# Aufbau eines integrierten Gammaspektrometrie-Systems und

Untersuchung von
Bodenproben aus der Ukraine

Diplomarbeit im Studiengang Physik

vorgelegt von

Jochen Kuhnhenn

aus Kassel

ausgeführt am

Zentrum für Strahlenschutz und Radioökologie

der Universität Hannover

März 1997

## Inhaltsverzeichnis

1	Ein	leitung	1		
2	Aufgabenstellung				
3	10	10 Jahre nach dem Unfall in Tschernobyl			
	3.1	Der Reaktortyp RBMK	4		
	3.2	Unfallhergang	7		
	3.3	Konsequenzen	10		
4	Exp	perimentelle Grundlagen	16		
	4.1	Halbleiterdetektoren	16		
	4.2	Ausgangszustand der $\gamma$ -Spektrometrie	24		
	4.3	Qualitätssicherung bei Radioaktivitätsmessungen	32		
5	We	iterentwicklung des $\gamma$ -Spektrometrie-Systems	35		
	5.1	Konzept einer Integration	35		
	5.2	Änderungen an TMCA	37		
	5.3	Automatische Auswertung	38		
6	Unt	ersuchung von Bodenproben aus der Ukraine	47		
	6.1	Probenentnahme und -aufbereitung	47		
	6.2	Messung der Proben	52		

7	Ergebnisse 50					
	7.1	Berechnung der Tiefeneinträge	56			
	7.2	Darstellung der Ergebnisse	60			
	7.3	Diskussion	62			
8	Zusammenfassung					
A	Anhänge					
	A.1	Übersicht aller Proben	67			
	A.2	Verwendete Nukliddaten	72			
	A.3	Ausführliche Ergebnisse	76			
Abbildungsverzeichnis						
Tabellenverzeichnis						
Li	Literaturverzeichnis					

## Kapitel 1

## Einleitung

Die Entdeckung der Kernspaltung 1939 durch O. Hahn und seine Mitarbeiter führte zu einer der folgenreichsten technischen Entwicklungen in der Geschichte der Menschheit. Die zunächst auf militärische Anwendungen beschränkten Möglichkeiten zur Nutzung der Kernenergie gelangten nach dem Einsatz der Kernwaffen in Hiroshima und Nagasaki in das Bewußtsein der Menschen. Das Spektrum der Radionuklide wurde durch die Nutzung der Kernenergie zu zivilen und militärischen Zwecken erweitert und die Radioaktivität in der Natur erhöht.

Die Freisetzung von Spalt- und Aktivierungsprodukten aus Kernwaffenexplosionen, kerntechnischen Anlagen im Normalbetrieb und in Unfallsituationen macht eine umfassende Beobachtung und Bewertung der radioökologischen Auswirkungen erforderlich. Besonders der inzwischen 10 Jahre zurückliegende Unfall in Tschernobyl erforderte umfassende Untersuchungen der Folgen, deren Ergebnisse für die Beurteilung der globalen und vor allem der lokalen Konsequenzen entscheidend sind.

Trotz aller Anstrengungen sind die Unfallfolgen noch lange nicht bewältigt und die Defizite in der Reaktorsicherheit nur teilweise behoben. Die andauernde Strahlenexposition der Bevölkerung in den stark kontaminierten Gebieten durch hohe Konzentrationen von <sup>137</sup>Cs vor allem in der Milch und in Milchprodukten stellt ein langfristiges Gesundheitsrisiko dar. Im Rahmen eines Forschungsvorhabens wird am Zentrum für Strahlenschutz und Radioökologie der Universität Hannover (ZSR) in Zusammenarbeit mit der Staatlichen Agroökologischen Akademie der Ukraine eine Datenbasis zur Beschreibung des <sup>137</sup>Cs-Pfades Boden-Pflanze-Tier-Milch erstellt. Zu diesem Ziel wurden in der Ukraine in drei Kontaminationszonen jeweils mehrere Bodenprofile entnommen, um die Deposition langlebiger Spaltprodukte aus dem Tschernobyl-Fallout und deren Verlagerung zu erfassen.

Um die Untersuchung dieser Proben effizient zu gestalten, wurden im Zuge der Modernisierung der  $\gamma$ -Spektrometrie am ZSR (Standort Hannover-Herrenhausen) die neuen Systeme erweitert und an bestehende Formate angepaßt. Diese Arbeit beschreibt die damit verbundenen Arbeiten und stellt ein automatisches Auswertungssystem vor, das speziell für die obige Fragestellung entwickelt wurde. Es ermöglichte eine schnelle und flexible Auswertung der gemessenen Bodenproben, deren Ergebnisse in dieser Arbeit vorgestellt werden.

## Kapitel 2

## Aufgabenstellung

Im Zuge der Modernisierung der  $\gamma$ -Spektrometrie-Systeme des ZSR am Standort Herrenhausen sollen die Vielkanalanlysatorensysteme von zwei Laboratorien gegen ein computergestütztes System (TMCA) ausgetauscht werden. Wegen der gegebenenfalls auftretenden hohen Zählraten soll ein PC-Vielkanalanalysatorensystem mit externen ADCs aufgebaut werden. Die vorhandenen vier Detektoren sollen zu zwei Meßplätzen zusammengefaßt werden.

Das neue System ist in Betrieb zu nehmen, zu konfigurieren und zu automatisieren. Die Meß- und Auswertungssoftware ist an die bestehenden Systeme anzupassen und zu erweitern. Dadurch soll eine vollständige Kompatibilität zwischen allen Einrichtungen an den beiden Standorten des ZSR hergestellt werden. Um eine einheitliche Steuerung zu ermöglichen, ist für die TMCA-Systeme eine Benutzeroberfläche zu entwickeln.

Anschließend werden die neuen Meßsysteme zur Messung von Spalt- und Aktivierungsprodukten aus dem Reaktorunfall von Tschernobyl in Umweltproben aus der nördlichen
Ukraine genutzt. Es werden Bodenprofile untersucht, um die Deposition langlebiger Spaltprodukte und ihre Migration in ukrainischen Böden zu erfassen. Dabei werden die Ergebnisse der entwickelten Auswertesysteme mit vorhandenen Daten verglichen, um so den
Einfluß des verwendeten Verfahrens zu untersuchen.

Die bei der Datenauswertung gewonnenen Erfahrungen hinsichtlich der Archivierung der Spektren und Dokumentation der Ergebnisse soll zu einer Beschreibung der notwendigen Organisationsstandards bei der Projektplanung führen.

## Kapitel 3

## 10 Jahre nach dem Unfall in Tschernobyl

Die Untersuchungen während der zehn Jahre seit dem Unfall in Tschernobyl haben die Kenntnisse über den Unglücksreaktor und den Unfallablauf von anfänglichen Vermutungen und Schätzungen inzwischen zu einem umfassenderen Bild ergänzt. Vor allem der politische Wandel in der Sowjetunion machte Informationen für alle Wissenschaftler zugänglich, so daß die ursprüngliche Darstellung der Verantwortlichen von reinem Fehlverhalten des Personals zu einer genauen Analyse der technischen Mängel des Tschernobyl-Reaktortyps führte. In diesem Kapitel werden diese neueren Erkenntnisse und deren Konsequenzen zusammengefaßt.

Das Kernkraftwerk Tschernobyl liegt in der Ukraine an der Grenze zu Weißrußland, 120 km nördlich der Stadt Kiew (ca. 2,6 Millionen Einwohner) und 310 km südlich von Minsk unmittelbar am Ufer des Pripyat. Die Stadt Tschernobyl, nach der das Kraftwerk benannt ist und etwa 12.000 Einwohner zählt, befindet sich 12 km südöstlich. Für die Beschäftigten des Kraftwerkes wurde 3 km vom Standort entfernt die Stadt Pripyat gebaut, in der zur Zeit des Unfalls 45.000-50.000 Einwohner lebten.

### 3.1 Der Reaktortyp RBMK

Zum Zeitpunkt des Unfalls in Tschernobyl basierte das sowjetische Reaktorprogramm auf zwei Reaktortypen, dem WWER (Wasser-Wasser-Energie-Reaktor), einem Druckwasserreaktortyp und dem RBMK (Reaktor großer Leistung mit Kanälen), einem graphit-

moderierten Siedewasser-Druckröhren-Reaktor. Im Gegensatz zum WWER wurden keine RBMK exportiert und nur innerhalb der Sowjetunion eingesetzt. Beim RBMK-Typ wird kein Druckbehälter verwendet, sondern eine große Anzahl von Druckrohren (sogenannte "Technologische Kanäle"), in denen sich der Kernbrennstoff befindet. Als besondere Vorzüge dieses Reaktortyps wurden von sowjetischer Seite gesehen [GRS96]:

- hohe Zuverlässigkeit durch jederzeit mögliche Kontrolle jedes einzelnen Druckrohres,
- einfache Möglichkeit, die Gesamtleistung des Kraftwerkes durch Hinzufügen baugleicher Konstruktionselemente zu erhöhen,
- Möglichkeit, den Brennelementwechsel während des Betriebs durchzuführen,
- Militärische Nutzbarkeit des Reaktors.

Insgesamt waren für Tschernobyl sechs RBMK-Blöcke mit jeweils 1000 MW<sub>el</sub> vorgesehen. Der erste Block ging 1977, der zweite 1978 in Betrieb. Die Blöcke 3 und 4 gingen in den Jahren 1981 und 1983 ans Netz, südlich des Komplexes wurde 1981 mit dem Bau der Blöcke 5 und 6 begonnen. Die Inbetriebnahme des fünften Blocks sollte 1986 erfolgen, die Bauarbeiten an beiden Blöcken wurden aber nach dem Unfall eingestellt.

Nach letzten Informationen (1996) sind heute die Blöcke 1 und 3 in Betrieb. In der Turbinenhalle des zweiten Blocks brach im Oktober 1991 ein Feuer aus, in dessen Folge das Dach einstürzte. Mit den Arbeiten zur Wiederinbetriebnahme wurde begonnen [GRS96]. Tschernobyl-1 soll bis 1998, Tschernobyl-2 (zur Zeit nicht in Betrieb) bis 2001 und Tschernobyl-3 bis 2002 in Betrieb bleiben [ATW96].

Insgesamt befinden sich in den Ländern Litauen, Rußland und der Ukraine heute noch 15 Reaktoren des RBMK-Typs in Betrieb. Ein im russischen Kursk im Bau befindlicher fünfter Block soll nach letzten Planungen noch fertiggestellt werden. Die RBMK-Anlagen wurden für eine Betriebszeit von 30 Jahren ausgelegt und sollen nach den Vorstellungen der Betriebsorganisatoren in den meisten Fällen auch die volle Dauer betrieben werden [GRS96].

Bis zum 26. April 1986, dem Tag des Unfalls, waren am Standort Tschernobyl vier Blöcke des Typs RBMK-1000 in Betrieb. Die Anlagen dieser Baulinie werden als Doppelblockanlagen ausgeführt. Bei den Blöcken 3 und 4 sind die beiden Reaktorgebäude mit dem dazwischenliegenden gemeinsamen Hilfsanlagengebäude zu einem Gebäudekomplex zusammengefaßt. Parallel dazu ist ein Maschinenhaus mit je zwei Turbinen-Generator-Sätzen pro Block angeordnet [SSK87].

Im RBMK-1000 wird das als Kühlmittel und Wärmeübertragungsmedium genutzte Wasser unter einem Druck von 6,5 · 10<sup>6</sup> Pa durch die Brennstoffröhren gepumpt. Die Druckröhren werden bezüglich Durchströmung, Druck und eventueller Lecks einzeln überwacht und können einzeln abgeschaltet werden. Der Reaktor besteht aus zwei weitgehend voneinander unabhängigen Hälften, welche für Kontrollzwecke in mehrere Sektoren eingeteilt sind. Das Wasser wird in den Röhren auf eine Temperatur von 280 °C erhitzt. Dieses heiße, unter Druck stehende Wasser gelangt in Trommelseperatoren, in denen Wasser und Dampf getrennt werden. Der Dampf treibt die 500 MW Turbinen an. Das abgetrennte Wasser und das Kondensat des Dampfes werden zurück in den Reaktor gepumpt. Zur Kondensation wird eine große Menge Kühlwasser benötigt, das aus einem künstlich angelegten See (Fläche ca. 22 km², Volumen ca. 1,5 · 10<sup>8</sup> m³) herangeführt wird [Koe96].

Der Reaktorkern hat einen Durchmesser von 11,8 m und eine Höhe von 7,0 m. Er besteht aus 2448 quaderförmigen Graphitsäulen, die aus einzelnen Graphitblöcken zusammengesetzt sind. In den Graphitblöcken befinden sich vertikale Bohrungen, welche die Druckröhren und die Rohre der Spezialkanäle aufnehmen. In diesen Graphitblöcken sind die 1693 Druckrohre installiert. Jedes Brennelement im Druckrohr besteht aus zwei übereinander angeordneten Brennstabbündeln. Jedes Brennstabbündel der Höhe 3,5 m ist aus 18 Brennstäben zusammengesetzt, in welche die Urandioxid-Tabletten eingefüllt sind [GRS96].

Die Steuerung der Reaktorleistung erfolgt über 211 Regelstäbe, die in den Kern eingefahren werden können. Sie bestehen aus einem mittleren Absorberteil (u.a. Borkarbid) von ca. 6 m Länge und einem Verdrängerteil (Graphit) von 4,5 m Länge bei einem insgesamt 7 m hohen Kern. Diese Konstruktion hat eine für den Unfall wichtige Konsequenz: Den positiven Abschalteffekt. Bei einem voll ausgefahrenen Stab befindet sich das Verdrängerteil etwa in der Mitte des Reaktorkerns. Oberhalb und unterhalb sind die Regelkanäle dann mit Wasser ausgefüllt. Wird nun der Stab in den Kern eingefahren, so ersetzt das (neutronenmoderierende) Graphit die untere (neutronenabsorbierende) Wassersäule. Damit wird zunächst das Gegenteil erreicht: die Reaktorleistung im unteren Bereich des Kerns wird erhöht. Erst wenn das Verdrängerteil den Kernbereich verläßt und der Absorberteil in den Kern gelangt, tritt die erwünschte Leistungsreduktion ein. Die maximale Geschwindigkeit der Steuerstäbe ist 0,4 m/s, was bedeutet, daß sich ein voll ausgefahrener Stab erst nach 18 bis 20 Sekunden komplett im Kernbereich befindet.

Da die Steuerstäbe nicht immer ganz ein- oder ausgefahren werden, sondern sich auch in Zwischenpositionen befinden können und in verschiedenen Bereichen des Kerns verschieden wirksam sind, beschreibt man den Regelzustand mit der betrieblichen Reaktivitätsreserve (ORM-Wert). Der ORM-Wert ist das Reaktivitätsäquivalent aller (ganz oder teilweise) in den Kern eingefahrenen Steuerstäbe. Er wird als Vielfaches des Reaktivitätsäquivalents eines mittleren, voll eingefahrenen Steuerstabes angegeben.

Eine weitere Konstruktions-Konsequenz ist der positive Dampfblasenkoeffizient oder VoidEffekt. Er beschreibt die Steigerung der Reaktivität bei Erhöhung des Dampfgehaltes in
den Druckrohren. Dieses Reaktivitätsverhalten des RBMK ergibt sich aus der Verwendung von Graphit als Moderator und von Wasser als Kühlmittel. Das Kühlmittel Wasser
wirkt gleichzeitig als Neutronenmoderator und Neutronenabsorber. Während die Moderatorwirkung des Wassers gegenüber der des Graphits von geringer Bedeutung ist, wird
das Reaktivitätsverhalten des Reaktors durch die Absorberwirkung des Wassers erheblich beeinflußt. So führt eine Verringerung der Kühlmitteldichte, z.B. durch Verdampfung,
oder ein Kühlmittelverlust zu einer Verminderung der Neutronenabsorption im Kern und
damit zu einer höheren Reaktivität.

#### 3.2 Unfallhergang

Der Unfall im Block 4 des Kernkraftwerks Tschernobyl am 26. April 1986 ereignete sich, als die Anlage planmäßig für eine Revision herunter gefahren wurde. Während dieses Vorgangs war ein Versuch vorgesehen, mit dem bestimmte Sicherheitseigenschaften der Anlage nachgewiesen werden sollten. Unzulänglichkeiten des Versuchsprogramms, unerwartete Bedingungen während der Versuchsdurchführung sowie mehrere nicht vorherzusehende Ereignisse und ungeplante Eingriffe des Betriebspersonals führten dazu, daß die Anlage in der Nacht vom 25. zum 26. April 1986 in einen äußert instabilen Betriebszustand gefahren wurde. Eine prompt überkritische Leistungsexkursion führte zur katastrophalen Explosion des Reaktors.

Bei Kühlmittelverlust-Störfällen wird der Kern in der ersten Phase durch Einspeisen von Wasser aus Druckspeichern und aus dem Hauptspeisewassersystem gekühlt. Um die Hauptspeisewasserpumpen auch bei gleichzeitigem Ausfall der normalen Stromversorgung (Notstromfall) betreiben zu können, war für diesen Fall die Nutzung der Rotationsenergie des auslaufenden Turbogenerators vorgesehen. Die zuverlässige Funktion dieser Maßnahme sollte nachgewiesen werden. Bei früheren Versuchen konnte dieser Nachweis nicht erbracht werden.

Die sichere Beherrschung eines Kühlmittelverlust-Störfalls mit gleichzeitigem Notstromfall wird vom sowjetischen Regelwerk gefordert und war in der Auslegung der RBMK vorgesehen. Der Funktionsnachweis dieser Auslegung hätte durch Prüfungen während des Probebetriebs erbracht werden müssen. Der Block 4 hatte seinen Betrieb im Dezember 1983 ohne diesen Nachweis aufgenommen. Beim Bau der Anlage kam es zu Verzögerungen, so daß nicht alle vorgeschriebenen Versuche im Probebetrieb erfolgen konnten, bevor der geplante Betriebsbeginn anstand. Die zuständigen Behörden erteilten dennoch die Betriebsgenehmigung im Vertrauen, daß diese Tests später erfolgreich nachgeholt werden würden, um so eine Aufnahme des Dauerbetriebs noch im Dezember 1983 zu ermöglichen und damit den Plan zu erfüllen [Koe96].

Das Versuchsprogramm sah im wesentlichen Folgendes vor:

- Die thermische Leistung der Anlage sollte bei Versuchsbeginn zwischen 20 % und 30 % liegen. In diesem Leistungsbereich ist ein Turbosatz in Betrieb und der zweite abgeschaltet.
- Abweichend vom Normalbetrieb war zur Durchführung des Versuchs vorgesehen, daß die sechs normalerweise in Betrieb befindlichen Hauptkühlmittelpumpen und die beiden Reservepumpen liefen.
  - Vier Hauptkühlmittelpumpen (einschließlich der zwei Reservepumpen) sollten während und nach dem Versuch weiterlaufen, um die Kernkühlung zu gewährleisten. Diese Pumpen waren deshalb mit dem normalen Stromnetz verbunden.
  - Die vier übrigen Hauptkühlmittelpumpen waren bei dem Versuch als Last für den Turbogenerator vorgesehen. Dementsprechend wurden diese Pumpen vor dem Versuch von dem Turbogenerator versorgt. Bei Beginn des Versuchs sollten sie entsprechend der abnehmenden Leistung des Generators auslaufen.
- Der Versuch selbst sollte durch Schnellabschalten des in Betrieb befindlichen Turbosatzes eingeleitet werden. Entsprechend der Auslegung des Reaktorschutzsystems sollte dadurch gleichzeitig eine automatische Reaktornotabschaltung ausgelöst werden.

Am 25. April 1986 um 1:00 Uhr morgens wurde der Reaktor planmäßig zur Revision heruntergefahren. Um 3:47 Uhr war die Leistung auf 50 % reduziert und wurde dort gehalten, um verschiedene Parameter des Regelsystems und der Vibrationseigenschaften der Turbogeneratoren zu messen. Um 7:10 Uhr war der ORM-Wert aufgrund der instationären Xenon-Vergiftung kleiner als der zulässige Wert. Zur Xenon-Vergiftung kommt es bei einer Verringerung der Leistung des Reaktors. Xenon-135 ist ein wirkungsvoller Neutronenabsorber, der aus dem Zerfall des bei der Spaltung von Uran erzeugten <sup>135</sup>I (Halbwertszeit 6,61 h) entsteht. Die Halbwertszeit von <sup>135</sup>Xe beträgt 9,10 Stunden. Bei stationärem Betrieb ist das Entstehen von <sup>135</sup>Xe und sein Verschwinden durch Neutroneneinfang und Zerfall im Gleichgewicht. Nimmt die Leistung ab, so geht mit der verringerten Anzahl von Neutronen auch der Neutroneneinfang durch Xenon zurück. Da das Xenon aber aus dem Zerfall des <sup>135</sup>I zunächst in nahezu unverändertem Umfang entsteht, vergrößert sich die Xenon-Konzentration. Diese zusätzliche Neutronenabsorption wird durch das Herausziehen von Steuerstäben ausgeglichen.

Der ORM-Wert hat betriebliche und sicherheitstechnische Bedeutung: Bei Leistungsbetrieb muß die ORM mindestens 26-30 betragen, um bei Lastwechseln, z.B. zur Kompensation der Xenon-Vergiftung, Steuerstäbe ausfahren zu können. Andernfalls würde sich der Reaktor von selbst abschalten. Aus sicherheitstechnischen Gründen dürfen nicht beliebig viele Steuerstäbe ausgefahren werden, weil ein zu geringer ORM-Wert den positiven Void-Effekt verstärkt und die Abschaltwirksamkeit zu Beginn des Einfahrens der Steuerstäbe vermindert. Dieser Sicherheits-Grenzwert liegt bei 15 Steuerstäben.

Das Unterschreiten der minimalen ORM in Folge der Xenon-Vergiftung hätte zu einer unverzüglichen Abschaltung führen müssen. Dies geschah nicht. Im weiteren Verlauf stieg der ORM-Wert wieder über den minimal zulässigen Wert an. Bis 14:00 Uhr betrug die Leistung weiterhin unverändert 50 %. Auf Anforderung der Verteilerstation in Kiew wurde diese Leistung gehalten und der Versuch aufgeschoben. Etwa 9 Stunden später konnte das Abfahren für den Versuch fortgesetzt werden, wobei inzwischen das Personal gewechselt hatte. Es sollte eine Leistung von 20 % bis 30 % erreicht werden. Dieser Leistungsbereich wurde jedoch aus unbekannten Gründen unterschritten [GRS96]. Am 26. April 1986 um 0:28 Uhr, also eine Stunde vor dem Unfall fiel die thermische Leistung von 500 MW praktisch auf 0. Aufgrund des zu geringen ORM-Wertes hätte der Versuch abgebrochen und der Reaktor sofort abgeschaltet werden müssen.

Statt dessen wurde die Leistung durch Ausfahren von weiteren Steuerstäben auf etwa 7 % angehoben und gehalten. Ein Notabschaltungssystem wurde deaktiviert, um den Versuch wiederholen zu können. Unmittelbar vor dem Versuch befand sich der Reaktor in einem äußerst instabilen Zustand:

ungünstiger Beladungszustand,

- · niedriges Leistungsniveau mit ungünstiger Leistungsdichteverteilung,
- · hoher Kühlmitteldurchsatz,
- verringerter Speisewasserdurchsatz mit Erhöhung der Kühlmitteltemperatur,
- instationäre Xenon-Vergiftung,
- zu niedriger ORM-Wert von ca. 6 bis 8 Steuerstäben.

Um 1:23 Uhr wurde der Versuch dennoch eingeleitet und die vier Hauptkühlmittelpumpen liefen aus. Es kam zu einer Reaktivitätszufuhr durch den positiven Void-Effekt, da der Kühlmitteldurchsatz sich verringerte. Es wurde der Versuch unternommen, den Reaktor nun notabzuschalten, wobei wegen des positiven Abschalteffekts die Leistung weiter stieg. Innerhalb weniger Sekunden kam es zu einer Leistungsexkursion, in deren Folge der Reaktorkern und das Reaktorgebäude zerstört wurde. Neben den gravierenden Konstruktionsdefiziten (Void- und Abschalt-Effekt) wurde der Unfall von der unzureichenden Wahrnehmung der Verantwortung für die Reaktorsicherheit ausgelöst. Obwohl die Schwächen des RBMK-Typs bekannt waren, erfolgte keine Überarbeitung der Sicherheitssysteme. Es gab keine unabhängigen Sicherheitsbehörden, die Betreiber selbst waren für die Sicherheit verantwortlich. Das Versuchsprogramm wies deutliche Mängel auf: Der Versuch war rein technisch eingestuft, bei dem keine Rückwirkungen auf den Reaktor zu erwarten seien. Er wurde von einem einzelnen Elektroingenieur ausgearbeitet, der alle Sicherheitsaspekte unberücksichtigt lies. Das Betriebspersonal wurde praktisch nicht auf den Versuch vorbereitet und wechselte während des Ablaufs, es war unzureichend ausgebildet und hatte wenig Erfahrung. Mehrfach wurde gegen die Betriebsvorschriften und auch gegen das Versuchsprogramm verstoßen.

Zusammenfassend kann man feststellen, daß die für den Unfall entscheidenden Ursachen im Reaktor-Design den für die Sicherheit verantwortlichen Stellen bekannt waren, aber keine Gegenmaßnahmen realisiert wurden. Der Versuch hätte bei eingehender Prüfung des Programms unter Sicherheitsaspekten nicht genehmigt werden dürfen, zusätzlich war das Personal überfordert.

#### 3.3 Konsequenzen

Die Explosion zerstörte große Teile des Reaktorgebäudes von Block 4, des Maschinenhauses sowie des Zwischentraktes. Die waagrechte Platte über dem Reaktor mit einer Masse

von 3.000 t wurde angehoben und alle Druckröhren abgerissen. Es wurden brennende Graphitteile und Kernmaterial ausgeworfen, mehrere Brände entstanden. Der unmittelbar benachbarte Block 3 wurde erst mehrere Stunden später abgeschaltet, obwohl auch Brände auf dessen Dach entstanden waren. Abbildung 3.1 zeigt die Mengen der freigesetzten Radionuklide in den ersten 10 Tagen.

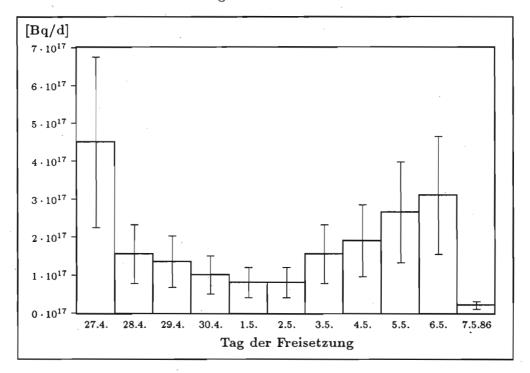


Abb. 3.1: Freigesetzte radioaktive Stoffe [GRS96]

Die Freisetzung läßt sich in 4 Phasen gliedern:

Phase 1: Unmittelbar durch die Explosion des Reaktors und während des späteren Brandes wurden Teile des Kernbrennstoffs herausgeschleudert. Edelgase und leicht flüchtige Nuklide wie Iod, Tellur und Cäsium wurden massiv freigesetzt. Der heiße Luftstrom des Graphitbrandes transportierte die radioaktiven Stoffe in mehr als 1.200 m
Höhe.

Phase 2: In den folgenden fünf Tagen nahm die Freisetzung aufgrund der Brandbekämpfung deutlich ab. Der Auftrieb verminderte sich und die Radionuklide erreichten nur noch Höhen von 200 bis 400 m.

Phase 3: Die zur Löschung und Abdeckung eingesetzten Materialien behinderten die Wärmeabfuhr und führten zur Aufheizung des Kerns. Dabei wurden insgesamt über 5.000 t Material aus Helikoptern abgeworfen. Die Freisetzung während der nächsten vier Tage nahm wieder deutlich zu.

Phase 4: Am 6. Mai brach die Freisetzung abrupt ab. Vermutlich lag dies an der Kühlung des Kernbereichs mit Stickstoff und der Bildung von schwerflüchtigen Verbindungen. Dies ist aber bis heute noch nicht vollständig geklärt [GRS96].

Tab. 3.1: Freisetzungsanteile der wichtigsten Radionuklide [GRS96, BfS96, Pf95]

Radionuklid	Halbwertszeit	Kerninventar	freigesetzter
		[Bq]	Anteil [%]
<sup>85</sup> Kr	10,76 a	$3,3\cdot 10^{16}$	100
<sup>133</sup> Xe	5,25 d	$6,5\cdot 10^{18}$	100
131Д	8,02 d	$3,6\cdot 10^{18}$	50
<sup>132</sup> Te	76,30 h	$3,2\cdot 10^{18}$	15
<sup>125</sup> Sb	2,77 a	$1,9\cdot 10^{16}$	15
<sup>134</sup> Cs	2,06 a	$1,5\cdot 10^{17}$	33
<sup>137</sup> Cs	30,17 a	$2,6\cdot 10^{17}$	33
<sup>95</sup> Zr	64,00 d	$4, 4 \cdot 10^{18}$	3,2
<sup>103</sup> Ru	39,35 d	$4, 1 \cdot 10^{18}$	2,9
<sup>106</sup> Ru	373,60 d	$8,5\cdot 10^{17}$	2,9
<sup>140</sup> Ba	12,75 d	$2,9\cdot 10^{18}$	5,5
<sup>141</sup> Ce	$32,50 \mathrm{\ d}$	$4,3 \cdot 10^{18}$	2,8
<sup>144</sup> Ce	$284,80 \ d$	$3,2\cdot 10^{18}$	2,8
<sup>89</sup> Sr	50,50 d	$2,0\cdot 10^{18}$	4,0
<sup>90</sup> Sr	28,64 a	$2,0\cdot 10^{17}$	4,0
<sup>238</sup> Pu	87,74 a	$9,3\cdot 10^{14}$	3,5
<sup>239</sup> Pu	24.110 a	$9,6\cdot 10^{14}$	3,5
<sup>240</sup> Pu	6.563 a	$1,5 \cdot 10^{15}$	3,5
<sup>241</sup> Pu	14,35 a	$1,8\cdot 10^{17}$	3,5
<sup>241</sup> Am	432,20 a	$1,4\cdot 10^{14}$	3,5
<sup>243</sup> Am	7.370 a	$5,7\cdot10^{12}$	3,5
<sup>242</sup> Cm	162,94 d	$3, 1 \cdot 10^{16}$	3,5
<sup>244</sup> Cm	18,10 a	1,8 · 1014	3,5

Die Tabelle 3.1 zeigt Abschätzungen der freigesetzten Aktivitäten der wichtigsten Nuklide. Ursprünglich war man von einem Anteil des freigesetzten  $^{137}$ Cs von etwa 13 % ausgegangen. Eine neuere Bilanzierung führt zu einem Anteil von  $(33\pm10)$  %, was einer Aktivität

von  $(8,6\pm2,6)\cdot10^{16}$  Bq entspricht [GRS96].

Für die Aktivitätsverfrachtung waren zwei Besonderheiten entscheidend:

- Durch die ausgedehnten Brände gelangten die radioaktiven Stoffe in große Höhen und wurden dort mit den jeweils herrschenden Strömungen verteilt,
- Die Aktivitätsabgabe erstreckte sich über einen Zeitraum von mehreren Tagen, an denen sich die Ausbreitungsrichtung der radioaktiven Stoffe und die Wetterverhältnisse erheblich änderten.

Am ersten Tag wurden die freigesetzten Stoffe zumeist in nordwestlicher Richtung über Weißrußland bis nach Finnland und Schweden transportiert. In den weiteren Tagen änderte sich die Hauptwindrichtung und es waren vor allem die Länder Polen, Tschechei, Österreich und die südlichen Teile Deutschlands betroffen (Siehe Abbildung 3.2).

Während dieser Zeit bildete sich eine zweite Ausbreitungsfahne Richtung Osten, die eine schwächere Kontamination bis in den Raum südlich von Moskau verursachte. Kiew blieb außerhalb der Hauptwege der Ausbreitung. Die in den Gebieten, die von den kontaminierten Luftmassen betroffen waren, entstandenen Depositionen hingen vor allem von der Partikelgröße und von lokalen Regenfällen ab. Während die schwereren und größeren Partikel zumeist innerhalb einer Zone von 100 km verblieben, war im Fernbereich der Washout durch Regen entscheidend. Dementsprechend zeigen sich lokal sehr unterschiedliche Kontaminationsgrade.

Langfristig ist in einer Entfernung von mehr als 50 km um den Reaktor das <sup>137</sup>Cs das kritische Nuklid, da es sowohl zu einer externen Exposition als auch über den Milch-Pfad zu einer internen Exposition der Bevölkerung führt. Es ist daher wichtig, die Depositionen und das Verhalten des Radiocäsiums in den ukrainischen Böden zu untersuchen. In Abbildung 3.3 sind die Kontaminationen durch <sup>137</sup>Cs in der Ukraine, Weißrußland und Rußland aufgezeigt.



Abb. 3.2: Hauptausbreitungsrichtungen bis zum 2.5.1986 [GRS96]

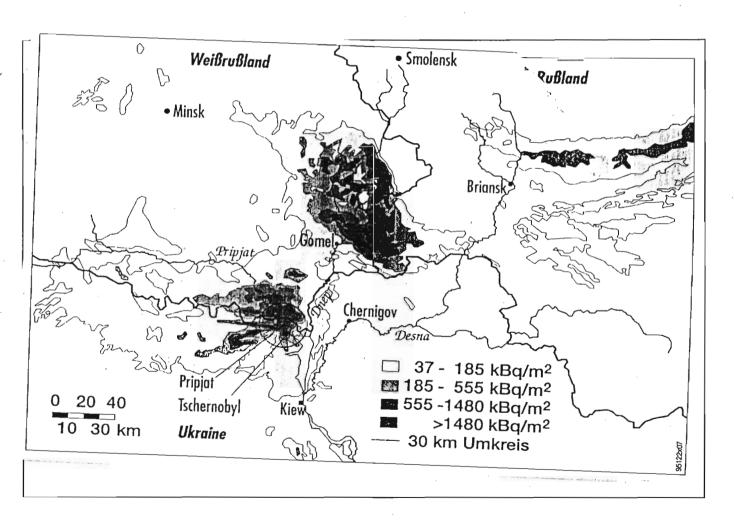


Abb. 3.3: Kontamination durch <sup>137</sup>Cs [GRS96]

## Kapitel 4

## Experimentelle Grundlagen

In diesem Kapitel finden sich die allgemeinen Grundlagen des experimentellen Teils dieser Arbeit. Zunächst wird die Funktionsweise, der Aufbau und die Anwendung der verwendeten Detektoren zur Aktivitätsbestimmung dargelegt. Dabei wird in einem eigenen Abschnitt ausführlich das Meß- und Auswertungssystem des ZSR zu Beginn dieser Diplomarbeit und die damit verbundenen Probleme beschrieben. Im dritten und letzten Abschnitt dieses Kapitels werden die im Laufe dieser Arbeit gewonnen Kenntnisse im Bereich der Qualitätssicherung in Anlehnung an [Kan92] allgemein vorgestellt.

#### 4.1 Halbleiterdetektoren

Bei der Überwachung der Radioaktivität in der Umwelt spielt die  $\gamma$ -Spektrometrie mit Germaniumdetektoren eine dominierende Rolle. Das liegt zum einen daran, daß die Mehrzahl der für die Umweltüberwachung relevanten Spalt- und Aktivierungsprodukte  $\gamma$ -Strahlung emittieren, zum anderen daran, daß diese Halbleiterdetektoren eine hohe Energieauflösung haben. Durch die Möglichkeit der meist eindeutigen Zuordnung bestimmter Energien zu bestimmten Radionukliden ist die Analyse von Radionuklidgemischen in den unterschiedlichsten Meßproben in der Regel ohne aufwendige Probenaufbereitung, vor allem ohne chemische Trennung, möglich. Auch ist das Ansprechvermögen der heutigen Germaniumdetektoren genügend groß, um in vertretbaren Zeiten auch geringe Aktivitäten mit ausreichender Genauigkeit zu messen.

Halbleiterdetektoren sind Ionisationsdetektoren, in denen Ladungsträger innerhalb eines Festkörpers mit speziellen Eigenschaften erzeugt werden. Diese Festkörper haben einige Vorteile gegenüber dem Gas in früher verwendeten Detektoren. Die Absorption ist wegen ihrer höheren Dichte wesentlich größer und die Energie, die zur Erzeugung von freien Ladungsträgern benötigt wird, ist um den Faktor 8 bis 10 geringer. Daraus folgt, daß für ein Teilchen gleicher Energie im Halbleiter wesentlich mehr Ladungsträger erzeugt werden, als in Gas- oder Szintillationsdetektoren. Als Konsequenz ist die Energieauflösung dieser Geräte sehr viel besser.

#### 4.1.1 Wechselwirkung von Strahlung mit Materie

Aus der Vielzahl möglicher Wechselwirkungen von  $\gamma$ -Strahlung mit Materie tragen in der Praxis nur drei wichtige Prozesse zum Energieübertrag und damit zum Nachweis innerhalb eines Detektors bei:

- Photoeffekt,
- Compton-Streuung,
- · Paar-Bildung.

In allen drei Fällen werden freie Elektronen im Absorber erzeugt, die ihrerseits beim Abbremsen im Material Ladungspaare erzeugen; im Falle eines Halbleiterdetektors sind dies Elektron-Loch-Paare. Für einen bestimmten Absorber und je nach Energie des  $\gamma$ -Quants tragen diese drei Effekte mit unterschiedlicher Wahrscheinlichkeit zur Ladungserzeugung im Detektor bei und bestimmen damit die charakteristische Form eines  $\gamma$ -Spektrums.

#### Photoeffekt

Bei der photoelektrischen Absorption findet eine Wechselwirkung zwischen  $\gamma$ -Quant und einem ganzen Atom statt, bei der ein gebundenes Elektron die gesamte  $\gamma$ -Energie aufnimmt und als "Photoelektron" mit der Energie  $E_e$  frei wird:

$$E_e = E_{\gamma} - E_b \tag{4.1}$$

wobei  $E_b$  die Bindungsenergie des Elektrons ist. Die Bindungsenergie geht der Gesamtenergie allerdings nicht verloren, da der frei gewordene Elektronenplatz unmittelbar aus höheren Schalen wieder besetzt wird. Durch Photoabsorption der dabei entstehenden charakteristischen Röntgenstrahlung oder in einigen Fällen auch durch die Aussendung von Auger-Elektronen wird der noch fehlende Energiebetrag  $E_b$  in einem mehrstufigen Prozeß im Absorber deponiert. Solange weder Primärelektronen, sekundäre Ladungsträger noch charakteristische Röntgenquanten das aktive Detektorvolumen verlassen, wird so die gesamte Energie des eingefallenen  $\gamma$ -Quants nachgewiesen. Bei monochromatischer Einstrahlung zeigt sich dieser Prozeß im Spektrum als Photoabsorptionslinie mit der Halbwertsbreite FWHM (englisch: Full Width at one-Half of Maximum Height). Diese setzt sich aus drei Teilen zusammen:

$$FWHM = \sqrt{FWHM_{El}^2 + FWHM_{La}^2 + FWHM_{St}^2}$$
(4.2)

Beim Halbleiterdetektor wird  $FWHM_{El}$  durch das Rauschverhalten der Elektronik bestimmt. Dieser Einfluß kann durch Kühlung deutlich reduziert werden. Zusätzlich kann eine weitere Verbesserung erreichen werden, wenn der Vorverstärker mitgekühlt wird. Aus diesem Grund werden Halbleiterdetektoren während des Betriebs mit flüssigem Stickstoff gekühlt.

Die Breite FWHM $_{La}$  gibt den Einfluß der Verluste an, die bei der Ladungsträgersammlung entstehen. Diese können beim Halbleiter durch Strahlenschäden und Verunreinigungen des Kristalls mit Fremdatomen (sog. "Ladungsträgerfallen") sowie durch den direkten Verlust von Ladungsträgern an den Rändern des aktiven Kristallvolumens verursacht werden. Als Auswirkung ist eine deutliche Asymmetrie des Photopeaks zu beobachten.

Die Größe  $FWHM_{St}$  schließlich beschreibt die statistische Schwankung bei der Ladungsträgersammlung. Sie ist nicht durch äußere Maßnahmen beeinflußbar und stellt die untere erreichbare Grenze der Halbwertsbreite FWHM dar.

Neben der Halbwertsbreite FWHM, die direkt die Auflösung des Detektors angibt, definiert man noch die Zehntelwertsbreite FWTM und die Fünfzigstelwertbreite FWFM. Die daraus gebildeten Verhältnisse FWTM/FWHM und FWFM/FWHM stellen ein empfindliches Maß für die Symmetrie der Gesamtabsorptionslinie dar. Im Idealfall der gaußförmigen Verteilung ist:

$$\frac{\text{FWTM}}{\text{FWHM}}\Big|_{\text{Gau}\beta} \approx 1,823 \quad \text{und} \quad \frac{\text{FWFM}}{\text{FWHM}}\Big|_{\text{Gau}\beta} \approx 2,376 \quad (4.3)$$

Der Photoeffekt ist der vorherrschende Wechselwirkungsprozeß niederenergetischer Photonenstrahlung mit Atomen hoher Ordnungszahl.

#### Compton-Streuung

Der Compton-Effekt ist ein inkohärenter Streuprozeß. Er beschreibt die Wechselwirkung zwischen einem  $\gamma$ -Quant und einem Elektron, bei der ein Teil der Energie an das Elektron abgegeben wird und beide Streupartner ihre Bewegungsrichtung ändern.

Mit  $E_{\gamma}$  als Energie des einfallenden Photons und der Ruheenergie des Elektrons  $m_0c^2$  gilt für die Energie des gestreuten Photons  $E'_{\gamma}$  die Compton-Streuformel

$$E'_{\gamma} = \frac{E_{\gamma}}{1 + \frac{E_{\gamma}}{m_0 c^2} (1 - \cos \theta)} \tag{4.4}$$

wobei  $\theta$  der Photonenstreuwinkel ist. Die Energie des gestreuten Elektrons und damit die im Detektor deponierte Energie ist

$$E_{e} = E_{\gamma} - E_{\gamma}' = E_{\gamma} \left( 1 - \frac{1}{1 + \frac{E_{\gamma}}{m_{0} c^{2}} (1 - \cos \theta)} \right)$$
(4.5)

Dieser Energieübertrag ist begrenzt und liegt minimal bei  $E_e=0$  also  $\theta=0^\circ$  oder maximal für  $\theta=180^\circ$  bei

$$E_e^{max} = E_{\gamma} \left( 1 - \frac{1}{1 + \frac{2E_{\gamma}}{m_0 c^2}} \right) \tag{4.6}$$

Diese sogenannte Compton-Kante tritt im Spektrum deutlich auf, wobei die Energielücke zum Photopeak der beim Photon verbliebenen Energie

$$E'_{\gamma}(\theta = 180^{\circ}) = \frac{E_{\gamma}}{1 + \frac{2E_{\gamma}}{m_0 c^2}}$$
(4.7)

entspricht.

Der Compton-Effekt ist für  $\gamma$ -Quanten mit Energien von 50 keV  $< E_{\gamma} <$  15 MeV bei Elementen kleiner Ordnungszahl und zwischen 500 keV  $< E_{\gamma} <$  5 MeV bei Elementen hoher Ordnungszahl der dominierende Prozeß.

#### Paar-Bildung

Ist die  $\gamma$ -Energie des Photons größer als die doppelte Ruheenergie eines Elektrons, also  $E_{\gamma} > 1022$  keV, dann kann im Coulomb-Feld eines Kerns ein Positron-Elektron-Paar gebildet werden. Dieses Teilchen-Paar nimmt die gesamte Photonenenergie auf, wobei der Anteil  $E_{\gamma} - 1022$  keV auf beide Teilchen als kinetische Energie verteilt wird. Das Positron wird abgebremst und zerstrahlt in Wechselwirkung mit einem einzelnen Elektron unter Aussendung von zwei  $\gamma$ -Quanten von je 511 keV. Wird die Vernichtungsstrahlung noch im Detektor absorbiert, so wird die gesamte Energie (FEP=Full Energy Peak) des Photons nachgewiesen. Verläßt während dieses Prozesses ein Vernichtungs-Photon den Detektor, entsteht der Single-Escape-Peak (SEP) mit einer Energie von  $E_{\gamma} - 511$  keV im Spektrum, und bei Verlust von beiden Photonen der Double-Escape-Peak (DEP) mit  $E_{\gamma} - 1022$  keV. Die Paarbildung dominiert im Bereich hoher Energien [Tei94].

#### 4.1.2 Halbleiter

#### Prinzip

In Kristallen spalten sich die diskreten Energieniveaus der einzelnen Atome zu Energiebändern auf, so daß es Bereiche erlaubter und verbotener Energien gibt. Je nach Material sind die Zustände dieser Bänder mit Elektronen besetzt. Bei Metallen überlappen sich das letzte besetzte und erste unbesetzte Band, so daß Elektronen direkt in dieses Leitungsband wechseln können. Bei Isolatoren befindet sich zwischen dem Valenzband (letztes besetztes Band) und dem Leitungsband eine relativ große Energielücke. Die Elektronen im Valenzband sind an die Atomkerne gebunden und können keinem angelegten elektrischen Feld folgen und leiten daher keinen Strom. Bei Halbleitern ist der Bandabstand so gering (kleiner als ca. 3 eV), daß schon bei Raumtemperatur einzelne Elektronen in das Leitungsband wechseln können und dort frei beweglich sind. Sie hinterlassen im Valenzband ein Loch, daß sich als positiv geladener Ladungsträger betrachten läßt, da ein benachbartes Elektronen leicht in dieses Loch springen kann und das Loch so im Valenzband wandern kann. Die Bandlücke beträgt in Germanium 0,66 eV [Dem71].

#### Dotierung

Wenn – beabsichtigt oder unbeabsichtigt – Fremdatome im Kristall eingebaut sind, die über mehr oder weniger Valenzelektronen verfügen, stehen sehr schwach gebundene Ladungsträger im Kristall zur Verfügung. Diese Ladungsträger können bei Dotierung mit 5-wertigen Atomen (sogenannte Donatoren) Elektronen sein, die sehr leicht in das Leitungsband wechseln können oder bei 3-wertigen Atomen (sogenannte Akzeptoren) Löcher im Valenzband darstellen, die leicht von benachbarten Elektronen besetzt werden können. Beispiele für verwendete Donatoren sind Arsen, Phosphor oder auch Antimon. Als Akzeptoren werden Aluminium, Bor, Gallium oder Indium eingesetzt.

Durch gezielte Dotierung kann man so Kristalle erzeugen, die einen positiven oder negativen Ladungsträgerüberschuß besitzen. Bei Raumtemperatur sind alle Donatoren ionisiert und ihre Elektronen befinden sich im Leitungsband, wo sie frei beweglich sind. Einen solchen Halbleiter bezeichnet man als n-dotiert. Analog verhält es sich bei Halbleitern, in welche gezielt Akzeptoren eingebaut sind. Diese werden p-dotiert genannt.

#### pn-Übergang

Bringt man nun einen p- und einen n-dotierten Halbleiter zusammen, so können Elektronen aus der n-Zone in die p-Zone diffundieren und dort mit Löchern rekombinieren. Innerhalb dieses pn-Übergangs baut sich durch die zurückbleibenden Donator- und Akzeptorionen ein elektrisches Feld auf, das die Diffusion begrenzt. Es bildet sich die Raumladungszone, welche frei von beweglichen Ladungsträgern ist und im Idealfall keinen Strom leitet. Legt man von außen eine Spannung an, so kann sich diese sich Zone verbreitern (Sperrspannung) oder so weit verkleinern, daß der Übergang schließlich Strom leitet [Bos92].

#### 4.1.3 Detektoren

#### Aufbau

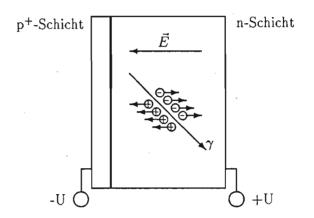


Abb. 4.1: Schematische Darstellung eines Halbleiterdetektors

Ein Halbleiterdetektor ist ein in Sperrichtung geschalteter p<sup>+</sup>n- oder n<sup>+</sup>p-Übergang. Das Symbol <sup>+</sup> bezeichnet einen stark dotierten Halbleiter. Die ionisierende Strahlung gelangt beispielsweise beim p<sup>+</sup>n-Detektor durch die relativ dünne p<sup>+</sup>-Schicht in das schwach dotierte n-Gebiet. Eine angelegte Sperrspannung sollte so hoch sein, daß sich die Raumladungszone möglichst über den gesamten Kristall erstreckt. Um eine verlustarme Ladungsträgersammlung zu gewährleisten, müssen die nachzuweisenden Teilchen oder Quanten ganz innerhalb des Detektorvolumens absorbiert werden. Die generierten Ladungsträgerpaare werden durch das starke elektrische Feld getrennt, bevor sie rekombinieren können. Die Kristalle der frühen Germanium-Detektoren waren wegen der damals erreichbaren Reinheit zunächst so stark p-leitend, daß sie zusätzlich mit Lithium n-dotiert werden mußten. Sie haben den Nachteil, daß sie ständig mit Stickstoff gekühlt werden müssen,

um die Verteilung des Lithiums im Kristall konstant zu halten. Der Kristall ist von einer Aluminiumkappe umgeben, die unter Umständen ein Eintrittsfenster aus einem Element niedriger Ordnungszahl, z.B. Beryllium, besitzt.

Zu der eigentlichen Detektoreinheit kommen noch weitere Komponenten hinzu:

- Abschirmung
- Elektronik
- Auswertungssystem

Die Abschirmung verringert den Untergrund durch Hintergrundstrahlung und besteht üblicherweise aus 10 cm dicken Bleiwänden, die den Proben- und Kristallbereich umgeben. Zur Absorption der Röntgenfluoreszenzstrahlung im Blei wird dieses noch mit einem Material niedrigerer Ordnungszahl, zum Beispiel Cadmium, ausgekleidet.

Die Elektronik besteht aus der Hochspannungsversorgung, dem Vorverstärker, welcher meist mit dem Detektor eine Einheit bildet, dem Spektroskopieverstärker sowie einem Impulshöhenanalysator mit Analog-Digital-Konverter (ADC). Ein angeschlossenes Auswertungssystem auf PC-Basis dient zur Ansicht, Analyse und Archivierung der aufgenommenen Spektren [Deb92].

#### Charakteristische Parameter

Als wesentliche Kenndaten von Germaniumdetektoren werden gewöhnlich angegeben:

- Material (Ge(Li) oder HPGe),
- Typ (planar oder koaxial),
- Relative Nachweiswahrscheinlichkeit  $\epsilon_{rel}$ ,
- Halbwertsbreite FWHM der 60 Co-Linie bei 1,33 MeV,
- Zehntelwertsbreite FWTM der gleichen Linie,
- Peak/Compton-Verhältnis für 1,33 MeV-Photonen.

Vor der Definition der relativen Nachweiswahrscheinlichkeit ist zunächst ist die absolute Nachweiswahrscheinlichkeit zu definieren [IEEE86]:

$$\epsilon_{abs} = \frac{A}{N_s} \tag{4.8}$$

Dabei ist A die Fläche des FEP einer bestimmten Linie und N, die in der gleichen Zeit von einer Quelle emittierten Quanten dieser Energie.

Die absolute Nachweiswahrscheinlichkeit für 1,33 MeV Quanten einer punktförmigen  $^{60}$ Co-Quelle in einem Abstand von 25 cm eines NaI(Tl)-Szintillators (3"×3" Kristallgröße) wird mit 1,2 · 10<sup>-3</sup> angegeben. Das relative Nachweisvermögen ist nach [IEEE86] definiert:

Die relative Nachweiswahrscheinlichkeit  $\epsilon_{rel}$  eines Germaniumdetektors ist das Verhältnis dessen absoluter Nachweiswahrscheinlichkeit der 1,33 MeV Linie einer punktförmigen  $^{60}$ Co-Quelle in 25 cm Entfernung von der Detektorkappe und der absoluten Nachweiswahrscheinlichkeit des oben beschriebenen NaI-Kristalls:

$$\epsilon_{rel} = \frac{\epsilon_{abs}}{1, 2 \cdot 10^{-3}} \tag{4.9}$$

Sie wird in Prozent angegeben.

Die Nachweiswahrscheinlichkeit hängt direkt mit dem sensitiven Volumen des Detektors zusammen, so daß man als Anhaltspunkt davon ausgehen kann, daß pro 25 g Germanium eine relative Nachweiswahrscheinlichkeit von 1 % resultiert.

Die Energieauflösung FWHM eines Detektors wird ebenfalls durch Messung der 1,33 MeV Linie einer punktförmigen <sup>60</sup>Co-Quelle in 25 cm Entfernung von der Detektorkappe bestimmt. In einer linearen Darstellung der Nettoimpulse über der Kanalzahl dieser Linie bestimmt man die halbe, zehntel und fünfzigstel Höhe des Peaks und interpoliert dessen Breite in diesen Höhen und erhält die FWHM, FWTM und FWFM. Die meisten Programme von PC-gestützten Meßsystemen können diese Parameter direkt aus der Peakdarstellung bestimmen. Der Vergleich der Verhältnisse von FWTM und FWFM zu FWHM beschreibt die Abweichung des Peaks von der theoretischen Form einer Gaußkurve [IEEE86].

Als letzten Parameter bestimmt man das Peak/Compton-Verhältnis. Unter den oben beschriebenen Bedingungen wird ein Spektrum aufgenommen und man bestimmt die mittlere Countzahl im Bereich von 1040 keV bis 1096 keV. Das Peak/Compton-Verhältnis ist nun definiert als die maximale Countzahl im 1,33 MeV-Peak zu dieser mittleren Countzahl [IEEE86].

#### 4.2 Ausgangszustand der $\gamma$ -Spektrometrie

#### **4.2.1** TMCA

Im November 1995 wurden für das ZSR zwei neue Meßplätze im Isotopenlabor eingerichtet, jeweils einer im sogenannten Iod-Labor und im sogenannten Strontium-Labor. Die bis zu diesem Zeitpunkt dort installierten ND-66 Systeme der Firma Nuclear Data wurden durch TMCA2-System der Firma target systemelectronics GmbH (Solingen) [Tmca96] ersetzt. Jeder Meßplatz bestand aus einem AT-kompatiblen PC, einem NaI-Szintillationsdetektor und einem Ge(Li)-Detektor im Iod-Labor bzw. einem HPGe-Detektor im Strontium-Labor mit der nötigen Elektronik. Jeder der Detektoren ist zur Reduzierung der Hintergrundstrahlung mit ca. 10 cm Blei umgeben.

Der NaI-Detektor im Iod-Labor ist zusätzlich mit einem automatischen Probenwechslersystem ausgerüstet. Dieses kann bis zu 30 Petri-Schalen durch einen Durchbruch der Abschirmung direkt über der Detektorkappe wechseln und eine automatische Auswertung durchführen. Dieses System ist in [Bot97] ausführlich beschrieben.

Das Vielkanalanalysatorensystem TMCA2, das die Detektoren steuert, besteht aus einem Softwarepaket sowie bis zu 8 TMCA2-Einsteckkarten für AT-kompatible Rechner. An jede Einsteckkarte können zwei externe ADCs angeschlossen werden. Da auf den Karten kein Speicher vorhanden ist, werden die Kanalinhalte im Hauptspeicher des Rechners abgelegt. Es findet keine Pufferung dieser Daten statt und sie sind somit beim Verlassen der TMCA-Software verloren. Dieses Programm gestattet dem Benutzer die Steuerung der Detektoren sowie einfache Analysen der Spektren. Abbildung 4.2 zeigt den Aufbau des TMCA-Systems.

Aus Gründen der Datensicherheit ist der ursprüngliche Meßplatz im Iod-Labor inzwischen in zwei unabhängige Systeme geteilt worden, so daß jetzt sowohl der Ge(Li)-Detektor als auch der NaI-Szintillator mit angeschlossenem Wechslersystem über eigene Elektronik und einen eigenen PC verfügen.

#### 4.2.2 Maestro

Im sogenannten Bestrahlungsblock war zunächst ein HPGe-Detektor der Firma Ortec an einen PC angeschlossen, der mit dem MAESTRO-System der Firma Ortec ausgerüstet ist. Im Chemie-Labor wurden bis Dezember 1996 zwei HPGe-Detektoren (von Ortec bzw. PGT) von einem PC mit einer ACCUSPEC-Karte gesteuert. Auf diesen beiden Detektoren

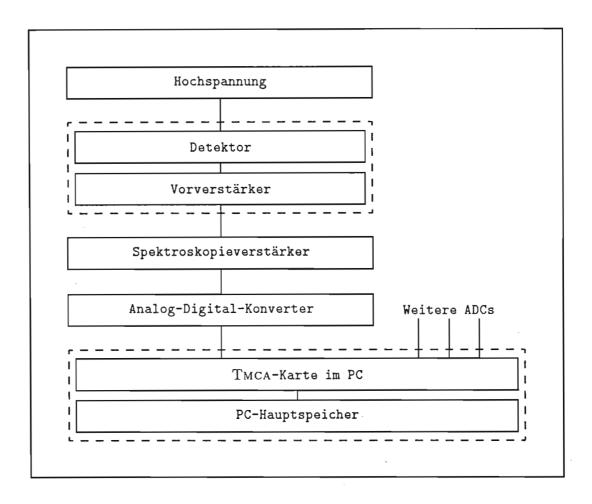


Abb. 4.2: Blockschema des TMCA2-Systems

erfolgten die in dieser Arbeit ausgewerteten Messungen. Ende 1996 wurden diese beiden Detektoren ebenfalls an das MAESTRO-System angeschlossen.

Das im Bestrahlungsblock eingesetzte MAESTRO-System besteht aus einer Einsteckkarte für AT-kompatible Rechner und einem Softwarepaket zur Bedienung der Detektoren und Bearbeitung von aufgenommenen Spektren. Die Detektorsignale werden in einem ADC digitalisiert und in einem MCB (Multi Channel Buffer) abgelegt. Es sind 16.384 Kanäle vorhanden, die auf bis zu vier Detektoren verteilt werden können. Der MCB besitzt nur einen integrierten Multiplexer-ADC, so daß sich die Totzeit eines Signals auf alle anderen auswirkt. Aus diesem Grund können neben Proben mit hohen Countraten keine anderen Proben gemessen werden. Diese Einschränkung besitzt das TMCA-System nicht. Abbildung 4.3 zeigt den Aufbau des MAESTRO-Systems.

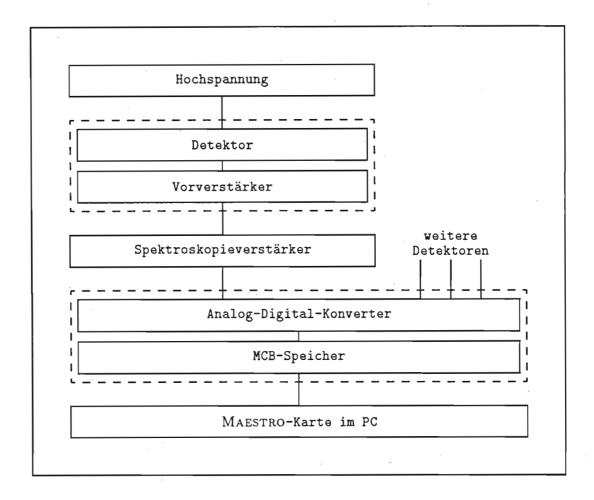


Abb. 4.3: Blockschema des Maestro-Systems

#### 4.2.3 Auswertung

Die Auswertung der aufgenommenen Spektren erfolgte meist direkt am Meßplatz, bei der nur eine manuelle Auswertung einzelner, bekannter Peaks durch Bestimmen der Nettofläche stattfand. Daneben gab es zu bestimmten Projekten Auswerteprogramme, die von Mitarbeitern des ZSR erstellt wurden und eine automatische Peaksuche durchführten und alle Peaks mit den ermittelten Nettoflächen ausdruckten. Diese Ausgaben wurden dann mit Tabellenkalkulationsprogrammen ausgewertet. Dieses Verfahren erlaubt nur eine eingeschränkte Flexibilität. Die einmal getroffene Zuordnung einer Kalibration zu einer Probe ist dann festgelegt und nachträglich nicht oder nur schwer zu ändern. Die Auswertung ist auf wenige Nuklide beschränkt, es findet keine gleichzeitige Überprüfung des gesamten Spektrums bezüglich unerwarteter oder auffälliger Peaks statt. Ebenso können Störungen des Detektors unter Umständen übersehen werden, wenn sich diese nicht auf den untersuchten Peak auswirken.

#### 4.2.4 GAMMAW

Das Programm GammaW der Dr. Westmeier Gesellschaft für Kernspektrometrie mbH ermöglicht im Gegensatz dazu eine automatische oder interaktive Auswertung der Spektren. Die Spektren werden in sich geprüft, es können Abweichungen von der vorgegebenen Auflösung der Detektoren festgestellt werden, die Auswertung eines Spektrums in verschiedenen Varianten ist problemlos möglich und jederzeit wiederhol- und nachvollziehbar.

GammaW analysiert  $\gamma$ -Spektren mit mehreren, geschachtelten Algorithmen, wobei um Peaks im Spektrum physikalisch sinnvolle Bereiche definiert werden. Die Peakflächen werden nach der Subtraktion des Untergrunds im betrachteten Bereich aus dem Fit einer analytischen Peakformfunktion an die Daten bestimmt, wobei innerhalb eines schmalen Fensters bis zu 30 Peaks berechnet werden können. Damit ist auch die Analyse sehr komplexer, sich überlappender Multipletts möglich. Der Peakflächenfehler wird als oberer Grenzwert eines statistischen Fehlers (aus der Qualität des Fits an die Daten) plus dem statistischen Fehler der Untergrundverteilung berechnet. Das Programm läuft auf üblichen MS-DOS Personal Computern.

Bei der Analyse von  $\gamma$ -Spektren durch GammaW wird zunächst das gesamte Spektrum iterativ in immer kürzere Regionen unterteilt. Die Region sollte so schmal wie möglich sein, um die Fit-Routinen zu beschleunigen. Die Regionsgrenzen werden in Bereiche gelegt, in denen keine signifikanten Diskontinuitäten des Spektrums auftreten. Das Programm bietet hierbei dem Benutzer die Möglichkeit diese Einteilung manuell zu korrigieren. Die Untergrundbestimmung durch GammaW folgt einem bekannten Algorithmus [Wes86]. Diese integrative Methode liefert eine geglättete Funktion unter dem Peak. Nach der Untergrundsubtraktion werden die Peaks im verbleibenden Spektrum unter Bildung einer ersten und zweiten Ableitung gesucht. Die gefunden Peaks werden analysiert und verschiedenen Tests unterzogen, um zu entscheiden, ob ein "echter" Peak vorliegt. Nach Abschluß dieser Fit-Prozedur kann der Benutzer am Bildschirm entscheiden, ob dieser Peak in die Ergebnisliste aufgenommen wird, ob er mit neuen Bereichsgrenzen noch einmal berechnet oder ob er verworfen wird.

Die Ergebnisliste wird ausgegeben und intern in GAMMAW gespeichert, um die Peaks anschließend Radionukliden zuzuordnen und bei einer vorgenommenen Nachweiswahrscheinlichkeits-Kalibration die linienspezifischen Aktivitäten zu berechnen.

#### **Energie-Kalibration**

Die Definition der Zuordnungsfunktion zwischen der Kanallage und der entsprechenden Energie in keV kann in GAMMAW auf verschiedene Weisen durchgeführt werden. Die Koeffizienten eines quadratischen Polynoms können eingegeben werden, eine Tabelle mit bekannten Kanal/Energie-Paaren kann definiert werden, oder die Kalibration erfolgt interaktiv in der Spektrendarstellung. Der Benutzer steuert einen Peak mit dem Cursor an, GAMMAW ermittelt die genaue Kanallage des Peaks und der Benutzer gibt die entsprechende Energie ein.

Auf diese Weise können bis zu 20 Wertpaare (Kanallage/Energie) definiert werden, die dann von GAMMAW verwendet werden, um die Koeffizienten  $E_1$ ,  $E_2$  und  $E_3$  des Kalibrierpoloynoms der Form

Energie [keV] = 
$$E_1 + x \cdot E_2 + x^2 \cdot E_3$$
 (4.10)

zu berechnen. Dabei ist x die Kanalzahl und  $E_1$ ,  $E_2$ ,  $E_3$  sind die least-squares gefitteten Koeffizienten. Diese werden zusammen mit den zugehörigen Unsicherheiten und den Wertpaaren (wie auch alle anderen Kalibrationsdaten) in einer Datei zur späteren Verwendung abgelegt. Der Fit wichtet alle Datenpunkte gleich, allerdings können einzelne Datenpunkte interaktiv entfernt werden, wenn eine fehlerhafte Eingabe erfolgte. Diese läßt sich am ausgegebenen Fit-Parameter feststellen. Er liegt üblicherweise unter 0,50. Die Genauigkeit der Kalibration von unter 1 keV im gesamten Spektrum genügt zur zuverlässigen Identifikation der zu erwartenden Radionuklide.

#### Halbwertsbreiten-Kalibration

Für die Auswertung der Spektren benötigt GammaW sehr zuverlässige Startwerte der Halbwertsbreitenfunktion, das heißt der Halbwertsbreite (FWHM) von Peaks als Funktion der Kanalzahl. Diese Funktion ist das entscheidende Kriterium des Ablaufs des Peak-Fit-Prozesses in GammaW. Das Programm ermittelt beim Laden eines Spektrums eine vorläufige Zuordnung von signifikanten Singlett-Peaks und deren Halbwertsbreite. Aus diesen Werten wird die Kalibrationsfunktion

FWHM [Kanäle] = 
$$F_1 + x \cdot F_2 + x^2 \cdot F_3$$
 (4.11)

im least-squares Fit bestimmt. Dabei ist x die Kanalzahl und  $F_1$ ,  $F_2$ ,  $F_3$  sind die Koeffizienten des Polynoms. Dieser quadratische Fit wird entgegen der theoretisch erwarteten

Abhängigkeit FWHM  $\sim \sqrt{E_{\gamma}}$  verwendet, da hierdurch die experimentellen Daten wesentlich besser beschrieben werden [Wes96]. Diese automatische Erzeugung der FWHM-Funktion versagt bei Spektren, die keine signifikanten Peaks oder nur solche mit schlechter Statistik enthalten, oder sehr komplex sind. Die FWHM-Funktion bleibt für einen fehlerfreien Detektor über lange Zeit unverändert und muß somit nur einmal zuverlässig bestimmt werden. Der Benutzer kann einzelne Datenpaare löschen und die Funktion neu fitten lassen, so daß beispielsweise die Vernichtungsstrahlung bei 511 keV von der weiteren Berücksichtigung ausgeschlossen werden kann. Auch hier kann nach Abschluß des Fits ein Parameter durch GammaW ausgegeben werden, der in allen Fällen unter 0,30 und in den allermeisten Spektren unter 0,15 liegen sollte.

#### Efficiency-Kalibration

Die Definition einer typischen Efficiency-Funktion in GammaW erfolgt in zwei Energiebereichen, die stetig verbunden werden. Im höherenergetischen Bereich ab ca. 200 keV wird die Efficiency  $\epsilon$  durch ein quadratisches Polynom in doppelt-logarithmischer Darstellung beschrieben:

$$\ln \epsilon(E_{\gamma}) = e_1 + \ln(E_{\gamma}) \cdot e_2 + \ln^2(E_{\gamma}) \cdot e_3 \tag{4.12}$$

Zur Beschreibung des deutlichen Absinkens der Efficiency zu niedrigen Energien hin, hat sich eine normierte Arcus-Tangens-Funktion als geeignet erwiesen [Wes96]. Somit hat die typische Efficiency-Funktion von p-Type Halbleiterdetektoren die empirische Form:

$$\ln \epsilon(E_{\gamma}) + 25 = (e_1 + \ln(E_{\gamma}) \cdot e_2 + \ln^2(E_{\gamma}) \cdot e_3) \times$$

$$2/\pi \cdot \arctan(\exp(e_4 + \ln(E_{\gamma}) \cdot e_5 + \ln^3(E_{\gamma}) \cdot e_6)) \tag{4.13}$$

Auch diese Koeffizienten  $e_1$ ,  $e_2$ ,  $e_3$ ,  $e_4$ ,  $e_5$ ,  $e_6$  werden in einem least-squares-Fit durch GAM-MAW nach der Definition von mindestens sechs ermittelten Nachweiswahrscheinlichkeiten zu bestimmten Energien errechnet und mit einem Fit-Parameter bewertet. Als Beispiel für den Verlauf dieser Funktion zeigt Abbildung 4.4 diese Funktion für einen Standard.

Zur Vereinfachung bietet GammaW die Möglichkeit, die Wertetabelle aus einem gerade analysierten Spektrum zu bestimmen. Dabei wird davon ausgegangen, daß es sich um die Messung einer definierten Aktivität oder einer bekannten Kalibriermischung verschiedener Radionuklide handelt. Dieser Vorgang erfolgt in mehreren Teilen: Zunächst wird das Spektrum geladen, eine passende Energie- und Halbwertsbreitenkalibration gesetzt und das Spektrum analysiert. Dies sollte in jedem Fall interaktiv, also unter Kontrolle

des Benutzers passieren, da die ermittelte Nachweiswahrscheinlichkeitsfunktion sich auf alle weiteren Ergebnisse auswirkt. GAMMAW speichert die gefundenen Peaks (Position, Fläche, Fehler und Qualität) in einer Tabelle. Danach wird eine Bibliothek geladen, in der alle Nuklide des Standards aufgeführt sind. Nach Eingabe von Daten zur Zerfallskorrektur (Eichdatum und Meßdatum) testet GAMMAW nun für alle Nuklide in der Bibliothek, ob sie im Spektrum mit ihren Linien vertreten sind. Falls ein Nuklid identifiziert wurde, fragt GAMMAW nach der Aktivität und berechnet für jede Linie dieses Nuklids aus der Peakfläche N, der Meßzeit t, der Emissionswahrscheinlichkeit p und der eingegebenen Aktivität A die Nachweiswahrscheinlichkeit  $\epsilon$  für  $\gamma$ -Quanten dieser Energie E nach

$$\epsilon(E) = \frac{N}{t \cdot A \cdot p} \tag{4.14}$$

Als einzige Eingaben des Benutzers sind hierbei die Aktivität A des Nuklids, deren Unsicherheit  $\Delta A$  und Daten zur Zerfallskorrektur nötig, da die Informationen N und t im Spektrum enthalten sind und p aus der Nuklidbibliothek gelesen wird. Neben  $\epsilon$  bestimmt GammaW auch die Unsicherheit dieses Wertes, indem die Abweichungen von N und A berücksichtigt werden. Als Ergebnis liefert GammaW die sechs Koeffizienten der Kalibrationsfunktion (4.13) mit deren Unsicherheiten und speichert diese zusammen mit den Tabellenwerten in einer Datei.

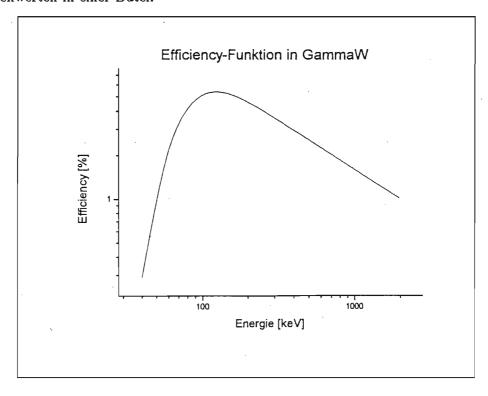


Abb. 4.4: Beispiel einer Efficiency-Kurve

Diese Standardspektren können beispielsweise unter Verwendung einer geeichten Nuklid-Mischlösung erstellt werden. Es ist allerding nicht möglich, verschiedene Einwaagen der Standardlösungen zu berücksichtigen, so daß die Aktivität jedes Nuklids zuvor aus dem Datenblatt der Mischlösung und der verwendeten Menge zu berechnen ist. Bei vielen Standards (im Rahmen dieser Arbeit über 30) und vielen Nukliden (im Falle der verwendeten PTB-Mischlösung sieben) sind daher unter Umständen viele Werte fehlerfrei einzugeben, wobei noch zusätzlich die Schwierigkeit besteht, daß GammaW Nuklide, die zwar in der Bibliothek, nicht aber im Spektrum vorkommen, nicht meldet. Dadurch können die Eingaben durch den Benutzer falschen Nukliden zugeordnet werden. GammaW bietet keine Möglichkeit an, diesen Ablauf zu automatisieren und den besonders zu Fehlern neigenden Menschen, der die Eingaben der Aktivitäten von Hand machen muß, zu umgehen.

#### Analyse und Aktivitätsbestimmung

Nachdem alle erforderlichen Kalibrationen erstellt worden sind, können nun die Proben ausgewertet werden. Ein Spektrum wird geladen, die zugehörigen Kalibrationsdateien eingelesen und eine Bibliothek der erwarteten Nuklide definiert. GammaW analysiert mit interaktiver Beteiligung des Benutzers das Spektrum, und gibt dabei eine Peakliste aus. Anschließend gibt der Benutzer die Probenmasse  $m_p$  und Daten zur Zerfallskorrektur (Meßdatum  $T_m$  und Bezugsdatum  $T_b$ ) ein. GammaW untersucht nun für jedes Nuklid i der Bibliothek, ob eine Linie j im Spektrum gefunden werden konnte, und berechnet die sich daraus für dieses Nuklid ergebende massenspezifische Aktivität nach

$$a_i^j = \frac{N_i^j}{t \cdot \epsilon(E) \cdot p_i^j \cdot m_p} \cdot \exp\left(\frac{\ln 2 \cdot (T_m - T_b)}{T_{\frac{1}{2}}}\right) \tag{4.15}$$

mit  $N_i^j$  der Peakfläche, t der Meßzeit und  $T_{\frac{1}{2}}$  der Halbwertszeit. Diese einzelnen massenspezifischen Aktivitäten und deren Unsicherheiten für die verschiedenen Linien eines Nuklids werden zusammen mit den Bibliotheksdaten (Energie und Emissionswahrscheinlichkeit) ausgegeben. Nachdem alle Einzelaktivitäten ausgegeben wurden, berechnet GammaW den fehlergewichteten Mittelwert und zeigt ihn ebenfalls an.

GAMMAW kann Befehle auch aus einer Textdatei lesen, die dann automatisch ausgeführt werden. Dieses ist System relativ inflexibel, da nicht an beliebigen Stellen Benutzereingaben erfolgen können, und es ermöglicht keine Kontrolle über das Verhalten von GAMMAW, wenn Spektrums- oder Kalibrationsdateien nicht gefunden wurden. Ferner unterstützt

GAMMAW maximal 26 Zeichen für Dateinamen, was eine projektbezogene Verzeichnisstruktur auf der Festplatte praktisch unmöglich macht.

#### 4.3 Qualitätssicherung bei Radioaktivitätsmessungen

Das Ziel der Qualitätssicherung ist die Gewährleistung von Qualität, im Falle eines Umweltlabors ist dies die Sicherheit bei den analytischen Aussagen. Nach DIN ISO 9000 ff. und DIN EN 45.000 ff. ist die Qualitätssicherung ein Sammelbegriff für notwendige Maßnahmen, die es erlauben, Aussagen über die Qualität und Fehler von Ergebnissen zu treffen. Qualität im Sinne der Qualitätssicherung ist damit die Gebrauchstauglichkeit und ein Maß für die Erfüllung von bestimmten Forderungen. Mehrere Parameter sind für die Qualität von Meßergebnissen von Bedeutung:

#### • Qualifikation der Mitarbeiter:

Theoretische Kenntnisse und entsprechende Weiterbildung sind eine entscheidende Voraussetzung für die Beurteilung von analytischen Problemen und eine richtige Interpretation von Ergebnissen.

#### • Qualität der Prüfeinrichtungen:

Die zur Qualitätskontrolle eingesetzten Geräte müssen regelmäßig gewartet, gepflegt, kalibriert und gegebenenfalls geeicht werden.

#### • Qualität der Analyseverfahren:

Die Validierung von Analyseverfahren und die Auswertung von Analyseergebnissen müssen nach einheitlichen Grundsätzen erfolgen, um Vergleiche zwischen verschiedenen Verfahren anstellen zu können. Ein Analyseverfahren muß ständig darauf hin überprüft werden, ob es der einmal festgeschriebenen Verfahrensbeschreibung entspricht.

Die Qualitätskontrolle bei Radioaktivitätsmessungen besteht aus laborinternen und laborexternen Kontrollen.

#### 4.3.1 Laborinterne Qualitätskontrolle

Die laborinternen Qualitätskontrollen umfassen:

- Die Kontrolle der Reproduzierbarkeit eines Detektorsystems oder Meßplatzes (Funktionskontrolle) durch wiederholte Messungen in bestimmten Zeitabständen an derselben Probe unter gleichen Meßbedingungen. Dabei sollen auch die relevanten Detektorparameter Auflösung und Nachweiswahrscheinlichkeit in einem Standardverfahren überprüft werden.
  - Dafür müssen einfach zu bedienende und automatisch ablaufende Programme entwickelt werden, die diese Aufgabe nach der Aufnahme eines Kalibrationsspektrums durchführen und die Ergebnisse ausgeben und protokollieren.
- Die Kontrolle der Richtigkeit einer Methode durch wiederholte Messungen von Standardproben, die von der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt (PTB) bereitgestellt werden. Hierfür sind auch Proben geeignet, die von den Leitstellen aus PTB-Standards hergestellt und zur Durchführung von Ringversuchen an die Meßstellen versandt werden. Damit können systematische Fehler eines Verfahrens erkannt werden. Diese Proben können auch zur Kontrolle der Reproduzierbarkeit benutzt werden.
- Die regelmäßige Kontrolle des Untergrundes durch Hintergrundstrahlung, gegebenenfalls mit Blindproben.
- Die Auswertung von extern bezogenen Standard-Proben (z.B. von der IAEA).
- Stichprobenartige Wiederholungen von Messungen und Auswertungen.

Beispiele für Umfang, Häufigkeit und Art der laborinternen Qualitätskontrollen sind in der Tabelle 4.1 zusammengestellt. Die Durchführung und Ergebnisse dieser Messungen müssen protokolliert und kontrolliert werden [Kan92].

Die bei den wöchentlichen Kontrollmessungen bestimmten Detektorparameter sollten protokolliert und zusammen mit allen technischen Daten aufbewahrt werden. Alle Standardeinstellungen der Elektronik sollten festgeschrieben sein, alle Änderungen an Einstellungen oder Parametern, das Hoch- und Herunterfahren der Detektoren muß aufgezeichnet werden und alle Parameter mit den Vorgaben verglichen werden. Weitere Bespiele für Kontrollpunkte sind [Hei95]:

• Qualität der Probenlagerungs- und Konservierungsmaßnahmen testen,

Kontrollpunkt	Durchführung	Häufigkeit
Reproduzierbarkeit	Messung eines Punktpräperates	wöchentlich
	oder einer geeigneten Probe in gut	
	reproduzierbarer Geometrie, dabei	
	Schnellanalyse der wichtigsten De-	
	tektorparameter	
Untergrund durch	Nulleffektmessung mit leerem,	14-tägig bis
Hintergrundstrahlung	bzw. ohne Meßgefäß mit möglichst	monatlich
	langen Meßzeiten (z.B. während ei-	
,	nes Wochenendes); Blindproben bei	
	neuem Probenmaterial	
Richtigkeit	Messung von Standardproben	vierteljährlich

Tab. 4.1: Übersicht der laborinternen Qualitätskontrollen

- Festschreiben der Methodenparameter,
- Probenplanung und Probenverwaltung,
- einheitliche Dokumentation der Ergebnisse.

## 4.3.2 Laborexterne Qualitätskontrolle

Neben laborinternen sind ebenfalls laborexterne Kontrollen durchzuführen. Ringversuche unter Beteiligung vieler Laboratorien und Vergleichsmessungen zwischen zwei Laboratorien geben dem einzelnen Labor Hinweise auf mögliche systematische Fehler. Bei geeigneter Auswertung liefern Ringversuche darüber hinaus mit der "Vergleichbarkeit" diejenige Größe, die für die Beurteilung der Differenzen von Meßwerten aus verschiedenen Laboratorien wesentlich ist. Mit diesen Messungen soll der Nachweis erbracht werden, daß die jeweiligen Meßstellen Radioaktivitätsmessungen mit einer bestimmten Vergleichbarkeit im Routinebetrieb durchführen können.

Man kann davon ausgehen, daß für Kontrollmessungen, wie sie hier beschrieben wurden, etwa 10 % des Arbeitsaufwandes im Laboratorium entfällt [Kan92].

# Kapitel 5

# Weiterentwicklung des $\gamma$ -Spektrometrie-Systems

# 5.1 Konzept einer Integration

## 5.1.1 Einheitliche Steuerung

Um die Verwendung von mehreren, sehr unterschiedlich zu bedienenden Meßsystemen (TMCA und MAESTRO) für den Benutzer so einfach wie möglich zu machen, wurde die Entwicklung einer einheitlichen Bedienungsoberfläche erforderlich. Da sich die Konzepte von TMCA und MAESTRO intern stark unterscheiden, wurden zwei getrennte Programme entwickelt, welche die gleiche Oberfläche bereitstellen und auch aufgetretene Schwächen der jeweiligen Systeme beseitigten. Im Rahmen dieser Diplomarbeit wurde die Oberfläche (AUTOMESS-II) für das TMCA-System entwickelt, die MAESTRO-Variante wird in [Bot97] beschrieben. Für den Benutzer stellen sich beide Programme gleich dar und sind gleich zu bedienen. Bei der Entwicklung der Programme stand die Sicherheit der Daten im Vordergrund, da jeder Detektor von verschiedenen Personen in verschiedenen, voneinander unabhängigen Projekten benutzt wird.

#### 5.1.2 Protokoll-Datei

Alle Vorgänge, die in Automess-II vorgenommen werden, z.B. Starten einer Messung, Speichern einer beendeten Messung, Abbrechen einer Messung usw., werden in einer Protokolldatei gespeichert, so daß nachträglich eine Rekonstruktion der Abläufe möglich ist.

Da AUTOMESS-II zu Programmbeginn den Benutzernamen erfragt, kann man sich bei Problemen direkt an die verantwortliche Person wenden.

### 5.1.3 Sicherer Ablauf der Messungen

Alle beendeten Messungen werden so schnell wie möglich durch AUTOMESS-II gespeichert, da weder in MAESTRO noch in TMCA eine flexible und automatische Speicherung möglich ist. Dabei finden zwei verschiedene Konzepte Anwendung: MAESTRO kann das Ende einer Messung einem externen Programm nicht mitteilen, so daß hier die Speicherung einer Messung beim nächsten Start erfolgt. TMCA besitzt die Möglichkeit, nachdem eine Messung beendet ist, ein externes Programm zu starten. AUTOMESS-II nutzt dies, um dann sofort und automatische die Messung zu speichern. Dies ist gerade beim TMCA-System wichtig, da die aufgenommenen Spektren nicht extern in einem MCB, sondern direkt im Hauptspeicher des PCs gespeichert werden. Ein (beabsichtigtes oder unbeabsichtigtes) Beenden des TMCA-Hauptprogramms führt unwiderruflich und ohne Rückfrage zum Datenverlust. Als weitere wichtige Erweiterung des ursprünglichen TMCA-Systems bietet AUTOMESS-II eine wesentlich größere Sicherheit gegen unbeabsichtigtes Löschen bestehender Spektren. In TMCA erfolgt keine Rückfrage vor dem Überschreiben einer bestehenden Datei, Auto-MESS-II besitzt diese Schwäche nicht. TMCA erlaubt nur die Verwendung von bis zu 15 Zeichen für den Dateinamen. Dies erlaubt es nicht, Messungen zu verschiedenen Projekten in verschiedenen Unterverzeichnissen abzulegen. Automess-II beseitigt dies durch die dynamische Zuweisung von virtuellen Laufwerken über den MS-DOS Befehl SUBST. Dabei wird intensiv von der Möglichkeit Gebrauch gemacht, daß ein Programm, daß durch eine Batch-Datei in TMCA gestartet wurde, diese Batch-Datei dann während des Ablaufs

## 5.1.4 Meßdatenerfassung

In der Ausgangskonfiguration von TMCA kann zu einem Spektrum nur ein freier Kommentar in der Datei gespeichert werden, es findet keine Kontrolle der eingegebenen Daten statt. AUTOMESS-II definiert eine Informationsstruktur in diesem Kommentarfeld, welche eine Speicherung der Informationen zum verwendeten Detektor, dem bearbeiteten Projekt, der verwendeten Geometrie, der Probenbezeichnung, dem Gewicht der Probe und weiteren Parametern erlaubt. Die zur Messung gespeicherten Informationen sind auch bei der

verändern kann und damit TMCA durch AUTOMESS-II gesteuert werden kann.

MAESTRO-Oberfläche definiert, so daß ein beliebiges Umwandeln der Formate ineinander möglich ist, ohne dabei Informationen zu den Meßparametern zu verlieren.

Als Folge dieser Standardisierung der Probenparameter ist es für die spätere Auswertung gleichgültig, unter welchem System die Messung aufgenommen wurde, da alle Informationen austauschbar sind und in der gleichen Weise interpretiert werden.

## 5.1.5 Automatisierung

Um die Verwaltung dieser Meßparameter möglichst komfortabel zu gestalten, bietet Automess-II bei den wichtigsten Parametern eine Auswahl aus einer vorher definierten Liste an. Dies sorgt auch dafür, daß die Bezeichnungen für Projekt, Detektor und Geometrie eindeutig und benutzerunabhängig sind. Da zu einem Projekt oft mehrere Messungen mit gleichen oder ähnlichen Parametern gehören, können diese festen Vorgaben mit einem Projekt verknüpft werden und brauchen somit nicht mehr eingegeben zu werden. Sich wiederholende Messungen können so mit wenigen Handgriffen zuverlässig und sicher gestartet und gespeichert werden.

## 5.1.6 Organisation der Meßdaten

Bei denen bis Dezember 1996 auf den beiden Detektoren im Chemie-Labor unter AccuSpec gemessenen Spektren, die in dieser Arbeit mit GammaW ausgewertet wurden, erfolgte die Auswertung direkt nach dem Ausdruck der Peakliste, die in Papierform aufbewahrt wurde. Nachdem die beiden in diesem Projekt genutzten Detektoren nun an den Maestro-Platz angeschlossen sind, kommt auch hier Automess-II zum Einsatz, so daß hier die Organisation und Verwaltung der Dateien und deren Charakterisierung unterstützt wird und auch von verschiedenen Mitarbeitern einheitlich durchgeführt werden kann.

# 5.2 Änderungen an TMCA

Die überladene Menustruktur von TMCA wurde auf die Bedürfnisse jedes Meßplatzes angepaßt und die "gefährlichen" Befehle, wie z.B. Beenden des Programms, versteckt. Automess-II oder ein eingewiesener Mitarbeiter kann aber weiterhin alle Befehle benutzen. Sich wiederholende Befehle wurden zusammengefaßt und in die Menustruktur integriert. Die neu erstellten Programme wie Automess-II oder das Programm, das den automatischen Probenwechsler steuert [Bot97], sind ebenfalls in diese neue Menustruktur integriert.

# 5.3 Automatische Auswertung

#### 5.3.1 Ziele der Entwicklung

Eine automatische oder halbautomatische Auswertung von Spektren ist unter mehreren Gesichtspunkten von Vorteil:

- Schnellerer Ablauf der Analyse der Daten
- Einheitliche Auswertung für alle Daten
- Flexibilität der Eingangsparameter
- Darstellung der Ergebnisse standardisiert
- Kein fehleranfälliges "Abschreiben" von Ergebnissen
- Routinekontrolle aller Spektren möglich

Bei einem projektbezogenen Auswertungssystem, wie es im Rahmen dieser Diplomarbeit entwickelt wurde, können alle Ausnahmen und Besonderheiten integriert werden. Ziele des entwickelten Auswertungssystems waren neben den oben angeführten Punkten:

- Untersuchung des bisher verwendeten Verfahrens
- Identifikation von möglichst allen vorkommenden Peaks
- Analyse der Abhängigkeit der Ergebnisse von den verwendeten Eingangsparametern
- Schnelle, weitgehend automatisierte Auswertung der Spektren

## 5.3.2 Konzept der Auswertungssoftware

Das Programm GammaW wird als Werkzeug benutzt, das für alle relevanten Nuklide eine gemittelte, zerfallskorrigierte, massenspezifische Aktivität bestimmt und in einer Standardform als Textdatei ausgibt. Die Befehle, die zur Steuerung von GammaW dienen, werden auf bestimmte Aufgaben hin durch externe Programme generiert und in GammaW ausgeführt. Die Auswertung besteht im Wesentlichen im Analysieren, Sortieren und Zusammenfassen der erzeugten Textdateien.

Da im Verlaufe der Auswertung von ca. 300 Spektren insgesamt bis zu 10.000 Dateien erzeugt werden könnten, ist es wichtig, daß konsequent einer Kennzeichnung der Dateien über die Extension erfolgt und diese in verschiedenen Verzeichnissen abgelegt werden.

Extension	Bedeutung
*.AKT	Ausgabeliste der spezifischen Aktivitäten durch GAMMAW
*.DAT	Spektrumsdateien im binären AccuSpec Format
*.EFF	Nachweiswahrscheinlichkeits-Kalibration
*.EIN	Tiefeneinträge in ein Profil
*.ENE	Energiekalibration
*.FIL	GAMMAW-Kommandodateien
*.FWH	Halbwertsbreitenkalibration
*.GEF	Gefundene Nuklide aus den *.AKT-Dateien
*.INF	Alle Informationen zu einer Messung
*.LIB	Binärformat der Nuklidbibliotheken
*.NUK	Textinhalt einer Nuklidbibliothek
*.PEA	Durch GAMMAW erzeugte Peakliste
*.RES	Spezifische Aktivitäten aller Nuklide mehrerer Spektren
*.?TB	Tabellenformatierte Kalibrationsdateien zur Analyse

Tab. 5.1: Die verwendeten Dateiextensionen

Tabelle 5.1 zeigt eine Übersicht der verwendeten Dateiextensionen. Alle Dateitypen, außer den explizit als binär gekennzeichneten, sind Textdateien im ASCII-Format und damit jederzeit durch einfache Editoren zu betrachten und zu bearbeiten.

Unter Verwendung des MS-DOS Befehls SUBST werden mehrere virtuelle Laufwerke definiert, welche die Verteilung aller nötigen Dateien auf mehrere Verzeichnisse erlauben. Die Zuordnung der einzelnen Laufwerke auf bestimmte Dateigruppen kann man Tabelle 5.2 entnehmen.

Tab. 5.2: Zuordnungen der virtuellen Laufwerke

Laufwerk	Zugeordnete Dateigruppe
E:	erzeugte Ergebnisdateien (*.PEA,*.AKT,*.?TB,*.GEF,*.RES,*.EIN)
F:	extern generierte GammaW-Kommandodateien (*.FIL)
I:	Informationsdateien zu den Spektren (*.INF)
K: `	Kalibrationsdateien (*.ENE,*.FWH,*.EFF)
N:	Nuklidbibliotheken (*.LIB,*.NUK)
S:	Spektrumsdateien (*.DAT)

Die entwickelten Programme arbeiten fast alle nach dem gleichen Prinzip: Eine Datei eines bestimmten Formats wird gelesen, verarbeitet und in einem anderen Format ausgegeben, bis am Ende eine Liste der Einträge in die verschiedenen Bodenprofile erzeugt wird, in der alle identifizierten Nuklide aufgeführt sind.

# 5.3.3 Ausgangssituation

Die Messungen wurden von verschiedenen Mitarbeitern unseres Instituts durchgeführt und die Ergebnisse einer anschließenden Auswertung in eine Tabelle übernommen und weiterverarbeitet. Es wurde nicht darauf geachtet, alle Spektren zu speichern und eine einheitliche Namensvergabe zu etablieren. Es waren daher zu Beginn der Auswertungen im Rahmen dieser Diplomarbeit nicht alle bis dahin gemessenen Spektren als Dateien verfügbar, und falls vorhanden, so waren sie willkürlich und ungeordnet über mehrere Disketten verteilt. Die im Spektrum abgelegten Zusatzinformationen zu Probenort und -nummer, verwendeter Geometrie und Einwaage waren nicht vorgegeben und variierten je nach Mitarbeiter. Diese waren in Einzelfällen unvollständig oder falsch zugeordnet. Sie wurden nur zu Informationszwecken mitgespeichert und sollten ursprünglich nicht durch andere Programme zur eindeutigen Kennzeichnung verwendet werden.

Im Laufe der schon vorgenommenen Auswertungen stand das Verfahren zur Bestimmung der Einträge fest und sollte auch beibehalten werden. Allerdings war es im bisherigen Verfahren nicht möglich, den Einfluß verschiedener Eingangsparameter zu bestimmen. Es konnten nachträglich nur sehr umständlich oder gar keine Veränderungen mehr vorgenommen werden.

## 5.3.4 Ablauf der Auswertung

Die Auswertung der gemessenen Spektren bis zur Ausgabe der deponierten Aktivitäten vollzieht sich in mehreren Schritten, die in Abbildung 5.1 in einer Übersicht dargestellt sind. Die einzelnen Schritte bestehen dabei in der Regel in der Ausführung von einem oder mehreren Programmen, die dann automatisch ablaufen können. Eingriffe durch den Benutzer sind nur zwischen den Schritten nötig, um die gewonnen Informationen für den nächsten Teilschritt richtig zuzuordnen. Bei einer einmal festgelegten Konfiguration kann aber die gesamte Auswertung von beliebig vielen Profilen auf einen Befehl hin vorgenommen werden. Der Punkt Visualisierung im gestrichelten Kästchen ist nur bei der Darstel-

lung der Einträge in Abhängigkeit der Tiefe nötig und muß mit einem externen Programm wie Excel oder Origin erfolgen.

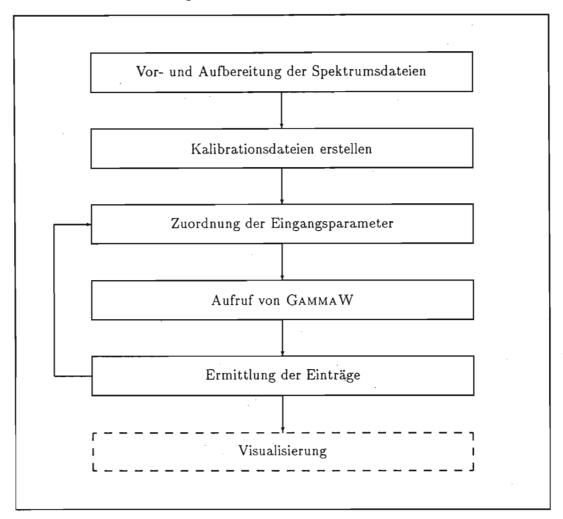


Abb. 5.1: Prinzipieller Ablauf der Auswertung

#### Vor- und Aufbereitung der Spektrumsdateien

Nachdem alle auf Datenträger verfügbaren Spektren zusammengetragen waren, mußten diese einheitlich benannt werden. Alle Messungen erfolgten auf zwei HPGe-Detektoren, die institutsintern mit CURT und CARL bezeichnet werden. Im Dateinamen sollten direkt der verwendete Detektor, der Probenort, die Probennummer und die Schichttiefe erkennbar sein. Es wurde daher das in Abbildung 5.2 dargestellte Muster festgelegt. Dieses führt bei einer Sortierung der Dateien nach ihrem Namen automatisch zu einer Zusammenstellung aller zu einer Probe gehörenden Dateien, so daß man sofort erkennen kann, ob ein Profil komplett vorliegt.

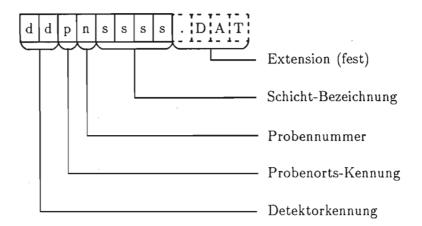


Abb. 5.2: Aufbau der Spektrumsdateinamen

Für "dd" sind CU oder CA erlaubt, "p" ist für die jeweilige Probe im Anhang A.1 angegeben, "n" ist eine Zahl zwischen 1 und 9 und "ssss" ist die Bezeichnung der Schichttiefe, und zwar 0000, 0001, 0102, 0203, 0305, 0510, 1015, 1520, 2025 oder 2540. Diese setzt sich aus zwei Zahlen zusammen, die jeweils die Ober- und Unterkante der Schicht in cm angeben. Die Humusschicht wird mit 0000 bezeichnet, um bei Sortiervorgängen die richtige Reihenfolge eines Profils zu erzeugen. Die Geometrie der Bodenprofile ist aus Abbildung 6.1 ersichtlich und wird im Abschnitt 6.1 ausführlich beschrieben.

Ein Programm (MAKECOPY) öffnet jede Spektrumsdatei und versucht die Zusatzinformationen zu lesen. Dabei werden die gefundenen Daten vereinfacht und standardisiert, um alle Varianten einer Schreibweise zusammenzufassen. Das Programm bestimmt nun den oben definierten Namen aus den vorhandenen Informationen und erstellt eine MS-DOS Batchdatei, welche die Spektrumsdateien unter neuem Namen in ein vorher definiertes Verzeichnis kopiert. Das Programm kann Wildcards verarbeiten und deshalb in einem Schritt alle Spektren unter dem neuen Namen ablegen. In Einzelfällen war es nicht möglich, die abgelegten Informationen korrekt zu interpretieren. Dies wurde in einer Ausnahmeliste berücksichtigt. Eine nachträgliche Änderung der Definition der Dateinamen wäre problemlos, da ein Aufruf des Programms genügt, um diese wirksam zu machen.

Als nächstes mußten die vorhandenen Informationen geprüft und ergänzt werden. Um dies einfach und direkt zu gestalten, werden alle gefundenen und interpretierten Informationen in einer eigenen Datei abgelegt, die den gleichen (wie oben definierten) Namen wie das Spektrum trägt, aber mit der Extension \*.INF versehen ist. In ihr sind die folgenden Eigenschaften abgelegt:

- Name des Spektrums
- Name des Detektors CURT oder CARL
- Ort der Probe
- Nummer der Probe
- Mittlere Tiefe der Schicht in cm
- Datum der Probennahme (TT.MM.JJJJ)
- Datum der Messung (TT.MM.JJJJ)
- Livetime in Sekunden
- · Realtime in Sekunden
- Die Einwaage der Probe in Gramm
- Die Füllhöhe der Probenflasche
- Für Standards: Einwaage der PTB-Mischlösung
- Für Standards: Nummer der PTB-Mischlösung
- Optional: Nummer der Efficiency-Kalibration dieser Probe

Zu Beginn ist die Zuordnung zu einer Efficiency noch nicht möglich und wird erst durch ein anderes Programm vorgenommen. Es liegen jetzt alle benötigten Informationen der gemessenen Spektren vor. Während der Messungen wurden die Füllhöhen der Probenflaschen nicht abgespeichert und mußten daher nachträglich in die Informationsdateien eingetragen werden.

#### Kalibrationsdateien erstellen

Der Arbeitsgang zum Erstellen der Kalibrationsdateien (Energie, Halbwertsbreite und Nachweiswahrscheinlichkeit) in GammaW wurde bereits ab Seite 27 dargelegt. In diesem Abschnitt soll beschrieben werden, wie dies mit Unterstützung des entwickelten Auswertungssystems erfolgte.

Der Ablauf für das Anlegen der Dateien mit den Energie- und Halbwertsbreitenkalibrationen ist ähnlich: Ein Programm (ENENEU bzw. FWHNEU) erzeugt eine Kommandodatei für GAMMAW, welche dem Bediener alle unnötigen Eingaben abnimmt. Beide Kommandodateien laden das Kalibrationsspektrum, definieren eine Empfindlichkeit für die Spektrenanalyse und erwarten vom Benutzer die entsprechende Kalibration. Bei der Energiekalibration wird das Spektrum sofort angezeigt, der Benutzer steuert die bekannten Peaks an

und ordnet ihnen die korrekte Energie zu. Die Halbwertsbreitenkalibration erfolgt durch GAMMAW beim Laden des Spektrums automatisch. Die vorgenommene Kalibration wird nun grafisch dargestellt und man kann eventuell falsche Datenpunkte entfernen. Nach der Bestätigung durch den Benutzer erfolgt die Ablage der vorgenommenen Kalibration in Dateien mit gleichem Namen, aber unterschiedlicher Extension (vgl. Tabelle 5.1).

Die Definition der Nachweiswahrscheinlichkeitsfunktion ist komplexer, da hier mehrere Eingaben erforderlich sind. Auch für diese Kalibration wird durch ein Programm eine Kommandodatei erzeugt, welche die Bedienung vereinfacht. Alle Aktivitätseingaben werden in dieser Kommandodatei so abgelegt, daß diese vor der Eingabe am Bildschirm angezeigt werden und nur abgeschrieben werden müssen. Wie oben beschrieben, unterstützt GammaW hierbei keinen automatischen Ablauf. Um diese Schwächen abzumildern, wird für jedes Nuklid eine eigene Nuklidbibliothek angelegt. Bevor GammaW nach der Aktivität des gefundenen Nuklids fragt, wurde diese schon ausgegeben und muß nicht durch den Bediener berechnet werden. Auch hier erfolgt nach Abschluß die Ausgabe der Kalibration in einer Grafik. Eine Kontrolle, ob alle Daten korrekt eingegeben wurden, ist mit etwas Erfahrung auf einen Blick möglich. Nach der Kontrolle wird die Kalibration gespeichert.

#### Zuordnung der Eingangsparameter

Die Zuordnung der Eingangsparameter zur Analyse durch GammaW besteht in der Definition der Empfindlichkeit (Befehl SENS) und der Angabe der zu einem Spektrum gehörenden Kalibrationen. Dabei wird der Benutzer durch ein Programm unterstützt, daß nach bestimmten Regeln Vorschläge oder Empfehlungen gibt. Diese Zuordnung liegt aber letztendlich beim Benutzer. Nachdem alle Parameter gesetzt sind, alle nötigen Informationen zur Messung bekannt sind und alle Dateien vorhanden sind, kann eine Befehlsdatei für GammaW erzeugt werden, die diese Einstellungen zusammenfaßt und den Bediener innerhalb von GammaW bis auf das interaktive Nachbearbeiten der gefitteten Peaks von allen Eingaben befreit. Diese interaktive Kontrolle kann zu einer schnellen und vor allem automatischen Analyse auch deaktiviert werden, so daß dann mit einem Aufruf in allen Spektren die spezifischen Aktivitäten der gewünschten Nuklide bestimmt werden.

#### Aufruf von GAMMAW

Innerhalb des gesamten Auswertungssystems wird GammaW im Prinzip nur als Blackbox benutzt, das vorgegebene Befehlsdateien abarbeitet, die Ergebnisse werden gespeichert und GAMMAW wieder beendet. Dies führt zur Einschränkung der Befehle, die innerhalb von GAMMAW genutzt werden. Der Benutzer hat keine Möglichkeit, den Ablauf zu beeinflussen. Innerhalb eines so klar definierten Anwendungsbereichs wie in dieser Arbeit stellt das allerdings keinen Nachteil dar.

## Ermittlung der Einträge

Nach Abschluß der GammaW-Bearbeitung liegt zu jedem Spektrum nun eine Datei gleichen Namens mit der Extension \*.AKT vor. Dies ist eine von GammaW erzeugte Textdatei mit festem Format. Sie enthält wesentlich mehr Informationen, als im Rahmen dieser Arbeit benötigt werden. Für die Auswertung sind die Linien-spezifischen Aktivitäten uninteressant, sondern es sind nur die gewichteten Mittelwerte relevant. Da keine Ergebnisse durch den Benutzer abgeschrieben werden sollen, galt es ein Filter-Programm zu entwickeln, das diese Informationen extrahiert und in aufbereiteter Form zusammenstellt. Dies ist aber nur dann ohne Beteiligung eines kontrollierenden Benutzers sinnvoll, wenn schon bei der Spektrenanalyse durch GammaW das Spektrum auf Auffälligkeiten von besonderen Peaks untersucht wurde. Es ist deshalb unbedingt erforderlich, die Peaksuche interaktiv zu überwachen.

Aus der erzeugten \*.AKT-Datei werden alle Zeilen gefiltert, an deren Anfang eine Nuklidbezeichnung steht. Dabei ist das Filterprogramm nicht an besondere Formen gebunden, sondern flexibel. Anschließend wird die Zeile bestimmt, in welcher der zugehörige Mittelwert der massenspezifischen Aktivität steht. Dieser wird zusammen mit der Nuklidbezeichnung und dessen Unsicherheit in einer Datei mit der Extension \*.GEF abgelegt. Nachdem so alle gefundenen Nuklide übertragen worden sind, übernimmt das Programm die Energien der nicht zugewiesenen Linien aus der \*.AKT-Datei, um diese später in einer Liste zusammenstellen zu können. An dieser Liste kann dann festgestellt werden, ob die benutzte Analysebibliothek vollständig ist.

Als letzter Schritt werden nun aus den spezifischen Aktivitäten die Einträge berechnet. Darauf wird im Abschnitt 7.1.2 näher eingegangen. Hier soll nur der Ablauf der Programme beschrieben werden. Ein Bodenprofil besteht aus einzelnen Schichten, in denen jeweils die spezifischen Aktivitäten bestimmt und in die \*.GEF-Datei extrahiert wurden. Um die Einträge in dieses Profil zu bestimmen, müssen die Schichtbeiträge aufsummiert werden. Dabei kann eine solche Schichtenfolge zur Auswertung durch ihre \*.GEF-Dateien definiert werden. Das Programm Profil liest eine solche Datei, liest die angegebenen Informa-

tionen über die spezifischen Aktivitäten, berechnet die absolute Aktivität je Nuklid in dieser Schicht und legt diese Werte in einer Tabelle ab. Nachdem alle angegebenen Dateien bearbeitet sind, erfolgt die Ausgabe in eine \*.RES-Datei gleichen Namens wie die Profildefiniton. Die Ausgabe erfolgt dabei nach Ort, Nummer, Tiefe sortiert und stellt alle Aktivitäten gleicher Nuklide untereinander dar, auch wenn in einzelnen Schichten diese Nuklide nicht gefunden wurden. Aus den spezifischen Aktivitäten und den Schichtinformationen werden nach (7.4) die entsprechenden Tiefeneinträge berechnet und in eine \*.EIN-Datei ausgegeben. Als Nebenprodukt wird eine Liste der nicht zugeordneten Linien alle bearbeiteten \*.GEF-Dateien erstellt. Das Programm PROFIL ist in der Lage, in einem Schritt bis zu 20 Profile mit jeweils bis zu 20 Nukliden auszuwerten. Die Ausgabe dieses Programms kann in eine Tabellenkalkulation importiert und als Grafik veranschaulicht werden.

# Kapitel 6

# Untersuchung von Bodenproben aus der Ukraine

# 6.1 Probenentnahme und -aufbereitung

#### 6.1.1 Auswahl der Entnahmestellen in der Ukraine

Um einen Überblick über die Kontamination des Bodens der Ukraine mit Radionukliden aus dem Fallout des Tschernobyl Unfalls zu erhalten, wurden drei Gebiete mit unterschiedlicher Deposition ausgewählt. Die schwach kontaminierten Bodenprofile wurden in der Umgebung von Zhytomyr, die mittelkontaminierten im Gebiet von Korosten und die hochkontaminierten Proben in der Umgebung von Naroditschi entnommen (vgl. Abb. A.1). Zusätzlich wurden in Charkow im Osten der Ukraine Proben entnommen, die nicht mit dem Fallout des Unfalls kontaminiert sein sollten und so eine Berücksichtigung des Fallouts der Kernwaffentests ermöglichen sollten. Es konnten allerdings auch in diesen Proben signifikante Aktivitäten von <sup>134</sup>Cs aus dem Tschernobyl-Fallout festgestellt werden, so daß diese Gegend ebenfalls als kontaminiert zu betrachten ist.

Die Einteilung niedrig-, mittel- und hochkontaminiert erfolgte in Anlehnung an die Einteilung in drei Zonen durch sowjetische Behörden: <sup>137</sup>Cs-Kontamination von unter 555, zwischen 555 und 1.480 und über 1.480 kBq/m<sup>2</sup>.

Die Probennahme fand durch Mitarbeiter der Staatlichen Agroökologischen Akademie der Ukraine in Zhytomyr in Zusammenarbeit mit Herrn Dr. Handl vom ZSR im Juni und Oktober 1995 statt. Die Auswahl der beprobten Orte erfolgte nach Befragung von

Ortskundigen. Um möglichst ungestörte Profile zu erhalten, sollten nach dem Unfall im April 1986 keine landwirtschaftlichen Aktivitäten mehr stattgefunden haben. Pro Gebiet wurden an zwei bis vier Orten jeweils mehrere (zwischen 2 und 10) Profile in Abständen von einigen Kilometern genommen. Eine Karte mit den Orten der Entnahme findet sich in Abbildung A.1 auf Seite 71.

## 6.1.2 Die Entnahme der Bodenproben

Wichtigstes Ziel bei der Entnahme war die möglichst genaue und detaillierte Trennung der verschiedenen Bodenschichten im oberen Bereich der Säule. Um dieses zu erreichen, wurde eine Grube von ca. 70 x 70 cm ausgehoben, in der in einer Ecke die zu nehmende Probe (20 x 20 cm) stehen blieb (vgl. Abb. 6.1). Innerhalb der Grube wurde die Bodensäule nun exakt nachbearbeitet, so daß eine senkrechte Säule mit konstanter Breite und Tiefe stehenblieb. Anschließend wurde die Humusschicht auf der Säulenoberseite entfernt. Diese Fläche definierte nun für die unteren Schichten die Grundfläche, die aber nach jedem Schichtabtrag neu kontrolliert und gegebenenfalls nachgebessert wurde. Zur Definition der Schichttiefe wurden an den Ecken der Säule Nadeln im Boden fixiert, die zur Ausrichtung eines stabilen Fadens dienten. Dieser wurde nun waagrecht in den Boden gezogen und so ein Schnitt bis zur Diagonalen der Grundfläche durchgeführt. Die gelöste Hälfte wurde abgetragen und dann die restliche Schicht so entfernt, daß eine ebene Fläche erzeugt wurde. Nach jeder entfernten Schicht wurden alle relevanten Maße der Säule kontrolliert, um die Fehler in der Probennahme zu minimieren: Paralletität der Schnitte, die Tiefe im Boden, die Länge und Breite der Grundfläche, die Ebenheit der Grundfläche und ob die entstehenden Wände senkrecht sind.

Bei der Probennahme kann die Auflösung der Schichttiefe durch Steine, Hohlräume, tiefe Wurzeln und anderes Material im Boden negativ beeinflußt werden. Die beiden Profile Woronewo 6 und Woronewo 7 erwiesen sich, möglicherweise durch landwirtschaftliche Bearbeitung, als durchmischt.

Die Probennahme als komplette Säule wurde einer Bohrung vorgezogen, um ein Verschieben der Bodenschichten innerhalb des Bohrkerns zu vermeiden. Mit der verwendeten Methode konnte sichergestellt werden, daß die Fehler in der Schichttiefenzuordnung minimal sind, da die Entnahme in jeder Phase kontrolliert werden konnte. Trotzdem kann man von keiner besseren Genauigkeit als 2 mm ausgehen, was bedeutet, daß die Tiefenzuordnung in den obersten Schichten um bis zu 20 % fehlerhaft sein kann. Wenn die Unsicherheiten der

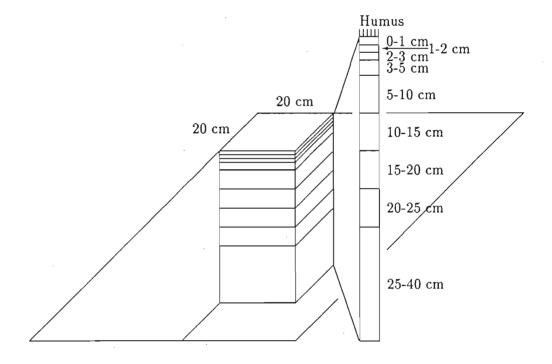


Abb. 6.1: Geometrie der entnommenen Bodensäulen

Länge  $(L_s)$  und Breite  $(B_s)$  der Säule 2 mm betragen, dann ergibt sich für die Abweichung der Grundfläche  $(F_s)$  von 400 cm<sup>2</sup>:

$$\left(\frac{\Delta F_s}{F_s}\right) = \sqrt{\left(\frac{\Delta L_s}{L_s}\right)^2 + \left(\frac{\Delta B_s}{B_s}\right)^2} 
\approx 1,4 \%$$
(6.1)

Ein Abweichen von der quadratischen Grundfläche zu einem Trapez ist dagegen nicht relevant, da der resultierende Fehler proportional zum Kosinus der Winkelabweichung gegenüber 90° ist. Für eine Abweichung von 3° (entspricht 1 cm Abweichung auf 20 cm) ist der Fehler nur etwa 0,14 % und somit gegenüber den sonstigen Fehlern zu vernachlässigen.

Die Tabellen A.1 bis A.4 im Anhang A.1 zeigen die Übersicht der Proben mit den gemessenen Ortsdosisleistungen.

#### 6.1.3 Aufbereitung des Bodens

Der Boden wurde an einem schattigen Ort bei Zimmertemperatur ausgebreitet und getrocknet. Die Bodenproben wurden mechanisch zerkleinert und nach Hannover transportiert. Hier erfolgte eine erneute Zerkleinerung und der Boden wurde anschließend gesiebt (2 mm Maschenweite). Steine und andere grobe Teile, z.B. Wurzeln und Pflanzenteile wurden entfernt. Eine chemische Behandlung der Bodenproben war nicht notwendig.

#### 6.1.4 Verwendete Geometrien

Der Boden wurde nun abschließend in 1-Liter-Plastikflaschen mit einem Durchmesser von 90 mm gefüllt. Um möglichst große Probenmengen der Messung zuzuführen, wurde so viel Bodenmaterial eingefüllt wie vorhanden war, allerdings mit der Einschränkung auf einen begrenzten Satz von erlaubten Füllhöhen der Flaschen. Dies schränkte die Anzahl der benutzten Geometrien ein. Diese Füllhöhe konnte mit einer Genauigkeit von 2 mm realisiert werden. Um aus der Füllhöhe das Volumen zu bestimmen, wurden zu verschiedenen Höhen das jeweilige Volumen mit Wasser gemessen und anschließend ein Mittelwert der Flaschengrundfläche gebildet. Diese Grundfläche ist 62 cm² mit einer Unsicherheit von 5 %, die sich als Standardabweichung der Messungen ergibt. Der relative Fehler des Volumens zu einer Füllhöhe wird nach

$$\left(\frac{\Delta V_p}{V_p}\right) = \sqrt{\left(5\%\right)^2 + \left(\frac{\Delta h_p}{h_p}\right)^2} \tag{6.2}$$

8,33

7,07

6,01

5,39

5,20

15,5

17,5

22,4

33,4

45,1

berechnet. Tabelle 6.1 zeigt die realisierten Füllhöhen.

0.2

0,2

0,2

0,2

0,2

3,0

4,0

6,0

10,0

14,0

Füllhöhe Fehler Volumen Fehler  $[cm^3]$  $[cm^3]$ [%] [%][cm] [cm] 1,0  $^{0,2}$ 20,00 62,0 20,62 12,8 0,213,33 93,0 14,24 13,2 1,5 2,0 0,210,00 124,0 11,18 13,9

186,0

248,0

372,0

620,0

868,0

6,67

5,00

3,33

2,00

1,43

Tab. 6.1: Verwendete Geometrien

Aus der Füllhöhe und der Trockenmasse, die zuvor als Massendifferenz der leeren und vollen Flasche bestimmt wurde, errechnet sich die Dichte der Bodenprobe. Hinsichtlich der vorgenommenen Durchmischung des Probenmaterials wird in der weiteren Auswertung

davon ausgegangen, daß diese Dichte für die gesamte Bodenschicht gilt. Die Dichte besitzt praktisch den gleichen relativen Fehler wie das Volumen, da die relative Unsicherheit der Waagen mit 0,01 % vernachlässigbar ist. Die Proben haben Dichten zwischen 0,31 und 1,94 g/cm<sup>3</sup>.

#### 6.1.5 Präperation der Standards

Unter Verwendung einer Standardmischlösung der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt (PTB) wurden durch Mitarbeiter des ZSR mehrere Standards hergestellt, die der Kalibration der Detektoren dienten.

Es wurden insgesamt 31 Standards hergestellt, die in jeder der verwendeten Füllhöhe verschiedene Dichten realisierten. Zunächst wurde unkontaminierte und überschüssige Bodensubstanz aus der Ukraine so zerkleinert, gesiebt und gemischt, daß die gewünschte Dichte erreicht wurde. Dieser Bodenmischung wurde eine genau bestimmte Menge der PTB-Standardmischlösung zugegeben. Dies erfolgte mittels einer Flexiole, deren Spitze erhitzt und im fließenden Zustand lang- und damit dünn gezogen wurde. Diese Flexiole wurde mit einer Menge der Mischlösung zwischen 1 und 12 Gramm befüllt und gewogen (Der Fehler der verwendeten Waage liegt unter 0,003 %). In einer flachen Edelstahlschale wurde die Bodenmischung verteilt und mit der Standardlösung gleichmäßig betropft. Die Flexiole wurde erneut gewogen und die exakte Menge der aufgetragenen Standardmischlösung bestimmt. Die aufgetropfte Lösung wurde mit der Bodensubstanz durchmischt, so daß sie homogen im Boden verteilt war. Beim Befüllen der 1-Liter-Meßflaschen galt es nun, keine Rückstände der Mischung in der Schale zurück zu lassen, um die definierte Aktivität komplett im Standard zu deponieren. Die Anfertigung der Standards mußte besonders sorgfältig erfolgen, da nur bei möglichst homogener Verteilung der Radionuklide innerhalb des Standards eine Nachweiswahrscheinlichkeitsfunktion bestimmt werden kann, die sich auf die Proben übertragen läßt.

Mittels jedes Standards wurden die beiden Detektoren bezüglich Energie, Halbwertsbreite und Efficiency im Analyseprogramm GammaW kalibriert (vgl. Seite 27).

# 6.2 Messung der Proben

#### 6.2.1 Aufnahme der Spektren

Die Messungen der Spektren (Proben und Standards) erfolgte durch verschiedene Mitarbeiter des ZSR zwischen dem 07.02.1996 und dem 09.01.1997. Mit dem eigenentwickelten Programm Makecopy wurden, wie in Abschnitt 5.3.4 beschrieben, diese mit standardisierten Dateinamen versehen. Alle Zusatzinformationen wurden geprüft und nicht vorhandene ergänzt. Es zeigte sich nun, daß für den Detektor CARL alle Standardspektren vorhanden waren, aber für den Detektor CURT von 31 angefertigten Standards nur 19 als Dateien vorlagen. Wegen Umbauarbeiten an den Detektoren war es nicht möglich, diese nachträglich zu messen.

#### 6.2.2 Die Kalibration der Detektoren

Zur Kalibration der Energie wurden sechs  $\gamma$ -Linien der Nuklide <sup>54</sup>Mn, <sup>57</sup>Co, <sup>65</sup>Zn, <sup>88</sup>Y, <sup>133</sup>Ba und <sup>137</sup>Cs verwendet (Tabelle 6.2).

Tab. 6.2:	Verwendete ?	y-Linien	7.11 Г	Energ	iekal	ibration	[Pf95]	
140. 0.2.	V CI W CHUCUC	Dimen	2 ui		LOW		1 100	1

Energie [keV]	Nuklid
122,061	<sup>57</sup> Co
356,017	<sup>133</sup> Ba
661,660	$^{137}\mathrm{Cs}$
834,843	<sup>54</sup> Mn
1115,546	$^{65}{ m Zn}$
1836,063	88 Y

Die Kalibration der Energie-Kanal-Zuordnung der beiden Detektoren in GammaW erfolgte für jeden Standard neu, da im Verlauf des Meßprogramms die Detektoren einige Male heruntergefahren und wieder in Betrieb genommen wurden. Ursprünglich sollte die Zuordnung der Kalibrationsdaten zu den einzelnen Spektren über das Meßdatum erfolgen. Es zeigte sich aber, daß die Koeffizienten der Kalibrierfunktion nur wenig variierten, so daß eine gemittelte Kalibration für alle Spektren eines Detektors erstellt wurde.

Bei der Kalibration der Halbwertsbreitenfunktion ergaben sich für die beiden Detektoren grundlegend verschiedene Bilder. Während bei CURT analog zur Energiekalibration schließlich eine mittlere Funktion definiert werden konnte, um welche die einzelnen Datenpunkte nur wenig streuten, mußte bei CARL eine überraschend geringe Auflösung festgestellt werden.

Die ermittelten Halbwertsbreiten für die gleichen Peaks verschiedener Spektren lagen bei CARL in einem weiten Bereich, und auch innerhalb eines Spektrums ergab sich kein befriedigender Fit der Kalibrationsfunktion. Es konnte nachträglich nicht mehr festgestellt werden, wie diese Fehlfunktion des Detektors zustande kam. Da, wie oben erwähnt, die Halbwertsbreitenkalibration in GammaW eine zentrale Bedeutung hat, war es nicht möglich, die mit CARL gemessenen Spektren mit dem hier beschriebenen Verfahren auszuwerten. Alle nun folgenden Beschreibungen beziehen sich dem entsprechend nur auf CURT.

Die Bestimmung der Kalibrationsfunktionen der Nachweiswahrscheinlichkeit erwies sich als sehr viel einfacher als in der "reinen" GAMMAW Anwendung. Durch die Ausgabe der einzugebenden Aktivitäten direkt vor der Abfrage kam es zu keinen Fehlzuordnungen mehr. Da nur CURT auswertbare Spektren geliefert hatte, andererseits für diesen nicht alle Standards vorlagen, mußte untersucht werden, ob eine Auswertung der Proben mit dem beschränkten Satz an Kalibrationen möglich ist.

#### 6.2.3 Auswertung der Spektren

Wenn man die Nachweiswahrscheinlichkeiten der Standards für <sup>137</sup>Cs sortiert und sich dann die Parameter der jeweils verwendeten Geometrie in dieser Reihenfolge ansieht (Tabelle 6.3), so ist eine direkte Abhängigkeit von der Füllhöhe erkennbar, die nur in zwei Fällen nicht gegeben ist. Dies liegt vermutlich an den niedrigen Dichten der Standards 21 und 19. In der Tabelle 6.3 wurden die Angaben über die Unsicherheiten zu Gunsten der Übersicht weggelassen. Diese bewegen sich für die Nachweiswahrscheinlichkeiten zwischen 8 % und 15 %. Die Unsicherheiten der Füllhöhe und Dichte wurden bereits angegeben.

Innerhalb einer Füllhöhe ist die relative Variation um der Mittelwert der Dichte wesentlich größer als die der zugehörigen Nachweiswahrscheinlichkeiten, was bedeutet, daß bei einer bestimmten Variation der Dichte die entsprechenden Nachweiswahrscheinlichkeiten nur eine geringe Abweichung erfahren. Es erscheint daher vernünftig, als primären Zuordnungsschlüssel die Füllhöhe einer Probenflasche zu definieren. Innerhalb der gleichen

Füllhöhe wird der Standard mit der ähnlichsten Dichte gewählt. Da allerdings die Unterschiede zwischen "benachbarten" Füllhöhen nicht immer größer als die ermittelten Unsicherheiten dieser Nachweiswahrscheinlichkeiten sind, ist in Ausnahmefällen eine andere Zuordnung möglich, um beispielsweise eine extreme Dichte zu berücksichtigen. Auffällig ist der Standard 3. Innerhalb einer Füllhöhe sollte die Efficiency monoton mit der Dichte zusammenhängen. Wenn man sich eine Darstellung der Efficiency für 661,66 keV der 14 cm-Standards in Abhängigkeit von der Dichte betrachtet, so trifft dies für Standard 3 nicht zu. Im Rahmen der Fehler läßt sich allerdings der erwartete Verlauf bestätigen, dennoch wurde dieser Standard von der weiteren Auswertung ausgeschlossen.

Tab. 6.3: Geometrie-Parameter der Standards nach Efficiency sortiert

Standard.	Efficiency	Füllhöhe [cm]	Einwaage [g]	Dichte [g/cm <sup>3</sup> ]
30	0,651 %	14	1684,1	1,94
6	0,687 %	14	1517,4	1,75
4	0,724 %	14	1261,7	1,45
2	0,746 %	14	1016,0	1,17
3	0,762 %	14	1222,7	1,41
28	0,881 %	10	1122,9	1,81
22	1,044 %	10	694,7	1,12
29	1,326 %	6	649,8	1,75
24	1,705 %	6	343,5	0,92
27	1,727 %	4	450,0	1,81
14	1,940 %	4	294,0	1,19
26	2,126 %	3	300,0	1,61
21	2,172~%	. 4	65,2	0,26
20	2,319 %	3	201,9	1,09
31	2,404 %	3	60,0	0,32
25	2,560 %	2	142,0	1,15
23	2,745 %	1	74,1	1,20
19	2,865 %	2	98,0	0,79

Nach diesen Betrachtungen kann man davon ausgehen, daß auch mit dem eingeschränkten Satz an Kalibrationsspektren eine Auswertung der Messungen zu rechtfertigen ist. Eine Abweichung der verwendeten Nachweiswahrscheinlichkeit von der wahren und dieser Geometrie entsprechenden um maximal 5 % ist innerhalb der Fehlergrenzen zu vertreten.

In den \*.INF-Dateien wurden die nun definierten Standardnummern für jede Probe eingetragen und die Befehlsdateien für GammaW erzeugt. Als Empfindlichkeit der Peaksuche (GammaW-Befehl SENS) wurde 50 gewählt, das Bezugsdatum wurde auf den 26.04.1986 festgelegt. Nun wurden alle Probenspektren bearbeitet, indem GammaW mit einer generierten Kommandodatei aufgerufen wurde. Das Spektrum wird geladen, die Kalibrationen festgelegt und eine interaktive Spektrenanalyse gestartet. Die Probenmasse wird gesetzt und eine Peak-Identifikation durchgeführt. Nach deren Abschluß erfolgt die Ausgabe der Ergebnisse in die entsprechende \*.AKT-Datei. Diese werden gefiltert, so daß nur die interessierenden massenspezifischen Aktivitäten und nicht zugewiesenen Linien in einer \*.GEF-Datei stehen.

# Kapitel 7

# Ergebnisse

# 7.1 Berechnung der Tiefeneinträge

## 7.1.1 Von der spezifischen zur absoluten Aktivität

Zu jeder Probe sind die in Tabelle 7.1 aufgeführten Größen bekannt. Der Index p kennzeichnet Werte der Probe, der Index s die Werte einer Schicht.

Tab. 7.1: Parameter einer Probe

Eigenschaft	Symbol	Einheit	Fehler	Einheit
Einwaage der Probe	$m_p$	g	0,01	%
Füllhöhe der Probe	$h_p$	cm	0,2	cm
Grundfläche der Flasche	$F_p$	$cm^2$	5	%
Schichtinformationen:				
Höhe der Schicht	$h_s$	cm	0,2	cm
Mittlere Tiefe	$t_s$	cm	0,2	cm
Grundfläche der Schicht	$F_s$	$cm^2$	1,4	%
Massenspezifische Aktivität	$a_p^{(i)}$	Bq/kg	variabel	Bq/kg

Ermittelt werden soll der Tiefeneintrag der Radionuklide in den Boden in Abhängigkeit von der Schichttiefe. Die Auswertungsprogramme liefern als Ergebnis die massenspezifische Aktivität  $a_p^{(i)}$  eines Nuklids i, die wie in Kapitel 4.2.4 dargestellt, berechnet wird. Diese spezifischen Aktivitäten sind auf den 26.04.1986 zerfallskorrigiert. Die Gesamtaktivität in

einer Schicht ergibt sich als Produkt der massenspezifischen Aktivität und der Masse  $m_s$  der Schicht:

$$A_s^{(i)}(t_s) = a_p^{(i)}(t_s) \cdot m_s(t_s) \tag{7.1}$$

Der Parameter  $t_s$  ist dabei als Index zu verstehen, mit dem eine Schicht bezeichnet wird. Er ist die mittlere Tiefe dieser Schicht. In der Tabelle 7.2 werden die Daten zu den einzelnen Schichten dargestellt. In dieser Tabelle ist die obere Grenze der Humusschicht nicht aufgeführt, da deren Höhe, wie unten beschrieben, gesondert behandelt wird. Die mittlere Höhe der Humusschicht wurde auf 0 festgelegt.

Bezeichnung	Sch	Schichttiefen [cm]			
	obere Grenze	$t_s$	untere Grenze	$[cm^3]$	
Humus	variabel	0,0	0	variabel	
0 cm-1 cm	0	0,5	1	400	
1 cm-2 cm	1	1,5	2	400	
2 cm-3 cm	2	2,5	3	400	
3 cm-5 cm	3	4,0	5	800	
5 cm-10 cm	5	7,5	10	2000	
10 cm-15 cm	10	12,5	15	2000	
15 cm-20 cm	15	17,5	20	2000	
20 cm-25 cm	20	22,5	25	2000	
25 cm-40 cm	25	32,5	40	6000	

Tab. 7.2: Daten zu den Bodenschichten

Da die Masse der Schicht nicht direkt bestimmt wurde, muß sie über die bekannte Dichte  $\rho$  der Probe und dem Volumen  $V_s$  der Schicht bestimmt werden:

$$m_s(t_s) = \rho(t_s) \cdot V_s(t_s) \tag{7.2}$$

Die Dichte wurde aus der Probenmasse  $m_p$  und dem Probenvolumen  $V_p$  bestimmt, welches sich aus der Füllhöhe  $h_p$  und der Grundfläche  $F_p$  der Probenflasche berechnen läßt:

$$\rho(t_s) = \frac{m_p(t_s)}{F_p(t_s) \cdot h_p(t_s)} \tag{7.3}$$

Insgesamt ergibt sich mit  $F_s$  und  $h_s$  als Schichtgrundfläche und Schichthöhe für die Aktivität:

$$A_s^{(i)}(t_s) = a_p^{(i)}(t_s) \cdot m_p(t_s) \cdot \frac{F_s(t_s) \cdot h_s(t_s)}{F_p(t_s) \cdot h_p(t_s)}$$
(7.4)

Alle diese Größen sind mit Fehlern behaftet, die im Kapitel 7.1.3 diskutiert werden. Die Bestimmung der Schichthöhe der Humusschicht findet über die Probenmenge statt. Da die Höhe der Humusschicht bei der Probennahme nicht ermittelt wurde, andererseits das Volumen des besonders stark kontaminierten Humus großen Einfluß auf die Ergebnisse hat, mußte diese indirekt berechnet werden. Dabei geht man davon aus, daß das gesamte verfügbare Humusmaterial in den Grenzen der verwendeten Geometrien komplett in die Probenflaschen verfüllt wurde. Als ursprüngliche Höhe der Humusschicht ergibt sich:

$$h_s(\text{Humus}) = \frac{V_p}{F_s}$$

$$= \frac{h_p \cdot F_p}{F_s}$$

$$= h_p \cdot \frac{62 \text{ cm}^2}{400 \text{ cm}^2}$$
(7.5)

## 7.1.2 Tiefeneintrag und Normierung

Die Aktivität  $A_s^{(i)}$  des Nuklids i, die in einer Schicht der mittleren Tiefe  $t_s$  bestimmt wurde, ist nach der Kontamination durch alle Schichten darüber hindurchgewandert. Die Aktivität, die eine Schicht der Fläche 1 m² in der Tiefe  $t_T$  durchdrungen hat, wird als Tiefeneintrag bezeichnet. Um diesen Tiefeneintrag  $T_s^{(i)}(t_T)$  durch eine bestimmte Tiefe zu erhalten, müssen alle flächennormierten Aktivitäten der darunter liegenden Schichten bis zur Tiefe  $t_{max}$  aufsummiert werden. Da die oben bestimmten Aktivitäten  $A_s^{(i)}(t_s)$  sich auf die Grundfläche von 400 cm² beziehen, muß diese Größe noch über einen Faktor umgerechnet werden.

$$T_s^{(i)}(t_T) = \frac{1}{F_s} \cdot \sum_{k=t_s}^{t_{max}} A_s^{(i)}(k)$$
 (7.6)

Hierbei ist  $t_s$  die mittlere Tiefe der Schicht, deren Oberkante die Grenzfläche des Tiefeneintrags bestimmt. Als Deposition wird der Tiefeneintrag in den Humus bezeichnet, also die Aktivität, mit welcher der Boden je  $m^2$  kontaminiert wurde.

$$D_s^{(i)} = \frac{1}{0,04 \text{ m}^2} \cdot \sum_{k=0}^{t_{max}} A_s^{(i)}(k)$$
 (7.7)

Diese Berechnungen werden von dem Programm PROFIL vorgenommen, das auch die Besonderheiten der Humusschicht nach (7.5) berücksichtigt. Es liest die massenspezifischen Aktivitäten aus den \*.GEF-Dateien und lädt die Schichtparameter aus den entsprechenden \*.INF-Dateien und nutzt die Informationen über die Probe und Schicht um den flächenbezogenen Tiefeneintrag zu berechnen. Das Programm PROFIL trägt alle gefundenen Nuklide

in die Datei E:\NUKLIDE ein. Diese Datei kann nach einem erfolgten Durchlauf bearbeitet und sortiert werden und es können Nuklide von der weiteren Auswertung ausgeschlossen werden.

Als Ausgabe wird eine Datei der Extension \*.RES generiert, in der sortiert nach Ort, Nummer und Tiefe in einer Zeile die massenspezifischen Aktivitäten der ausgewählten Nuklide eingetragen sind. In einer Datei mit der Extension \*.EIN stehen die Tiefeneinträge in die jeweilige Schichttiefe, und zur Übersicht wir noch eine \*.DEP-Datei erzeugt, in welcher sich die deponierten Aktivitäten pro m² finden. Alle nicht zugewiesenen Linien werden zusammengefaßt und in eine weitere Datei geschrieben.

Nach Abschluß dieser Auswertung liegen die deponierten Aktivitäten in einer Textdatei vor, welche leicht in weitere Programme eingelesen werden kann, um beispielsweise Grafiken zu erzeugen. Stellt man bei Betrachtung der Ergebnisse fest, daß einzelne Parameter nicht passend gewählt waren, so können diese angepaßt werden und eine erneute Analyse erstellt werden.

#### 7.1.3 Fehlerbetrachtung

Bei der Beschreibung der Probennahme und der verwendeten Geometrien wurden die dabei zu berücksichtigenden Fehler schon erläutert. Für die Berechnung der absoluten Aktivität nach (7.4) ergibt sich für die Unsicherheit:

$$\frac{\Delta A_s^{(i)}}{A_s^{(i)}} = \sqrt{\left(\frac{\Delta a_p^{(i)}}{a_p^{(i)}}\right)^2 + \left(\frac{\Delta m_p}{m_p}\right)^2 + \left(\frac{\Delta F_s}{F_s}\right)^2 + \left(\frac{\Delta h_s}{h_s}\right)^2 + \left(\frac{\Delta F_p}{F_p}\right)^2 + \left(\frac{\Delta h_p}{h_p}\right)^2} \\
= \sqrt{\left(\frac{\Delta a_p^{(i)}}{a_p^{(i)}}\right)^2 + (0.01\%)^2 + (1.4\%)^2 + \left(\frac{0.2 \text{ cm}}{h_s}\right)^2 + (5\%)^2 + \left(\frac{0.2 \text{ cm}}{h_p}\right)^2} (7.8)$$

Bei der Bestimmung der Deposition addieren sich die absoluten Fehler der Einzelaktivitäten. Diese resultierenden Unsicherheiten liegen je nach Nuklid (Zählstatistik) und Probe (Meßzeit) zwischen 8 % und 30 %, wobei man jedoch feststellen muß, daß diese Angaben sicherlich überschätzt sind, da die realisierte Genauigkeit bei der Probennahme und Probenpräperation größer als angegeben sind.

Um zu ermitteln, welcher kleinste Meßwert sich bei dem betrachteten Meßverfahren bei vorgegebener Fehlerwahrscheinlichkeit nachweisen läßt, wird die Nachweisgrenze berechnet. Diese wird nach [DIN89], Formel (2a) ermittelt. Im Rahmen dieser Arbeit wurden die

Nachweisgrenzen für  $^{134}$ Cs bestimmt. Für die Berechnungen wurde nach der Empfehlung in [DIN89]  $\alpha = \beta = 0,05$  gesetzt. Als vereinfachte Formel ergibt sich

$$N^* = 4,65\sqrt{N_0} \tag{7.9}$$

Der Wert  $N_0$  gibt die Zahl der Ereignisse im Untergrund der 604,72 keV Linie des <sup>134</sup>Cs an. Daraus ergibt sich die Zahl der Nettoimpulse  $N^*$ , die mindestens vorhanden sein müssen, um nachgewiesen zu werden. Dieser Wert wurde nach (4.15) in eine spezifische Aktivität umgerechnet. Über (7.6) können mit diesen spezifischen Aktivitäten die Nachweisgrenzen der Tiefeneinträge ermittelt werden.

# 7.2 Darstellung der Ergebnisse

Nachdem nur Profile ausgewertet werden konnten, die auf CURT aufgenommenen wurden und für die alle Spektren auf Diskette vorhanden waren, ergaben sich insgesamt 11 Profile, die in Tabelle 7.3 aufgeführt sind.

Tab. 7.3: A	Lusgewertete	Profile	aus	der	nördlichen	Ukraine
-------------	--------------	---------	-----	-----	------------	---------

Probenort	Nummer	Kontaminationsgrad
Charkow	1	Background
Barachewka	2	Niedrig
Davidowka	2	Niedrig
Nemirowka	1	Mittel
Woronewo	1	Mittel
Woronewo	3	Mittel
Woronewo	5	$\mathbf{Mittel}$
Tschigiri	2	Mittel
Rjetschka	3	Mittel
Nosdristsche	1	Hoch
Nosdristsche	3	Hoch

In allen Spektren dieser Profile wurden alle aufgetretenen Linien einem Nuklid zugeordnet. In allen Proben konnte <sup>40</sup>K nachgewiesen werden, in fast allen Proben war <sup>226</sup>Ra zu finden. In den 16 Spektren, in denen kein <sup>226</sup>Ra festgestellt wurde, oder sich die Werte aus dem

restlichen Profil deutlich heraushoben, lag dies an der geringen Meßzeit. Auch <sup>232</sup>Th war in fast allen Proben vorhanden. Die spezifischen Aktivitäten dieser Isotope waren innerhalb eines Profils meist konstant oder beim <sup>40</sup>K in den oberen Schichten etwas erhöht.

<sup>137</sup>Cs konnte nur in drei Proben nicht gemessen werden. Immer handelte es sich dabei aber um die Schichten von 25 cm bis 40 cm, welche die geringsten spezifischen Aktivitäten beinhalten. In 8 der 11 Profile konnte <sup>134</sup>Cs quantitativ gemessen werden. Im Charkow-Boden, der als Untergrund geplant war, befanden sich geringe Mengen <sup>134</sup>Cs. Ferner waren hier die deponierten <sup>137</sup>Cs-Aktivitäten höher als in den niedrig-kontaminierten Gebieten. Daraus kann man schließen, daß diese Bereiche im Osten der Ukraine ebenfalls vom Tschernobyl-Fallout betroffen waren.

In verschiedenen Proben konnten <sup>110m</sup>Ag, <sup>125</sup>Sb, <sup>235</sup>U und <sup>238</sup>U nachgewiesen werden. Da diese Nuklide jedoch immer in geringen Mengen und nicht in jeder Schicht eines Profils gefunden werden konnten, wurden deren spezifischen Aktivitäten nicht in die Ergebnistabellen im Anhang A.3 aufgenommen.

In der Tabelle 7.4 finden sich die Depositionen der beiden wichtigen Nuklide <sup>137</sup>Cs und <sup>134</sup>Cs und deren ermitteltes Isotopenverhältnis.

Tab. 7.4: Deposition der Cäsiumisotope

Profil:	<sup>134</sup> Cs	<sup>137</sup> Cs	Ratio
· 	$[kBq/m^2]$	$[kBq/m^2]$	$^{137}\mathrm{Cs}/^{134}\mathrm{Cs}$
Charkow 1	$1,6 \pm 0,4$	$8,5 \pm 1,3$	$5,29 \pm 1,45$
Barachewka 2		$5.3\pm0.9$	
Davidowka 2		$4,3 \pm 0.8$	
Nemirowka 1	$127\pm16$	$235\pm36$	$1,\!86\pm0,\!37$
Woronewo 1	$285\pm56$	$539\pm119$	$1,\!89\pm0,\!56$
Woronewo 3	$190\pm44$	$356\pm84$	$1,87 \pm 0,62$
Woronewo 5	$207\pm52$	$386\pm102$	$1,87 \pm 0,68$
Tschigiri 2	$138\pm31$	$260\pm63$	$1,89 \pm 0,63$
Rjetschka 3	$306\pm54$	$568 \pm 113$	$1,\!86\pm0,\!49$
Nosdristsche 1	$2587\pm275$	$4748\pm743$	$1,\!84\pm0,\!35$
Nosdristsche 3	$1563 \pm 159$	$2842 \pm 354$	$1,82 \pm 0,29$

# 7.3 Diskussion

## 7.3.1 Vergleich der Ergebnisse

Einige dieser Proben wurden in der Vergangenheit schon mit einem anderen Verfahren ausgewertet. Die wesentlichen Unterschiede des in dieser Arbeit angewendeten Verfahrens gegenüber dem vorherigen sind:

- Bestimmung der Nettopeakfläche, deren Unsicherheit und des Untergrunds
- Berücksichtigung von mehreren Linien zur Bestimmung der <sup>134</sup>Cs-Aktivität
- Eingeschränkte Verfügbarkeit von Standards
- Ausführlichere Fehlerbetrachtung

In der Tabelle 7.5 sind die Ergebnisse für die <sup>137</sup>Cs-Deposition gegenüber gestellt [Han97]. Bis auf die Profile Woronewo 3 und 5 und Tschigiri 2 stimmen die Ergebnisse im Rah-

Profil:	<sup>137</sup> Cs	<sup>137</sup> Cs	Ratio
	$[kBq/m^2]$	$[kBq/m^2]$	[Han97]/
	nach [Han97]	Diese Arbeit	Diese Arbeit
Charkow 1	n.e.	$8,5 \pm 1,3$	
Barachewka 2	n.e.	$5,3\pm0,9$	
Davidowka 2	$5,1\pm0,2$	$4.3\pm0.8$	1,19
Nemirowka 1	$225\pm7$	$235\pm36$	0,96
Woronewo 1	$621\pm19$	$539\pm119$	1,15
Woronewo 3	$476\pm15$	$356\pm84$	1,34
Woronewo 5	$728\pm22$	$386\pm102$	1,89
Tschigiri 2	$416\pm13$	$260\pm63$	1,60
Rjetschka 3	n.e.	$568 \pm 113$	
Nosdristsche 1	$4709\pm142$	$4748 \pm 743$	0,99
Nosdristsche 3	$2586 \pm 78$	$2842 \pm 354$	0,91

Tab. 7.5: Vergleich der Ergebnisse

men der Unsicherheiten überein. Die drei deutlich abweichenden Werte lassen sich aus der unterschiedlichen Behandlung der Humushöhe erklären. Bei diesen drei Proben waren in der bisherigen Auswertung feste Höhen von 2,5 cm definiert, was zu einer deutlichen

Überschätzung des Volumens dieser Schicht führte. Da in der Humusschicht die spezifischen Aktivitäten mit am größten innerhalb eines Profils sind, werden zu große Depositionen ermittelt. Eine Überarbeitung dieser Ergebnisse mit den korrekten Humushöhen bringt auch diese Werte in den Bereich der Unsicherheiten der Depositionen dieser Arbeit. Die Tendenz zu niedrigeren Werten in dieser Arbeit liegt an der Untergrundbestimmung durch GammaW. Ein Abzug mittels einer stetigen Funktion erniedrigt die Nettopeak-fläche gegenüber eines Abzugs durch ein Trapez unter dem Peak.

# 7.3.2 Berücksichtigung des Kernwaffenfallouts

Die Gesamtdeposition von <sup>137</sup>Cs durch die Kernwaffentests wird mit 4 bis 5 kBq/m² angegeben [Eis87, Uns82]. Da in den Profilen Barachewka und Davidowka kein <sup>134</sup>Cs gemessen wurde und die Deposition des <sup>137</sup>Cs in der Größe des Kernwaffenfallouts sind, kann man davon ausgehen, daß diese Gebiete nicht durch den Tschernobyl-Fallout betroffen waren. In Charkow ist der Schluß auf den Kernwaffenanteil des <sup>137</sup>Cs ebenfalls naheliegend. Ermittelt man eine erwartete Deposition des <sup>137</sup>Cs aus dem <sup>134</sup>Cs durch Multiplikation mit dem Isotopenverhältnis aus der Tschernobyl-Wolke von etwa 1,86 [Uns88], so kann man die Differenz von etwa 5,5 kBq/m² ebenfalls als Kernwaffendeposition betrachten. Allerdings wurde in den obersten Schichten von Charkow 1 kein <sup>134</sup>Cs gemessen. Da dieser Anteil bei den anderen Profilen meist den größten Anteil bildeten, ist dies nur eine Vermutung, die durch detailliertere Untersuchungen des Charkow-Profils bestätigt werden müßte.

In den Fällen, in denen in tieferen Schichten kein <sup>134</sup>Cs, aber <sup>137</sup>Cs gemessen werden konnte, ist zu klären, ob dieses <sup>137</sup>Cs aus den Kernwaffentests stammt, oder die Aktivitäten des <sup>134</sup>Cs zu gering sind, um sie im Rahmen dieser Arbeit nachweisen zu können. Dazu wurde exemplarisch die Nachweisgrenze des Tiefeneintrags für die Probe Nemirowka 1 ermittelt. Aus den gemessenen <sup>137</sup>Cs-Tiefeneinträgen lassen sich zu erwartende <sup>134</sup>Cs-Werte bestimmen und mit den minimal nachweisbaren vergleichen. In Abbildung 7.1 sind die aus den gemessenen Tiefeneinträgen des <sup>137</sup>Cs errechneten Werte des <sup>134</sup>Cs dargestellt. Für die Grenztiefen 20 cm und 25 cm konnte kein <sup>134</sup>Cs gemessen werden (vgl. Abbildung A.5). Man kann erkennen, daß die zu erwartenden Tiefeneinträge des <sup>134</sup>Cs unterhalb der Nachweisgrenze liegen. Es daher nicht zu entscheiden, ab in diesen Tiefen der Kernwaffenanteil des <sup>137</sup>Cs vorherrschend ist oder nicht.

# 7.3.3 Vergleich der Depositionen mit den Grenzwerten

Die Behörden der Ukraine geben als Grenzwert für eine längerfristige Evakuierung eine Deposition von <sup>137</sup>Cs von 555 kBq/m² an. Dieser Wert wird an zwei Orten (Tschigiri-Rjetschka 3 und Woronewo 1) fast erreicht bzw. überschritten, obwohl diese Gebiete offiziel in der Zone 1 liegen, in der keine besonderen Maßnahmen vorgesehen sind.

#### 7.3.4 Ausblick

Im Rahmen dieser Diplomarbeit wurden 11 Bodenprofile aus der nördlichen Ukraine untersucht. Hierbei wurden die deponierten Aktivitäten der wesentlichen Nuklide <sup>137</sup>Cs und <sup>134</sup>Cs bestimmt. Regelmäßige Untersuchungen der aktuelle Situationen müssen durchgeführt werden, um die zeitliche Entwicklung des Tiefeneintrags zu beobachten. Heute kann man davon ausgehen, daß die Hauptexposition der Bevölkerung durch <sup>137</sup>Cs resultiert. Allerdings können auch noch 10 Jahre nach dem Unfall beträchtliche Mengen des <sup>134</sup>Cs nachgewiesen werden. Bei weiteren Untersuchungen sollte der Einfluß der Bodentypen auf das Migrationsverhalten berücksichtigt werden. Trotz der bereits vorgenommenen Untersuchungen ist der Datenbestand zum Transfer des Radiocäsiums in die menschliche Nahrungskette unter den lokalen Bedingungen noch nicht vollständig. Auch die Untersuchungen zur Bestimmung der Deposition von <sup>90</sup>Sr sind noch nicht abgeschlossen. Laufende Messungen zum Verhalten des <sup>129</sup>I in der Nahrungsketten und retrospektive Dosisermittlung des <sup>131</sup>I sind weitere Aufgaben. Letztendlich werden die Folgen des Tschernobyl-Unfalls noch lange spürbar bleiben und Anlaß zu vielfältigen Untersuchungen sein.

Eine Beurteilung der Konsequenzen für die Bevölkerung der Ukraine kann nur mit Unterstützung ausländischer Institute erfolgen. Gerade eine detaillierte Bestimmung der <sup>137</sup>Cs-Deposition scheint erforderlich, da innerhalb eines engen Gebiets deutliche Schwankungen auftreten. Eine genaue Interpolation von gemessenen Depositionen scheint auch in begrenzten Gebieten nicht möglich. Für absehbare Zeit ist in den betroffenen Gebieten eine sorgfältige Überwachung geboten. Im Rahmen dieser Diplomarbeit konnte ein Beitrag geleistet werden, um die örtlichen Verhältnisse genauer zu bestimmen. Charkow zeigt, daß auch Gebiete kontaminiert wurden, die zunächst als nicht betroffen galten. Kritischer Umgang mit den ermittelten Werten ist allerdings geboten, da die Unsicherheiten wegen des komplexen Meßprozesses relativ groß sind. Trotzdem sind eindeutige Aussagen über das Ausmaß der Kontaminationen möglich.

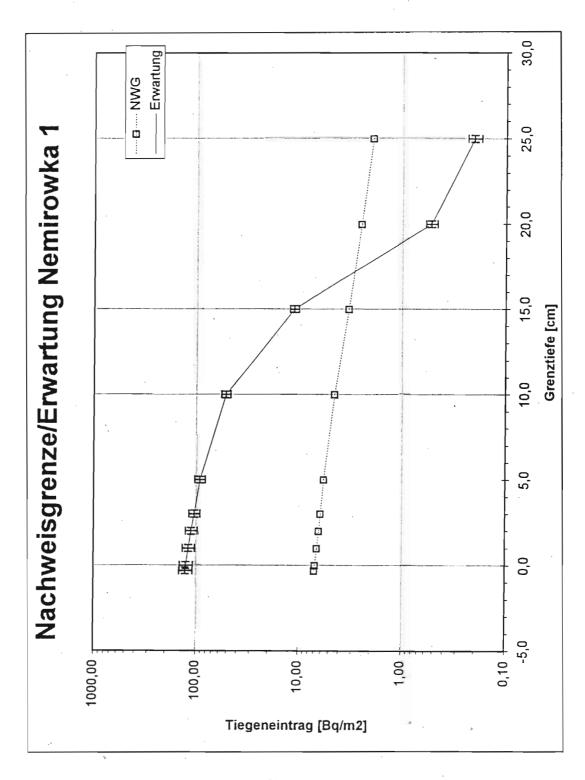


Abb. 7.1: Darstellung des erwarteten <sup>134</sup>Cs-Tiefeneintrags und dessen Nachweisgrenze

# Kapitel 8

# Zusammenfassung

Im Zuge der Modernisierung der  $\gamma$ -Spektrometrie-Systeme des ZSR am Standort Herrenhausen wurden die Vielkanalanlysatorensysteme von zwei Laboratorien im sogenannten Isotopentrakt gegen ein computergestütztes System (TMCA) ausgetauscht. Wegen der gegebenenfalls auftretenden hohen Zählraten sollte ein PC-Vielkanalanalysatorensystem mit externen ADCs aufgebaut werden. Die vorhandenen vier Detektoren wurden zu zwei Meßplätzen zusammengefaßt.

Das neue System ist in Betrieb genommen worden, neu konfiguriert und automatisiert worden. Die Meß- und Auswertungssoftware wurde an die bestehenden Systeme angepaßt und erweitert. Dadurch wurde eine vollständige Kompatibilität zwischen allen Einrichtungen an den beiden Standorten des ZSR hergestellt. Um eine einheitliche Steuerung zu ermöglichen, wurde für die TMCA-Systeme eine Benutzeroberfläche entwickelt.

Anschließend wurden die neuen Meßsysteme zur Messung von Spalt- und Aktivierungsprodukten aus dem Reaktorunfall von Tschernobyl in Umweltproben aus der nördlichen
Ukraine genutzt. Es wurden Bodenprofile untersucht, um die Deposition langlebiger Spaltprodukte und ihre Migration in ukrainischen Böden zu erfassen. Dabei wurden die Ergebnisse der entwickelten Auswertesysteme mit vorhandenen Daten verglichen, um so den
Einfluß des verwendeten Verfahrens zu untersuchen.

Die bei der Datenauswertung gewonnenen Erfahrungen hinsichtlich der Archivierung der Spektren und Dokumentation der Ergebnisse führten zu einer Beschreibung der notwendigen Organisationsstandards bei der Projektplanung.

# Anhang A

# Anhänge

# A.1 Übersicht aller Proben

Tab. A.1: Liste der Background-Profile aus der östlichen Ukraine

Background Proben					
Gebiet: CHAR	Gebiet: Charkow				
		Tag der	Dosisleistung		
Probe	Kennung	Entnahme	$[\mu Sv/h]$		
Charkow 1	Н	16.10.1995	nicht ermittelt		
Charkow 2	Н	16.10.1995	nicht ermittelt		
Charkow 3	Н	16.10.1995	nicht ermittelt		
Charkow 4	Н	16.10.1995	nicht ermittelt		

Tab. A.2: Liste der niedrigkontaminierten Bodenprofile aus der nördlichen Ukraine

Niedrigkontaminierte Proben					
Gebiet: Zнутом	Gebiet: Zhytomyr				
		Tag der	Dosisleistung		
Probe	Kennung	Entnahme	$[\mu Sv/h]$		
Levkow 1	L	09.06.1995	0,108		
Levkow 2	L	09.06.1995	0,110		
Barachewka 1	В	10.06.1995	0,085		
Barachewka 2	В	10.06.1995	0,128		
Barachewka 3	В	10.06.1995	0,120		
Barachewka 4	В	10.06.1995	0,105		
Oserjanka 1	О	10.06.1995	0,074		
Oserjanka 2	0	10.06.1995	0,103		
Oserjanka 3	О	10.06.1995	0,087		
Davidowka 1	D	12.06.1995	0,118		
Davidowka 2	D	12.06.1995	0,110		

Tab. A.3: Liste der mittelkontaminierten Bodenprofile aus der nördlichen Ukraine

Mittelkontaminierte Proben

Gebiet: Korosten

Gebiet: KOROSTEN		Tag der	Dosisleistung
 Probe	Kennung	Entnahme	
			$\frac{[\mu Sv/h]}{}$
Nemirowka 1	N	05.06.1995	0,410
Nemirowka 2	N	05.06.1995	1,120
Nemirowka 3	N	06.06.1995	1,590
Nemirowka 4	N N	06.06.1995	1,390
Kupetsch Tschernjanka 1	, K	06.06.1995	0,846
Kupetsch Tschernjanka 2	K	06.06.1995	0,692
Woronewo 1	. W	06.06.1995	0,872
Woronewo 2	W	06.06.1995	1,310
Woronewo 3	w	06.06.1995	1,130
Woronewo 4	W	07.06.1995	1,800
Woronewo 5	W	07.06.1995	1,540
Woronewo 6	W	07.06.1995	1,170
Woronewo 7	w	07.06.1995	0,728
Tschigiri 1	T	07.06.1995	0,974
Tschigiri 2	Т	07.06.1995	0,938
Tschigiri 3	T	07.06.1995	1,080
Tschigiri Zwintar 1	Z	07.06.1995	1,030
Tschigiri Zwintar 2	Z	07.06.1995	0,928
Tschigiri Zwintar 3	Z	07.06.1995	1,120
Tschigiri Rjetschka 2	R	08.06.1995	1,030
Tschigiri Rjetschka 3	R	08.06.1995	0,887
Tschigiri Ferma 1	F	08.06.1995	1,000
Tschigiri Ferma 2	F	08.06.1995	1,060
Tschigiri Kmilnik 1	M	08.06.1995	1,160
Tschigiri Kmilnik 2	M	08.06.1995	1,210

Nowe Scharno 4

Tab. A.4: Liste der hochkontaminierten Bodenprofile aus der nördlichen Ukraine

Hochkontaminierte Proben			
Gebiet: Naroditschi			
		Tag der	Dosisleistung
Probe	Kennung	Entnahme	$[\mu Sv/h]$
Nosdristsche 1	Ι	16.06.1995	4,62
Nosdristsche 2	I	16.06.1995	4,69
Nosdristsche 3	I	16.06.1995	4,74
Nowe Scharno 1	S	16.06.1995	4,21
Nowe Scharno 2	S	16.06.1995	3,10
Nowe Scharno 3	S	16.06.1995	5,33

S

16.06.1995

6,51

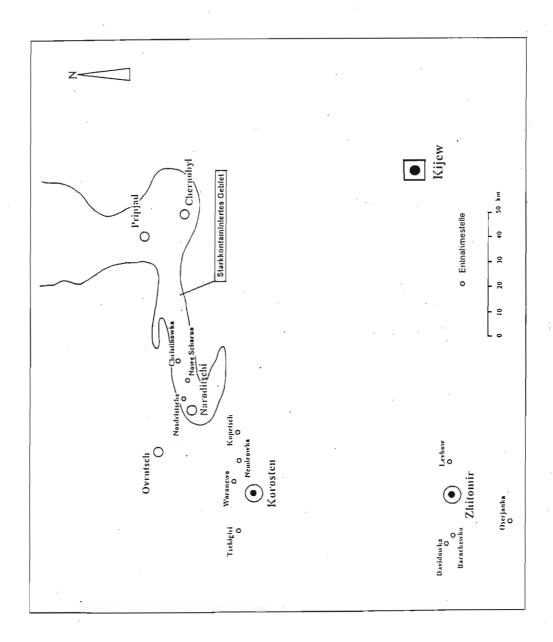


Abb. A.1: Lageplan zur Entnahme der Bodenproben [Han96]

#### A.2 Verwendete Nukliddaten

Es folgen die zur Auswertung genutzten Nukliddaten. Sie sind so ausführlich angegeben, weil sie teilweise erheblich von den mitgelieferten GammaW-Daten abweichen. Es wurden bei manchen Nukliden noch mehr Linien berücksichtigt, aber in den Tabellen sind höchstens 25 Linien angegeben [Pf95, Sch93].

Zunächst werden die Daten der verwendeten Standardlösungen angegeben.

Tab. A.5: Daten der Standardlösungen

Bezeichnung	94-511	95-336
Lösungsmenge [g]	101,23	100,79
Bezugsdatum (00:00 MEZ)	01.08.1994	01.06.1995
Relative Unsicherheit		
der Aktivitätsangabe	3 %	3 %
· Nuklid:	Aktivit	ät [Bq]
Mn-54	$1,09\cdot 10^4$	$1,22\cdot 10^4$
Co-57	$4,56\cdot 10^3$	$5,81\cdot10^3$
Zn-65	$1,78\cdot 10^4$	$3,02\cdot 10^4$
Y-88	$1,13\cdot 10^4$	$3,04\cdot 10^4$
Ba-133	$2,79\cdot 10^3$	$6,41\cdot10^3$
Cs-137	$1,37\cdot 10^4$	$1,22\cdot 10^{4}$
Ce-139	$3,30\cdot 10^3$	$6,22\cdot 10^3$

Tab. A.6: K-40

Nuklid: K-40	
Halbwertszeit:	$1,28 \cdot 10^9$ a
Energie [keV]	Intensität [%]
1460,81	10,67

Tab. A.7: Mn-54

Nuklid: Mn-54	
Halbwertszeit: 31	12,20 d
Energie [keV]	Intensität [%]
834,84	99,98

Tab. A.8: Co-57

Nuklid: Co-57	
Halbwertszeit: 27	1,79 d
Energie [keV]	Intensität [%]
122,06	85,60
136,47	10,68
692,00	0,16

Tab. A.9: Zn-65

Nuklid: Zn-65	
Halbwertszeit: 24	44,26 d
Energie [keV]	Intensität [%]
1115,55	50,60

Tab. A.10: Y-88

Nuklid: Y-88	
Halbwertszeit:	106,63 d
Energie [keV]	Intensität [%]
1836,06	99,33
898,04	94,00

Tab. A.11: Ag-110

Nuklid: Ag-110	
Halbwertszeit: 24	19,79 d
Energie [keV]	Intensität [%]
657,76	95,30
884,69	73,20
937,49	34,60
1384,30	24,45
763,94	22,44
706,68	16,60
1505,04	13,13
677,62	10,42
818,03	7,40
687,02	6,48
744,28	4,77
446,81	3,77

Tab. A.12: Sb-125Z

Nuklid: Sb-125Z		
Halbwertszeit: 1007,70 d		
	, ,	
Energie [keV]	Intensität [%]	
427,88	29,70	
600,60	17,73	
635,95	11,21	
463,37	10,48	
176,31	6,85	
606,72	5,00	
671,38	1,80	
380,45	1,52	
321,03	0,41	
204,10	0,32	
443,49	0,30	
116,93	0,25	
208,02	0,24	
407,99	0,18	
172,63	0,18	
227,90	0,13	
109,29	0,07	
159,00	0,07	

Tab. A.15: Cs-137

Nuklid: Cs-137	17 0
Halbwertszeit: 30 Energie [keV]	Intensität [%]
661,66	85,10

Tab. A.16: Ce-139

Nuklid: Ce-139		
Halbwertszeit: 137,64 d		
Energie [keV]	Intensität [%]	
165,85	79,87	

Tab. A.13: Ba-133

Nuklid: Ba-133	_
Halbwertszeit: 10	,54 a
Energie [keV]	Intensität [%]
356,02	61,94
81,00	34,11
302,85	18,30
383,85	8,91
276,40	7,15
79,62	2,66
53,16	2,16
160,61	0,64
223,25	0,45

Tab. A.17: Ra-226

Nuklid: Ra-226	
Halbwertszeit: 160	
Energie [keV]	Intensität [%]
609,31	44,60
351,92	35,10
295,21	18,15
76,50	16,30
1764,49	15,10
1120,29	14,70
241,98	7,12
1238,11	5,78
2204,21	4,98
88,30	4,94
768,36	4,76
46,54	4,24
1377,67	3,90
186,10	3,51
934,06	3,07
1729,60	2,92
1407,98	2,40
1509,23	2,08
1847,42	2,04
78,40	1,77
1155,19	1,63
665,45	1,51
1280,96	1,42
1401,50	1,36

Tab. A.14: Cs-134

Tab. A.18: Th-232

Nuklid: Th-232	2
Halbwertszeit:	$1,405 \cdot 10^{10}$ a
Energie [keV]	Intensität [%]
238,63	43,50
583,19	30,60
911,21	26,60
77,11	17,70
968,97	16,20
338,32	11,25
74,81	10,50
510,77	8,18
87,30	8,10
727,33	6,69
93,35	5,60
964,77	5,11
860,56	4,50
463,01	4,44
794,95	4,34
240,99	4,10
209,25	3,88
270,24	3,43
89,95	3,40
1588,21	$3,\!27$
300,09	3,25
327,98	3,06
106,30	2,70
129,07	2,45

Tab. A.20: U-238

Nuklid: U-238	
Halbwertszeit:	$4,468 \cdot 10^9$ a
Energie [keV]	Intensität [%]
63,28	4,10
92,37	2,42
92,79	2,39
1001,03	0,84
67,67	0,38
766,37	0,32
112,81	0,24
53,20	0,12
49,55	_0,06

Tab. A.19: U-235G

Nuklid: U-2350	3
Halbwertszeit:	$7,038 \cdot 10^8$ a
Energie [keV]	Intensität [%]
185,72	57,20
143,76	10,96
84,21	6,71
163,33	5,08
205,31	5,01
109,16	1,54
202,11	1,08
194,94	0,63
102,31	0,40
182,61	0,34
72,75	0,26
140,76	0,22
221,38	0,12

### A.3 Ausführliche Ergebnisse

In diesem Abschnitt sind alle Tiefeneinträge grafisch abgebildet, sowie die spezifischen Aktivitäten und die Tiefeneinträge in Tabellen dargestellt. Die Überschriften der Tabellen sind teilweise verkürzt. Die folgende Tabelle erläutert diese:

Tab. A.21: Tabellenüberschriften

Überschrift	Symbol	Einheit	Erläuterung
Probe			Die Bezeichnung des Probenortes
Tiefe	$t_s$	[cm]	Die mittlere Tiefe der Schicht
Grenztiefe	$t_T$	[cm]	Die Grenztiefe dieser Schicht, also
			die Tiefe deren Oberkante
Datum	$T_m$		Das Datum der Messung
Live	t	[s]	Die Meßzeit
Einwaage	$m_p$	[g]	Die Masse der Probe
Höhe	$h_p$	[cm]	Die Füllhöhe der Probenflasche
Std.			Die Nummer des zugeordneten Stan-
			dards
spezifische	$a_p^{(i)}(t_s)$	[Bq/kg]	Die spezifische Aktivität in der Tiefe
Aktivitäten			$t_{\mathfrak s}$ eines Nuklids $i$
Tiefenein-	$T_s^{(i)}(t_T)$	$[kBq/m^2]$	Der Tiefeneintrag eines Nuklids $i$ bis
träge		•	zur Grenztiefe $t_T$
Ratio	·		Das Verhältnis von <sup>137</sup> Cs zu <sup>134</sup> Cs

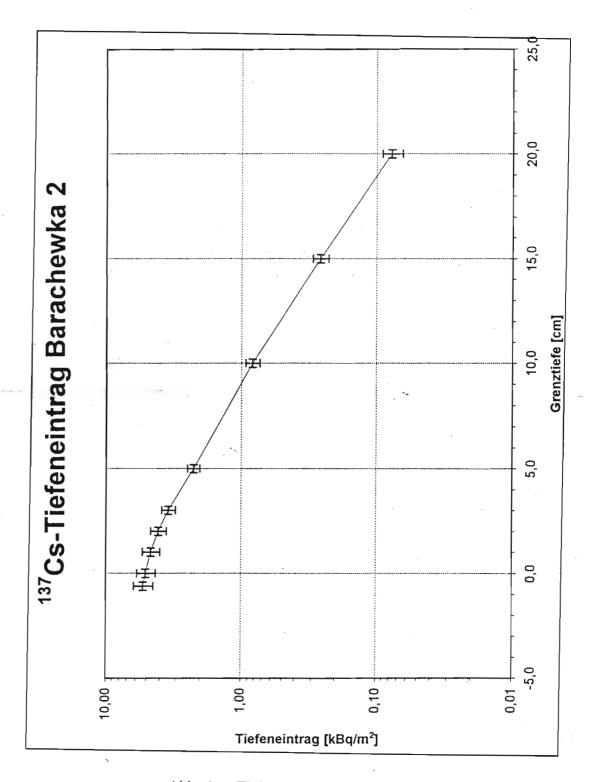


Abb. A.2: Tiefeneintrag Barachewka 2

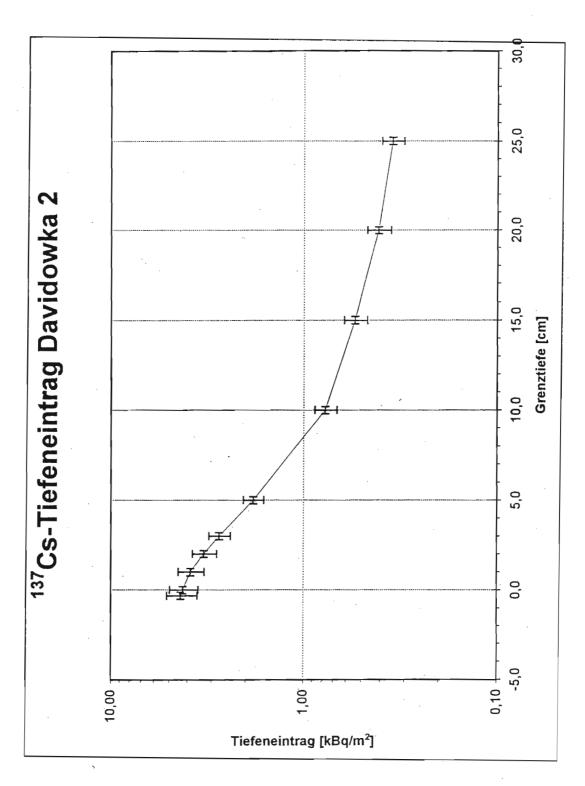


Abb. A.3: Tiefeneintrag Davidowka 2

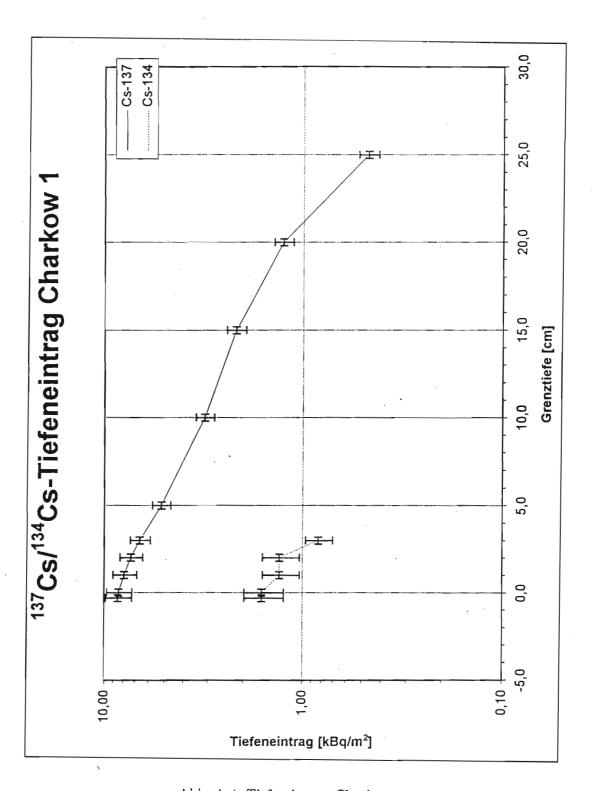


Abb. A.4: Tiefeneintrag Charkow 1

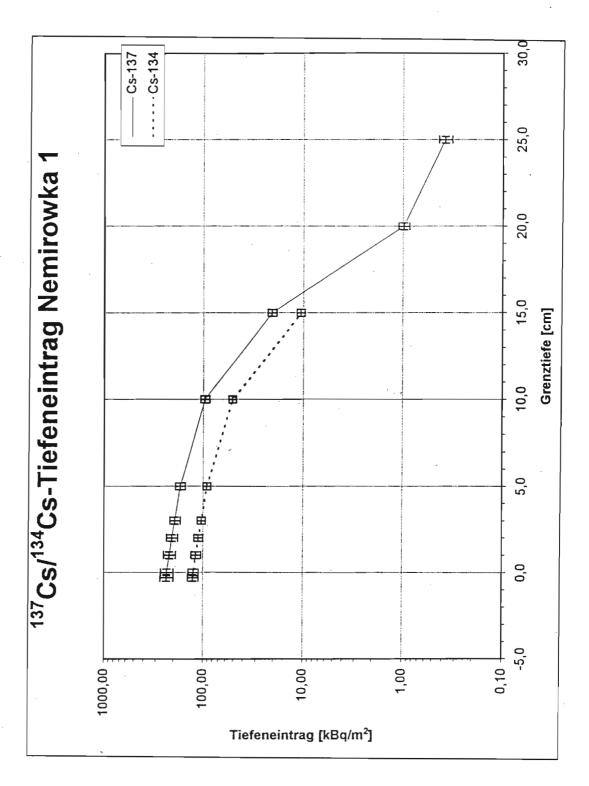


Abb. A.5: Tiefeneintrag Nemirowka 1

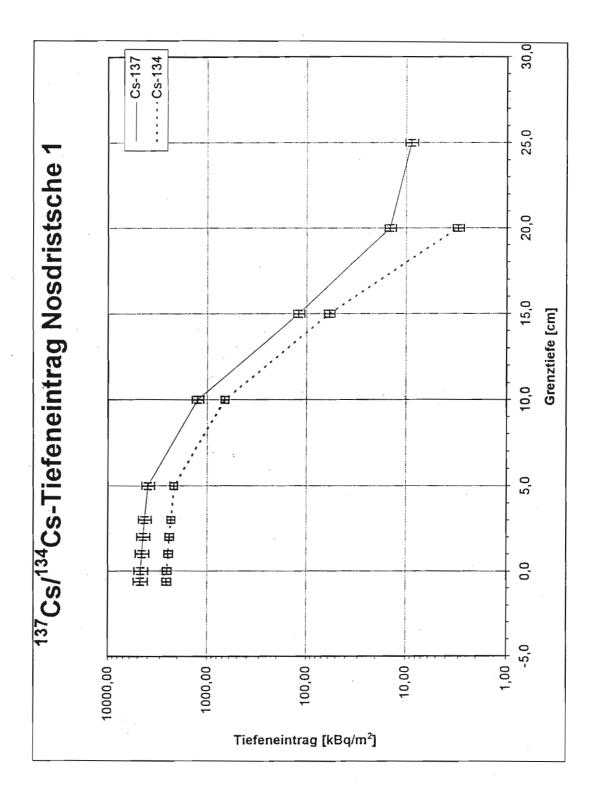


Abb. A.6: Tiefeneintrag Nosdristsche 1

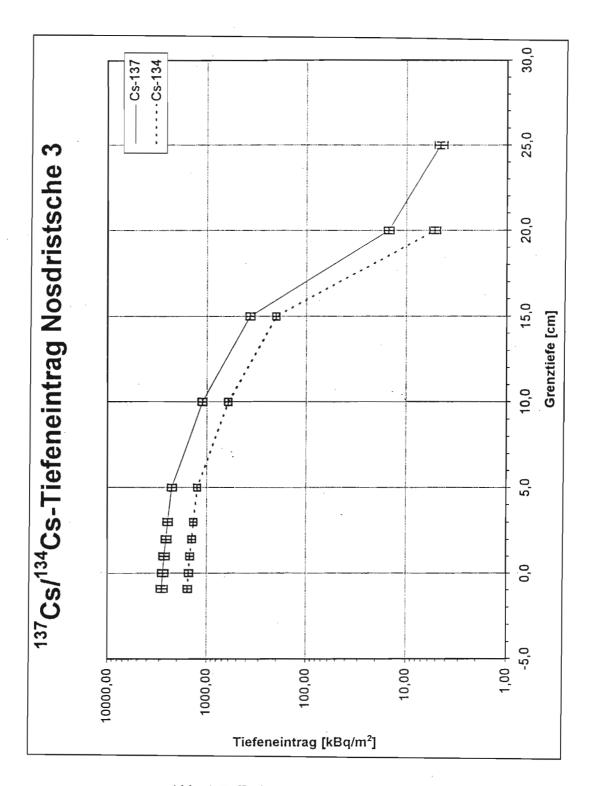


Abb. A.7: Tiefeneintrag Nosdristsche 3

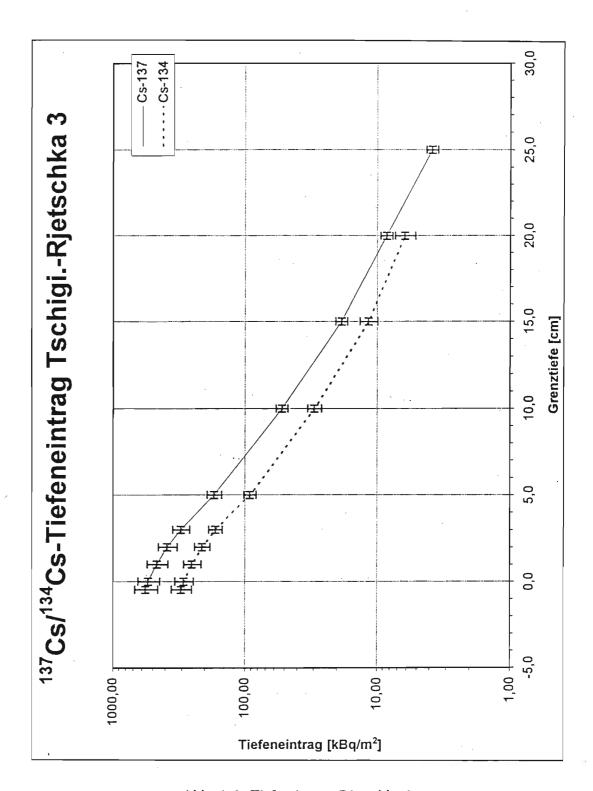


Abb. A.8: Tiefeneintrag Rjetschka 3

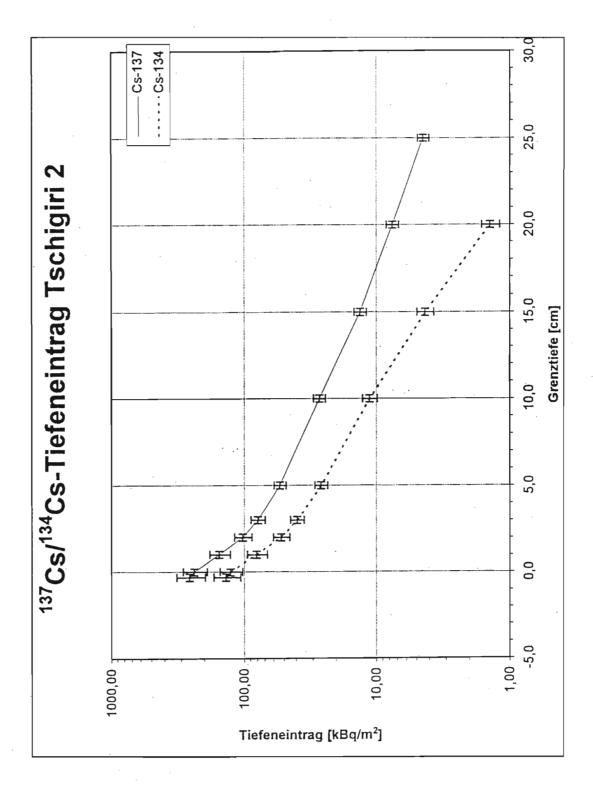


Abb. A.9: Tiefeneintrag Tschigiri 2

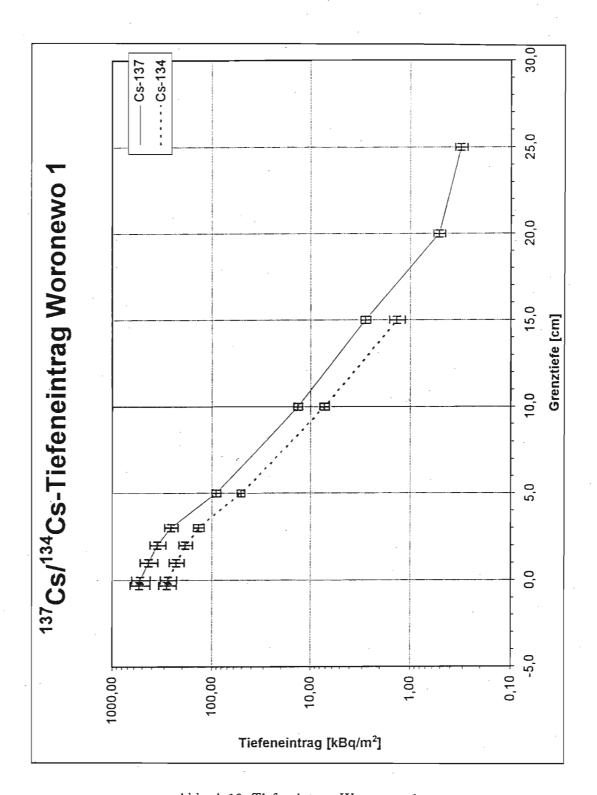


Abb. A.10: Tiefeneintrag Woronewo 1

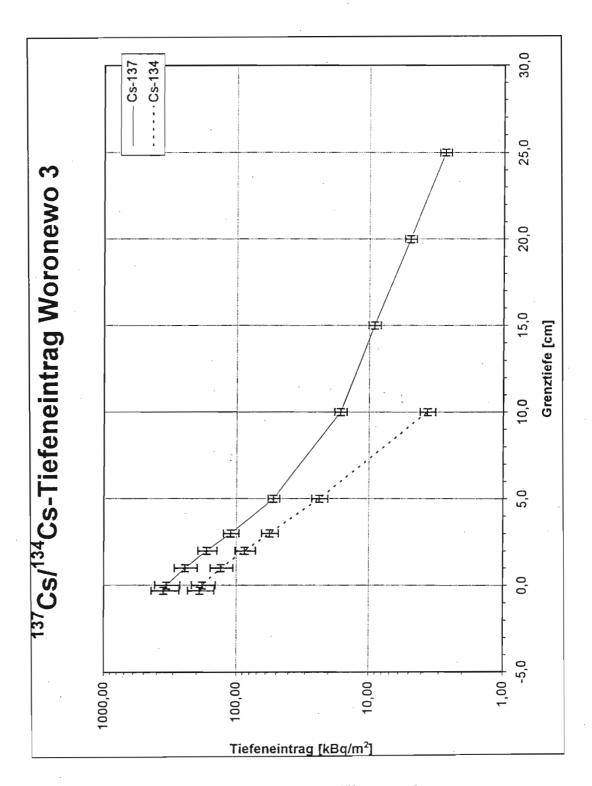


Abb. A.11: Tiefeneintrag Woronewo 3

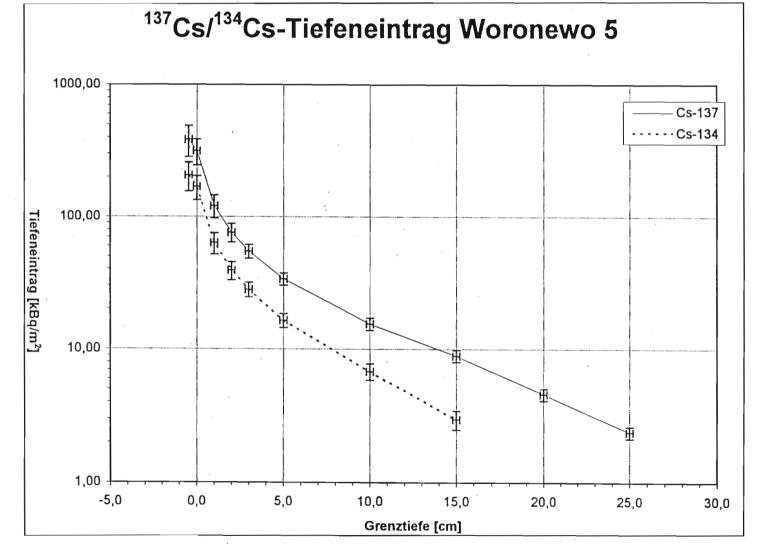


Abb. A.12: Tiefeneintrag Woronewo 5

Probendaten							Massenspezifische Aktivitäten [Bq/kg]									
Probe:	Tiefe:	Datum:	Live:	Einwaage:	Höhe:	Std.:	K-40		Cs-13		Cs-13		Ra-22		Th-23	32
Nosdristsche 1	0,0	04.12.1996	3600	230,1	4,0	14	211,9 ±	32,7	4509,8 ±	271,4	8426,5 ±	838,7	0,0 ±	0,0	0,0 ±	0,0
Nosdristsche 1	0,5	04.12.1996	3600	182,4	2,0	25	210,4 ±	37,0	4805.9 ±	367,0	9233,7 ±	1291,1	0.0 ±	0,0	0,0 ±	0,0
Nosdristsche 1	1,5	03.12.1996	3600	356,0	4,0	14	186,3 ±	24,7	4449,6 ±	271,2	8174,1 ±	812,1	0,0 ±	0,0	0,0 ±	0,0
Nosdristsche 1	2,5	03.12.1996	3600	393,8	4,0	27	212,8 ±	32,5	5172,0 ±	342,0	9359,3 ±	1082,9	0,0 ±	0,0	0,0 ±	0,0
Nosdristsche 1	4,0	02.12.1996	7200	630,1	6,0	29	188,1 ±	29,7	4574,2 ±	280,1	8659,9 ±	1118,0	0,0 ±	0,0	0,0 ±	0,0
Nosdristsche 1	7,5	03.12.1996	3600	646,0	6,0	29	182,0 ±	29,0	17554,2 ±	940,3	31725,9 ±	4095,8	0,0 ±	0,0	0,0 ±	0,0
Nosdristsche 1	12,5	29.11.1996	64800	1083,0	10,0	28	199,0 ±	26.4	6941,7 ±	325,2	12931,3 ±	1469,6	10,2 ±	0,8	10,1 ±	1,2
Nosdristsche 1	17,5	04.12.1996	3600	1122,6	10,0	28	190,8 ±	27,7	615,8 ±	62,0	1163,3 ±	132,4		0,0	11,7 ±	1,5
Nosdristsche 1	22,5	28.11.1996	64800	1522,0	14,0	6	188,5 ±	17,6	34,9 ±	3,8	63,8 ±	5,1	9,4 ±	0,4	9,2 ±	0,4
Nosdristsche 1	32,5	02.12.1996	3600	697,7	6,0	29	156,6 ±	27,5	0,0 ±	0,0	31,7 ±	4,3	9,8 ±		9,0 ±	1,1
Nosdristsche 3	0,0	09.12.1996	64800	508,6	6,0	29	229,3 ±	30,8	3029,2 ±	142,9	5648,9 ±	653,1	12,2 ±	0,8	11,8 ±	0,8
Nosdristsche 3	0,5	11.12.1996	64800	507,3	6,0		239,8 ±	32,2	3049,6 ±	155,2	5595,7 ±	646,9	12,1 ±	0,7	11,4 ±	1,0
Nosdristsche 3	1,5	13.12.1996	64800	390,2	4,0	27	324,6 ±	35,1	4225,0 ±	233,4	7767,1 ±	723,0	17,0 ±	1,0	15,9 ±	1,4
Nosdristsche 3	2,5	12.12.1996	7200	539,0	6,0	29	241,2 ±	33,3	3424,9 ±	203,7	6477,4 ±	749,1	0,0 ±	0,0	12,5 ±	1,5
Nosdristsche 3	4,0	12.12.1996	10800	543,7	6,0	. 29	229,8 ±	31,5	3971,4 ±	215,2	7288,4 ±	842,8	0,0 ±	0,0	11,3 ±	1,2
Nosdristsche 3	7,5	12.12.1996	32400	1007,9	10,0	28	347,1 ±	30,9	7855,8 ±	335,7	14180,0 ±	1053,0	19,5 ±	1,2	18,0 ±	1,4
Nosdristsche 3	12,5	06.12.1996	64800	1378,7	14,0	4	269,9 ±	24,7	5159,3 ±	198,5	9338,2 ±	736,0	15,2 ±	0,8	14,2 ±	0,8
Nosdristsche 3	17,5	05.12.1996	3600	1468,9	14,0	6	268,8 ±	27,8	2326,2 ±	117,9	4197,1 ±	335,2	0,0 ±	0,0	0,0 ±	0,0
Nosdristsche 3	22,5	05.12.1996	64800	1033,3	10,0	28	362,2 ±	31,2	62,6 ±	6,5	126,1 ±	9,4	17,7 ±	0,9	17,1 ±	0,6
Nosdristsche 3	32,5	04.12.1996	3600	1089,2	10,0	28	316,1 ±	43,5	0,0 ±	0,0	17,4 ±	2,3	16,7 ±	1,4	16,4 ±	1,4
Rjetschka 3	0,0	02.10.1996	64800	202,6	3,0	20	467,4 ±	79,5	. 2731,1 ±	165,5	5192,5 ±	759,6	26,0 ±	1,7	23,3 ±	1,6
Rjetschka 3	0,5	09.10.1996	64800	254,8	3,0	26	429,5 ±	52,3	2889,6 ±	195,2	5565,8 ±	582,5	25,0 ±	1,3	22,2 ±	1,3
Rjetschka 3	1,5	08.10.1996	64800	337,4	4,0	14	405,0 ±	46,8	3003,7 ±	191,9	5606,8 ±	556,5	24,3 ±	1,2	20,6 ±	1,0
Rjetschka 3	2,5	27.09.1996	64800	349,6	4,0	14	388,4 ±	45,1	3160,9 ±	203,9	5855,5 ±	581,1	22,4 ±	1,3	20,2 ±	1,2
Rjetschka 3	4,0			577,9	6,0	29	415,5 ±	62,5	2408,7 ±	137,2	4377,9 ±	565,2	24,7 ±	1,3	22,4 ±	1,5
Rjelschka 3	7,5	26.09.1996	64800	984,2	10,0	28	413,9 ±	54,5	786,8 ±	56,2	1487,2 ±	169,1	26,7 ±	1,2	23,3 ±	1,4
Rjetschka 3	12,5	01.10.1996	64800	1425,8	14,0	6	387,2 ±	35,7	· 220,5 ±	15,0	414,5 ±	33,1	25,4 ±	0,9	20,8 ±	8,0
Rjetschka 3	17,5	07.10.1996	64800	1415,5	14,0	6	394,4 ±	36,3	66,6 ±	7,5	123,0 ±	9,8	26,3 ±	1,0	21,9 ±	0,8
Rjetschka 3		04.10.1996		1483,9	14,0	6	421,9 ±	39,2	21,1 ±	3,1	54,5 ±	4,4	26,1 ±	0,9	22,5 ±	8,0
Rjetschka 3	32,5	10.10.1996	64800	1544,5	14,0	6	376,6 ±	34,7	16,5 ±	2,8	14,4 ±	1,2	22,4 ±	0,8	19,5 ±	0,7
Tschigiri 2	0,0	12.09.1996	64800	106,1	- 2,0	19	490,1 ±	71,9	3962,5 ±	278,2	7740,6 ±	969,9	23,4 ±	1,8	21,2 ±	1,9
Tschigiri 2	0,5	13.09.1996	64800	220,4	3,0	20	417,9 ±	70,9	3931,0 ±	245,5	7171,0 ±	1049,0	21,9 ±	1,7	19,1 ±	1,3
Tschigiri 2	1,5	18.09.1996	64800	324,7	4,0	14	405,1 ±	46,7	2147,0 ±	130,5	3959,4 ±	393,1	19,6 ±	1,1	18,7 ±	0,9
Tschigiri 2	2,5	19.09.1996	64800	337,5	4,0	14	402,6 ±	46,6	950,4 ±	56,5	1731,4 ±	171,9	19,9 ±	0,9	18,3 ±	1,0
Tschigiri 2	4,0	17.09.1996	64800	932,8	10,0	28	405,8 ±	53,5	448,4 ±	34,4	840 4 ±	95,5	22,7 ±	1,1	20,8 ±	1,2
Tschigiri 2	7,5	20.09.1996	64800	1431,5	14,0	6	370,3 ±	34,2	179,3 ±	13,0	325,0 ±	26,0	20,5 ±	1,5	19,8 ±	1,0
Tschigiri 2	12,5	16.09.1996	64800	1404,7	14,0	6	379,3 ±	35,2	85,9 ±	8,0	168,3 ±	13,5	21,0 ±	,		0,7
Tschigiri 2	17,5	25.09.1996	64800	1460,3	14,0	6	364,8 ±	33,7	34,7 ±	4,5	67,0 ±		21,2 ±	•		0,7
Tschigiri 2	22,5	23.09.1996	64800	1523,2	14,0	6	386,7 ±	35,7	15,9 ±	2,2	36,1 ±	3,0	20,5 ±			0,7
Tschigiri 2	32,5	24.09.1996	64800	1550,9	14,0	6	403,7 ±	37,1	0,0 ±	0,0	16,6 ±	1,4	19,6 ±			1,0

	Probendaten					Massenspezifische Aktivitäten [Bq/kg]											
	Probe:		Datum:		Einwaage:	Höhe:	Std.:	K-40		Cs-13		Cs-13		Ra-2		Th-23	32
	Woronewo 1	•	23.07,1996		87,2	2,0	19	632,9 ±	92,8	3403,0 ±	293,8	6209,4 ±	778,0	24,7 ±	2,9	24,4 ±	1,7
	Woronewo 1	•	24.10.1996		, .	2,0	25	521,6 ±	85,1	3768,2 ±	268,2	7198,0 ±		22,6 ±			-
	Woronewo 1	1,5	25.10.1996	64800	149,2	2,0	25	540,5 ±	87,9	3652,4.±	234,7	6743,0 ±	942,5	22,9 ±	2,0	22,8 ±	1,4
	Woronewo 1	2,5	24.07.1996	64800	142,7	2,0	25	540,6 ±	87,9	4352,0 ±	260,9	8276,9 ±	1156,9	23,0 ±	1,9	23,3 ±	1.5
$\Box$	Woronewo 1		21.11.1996		-,-,-	6,0	29	412,5 ±	69,7	3120,3 ±	284,9	6133,1 ±	792,7	0,0 ±	0,0	0,0 ±	0,0
$\operatorname{Tab}$	Woronewo 1		26.07.1996			14,0	6	434,7 ±	40,1	536,0 ±	29,0	950,9 ±	75,9	21,4 ±	0,8	22,1 ±	0,9
	Woronewo 1		30.07.1996			14,0		440,7 ±	40,6	69,4 ±	4,9	126,1 ±	10,1	22,0 ±	0,8	21,6 ±	0,8
A	Woronewo 1		31.07.1996		,.	14,0	. 6	428,0 ±	39,5	15,8 ±	2,6	26,2 ±				19,7 ±	
22	Woronewo 1		18.07.1996		, .	14,0	6	448,2 ±	41,4	0,0 ±	0,0	2,4 ±				21,6 ±	
4.	Woronewo 1		12.07.1996		, ,	14,0	6	424,0 ±	39,6	0,0 ±	0,0	1,1 ±	0,1	18,5 ±	0,6	20,5 ±	0,7
gp	Woronewo 3	•	01.08.1996	64800	76,7	2,0	19	644,7 ±	94,1	4763,1 ±	258,4	8646,4 ±		28,0 ±			
iez	Woronewo 3	•	20.11.1996	1800	188,8	3,0	20	447,8 ±	84,8	4917,1 ±	542,5	9227,3 ±	1350,7	0,0 ±	0,0	0,0 ±	0.0
pezifische	Woronewo 3		20.11.1996	1800	196,0	3,0	20	391,3 ±	78,2	4216,9 ±	371,9	7436,6 ±	1089,1	41,4 ±	8,8	0,0 ±	0,0
scl	Woronewo 3	•	21.11.1996	1800	211,2	4,0	14	623,7 ±	83,7	3582,9 ±	287,1	6758,4 ±	673,5	0,0 ±	0,0	32,3 ±	5,8
ne	Woronewo 3		21.11.1996	1800	309,0	4,0	14	373,5 ±	50,9	1310,6 ±	114,0	2317,7 ±	230,9	23,9 ±	3,0	22,6 ±	4,2
$\triangleright$	Woronewo 3	•	09.08.1996		1333,4	14,0	4	453,0 ±	41,3	259,3 ±	32,0	468,8 ±	37,0	23,9 ±	0,8	23,4 ±	8,0
ķ	Woronewo 3		12.08.1996		1339,9	14,0	4	429,8 ±	39,5	47,5 ±	5,3	93,6 ±	7,4	23,0 ±	0,9	22,6 ±	0,8
₹.	Woronewo 3	•	22.11.1996		1364,3	14,0	. 4	402,2 ±	37,7	0,0 ±	0,0	54,0 ±	4,4	23,0 ±	0,9	22,3 ±	1,0
it:	Woronewo 3	•	20.11.1996		1327,8	14,0	4	386,9 ±	36,1	0,0 ±	0,0	28,7 ±	2.4	21,8 ±	0,8	22,1 ±	0,8
Aktivitäten	Woronewo 3	-	15.08.1996		1473,1	14,0	6	428,9 ±	39,7	0,0 ±	0,0	10,7 ±	0,9	19,2 ±	0,7	21,5 ±	0.7
ä	Woronewo 5	•	16.08.1996		57,3	3,0	31	584,8 ±	69,9	26555,1 ±	1418,7	48563,1 ±	4868,6	32,0 ±	9,8	0.0 ±	•
$\omega$	Woronewo 5	•	30.08.1996		99,3	3,0	31	437,3 ±	51,6	19693,0 ±	833,1	36649,0 ±	3671,9	21,1 ±	3,4	0.0 ±	0.0
/3	Woronewo 5	1,5	02.09.1996	64800	194,8	3,0	20	441,1 ±	75,2	2333,3 ±	162,2	4288,5 ±	627,3	22,5 ±	1.7	21,9 ±	1.4
	Woronewo 5	2,5	04.09.1996	64800	201,7	3,0	20	457,5 ±	78,0	1016,9 ±	91,3	1966,3 ±			-	23,5 ±	•
	Woronewo 5	4,0	01.09.1996	64800	490,9	6,0	24	377,4 ±	40,7	438,9 ±	30,3	798.7 ±				20,6 ±	
	Woronewo 5	7,5	05.09.1996	64800	1233,3	14,0	4	417,1 ±	38,2	134,7 ±	10,7	254,8 ±				22,5 ±	
	Woronewo 5	12,5	06.09.1996	64800	1254,1	14,0	4	419,6 ±	38,4	53,1 ±	5,7	89,5 ±				23,6 ±	
	Woronewo 5	17,5	10.09,1996	64800	1420,4	14,0	6	406,9 ±	37,8	36,3 ±	5.3	53.3 ±				23,9 ±	
	Woronewo 5	22,5	09.09.1996	64800	1421,5	14,0	6	411,7 ±	37,9	0,0 ±	0,0	26.8 ±				23,1 ±	
	Woronewo 5	32,5	03.09.1996	64800	1432,2	14,0	6	445,1 ±	41,2	0,0 ±	0,0	9,6 ±				24,1 ±	
													•				- 1-

		Tiefene	inträg	ge [kBq/m²	]		
Probe:	Grenztiefe:	Cs-134		Cs-137		Ratio	);
Barachewka 2	-0,6	0,0 ±	0,0	5,3 ±	0,9	±	
Barachewka 2	0,0	0,0 ±	0,0	5,1 ±	0,8	±	
Barachewka 2	1,0	0,0 ±	0,0	$4,7 \pm$	0,7	±	
Barachewka 2	2,0	0,0 ±	0,0	4,1 ±	0,6	±	
Barachewka 2	3,0	0,0 ±	0,0	3,5 ±	0,4	±	
Barachewka 2	5,0	$0.0 \pm$	0,0	2,3 ±	0,2	±	
Barachewka 2	10,0	0,0 ±	0,0	0,8 ±	0,1	±	
Barachewka 2	15,0	0,0 ±	0,0	0,3 ±	0,0	±	
Barachewka 2	20,0	0,0 ±	0,0	$0,1 \pm$	0,0	±	
Barachewka 2	25,0	0,0 ±	0,0	0,0 ±	0,0	±	
Davidowka 2	-0,3	0,0 ±	0,0	4,3 ±	0,8	±	
Davidowka 2	0,0	0,0 ±	0,0	4,2 ±	0,7	±	
Davidowka 2	1,0	0,0 ±	0,0	3,9 ±	0,6	±	
Davidowka 2	2,0	0,0 ±	0,0	3,3 ±	0,5	±	
Davidowka 2	3,0	0,0 ±	0,0	$2,7 \pm$	0,3	±	
Davidowka 2	5,0	0,0 ±	0,0	1,8 ±	0,2	±	
Davidowka 2	10,0	0,0 ±	0,0	0,8 ±	0,1	±	
Davidowka 2	15,0	0,0 ±	0,0	$0,5 \pm$	0,1	±	
Davidowka 2	20,0	0,0 ±	0,0	0,4 ±	0,1	±	
Davidowka 2	25,0	0,0 ±	0,0	0,3 ±	0,0	±	
Charkow 1	-0,3	1,6 ±	0,4	8,5 ±	1,3	$5,29 \pm$	1,45
Charkow 1	0,0	1,6 ±	0,4	8,5 ±	1,2	$5,24 \pm$	1,42
Charkow 1	1,0	1,3 ±	0,3	7,9 ±	1,1	6,03 ±	1,54
Charkow 1	2,0	1,3 ±	0,3	7,3 ±	0,9	$5,59 \pm$	1,40
Charkow 1	3,0	$0.8 \pm$	0,1	6,6 ±	0,7	$7,97 \pm$	1,55
Charkow 1	5,0	0,0 ±	0,0	5,2 ±	0,6	±	
Charkow 1	10,0	0,0 ±	0,0	$3,1 \pm$	0,3	±	
Charkow 1	15,0	0,0 ±	0,0	$2.2 \pm$	0,2	±	
Charkow 1	20,0	0,0 ±	0,0	1,3 ±	0,1	±.	
Charkow 1	25,0	0,0 ±	0,0	$0,5 \pm$	0,1	±	
Nemirowka 1	-0,3	126,6 ±	16,2	235,3 ±	35,6	1,86 ±	0,37
Nemirowka 1	0,0	125,0 ±	15,2	232,5 ±	33,7	1,86 ±	0,35
Nemirowka 1	1,0	118,0 ±	13,5	$219,7 \pm$	30,3	1,86 ±	0,33
Nemirowka 1	2,0	111,2 ±	11,8	206,8 ±	26,8	1,86 ±	0,31
Nemirowka 1	3,0	103,7 ±	10,0	193,1 ±	23,5	1,86 ±	0,29
Nemirowka 1	5,0	91,5 ±	8,3	171,0 ±	20,0	1,87 ±	0,28
Nemirowka 1	10,0	51,3 ±	4,4	95,7 ±	10,0	$1,87 \pm$	0,25
Nemirowka 1	15,0	10,6 ±	1,0	20,8 ±	2,2	1,95 ±	0,28
Nemirowka 1	20,0	0,0 ±	0,0	1,0 ±	0,1	±	
Nemirowka 1	25,0	0,0 ±	0,0	$0.4 \pm$	0,1	±	

Tab. A.25: Tiefeneinträge 1/3

		Tiefen	einträ	ge [kBq/ı	n²]		
Probe:	Grenztiefe:	Cs-13	4	Cs-13	37	Ratio	o:
Nosdristsche 1	-0,6	2586,9 ±	274,9	4747,5 ±	743,0	1,84 ±	0,35
Nosdristsche 1	0,0	2560,9 ±	266,2	4699,1 ±	726,3	1,83 ±	0,34
Nosdristsche 1	1,0	2490,2 ±	249,1	4563,2 ±	689,8	1,83 ±	0,33
Nosdristsche 1	2,0	2426,4 ±	235,0	4445,9 ±	662,2	1,83 ±	0,33
Nosdristsche 1	3,0	2344,2 ±	216,7	4297,3 ±	626,3	1,83 ±	0,32
Nosdristsche 1	5,0	2189,3 ±	196,2	4003,9 ±	575,1	1,83 ±	0,31
Nosdristsche 1	10,0	665,1 ±	57,5	1249,2 ±	165,8	1,88 ±	0,30
Nosdristsche 1	15,0	58,8 ±	7,2	119,8 ±	15,9	$2,04 \pm$	0,37
Nosdristsche 1	20,0	$3,1 \pm$	0,4	14,5 ±	1,9	$4,74 \pm$	0,87
Nosdristsche 1	25,0	$0.0 \pm$	0,0	8,9 ±	1,3	±	
Nosdristsche 3	-0,9	1562,6 ±	158,6	2841,7 ±	354,2	1,82 ±	0,29
Nosdristsche 3	0,0	1524,1 ±	149,8	2769,8 ±	336,2	1,82 ±	0,28
Nosdristsche 3	1,0	1482,5 ±	140,9	2693,5 ±	317,9	1,82 ±	0,28
Nosdristsche 3	2,0	1416,0 ±	126,3	2571,3 ±	289,6	1,82 ±	0,26
Nosdristsche 3	3,0	1366,4 ±	115,5	2477,5 ±	267,1	1,81 ±	0,25
Nosdristsche 3	5,0	1250,3 ±	100,5	2264,4 ±	232,0	1,81 ±	0,24
Nosdristsche 3	10,0	611,8 ±	48,9	1111,8 ±	115,5	1,82 ±	0,24
Nosdristsche 3	15,0	$202,0 \pm$	17,2	370,2 ±	38,8	1,83 ±	0,25
Nosdristsche 3	20,0	5,2 ±	0,6	15,1 ±.	1,7	2,89 ±	0,49
Nosdristsche 3	25,0	0,0 ±	0,0	4,6 ±	0,7	±	
Rjetschka 3	-0,5	$305,9 \pm$	53,6	568,0 ±	112,7	1,86 ±	0,49
Rjetschka 3	0,0	292,0 ±	47,4	541,7 ±	100,5	1,85 ±	0,46
Rjetschka 3	1;0	252,5 ±	38,4	465,5 ±	82,1	1,84 ±	0,43
Rjetschka 3	2,0	211,6 ±	29,4	389,2 ±	64,3	1,84 ±	0,40
Rjetschka 3	3,0	167,0 ±	19,5	306,6 ±	44,9	1,84 ±	0,34
Rjetschka 3	5,0	92,2 ±	9,7	170,6 ±	21,1	1,85 ±	0,30
Rjetschka 3	10,0	29,7 ±	3,5	52,6 ±	5,5	1,77 ±	0,28
Rjetschka 3	15,0	11,6 ±	1,8	18,5 ±	1,9	1,59 ±	0,30
Rjetschka 3	20,0	6,2 ±	1,1	8,5 ±	0,9	1,37 ±	0,28
Rjetschka 3	25,0	4,4 ±	0,8	3,8 ±	0,4	0,87 ±	0,18
Tschigiri 2	-0,3	137,7 ±	31,3	259,9 ±	63,3	1,89 ±	0,63
Tschigiri 2	0,0	$127,2 \pm$	24,4		49,6	1,88 ±	0,53
Tschigin 2	1,0	80,6 ±	13,8	154,4 ±	27,4	1,92 ±	0,47
Tschigiri 2	2,0	52,5 ±	7,6	$102,5 \pm$	15,2	1,95 ±	0,41
Tschigiri 2	3,0	39,5 ±	4,8	79,0 ±	9,7	2,00 ±	0,34
Tschigiri 2	5,0	$26,0 \pm$	2,9	$53,7 \pm$	5,6	$2,06 \pm$	0,31
Tschigiri 2	10,0	11,3°±	1,4	26,9 ±	2,8	2,39 ±	0,39
Tschigiri 2	15,0	4,3 ±	0,6	13,3 ±	1,4	3,07 ±	0,56
Tschigiri 2	20,0	1,4 ±	0,2	7,6 ±	0,8 .		1,01
Tschigiri 2	25,0	0,0 ±	0,0	4,4 ±	0,4	±	

Tab. A.26: Tiefeneinträge 2/3

	Tiefeneinträge [kBq/m²]											
Probe:	Grenztiefe:	Cs-13		7	Ratio	o:						
Woronewo 1	-0,3	284,8 ±	55,8	538,5 ±	119,4	1,89 ±	0,56					
Woronewo 1	0,0	277,3 ±	50,9	525,0 ±	110,4	1,89 ±	0,53					
Woronewo 1	1,0	230,4 ±	39,7	435,3 ±	86,3	1,89 ±	0,50					
Woronewo 1	2,0	186,5 ±	29,2	354,2 ±	64,5	1,90 ±	0,46					
Woronewo 1	3,0	136,4 ±	17,3	259,0 ±	38,9	1,90 ±	0,37					
Woronewo 1	5,0	50,8 ±	4,6	90,7 ±	9,5	1,79 ±	0,25					
Woronewo 1	10,0	$7,2 \pm$	0,8	13,4 ±	1,4	1,86 ±	0,29					
Woronewo 1	15,0	1,4 ±	0,2	2,8 ±	0,3	$2,03 \pm$	0,43					
Woronewo 1	20,0	0,0 ±	0,0	$0,5 \pm$	0,1	±						
Woronewo 1	25,0	0,0 ±	0,0	$0,3 \pm$	0,0	±						
Woronewo 3	-0,3	190,2 ±	43,7	356,3 ±	84,2	1,87 ±	0,62					
Woronewo 3	0,0	181,1 ±	37,7	339,7 ±	73,2	1,88 ±	0,56					
Woronewo 3	1,0	131,2 ±	25,5	246,1 ±	48,6	1,88 ±	0,52					
Woronewo 3	2,0	86,8 ±	15,1	167,7 ±	28,1	1,93 ±	0,47					
Woronewo 3	3,0	56,2 ±	8,2	110,2 ±	14,6	1,96 ±	0,39					
Woronewo 3	5,0	23,6 ±	3,3	52,4 ±	5,4	$2,22 \pm$	0,39					
Woronewo 3	10,0	$3,7 \pm$	0,5	16,4 ±	1,7	$4,47 \pm$	0,75					
Woronewo 3	15,0		0,0	9,2 ±	1,0	±						
Woronewo 3	20,0	0,0 ±	0,0	4,9 ±	0,5	±						
Woronewo 3	25,0	0,0 ±	0,0	2,7 ±	0,3	±						
Woronewo 5	-0,5	206,6 ±	51,8	386,0 ±	102,1	1,87 ±	0,68					
Woronewo 5	0,0	168,6 ±	35,0	316,5 ±	70,8	1,88 ±	0,57					
Woronewo 5	1,0	63,4 ±	11,7	120,8 ±	24,0	1,90 ±	0,52					
Woronewo 5	2,0	39,0 ±	6,1	75,9 ±	12,2	1,95 ±	0,44					
Woronewo 5	3,0	28,0 ±	3,5	54,6 ±	6,7	1,95 ±	0,34					
Woronewo 5	5,0	16,4 ±	2,0	33,5 ±	3,5	$2,05 \pm$	0,32					
Woronewo 5	10,0	6,8 ±	1,0	15,4 ±	1,6	$2,26 \pm$	0,40					
Woronewo 5	15,0	$3,0 \pm$	0,5	8,9 ±	0,9	$3,01 \pm$	0,58					
Woronewo 5	20,0	0,0 ±	0,0	4,6 ±	0,5	±						
Woronewo 5	25,0	$0,0 \pm$	0,0	$2,4 \pm$	0,2	±						

Tab. A.27: Tiefeneinträge 3/3

# Abbildungsverzeichnis

3.1	Freigesetzte radioaktive Stoffe	11
3.2	Hauptausbreitungsrichtungen bis zum 2.5.1986	14
3.3	Kontamination durch <sup>137</sup> Cs in der Umgebung von Tschernobyl	15
4.1	Schematische Darstellung eines Halbleiterdetektors	21
4.2	Blockschema des TMCA2-Systems	25
4.3	Blockschema des Maestro-Systems	26
4.4	Beispiel einer Efficiency-Kurve	30
5.1	Prinzipieller Ablauf der Auswertung	41
5.2	Aufbau der Spektrumsdateinamen	42
6.1	Geometrie der entnommenen Bodensäulen	49
7.1	Darstellung des erwarteten <sup>134</sup> Cs-Tiefeneintrags und dessen Nachweisgrenze	65
A.1	Lageplan zur Entnahme der Bodenproben	71
A.2	Tiefeneintrag Barachewka 2	77
A.3	Tiefeneintrag Davidowka 2	78
A.4	Tiefeneintrag Charkow 1	79
A.5	Tiefeneintrag Nemirowka 1	80
A.6	Tiefeneintrag Nosdristsche 1	81
A.7	Tiefeneintrag Nosdristsche 3	82

SBILDUNGS V ERZEICHNIS	96
A.8 Tiefeneintrag Rjetschka 3	83
A.9 Tiefeneintrag Tschigiri 2	84
A.10 Tiefeneintrag Woronewo 1	8
A.11 Tiefeneintrag Woronewo 3	86

A.12 Tiefeneintrag Woronewo 5 . . . . . . . . . . . . . . . .

# Tabellenverzeichnis

3.1	Freisetzungsanteile der wichtigsten Radionuklide	12
4.1	Übersicht der laborinternen Qualitätskontrollen	34
5.1	Die verwendeten Dateiextensionen	39
5.2	Zuordnungen der virtuellen Laufwerke	39
6.1	Verwendete Geometrien	50
6.2	Verwendete $\gamma$ -Linien zur Energiekalibration	52
6.3	Geometrie-Parameter der Standards nach Efficiency sortiert	54
7.1	Parameter einer Probe	56
7.2	Daten zu den Bodenschichten	5
7.3	Ausgewertete Profile aus der nördlichen Ukraine	60
7.4	Deposition der Cäsiumisotope	6
7.5	Vergleich der Ergebnisse	65
A.1	Liste der Background-Profile aus der östlichen Ukraine	6
A.2	Liste der niedrigkontaminierten Bodenprofile aus der nördlichen Ukraine	68
A.3	Liste der mittelkontaminierten Bodenprofile aus der nördlichen Ukraine	6
A.4	Liste der hochkontaminierten Bodenprofile aus der nördlichen Ukraine	7
A.5	Daten der Standardlösungen	7:
A.6	K-40	7

<i>TABELLENVERZEICHI</i>	٧I	S
--------------------------	----	---

ABELLENVERZEICHNIS	97
A.7 Mn-54	73
A.8 Co-57	73
A.9 Zn-65	73
A.10 Y-88	73
A.11 Ag-110	73
A.12 Sb-125Z	74
A.13 Ba-133	74
A.14 Cs-134	74
A.15 Cs-137	74
A.16 Ce-139	74
A.17 Ra-226	74
A.18 Th-232	75
A.19 U-235G	75
A.20 U-238	75
A.21 Tabellenüberschriften	76
A.22 Spezifische Aktivitäten 1/3	88
A.23 Spezifische Aktivitäten 2/3	89
A.24 Spezifische Aktivitäten 3/3	90
A 25 Tiefeneinträge 1/3	01

A.26 Tiefeneinträge 2/3 ..... 92

A.27 Tiefeneinträge 3/3 ..... 93

## Literaturverzeichnis

- [ATW96] Jahrbuch der Atomwirtschaft 1996. Herausgeber: W.-M. Liebholz, Verlagsgruppe Handelsblatt Düsseldorf, 27. Jahrgang (1996)
- [BfS96] Zehn Jahre nach Tschernobyl, eine Bilanz. Red.: A.Bayer, Seminar des Bundesamtes für Strahlenschutz, Gustav Fischer Verlag Stuttgart (1996)
- [Bos92] O. Boslau. Halbleiterdetektoren für die Röntgen- und Gammaspektroskopie.
   Silena Detektor Systeme GmbH, Stuttgart (1992)
- [Bot97] W. Botsch. Aufbau eines integrierten Gammaspektrometrie-Systems und Anwendung auf Untersuchungen zum Migrationsverhalten von Radionukliden im Boden. Diplomarbeit, Universität Hannover (1997)
- [Deb92] K. Debertin. Gamma-Spektrometrie in: Meßanleitungen für die Überwachung der Radioaktivität in der Umwelt und zur Erfassung radioaktiver Emissionen aus kerntechnischen Anlagen. Herausgeber: Der Bundesminister für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit, Gustav Fischer Verlag Stuttgart (1992)
- [Dem71] S. Deme. Semiconductor Detectors for Nuclear Radiation Measurment. Adam Hilger Ltd., London (1971)
- [DIN89] Deutsches Institut für Normung (DIN). Nachweisgrenze und Erkennungsgrenze bei Kernstrahlmessungen. DIN-Norm 25-482, Teil 1 (1989)
- [Eis87] M. Eisenbud. Environmental Radioactivity. Academic Press, Inc., 3. Auflage (1987)
- [GRS96] Tschernobyl-Zehn Jahre danach. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH, GRS-121 (1996)
- [Han96] J. Handl, ZSR. Persönliche Mitteilung (1996)

- [Han97] J. Handl, ZSR. Persönliche Mitteilung (1997)
- [Hei95] H. Hein und W. Kunze. *Umweltanalytik*. VCH Verlagsgesellschaft mbH Weinheim, 2. Auflage (1995)
- [IEEE86] IEEE Standard Test Procedures for Germanium Gamma-Ray Detectors. The Institute of Electrical and Electronics Engineers, Inc. ANSI/IEEE Std 325-1986
- [Kan92] G. Kanisch. Anforderungen an die Qualitätskontrolle bei Radioaktivitätsmessungen in: Meßanleitungen für die Überwachung der Radioaktivität in der Umwelt und zur Erfassung radioaktiver Emissionen aus kerntechnischen Anlagen. Herausgeber: Der Bundesminister für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit, Gustav Fischer Verlag Stuttgart (1992)
- [Koe96] R. Koepp und T. Koepp-Schewyrina. *Tschernobyl.* B. G. Teubner Verlagsgesellschaft Stuttgart, 1. Auflage (1996)
- [LT87] N. Litz und B. Tietz. Das Verhalten von natürlichen und künstlichen Radionukliden im Boden als Teil von Ökosystemen. Landschaftsentwicklung und Umweltforschung, Schriftenreihe des Fachbereichs Landschaftsentwicklung der TU Berlin, Nr. 46, Berlin (1987)
- [Pf95] G. Pfennig und H. Klewe-Nebenius und W. Seelmann-Eggebert. Karlsruher Nuklidkarte. Forschungszentrum Karlsruhe GmbH, 6. Auflage (1995)
- [Sch93] U. Schötzing, H. Schrader. Halbwertszeiten und Photonen-Emissionswahrscheinlichkeiten von häufig verwendeten Radionukliden. 4. erweiterte Auflage, PTB-Bericht-Ra-16/4, Physikalisch-Technische Bundesanstalt, Braunschweig (1993)
- [SSK87] Auswirkungen des Reaktorunfalls in Tschernobyl auf die Bundesrepublik Deutschland. Veröffentlichungen der Strahlenschutzkommision, Band 7, Gustav Fischer Verlag Stuttgart (1987)
- [Tei94] W. Teichert. Untersuchungen des Untergrundes in γ-Spektren von Germaniumdetektoren. Dissertation, Universit Köln (1994)
- [Tmca96] TMCA Benutzerhandbuch. target systemelectronics GmbH, Solingen (1996)
- [Uns82] United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation 1982 Report to the General Assembly, United Nations, New York (1982)

- [Uns88] United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation 1988 Report to the General Assembly, United Nations, New York (1988)
- [Wes86] W. Westmeier. The Fitting of Solid State Detector Spectra. Nucl. Instr. Meth. A242(1986)437
- [Wes96] Manual zu GAMMAW. Dr. Westmeier Gesellschaft für Kernspektrometrie mbH, Ebsdorfergrund-Mölln, Version 17.10 II (1996)

### Danksagung

Zum Abschluß möchte ich all jenen danken, die – in welcher Form auch immer – zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben, besonders aber:

Herrn Prof. Dr. R. Michel für seine Betreuung, Unterstützung und Ermöglichung dieser interessanten Diplomarbeit.

Mein besonderer Dank gilt Herrn W. Botsch, ohne den diese Arbeit unter ungleich anderen Bedingungen zustande gekommen wäre.

Ich danke Herrn J. Handl für die Betreuung in den Fragen des Ukraine-Projekts und die Unterstützung bei der Anfertigung dieser Arbeit.

Herrn K.-H. Iwannek danke ich herzlich für die Stunden im Labor und in der Werkstatt, die wesentlichen Anteil am Erfolg dieser Diplomarbeit haben.

Allen weiteren Mitarbeitern des Instituts danke ich für das außerordentliche Arbeitsklima, die mir dadurch das letzte Jahr sehr angenehm gemacht haben.

Den Mitarbeitern der Feinmechanikwerkstatt muß ich an dieser Stelle für jeden erfüllten Wunsch und vor allem die unverzichtbaren Freitagsseminare danken.

Meiner Freundin Ewa danke ich für ihre Unterstützung und ihr Verständnis.

Mein besonderer Dank gilt meinen Eltern, die mir diese Arbeit ermöglicht haben und mich auf meinem Weg immer unterstützt und gefördert haben.

# Erklärung

Ich versichere, daß ich diese Arbeit selbständig angefertigt und keine anderen als die angegebenen Hilfsmittel benutzt habe.

Hannover, März 1997