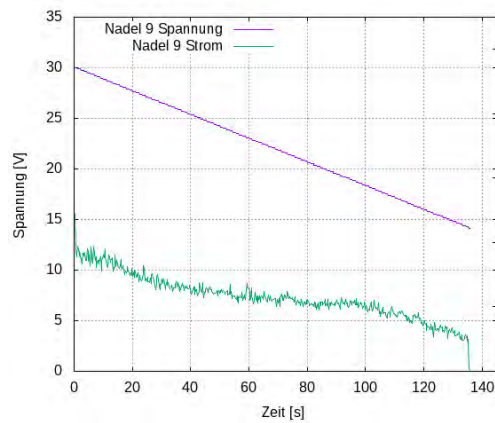


(f) Spannungs- und Stromverlauf des Nadelzählens von Nadel 6 mit $U_{max-Start} = 30\text{ V}$ und $I_{max} = 5\text{ A}$



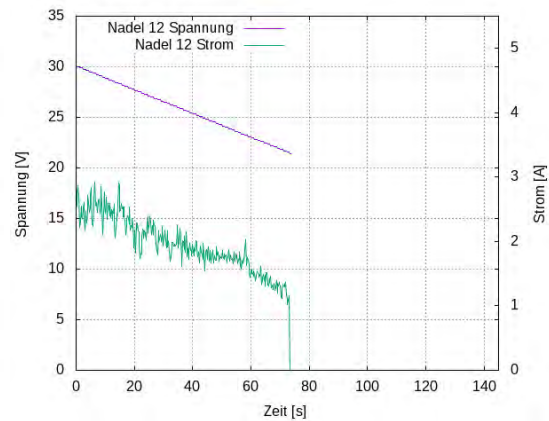
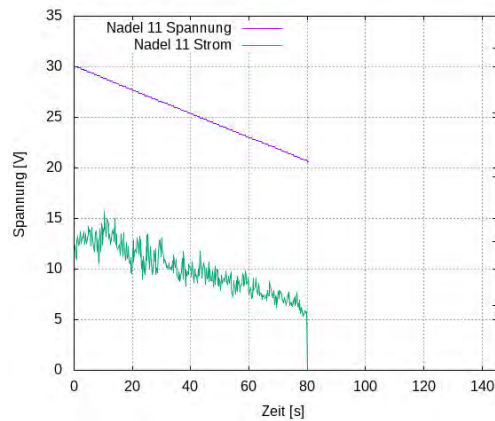
(g) Spannungs- und Stromverlauf des Nadelätzens von Nadel 7 mit $U_{max-Start} = 30\text{ V}$ und $I_{max} = 5\text{ A}$

(h) Spannungs- und Stromverlauf des Nadelätzens von Nadel 8 mit $U_{max-Start} = 30\text{ V}$ und $I_{max} = 5\text{ A}$



(i) Spannungs- und Stromverlauf des Nadelätzens von Nadel 9 mit $U_{max-Start} = 30\text{ V}$ und $I_{max} = 5\text{ A}$

(j) Spannungs- und Stromverlauf des Nadelätzens von Nadel 10 mit $U_{max-Start} = 30\text{ V}$ und $I_{max} = 5\text{ A}$

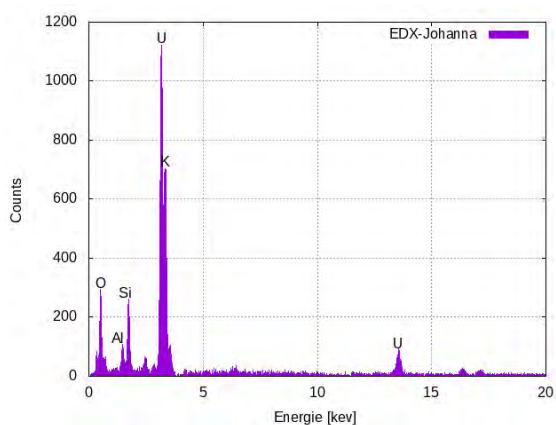


(k) Spannungs- und Stromverlauf des Nadelätzens von Nadel 11 mit $U_{max-Start} = 30\text{ V}$ und $I_{max} = 5\text{ A}$

(l) Spannungs- und Stromverlauf des Nadelätzens von Nadel 12 mit $U_{max-Start} = 30\text{ V}$ und $I_{max} = 5\text{ A}$

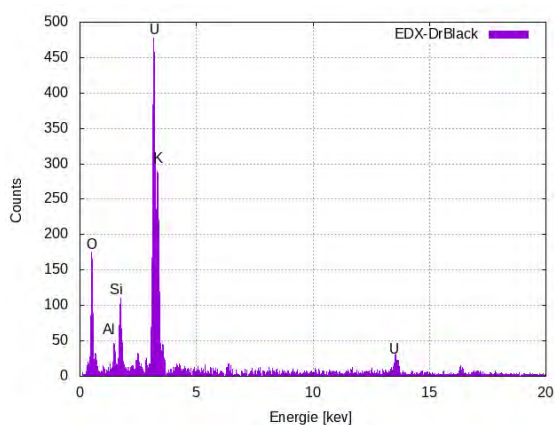
Abbildung 8.8: Spannungs- und Stromverlauf des Nadelätzens mit $U_{max-Start} = 30\text{ V}$ und $I_{max} = 5\text{ A}$

8.6 EDX-Spektren der Partikel



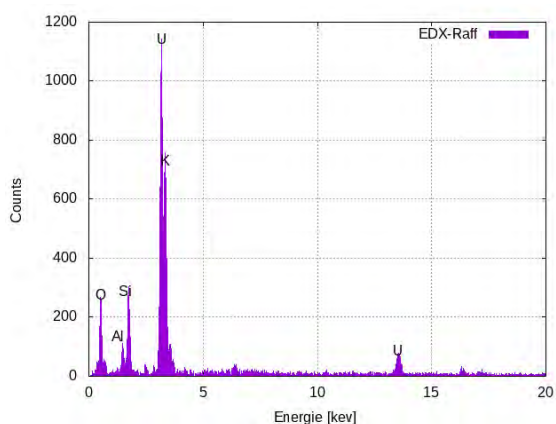
(a) EDX-Spektrum des Partikels „Johanna“

Die Peaks wurden den entsprechenden Elementen zugeordnet.



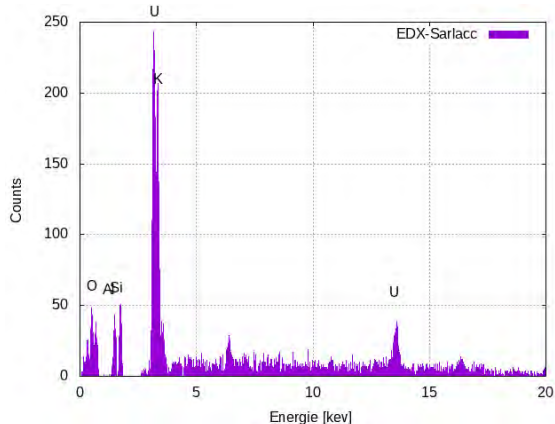
(b) EDX-Spektrum des Partikels „Dr. Black“

Die Peaks wurden den entsprechenden Elementen zugeordnet.



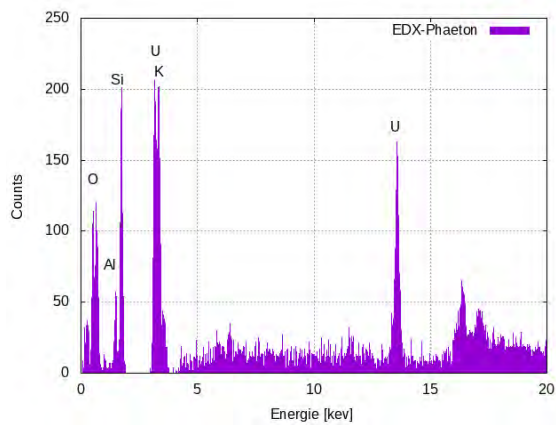
(c) EDX-Spektrum des Partikels „Raff“

Die Peaks wurden den entsprechenden Elementen zugeordnet.



(d) EDX-Spektrum des Partikels „Sarlace“

Die Peaks wurden den entsprechenden Elementen zugeordnet. Der Untergrund ist relativ hoch, dies liegt vermutlich daran, dass der uranhaltige Partikel in einem deutlich größeren Stück der Probenmatrix steckt. Dies ist in Abbildung 4.2 zu sehen.



(e) **EDX-Spektrum des Partikels „Phaeton“**

Die Peaks wurden den entsprechenden Elementen zugeordnet. Der Untergrund ist relativ hoch, dies liegt vermutlich daran, dass der uranhaltige Partikel zersplittert ist und beinahe vollständig verdeckt ist. Dies ist in Abbildung 4.2 zu sehen.

Abbildung 8.9: EDX-Spektren der Partikel

Es ist zu beachten, dass bei keinem Partikel EDX-Signale von Zirkonium detektiert wurden.

Abbildungsverzeichnis

2.1	Schematischer Aufbau eines REM	4
2.2	Wechselwirkung der Elektronen in der Probe	5
2.3	SE und BSE Modus	6
2.4	Mikromanipulator	7
2.5	Aufbau zum Ätzen der Wolframnadeln	9
3.1	Verwendete Asphaltbohrkeren	14
3.2	Extraktion uranhaltiger Partikel	17
3.3	Probenträger	18
4.1	Nadeln aus der $U_{max} = 12\text{ V}$ - und $U_{max} = 24\text{ V}$ -Reihe	21
4.2	Lichtmikroskopieaufnahme des α -track-Detektors vom Bohrkernsediment	26
4.3	Probenträger 1 mit Messpositionen	28
4.4	SIMS-Spektrum des Partikels „BK-006 (Mopsimilian)“	31
4.5	SNMS-Spektrum des Partikels „Mopsimilian“	32
4.6	Uranisotopenverhältnisse der extrahierten Partikel	33
5.1	Uranisotopenverhältnisse der extrahierten Partikel	40
8.1	Ringelektrode	54
8.2	Probenahmeort	55
8.3	Nadeln mit $U_{max} = 12\text{ V}$ und $I_{max} = 0,6\text{ A}$	58
8.4	Nadeln mit $U_{max} = 24\text{ V}$ und $I_{max} = 1,2\text{ A}$	62
8.5	Nadeln mit $U_{max-Start} = 30\text{ V}$ und $I_{max} = 5\text{ A}$	66
8.6	Spannungs- und Stromverlauf des Nadelätzens mit $U_{max} = 12\text{ V}$ und $I_{max} = 0,6\text{ A}$	67
8.7	Spannungs- und Stromverlauf des Nadelätzens mit $U_{max} = 24\text{ V}$ und $I_{max} = 1,2\text{ A}$	69
8.8	Spannungs- und Stromverlauf des Nadelätzens mit $U_{max-Start} = 30\text{ V}$ und $I_{max} = 5\text{ A}$	71
8.9	EDX-Spektren der Partikel	73

Tabellenverzeichnis

4.1	Ergebnisse für $U_{max} = 12\text{ V}$ und $I_{max} = 0,6\text{ A}$	23
4.2	Ergebnisse für $U_{max} = 24\text{ V}$ und $I_{max} = 1,2\text{ A}$	24
4.3	Ergebnisse für $U_{max-Start} = 30\text{ V}$ und $I_{max} = 5\text{ A}$	25
4.4	Vergleichsmessung mit SIMS an Probenträger 1	27
4.5	Ergebnisse der SIMS Messungen am Partikel „BK-006 (Mopsimilian)“ . . .	28
4.6	Ergebnisse der SNMS Messungen am Partikel „BK-006 (Mopsimilian)“ . . .	30
4.7	Ergebnisse der γ -Spektrometrie	34
5.1	Fitparameter	41

Abkürzungsverzeichnis

BSE *backscattered electrons* (Rückstreuelektronen)

CEZ *Chernobyl exclusion zone* (Sperrzone Tschernobyl)

EDX *energy dispersive X-ray spectroscopy* (Energiedispersive Röntgenspektroskopie)

ICP-MS *Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry* (Massenspektrometrie mit induktiv gekoppeltem Plasma)

IRS Institut für Radioökologie und Strahlenschutz

LMIG *liquid metal ion gun* (Flüssigmetall Ionenkanone)

m/z Masse zu Ladungsverhältnis

REM Rasterelektronenmikroskop

SE Sekundärelektronen

SIMS Sekundärionen-Massenspektrometrie

SNMS Sekundärneutralteilchen-Massenspektrometrie

TOF-SIMS *Time-of-Flight Secondary-Ion Mass-Spectrometry* (Flugzeit-Sekundärionen-Massenspektrometrie)

XANES *near-edge X-ray absorption fine structure* (Röntgen-Nahkanten-Absorptions-Spektroskopie)

Literatur

- [1] H. H. Binder. *Lexikon der chemischen Elemente: das Periodensystem in Fakten, Zahlen und Daten*. Hirzel, 1999. ISBN: 9783777607368. URL: <https://books.google.de/books?id=Mr5XAgAACAAJ>.
- [2] United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. *SOURCES AND EFFECTS OF IONIZING RADIATION, 1993 Report*. UNITED NATIONS, New York, 1993.
- [3] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. *RADIOACTIVE PARTICLES IN THE ENVIRONMENT: SOURCES, PARTICLE CHARACTERIZATION AND ANALYTICAL TECHNIQUES*. IAEA, 2011.
- [4] B. Salbu u. a. “Challenges associated with the behaviour of radioactive particles in the environment”. In: *Journal of Environmental Radioactivity* 186 (2017), S. 101–115. DOI: 10.1016/j.jenvrad.2017.09.001.
- [5] United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. *SOURCES AND EFFECTS OF IONIZING RADIATION, 2008 Report*. UNITED NATIONS, New York, 2008.
- [6] T. I. Bobovnikova u. a. *Physical chemical forms of radionuclides in atmospheric fallout after the Chernobyl accident and their transformation in soil*. Atomnaya Energiya, 1991, S. 449–454.
- [7] B. Salbu u. a. “Oxidation states of uranium in DU particles from Kosovo”. In: *Journal of Environmental Radioactivity* 64 (2003), S. 167–173. DOI: 10.1016/S0265-931X(02)00047-4.
- [8] V. A. Kashparov u. a. “Kinetics of dissolution of Chernobyl fuel particles in soil in natural conditions”. In: *Journal of Environmental Radioactivity* 72 (2004), S. 335–353. DOI: 10.1016/j.jenvrad.2003.08.002.
- [9] Kleindiek Nanotechnik GmbH. Abgerufen am: 19.09.2018. URL: <https://www.nanotechnik.com/mm3a-em.html>.
- [10] T. L. Van Well u. a. “Electrochemical Etching and Characterization of Sharp Field Emission Points for Electron Impact Ionization”. In: *Journal of Visualized Experiments* 113 (2016). ISSN: 1940-087X. DOI: 10.3791/54030.

- [11] W. Demtröder. “Experimentalphysik 3”. In: Springer Spektrum, 2016, S. 52. DOI: 0.1007/978-3-662-49094-5.
- [12] J. H. Gross. *Massenspektrometrie - Ein Lehrbuch*. Springer Spektrum, 2013. DOI: 10.1007/978-3-8274-2981-0.
- [13] L. Hamann. “Untersuchung radioaktiver Partikel mittels Sekundärionen-Flugzeit-Massenspektrometrie”. Diss. Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover, 2017.
- [14] J. S. Becker. *Inorganic Mass Spectrometry - Principles and Applications*. John Wiley und Sons Ltd., 2007.
- [15] S. Raeder, A. Hakimi und N. Stöener. “Detection of plutonium isotopes at lowest quantities using in-source resonance ionization mass spectrometry”. In: *Anal Bioanal Chem* 404(8) (2012), S. 2163–2172. DOI: 10.1007/s00216-012-6238-6.
- [16] M. Franzmann u. a. “A new resonant Laser-SNMS system for environmental ultra-trace analysis: Installation and optimization”. In: *International Journal of Mass Spectrometrie* 423 (2017), S. 27–32. DOI: 10.1016/j.ijms.2017.10.003.
- [17] J. Schindelin u. a. “Fiji: an open-source platform for biological-image analysis”. In: *Nature Methods* 9 (2009), S. 676–682. ISSN: 1548-7105. DOI: 10.1038/nmeth.2019.
- [18] L. Leifermann. “Lokalisierung und Vergleich von uranhaltiger Partikel in Bodenproben”. Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover, 2018.
- [19] P. G. Martin u. a. “In-situ removal and characterisation of uranium-containing particles from sediments surrounding the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant”. In: *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy* 117 (2016), S. 1–7. DOI: 10.1016/j.sab.2015.12.010.
- [20] B. Salbu u. a. “Challenges associated with the behaviour of radioactive particles in the environment”. In: *Journal of Environmental Radioactivity* 186 (2018), S. 101–115. ISSN: 0265931X. DOI: 10.1016/j.jenvrad.2017.09.001.
- [21] J. Magill u. a. *Karlsruher Nuklidkarte*. Nucleonica GmbH, 2015.
- [22] D. Emendörfer und K. H. Höcker. “Theorie der Kernreaktoren Teil I.” In: Bibliographisches Institut, 1982, S. 30.
- [23] T. P. Makarova, B. A. Bibichev und V. D. Domkin. “Destructive Analysis of the Nuclide Composition of Spent Fuel of WWER-440, WWER-1000, and RBMK-1000 Reactors”. In: *Radiochemistry* 50 (2008), S. 414–426. ISSN: 1066-3622. DOI: 10.1134/S1066262208040152.
- [24] Gesellschaft für Reaktorsicherheit. *(GRS-S 40) Neuere Erkenntnisse zum Unfall im Kernkraftwerk Tschernobyl*. Gesellschaft für Reaktorsicherheit, 1986.

-
- [25] Gesellschaft für Reaktorsicherheit. (*GRS 121*) *Tschernobyl – Zehn Jahre danach: Der Unfall und die Sicherheit der RBMK-Anlagen*. Gesellschaft für Reaktorsicherheit, 1996.
- [26] USSR State Committee on the Utilization of the Atomic Energy. *Accident at the Chernobyl-Nuclear-Power Plant and its Consequences. Information Compiled for the IAEA Expert's Meeting, 25 - 29 August 1986*. IAEA, 1986.
- [27] V. Barkauskas u. a. “GENERATION OF RBMK-1500 SPENT NUCLEAR FUEL ONE-GROUP CROSS-SECTION LIBRARIES AND THEIR EVALUATION AGAINST EXPERIMENTAL DATA”. In: *Lithuania Journal of Physics* 57 (2017), S. 42–53.
- [28] D. B. Murphy. “ORIGEN-ARP Cross-Section Libraries for the RBMK-1000 System”. In: *Oak Ridge National Laboratory* (2006).
- [29] A. Bulgakov u. a. “Fuel particles in the Chernobyl cooling pond: current state and prediction for remediation options”. In: *Journal of Environmental Radioactivity* 100.4 (2009), S. 329–332. ISSN: 0265931X. DOI: 10.1016/j.jenvrad.2008.12.012.
- [30] H. Bosco. “Erarbeitung eines Anregungsschemas zum Strontiumnachweis mittels resonanter Laser-SNMS”. Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover, 2016.