



Leibniz Universität Hannover

Fakultät für Mathematik und Physik

Institut für Radioökologie und Strahlenschutz

Bachelorarbeit

Lokalisierung und Vergleich uranhaltiger Partikel in Bodenproben

Vorgelegt von: Laura Leifermann

Matrikelnummer: 3240900

4. Oktober 2018

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 4. Oktober 2018.

Laura Leifermann

Inhaltsverzeichnis

Zusammenfassung	v
1 Einleitung	1
2 Theoretischer Hintergrund	3
2.1 Der Reaktorunfall von Tschernobyl	3
2.2 Partikel	4
2.3 Probennahmeorte	4
3 Technische Geräte	7
3.1 Rasterelektronenmikroskop	7
3.1.1 Funktionsweise	8
3.1.2 Energy dispersive X-ray analysis	9
3.2 Lichtmikroskop	10
3.3 Alpha Track Analyse	11
4 Experimentelle Durchführung	13
4.1 Probenvorbereitung	13
4.2 Alpha Track Vorbereitung	13
4.3 Auswertung der Detektoren	15
4.4 Finden des Partikels	17
4.5 Extrahieren des Partikels	18
5 Ergebnisse	19
5.1 Vergleich der Partikel aus der Chernobyl Exclusion Zone	19
5.1.1 Geschmolzene Partikel	19
5.1.2 Löchrige Partikel	22
5.1.3 Nicht zugeordnete Partikel	23
5.1.4 Vergleich der Größen der Partikel	26
5.2 Proben aus Finnland und Fukushima	27
6 Diskussion	29

Inhaltsverzeichnis

7	Fazit	31
8	Anhang	33
8.1	Bilder der Partikel	33
8.2	Expositionszeiten	44

Für alle Einheiten werden SI-Einheiten verwendet.

Zusammenfassung

In dieser Arbeit wurden 26 Partikel unterschiedlicher Morphologie und Größe gefunden, die aus Proben von unterschiedlichen Orten in der Chernobyl Exclusion Zone (CEZ) stammen. Dazu wurde die Methode der Alpha Track Analyse verwendet, die durch ein Rasterelektronenmikroskop ergänzt wird. Die gefundenen uranhaltigen Partikel, die durch einige schon vorher gefundene Partikel ergänzt wurden, können in unterschiedliche Strukturen und Größen unterteilt werden. So entstand am Ende eine Größenverteilung und drei verschiedene Gruppen in denen die Partikel anhand der Oberflächenbeschaffenheit eingeteilt wurden. Weitere Analysen über die Zusammensetzung wurden mit dem Rasterelektronenmikroskop und der energy dispersive X-ray analysis (EDX) durchgeführt.

1 Einleitung

Im heutigen ukrainischen Kernkraftwerk Tschernobly kam es am 26. April 1986 im Rahmen eines Experiments zu einer Kernschmelze. Während des zehntägigen Brandes des Reaktors gab es eine Freisetzung von 5300 PBq, davon rund 2,6 PBq allein an Plutonium über große Flächen Europas[22]. Das Ende der Freisetzung wurde erst mit Löschen des offenen Reaktorbrandes erzielt, wobei sich die Radioaktivität über die heutige Ukraine, Weißrussland, Russland und Europa ausgebreitet hatte. Die Aktivität wurde auf verschiedene Arten verteilt: Neben leicht flüchtigen Elementen, die gasförmig entwichen, wurden auch geschmolzene und feste Fragmente des Kernbrennstoffs aus dem Reaktor geschleudert, die aufgrund ihrer Größe und ihres Gewichts vornehmlich in der näheren Umgebung des Reaktors niedergegangen waren. Diese Fragmente, *hot particles* genannt, bestanden überwiegend aus Uran und Plutonium. Um zu untersuchen, wie sich diese Partikel in der Umwelt verhielten und welche Eigenschaften sie hatten, müssten die wenige Mikrometer großen Partikel in der Umwelt lokalisiert und separiert werden. Dazu wurden Bodenproben in der Nähe des Reaktors in der Chernobyl Exclusion Zone (CEZ) entnommen und diese auf *hot particles* hin mit Alpha-Track-Analyse, Rasterelektronenmikroskop (REM) und EDX untersucht. Das Lokalisieren und Vergleichen von *hot particles* in Hinsicht auf verschiedene Parameter, wie Struktur, Zusammensetzung und Größe war das Thema dieser Arbeit.

2 Theoretischer Hintergrund

2.1 Der Reaktorunfall von Tschernobyl

Der Unfall am 26.04.1986 ereignete sich durch ein fehlgeschlagenes Experiment im RBMK-1000-Reaktor Tschernobyl im Block 4 in der heutigen Ukraine. Das Experiment, bei dem alle Kühlmittelpumpen außer Betrieb waren und das Abschaltsignal bei Nichtverfügbarkeit der Turbinen überbrückt war, sollte die Sicherheitseigenschaften des Reaktors überprüfen. Dazu wurde der Reaktor zunächst auf die Hälfte seiner Leistung herabgefahren, wobei er eine Stunde später aufgrund hoher Stromnachfrage wieder hochgefahren wurde. Anschließend sollte das Experiment beginnen, sodass der Reaktor erneut herabgefahren wurde. Allerdings sank die Leistung aufgrund einer Xenon-Vergiftung auf 1% der Leistung ab, sodass fast alle Steuerstäbe herausgezogen wurden, um die Leistung zu stabilisieren, die nun aber inhomogen im Kern verteilt war. Der Test begann mit dem Schließen der Turbinenschnellschlussventile, was einen Anstieg der Temperatur verursachte, worauf sich im Kühlwasser Dampfblasen bildeten. Dieses hatte einen Leistungsanstieg des Reaktors zur Folge. Da der Reaktor nun schnell heruntergefahren werden sollte, wurden die Regel- und Abschaltelemente in den Kern herabgefahren. Allerdings wurde so zunächst die Graphitabdeckung der Steuerstäbe in den Kern gefahren. Dadurch gab es eine bessere Moderation der Neutronen und in Folge dessen eine Erhöhung der Leistung auf 3000 % der Auslegung des Reaktors und anschließend eine Explosion, die einen Graphitbrand nach sich zog. Während des zehntägigen Brandes wurden 6000-8000 kg radioaktives Material mit einer Aktivität von 5300 PBq freigesetzt[4]. Die meisten Radionuklide wurden in einem Umkreis von etwa 20 km, unter anderem in Form radioaktiver Partikel, deponiert. Während der Explosion wurden die Partikel hauptsächlich westlich des Reaktors verteilt, später, während des Brandes, durch den sich drehenden Wind auch nördlich, nordöstlich und südlich auf dem Gelände[20] [16]. 1996 wurde die CEZ eingerichtet, eine Sperrzone von insgesamt 4300 km²[11] [22].

2.2 Partikel

Radioaktive Partikel können unterschiedlichem Ursprung sein. Zum einen gibt es die natürlich vorkommenden uranhaltigen Partikel, zum anderen aber die Partikel, die aus den Nuklearwaffentests oder aus Kernreaktorunfällen stammen[3]. Kashparov et al.[23] unterteilten die radioaktiven Partikel, die während des Unfalls in Tschernobyl entstanden, in drei Kategorien: In die oxidierten, die nicht-oxidierten und die besonders stabilen Partikel, die Zirkonium enthielten. Die stabilen Partikel mit Zirkonium (U-Zr-O) wurden während der Explosion in Anwesenheit einer zirkoniumhaltigen Schutzhülle gebildet. Am selben Tag der Explosion waren ebenfalls die teiloxydierten, chemisch stabilen Uranoxid-Partikel(UO_2) durch die mechanischen Zerstörung der Brennstäbe entstanden. Der tagelange Brand des Reaktors hatte zur Folge, dass sich auch die dritte Gruppe der Partikel bilden konnte. Die oxidierten und chemisch eher instabilen oxidierten Uranpartikel (UO_{2+z}) wurden vom 26.April bis zum 5.Mai.1986 erzeugt[20]. Den Voraussagen von Kashparov[23] nach dürften in der Umwelt die zirkoniumhaltigen Partikel den Hauptteil der noch vorhandenen Partikel ausmachen und somit hauptsächlich zu finden sein. Andere Untersuchungen von Kashparov [23] ergaben, dass sich Partikel aus dem Roten Wald, die eine Größe von 4 μm bis 6 μm haben sollen, eher in zwei Kategorien einteilen lassen, wobei hier die teiloxydierte Gruppe wegfiel. Partikel, die aus Uranoxid bestanden und unregelmäßig geformt waren, hatten viele und deutlich erkennbare Poren an der Oberfläche. Die anderen Partikel, die auch noch Zirkonium enthielten (ZrU_xO_y), zeigten deutliche Anzeichen eines Schmelz- oder Sinterprozesses, bei denen aber die Poren ebenso deutlich zu erkennen waren. Diese Untersuchungen wurden mit 15 g Bodenprobe durchgeführt, in denen 2514 Partikel gefunden wurden. Somit wird zu Beginn der vorliegenden Arbeit erwartet, dass die Partikel in Klassen aufgeteilt werden können und dass besonders viele Partikel mit hohem Zirkoniumgehalt gefunden werden [23].

2.3 Probennahmeorte

Es wurden Proben untersucht, die von verschiedenen Bereichen aus der CEZ stammen. Diese wurden auf verschiedenen Exkursionen des Instituts für Radioökologie und Strahlenschutz bereits entnommen und waren schon die Basis einer abgeschlossenen und mehrerer laufender Dissertationen. Im Vergleich zur Dissertation von Dr. Linda Hamann[11] wurde in der vorliegenden Arbeit ein abgewandeltes Verfahren zur Probenvorbereitung und Partikeldetektion angewandt. Die Proben stammen aus dem Roten Wald, dem Sediment des Kühlteichs und aus Moosproben vom Marktplatz in Prypiat. Die Abbildung 2.1 zeigt

die Probennahmeorte in Relation zum Kraftwerk. Dabei wurde die Sedimentproben des Kühlteiches in der Nähe der markierten Brücke entnommen.

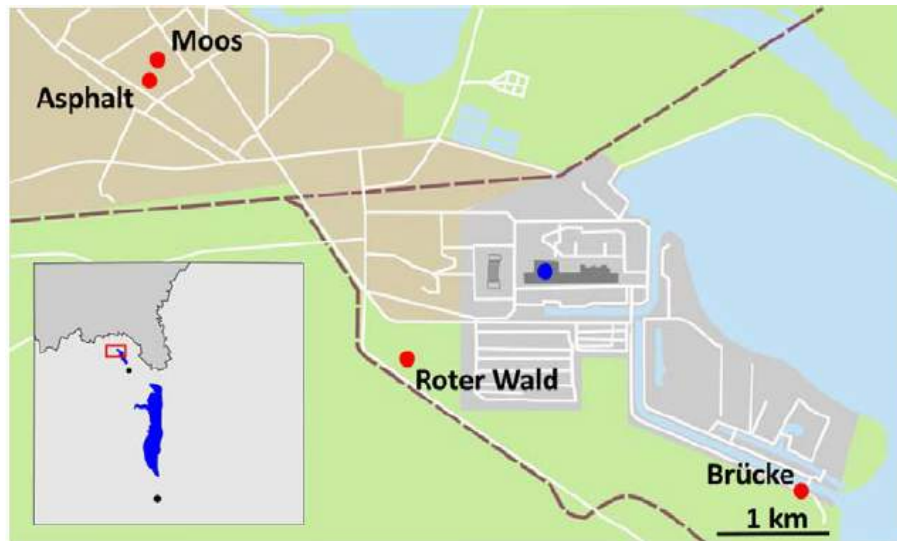


Abbildung 2.1: **Karte der Probennahmeorte in Prypjat und Tschernobyl**

Die Karte zeigt das havarierte Kernkraftwerk (blaue Markierung) und die Probennahmeorte der untersuchten Proben (rot). Der Ausschnitt unten links zeigt den Norden der Ukraine (hellgrau) mit der Grenze zu Weißrussland (dunkelgrau). Die schwarz markierten Orte sind Kiew und Tschernobyl[11].

Alle Probennahmeorte wurden auf Basis der gemessenen Ortsdosisleistung (ODL) ausgewählt. Dabei wurde gezielt nach Orten erhöhter ODL, sogenannten *hot spots*, gesucht und von diesen Bodenproben entnommen.

Die Probe aus dem roten Wald wies eine erhöhte ODL auf, da dieser während des Reaktorunfalls stark kontaminiert wurde. [11]

Die Proben aus dem Kühlteich wurden ausgewählt, da das Sediment und die darin abgelagerten Partikel aufgrund der Wasserschicht anderen Verwitterungsbedingungen ausgesetzt waren.

Es wurde auch eine Probe aus Finnland untersucht, die wenige Tage nach dem Reaktorunfall von Tschernobyl genommen wurde. Dabei handelte es sich um Pflanzenproben, die auf radioaktive Partikel untersucht wurden.

Auch wurden Proben aus Fukushima untersucht, die in wenigen Kilometern Entfernung zum havarierten Kernkraftwerk genommen wurden.

3 Technische Geräte

3.1 Rasterelektronenmikroskop

Ein Rasterelektronenmikroskop kann mit Hilfe eines fokussierten Elektronenstrahls Objekte im Mikrometerbereich abbilden. Während der kontinuierliche Elektronenstrahl über die Oberfläche gerastert wird, werden aus der Probenoberfläche Sekundärelektronen (engl. secondary electrons (SE)) herausgeschlagen, die mit einem geeigneten Detektor aufgefangen werden. Auch werden durch die Wechselwirkung mit der Probenoberfläche Rückstreuerelektronen (engl. backscattered electrons (BSE)) produziert und Elektronen absorbiert. Dies führt zu einem messbaren Strom. Auch wird Röntgenstrahlung produziert, die für die EDX-Analyse verwendet wird. Es gibt noch einige andere Effekte, auf die hier nicht weiter eingegangen wird, da diese bei den nachfolgenden Untersuchungen keine Rolle spielen. Der Ursprung der verschiedenen Signale kann aus Abbildung 3.1 entnommen werden.

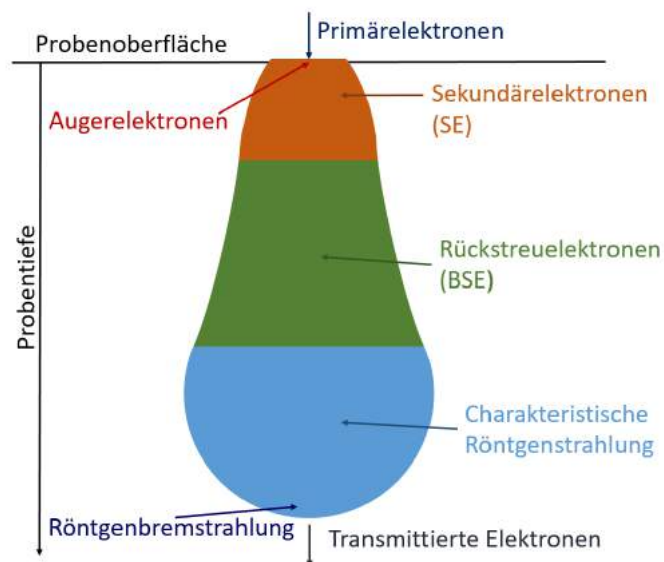


Abbildung 3.1: **Signale bei einem Rasterelektronenmikroskops**

Die Abbildung zeigt, welche Signale bei einer REM-Untersuchung aus einer Probenoberfläche in welcher Tiefe austreten.

3 Technische Geräte

Mit dem SE-Modus kann ein Topographiekontrast erzeugt werden. Der BSE-Modus erzeugt ein Bild, das die Elemente anhand ihrer Elektronendichte unterschiedlich hell darstellt.

3.1.1 Funktionsweise

Aufbau Der Aufbau des REM kann aus Abbildung 3.2 entnommen werden.

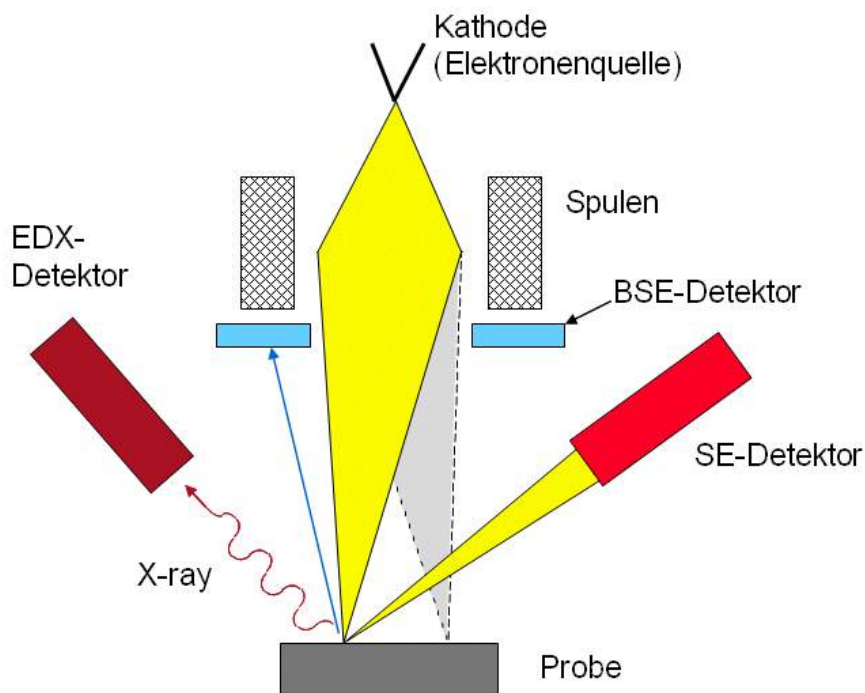


Abbildung 3.2: **Aufbau eines Rasterelektronenmikroskops**

Die Abbildung zeigt schematisch den Aufbau eines REM [25].

Zu erkennen ist zum einen die Glühkathode, aus der Elektronen herausgelöst und mit einer Ringanode fokussiert werden. Danach werden diese in einem Vakuum mit einer Gleichspannung von bis zu 30 keV beschleunigt. Der so vor-fokussierte Elektronenstrahl wird durch weitere Spulen und Elektronenlinsen mehrere Male aufgeweitet und wieder fokussiert, so dass am Ende ein sehr feiner Strahl auf die Probe auftrifft. Über eine Wechselspannung, wird der Elektronenstrahl so geführt, dass dieser einen begrenzten Teil abstrahlt, und so die Probenoberfläche über Detektoren auf einem Bildschirm darstellt. Das REM wird hier in zwei verschiedenen Modi verwendet. Die Säule und die Elektronenquelle befinden sich

immer im Hochvakuum mit einem Druck von 10^{-6} mbar. Die Probenkammer kann ebenfalls im Hochvakuum betrieben werden oder im Niedrigvakuum mit einem Druck von 0,1 bis 1 mbar. Zum Finden des Partikels wird das Niedrigvakuum mit Raumluft verwendet, obwohl die Bilder weniger auflösend als im Hochvakuum sind. Durch das Niedrigvakuum wird die elektrostatische Aufladung der Proben gering gehalten, da sonst nicht-leitende Proben nur schwierig gemessen werden können.

SE Das Oberflächenbild entsteht nun dadurch, dass die Sekundärelektronen SE, die aus der obersten Probenschicht gelöst werden, mit einem geeigneten Detektor detektiert werden. Diese SE haben geringe Energien von bis zu 50 eV, sodass diese geringe Herkunftstiefen von nur wenigen Nanometern besitzen. SE aus tieferen Schichten können die Probenoberfläche nicht erreichen und so nicht detektiert werden. Je nach Beschaffenheit der Oberfläche haben die sehr niederenergetischen SE unterschiedliche Winkel und Abstände zum Detektor, sodass ein Bild erzeugt werden kann [15].

BSE Die BSE sind Primärelektronen. Diese werden an unterschiedlich hohen Elektronendichten unterschiedlich stark gestreut. Die Wahrscheinlichkeit für eine Rückstreuung erhöht sich bei Elementen mit höherer Ordnungszahl und somit auch die Intensität des BSE-Signals. Die zurück gestreuten Elektronen haben annähernd ihre ursprünglichen Energien. Hierbei lassen sich topographische Eigenschaften nicht abbilden, da die Elektronen aus tieferen Schichten der Probe kommen, sondern erzeugen einen sogenannten Materialkontrast. So liefern Gebiete mit Uran aufgrund der höheren Elektronendichte eine höhere Helligkeit als Gebiete, die hauptsächlich aus Kohlenstoff bestehen [15] [16]. So wird nach Partikeln ausschließlich im BSE-Modus gesucht [10].

3.1.2 Energy dispersive X-ray analysis

Bei der EDX-Analyse regen die Elektronen aus dem Primärelektronenstrahl die Elektronen der Hülle des Atoms an. Die angeregten Elektronen kehren unter Emission eines Photons auf ein niedrigeres Energieniveau zurück (s. Abbildung 3.3). Häufiger jedoch wird das Elektron herausgeschlagen und ein anderes Elektron aus einer höheren Schale füllt diese Lücke auf. Wird z. B. ein Elektron aus der innersten K-Schale herausgeschlagen und durch ein Elektron der L-Schale aufgefüllt, sendet dieses Elektron beim Herabfallen ein K-Alpha Photon aus. Die Wellenlänge des emittierten Photons ist für jedes Element unterschiedlich, da sie vom spezifischen Elektronenübergang abhängt. Mit einem entsprechenden Detektor

kann die Energie gemessen und in ein Spektrum übertragen werden. Durch das ablesbare EDX-Spektrum kann nun die elementare Zusammensetzung der Probe oder hier des Partikels bestimmt werden [15].

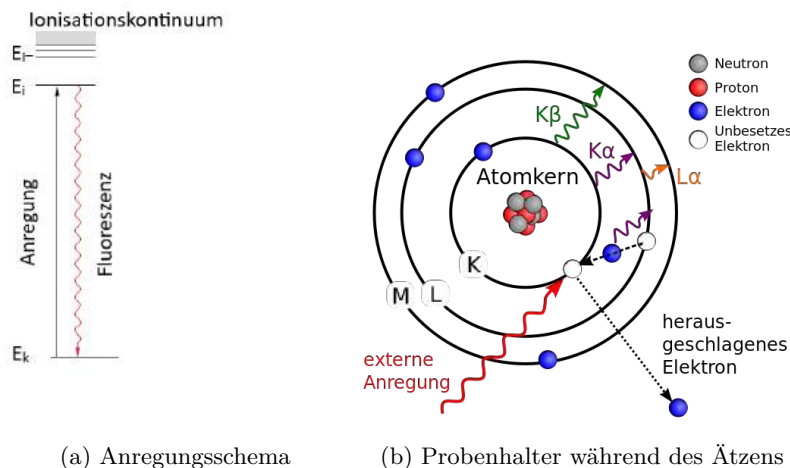


Abbildung 3.3: **EDX**

Die Abbildung (a) zeigt ein Anregungsschema. Dabei wird ein Elektron vom Grundniveau E_k ins höhere Energieniveau E_i angeregt. Von dort fällt es wieder herunter auf das Grundniveau und gibt dabei Energie in Form von Photonen ab [5]. In (b) wird eine weitere Möglichkeit für die Entstehung der Röntgenstrahlung dargestellt, die im Text genauer beschrieben wird [24].

3.2 Lichtmikroskop

Das Lichtmikroskop besitzt zwei Linsen, zum einen das Okular und zum anderen das Objektiv mit dem sehr kleine Gegenstände, die direkt hinter dem Brennpunkt des Objektivs platziert werden, vergrößert werden können. Das Bild, das durch das Objektiv erzeugt wird, ist ein reelles Bild, welches weit weg von der Linse ist und stark vergrößert wird. Durch das Okular wird dieses Bild dann zu einem sehr großen virtuellen und invertierten Bild, das nun durch das Auge gesehen werden kann[9].

In Abbildung 3.4 ist der schematische Aufbau eines Mikroskops zu sehen. Dort sind zwei Lichtquellen (LQ1 und LQ2), mit denen unterschiedlich beleuchtete Bilder aufgenommen werden können. Der Strahlengang ist hier durch die stärkere Vergrößerung und bessere Fokussierung deutlich komplexer als oben beschrieben, beruht aber auf dem selben Prinzip und wird deshalb nicht weiter erläutert. Zusätzlich kann noch eine Kamera angebracht werden, die das Bild auf einen Bildschirm überträgt. Dadurch können mit einer geeigneten

Software Bilder des vergrößerten Objektes aufgenommen werden [6].

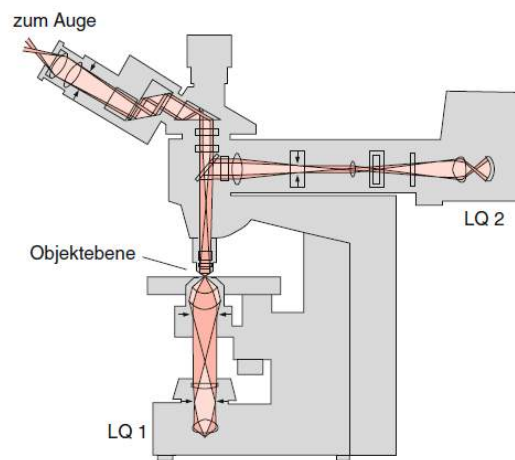


Abbildung 3.4: **Aufbau eines Lichtmikroskops**

Die Abbildung zeigt den Aufbau eines Lichtmikroskops. Dabei sind LQ1 und LQ2 Lichtquellen, mit denen das Objekt in Durchsicht oder Aufsicht betrachten werden kann[6].

3.3 Alpha Track Analyse

Bei der Alpha Track Analyse (ATA) werden Detektoren aus dem Polycarbonat CR-39 verwendet. Auftreffende Alpha-Strahlung beschädigt das polymere Material des Detektors am Ort des Einschlags und erzeugt dort mikroskopisch kleine Defekte in der Oberfläche. Um diese Löcher sichtbar zu machen, wird der Detektor, von dem zunächst eine schützenden Plastikfolie von der Oberfläche entfernt wird, danach von der Probe entfernt und gereinigt, mit Natronlauge, $c=6 \text{ mol/L}$ bei $\vartheta=80^\circ\text{C}$ 3 Stunden entwickelt. Dabei wird die Oberfläche mit den Alpha-induzierten Defekten langsam aufgelöst. Somit werden die Löcher konstant größer und nach genügend großer Ätzdauer für das Auge sichtbar [12] [13].

4 Experimentelle Durchführung

4.1 Probenvorbereitung

Um die Proben später effektiver im REM untersuchen zu können, werden die Bodenproben aufbereitet. Zuerst müssen sie nass gesiebt werden, um eine Vorsortierung in verschiedene Größenfraktionen zu erzielen. Es werden sehr kleine Partikel erwartet, sodass der Anteil der Probe, der größer als $200\ \mu\text{m}$ ist, herausgefiltert wird. Dazu werden zwei Siebe mit $200\ \mu\text{m}$ und mit $63\ \mu\text{m}$ verwendet. Diese werden übereinandergestapelt, damit die Probe erst grob und dann fein gesiebt wird. Es erfolgt keine weitere chemische Aufarbeitung oder andere Veränderung der Proben, sodass anschließend die Proben mittels Wärmelampen getrocknet werden.

4.2 Alpha Track Vorbereitung

Anschließend werden die gesiebten und getrockneten Bodenproben auf doppelseitigem Kohlenstoffklebeband, das aufgrund seiner Leitfähigkeit die Untersuchung im REM vereinfacht, verteilt [16]. Das Klebeband wird in $5 \times 5\ \text{cm}$ große Rechtecke geschnitten und auf feste Aluminium-Folie geklebt, die etwa einen Zentimeter größer ist. Das Probematerial wird nun mit Hilfe eines Spatels fein und großflächig auf dem Kohlenstoffklebeband verteilt, sodass es eine ebene Schicht bildet. Die Klebefolien werden auf eine Größe von $5 \times 5\ \text{cm}$ geschnitten, damit diese genau unter die vorher zugeschnittenen Detektoren passen. Die Detektoren werden nun noch mit normalem Klebeband fixiert und für einige Stunden bis zu mehreren Tagen auf der Probe gelassen. Dies stellt eine ausreichende Expositionszeit der Alpha Track Detektoren (ATD) sicher. Eine Übersicht über die Expositionszeiten kann im Anhang in den Tabellen 8.1, 8.2 und 8.3 entnommen werden.

4 Experimentelle Durchführung

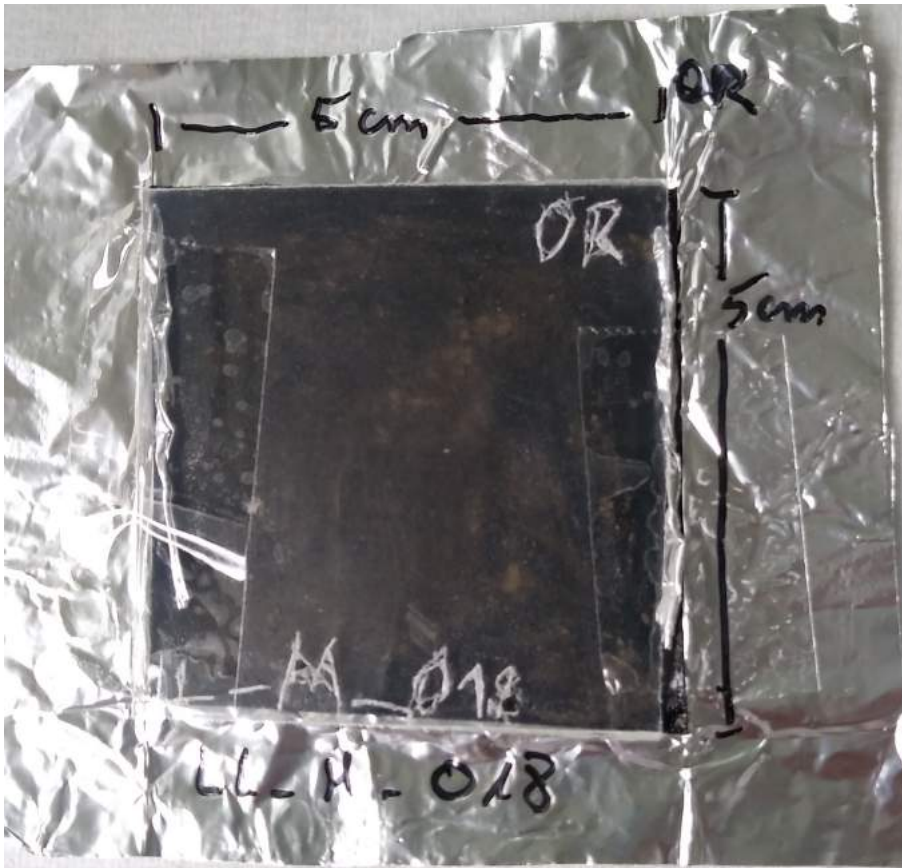


Abbildung 4.1: **Probe mit Alpha Track Detektor**

Die Abbildung zeigt eine vorbereitete Probe mit Größenbeschriftung mit ATD versehen. So wird die Probe für mehrere Tage liegengelassen.

4.3 Auswertung der Detektoren

Für das Entwickeln der Detektoren gibt es eine Vorrichtung, mit der gleichzeitig zehn Stück geätzt werden können, was in Abbildung 4.2 dargestellt ist. So können die Detektoren, ohne zu verrutschen und direkt aufeinander zu liegen, von beiden Seiten geätzt werden.



(a) Probenhalter

(b) Probenhalter während des Ätzens

Abbildung 4.2: **Probenhalter**

Die Abbildung (a) zeigt den Probenhalter für die Detektoren. Damit können bis zu zehn Detektoren gleichzeitig geätzt werden. In Abbildung (b) ist der gesamte Versuchsaufbau zu erkennen.

Die Entwicklungsdauer wird nach einer Versuchsreihe auf drei Stunden festgelegt, was einen Kompromiss zwischen Signalstärke und Zeit darstellt. Das Ergebnis in Abbildung 4.3 zu sehen.

4 Experimentelle Durchführung

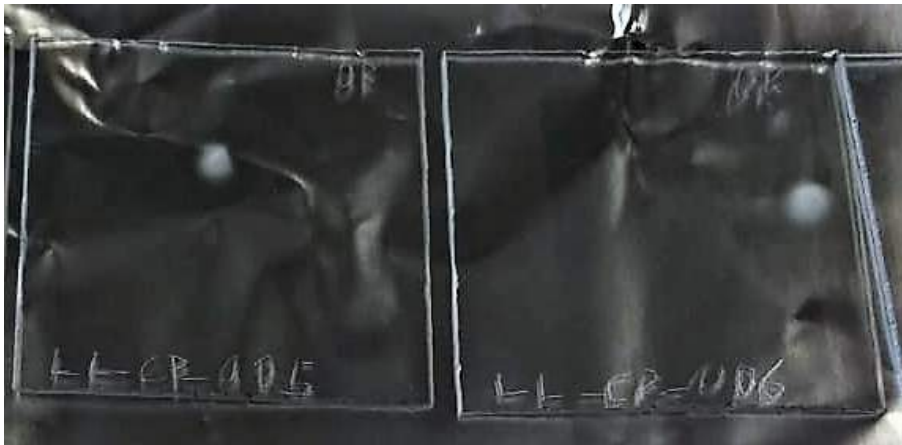


Abbildung 4.3: **Alpha Track Detektor mit Spots**

Auf der Abbildung sind zwei ATD mit mehreren Spots zu erkennen, welche als milchige Flecken sichtbar sind.

Nach dem Ätzen können die Detektoren begutachtet werden. Da die Spots nach langer Bestrahlungszeit und angepasster Ätzdauer einige Millimeter groß sind, sind viele Spots mit dem bloßen Auge sichtbar. Für kleinere Spots kann das Lichtmikroskop verwendet werden. Anschließend werden die Spots noch mit dem Lichtmikroskop fotografiert, damit die Anzahl der von den Alpha-Teilchen eingeschlagenen Tracks gezählt werden kann, siehe Abbildung 4.4. Anhand dieser Anzahl und der Expositionsdauer kann die Alpha-Aktivität der jeweiligen Quelle abgeschätzt werden, was aber durch Überlagerung von Alpha-Tracks oder zu dicht beieinander liegenden Tracks oft nur eingeschränkt möglich ist.



Abbildung 4.4: **Alpha Track Detektor Spots unter dem Lichtmikroskop**

Auf der Abbildung ist ein Spot unter dem Lichtmikroskop zu erkennen.

4.4 Finden des Partikels

Durch den Spot kann nun die Lokalisierung vereinfacht werden, indem die milchigen Bereiche der Detektoren auf Tageslichtprojektorfolien übertragen werden. So können diese anschließend über die präparierten Flächen gelegt werden. Die vorgezeichneten Spots und die Probe werden zusammen mit einer Biopsiestanze ausgestanzt. Die Biopsiestanze hat einen Durchmesser von 3 mm, sodass der abzusuchende Bereich sehr klein ist. Diese kleinen Flächen werden auf stabilere Metallblöcke, siehe Abbildung 4.5, die eine Größe von 10 mm mal 5 mm haben, mit dem doppelseitigen Kohlenstoffklebeband geklebt.



Abbildung 4.5: **Probenträger**

Die Abbildung zeigt Proben, die schon ausgestanzt und auf Metallblöcke geklebt wurden.

Im Rasterelektronenmikroskop wird dann im BSE-Modus im Niedrigvakuum bei 1 mbar die Oberfläche abgesucht. Dabei ist der Kontrast so einzustellen, dass die Wolframnadel, die mit einem Mikromanipulator (Kleindiek Nanotechnik-MM4A) befestigt ist (zu sehen bei Shinonaga [21]), aufgrund ihrer höheren Elektronendichte deutlich heller als das Umweltmaterial der Bodenprobe erscheint. Uranpartikel erscheinen heller als die Wolframnadel und heben sich deutlich vom Untergrund ab, damit von einem potentiellen Partikel ein EDX-Spektrum aufgenommen werden kann. Dadurch kann schnell festgestellt wer-

4 Experimentelle Durchführung

den, ob es sich um einen uranhaltigen Partikel handelt oder nicht. Anschließend werden noch Bilder gespeichert, die im SE und dem BSE Modus aufgenommen werden. So ergibt sich ein überlagertes Bild, sodass ein Kontrastunterschied zu den übrigen Umweltpartikeln entsteht. Die Bilder der Partikel sind im Anhang ab Abbildung 8.1 zu finden.

4.5 Extrahieren des Partikels

Um den gefundenen Partikel weiter analysieren zu können, muss dieser aus der Probenmatrix extrahiert werden. Das ist nicht Hauptbestandteil dieser Arbeit, weshalb darauf hier nur kurz eingegangen wird.

Mit einem Mikromanipulator (Kleindiek Nanotechnik-MM4A) und vakuumkompatiblen Kleber wird eine Wolframnadel auf den gefundenen Partikel platziert. Da der Kleber unter Einwirkung des Elektronenstrahls aushärtet, wird der Elektronenstrahl stark für mehrere Minuten auf den Kleber fokussiert. Danach kann die Nadel mit dem Partikel aus der Probe herausgezogen werden. Nun können noch massenspektrometrische Untersuchungen gemacht werden, sodass anhand der Isotopenverhältnisse entschieden werden kann, ob dieser gefundene Partikel tatsächlich aus dem Kernreaktor stammt, oder aus natürlichem Uran besteht.

5 Ergebnisse

5.1 Vergleich der Partikel aus der Chernobyl Exclusion Zone

Die Partikel werden in verschiedene kleinere Gruppen aufgeteilt, um das Vergleichen zu vereinfachen. Dabei werden diese zunächst nach der äußeren Beschaffenheit und danach anhand der EDX-Spektren beschrieben.

5.1.1 Geschmolzene Partikel

In dieser Gruppe befinden sich die Partikel, die eine glatte, ggf. geschmolzene Oberfläche ohne Poren besitzen. Sie haben eine kreisrunde Form oder auch Bruchkanten.

Sarah Ein repräsentativer Partikel ist Sarah, der in der folgenden Abbildung 5.1 zu sehen ist. Die Besonderheit an diesem Partikel ist, dass er Zirkonium enthält. Sarah und Cate, Abbildung 8.1, sind die beiden einzigen Zirkonium haltigen Partikel, die hier gefunden wurden, Sarah in dieser Arbeit, Cate schon vorher.

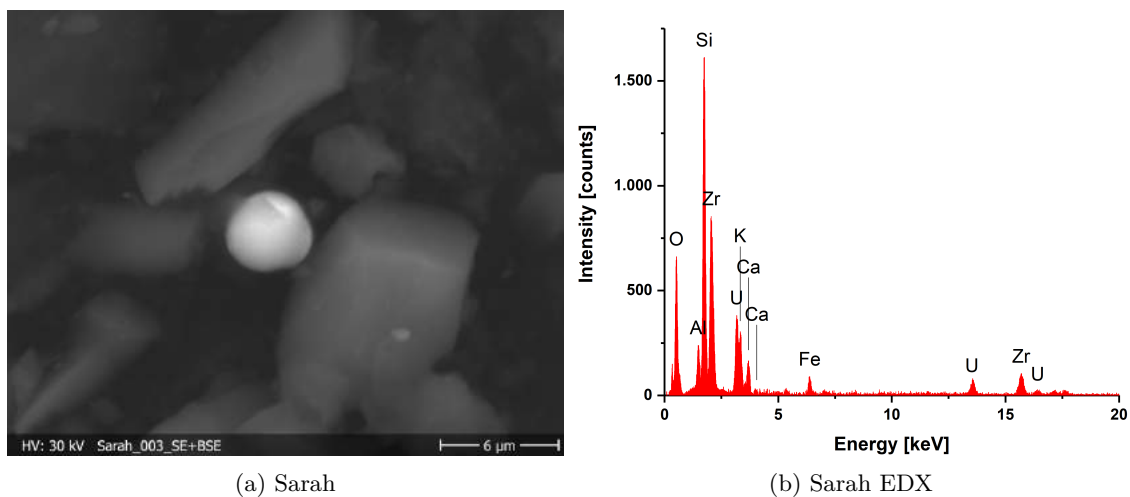


Abbildung 5.1: **Sarah**

Die Abbildung zeigt einen typischen Partikel, der in die Untergruppe „geschmolzener“ Partikel eingeordnet wurde. Er hat eine gleichmäßige Oberfläche ohne Löcher oder größere Bruchstellen.

Lizzy und Marie Zwei weitere Partikel mit Bruchkanten, die in diese Kategorie passen sind Lizzy und Marie, die in Abbildung 5.2 zu sehen sind. Es kann nicht entschieden werden, ob der Fundort der Partikel einen Einfluss auf das Aussehen hat, da Lizzy aus dem Cooling Pond stammt und Marie aus dem roten Wald. Diese Partikel sind wahrscheinlich bei der Kernschmelze entstanden. So werden diese, bevor sie bei der Explosion in die Atmosphäre gelangt sind, kompakt geschmolzen und anschließend während der Explosion in die wenigen Mikrometer großen Stücke gebrochen. Die Zusammensetzung der beiden Partikel ist recht ähnlich. Sie weisen beide große Anteile an Silizium und Kalium auf, die aber auch aus tieferen Schichten kommen könnten. Die Urananteile unterscheiden sich dahingehend, dass das EDX-Spektrum von Lizzy geringere absolute Intensitäten aufweist. Außerdem fehlt Marie der Calciumanteil, sodass die Zusammensetzung möglicherweise das Aussehen beeinflusst, dies aber weder bestätigt noch widerlegt werden kann.

5.1 Vergleich der Partikel aus der Chernobyl Exclusion Zone

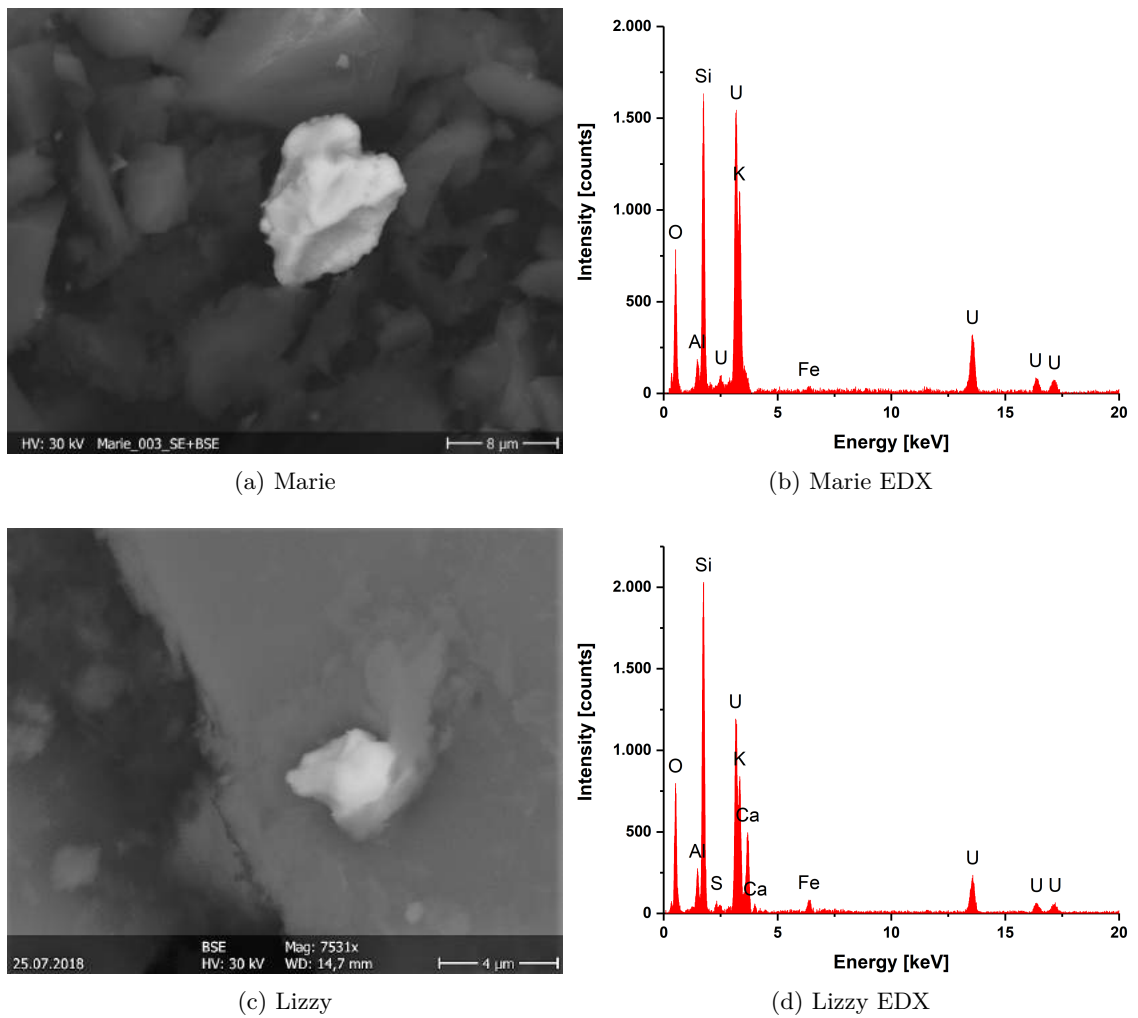


Abbildung 5.2: Marie und Lizzy

Auch diese Abbildung zeigt zwei typische Partikel, die in die Untergruppe „geschmolzener“ Partikel eingeordnet werden. Diese Partikel haben zwar eine glatte Oberfläche, allerdings weisen diese Bruchkanten auf.

Tabelle 5.1: **Geschmolzene Partikel**

Partikel	Größe in μm , Höhe unbekannt	Fundort
Ida	30 x 30	Cooling Pond
Katy	20 x 20	Cooling Pond
Mohammad	12 x 15	Cooling Pond
Horst	40 x 40	Cooling Pond
Siegunn	8 x 8	Cooling Pond
Lizzy	4 x 4	Cooling Pond
Padme	6 x 6	Roter Wald
Marie	10 x 10	Roter Wald
Daisy	6 x 4	Roter Wald
Sarah	4 x 4	Roter Wald

5.1.2 Löchrige Partikel

Außer den geschmolzenen Partikeln gibt es noch diejenigen, die eine löchrige Struktur aufweisen. Zu dieser Kategorie gehören die meisten der hier gefundenen Partikel. Gut zu erkennen ist diese Struktur bei Ziltoid und Tina, siehe Abbildung 5.3.

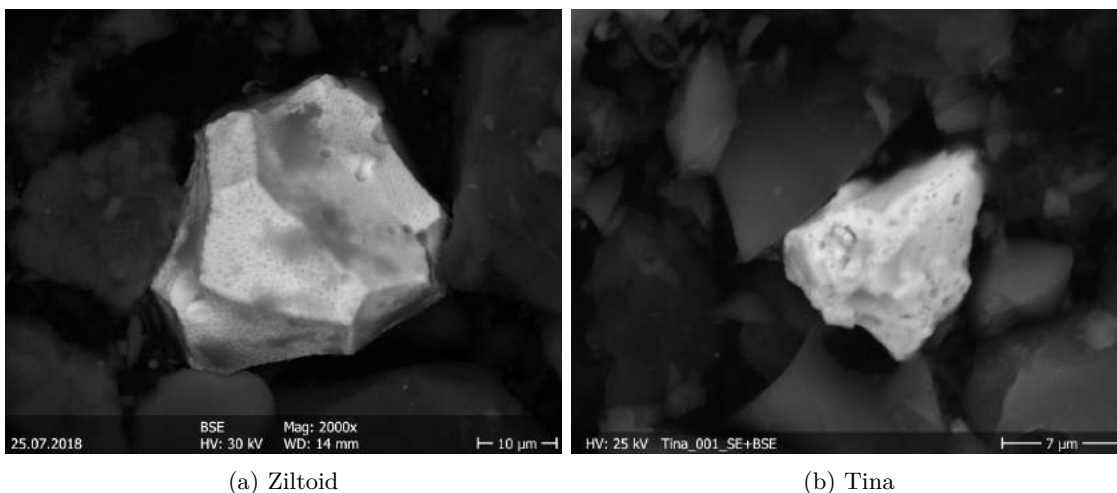


Abbildung 5.3: **Löchrige Partikel**

Diese Abbildung zeigt zwei Vertreter der Kategorie „löchrige Partikel“. In (a) ist Ziltoid zu sehen mit einer fein löchrigen Struktur und in (b) ist Tina mit größeren Löchern zu sehen.

Tabelle 5.2: **Löchrige Partikel**

Partikel	Größe in μm , Höhe unbekannt	Fundort
Cate	30 x 30	Cooling Pond
Ellie	40 x 20	Cooling Pond
Quincy	10 x 8	Cooling Pond
Paul	11 x 10	Cooling Pond
Paula	10 x 10	Cooling Pond
Balu	4 x 5	Cooling Pond
Moritz	4 x 5	Cooling Pond
Ziltoid	25 x 20	Cooling Pond
Nala	15 x 15	Roter Wald
Olaf	6 x 6	Roter Wald
Sirius	4 x 4	Roter Wald
Tina	12 x 12	Roter Wald
Martin	5 x 5	Roter Wald
Bob	9 x 12	Roter Wald

5.1.3 Nicht zugeordnete Partikel

Die Struktur mancher Partikel lässt sich keiner der oben genannten Kategorien zuordnen. Sie weist weder eine glatte Oberfläche, noch größere Bruchkanten auf. Auch sind hier kaum Löcher oder feinere Poren zu erkennen, sodass es eine weitere Gruppe der nicht zugeordneten Partikel gibt.

LittleGhost, Laura und Jakob LittleGhost und Laura weisen eine Struktur mit Rillen und vereinzelt Löchern auf (Abbildung 5.4). Sie werden im Cooling Pond gefunden, was darauf schließen lässt, dass die Wasserschicht diese Form beeinflusst haben könnte. Eine weitere Vermutung ist, dass es sich bei den beiden Partikeln um Fragmente größerer Stücke handelt. Ein weiterer Partikel, der eine auffällige Rillenstruktur hat, ist Jakob, dieser stammt auch aus dem Cooling Pond, sodass die erste Vermutung eine naheliegende ist.

5 Ergebnisse

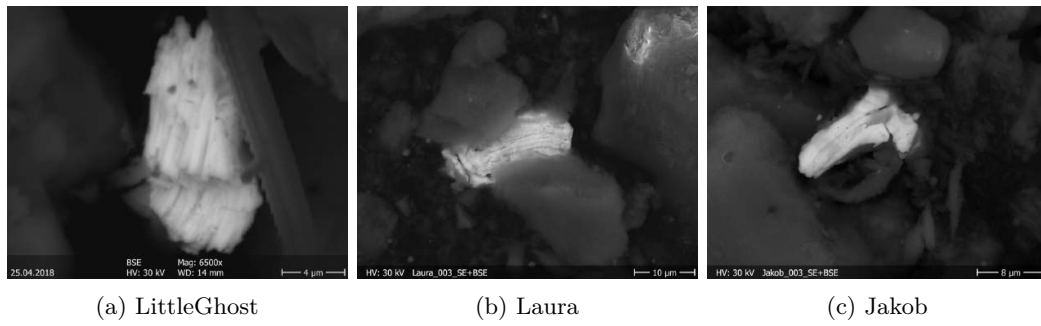


Abbildung 5.4: **Nicht zugeordnete Partikel**

Diese Abbildung zeigt zwei Vertreter der Kategorie „nicht zugeordnete Partikel“. In (a) ist LittleGhost zu sehen mit einer Struktur, die Rillen und Löcher aufweist, in (b) ist Laura mit einer ähnlichen Struktur zu sehen und in (c) ist Jakob abgebildet.

5.1 Vergleich der Partikel aus der Chernobyl Exclusion Zone

Willi und Fred Auch der Partikel Willi kann nicht ganz eingeordnet werden. Dieser sieht porös aus und kann kaum als ein kompakter Partikel gewertet werden. Wird Willi mit Fred verglichen, ist es Auffällig, dass Fred aussieht, als wäre er aus Fragmenten und dem Pulver aus dem Willi besteht, zusammengesetzt. Werden die beiden EDX-Spektren verglichen (Abb. 5.5), so fällt auf, dass diese wenig Ähnlichkeit haben. Bei beiden sind die Uranpeaks deutlich zu erkennen, die aber unterschiedliche Intensitäten besitzen. Willi hat im Allgemeinen geringere Intensitäten der Peaks, da dieser weniger kompakt als Fred ist. Zudem wird der Untergrund bei Willi deutlich höher ausfallen, weil dieser durch die poröse Struktur stärker mitgemessen wird. Außerdem ist die Zusammensetzung sehr unterschiedlich, wodurch davon nicht auf das Aussehen geschlossen werden kann.

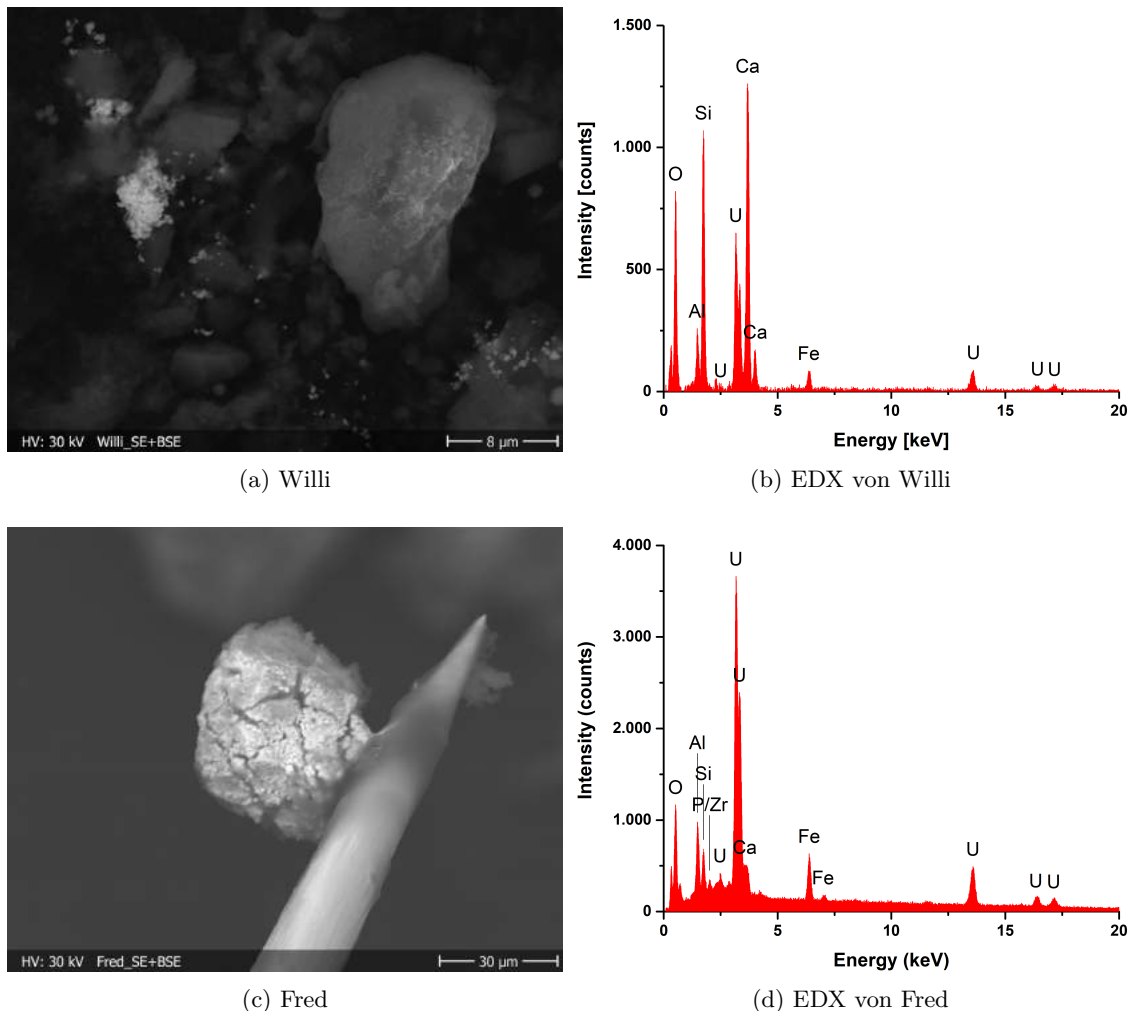


Abbildung 5.5: **Willi und Fred**

In dieser Abbildung sind zwei weitere besondere Partikel zu sehen, da diese aussehen, als hätten sie keine feste Struktur. Willi sieht aus als wäre er zerfallen und Fred sieht wie ein Agglomerat aus einzelnen Partikeln aus.

Tabelle 5.3: **Nicht zugeordnete Partikel**

Partikel	Größe in μm , Höhe unbekannt	Fundort
Dave	40 x 30	Cooling Pond
Fred	40 x 30	Cooling Pond
James	50 x 60	Cooling Pond
LittleGhost	12 x 6	Cooling Pond
Georgia	30 x 25	Cooling Pond
Laura	15 x 10	Cooling Pond
Willi	4 x 6	Cooling Pond
Hauke	8 x 8	Cooling Pond
Jakob	10 x 12	Cooling Pond
Ramona	4 x 4	Roter Wald

5.1.4 Vergleich der Größen der Partikel

Ein weiterer Punkt, der betrachtet werden soll, ist die Größenverteilung der Partikel. Dabei wird die ungefähre Größe der Partikel aus der Skala der REM-Bilder abgeschätzt. Hierbei ist zu beachten, dass keine Größenkalibrierung für das REM durchgeführt wurde. Da allerdings die Partikel nur untereinander verglichen werden sollen, tritt bei allen der gleiche Fehler von etwa 10 % auf, sodass die Vergleichbarkeit bestehen bleibt. Außerdem wird die Größe der Oberfläche im REM-Bild als Rechteck angenommen, bei denen der Flächeninhalt berechnet wird, um eine Vergleichbarkeit anhand einer einzelnen Zahl zu ermöglichen und so zu vereinfachen. Diese Methode ist mit großen Fehlern belastet, da auch die dritte Dimension verloren geht, aber nur so ist eine Abschätzung möglich. Der gesamte Fehler mit dem der Kalibrierung und den Annahmen zur Flächenberechnung liegt bei etwa 30 %. Zu erkennen ist, dass viele Partikel mit einem Flächeninhalt bis zu $500 \mu\text{m}^2$ gefunden werden.

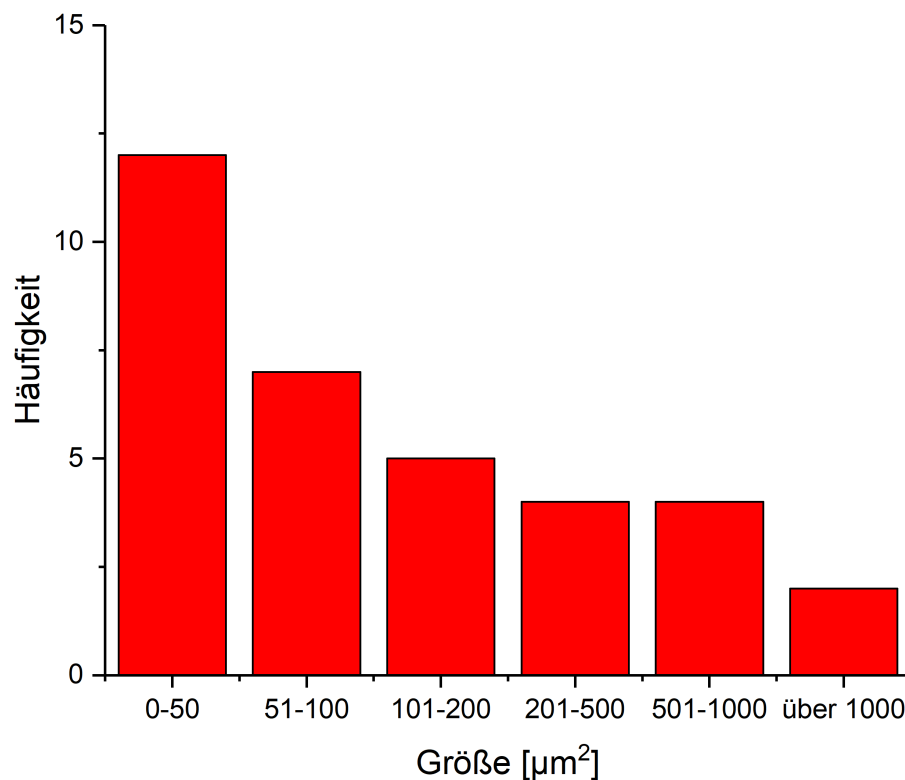


Abbildung 5.6: **Abmessung der Partikel als Diagramm**

Die Graphik zeigt die ungefähre Größenverteilung der gefundenen Partikel.

5.2 Proben aus Finnland und Fukushima

Bei den Proben aus Finnland und Fukushima werden keine Partikel gefunden. Hier sind aber auch auf den ATD keine Spots zu sehen, sondern ausschließlich zufällig verteilte Defekte in der Detektorschicht. Dadurch können auch keine besonders interessanten Stellen ausgestanzt werden. Die Detektoren werden auch auf sehr kleine Spots mit dem Lichtmikroskop untersucht, aber auch solche werden nicht gefunden.

Möglicherweise sind die Partikel, die in Finnland angekommen sind, zu klein gewesen, als dass sie hätten detektiert werden können. Diese mussten eine weite Flugstrecke zurücklegen und können daher nicht besonders groß gewesen sein. Es wäre interessant, weitere Bodenproben, die dieser Arbeit nicht vorliegen, zu untersuchen, da die untersuchten Proben aus Flechten bestanden, an denen Partikel möglicherweise nicht gut haften oder aufgenommen werden. Dabei muss die Expositionzeit der ATD sehr lang sein, um auch Partikel, die nur wenige Nanometer klein sind, zu detektieren.

6 Diskussion

Alle gefundenen Partikel enthalten Uran, das meistens der Hauptbestandteil ist, wie es auch in der Veröffentlichung von Salbu et al. von 1994 gewesen ist [18]. Salbu et al. [20] unterteilen ihre gefundenen Partikel in drei Gruppen anhand der Zusammensetzung der Partikel, anders als es in dieser Arbeit gemacht wird. Die Partikel werden hier anhand der äußeren Form unterteilt, da die Partikel auf Basis der EDX-Messungen nicht eindeutig unterscheidbar sind. Deshalb ist der Vergleich und die Unterscheidung aufgrund der chemischen Zusammensetzung nicht möglich. Allerdings gibt es Ähnlichkeiten bei den REM-Bildern, da diese mit den hier aufgeteilten Gruppen gut überein stimmten. In der Veröffentlichung von Salbu et al. [20] sind charakteristische Bilder der jeweiligen Gruppe abgebildet. Die Partikel, die Zirkonium enthalten, ähneln den geschmolzenen Partikel in dieser Arbeit, die UO_2 -Partikel den löchrigen Partikeln und die UO_{2+z} -Partikel von Salbu ähneln LittleGhost, Jakob und Laura aus dem Cooling Pond [20]. Bei dieser Datenbasis ist es nicht möglich, von der optischen Ähnlichkeit auf die Zusammensetzung zu schließen. Allerdings wird in der Veröffentlichung von Kashparov et al. [23] von der Zusammensetzung der Partikel auf deren Aussehen geschlossen. So haben die Zirkonium haltigen Partikel eine geschmolzene Oberfläche mit wenigen Löchern, wohingegen die Partikel, die kein Zirkonium enthalten, wesentlich poröser und löchriger erscheinen. Daher kann ein Zusammenhang in dieser Arbeit aufgrund der geringen Datenlage nur vermutet werden, da die Partikel in optische Gruppen unterteilt werden, aber der Zirkoniumgehalt nicht nachgewiesen werden kann.

Ein Grund dafür, dass wenige Zirkonium haltige Partikel gefunden werden, ist, dass die Nachweisgrenze für Zirkonium beim EDX bei einer Konzentration von etwa 0,1 % liegt [2]. Unterhalb dieser Konzentration kann Zirkonium in dieser Arbeit nicht detektiert werden, obwohl schon geringe Mengen die Stabilität beeinflussen. Das bedeutet nicht, dass kaum Partikel mit Zirkonium gefunden werden, sondern, dass es mit den hier angewandten Methoden nicht nachgewiesen werden kann und einige Zirkonium haltige Partikel nicht gefunden werden können. Zudem kann der Sauerstoffgehalt nicht bestimmt werden, da die Bilder im Niedrigvakuum aufgenommen werden, bei dem die Raumluft als Füllgas verwendet wird. So zeigt das EDX-Spektrum einen zu hohen Sauerstoffgehalt an.

6 Diskussion

Außerdem ist die löchrige Struktur einiger Partikel charakteristisch für Kernbrennstoff, da dieser ebenfalls eine löchrige Struktur besitzt [8]. Der Kernbrennstoff besitzt im Originalzustand etwa 7% bis 8% Poren mit Durchmessern im sub-Mikrometerbereich [17] [1]. Er besteht aus pulvrigen Uranoxiden, die gesintert werden, um als Pellets in die Brennstäbe gegeben zu werden. Die größeren Poren können durch Witterung oder Lösungsprozesse im Wasser entstanden sein. So sind die Partikel, die diese Form haben, nicht erst geschmolzen bevor sie dann durch die Explosion in der Umwelt verteilt wurden. In einer Veröffentlichung von Forsyth [8] ist auch zu erkennen, dass die Partikel, die im Wasser gelegen haben, eine etwas andere löchrige Struktur aufzeigen. Diese werden mit der Zeit poröser und die Löcher größer. Dies ist gut an den Partikeln Paul und Paula aus dem Cooling Pond zu erkennen. Diese weisen eine sehr poröse und löchrige Struktur auf, die vermutlich auf die Lagerung im Wasser zurückzuführen ist.

Die erwartete Größe der Partikel liegt bei 0.45 μm bis 2 mm und wird als heterogen verteilt angenommen, wobei sich die Größe von den Fundorten unterscheidet [19] [3]. Die hier gefunden Partikel passen mit Ausnahmen in die Größenverteilung, selbst bei großem Fehler. Alle Partikel liegen innerhalb der erwarteten Grenzen und unterscheiden sich je nach Fundort in den Größen stark. Die Partikel aus dem Cooling Pond sind im Schnitt größer als die Partikel aus dem Rotem Wald. So wird vermutet, dass die Partikel aus dem Cooling Pond durch die Wasserschicht vor äußeren Einflüssen wie Frost, Hitze und anderen Witterungseinflüssen geschützt sind und so weniger schnell korrodieren. UV-Strahlung beeinflusst den Alterungsprozess der Partikel, sodass vermutet wird, dass diese ebenfalls einen Einfluss auf die Größe und die hier nicht untersuchte Zusammensetzung der Partikel haben wird [14]. Allerdings verändert sich die Struktur von Uran, wenn es lange im Wasser gelagert wird. Es entstehen im Vergleich zu den einfach kristallinen UO_2 leichter lösliche polykristalline Uranoxide [7]. So ist es möglich, dass sich das Uran aus den im Wasser gelagerten Partikel gelöst hat. Der Größenunterschied der Partikel aus dem Cooling Pond lässt vermuten, dass diese Partikel entweder unter einer Sedimentschicht geschützt liegen oder, dass unterschiedliche Erosionsmechanismen und Witterungsprozesse für das Herauslösen von Uran verantwortlich sind und so das Lösen verlangsamen.

7 Fazit

Zusammenfassend kann gesagt werden, dass mit der Methode 26 Partikel mit unterschiedlicher Morphologie gefunden wurden, die zur weiteren Analyse mit Sekundärionen-Massenspektrometrie (SIMS), Sekundär-Neutralteilchen-Massenspektrometrie (SNMS) oder anderen Analysemethoden zur Verfügung stehen. Somit ist die Funktionsweise dieser Methode bestätigt. Auch die Analyse mit dem EDX funktioniert gut, sodass eine grobe Zusammensetzung der Partikel bestimmt werden kann. Die uranhaltigen Partikel werden zahlreich an jedem Probennahmeort in der CEZ entdeckt und können in optische Gruppen unterteilt werden. Außerdem liegen die Partikel auf der Klebefolie relativ frei, sind aber so weit fixiert, dass sie nicht herunterfallen können. So können die Partikel für eine Extraktion und weitere Analysen verwendet werden.

Allerdings ist bei nicht jedem Alpha-Spot auch ein Partikel zu finden. Des Weiteren können durch diese Methode keine Daten über die genaue Zusammensetzung erhoben werden, da das EDX nicht empfindlich genug ist und keine Isotope unterscheiden kann. So kann auch erklärt werden, warum nur sehr wenige Partikel mit Zirkonium gefunden wurden, da die Konzentration möglicherweise unterhalb der Nachweisgrenze des EDX liegt. Auch sind Elemente wie Plutonium, Caesium und Strontium nicht nachweisbar. So kann nicht mit absoluter Gewissheit gesagt werden, dass es sich bei den gefunden Partikeln um Kernbrennstoff handelt. Da allerdings alle Partikel in der CEZ gefunden wurden und die Hauptbestandteile Uran und Sauerstoff detektiert wurden, wird es sich bei den gefunden Partikeln mit großer Wahrscheinlichkeit um Kernbrennstoffpartikel handeln. Allerdings ist so eine Vergleichbarkeit mit den Ergebnissen von Kashparovs Arbeit nicht mehr gegeben[23].

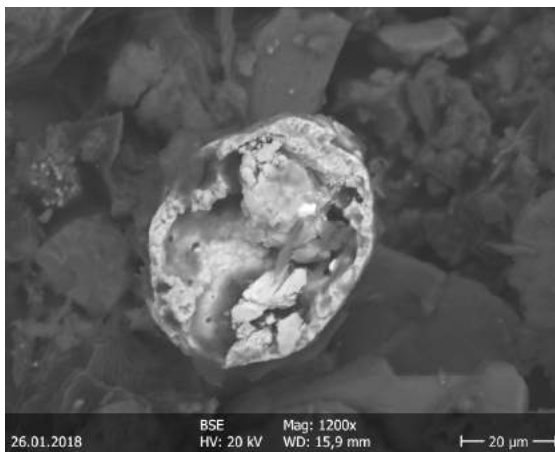
In Zukunft könnten noch ein paar Punkte verbessert werden. Dazu gehört, dass die Natronlauge häufiger gewechselt werden sollte, da diese mit der Zeit verdünnt wird und so ihre Ätzkraft verliert. Außerdem ist die Ausstanzmethode nicht optimal, da Probleme bei dem Übertragen durchs Ausstanzen der Spots von der größeren Klebeschicht auf die Metallblöcke aufgetreten sind. Das Probenmaterial lässt sich nicht immer vollständig von der Biopsistanze lösen weswegen hierbei möglicherweise Partikel verloren gehen könnten. Ein weiteres Problem ist, dass die Suche im REM subjektiv abläuft und Partikel übersehen

7 Fazit

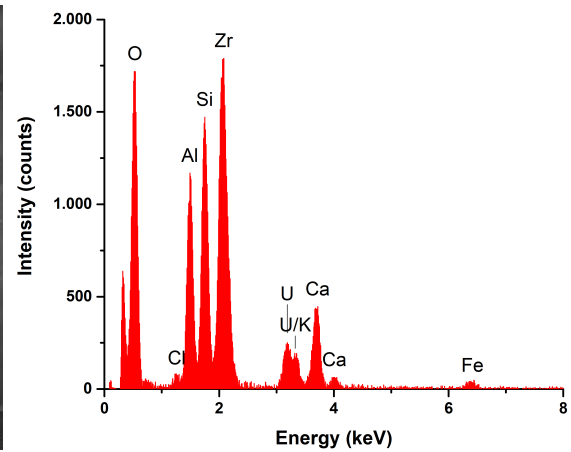
werden können. Eine Möglichkeit, dies zu verbessern ist, nach dem Ausstanzen erneut eine ATA durchzuführen, um sicher zu gehen, dass sich auf der Probe die Partikel noch befinden und nicht verloren gegangen sind. Außerdem kann durch eine weitere ATA abgeschätzt werden, wo sich der Partikel auf der Klebefolie befinden könnte und diesen Bereich genauer absuchen[11].

8 Anhang

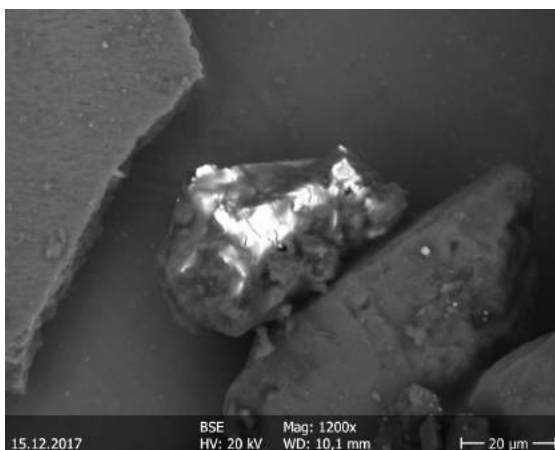
8.1 Bilder der Partikel



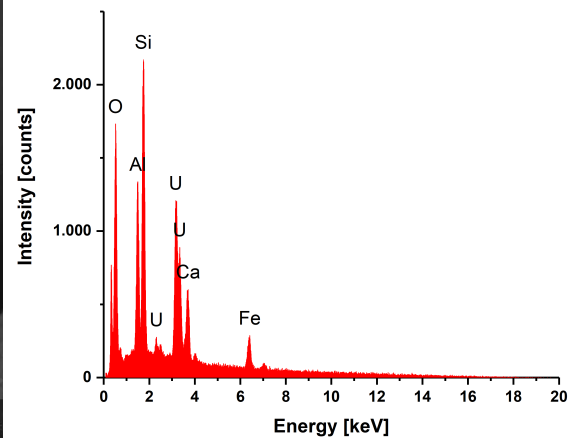
(a) Cate



(b) Cate EDX



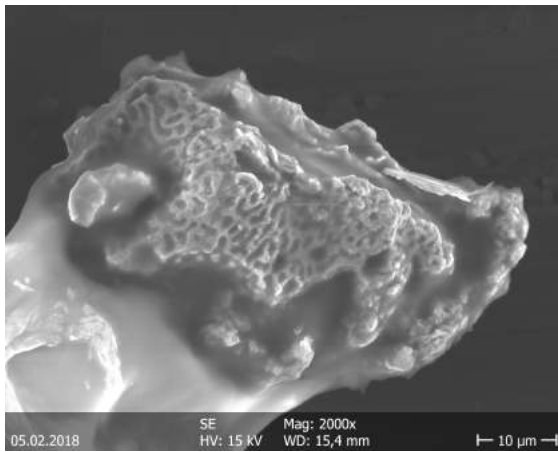
(c) Dave



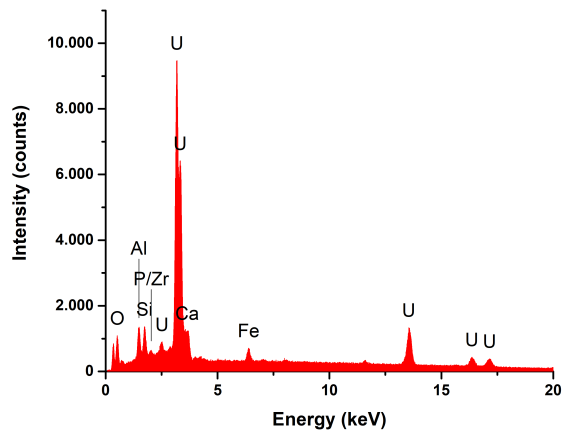
(d) Dave EDX

Abbildung 8.1: **Partikel aus dem Cooling Pond**

Dies soll eine Übersicht über alle an einem Ort, hier der Cooling Pond, gefundenen Partikel geben. Hierbei sind allerdings beide Partikel schon vor dieser Arbeit gefunden worden.



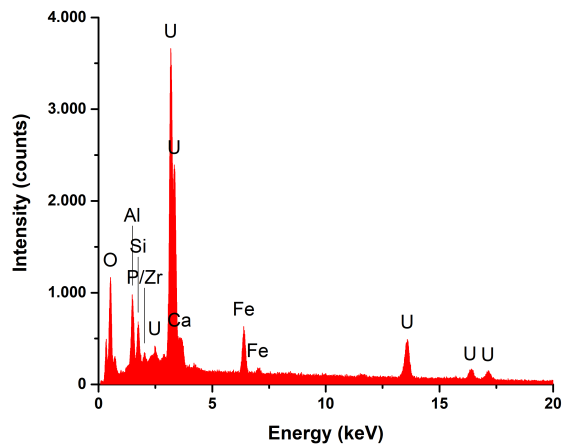
(a) Ellie



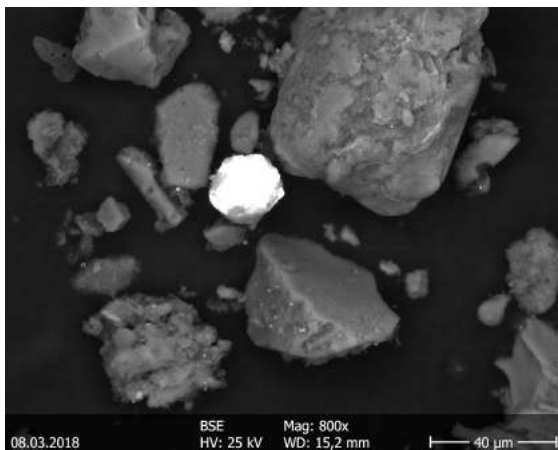
(b) Ellie EDX



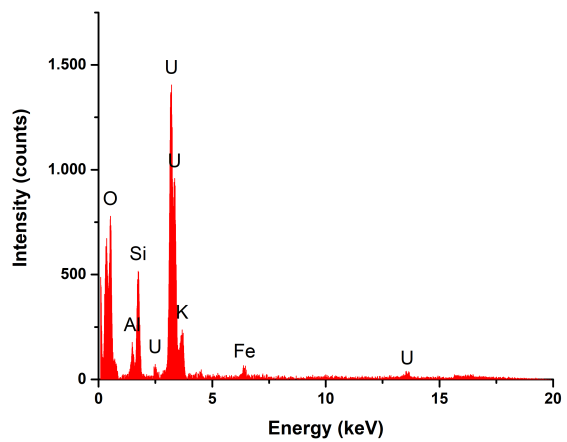
(c) Fred



(d) Fred EDX



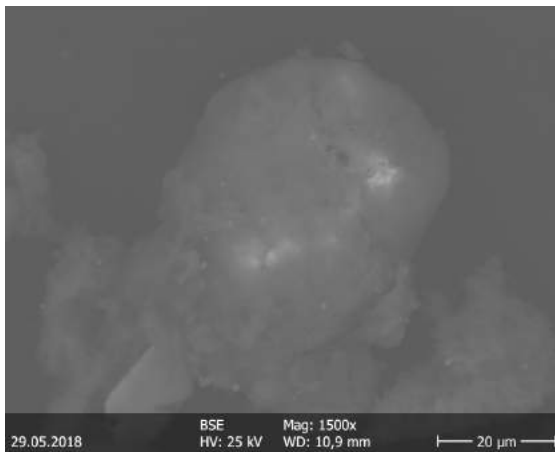
(e) Ida



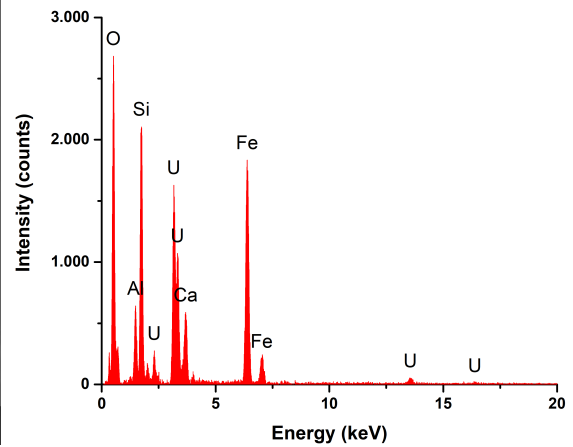
(f) Ida EDX

Abbildung 8.2: **Partikel aus dem Cooling Pond**

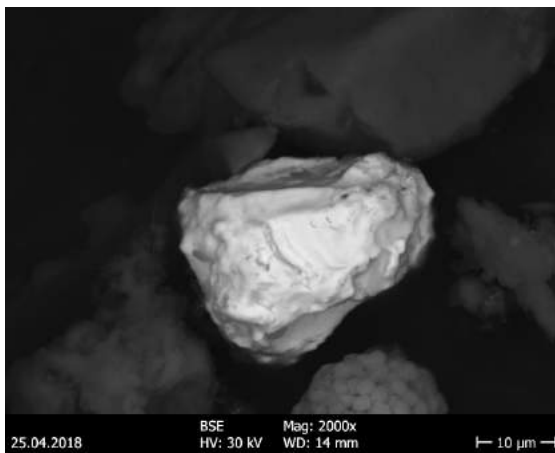
Dies soll eine Übersicht über alle an einem Ort, hier der Cooling Pond, gefundenen Partikel geben. Hierbei sind allerdings alle Partikel schon vor Beginn dieser Arbeit gefunden worden.



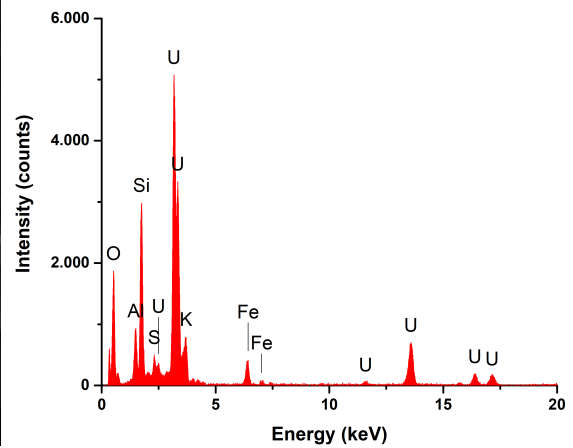
(a) James



(b) James EDX



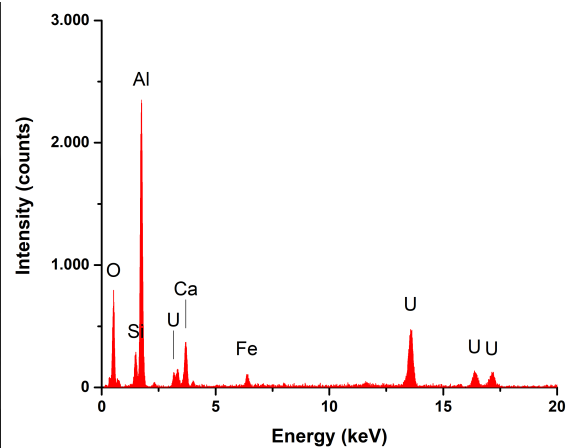
(c) Katy



(d) Katy EDX



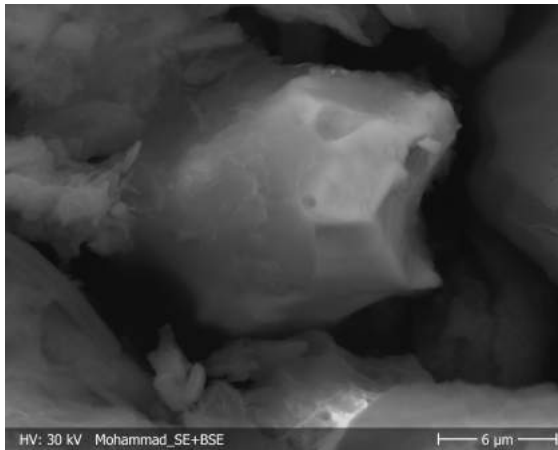
(e) Little Ghost



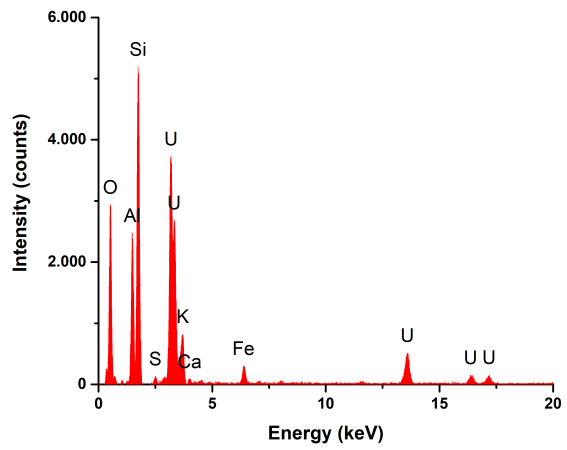
(f) Little Ghost EDX

Abbildung 8.3: **Partikel aus dem Cooling Pond**

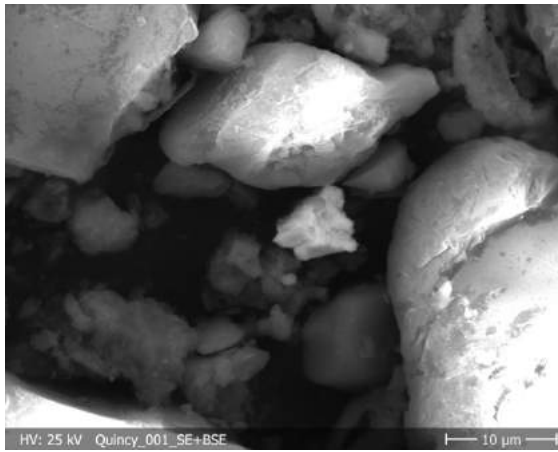
Dies soll eine Übersicht über alle an einem Ort, hier der Cooling Pond, gefundenen Partikel geben. Hierbei sind allerdings James und Katy schon gefunden worden. LittleGhost wurde in dieser Arbeit gefunden.



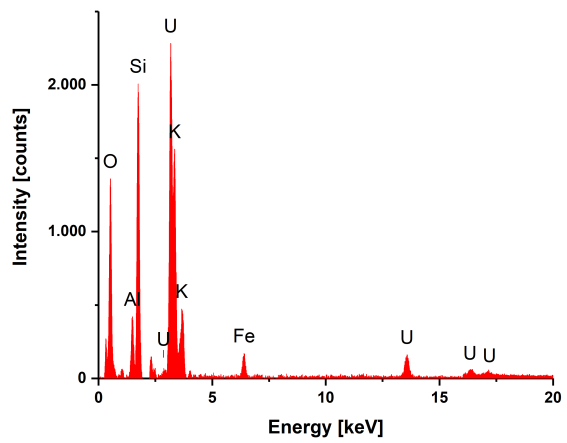
(a) Mohammad



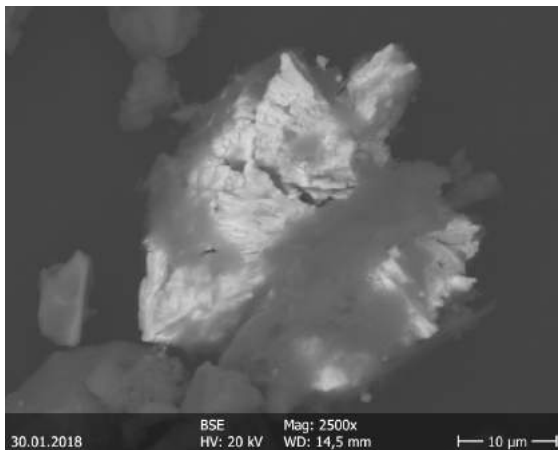
(b) Mohammad EDX



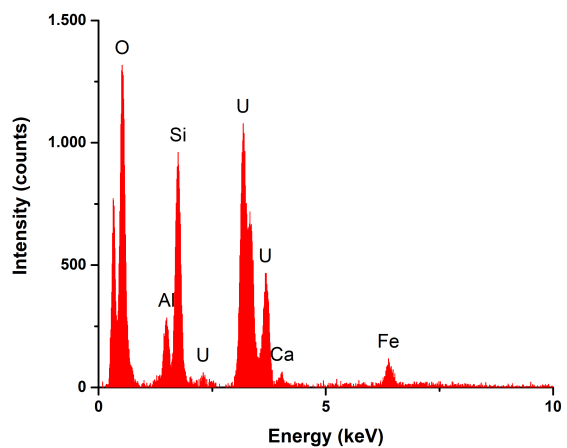
(c) Quincy



(d) Quincy EDX



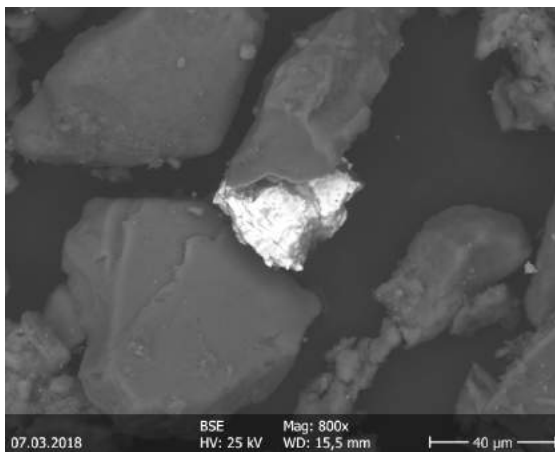
(e) Georgia



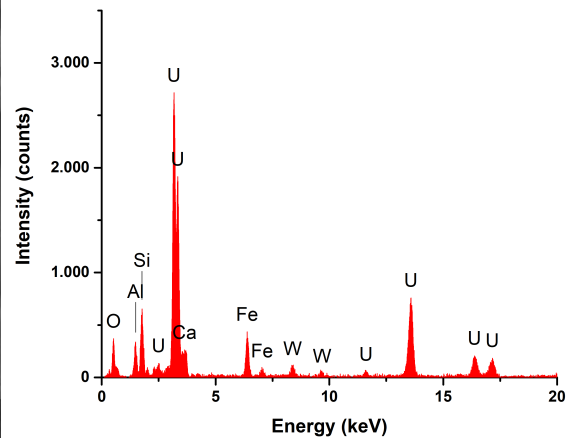
(f) Georgia EDX

Abbildung 8.4: **Partikel aus dem Cooling Pond**

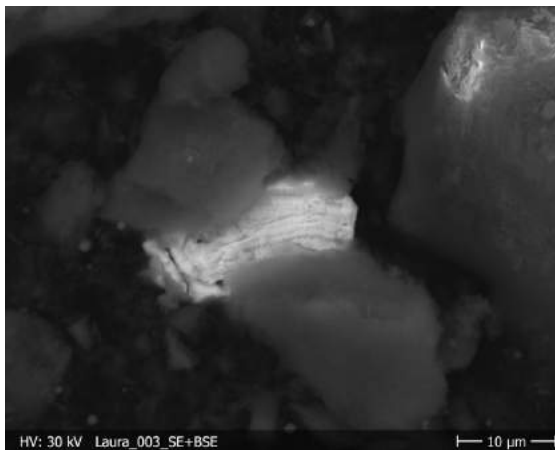
Dies soll eine Übersicht über alle an einem Ort, hier der Cooling Pond, gefundenen Partikel geben. Alle Partikel, bis auf Georgia, wurden in dieser Arbeit gefunden.



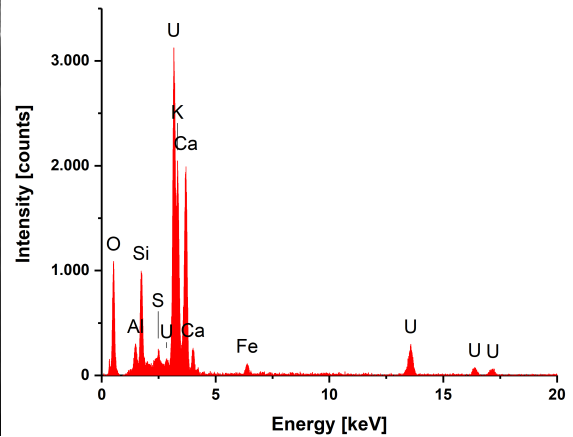
(a) Horst



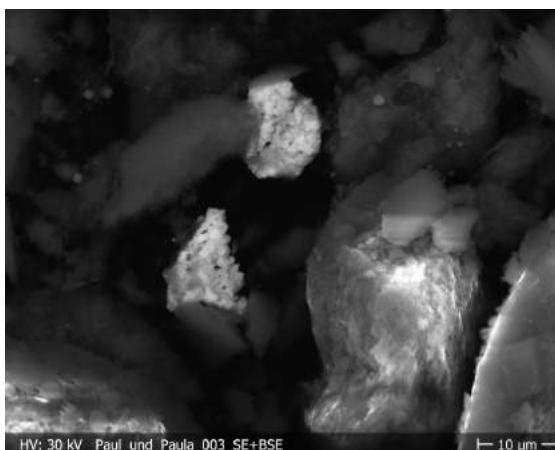
(b) Horst EDX



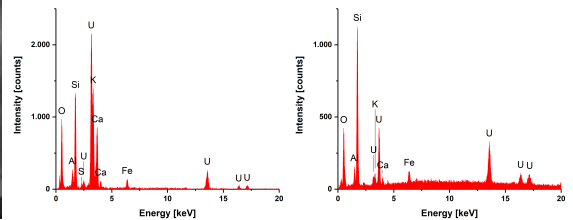
(c) Laura



(d) Laura EDX



(e) Paul und Paula



(f) Paul EDX

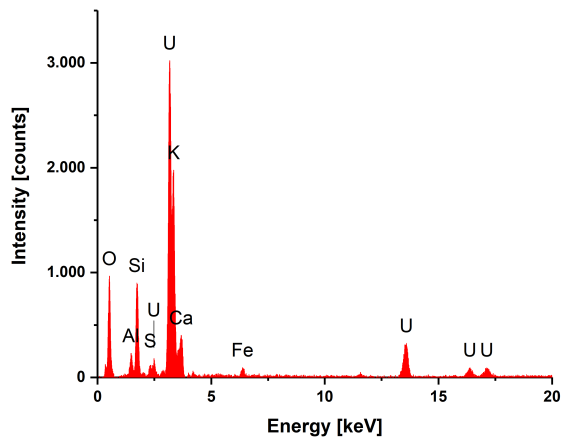
(g) Paula EDX

Abbildung 8.5: **Partikel aus dem Cooling Pond**

Dies soll eine Übersicht über alle an einem Ort, hier der Cooling Pond, gefundenen Partikel geben. Alle Partikel, bis auf Horst, wurden in dieser Arbeit gefunden.



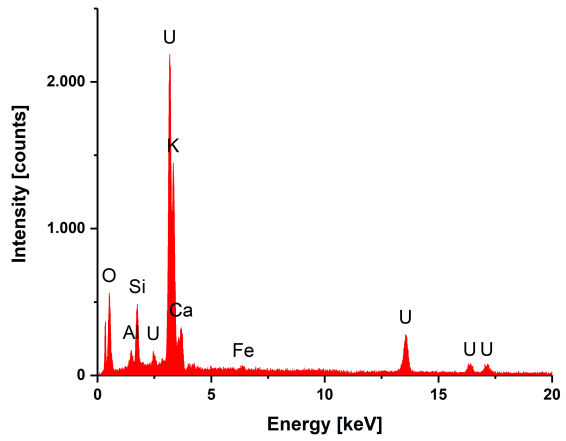
(a) Ciaran



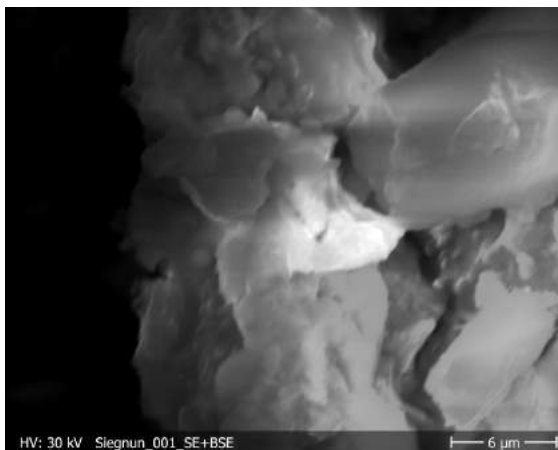
(b) Ciaran EDX



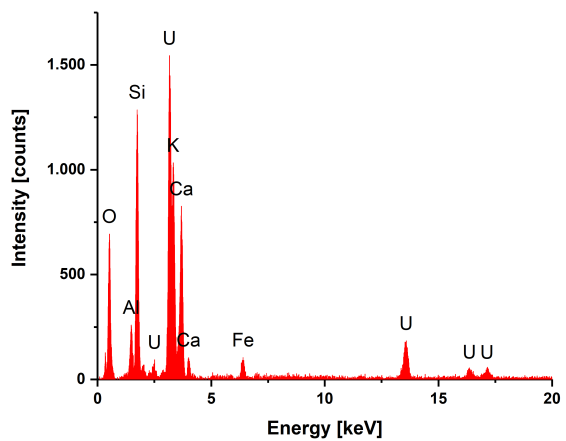
(c) Balu



(d) Balu EDX



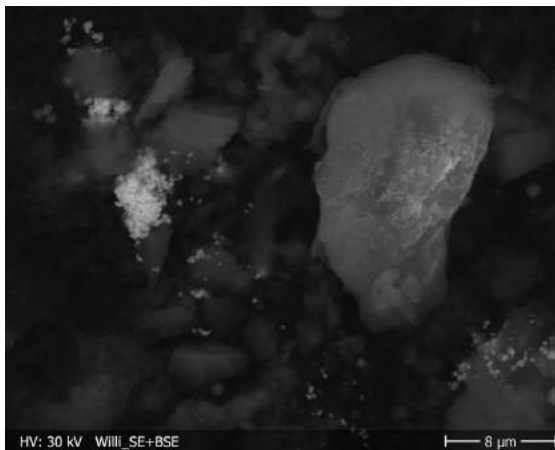
(e) Siegnun



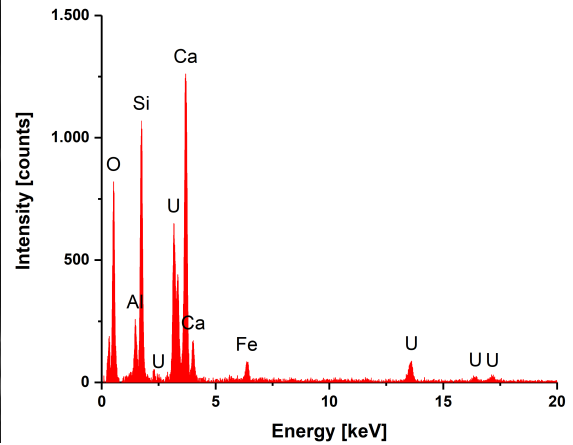
(f) Siegnun EDX

Abbildung 8.6: **Partikel aus dem Cooling Pond**

Dies soll eine Übersicht über alle an einem Ort, hier der Cooling Pond, gefundenen Partikel geben. Alle Partikel wurden in dieser Arbeit gefunden.



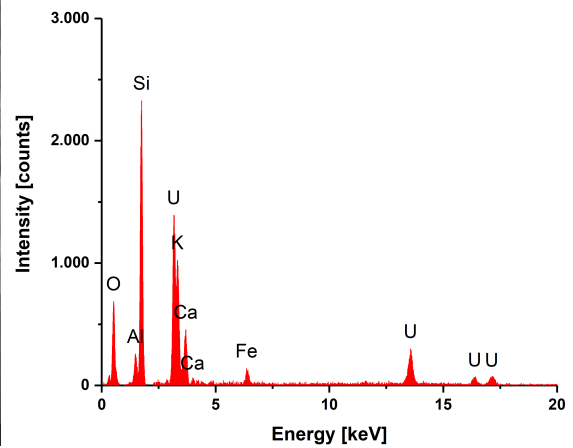
(a) Willi



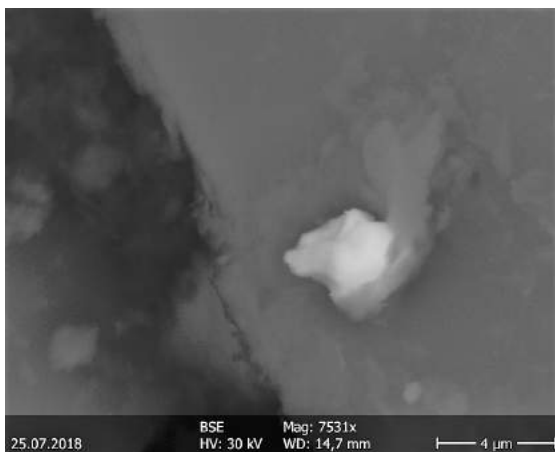
(b) Willi EDX



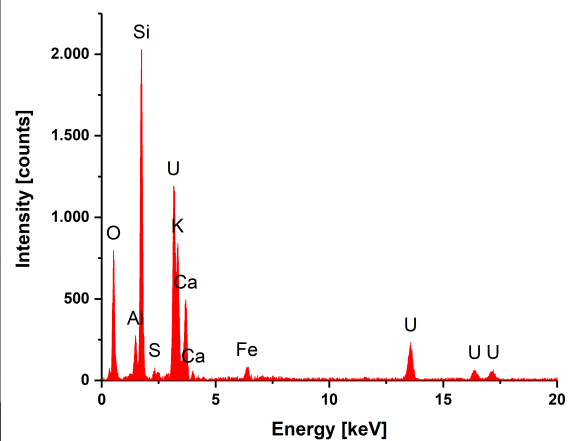
(c) Moritz



(d) Moritz EDX



(e) Lizzy



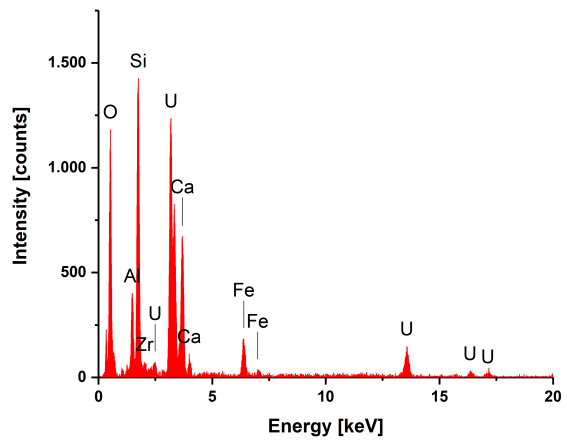
(f) Lizzy EDX

Abbildung 8.7: **Partikel aus dem Cooling Pond**

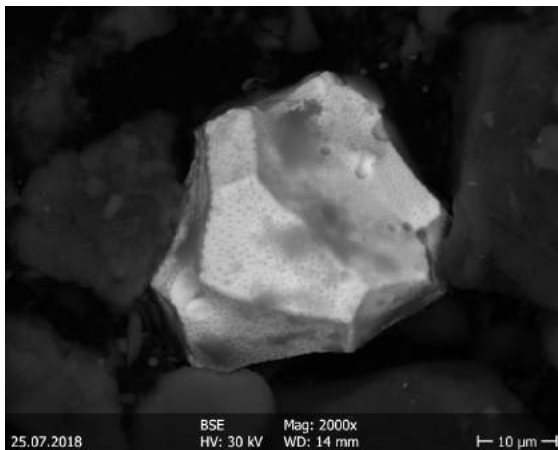
Dies soll eine Übersicht über alle an einem Ort, hier der Cooling Pond, gefundenen Partikel geben. Alle Partikel wurden in dieser Arbeit gefunden.



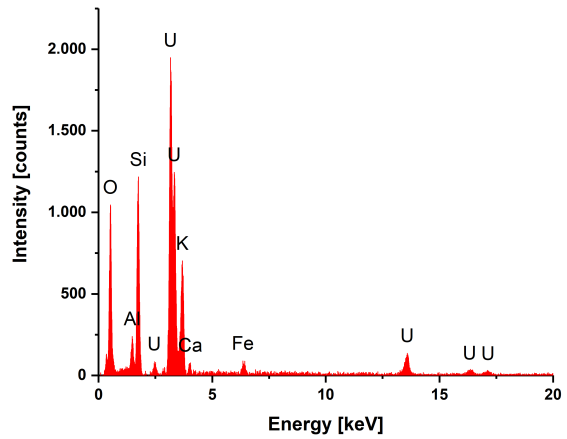
(a) Hauke



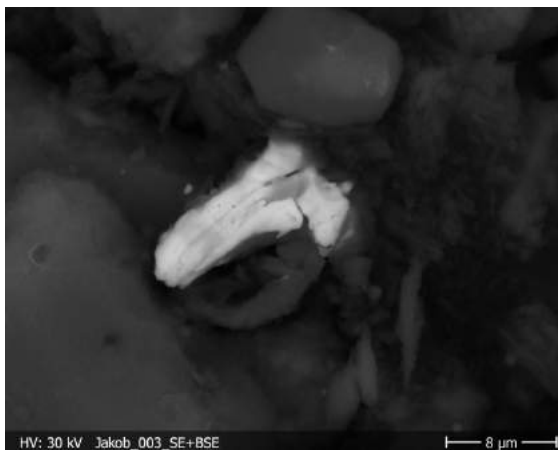
(b) Hauke EDX



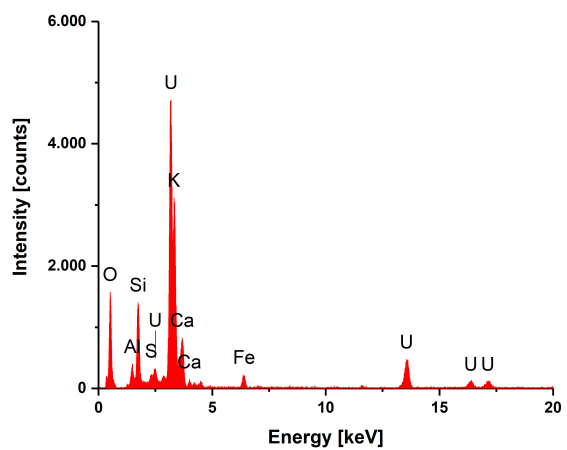
(c) Ziltoid



(d) Ziltoid EDX

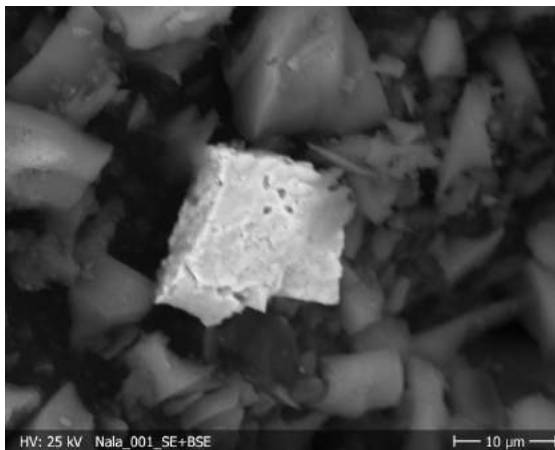


(e) Jakob

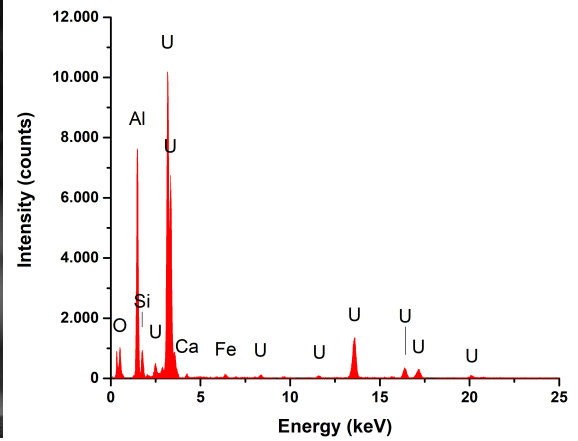


(f) Jakob EDX

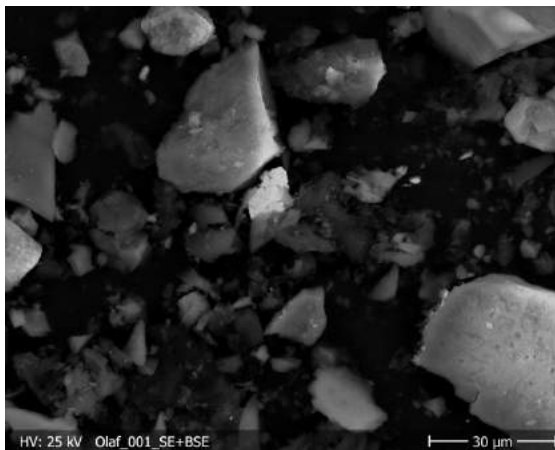
Abbildung 8.8: **Partikel aus dem Cooling Pond** Dies soll eine Übersicht über alle an einem Ort, hier der Cooling Pond, gefundenen Partikel geben. Alle Partikel wurden in dieser Arbeit gefunden.



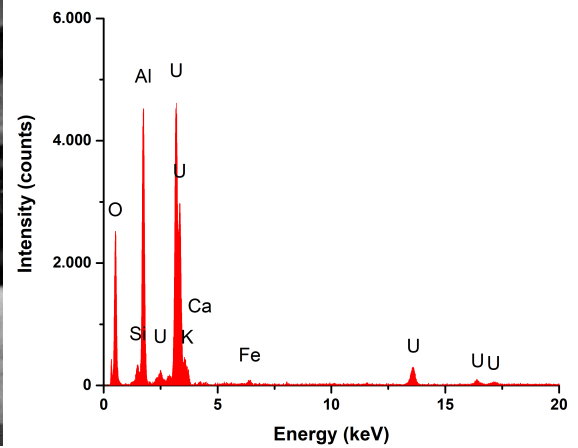
(a) Nala



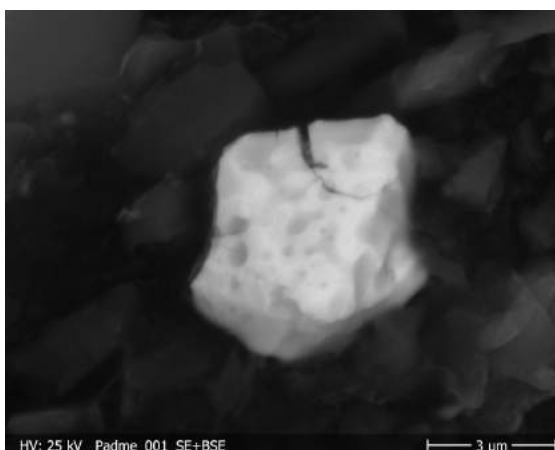
(b) Nala EDX



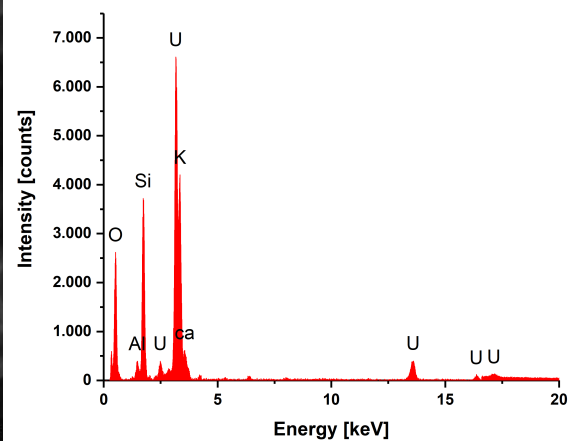
(c) Olaf



(d) Olaf EDX



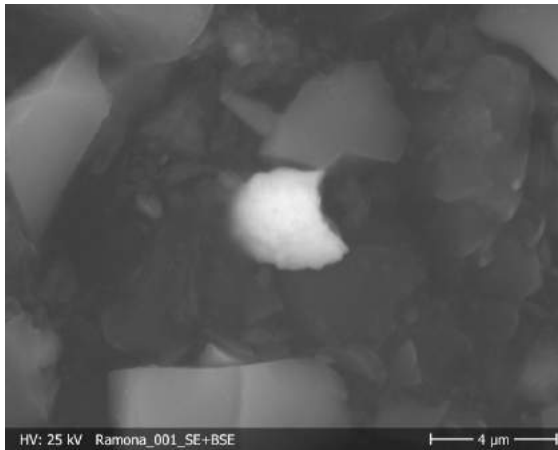
(e) Padme



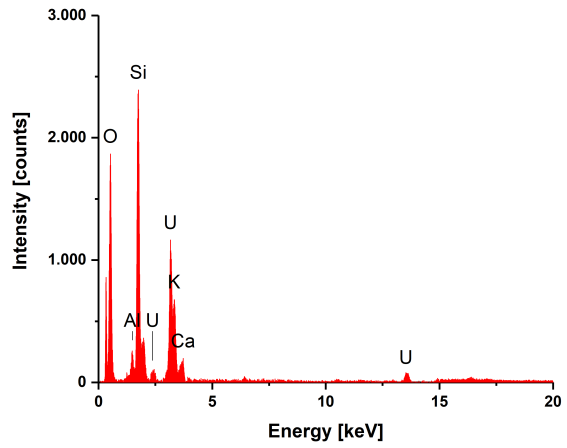
(f) Padme EDX

Abbildung 8.9: **Partikel aus dem Roten Wald**

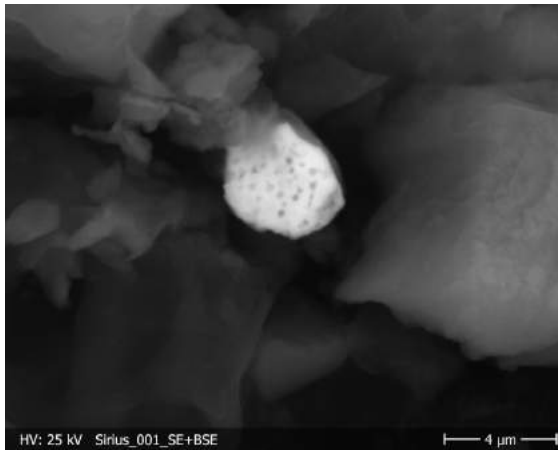
Dies soll eine Übersicht über alle an einem Ort, hier der rote Wald, gefundenen Partikel geben. Alle Partikel wurden in dieser Arbeit gefunden.



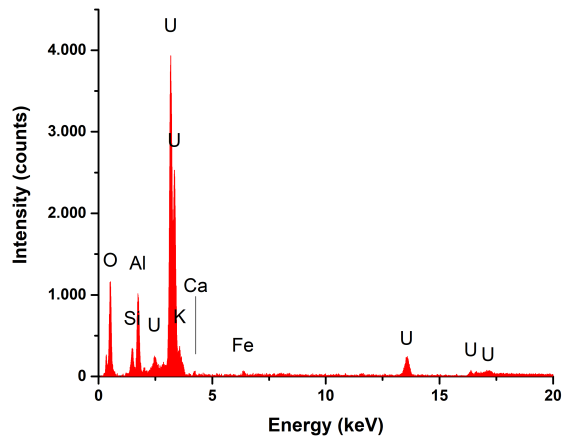
(a) Ramona



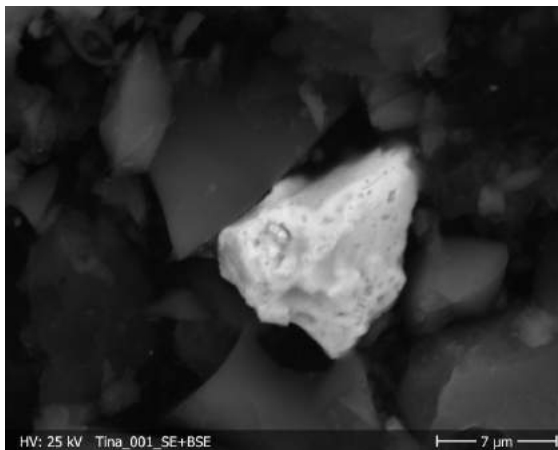
(b) Ramona EDX



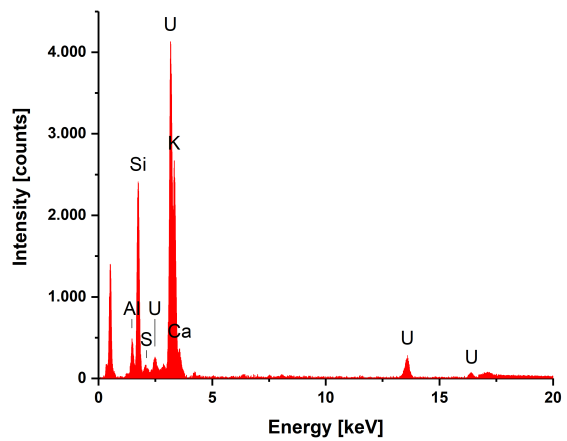
(c) Sirius



(d) Sirius EDX



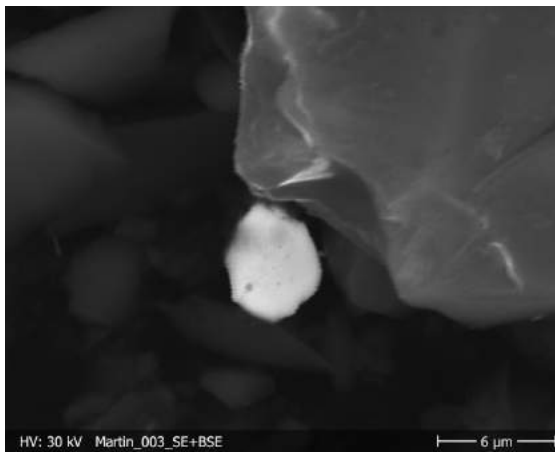
(e) Tina



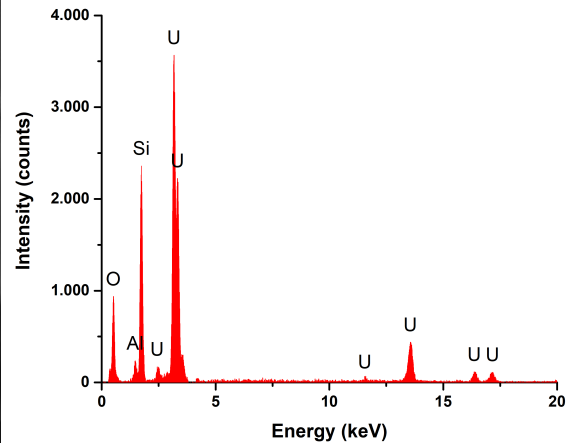
(f) Tina EDX

Abbildung 8.10: **Partikel aus dem Roten Wald**

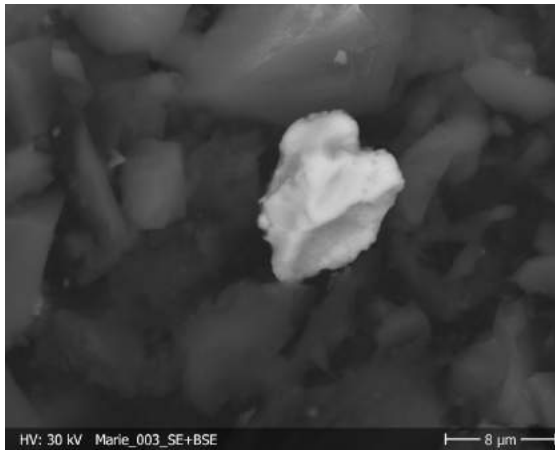
Dies soll eine Übersicht über alle an einem Ort, hier der rote Wald, gefundenen Partikel geben. Alle Partikel wurden in dieser Arbeit gefunden.



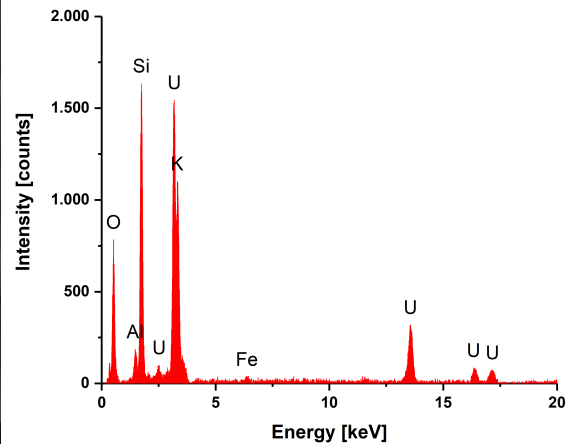
(a) Martin



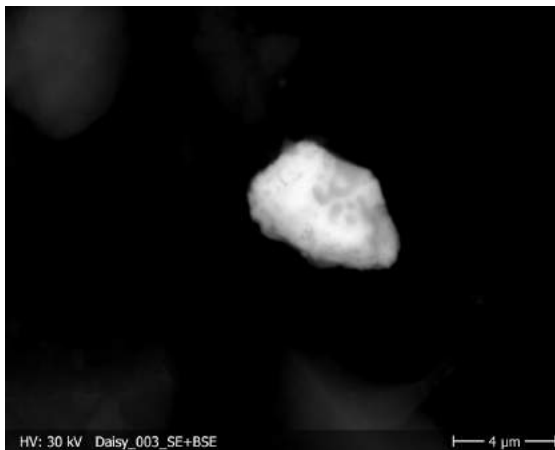
(b) Martin EDX



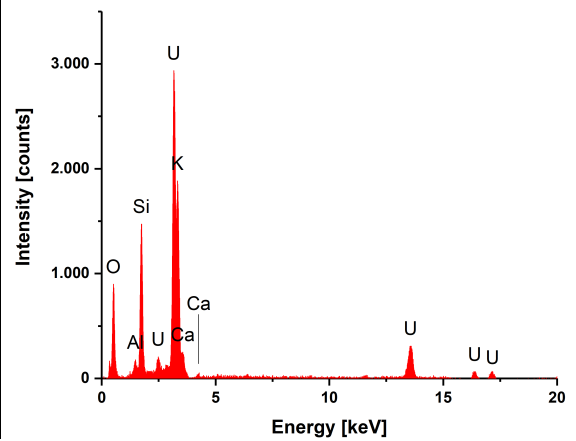
(c) Marie



(d) Marie EDX



(e) Daisy



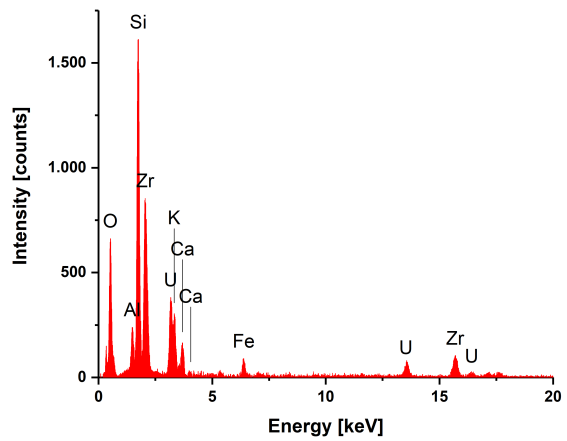
(f) Daisy EDX

Abbildung 8.11: **Partikel aus dem Roten Wald**

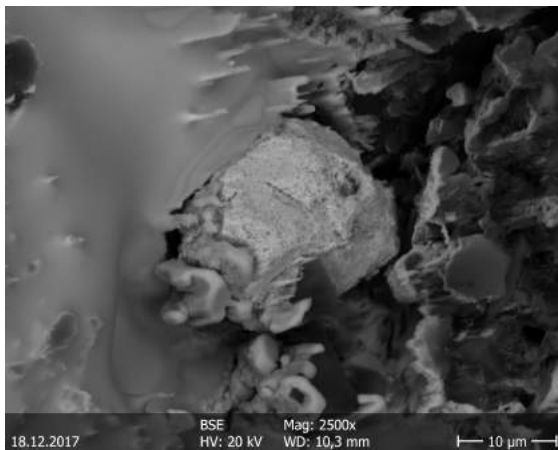
Dies soll eine Übersicht über alle an einem Ort, hier der rote Wald, gefundenen Partikel geben. Alle Partikel wurden in dieser Arbeit gefunden.



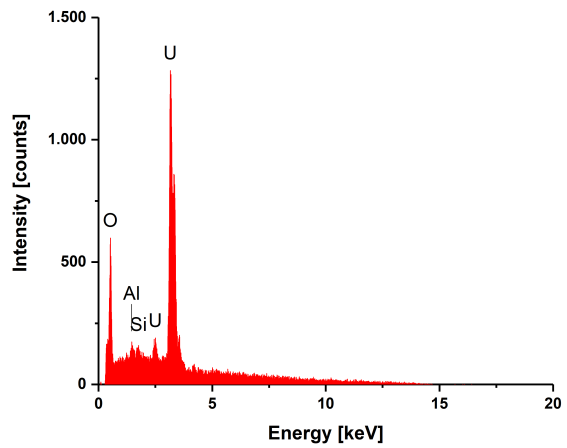
(a) Sarah



(b) Sarah EDX



(c) Bob



(d) Bob EDX

Abbildung 8.12: **Partikel aus dem Roten Wald**

Dies soll eine Übersicht über alle an einem Ort, hier der rote Wald, gefundenen Partikel geben. Hierbei ist allerdings Bob schon in der Dissertation von Linda Hamann gefunden worden und wird zu Vergleichszwecken mit untersucht. Sarah wurde in dieser Arbeit gefunden.

8.2 Expositionszeiten

Tabelle 8.1: **Tabelle der Expositionszeiten**

Hier sind die Expositionszeiten aller benutzten Detektoren aufgetragen. Zudem ist zu jedem Detektor die Probe und ggf. der gefundene Partikel aufgetragen. Die Ätzzeit der Detektoren beträgt jeweils 3 Stunden.

Detektor	Region	Probe	Exposition [h]	Spots	Partikelanzahl	Partikelnamen
LL.CP.001	Cooling Pond	CP Sediment <63 μm	166	6	1	Quincy
LL.CP.002	Cooling Pond	CP Sediment <63 μm	166	6	0	
LL.CP.003	Cooling Pond	CP Sediment <63 μm	216	3	3	Laura, Paul
LL.CP.003	Cooling Pond	CP Sediment <63 μm	216	3	3	Paula
LL.CP.004	Cooling Pond	CP Sediment <63 μm	216	1	0	
LL.CP.005	Cooling Pond	CP Sediment <63 μm	215	7	6	Ziltoid, Moritz
LL.CP.005	Cooling Pond	CP Sediment <63 μm	215	7	6	Balu, Lizzy
LL.CP.005	Cooling Pond	CP Sediment <63 μm	215	7	6	Willi Ciaran
LL.CP.006	Cooling Pond	CP Sediment <63 μm	215	4	2	Jakob, Siegnun
LL.CP.007	Cooling Pond	CP Sediment <63 μm	215	7	0	
LL.CP.008	Cooling Pond	CP Sediment <63 μm	121	0	0	
LL.CP.009	Cooling Pond	CP Sediment <63 μm	122	3	0	
LL.CP.010	Cooling Pond	CP Sediment <63 μm	121	2	1	Rudi
LL.CP.011	Cooling Pond	CP Sediment <63 μm	121	1	1	Hauke
LL.CP.012	Cooling Pond	CP Sediment <63 μm	121	0	0	
LL.B3S.001	Kopachi	Kopachi B3S	113	0	0	
LL.B3S.002	Kopachi	Kopachi B3S	113	0	0	
LL.B3S.003	Kopachi	Kopachi B3S	308	0	0	
LL.B3S.004	Kopachi	Kopachi B3S	309	0	0	
LL.VF.001	Kopachi	Kopachi Versuchsfeld Probe W1 <63 μm	168	2	0	
LL.VF002	Kopachi	Kopachi Versuchsfeld Probe W1 <63 μm	168	2	0	
LL.VF.003	Kopachi	Kopachi Versuchsfeld Probe W1 <63 μm	168	2	0	
LL.VF.004	Kopachi	Kopachi Versuchsfeld Probe W1 <63 μm	168	4	0	
LL.VF.005	Kopachi	Kopachi Versuchsfeld Probe W1 <63 μm	168	2	0	

Tabelle 8.2: **Expositionszeiten**

Hier sind die Expositionszeiten aller benutzten Detektoren aufgetragen. Zudem ist zu jedem Detektor die Probe und ggf. der gefundene Partikel aufgetragen. Die Ätzzzeit der Detektoren beträgt jeweils 3 Stunden.

Detektor	Region	Probe	Exposition [h]	Spots	Partikelanzahl	Partikelnamen
LL.RW.001	Roter Wald	RW Rest von 6.1 und 6.2 gesiebt, <63 μm	143	3	1	Sirius
LL.RW.002	Roter Wald	RW Rest von 6 gemahlen	143	0	0	
LL.RW.003	Roter Wald	RW Rest von 6 gemahlen	143	4	1	Tina
LL.RW.004	Roter Wald	RW Rest von 6 gemahlen	119	5	3	Olaf, Nala
LL.RW.004	Roter Wald	RW Rest von 6 gemahlen	119	5	3	Padme
LL.RW.005	Roter Wald	RW Rest von 6 gemahlen	119	1	0	
LL.RW.006	Roter Wald	RW Rest von 6 gemahlen	119	6	0	
LL.RW.007	Roter Wald	RW Rest von 6 gemahlen	118	0	0	
LL.RW.008	Roter Wald	RW Rest von 6 gemahlen	118	2	1	Ramona
LL.RW.009	Roter Wald	RW Rest von 6.1 und 6.2 gesiebt, <63 μm	214	2	0	
LL.RW.010	Roter Wald	RW Rest von 6.1 und 6.2 gesiebt, <63 μm	214	3	2	Daisy, Marie
LL.RW.011	Roter Wald	RW Rest von 6.1 und 6.2 gesiebt, <63 μm	214	9	2	Sarah, Manuel
LL.RW.012	Roter Wald	RW Rest von 6.1 und 6.2 gesiebt, <63 μm	214	1	0	
LL.RW.013	Roter Wald	RW Rest von 6.1 und 6.2 gesiebt, <63 μm	214	1	1	Martin
LL.Hel.001	Finnland	Helsinki 1 ungesiebt	138	0	0	
LL.G1.001	Kopachi	Kopachi Versuchsfeld Probe G1 <63 μm	262	0	0	
LL.G1.002	Kopachi	Kopachi Versuchsfeld Probe G1 <63 μm	262	1		
LL.G1.003	Kopachi	Kopachi Versuchsfeld Probe G1 <63 μm	262	0	0	
LL.G1.004	Kopachi	Kopachi Versuchsfeld Probe G1 <63 μm	261	1		
LL.G1.005	Kopachi	Kopachi Versuchsfeld Probe G1 <63 μm	261	1	1	Gina

Tabelle 8.3: **Expositionszeiten**

Hier sind die Expositionszeiten aller benutzten Detektoren aufgetragen. Zudem ist zu jedem Detektor die Probe und ggf. der gefundene Partikel aufgetragen. Die Ätzzeit der Detektoren beträgt jeweils 3 Stunden.

Detektor	Region	Probe	Exposition [h]	Spots	Partikelanzahl	Partikelnamen
LL.Hel.002	Finnland	Helsinki 1 ungesiebt	138	0	0	
LL.Hel.003	Finnland	Helsinki 1 ungesiebt	138	0	0	
LL.Fuku.001	Fukushima	Zheng Location 3 < 63 μm	287	0	0	
LL.Fuku.002	Fukushima	Zheng Location 3 63 μm - 200 μm	287	0	0	
LL.Fuku.003	Fukushima	Zheng Kokuna 59 ungesiebt	287	0	0	
LL.Fuku.004	Fukushima	Zheng Tsukuba Litter 49, <63 μm	140	0	0	
LL.Fuku.005	Fukushima	Zheng Tsukuba Litter 49, <63 μm	140	0	0	
LL.Fuku.006	Fukushima	Zheng Tsukuba Litter 49, <63 μm	139	0	0	
LL.Fuku.007	Fukushima	Zheng Tsukuba Litter 49, <63 μm	139	0	0	

Abbildungsverzeichnis

2.1	Karte der Probennahmeorte	5
3.1	Signale REM	7
3.2	Aufbau Rasterelektronenmikroskop	8
3.3	EDX Entstehung	10
3.4	Lichtmikroskop	11
4.1	Probe mit Apha Track Detektor	14
4.2	Probenhalter für den Ätzworgang	15
4.3	Apha Track Detektor mit Spots	16
4.4	Apha Track Detektor mit Spots unter dem Lichtmikroskop	16
4.5	Probenträger	17
5.1	Sarah	20
5.2	Marie und Lizzy	21
5.3	Löchrige Partikel	22
5.4	Nicht zugeordnete Partikel	24
5.5	Willi und Fred	25
5.6	Amessung der Partikel als Diagramm	27
8.1	Partikel aus dem Cooling Pond	33
8.2	Partikel aus dem Cooling Pond	34
8.3	Partikel aus dem Cooling Pond	35
8.4	Partikel aus dem Cooling Pond	36
8.5	Partikel aus dem Cooling Pond	37
8.6	Partikel aus dem Cooling Pond	38
8.7	Partikel aus dem Cooling Pond	39
8.8	Partikel aus dem Cooling Pond	40
8.9	Partikel aus dem Roten Wald	41
8.10	Partikel aus dem Roten Wald	42
8.11	Partikel aus dem Roten Wald	43
8.12	Partikel aus dem Roten Wald	44

Tabellenverzeichnis

5.1	Zuordnung der geschmolzenen Partikel	22
5.2	Zuordnung der löchrigen Partikel	23
5.3	Nicht zugeordnete Partikel	26
8.1	Tabelle der Expositionszeiten	46
8.2	Expositionszeiten	47
8.3	Expositionszeiten	48

Abkürzungsverzeichnis

ATA	Alpha Track Analyse
ATD	Alpha Track Detektoren
BSE	backscattered electrons
CEZ	Chernobyl Exclusion Zone
EDX	energy dispersive X-ray analysis
ODL	Ortsdosisleistung
REM	Rasterelektronenmikroskop
SE	secondary electrons

Literatur

- [1] Albert Ziegler & Hans-Josef Allelein und Hans-Josef Allelein. *Reaktortechnik: Physikalisch-technische Grundlagen*. 2. Aufl. Berlin Heidelberg: Springer Vieweg, 2013. ISBN: 978-3-642-33845-8.
- [2] Jürgen Bauch und Rüdiger Rosenkranz. “EDX - Energiedispersive Röntgenspektroskopie”. In: *Physikalische Werkstoffdiagnostik*. Hrsg. von Jürgen Bauch und Rüdiger Rosenkranz. Berlin: Springer Vieweg, 2017, S. 60–61. ISBN: 978-3-662-53951-4. DOI: 10.1007/978-3-662-53952-1{\textunderscore}30.
- [3] Brit Salbu, D.H. Oughton, V. Kashparov. “Radioactive Particles Released From Different Nuclear Sources”. In: *Springer Science and Business* (2009).
- [4] Clemens Walther. *Radioaktivität in der Umwelt und Strahlengefährdung des Menschen: Vorlesung*.
- [5] Wolfgang Demtröder. *Atome, Moleküle und Festkörper: Mit 9 Farbtafeln, 48 Tabellen, zahlreichen durchgerechneten Beispielen und 151 Übungsaufgaben mit ausführlichen Lösungen*. 4., überarb. Aufl. Bd. / Wolfgang Demtröder ; Bd. 3. Springer-Lehrbuch. Berlin: Springer, 2010. ISBN: 9783642039119.
- [6] Wolfgang Demtröder. *Experimentalphysik 2: Elektrizität und Optik ; mit 19 Tabellen, zahlreichen durchgerechneten Beispielen und 144 Übungsaufgaben mit ausführlichen Lösungen*. 5., überarb. und erw. Aufl. Springer-Lehrbuch. Berlin: Springer, 2009. ISBN: 9783540682103. DOI: 10.1007/978-3-540-68219-6. URL: <http://site.ebrary.com/lib/alltitles/docDetail.action?docID=10266839>.
- [7] L. N. Dinh u. a. “Pu2O3 and the plutonium hydriding process”. In: *Journal of Nuclear Materials* 408.2 (2011), S. 171–175. ISSN: 00223115. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2010.11.026.
- [8] R. S. Forsyth und L. O. Werme. “Spent fuel corrosion and dissolution”. In: *Journal of Nuclear Materials* 190 (1992), S. 3–19. ISSN: 00223115. DOI: 10.1016/0022-3115(92)90071-R.
- [9] Douglas C. Giancoli. *Physik: Lehr- und Übungsbuch ; [mit über 3000 Aufgaben, komplette Lösungswege im Internet zum Download]*. 3., erweiterte Auflage. ph - Physik. München u. a.: Pearson Studium, 2010. ISBN: 9783863265694.

Literatur

- [10] Reto Gieré, Ramona Kaltenmeier und Laurent Pourcelot. “Uranium oxide and other airborne particles deposited on cypress leaves close to a nuclear facility”. In: *Journal of environmental monitoring : JEM* 14.4 (2012), S. 1264–1274. DOI: 10.1039/c2em11000h.
- [11] Linda Hamann. *Untersuchung radioaktiver Partikel mittels Sekundärionen-Flugzeit-Massenspektroskopie: Diss.* Hannover, 2017.
- [12] I.E. Vlasova, St.N. Kalmykova, Yu.V. Konevnik, S.G. Simakin, I.S. Simakin. “Alpha track analysis and fission track analysis for localizing actinide-bearing micro-particles in the Yenisey River bottom sediments”. In: *Science Direct* (2008).
- [13] IAEA, Hrsg. *Radioactive particles in the Environment: Sources, Particle Characterization and Analytical Techniques*. IAEA-TECDOC-1663. Vienna: IAEA, 2011.
- [14] R. Kips u. a. “Determination of fluorine in uranium oxyfluoride particles as an indicator of particle age”. In: *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy* 64.3 (2009), S. 199–207. ISSN: 05848547. DOI: 10.1016/j.sab.2008.12.001.
- [15] Eckard Macherauch und Hans-Werner Zoch. *Praktikum in Werkstoffkunde*. Wiesbaden: Springer Fachmedien Wiesbaden, 2014. DOI: 10.1007/978-3-658-05038-2.
- [16] Ole Christian Lind, Brit Salbu, Ulrika Nygren, Lennart Thaning, Henrik Ramebäck, Singh Sidhu, Per Roos, Roy Pöllänen, Ylva Ranebo, Elis Holm. “Overview of sources of radioactive particles of Nordic relevance as well as a short description of available particle characterisation techniques”. In: *nks* (2008).
- [17] Ricardo Alberto Neto Ferreira, Antônio Santos Andrade, Odair Miranda, Pablo Andrade Grossi, Denise das Mercês Camarano, Fabrício Lima Migliorini, Égonn Hendrigo Carvalho Silva, Roberto Márcio de Andrade. “Compactation pressure influence on the thermophysical properties of uranium dioxide fuel pellets produced with kernels”. In: *International Nuclear Atlantic Conference-INAC* (2009).
- [18] B. Salbu u. a. “Hot particles in accidental releases from Chernobyl and Windscale nuclear installations”. In: *The Analyst* 119.1 (1994), S. 125–130. ISSN: 0003-2654. DOI: 10.1039/AN9941900125.
- [19] Brit Salbu. “Radionuclides released to the environment following nuclear events”. In: *Integrated environmental assessment and management* 7.3 (2011), S. 362–364. DOI: 10.1002/ieam.232.
- [20] Brit 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] T. Shinonaga u. a. “Age determination of single plutonium particles after chemical separation”. In: *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy* 64.1 (2009), S. 95–98. ISSN: 05848547. DOI: 10.1016/j.sab.2008.10.044.

- [22] United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. “Sources and effects of ionizing radiation: United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation ; UNSCEAR 2008 report to the General Assembly, with scientific annexes”. In: (2011).
- [23] V. Kashparov, V. Yoschenko, S. Levchuk, D. Bugai, N. Van Meir, C. Simonucci, A. Martin-Garin. “Radionuclide migration in the experimental polygon of the Red Forest waste site in the Chernobyl zone – Part 1: Characterization of the waste trench, fuel particle transformation processes in soils, biogenic fluxes and effects on biota”. In: *Applied Geochemistry* 2012:27 (2011), S. 1348–1358.
- [24] Von Cepheiden - Rainer Ziel. URL: https://de.wikipedia.org/wiki/R%C3%B6ntgenstrahlung#/media/File:Atom_model_for_EDX_DE.svg (besucht am 07.09.2018).
- [25] wikimedia. URL: https://upload.wikimedia.org/wikipedia/commons/e/ef/Funktionsprinzip_REM.gif (besucht am 01.08.2018).