Die approbierte Originalversion dieser Diplom-/Masterarbeit ist an der Hauptbibliothek der Technischen Universität Wien aufgestellt (http://www.ub.tuwien.ac.at).

The approved original version of this diploma or master thesis is available at the main library of the Vienna University of Technology (http://www.ub.tuwien.ac.at/englweb/).

TECHNISCHE UNIVERSITÄT WIEN

VIENNA UNIVERSITY OF TECHNOLOGY

D I P L O M A R B E I T

Radionuklide im TRIGA Mk-II Reaktortank - Entstehungsraten und Abklingverhalten

ausgeführt am

Atominstitut

der Technischen Universität Wien

unter Anleitung von Ao. Univ-Prof. Dr. phil. Max Bichler

durch

Mile Djuricic

Am Fuchsenfeld 3/28/10
1120 Wien

Oktober 2005

_____

Unterschrift

Inhaltsverzeichnis

1. Einleitung **6**

2. Ausgangssituation **8**

3. Allgemeines **14**
3.1. Radioaktiver Zerfall 14
3.2. Wechselwirkungseffekte 18
3.3. Zerfallsgesetz 21
3.4. Mutter-Tochter-System 22
3.5. Aktivierung 23

4. Angewandte Messverfahren und Messgeräte **25**
4.1. γ-Spektrometrie 25
4.1.1. Verwendetes Messgerät 31
4.2. Flüssigszintillation 32
4.2.1. Probenvorbereitung 33
4.2.2. Verwendetes Messgerät 33
4.2.3. Messung 34
4.3. ICP-MS 36
4.4. TXRF 36

5. Messergebnisse **39**
5.1. Messergebnisse der γ-Spektrometrie 39
5.1.1. Ergebnisse der Messserie Tankwasser I 41
5.1.2. Ergebnisse der Messserie Tankwasser II 43
5.2. Messergebnisse der Flüssigszintillation 45
5.2.1. Quench 45
5.2.2. Tritium-Aktivität in Tankwasser I 47
5.2.3. Tritium-Aktivität in Tankwasser II 47
5.2.4. Tritium-Aktivität der letzten Monate 50
5.3. Messergebnise der ICP-MS und der TXRF 50
5.3.1. ICP-MS 50
5.3.2. TXRF 51

6. Identifizierte Elemente **53**
6.1. Tritium, ^{3}H 53
6.2. Natrium, Na 54
6.3. Magnesium, Mg 55
6.4. Argon, Ar 56
6.5. Chrom, Cr 57
6.6. Mangan, Mn 58
6.7. Gallium, Ga 59
6.8. Technetium, Tc 60
6.9. Antimon, Sb 61
6.10. Xenon, Xe 62
6.11. Wolfram, W 62

7. Diskussion der Messergebnisse **65**

8. Zusammenfassung und Ausblick **75**

A. Messwerte der γ-Spektrometrie der Proben von Tankwasser I **82**

B. Messwerte der Messserie Tankwasser II **95**

C. Messwerte der Flüssigszintillationsspektrometrie **110**

D. Messwerte der ICP-MS **114**

Kurzfassung

Das Ziel dieser Arbeit ist die Bestimmung der radioaktiven Stoffe im Tankwasser des TRIGA Mk-II Reaktors der Österreichischen Universitäten. Untersucht wurden ihre Entstehungsraten und ihr Abklingverhalten. Damit soll einerseits die Relevanz des Tankwassers für einen sicheren Reaktorbetrieb aus der Sicht von Strahlenschutz und Radiochemie beurteilt werden und andererseits die entsprechenden Planung für eine zukünftige Dekommissionierung des Forschungsreaktors erleichtert werden.

Die dafür verwendeten Messmethoden waren die γ-Spektrometrie, die Flüssigszintillation, die Inductively Coupled Plasma-Mass Spectrometry, kurz ICP-MS, und die Total Reflection X-Ray Fluorescence, kurz TXRF.

Die γ-Spektrometrie ist im Rahmen dieser Arbeit die wichtigste Messmethode. Mit ihrer Hilfe wurden fast alle im Tankwasser enthaltenen radioaktiven Nuklide gemessen und ihre Aktivität bestimmt. Für die Messung von Tritium (^{3}H) wurde die dafür gut geeignete Flüssigszintillationsspektrometrie verwendet. Um weitere im Tankwasser enthaltene radioaktive Nuklide zu finden, die mittels der γ-Spektrometrie nicht oder nicht eindeutig gemessen werden konnten, wurden die TXRF und die ICP-MS herangezogen. Beide Verfahren wurden wegen ihrer hohen Empfindlichkeit und Eignung für wässrige Proben gewählt. Eine genaue Quantifizierung der so gefunden Elemente und ihrer möglichen Aktivierungsprodukte war aber wegen ihrer geringen Konzentrationen im Tankwasser leider nicht möglich.

Im Rahmen dieser Arbeit konnten die Radionuklide ^{3}H, ^{24}Na, ^{27}Mg, ^{41}Ar, ^{56}Mn, ^{51}Cr, ^{72}Ga, ^{99m}Tc, ^{122}Sb, ^{124}Sb, ^{135}Xe und ^{187}W im Tankwasser des TRIGA Mk-II Forschungsreaktors nachgewiesen werden.

Alles in allem zeigen die Ergebnisse der Messungen, dass bereits nach dem ersten Betriebstag das Tankwasser seine maximale Aktivität ereicht hat. Der überwiegende Teil der Aktivität des Tankwassers entfällt dabei auf ^{24}Na, gefolgt vom Tritium und ^{41}Ar. Unter den gemessenen Nukliden ist Tritium das mit Abstand langlebigste Element, gefolgt vom ^{99m}Tc. Abgesehen vom Tritium ist bereits nach etwa 40 h die Aktivität auf unter 100 Bq/l gesunken, nach etwa 280 h ist im Tankwasser keine Aktivität mehr messbar.

Bemerkenswert ist, dass sich bei den Messungen gezeigt hat, dass selbst technisch vernachlässigbare Korrosionsraten der Reaktorbauteile zu nicht unerheblichen Aktivitäten führen.

Danksagung

Mein besonderer Dank gilt meinen Eltern, die mir das Studium ermöglicht und mich bei meiner Diplomarbeit sehr unterstüzt haben.

An dieser Stelle sei auch herzlich meinem Betreuer, Ao. Univ. Prof. Dr. Max Bichler, gedankt, für seine Geduld, seine konstruktiven Anmerkungen, ohne die diese Arbeit heute ganz anders aussehen würde, und natürlich für dieses spannende und interessante Diplomarbeitsthema.

Bei Ao. Univ. Prof. Dr. Helmuth Böck und Univ. Ass. Dipl. Ing. Dr. Mario Villa möchte ich mich sehr für ihre Hilfe bei Fragen zum TRIGA Mk-II Forschungsreaktor, aber auch für die von ihnen zur Verfügung gestellten Unterlagen und Arbeiten über den Reaktor, bedanken.

Dipl. Ing. Dr. Peter Kregsamer sowie Mag. Dr. Peter Spindler sei gedankt für ihre prompte Messungen des Tankwassers und Dipl. Ing. Herbert Tatzber für den Tritium-Standard den er mir freundlicherweise für diese Arbeit zur Verfügung gestellt hat.

Weiters möchte ich meinen Kollegen Mag. Dr. Georg Steinhauser und Dipl. Ing. Hans Sterba für ihre Bereitschft danken, mir bei den verschiedensten Fragen weiterzuhelfen.

Besonderen Dank auch an Katharina Breitenecker für das Korrekturlesen meiner Arbeit und für ihre vielen hilfreichen Anregungen.

1. Einleitung

Das Ziel dieser Arbeit ist die Bestimmung der radioaktiven Stoffe im Tankwasser des TRIGA Mk-II Reaktors der Österreichischen Universitäten. Untersucht wurden ihre Entstehungsraten und ihr Abklingverhalten. Damit soll einerseits die Relevanz des Tankwassers für einen sicheren Reaktorbetrieb aus Sicht des Strahlenschutzes und der Radiochemie beurteilt werden und andererseits die entsprechenden Planung für eine zukünftige Dekommissionierung des Forschungsreaktors erleichtert werden.

Die dafür verwendeten Messmethoden waren die γ-Spektrometrie (siehe Kap. 4.1), die Flüssigszintillation (LSC, siehe Kap. 4.2), die Inductively Coupled Plasma-Mass Spectrometry (ICP-MS, siehe Kap. 4.3) und die Total Reflection X-Ray Fluorescence (TXRF, siehe Kap. 4.4).

Die γ-Spektrometrie ist im Rahmen dieser Arbeit die wichtigste Messmethode. Mit ihrer Hilfe wurden fast alle im Tankwasser enthaltenen radioaktiven Nuklide gemessen und ihre Aktivität bestimmt (siehe 4.1). Allerdings ist die Messung von Tritium, einem reinen β^--Strahler (siehe Kap. 3.1, β-Zerfall), mittels γ-Spektrometrie nicht möglich.
Für die Messung von Tritium wurde deshalb im Rahmen dieser Arbeit die dafür gut geeignete Flüssigszintillationsspektrometrie (siehe Kap. 4.2 und Kap. 5.2) verwendet.
Um weitere im Tankwasser enthaltene radioaktive Nuklide zu finden die mittels der γ-Spektrometrie nicht oder nicht eindeutig gemessen werden konnten, wurden die TXRF (siehe Kap. 4.4) und die ICP-MS (siehe Kap. 4.3) herangezogen.
Beide Verfahren wurden wegen ihrer hohen Empfindlichkeit und Eignung für wässrige Proben gewählt. Eine genaue Quantifizierung der so gefunden Elemente war wegen ihrer geringen Konzentrationen im Tankwasser leider nicht möglich (siehe Kap. 5.3.1 und Kap. 5.3.2). Unter Verwendung der Karlsruher Nuklidkarte (Pfennig et al., 1995) wurden dann die wahrscheinlichsten, aus den gefundenen Elementen durch Kernreaktionen (z.B. Neutroneneinfang) entstehenden, radioaktiven Isotope bestimmt. Nach diesen Isotopen wurde dann mittels γ-Spektrometrie aktiv gesucht.
Ein weiterer sehr wichtiger Grund für die Verwendung gerader dieser Messverfahren- und Geräte war, mit Ausnahme der ICP-MS, ihre Verfügbarkeit im Atominstitut.

Aus vorangegangenen Messungen des Tankwasser im TRIGA Mk-II Reaktor des Atominstituts der Österreichischen Universitäten und vergleichbarer Forschungsreaktoren war bereits bekannt, dass sich darin vor allem Tritium ^{3}H, ^{24}Na, ^{41}Ar, ^{56}Mn und ^{99m}Tc befinden (Aslam et al., 1998; Krauss et al., 1994; Mollah, 1991; Tschurlovits et al., 1976).
Im Zuge der vorliegenden Arbeit wurden neben diesen schon bekannten radioaktiven

Nukliden weitere gefunden, nämlich ^{27}Mg, ^{51}Cr, ^{72}Ga, ^{122}Sb, ^{124}Sb, ^{135}Xe und ^{187}W. Diese Ergebnisse wurden dann mit denen aus der Literatur verglichen (siehe Kap. 7).

Abbildung 1.1.: Reaktorhalle

2. Ausgangssituation

Der TRIGA Mk-II Reaktor (*T*raining, *R*esearch, *I*sotope Production, *G*eneral *A*tomic) der Firma General Atomic wurde in den Jahren 1959 bis 1962 errichtet. Es handelt sich dabei um einen Swimmingpool-Typ mit einer maximalen Dauerleistung von 250 kW_{th} (thermisch) und einer maximalen Neutronenflussdichte von 1×10^{13} $cm^{-2}s^{-1}$.
Am 7.März 1962 wurde der Reaktor erstmals kritisch und ist seitdem ist, ohne längere Stillstandszeiten, durchschnittlich 220 Tage pro Jahr in Betrieb.

Der Reaktoraufbau besteht aus Normal- und Schwerbeton und hat eine Höhe von 6,55 m, eine Breite von 6,19 m und eine Länge von 8,76 m. Der Reaktortank weist eine Tiefe von 6,40 m und einen Durchmesser von 1,98 m auf und ist mit etwa 20 m^3 destilliertem und deionisiertem Wasser, das im weiteren Verlauf als Tankwasser bezeichnet wird, gefüllt. Zur Deionisierung des destillierten Wassers wird eine Umkehr-Osmose-Anlage des Typs Hercopur HP 20W der Firma WAG-Wasseraufbereitung GmbH verwendet.

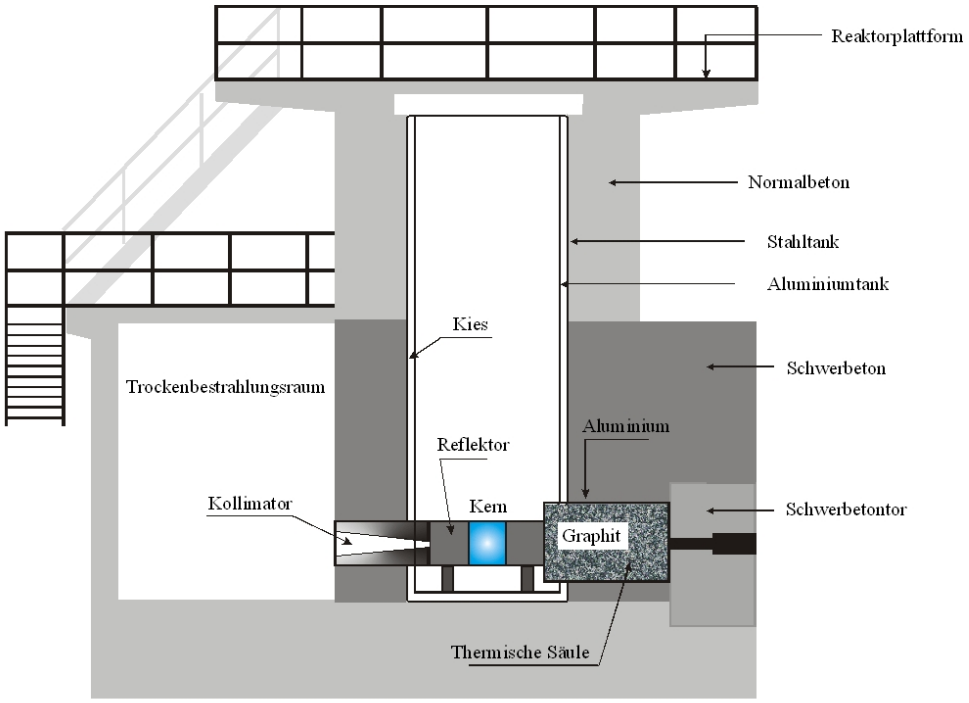


Abbildung 2.1.: Reaktor Schnittbild

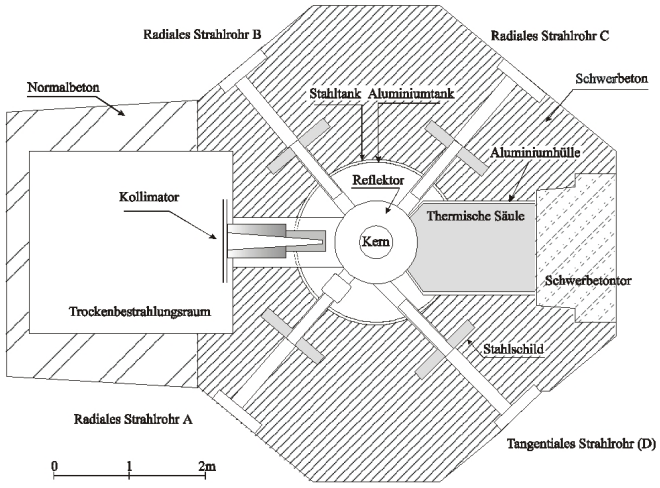


Abbildung 2.2.: Horizontalschnitt durch den Reaktor

Der Reaktorkern besteht aus, je nach Anforderung, 70-80 Brennelementen. Diese haben einen Durchmesser von 3,75 cm, eine Länge von 72,24 cm und sind in einer regelmäßigen Gitterplatte fixiert.
Innerhalb der Brennelementhülle, aus Aluminium oder Stahl, befindet sich der Brennstoff in Form einer homogenen Mischung aus 91 Gew.% Zirkon, 8 Gew.% Uran und 1 Gew.% Wasserstoff, der den Moderator darstellt (siehe Abb. 2.3).
Wasserstoff hat auch die besondere Eigenschaft, bei hoher Temperatur schlechter zu moderieren. Daher kann am TRIGA-Reaktor Wien auch Impulsbetrieb durchgeführt werden (rasche Leistungserhöhung auf 250 MW für etwa 40 Millisekunden). Mit der Leistung steigt auch die maximale Neutronenflussdichte von 1×10^{13} $\mathrm{cm^{-2}s^{-1}}$, bei 250 kW, auf 1×10^{16} $\mathrm{cm^{-2}s^{-1}}$, bei 250 MW. Durch den sogenannten negativen Temperaturkoeffizienten der Reaktivität kehrt die Leistung nach der Exkursion wieder auf ungefähr 250 kW zurück. Es dürfen aber nur maximal zwölf Reaktorimpulse pro Stunde ‘geschossen‘ werden, weil dabei die Brennelementtemperatur auf etwa 360 °C ansteigt und dies eine starke Temperaturbelastung des Brennstoffs darstellt.

Abbildung 2.3.: Brennelement

Die Kühlung der Brennelemente erfolgt durch die natürliche Konvektion des Tankwassers, mit einer Temperatur von 20 bis 40 °C, welches seinerseits mit Hilfe eines Wärmetau-

schers des Typs Sigma 37 der Firma W. Schmidt KG (siehe Abb. 2.4), gekühlt wird. Die Wärme wird dabei über einen Sekundärkreislauf mit Brunnenwasser, mit einer Temperatur von 12 bis 18 °C, abgeführt. Dabei wird das Tankwasser unterhalb des Reaktorkerns abgesaugt und in einer Höhe von etwa 3,20 m dem Tank wieder zugeführt. Oberhalb einer Leistung von 100 kW wird unterstützend noch eine Umwälzpumpe des Typs Delta 28 der Firma W. Schmidt KG zugeschaltet, welche bis zu 28 m^3/h Tankwasser unterhalb des Reaktorkerns absaugt.

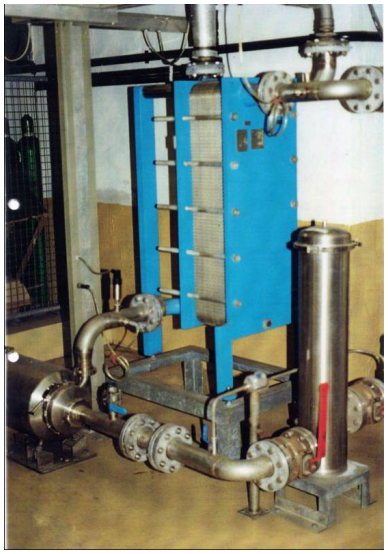


Abbildung 2.4.: Wärmetauscher Typ Sigma 37 der Firma W. Schmidt KG

Die Regelung des Reaktors erfolgt mit drei Absorberstäben, die als Absorber Borkarbid enthalten. Tauchen diese Stäbe ganz in den Reaktorkern ein, so werden die Neutronen, die aus der Startquelle, einer Sb-Be-Photoneutronenquelle (Bensch et al., 1970), ständig emittiert werden, in den Stäben absorbiert und der Reaktor bleibt unterkritisch. Fährt man die Absorberstäbe aus dem Kern heraus, zwei Stäbe mittels Elektromotor, einen Stab pneumatisch, nimmt die Zahl der Spaltungen im Reaktorkern und damit die Leistung zu.

Seit der ersten Kritikalität des TRIGA Mk-II Forschungsreaktors am 7.März 1962 wurde das Tankwassers nicht mehr vollständig ausgetauscht. Es wurden lediglich Verluste, hauptsächlich durch Verdunstung, ausgeglichen. Diese sind allerdings von vielen Faktoren, z.B. der Jahreszeit, der Betriebsart usw. abhängig. Aber im Normalfall kann man davon ausgehen, dass etwa 5000 bis 6000 Liter Wasser pro Jahr nachgefüllt werden müssen. Das heißt, bei einem Gesamtvolumen von etwa 20 m^3 werden pro Jahr etwa 25% bis 30% des gesamten Tankwassers ersetzt.

Durch die thermische Konvektion und die verschiedenen Kühl- und Reinigungsvorrichtungen des TRIGA Mk-II Reaktors während Reaktorbetrieb und Reaktorstillstand kann von einer homogenen Verteilung der radioaktiven Nuklide im Tankwasser ausgegangen werden. Innerhalb der Reaktorstehzeiten sorgt die weiterlaufende Reinigung für

die Aufrechterhaltung der homogenen Verteilung. Zur Tankwasserreinigung wird das Tankwasser an der Tankoberfläche abgesaugt (1 m^3/h) und durchläuft einen Ionentauscher mit Lewatit der Firma Multichem Handelsgesellschaft m.b.H.
Zudem findet auch während der Reaktorstehzeiten thermische Konvektion statt. Die Brennelemente, mit einer Temperatur von etwa 35 °C, erwärmen das den Reaktorkern umgebende Wasser. Dieses erwärmte Wasser steigt an die Oberfläche, wo es langsam abkühlt und dann wieder absinkt.

Damit sollte eine im Großen und Ganzen homogene Verteilung der Radionuklide während der gesamten Zeit sichergestellt sein.

Probennahme Für die reguläre Probennahme wurden etwa 10-15 cm unterhalb der Wasseroberfläche 1-1,5 Liter Tankwasser entnommen.
Im Rahmen dieser Arbeit wurden Proben für zwei Messserien genommen, eine bei Stillstand des Reaktors und eine während Vollbetrieb.
Damit sollten neben den radioaktiven Nukliden auch deren Aufbau und Zerfall während des Reaktorbetriebs und des Reaktorstillstands dokumentiert werden.
Für die Messserie bei Reaktorstillstand wurde eine 11-tägige Betriebspause des Reaktors genutzt um Proben des Tankwassers zu nehmen.
Um diese homogene Verteilung auch während des Reaktorstillstandes zu überprüfen, wurde am ersten Betriebstag nach der Pause eine Probe, wie oben beschrieben, entnommen. Danach lief die Umwälzpumpe mit einer Leistung von etwa 28 m^3/h für eine Stunde, womit eine gute Durchmischung des Wassers sichergestellt sein sollte. Dann wurde mittels einer an einem Teleskopstab befestigten Flasche, die in etwa der Höhe der Mitte des Reaktorkerns unter Wasser geöffnet wurde, eine Probe des Tankwassers genommen. Abschließend wurde eine weitere Probe des Tankwassers regulär genommen.
Der Reaktor wurde im Anschluss daran hochgefahren.
Diese Messserie wird als Tankwasser I bezeichnet.
Für die Messserie bei Vollbetrieb wurden während einer normalen Reaktorbetriebswoche von Montag bis Freitag, vor Betriebsbeginn und nach Betriebsende, jeweils eine Probe genommen.
Diese Messserie wird im weiteren Verlauf als Tankwasser II bezeichnet.

Neutronenflussdichte Aus '*Calculated Fluxes and Cross Sections for TRIGA Reactors*' von G.B. West ist die mittlere Neutronenflussdichte N_{Core} über das gesamte aktive Volumen des Reaktorkerns bekannt. Diese setzt sich zusammen aus der maximalen Neutronenflussdichte $N_{max} = 1 \times 10^{13}$ $cm^{-2}s^{-1}$ multipliziert mit dem Faktor 0,294.

$$\Phi_{Core} = \Phi_{max} \cdot 0,294 = 2,94 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$$

In Zuge mehrerer Projektarbeiten wurde auch die Neutronenflussdichte außerhalb des Reaktorkerns bestimmt, sie nimmt sowohl radial als auch vertikal exponentiell ab.

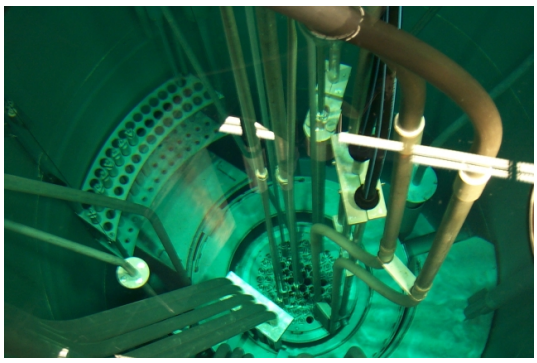


Abbildung 2.5.: Reaktorbecken des TRIGA Mk-II Reaktors

Direkt außerhalb des den Reaktorkerns umgebenden Graphitblocks beträgt die Neutronenflussdichte etwa $1,5 \times 10^{10}$ cm^{-2}s^{-1}. Am Rand des Reaktortanks, 45 cm entfernt vom Graphitblock, beträgt sie dann nur mehr 1×10^{8} cm^{-2}s^{-1}. Selbst in einer Höhe von nur 2 m über dem zentralen Bestrahlungsrohr, dem Ort der maximalen Neutronenflussdichte im Reaktorkern, beträgt die Neutronenflussdichte nur 2×10^{3} cm^{-2}s^{-1}. Bei einer Höhe von 2,5 m sind es dann nur mehr 1×10^{-1} cm^{-2}s^{-1}.
Das heißt, dass die Aktivierung der im Tankwasser enthaltenen Elementen fast ausschließlich im Volumen des Reaktorkerns stattfindet.

Die im Reaktorkern erzeugte Aktivität muss aber auf das gesamte Tankwasser im Reaktortank bezogen werden, da, wie weiter oben beschrieben, durch die thermische Konventkion und die verschiedenen Kühl- und Reinigngsvorrichtungen des Reaktors eine homogene Verteilung der radioaktiven Nuklide im Tankwasser gegeben ist. Vereinfachend kann man aber auch eine durchschnittliche Neutronenflussdichte für das gesamte Tankwasser angegeben, die dieselbe Aktivität bewirken würde.

Der Reaktorkern hat eine Höhe von 73 cm und einen Radius von 22,8 cm, was ein Volumen von etwa $0,119$ m^3 ergibt. Davon muss aber noch das Volumen der Brennelemente im Reaktorkern abgezogen werden.
Ein Brennelement hat, wie ebenfalls vorher erwähnt, einen Durchmesser von 3,75 cm und eine Länge von 72,24 cm. Gehen für diese Abschätzung von 70 Brennelementen im Reaktorkern aus und erhalten so eine Reduktion des Wasservolumens im Reaktorkerns um $0,056$ m^3.
Damit man erhält man eine durchschnittliche Neutronenflussdichte für die 20 m^3 Tankwasser im Reaktortank von $9,26 \times 10^{9}$ cm^{-2}s^{-1}.

$$\Phi_{Tank} = \frac{0,063}{20} \cdot 2,94 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1} = 9,26 \times 10^{9} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$$

Mit Hilfe dieser durchschnittlichen Neutronenflussdichte kann nun die zu erwartende Aktivität, durch die im Tankwasser befindlichen Elemente, recht einfach berechnet werden.

Jahr	Leistung	Betrieb bei 250 kW	Jahr	Leistung	Betrieb bei 250 kW
´62	23 MWh	92 h	´84	177 MWh	708 h
´63	24 MWh	96 h	´85	152 MWh	608 h
´64	109 MWh	436 h	´86	303 MWh	1212 h
´65	226 MWh	904 h	´87	283 MWh	1132 h
´66	155 MWh	620 h	´88	242 MWh	968 h
´67	286 MWh	1144 h	´89	319 MWh	1276 h
´68	272 MWh	1088 h	´90	286 MWh	1144 h
´69	348 MWh	1392 h	´91	248 MWh	992 h
´70	502 MWh	2008 h	´92	260 MWh	1040 h
´71	437 MWh	1748 h	´93	251 MWh	1004 h
´72	354 MWh	1416 h	´94	301 MWh	1204 h
´73	419 MWh	1676 h	´95	253 MWh	1012 h
´74	422 MWh	1688 h	´96	236 MWh	944 h
´75	333 MWh	1332 h	´97	217 MWh	868 h
´76	235 MWh	940 h	´98	213 MWh	852 h
´77	236 MWh	944 h	´99	186 MWh	744 h
´78	281 MWh	1124 h	´00	229 MWh	916 h
´79	282 MWh	1128 h	´01	307 MWh	1228 h
´80	265 MWh	1060 h	´02	330 MWh	1320 h
´81	240 MWh	960 h	´03	278 MWh	1112 h
´82	261 MWh	1044 h	´04	262 MWh	1048 h
´83	200 MWh	800 h			

Tabelle 2.1.: Leistung pro Jahr in MWh des Mark TRIGA II Forschungsreaktors der Österreichischen Universitäten von 1962 bis 2004

3. Allgemeines

3.1. Radioaktiver Zerfall

Beim radioaktiven Zerfall kann man, nach auftretender Strahlenart, zwischen α-, β- und γ-Zerfall unterscheiden. Wobei beim α- und beim β-Zerfall Korpuskularstrahlung (Teilchenstrahlung) auftritt, bei der sogenannte α- bzw. β- Teilchen emittiert werden. Beim γ-Zerfall hingegen zerfällt der Kern nicht, sondern es finden sogenannte isomere Übergänge statt. Dabei wird elektromagnetische Strahlung als γ-Strahlung emittiert. Daneben werden noch Elektronen-Einfang und Spontanspaltung beobachtet (Bichler, 2004; Lieser, 1991; Winter, 1999).

α-Zerfall Beim α-Zerfall wird, wie schon vorher erwähnt, ein sogenanntes α-Teilchen emittiert. Das α-Teilchen ist ein ${}^4_2$He-Kern, sodass der Atomkern nach dessen Emission eine um vier niedrigere Massenzahl und eine um zwei niedrigere Ordnungszahl hat. Die Massenzahl gibt die Anzahl der Protonen und Neutronen im Atomkern an, die Ordnungszahl entspricht der Anzahl der Protonen im Atomkern.

$$ {}^A_Z K \rightarrow {}^{A-4}_{Z-2} K + {}^4_2 He \tag{3.1} $$

Um den Atomkern verlassen zu können, muss das α-Teilchen den Coulombwall des Atomkerns durchtunneln. Allgemein gilt, dass ihnen dies umso leichter gelingt, je höher die Energie des α-Teilchens ist. Um so höher ist auch die kinetische Energie der emittierten α-Teilchen. Je leichter dies dem α-Teilchen gelingt desto kürzer ist auch die Halbwertszeit des zerfallenden Atomkerns. (Regel von Geiger und Nuttal)
Durch seine vergleichsweise hohe Masse erreicht das α-Teilchen nach seiner Emission höchstens Geschwindigkeiten von 1/10 der Lichtgeschwindigkeit. Durch seine zwei Protonen ist das α-Teilchen zweiwertig positiv geladen. Aus diesen Gründen wechselwirkt es beim Durchgang durch Materie fast ausschließlich durch Stöße mit Elektronenhüllen. Hat das α-Teilchen die entsprechende Energie kann es Hüllenelektronen anregen oder Atome ionisieren. Liegt die Energie des α-Teilchen aber unter der Ionisations- oder Anregungsenergie der Hüllenelektronen, wird es von diesen elastisch gestreut. Das heißt, das α-Teilchen ändert seine Richtung, aber die Summe der Energien der Stoßpartner bleibt gleich. Die Reichweite der α-Strahlung ist sehr gering, sie beträgt in Luft nur wenige cm.

Zum Beispiel emittiert das ^{226}Ra beim α-Zerfall ein α-Teilchen mit einer Energie von E=4,78 MeV, dessen mittlere Reichweite in Luft ca. 3cm beträgt. (siehe Abb. 3.1)

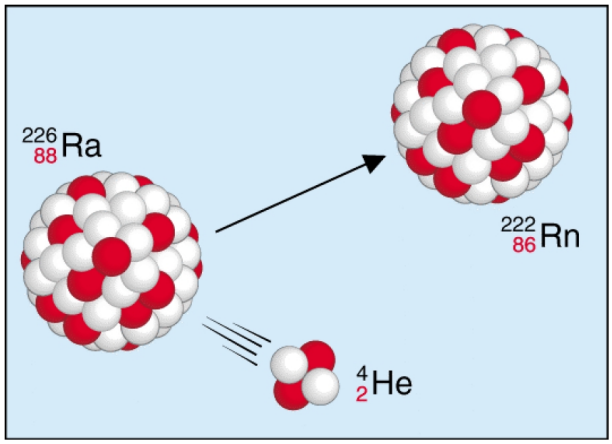


Abbildung 3.1.: ^{226}Ra $\rightarrow$ ^{222}Rn (Kölzer, 2005)

β-Zerfall Beim β-Zerfall tritt, wie beim α-Zerfall, Korpuskularstrahlung auf. Auch hier gilt dass je kürzer die Lebensdauer des Atomkerns, desto höher ist die Energie der emittierten Teilchen und umgekehrt. Allerdings kann man beim β-Zerfall, noch zwischen β^--und β^+-Zerfall unterscheiden.
Beim β^--Zerfall zerfällt ein Neutron in ein Proton, ein Elektron und ein Anti-Neutrino. Das Elektron und das Anti-Neutrino verlassen den Kern. Damit erhöht sich nach dem β^--Zerfall die Ordnungszahl des Atoms um eins während seine Massenzahl gleich bleibt. Der β^--Zerfall ist bei relativ neutronenreichen Atomkernen zu beobachten.

$$n \rightarrow p + e^- + \bar{\nu} \tag{3.2}$$

Beim β^+-Zerfall hingegen zerfällt ein Proton in ein Neutron, ein Positron und ein Neutrino, wobei das Positron und das Neutrino den Kern verlassen. Damit wird beim β^+-Zerfall die Ordnungszahl des Atom um eins verringert während seine Massenzahl ebenfalls gleich bleibt. Der β^+-Zerfall tritt bei relativ protonenreichen Atomkernen auf.

$$p \rightarrow n + e^+ + \nu \tag{3.3}$$

Das Positron kommt jedoch nicht weit, es annihiliert mit einem Elektron unter der Emission von zwei γ-Qunaten in entgegengesetzter Richtung mit einer Energie von mindestens 2×511 keV (siehe Kapitel 3.2).
Das Elektron hingegen ist einwertig negativ geladen und kann durch Stöße mit Hüllenelektronen wechselwirken. Die Hüllenelektronen können dabei angeregt oder, wenn das Elektron genügend Energie hat, ionisiert werden. Außerdem kann das Elektron im

Coulombfeld eines Atomkerns gebremst werden, wobei die kinetische Energie, die es verliert, in Form von elektromagnetischer Strahlung, der sogenannten Bremsstrahlung, emittiert wird.

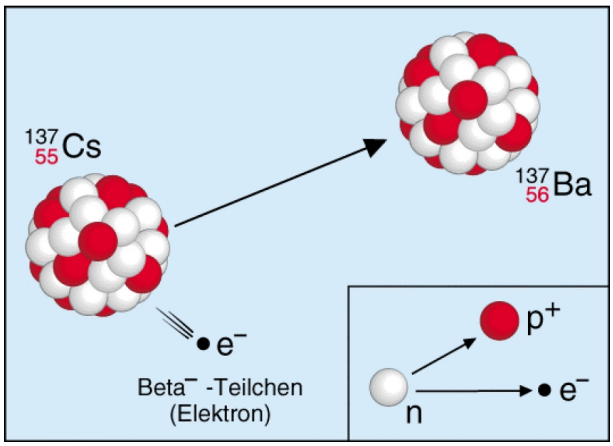


Abbildung 3.2.: β^--Zerfall ^{137}Cs $\rightarrow$ ^{137}Ba (Kölzer, 2005)

Durch ihre sehr geringe Masse können Elektronen sehr hohe Geschwindigkeiten von beinahe Lichtgeschwindigkeit (99,9%) beim Verlassen des Kerns erreichen. Im Gegensatz zu α- und γ-Strahlung kann man bei der β-Strahlung kein Linienspektrum sondern ein konitnuierliches Spektrum beobachten. (siehe Abb. 3.3)

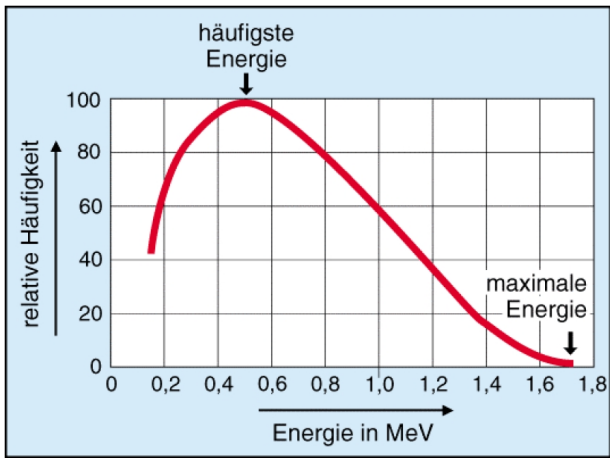


Abbildung 3.3.: β-Verteilung (Kölzer, 2005)

Die Reichweite von β-Strahlung ist größer als die der α-Strahlung, beträgt aber selbst in Luft nur einige Meter.
Zum Beispiel emittiert ^{32}P beim β-Zerfall ein β-Teilchen mit einer Energie von E=1,7 MeV dessen Reichweite in Luft 7 m beträgt.

γ-Zerfall Beim γ-Zerfall werden, im Gegensatz zum α- und dem β-Zerfall, elektromagnetische Wellen ausgesandt. Diese elektromagentische Wellen werden als γ-Strahlung oder γ-Quanten bezeichnet. Genaugenommen zerfällt der Atomkern, wie schon vorher erwähnt, bei einem γ-Zerfall nicht. Eigentlich wechselt das Atom von einem Anregungszustand in einen energetisch niedrigeren Anregungszustand. Nuklide, die sich nur durch ihren Anregungszustand unterscheiden werden als Isomere bezeichnet, weshalb man beim γ-Zerfall von einem isomeren Übergang spricht. Die Energiedifferenz zwischen den beiden Isomeren wird dann in Form von γ-Quanten mit der Energie $h \cdot \nu$ emittiert.

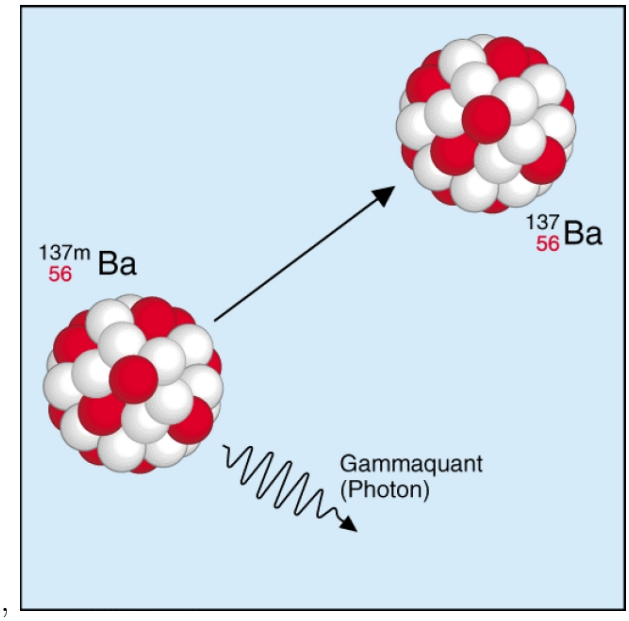


Abbildung 3.4.: γ-Zerfall ^{137m}Ba $\rightarrow$ ^{137}Ba (Kölzer, 2005)

Da γ-Strahlung keine elektrische Ladung besitzt kann sie in Magnetfeldern nicht abgelenkt werden, womit die Wahrscheinlichkeit einer Wechselwirkung sehr gering ist. Dadurch verfügt sie über ein hohes Durchdringungsvermögen und damit über eine sehr hohe Reichweite.
Die Intensität der γ-Strahlung sinkt exponentiell mit dem Absorptionskoeffizienten μ und der Dicke d des zu durchdringenden Materials.

$$I_{(d)} = I_0 \times e^{-\mu d}$$

Die γ-Quanten wechselwirken beim Durchgang durch Materie sowohl mit den Hüllenelektronen als auch mit den Atomkernen. Sie können einerseits sowohl von den Hüllenelektronen (siehe Kap. 3.2, Photoeffekt) als auch vom Atomkern (siehe Kap. 3.2, Kern-Photoeffekt) absorbiert werden. Andererseits können sie an den Hüllenelektronen unter einer Richtungsänderung gestreut werden (siehe Kap. 3.2, Comptoneffekt). Zudem kann es im Coulombfeld des Kerns passieren, dass ein γ-Quant zu einem Elektron-Positron-Paar materialsiert. (siehe Kap. 3.2, Paarbildung)
Sowohl α- als auch β-Strahlung treten gemeinsam mit γ-Strahlung auf.

Elektroneneinfang (siehe Abb. 3.5) In Konkurrenz zum β^+-Zerfall kann auch der sogenannte Elektroneneinfang auftreten. Dabei wechselwirkt ein Proton eines relativ protonenreichen Atomkerns mit einem seiner Hüllenelektronen. Daraus entsteht dann ein Neutron und ein Neutrino. Damit wird, wie beim β^+-Zerfall, die Ordnungszahl des Atoms um eins verringert während seine Massenzahl gleich bleibt.

$$p + e^+ \rightarrow n + \nu \tag{3.4}$$

Mit steigender Ordnungszahl des Atoms kommen die Hüllenelektronen dem Atomkern näher und der Elektroneneinfang wird häufiger. Bei den schwersten Kernen schließlich dominiert der Elektroneneinfang vollständig.
Die durch den Elektroneneinfang entstandene Leerstelle in der Elektronenhülle wird durch ein anderes Hüllenlektron aufgefüllt, wodurch charakteristische Röntgenstrahlung oder Augerelektronen auftreten.

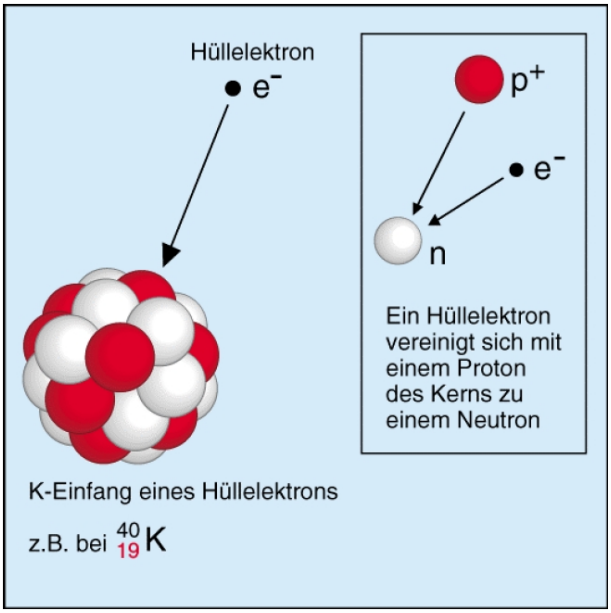


Abbildung 3.5.: Elektroneneinfang (Kölzer, 2005)

Spontanspaltung Die Spontanspaltung tritt nur bei Kernen mit einer Ordnungszahl $Z \geq 90$ auf. Dabei bilden sich Spaltprodukte, die ebenfalls radioaktiv sein können.

3.2. Wechselwirkungseffekte

Photoeffekt (siehe Abb. 3.6) Ein γ-Quant (Photon), trifft auf ein Hüllenelektron eines Atoms und wird von diesem absorbiert. Hat es nun eine Energie $h \cdot \nu$ die zumindest

der Bindungsenergie des Hüllenelektrons entspricht, so kann dieses Elektron das Atom verlassen und wird als Photoelektron bezeichnet.
Übersteigt die Energie des γ-Quants die Bindungsenergie B so erhält das Photoelektron die Differenz als kinetische Energie.

$$E_{kin} = h \cdot \nu - B$$

Hat das γ-Quant eine Energie die der Anregungsenergie des Elektrons entspricht, wird es ebenfalls absorbiert und das Elektron wird in einen energetisch höheren Zustand gehoben. Liegt aber seine Energie auch unter der Anregungsenergie so wird es an den Elektronen unter einer Richtungsänderung gestreut.

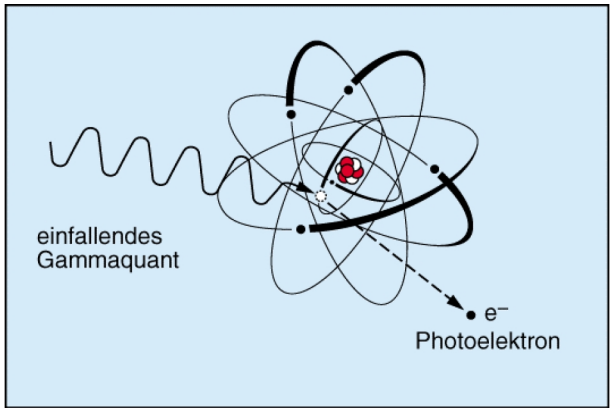


Abbildung 3.6.: Photoeffekt (Kölzer, 2005)

Kernphotoeffekt Der Kernphotoeffekt entspricht im Großen und Ganzen dem Photoeffekt allerdings ist in diesem Fall der Wechselwirkungspartner des einfallenden γ-Quants der Atomkern und nicht die Elektronenhülle. Das γ-Quant wird vom Atomkern absorbiert und überträgt seine Energie auf die im Kern vorhandenen Nukleonen, also Protonen und Neutronen. Entspricht die Energie des γ-Quants mindestens der Bindungsenergie der Nukleonen, kann ein Nukleon den Atomkern verlassen. Das Nukleon erhält die Differenz zwischen Bindungsenergie und der Energie des γ-Quants als kinetische Energie.

Comptoneffekt (siehe Abb. 3.7) Beim Comptoneffekt werden γ-Quanten an Elektronen inelastisch gestreut. Dabei wird ein Teil der Energie des γ-Quants auf das Elektronen übertragen und das γ-Quant abgelenkt. Elektronen die auf diese Weise freigesetzt wurden werden als Compton-Elektronen bezeichnet. Wieviel der Energie des γ-Quants auf das Elektron übergeht ist abhängig vom Streuwinkel. Bei einem Streuwinkel von 0 °C wird keine, bei einem Streuwinkel von 180 °C ein Maximum der Energie (Comptonkante) des γ-Quants auf das Elektron übertragen. Daher besitzen sowohl die Compton-Elektronen als auch die gestreuten γ-Quanten ein kontinuierliches Spektrum.

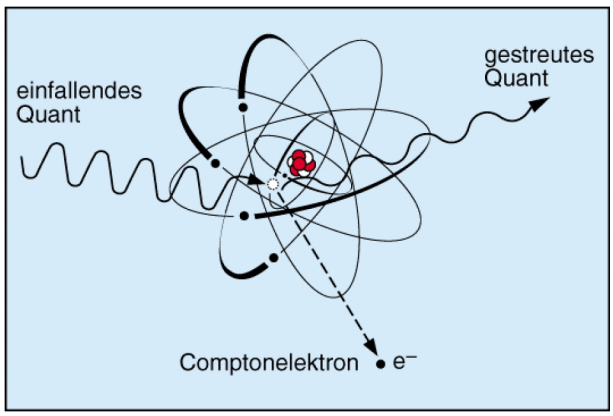


Abbildung 3.7.: Comptoneffekt (Kölzer, 2005)

Paarbildungseffekt (siehe Abb. 3.8) Ein γ-Quant mit einer Energie von $\geq$ 1,022 MeV, der doppelten Ruhemasse eines Elektrons, kann im Coulombfeld eines Atomkerns zu einem Elektron-Positron-Paar materialisieren. Überschüssige Energie erhält das Elektron-Positron-Paar als kinetische Energie.

$$E_{kin}^{e^-} + E_{kin}^{e^+} = h.\nu - 1,022 MeV$$

Dieses Paar existiert allerdings nur sehr kurz, da das Positron innerhalb von Picosekunden (10^{-12}) auf ein Elektron trifft und annihiliert wird.

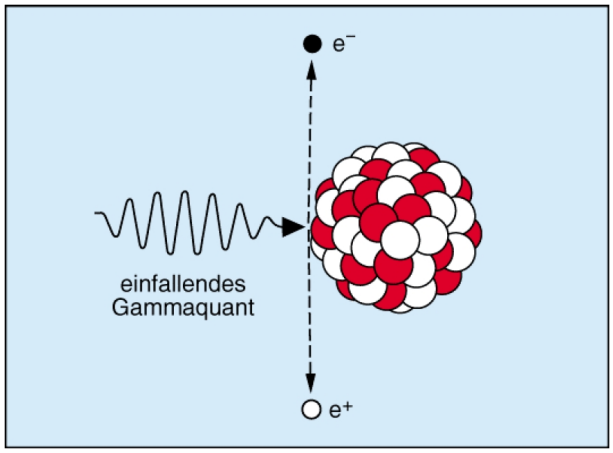


Abbildung 3.8.: Paarbildungseffekt (Kölzer, 2005)

Annihilation (siehe Abb. 3.9) Die Annihilation ist der Umkehreffekt zur Paarbildung. Dabei treffen Teilchen und Anti-Teilchen aufeinander und annihilieren, wobei ihre gesamte Masse in Energie umgewandelt wird. Diese wird dann in Form von zwei γ-Quanten mit je 511 keV in entgegengesetzter Richtung emittiert.

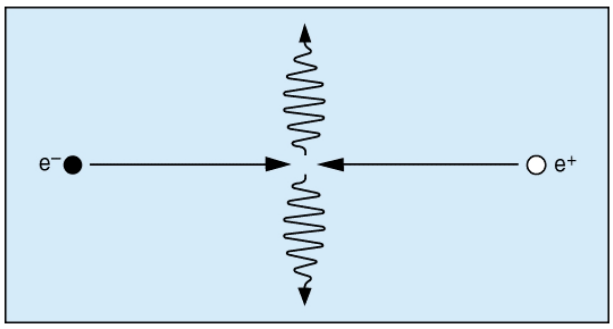


Abbildung 3.9.: Annihilation von Positron und Elektron (Kölzer, 2005)

Augereffekt Eine durch Ionisierung entstandene Fehlstelle in der Elektronenhülle eines Atoms wird dadurch ausgeglichen, dass ein Elektron aus einer höheren Schale diese Fehlstelle nachbesetzt. Dabei wird gleichzeitig charakteristische elektromagnetische Strahlung emittiert. Diese entspricht genau der diskreten Energiedifferenz der beiden an diesem Prozess beteiligten Schalen. Diese diskrete Energiedifferenz ist für das jeweilige Element charakteristisch.
Beim Augereffekt verlässt die charakteristische Strahlung allerdings nicht das Atom sondern wird von einem anderen Hüllenelektron absorbiert. Verlässt dieses Elektron das Atom, wird es als Augerelektron bezeichnet. Die so neu entstandene Fehlstelle wird nun auf dieselbe Art und Weise wieder aufgefüllt, was eine weiters Fehlstelle erzeugt usw... Eine regelrechte Kaskade bildet sich.
Sollte jedoch die charakteristische Strahlung das Atom verlassen und nicht von einem Hüllenelektron absorbiert werden, wird sie als charakterisitsche Röntgenstrahlung bezeichnet. Augereffekt und charakteristische Röntgenstrahlung treten in Konkurrenz zueinander auf. (Bichler, 2004; Tschurlovits, 2003/2004; Winter, 1999)

Weiterführende Informationen in ‘Einführung in die Kernchemie‘ von Lieser, K. H..

3.3. Zerfallsgesetz

Für ein einzelnes Atom eines radioaktiven Nuklids ist es unmöglich den Zeitpunkt seines Zerfalls vorherzusagen. Für mehrere Atome eines radioaktiven Nuklids gilt, dass sie, unabhängig voneinander, auch wenn sie zu unterschiedlichen Zeitpunkten entstanden sind, mit der gleichen Wahrscheinlichkeit innerhalb des gleichen Zeitraums zerfallen. Kurz, der radioaktive Zerfall ist ein Phänomen statistischer Natur (Bichler, 2004; Tschurlovits, 2003/2004).

Der als Zerfallskonstante bezeichnete Faktor λ drückt die Konstanz der Zerfallswahrscheinlichkeit sowie die Unabhängigkeit des Zerfalls der einzelnen Atome eines radioaktiven Nuklids voneinader aus. Aus der konstanten Zerfallswahrscheinlichkeit und der Unabhängigkeit der einzelnen Zerfälle voneinander folgt, dass die Aktivität (die Anzahl der

Zerfälle eines radioaktiven Nuklids innerhalb eines Zeitintervalls dt) des radioaktiven Nuklids proportional ist zu der zum betrachteten Zeitpunkt vorhandenen Anzahl N seiner Atome.

$$A = -\frac{dN}{dt} = \lambda N \tag{3.5}$$

Geht man nun davon aus dass N_0 die Anzahl der vorhanden Atome des radioaktiven Nuklids zur Zeit t=0 ist, folgt aus der Integration der vorherigen Differentialgleichung das Zerfallsgesetz.

$$N(t) = N_0 e^{-\lambda t} \quad bzw. \quad A(t) = A_0 e^{-\lambda t} \tag{3.6}$$

Aus der Zerfallskonstanten λ kann die Halbwertszeit $T_{1/2}$ berechnet werden. Wobei die Halbwertszeit ist jener Zeitraum in dem die Hälfte der ursprünglich vorhandenen Atome zerfällt.

$$T_{1/2} = \frac{ln2}{\lambda} \tag{3.7}$$

Die Einheit der Aktivität ist das Bequerel [Bq]. Bequerel sind Zerfälle pro Sekunde, das heißt finden in einer Probe 1000 Zerfälle pro Sekunde statt so hat diese Probe eine Aktivität von 1000 Bq.

3.4. Mutter-Tochter-System

Oft zerfällt ein radioaktives Nuklid zu einem Tochternuklid das seinerseits radioaktiv ist und ebenfalls zerfällt. Aber auch dessen Tochternuklid kann wieder radioaktiv sein und zerfallen. Auf diese Art und Weise können sich ganze Zerfallsreihen bilden.

$$N_1 \xrightarrow{\lambda_1} N_2 \xrightarrow{\lambda_2} N_3$$

In diesem Fall muß bei den Zerfallsgleichungen neben dem Zerfall auch die Entstehung des radioaktiven Atoms berücksichtigen. Die Gleichungen sehen dann so aus :

$$\frac{dN_1}{dt} = -\lambda_1 N_1$$

$$\frac{dN_2}{dt} = \lambda_1 N_1 - \lambda_2 N_2$$

$$\frac{dN_3}{dt} = \lambda_2 N_2 - \lambda_3 N_3$$

Abhängig vom Verhältnis der Halbwertszeiten der radioaktiven Atome zueinander kann sich, nach mehreren Halbwertszeiten, zwischen den einzelnen Stufen dieses Systems ein Gleichgewicht bilden. Dann zerfallen in den einzelnen Stufen genauso viele Nuklide wie Neue entstehen.

$$\frac{dN_1}{dt} = \frac{dN_2}{dt} = \frac{dN_3}{dt} = 0$$

Einsetzen des Zerfallsgesetzes (siehe Glg. 3.6) in die Zerfallsgleichungen und das lösen der daraus entstehenden Differentialgleichungen beschreibt dann das Verhältnis der einzelnen Zerfallsstufen des Systems zueinander.
Geht man davon aus, dass zum Zeitpunkt t=0 nur das Mutternuklid vorhanden war, so erhält man :

$$N_1(t) = N_1(t=0)e^{-\lambda_1 t}$$

$$N_2(t) = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_2(t=0)(e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t})$$

$$N_3(t) = \lambda_1\lambda_2 N_3(t=0)(\frac{e^{-\lambda_1 t}}{(\lambda_2 - \lambda_1)(\lambda_3 - \lambda 1)} + \frac{e^{-\lambda_2 t}}{(\lambda_1 - \lambda_2)(\lambda_3 - \lambda 2)} + \frac{e^{-\lambda_1)t}}{(\lambda_1 - \lambda_3)(\lambda_2 - \lambda 3))}$$

Allgemein gilt :

$$N_n(t) = \sum_{n`=1}^{n} \quad \frac{\lambda_1.\lambda_2.\lambda_3...\lambda_{n`-1}}{(\lambda_1 - \lambda_{n`})(\lambda_2 - \lambda_{n`})...(\lambda_{n`-1} - \lambda_{n`})} N_{n`}(0)e^{-\lambda_{n`}t}$$

3.5. Aktivierung

Von Aktivierung spricht man, wenn nach einer Kernreaktion eines stabilen Targetnuklids mit Teilchen (Neutronen, Protonen usw.) ein radioaktives Produktnuklid vorliegt.
Der Aktivierungsquerschnitt ist dabei definiert als die effektive Fläche, die ein Targetnuklid dem Teilchenstrom für die betrachtete Reaktion bzw. für den speziellen Reaktionsverlauf entgegenstellt.
Der totale Wirkungsquerschnitt σ_{tot} setzt sich additiv aus dem Streuquerschnitt σ_s und dem Absorptionswirkungsquerschnitt σ_a, die wiederum unterteilt sind in Wirkungsquerschnitte der elastischen $\sigma_{elast.}$ und inelastischen Streuung $\sigma_{inelast.}$, sowie Wirkungsquerschnitte der Absorption ohne Spaltung σ_c und Absorption mit nachfolgender Spaltung σ_f, zusammen.

$$\sigma_{tot} = \sigma_s + \sigma_a = \sigma_{elast.} + \sigma_{inelast.} + \sigma_c + \sigma_f$$

Der Wirkungsquerschnitt wird in der Einheit barn (1 barn = 10^{-24}cm^2) angegeben.

Im Rahmen dieser Arbeit wird nur die Aktivierung durch Neutronen betrachtet.
Beim Einfang eines Neutrons erhält der Produktkern außer der kinetischen Energie auch noch die Bindungsenergie des Neutrons von etwa 8 MeV. Dadurch befindet er sich in einem angeregten Zustand.
Die Energieänderung zum Grundzustand des radioaktiven Produktkerns erfolgt durch die sofortige Emission von γ-Quanten. Diese charakteristischen Quanten werden als prompte γ-Strahlung bezeichnet.

Überwiegend entstehen Radionuklide durch (n,γ)-Reaktionen mit thermischen Neutronen, sowie durch (n,p)- und (n,α)-Reaktionen mit epithermischen und schnellen Neutronen im TRIGA Mk-II Forschungsreaktor.

Als beachtenswerter Nebeneffekt soll hier der Szilard-Chalmers-Effekt erwähnt werden. Szilard L. und Chalmers T. W. haben 1934 beobachtet, dass bei Bestrahlung von Äthyljodid mit Neutronen das gebildete ^{128}J zum Teil nicht mehr chemisch im Äthyljodid gebunden, sondern mit Wasser als Jodid extrahierbar war.
Die entstandenen ^{128}J-Kerne hatten durch ihre Rückstoßenergie die Bindung gesprengt und das ursprüngliche Molekül verlassen. Seither wurde der Szilard-Chalmers-Effekt bei vielen Verbindungen beobachtet und hat bei der Freisetzung von Radionukliden in das Tankwasser erhebliche Bedeutung.

4. Angewandte Messverfahren und Messgeräte

4.1. γ-Spektrometrie

In diesem Kapitel wird die γ-Spektrometrie, die wichtigste Meßmethode zur Bestimmung der im Tankwasser enthaltenen radioaktiven Nuklide, genauer beschrieben. Dabei wird mit Hilfe von Halbleiterdetektoren die von radioaktiven Nukliden in Proben ausgesandte γ-Strahlung gemessen (Bichler, 2004; L'Annunziata, 2003; Lieser, 1991).

Halbleiterdetektoren Ein Halbleiterdetektor ist eigentlich eine durch Kombination von p- bzw. n-dotiertem Halbleitermaterial hergestellte Diode (p-i-n Übergang). Damit er aber als solche funktionieren kann muss die verwendete Halbleitersubstanz hochgradig rein sein. Bei heutigen Halbleiterdetektoren liegt die Anzahl der Störstellen oder Fremdatome unter 10^{10} cm^{-3}. Die günstigsten Voraussetzungen um diese Anforderungen zu erfüllen bieten Si und Ge. Allerdings kommt Si vor allem für die Messung von Röntgenstrahlung zum Einsatz während Ge, wegen des höheren Absorptionsgrades für γ-Strahlung eingesetzt wird.
Für γ-Spektrometer werden heute hauptsächlich sogenannte High-Purity-Ge-Detektoren (HPGe) verwendet. Sie zeichnen sich durch ihre geringe Konzentration an Fremdatomen aus, sodass die Eindiffusion von Li (n-Kontakt) bzw. die Implantation von Bor-Atomen (p-Kontakt) nur noch dem Herstellen von Kontakten für die Elektroden dient.

Signalerzeugung Durch das Anlegen einer Hochspannung in Sperrrichtung am Halbleiterdetektor (Diode) entsteht durch die Bewegung der Ladungsträger (freie Elektronen und positive Löcher) zu den jeweiligen Elektroden ein Volumen, frei von beweglichen Ladungsträgern. Dieses Volumen wird als 'intrinsic volume' bezeichnet.
Trifft nun ein γ-Quant auf Atome dieses nicht-leitenden Volumens und wechselwirkt mit ihnen, so wird eine, der Energie des γ-Quants proportionale Anzahl von Elektronen ins Leitungsband gehoben, während positive Löcher zurück bleiben. Allerdings wandern beide, durch die angelegte Hochspannung, zu ihren respektiven Elektroden und werden dort registriert. Dabei haben Elektronen und Löcher in etwa die gleiche Geschwindigkeit, was zu einer guten zeitlichen Auflösung des Systems führt. Der dadurch fließende Strom wird in einem Vorverstärker über einen Feldeffekttransistor (FET) verstärkt und lädt

oder entlädt einen Kondensator. Dieses so entstandene, stufenförmige Vorverstärkersignal wird dann zur weiteren Verarbeitung digitalisiert. Diverse Störanteile wie elektromagnetische Einstreuungen, elektronisches Rauschen, pulse pile-up usw. werden dann noch ausgefiltert.
Ein weiterer wichtiger Störanteil ist das thermische Rauschen. Elektronen können nicht nur durch einfallende γ-Quanten angeregt werden. Da sie in Halbleitern sehr nahe am Leitungsband liegen, können sie auch sehr leicht thermisch angeregt werden. Die so entstehenden Elektronen und Löcher führen zu einem ständig fliessenden 'Leckstrom', der als thermisches Rauschen bezeichnet wird. Um den Effekt des thermischen Rauschens zu minimieren wird der Detektor zur Messung mit flüssigem Stickstoff gekühlt (-195,79°C).
Aber auch die normale Hintergrundstrahlung verursacht Rauschen. Um die Hintergrundzählrate klein zu halten, muss um Detektor und Probe eine gute Abschirmung angebracht werden. Dazu verwendet man in der Regel Blei - und/oder Eisenziegel.
Die so erhaltenen Messwerte werden dann als sogenanntes γ-Spektrum dargestellt.

γ-Spektrum Als γ-Spektrum bezeichnet man eine graphische Abbildung, in der die Anzahl der innerhalb einer bestimmten Zeit von einer Probe registrierten γ-Quanten als Funktion ihrer Energie aufgetragen wird. Die Form eines γ-Spektrums wird durch die im Detektor stattfindenden Wechselwirkungen bestimmt. Die möglichen Wechselwirkungen für die γ-Quanten mit dem Detektormaterial (siehe Kap. 3.2) sind der Photoeffekt, der Comptoneffekt, der Paarbildungseffekt und die Annihilation.

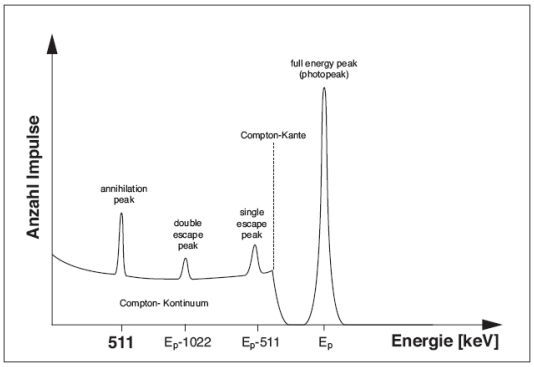


Abbildung 4.1.: Auswirkungen der Wechselwirkungeffekte auf das γ-Spektrum (Bichler, 2004)

Beim Photoeffekt (siehe Kap. 3.2, Photoeffekt bzw. Abb. 4.1) wird ein einfallendes γ-Quant von einem Atom des Detektors absorbiert. Daraufhin emittiert dieses ein vorher gebundenes Elektron, im weiteren Verlauf als Photoelektron bezeichnet, welches vom Detektor gemessen wird. Die kinetische Energie dieses Photoelektrons ist gleich der Energie

des γ-Quants, vermindert um die, in diesem Falle vernachlässigbar kleine, Bindungsenergie des Elektrons. Die gemessene Impulshöhe ist daher proportional zur Energie des γ-Quants. Da jedes radioaktive Nuklid γ-Quanten einer charakteristischen Energie aussendet, entstehen durch diesen Effekt eine Reihe von Emissionslinien, sogenannte Peaks. Ihre Position im Spektrum ermöglicht die Identifikation des Nuklids. Weiters kann aus der Höhe dieser Peaks die Aktivität des jeweiligen Nuklids bestimmt werden.
Beim Comptoneffekt (siehe Kap. 3.2, Comptoneffekt bzw. Abb. 4.1) wird ein einfallendes γ-Quant an den Elektronenhüllen der Detektoratome inelastisch gestreut. Die dabei übertragene Energie ist vom Streuwinkel abhängig. Daher kann die kinetische Energie des so entstandenen Compton-Elektrons, und somit auch der Energieverlust des γ-Quants, praktisch jeden beliebigen Wert zwischen Null, bei einem Streuwinkel von 0°, und einem bestimmten Maximalwert, der sogenannten Comptonkante, bei einem Streuwinkel von 180°, annehmen. Werden vom Detektor beide Teilchen, sowohl das gestreutes γ-Quant als auch das Compton-Elektron, gleichzeitig regestriert, ergibt die Summe wieder die korrekte Energie des eingefallenen γ-Quants. Entweicht jedoch das gestreute γ-Quant aus dem Detektor, so misst der Detektor eine für die Probe nicht charakteristische Energie, nämlich nur diejenige des Compton-Elektrons. Im Laufe einer Messung entsteht deshalb durch die im Detektor auftretenden Compton-Elektronen unterschiedlichster Energien ein kontinuierlicher Hintergrund. Aus diesem Hintergrund kann keine Information über in der Probe enthaltene Nuklide gewonnen werden. Er erschwert jedoch die Erkennbarkeit kleiner Peaks und verschlechtert somit die Nachweisgrenzen der verschiedenen Elemente.
Beim Paarbildungseffekt (siehe Kap. 3.2, Paarbildungseffekt bzw. Abb. 4.1) ist die Energie eines einfallenden γ-Quants größer als die doppelte Ruheenergie eines Elektrons (1,022 MeV), woraus sich ein Elektron-Positron-Paar bildet. Das Positron ist nicht beständig und annihiliert (siehe Kap. 3.2, Annihilation) mit einem Elektron, wobei zwei γ-Quanten mit entgegengesetzter Bewegungsrichtung und einer Energie von je 511 keV entstehen. Die Annihilation findet bereits sehr kurz nach der Paarbildung statt, weshalb beide Vorgänge vom Messsystem als ein Ereignis gesehen werden. Im Idealfall werden sowohl die vom Elektron und vom Positron abgegebene kinetische Energie als auch beide bei der Annihilation entstandenen Photonen vom Detektor gleichzeitig registriert. In diesem Fall ergibt sich ein Impuls an derjenigen Stelle im Spektrum, die der gesamten Energie des eingefallenen γ-Quants entspricht ('full energy peak'). Oft verläßt aber eines der bei der Annihilation gebildeten γ-Quanten oder sogar beide den Detektor ohne registriert zu werden. Die vom Elektron-Positron-Paar abgegebene kinetische Energie wird jedoch detektiert. Die Energie des Quants erscheint dann im Spektrum um 511 keV (single escape peak) oder um 1,022 MeV (double escape peak) zu klein. Der Annihilationspeak tritt nicht nur als Folge der Paarbildung auf, sondern auch in Folge der Annihilation von Positronen die durch in der Probe enthaltenen β^+-Strahlern emittiert werden.

Aber nicht jede 'Erhebung' in einem γ-Spektrum ist ein zu einem radioaktiven Nuklid gehörender Peak. Nur 'Erhebungen' die über der Nachweisgrenze liegen können mit einer gewissen Sicherheit als, von einem in der Probe enthaltenen Nuklid erzeugte Peaks

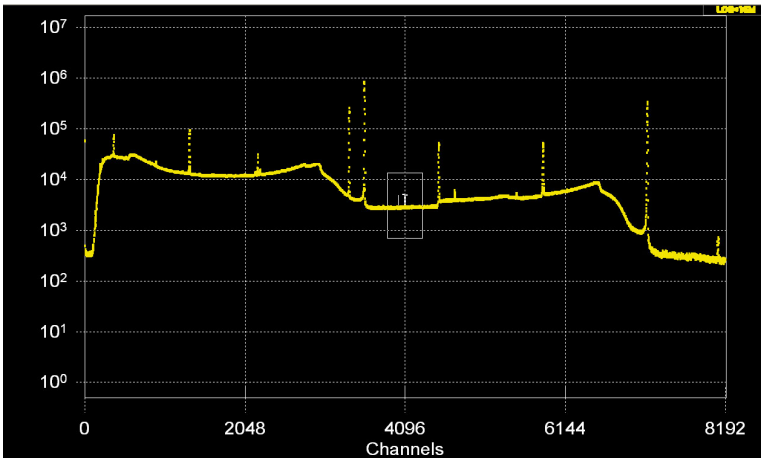


Abbildung 4.2.: γ-Spektrum der Tankwasserprobe vom 23.12.04

betrachtet werden.

Nachweisgrenze Die Nachweisgrenze wird definiert als der kleinste Gehalt oder die kleinste Masse, die noch mit einer für den speziellen Anwendungsfall vorgegebenen Präzision bestimmt werden kann.
Alle Messwerte ohne systematischen Fehlern schwanken zufällig mit dem Wert $\pm \mathrm{k} \cdot \sigma$ um den wahren Mittelwert der Messung μ. Dabei ist k eine Konstante und σ die Standardabweichung. Die Standardabweichung ist definiert als die nicht negative Wurzel der Varianz σ^2. Die Varianz ist ein Maß für die Reproduzierbarkeit bzw. die Schwankungen der Einzelergebnisse um den Mittelwert μ. Ist x der Mittelwert der Einzelergebnisse x_{1-i}, so gilt für die Varianz

$$\sigma^2 = \frac{1}{n-1} \sum_{i=1}^{n} \quad (x_i - x)^2 \tag{4.1}$$

Eine Messgröße kann dann als gesichert angesehen werden, wenn die Differenz zwischen dieser Messgröße und dem mittleren Blindwert x größer ist als ein bestimmtes Vielfaches k der Standardabweichung σ der Blindwerte.
Für die Auswertung der γ-Spektren des Tankwasser wurde $\mathrm{k} = 3$ gewählt, das bedeutet dass 99,73% aller Werte innerhalb des Intervalls $\mathrm{x} \pm 3.\sigma$ zu liegen kommen. Betrachtet man nun die Kanäle eines γ-Spektrums als Einzelmessungen, so kann die Nachweisgrenze für das Vorhandensein eines Peaks mit 3σ des Hintergrunds angenommen werden.

Identifikation von Nukliden (Peaksuche) Um Informationen über die in einer Probe enthaltenen radioaktiven Nuklide zu erhalten, muss man die Werte der Maxima der Peaks mit den in Tabellen (oder Datenbanken) zusammengefaßten bekannten Emissionslinien vergleichen. Damit können im allgemeinen die Nuklide in den Proben identifiziert

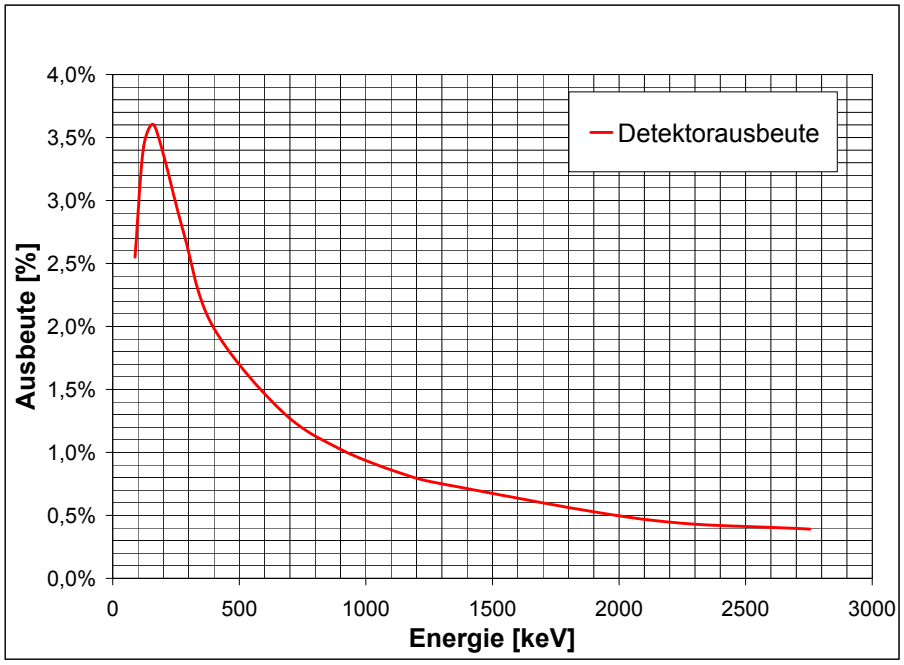


Abbildung 4.3.: Detektor Ausbeutekurve für einen HPGe-Detektor

werden.
Manchmal reicht aber die Information über die Energie nicht zur eindeutigen Bestimmung aus, dies kann bei Nukliden mit sehr ähnlichen Spektren der Fall sein. Dann können aber noch die ebenfalls bekannten Intensitätsverhältnisse der einzelnen Linien eines Nuklids, sowie die Halbwertszeit herangezogen werden um es dennoch zu identifizieren.
Bei der Auswertung ist zu beachten, daß nicht alle Peaks eines γ-Spektrums direkt einer Emissionslinie eines Nuklids in der Probe entsprechen. Neben den bereits erwähnten Escape- und Annihilations-Peaks können auch relativ kleine Summationspeaks vorhanden sein, zu denen jene Impulse beitragen, die durch zwei fast gleichzeitig im Detektor eintreffende γ-Quanten verursacht werden. Ein solcher Impuls wird vom Messsystem als einzelnes Ereignis betrachtet, dessen Energie der Summe der Energien der beiden γ-Quanten entspricht.

Um aus einem γ-Spektrum die Aktivität eines in einer Probe enthaltenen Nuklids zu bestimmen muss die Detektorausbeute berücksichtigt werden. Diese ist definiert als das Verhältnis zwischen der Anzahl der im Detektor registrierten und der Anzahl der tatsächlich von der Probe emittierten Quanten. Die Detektorausbeute ist energieabhängig, da höherenergetische Strahlung mit geringerer Wahrscheinlichkeit eine Wechselwirkung im Detektor erfährt als Strahlung mit niedrigerer Energie (siehe Abb. 4.3).

Die Detektorausbeute-Kurve ermittelt man durch Messung der Zählraten von Referenzproben mit bekannter Aktivität. Diese sind kommerziell erhältlich.

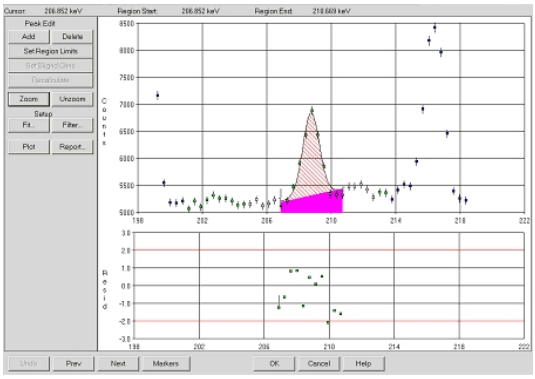


Abbildung 4.4.: Einzel-Peak

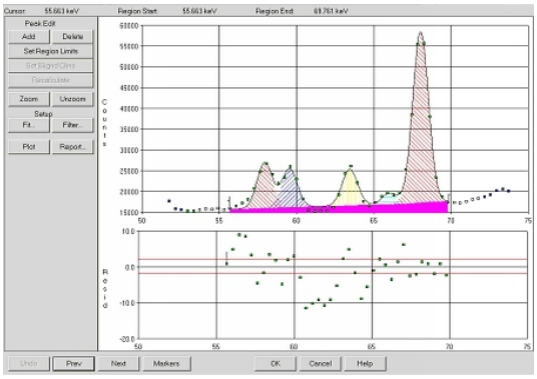


Abbildung 4.5.: Überlagerte Peaks

Bestimmung der Aktivität Mit Hilfe des γ-Spektrums ist es, neben der Identifikation der in der Probe enthalten Nuklide, auch möglich deren Aktivität zu bestimmen.
Zur Bestimmung der Aktivität eines Nuklids in einer Probe wird im allgemeinen nur eine γ-Emissionslinie des betreffenden Nuklids herangezogen, und zwar diejenige mit der höchsten Nachweisgrenze.
Am besten geeignet ist prinzipiell die 'intensivste' Linie. Das ist derjenige Peak, der nach der Korrektur bezüglich der Detektorausbeute und Hintergrund die größte Zählrate aufweist. Ein Problem stellen einander überlappende Peaks dar. Können diese nicht gut genug mathematisch voneinander getrennt werden, muss eine andere Linie zur Auswertung gewählt werden.
Ist nun ein Peak ausgewählt worden, so muss man, um die Aktivität des Nuklids in der Probe zu ermitteln, die Fläche unter dem gewählten Peak bestimmen. Diese gibt die Anzahl der Impulse wieder, die durch die entsprechende γ-Emissionslinie verursacht wurden. Zu beachten ist, daß man von der ermittelten Fläche die Hintergrundfläche abziehen muss. Diese wird meistens dadurch abgeschätzt, indem man eine Gerade durch die Inhalte zweier Kanäle, links und rechts des relevanten Peaks legt, und die Fläche unter ihr bestimmt (Trapezmethode). (siehe Abb. 4.4)
In vielen Fällen überlagern jedoch einander mehrere Peaks teilweise, sodaß eine Bestimmung der Peakfläche und der Hintergrundfläche nicht unmittelbar möglich sind. Dann nutzt man die Tatsache, daß die Form der Peaks der Gauss´schen Normalverteilung entspricht um den kompletten Kurvenverlauf zu berechnen. Auch für den Verlauf des Hintergrundes kann man in diesem Fall eine mathematische Funktion finden. (siehe Abb. 4.5)
Dividiert man die nun erhaltene Netto-Peakfläche durch die Messzeit, erhält man die Netto-Zählrate für diese Linie. Mit Hilfe der Ausbeutekurve für den Detektor kann daraus die Aktivität des Nuklids in der Probe errechnet werden.

Um ein optimales Ergebnis zu erhalten, muss die Messzeit entsprechend der Halbwertszeiten der Nuklide und des vorhandenen Hintergrunds gewählt werden. Man kann aber eine Probe auch mehrmals messen, um zuerst die kurzlebigen Nuklide und nach deren Abklingen diejenigen mit längeren Halbwertszeiten genauer zu bestimmen. Die Messzeit

Abbildung 4.6.: HPGe-Detektor im Messraum der Abteilung Radiochemie des Atominstitut

muss aber auf jeden Fall so gewählt werden dass genügend Impulse gezählt werden können, um eine ausreichend genaue Bestimmung der gesuchten Nuklide zu ermöglichen.

4.1.1. Verwendetes Messgerät

Die Messungen wurden mit dem hauseigenen HPGe-Detektor, einem GEM-30195-Plus der Firma Ortec mit der Seriennummer 24-P-1308, durchgeführt. Die Dimensionen des Ge-Kristalls sind : Durchmesser 58,8 mm, Länge 55,6 mm mit einem Auflösungsvermögen bei 1,33 MeV von garantierten 1,95 keV und gemessenen 1,77 keV.
Die Messdaten wurden mit mit dem Programm Genie 2000 Version 2.1 (22.07.02) von Canberra Industries ausgewertet.

Für die Messungen wurde ein Marinelli-Becher verwendet, der eine optimale Geometrie während der Probenmessung gewährleistet, in den für jede Messung genau 1 Liter Tankwasser eingewogen wurde.

Abbildung 4.7.: Marinelli-Becher

4.2. Flüssigszintillation

Szintillatoren sind Substanzen, welche die Energie einer absorbierten Strahlung in Lichtquanten im sichtbaren oder ultravioletten Wellenlängenbereich umwandeln. Diese können mit Hilfe von Photokathoden und Sekundärelektronenvervielfachern in elektrische Signale umgewandelt werden. Da die Anzahl der vom Szintillator emittierten Lichtquanten der Energie des absorbierten Teilchens proportional ist, können spektroskopische Messungen durchgeführt werden. Der Szintillator kann sich in festem oder flüssigem Aggregatzustand befinden.

Bei der im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Flüssigszintillation wird als Szintillator eine organische Verbindung verwendet. Die Probe wird aber nicht allein in den flüssigen Szintillator eingebracht, sondern in eine Mischung aus Lösungsmittel und Szintillatorsubstanzen, einem sogenannten Cocktail. Das Lösungsmittel muss ein guter Energieüberträger sein und soll nach Möglichkeit keine Lichtquanten absorbieren. Aber auch die organischen Verbindungen die als Szintillator verwendet werden, müssen gut darin löslich sein. Diese Vorraussetzungen für das Lösungsmittel werden vor allem von aromatischen Verbindungen erfüllt. Dadurch dass die Probe und der Detektor vermischt sind kommt es kaum zur Absorption der emittierten Strahlung. Damit eignet sich diese Methode sehr gut für die Messung von α-und niederenergetischer β-Strahlung (kurze Reichweiten).

Signalerzeugung Die von der Probe ausgesandte Strahlung regt die Moleküle des Lösungsmittels an, wobei die Anzahl der angeregten Moleküle proportional zur Strahlungsenergie ist. Da es sich bei den Lösungsmittelmolekülen um gute Energieüberträger handelt, wird die Energie solange weitergegeben bis sie auch Szintillatormoleküle anregt. Diese besitzen aber eine etwas geringere charakteristische Energie als die Lösungsmittelmoleküle, weshalb sie die aufgenommene Energie nicht mehr an diese zurückgeben können. Die Szintillatormoleküle geben dann die aufgenommene Energie in Form von Photonen ab.
Die so entstandenen Photonen verlassen die Probe und können mit Photoelektronenvervielfachern detektiert werden. Das Messergebnis wird allerdings durch die so genannte Löschung (Quench) unterschiedlich stark verfälscht. Dabei werden die vom Szintillator ausgesandten Photonen absorbiert, wodurch die Strahlungsenergie geringer erscheint. Man unterscheidet dabei zwischen Farblöschung und chemischer Löschung.
Bei der Farblöschung werden die Photonen durch färbige Verunreinigungen in der Probe absorbiert. Daher sollte die Probe, um die Farblöschung möglichst gering zu halten, farblos sein oder durch die Zugabe von Chemikalien farblos gemacht werden. Vor allem letzteres kann aber den zweiten Löschungseffekt verstärken, die chemische Löschung.
Bei der chemischen Löschung absorbieren Moleküle die von der Probe emittierte Energie und geben sie in thermischer Form ab (keine Photonen).

Weiterführende Information zu diesem Thema sind zu finden im '*Handbook of Radioactivity Analysis*' von L'Annunziata M. und in 'Anwendung der Flüssigszintillationsmesstechnik für die radiologische Umgebungsüberwachung' von Tschurlovits M..

4.2.1. Probenvorbereitung

Für die Messungen wurden Polyethylen-Fläschchen (Vials) mit 20 ml Volumen verwendet (siehe Abb. 4.8). Diese wurden dann mit 10 ml Cocktail aufgefüllt. Für die Messung wurde 1ml Tankwasser mittels Mikropipette zugesetzt. Danach wurde das Vial gut geschüttelt um eine homogene Durchmischung von Cocktail und Tankwasser sicherzustellen. Damit vorhandene Luftbläschen aufsteigen können, wird die Probe mindestens eine halbe Stunde stehengelassen. Idealerweise sollte die Probe nach der Herstellung 24 Stunden in einem dunklen Raum stehengelassen werden um die niederenergetischen Lumineszenzeffekte zu minieren, dies sollte vor allem bei sehr niedrigen Tritium-Aktivitäten berücksichtigt werden. Außerdem sollte man versuchen die beim Hantieren mit dem Vial auftretenden Verschmutzungen an der Oberfläche des Vials so gering wie möglich zu halten, da dies das Messergebnis ebenfalls verfälschen kann. (Fingerprint-quench) Aber auch das Reinigen der Vials kann problematisch sein da dies zu einer elektrostatischen Aufladung des Vials führen kann, wodurch das Messergebnis ebenfalls verfälscht werden würde. (Entladung)

Bei den Messungen wurde der Cocktail Ultima Gold XR (Perkin-Elmer) (siehe Abb. 4.9), mit einer Effizienz von bis zu 50% für Tritium verwendet.

Abbildung 4.8.: 20 ml Polyethylen-Fläschchen

Abbildung 4.9.: Ultima Gold XR Cocktail

4.2.2. Verwendetes Messgerät

Für die Messungen mittels Flüssigszintillations Spektrometrie wurde das hauseigene LSC-Gerät, der TRI-CARB 2700 TR, von der Firma Packard benutzt.(siehe Abb. 4.10

Der TRI-CARB 2700 TR gibt die Messergebnisse in Counts/min pro Kanal an. Der Begriff Kanal wird in diesem Zusammenhang für einen wählbaren Energiebereich verwendet.

Geräteeinstellungen Für die Bestimmung der Tritiumaktivität des Tankwassers wurden drei solcher Kanäle definiert. Der Messbereich im Kanal A reicht von 0-18,6 keV, und soll so den Einfluss von Verunreinigungen, die Photonen höherer Energie emittieren, möglichst minimieren. Im Kanal B verläuft der Messbereich von 2-18,6 keV, womit der Anteil der niederenergetischen Lumineszenz, durch einen Vergleich von Kanal A und B, bestimmbar ist. Und im Kanal C ist er 0-120 keV. So werden gleichzeitig eintreffende Signale, die mit einem der Summe der Energien entsprechenden Wert gezählt werden, ebenfalls berücksichtigt.
Da bei den Messungen keine störenden Einflüsse von Verunreinigungen oder durch Lumineszenz auftraten, werden nur die Messergebnisse von Kanal C, welcher den gesamten Messbereich abdeckt, im weiteren Verlauf dieser Arbeit behandelt.

Abbildung 4.10.: TRI-CARB 2700 TR

4.2.3. Messung

Die Flüssigszintillation dient im Rahmen dieser Arbeit nur der Bestimmung der Tritium-Aktivität des Tankwassers des TRIGA Mk-II Reaktors. Zu diesem Zweck wurde jeder Probe beider Tankwasser-Probenserien (siehe Kap. 2) 1 ml entnommen um den jeweiligen Tritiumgehalt der Probe zu bestimmen. (siehe Kap. 4.2.1)

Standardmessung Vor der tatsächlichen Messung erfolgt eine Kalibrationsmessung mit internen Standards des Messgerätes. Damit wird die Funktionsfähigkeit des Messgerätes innerhalb normaler Parameter sichergestellt.
Jede Messserie setzt sich aus einer so genannten Standardprobe, den Messproben und zweier Leerwertproben zusammen. Alle Proben sollten zur selben Zeit und am selben Ort hergestellt werden, um so Unterschiede in den Proben durch äußere Einflüsse wie Luftdruck, Luftfeuchtigkeit und dergleichen zu minimieren.
Als erstes wird die Leerwertprobe gemessen. Sie soll den Beitrag der Hintergrundstrahlung zum Messsignal bestimmen. Um den tatsächlichen Messwert zu erhalten muss der Leerwert vom Messsignal abgezogen werden.
Die Leerwertprobe hat idealerweise dieselbe Zusammensetzung wie die Proben, allerdings ohne radioaktive Nuklide. Es sollte sowohl vor als auch nach der Messung jeweils ein Leerwert gemessen werden. Damit kann kontrolliert werden ob während der gesamten Messung die Hintergrundstrahlung gleich geblieben ist. Unterscheiden sich die beiden Messerte für die Hintergrundstrahlung, muss das bei dem daraus resultierenden Leerwert durch einen entsprechenden größeren Messfehler berücksichtigen werden, da nicht festgestellt werden kann, wann während der Messserie sich der Hintergrund verändert hat. Im schlimmsten Fall muss die gesamte Messung wiederholt werden.
Nach dem Leerwert wird die Standardprobe gemessen.
Sie enthält eine bekannte Aktivität des in den Proben nachzuweisenden radioaktiven Nuklids. Mit Hilfe dieser Standardprobe wird die Ausbeute kontrolliert. In diesem Zusammenhang versteht man unter Ausbeute das Verhältnis zwischen stattfindenden Ereignissen und den tatsächlich vom Messgerät registrierten Ereignissen.
Da die Ausbeute des Cocktails für das zu messende radioakive Nuklid bekannt ist, indiziert ein zu starkes Absinken unter oder ein Ansteigen über diesen Wert dass mit dem Messgerät, dem Cocktail oder der Probenvorbereitung etwas nicht in Ordnung ist. Nach der Standardprobe werden die tatsächlichen Proben gemessen und abschließend wieder ein Leerwert.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde für die Leerwertproben jeweils 1 ml deionisiertes Wasser verwendet.
Als Standard diente eine Tritium-Referenzprobe der IAEA, welche dankenswerterweise von Hr. Dipl. Ing. Tatzber zur Verfügung gestellt wurde.
Die Messzeit für eine Tankwasserprobe beträgt drei Stunden. Damit liegt der statistische Fehler der Messwerte knapp unter einem Prozent. Eine weitere signifikante Verringerung des statistischen Fehlers würde eine Verdreifachung der Messzeit erfordern.

Quenchkurve Um eine genaue Bestimmung der Tritium-Aktivität zu erhalten, müssen die Ausbeute bzw. die Löschung (Quench) (siehe Kap. 4.2.1) für die verwendeten Proben möglichst genau quantifiziert werden. Dies erfolgt mittels Messung einer Quenchkurve.
Um diese zu erhalten stellt man mindestens 5-10 Quenchproben her, die im Idealfall dieselbe Zusammensetzung haben wie die Messproben. Alle Proben sollen dieselbe Aktivität haben, aber unterschiedliche Probenmengen. Damit erhält man die Ausbeute

für ein und dieselbe Aktivität bei unterschiedlicher Probenmenge. Diese Werte können interpoliert werden und ergeben die Quenchkurve.

Im Rahmen dieser Arbeit wurden Quenchproben mit jeweils 0,1ml einer Tritiumlösung und unterschiedlichen Mengen Nachfüllwasser verwendet. Die mathematische Quenchkurve wurde mit Mathematica 5.0 bestimmt. (siehe Kap. 5.2.1)

4.3. ICP-MS

Bei der ICP-MS (Inductively Coupled Plasma-Mass Spectrometry) wird eine Probenlösung in ein Argonplasma eingebracht wo sie verdampft und ionisiert wird. Dies dient dann als Ionenquelle für ein Quadrupol-Massenspektrometer. Das Quadrupol-Massenspektrometer besteht aus vier parallel zueinander angeordneten runden Stabelektroden (siehe Abb. 4.11) und einem Auffänger (Sekundärelektronen-Vervielfacher, Faraday-Käfig). An jeweils zwei gegenüberliegenden Elektroden wird eine Gleichspannung U angelegt, die von einer hochfrequenten Wechselspannung V $\cdot$ cos ($\omega \cdot$t) überlagert wird. Die Ionen gelangen, aus dem Argonplasma kommend, ins Inneren des Stabsystems wo sie durch das Hochfrequenzfeld zu massenabhängigen Schwingungen angeregt werden. Nur für Ionen einer bestimmten Masse bleiben die Schwingungsamplituden so klein, dass sie das System passieren können und in den Auffänger gelangen. Die anderen Ionen treffen auf die Stäbe und werden eliminiert.

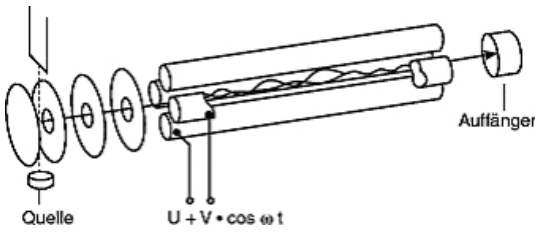


Abbildung 4.11.: Quadrupol-Massenspektrometer

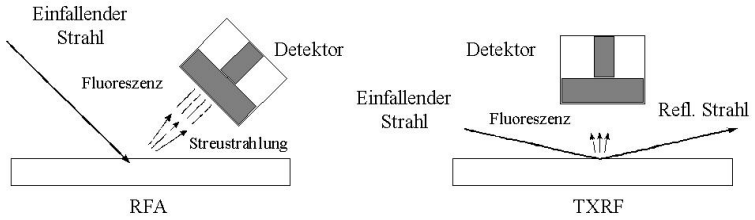
Durch Ändern der Werte für Gleich- und Wechselspannung kann man die Ionenmassen, die den Auffänger erreichen, variieren. Dadurch kann man aus den gemessenen Ionenmassen auf die in der Probe enthaltenen Elemente schließen und aus der Intensität des Signals auf ihre Konzentration in der Probe.

4.4. TXRF

Bei der TXRF (*T*otal *X*-Ray *F*luorescence *A*nalysis) wird die Probe mit einer Röntgenröhre bestrahlt und so zur Emission von charakeristischen Röntgenfluorszenzstrahlung angeregt. Dabei trifft der Röntgenstrahl aus der Röntgenröhre in einem so kleinen Winkel

Abbildung 4.12.: ICP-MS des Typs SCIEX ELAN 6100 von Perkin Elmer

auf die Oberfläche des Probenträgers, dass er daran totalreflektiert wird.
Diese Anordnung hat viele Vorteile gegenüber der normalen XRF oder auch RFA (*R*öntgen *F*luoreszenz *A*nalyse). Einerseits wird durch die Totalreflexion des Röntgenstrahls die Streustrahlung minimiert, andererseits wird durch das zweifache Passieren der Probe durch den Röntgenstrahl die Ausbeute an charakteristischer Strahlung erhöht. (siehe Abb. 4.4)



Die emittierte charakteristische Röntgenfluoreszenzstrahlung kann energiedispersiv mit Hilfe eines Halbleiterdetektors oder wellenlängendispersiv mit der Beugung an einem Analysatorkristall gemessen wird.

Weiterführende Informationen zur TXRF sind zu finden im '*Handbook of X-Ray Spectrometry*' von Van Grieken R. E. und Markowicz A. A.

Röntgenfluorszenzstrahlung Röntgenfluoreszenzstrahlung entsteht, wenn Elektronen in Atomen von den inneren Schalen auf weiter außen gelegene Schalen gehoben werden oder das Atom überhaupt verlassen. Die so entstandene Fehlstelle wird dann dadurch ausgeglichen dass ein Elektron aus einer höheren Schale diese Fehlstelle nachbesetzt.

Die Energiedifferenz wird als charakteristische Röntgenstrahlung emittiert. In Konkurrenz zu diesem Prozess steht die Aussendung von Auger-Elektronen (siehe Kap. 3.2, Augereffekt).

Röntgenröhre In einer Röntgenröhre werden Elektronen durch eine Glühkathode freigesetzt und durch Anlegen einer Spannung auf eine gegenüberliegende Anode beschleunigt. Die beschleunigten Elektronen treffen mit der Energie $e \cdot U$ auf der Anode auf. Dort beteiligen sie sich im wesentlichen an zwei Arten von Wechselwirkung.
Zum einen ionisieren die Elektronen durch Stoßprozesse die Atome der Anode. Mit der Relaxation wird dann anschließend charakteristische Strahlung der Anodenatome emittiert.
Zum anderen werden Elektronen an den Atomkernen gestreut und geben dabei einen Teil ihrer Energie ab, auch als Bremsstrahlung bezeichnet. Diese Art von Strahlung ist an keine Quantisierungsvorschrift gebunden, das heißt, alle Wellenlängen $\lambda \geq \lambda_0$ sind möglich, wobei $\lambda_0 = \frac{h \cdot c}{e \cdot U}$ jene Grenzwellenlänge ist bei der die gesamte Elektronenenergie umgesetzt wird. Die Bremsstrahlung ist daher eine kontinuierliche (weiße) Strahlung. (siehe Abb. 4.13)

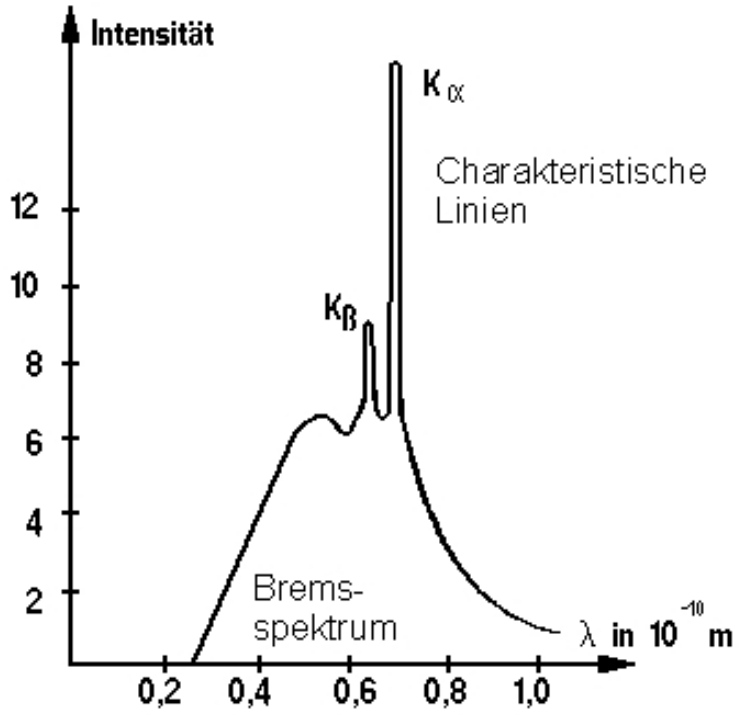


Abbildung 4.13.: Spektrum einer Röntgenröhre

5. Messergebnisse

5.1. Messergebnisse der γ-Spektrometrie

In diesem Kapitel werden die Messergebnisse γ-Spektrometrie präsentiert, die zur Identifizierung von radioaktiven Nukliden im Tankwasser des TRIGA Mk-II Forschungsreaktors geführt haben. Die Quellen der einzelnen Nuklide werden in Kapitel 6 behandelt.

Auswertung Um die Messergebnisse der γ-Spektrometrie auszuwerten, muß zuerst der Einfluss der immer vorhandenen Hintergrundstrahlung auf die Messung bestimmen werden. Zu diesem Zweck wird ein sogenannter Leerwert (Messung ohne Probe) gemessen. Die so gemessenen Peaks werden im weiteren Verlauf als Leerwert-Peaks bezeichnet. Die Leerwert-Peaks werden anschließend von den bei den Messungen erhaltenen Peaks der gleichen Energie abgezogen. Damit erhält man das tasächliches Messsignal der einzelnen Nuklide in der Messprobe.

Allerdings variiert die größe der Leerwert-Peaks verursacht durch das Radon und seine Folgeprodukte (z.B. ^{214}Bi, ^{214}Pb) in der Luft, denn deren Konzentrationen schwanken stark zwischen den Messungen. Aus diesem Grund wurden diese Leerwert-Peaks 'manuell' entfernt.

Als nächstes werden die übriggebliebenen Peaks den einzelnen Nukliden zugeordnet (siehe Kap. 4.1, Identifikation von Nukliden). Damit ist auch die Aussendewahrscheinlichkeit der einzelnen Peaks bekannt. Sie beschreibt die Wahrscheinlichkeit dafür, dass bei einem isomeren Übergang (siehe Kap. 3.1, γ-Zerfall) γ-Quanten mit der Energie des Peaks emittiert werden.
Mit Hilfe der Aussendewahrscheinlichkeit und der Ausbeutekurve (siehe Kap. 4.1, Detektorausbeute) kann die Aktivität der einzelnen, im Tankwasser gefunden, radioaktiven Nuklide bestimmt werden.

Die zur Auswertung der Messungen verwendete Ausbeutekurve des HPGe-Detektor, einem GEM-30195-Plus der Firma Ortec, wurde mit der Amersham Referenzlösung QCY46 (Referenzdatum 01.08.02) am 07.10.02 gemessen (siehe Tab. 5.1 und Abb. 5.1).

Im Rahmen dieser Arbeit konnten bei diesen Messungen die Isotope ^{24}Na, ^{27}Mg, ^{41}Ar, ^{51}Cr, ^{56}Mn, ^{72}Ga, ^{99m}Tc, ^{122}Sb, ^{124}Sb, ^{135}Xe und ^{187}W im Tankwasser gemessen werden. Die zur Identifikation der einzelnen radioaktiven Isotope verwendeten γ-Emissionslinien

Radionuklid	Emissionslinie	Ausbeute
Cd-109	88,03	2,550%
Co-57	122,07	3,428%
Ce-139	165,85	3,591%
Hg-203	279,17	2,753%
Sn-113	391,71	2,015%
Sr-85	513,99	1,693%
Cs137	661,62	1,340%
Y-88	898,02	1,026%
Co-60	1173,23	0,811%
Co-60	1332,51	0,738%
Y-88	1836,01	0,584%

Tabelle 5.1.: Ausbeute des GEM-30195-Plus bei der Amersham Referenzlösung QCY46

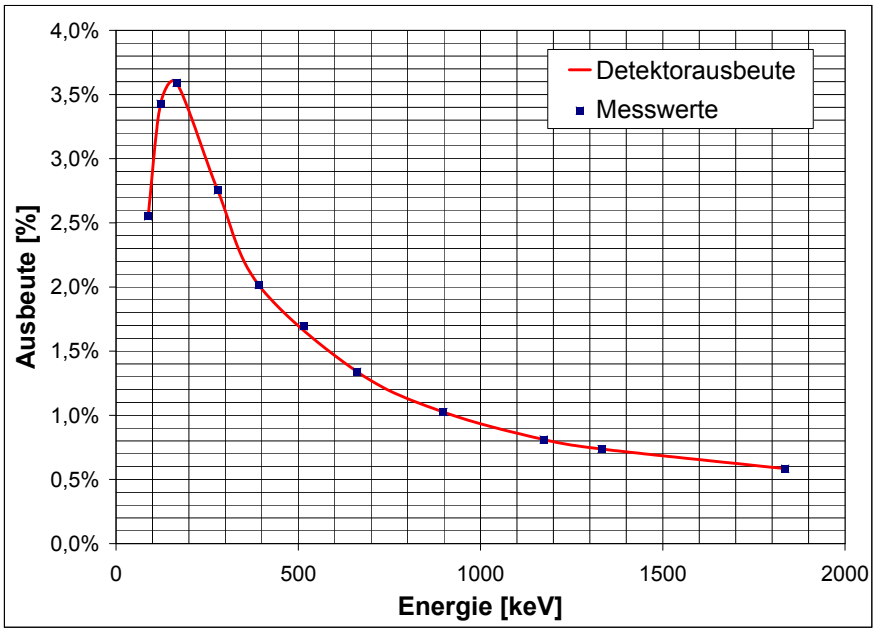


Abbildung 5.1.: Ausbeutekurve des GEM-30195-Plus

sind in Tabelle 5.2 zu finden. Die Diskussion der Messergebnisse der γ-Spektrometrie ist in Kapitel 7 zu finden.

	Emissionslinie [keV]	Aussendewahrscheinlichkeit
Na-24	1368,55	100,00
	2754,1	99,85
Mg-27	843,73	71,40
	1014,44	28,60
Ar-41	1293,6	99,20
Cr-51	320,07	9,83
Mn-56	846,6	99,00
	1811,2	27,20
	2112,6	14,30
Ga-72	833,95	95,55
	2201,6	26,06
Tc-99m	140,51	89,30
Sb-122	564,08	71,00
Sb-124	602,71	98,10
Xe-135	249,79	90,30
W-187	479,57	23,40
	685,74	29,20

Tabelle 5.2.: Zur Identifikation der einzelnen radioaktiven Isotope verwendeten γ-Linien

5.1.1. Ergebnisse der Messserie Tankwasser I

Für die Messserie Tankwasser I wurde eine 11-tägige Betriebspause des TRIGA Mk-II Forschungsreaktors genutzt um Proben des Tankwasser zu entnehmen (siehe Tab. 5.3). Am letzen Betriebstag wurde nach dem Herunterfahren des Reaktors die erste Probe genommen. Während der Betriebspause wurde täglich zur selben Zeit eine Probe genommen. Am zehnten Tag der Betriebspause wurde die Messung des Leerwerts bis zum ersten Betriebstag gestartet. Um die homogene Verteilung auch während des Reaktorstillstandes zu überprüfen, wurde am ersten Betriebstag nach der Pause eine Probe genommen nachdem die Umwälzpumpe mit einer Leistung von etwa 28 m^3/h für eine Stunde gelaufen ist, womit eine gute Durchmischung des Wassers sichergestellt sein sollte. Dann wurde mittels einer an einem Teleskopstab befestigten Flasche eine Probe auf etwa dem Niveau der Mitte des Reaktorkerns genommen und gemessen (siehe Kap. 2).

Neben der Identifizierung der radioaktiven Nuklide im Tankwasser sollte mit dieser Messserie auch das Verhalten ihrer Aktivität im Reaktortank während einer Betriebspause dokumentiert werden (siehe Kap. 2).

	Probennahme	Reaktor Stillstand	Messzeit
Probe N°1	23.12.04	0 h	16,34 h
Probe N°2	24.12.04	16,75 h	23,54 h
Probe N°3	25.12.04	40,75 h	23,24 h
Probe N°4	26.12.04	64,75 h	23,81 h
Probe N°5	27.12.04	88,75 h	23,80 h
Probe N°6	28.12.04	112,75 h	23,40 h
Probe N°7	29.12.04	136,75 h	23,15 h
Probe N°8	30.12.04	160,75 h	23,57 h
Probe N°9	31.12.04	184,75 h	23,51 h
Probe N°10	01.01.05	208,75 h	15,32 h
Probe N°11	04.01.05	280,75 h	22,31 h

Tabelle 5.3.: Proben der Messserie Tankwasser I

Im Rahmen dieser Messserie konnten im Tankwasser die Isotope ^{24}Na, ^{41}Ar, ^{51}Cr, ^{56}Mn, ^{72}Ga, ^{99m}Tc, ^{122}Sb, ^{124}Sb, ^{135}Xe und ^{187}W nachgewiesen werden.

Das Verhalten ihrer Aktivität während den Messungen ist in der Tabelle 5.5 zu finden. Die Rohdaten der Messserie befinden sich im Tabellenanhang A.

	^{24}Na	Fehler	^{41}Ar	Fehler	^{51}Cr	Fehler
Probe N°1	12551,84 Bq	0,07%	3603,82 Bq	0,15%	-	-
Probe N°2	916,06 Bq	0,23%	2,97 Bq	15,60%	2,28 Bq	23,62%
Probe N°3	42,44 Bq	1,08%	-	-	-	-
Probe N°4	6,15 Bq	3,18%	-	-	-	-
Probe N°5	1,52 Bq	9,10%	-	-	-	-
Probe N°6	0,47 Bq	24,88%	-	-	-	-
Probe N°7	0,14 Bq	44,14%	-	-	-	-
Probe N°8	-	-	-	-	-	-
Probe N°9	-	-	-	-	-	-
Probe N°10	-	-	-	-	-	-
Probe N°11	-	-	-	-	-	-
	^{56}Mn	Fehler	^{72}Ga	Fehler	^{99m}Tc	Fehler
Probe N°1	165,45 Bq	1,51%	15,46 Bq	14,11%	106,16 Bq	1,23%
Probe N°2	0,48 Bq	33,68%	1,95 Bq	28,91%	73,22 Bq	0,59%
Probe N°3	-	-	0,40 Bq	9,68%	47,24 Bq	0,58%
Probe N°4	-	-	-	-	36,95 Bq	0,30%
Probe N°5	-	-	-	-	26,64 Bq	0,71%
Probe N°6	-	-	-	-	20,22 Bq	0,89%

Probe N°7	-	-	-	-	15,42 Bq	0,53%
Probe N°8	-	-	-	-	11,50 Bq	1,21%
Probe N°9	-	-	-	-	9,26 Bq	1,42%
Probe N°10	-	-	-	-	10,30 Bq	0,71%
Probe N°11	-	-	0,001 Bq	17,00%	0,011 Bq	25,39%
	^{122}Sb	Fehler	^{124}Sb	Fehler	^{135}Xe	Fehler
Probe N°1	-	-	-	-	1,26 Bq	19,37%
Probe N°2	0,60 Bq	69,50%	-	-	0,22 Bq	9,78%
Probe N°3	0,30 Bq	12,50%	-	-	-	-
Probe N°4	0,21 Bq	54,73%	-	-	-	-
Probe N°5	0,11 Bq	18,76%	-	-	-	-
Probe N°6	-	-	-	-	-	-
Probe N°7	0,31 Bq	27,57%	-	-	-	-
Probe N°8	-	-	0,09 Bq	31,54%	-	-
Probe N°9	-	-	0,11 Bq	26,20%	-	-
Probe N°10	-	-	-	-	-	-
Probe N°11	-	-	-	-	-	-
	^{187}W	Fehler				
Probe N°1	12,17 Bq	10,63%				
Probe N°2	3,91 Bq	7,53%				
Probe N°3	1,26 Bq	31,67%				
Probe N°4	0,59 Bq	53,43%				
Probe N°5	-	-				
Probe N°6	-	-				
Probe N°7	-	-				
Probe N°8	-	-				
Probe N°9	-	-				
Probe N°10	-	-				
Probe N°11	-	-				

Tabelle 5.5.: Aktivitäten der in Tankwasser I gefundenen Isotope

5.1.2. Ergebnisse der Messserie Tankwasser II

Mit der Messserie Tankwasser II sollten neben der Identifizierung von weiteren radioaktiven Nukliden im Tankwasser auch der Aufbau und Zerfall während des Reaktorvollbetriebs dokumentiert werden (siehe Kap. 2). Dazu wurde während einer normalen Reaktorbetriebswoche von Montag bis Freitag, vor Betriebsbeginn und nach Betriebsende, jeweils eine Probe genommen (siehe Tab. 5.6).

	Probennahme	Uhrzeit	Messzeit
Proben N°1	28.02.05	8:56	5,00 h
Proben N°2	28.02.05	15:56	16,34 h
Proben N°3	01.03.05	8:59	6,53 h
Proben N°4	01.03.05	16:01	16,66 h
Proben N°5	02.03.05	08:51	7,16 h
Proben N°6	02.03.05	16:18	16,11 h
Proben N°7	03.03.05	9:40	7,12 h
Proben N°8	03.03.05	15:40	17,15 h
Proben N°9	04.03.05	9:18	6,43 h
Proben N°10	04.03.05	15:56	18,20 h

Tabelle 5.6.: Proben der Messserie Tankwasser II

Es konnten, ebenso wie in Tankwasser I, die Isotope ^{24}Na, ^{27}Mg, ^{41}Ar ^{56}Mn, ^{72}Ga, ^{99m}Tc, ^{122}Sb, ^{135}Xe und ^{187}W gemessen werden.
Im Gegensatz zur Messserie Tankwasser I konnten aber die ^{51}Cr und ^{124}Sb nicht, dafür aber ^{27}Mg nachgewiesen werden.

Das Verhalten ihrer Aktivität während den Messungen ist in der Tabelle 5.8 zu finden. Die Rohdaten der Messserie befinden sich in Tabellenanhang B.

Weitere Informationen zu, vorallem kurzlebigeren, radioaktiven Nukliden im Tankwasser des TRIGA-Mark II Forschungsreaktors der Österreichischen Universitäten während des Vollbetriebs sind in '*Activity of the Primary Cooling Water by a New γ-Spectrometry System*' (Grass et al., 2000) zu finden.

	^{24}Na	Fehler	^{27}Mg	Fehler	^{41}Ar	Fehler
Probe N°1	413,32 Bq	0,74%	-	-	350,61 Bq	0,81%
Probe N°2	11712,68 Bq	0,08%	-	-	2966,26 Bq	0,17%
Probe N°3	1457,92 Bq	0,35%	33,33 Bq	5,52%	1359,82 Bq	0,35%
Probe N°4	12049,90 Bq	0,08%	-	-	3071,98 Bq	0,15%
Probe N°5	330,59 Bq	0,67%	-	-	7,19 Bq	10,05%
Probe N°6	11232,49 Bq	0,08%	-	-	2791,20 Bq	0,18%
Probe N°7	358,34 Bq	0,65%	-	-	7,68 Bq	2,93%
Probe N°8	12112,65 Bq	0,07%	24,17	9,51%	3148,81 Bq	0,16%
Probe N°9	318,10 Bq	0,77%	-	-	9,94 Bq	7,76%
Probe N°10	11253,97 Bq	0,07%	18,80	11,39%	2907,01 Bq	0,16%
	^{56}Mn	Fehler	^{72}Ga	Fehler	^{99m}Tc	Fehler
Probe N°1	14,77 Bq	6,55%	-	-	34,33 Bq	1,90%
Probe N°2	126,88 Bq	1,86%	23,94 Bq	13,06%	47,55 Bq	2,23%

Probe N°3	40,55 Bq	4,68%	6,10 Bq	23,57%	89,97 Bq	1,08%
Probe N°4	138,17 Bq	1,70%	31,88 Bq	1,92%	77,93 Bq	0,37%
Probe N°5	-	-	2,17 Bq	9,81%	101,43 Bq	0,69%
Probe N°6	124,42 Bq	1,83%	28,17 Bq	2,08%	102,31 Bq	1,12%
Probe N°7	-	-	5,34 Bq	13,40%	127,18 Bq	0,56%
Probe N°8	149,42 Bq	1,51%	33,38 Bq	1,79%	116,62 Bq	0,96%
Probe N°9	-	-	6,46 Bq	13,08%	149,49 Bq	0,61%
Probe N°10	130,50 Bq	1,59%	31,84 Bq	1,77%	123,87 Bq	0,88%
	^{122}Sb	Fehler	^{135}Xe	Fehler	^{187}W	Fehler
Probe N°1	-	-	-	-	-	-
Probe N°2	-	-	3,59 Bq	29,46%	9,87 Bq	13,00%
Probe N°3	-	-	2,40 Bq	34,10%	-	-
Probe N°4	-	-	4,69 Bq	7,02%	15,18 Bq	10,15%
Probe N°5	-	-	2,16 Bq	5,36%	4,03 Bq	9,40%
Probe N°6	-	-	-	-	12,28 Bq	37,38%
Probe N°7	-	-	2,32 Bq	17,66%	4,47 Bq	28,27%
Probe N°8	1,94 Bq	76,98%	14,36 Bq	9,99%	12,89 Bq	33,51%
Probe N°9	-	-	2,29 Bq	14,45%	3,01 Bq	12,48%
Probe N°10	1,10 Bq	34,27%	4,21 Bq	6,96%	16,65 Bq	30,80%

Tabelle 5.8.: Aktivitäten der in Tankwasser II gefundenen Isotope

5.2. Messergebnisse der Flüssigszintillation

Wie bereits in Kapitel 4.2.3 erwähnt wurde, dient die Flüssigszintillationspektrometrie im Rahmen dieser Arbeit nur der Bestimmung der Tritium-Aktivität im Tankwassers des TRIGA Mk-II Forschungsreaktors.
Dazu muss zuerst die Quenchkurve bestimmt werden.
Die Diskussion der Messergebnisse ist in Kapitel 7 zu finden.

5.2.1. Quench

Für die Bestimmung der Quenchkurve sind zehn Proben mit 0,1ml Tritium-Standard des ATI und 0,0; 0,2; 0,4; 0,6; 0,8; 1,0; 1,2; 1,4; 1,6 und 1,8 ml Nachfüllwasser zusammen mit einer Probe des IAEA-Standards und zwei Leerwertproben gemessen worden. Die Messzeit pro Probe betrug drei Stunden.

Die Messwerte der Quench-Proben sind in der Tabelle C.1 zu finden. (siehe Kap. 4.2, Standardmessung)

Mit Hilfe dieser Messwerte und der bekannten Aktivität des IAEA Standards ist es nun möglich die Ausbeute der einzelnen Messungen zu bestimmen. (siehe Kap. 4.2.3)

Ausbeute In der IAEA-Standardprobe befanden sich 0,1ml, genauso viel wie in der ersten Quench-Probe. Können deshalb davon ausgehen, dass beide Proben denselben Quench haben.
Die Aktivität des IAEA Standards zum Zeitpunkt der Messung betrug 889,87 Bq/ml, wobei für die Aktivität des IAEA Standards ein Fehler von 1% angenommen wird.
Wird nun die Aktivität des IAEA-Standards mit dem Verhältnis der Messwerte der ersten Quenchprobe und der IAEA-Standardprobe multipliziert, erhält man daraus die theoretische Aktivität aller Quenchproben bezogen auf den IAEA Standard (siehe Tab. 5.9)

Probe(ml)	Aqua dest(ml)	Aktivität[Bq/ml]	Fehler + [%]	Fehler - [%]
0,10	0,00	3262,582	1,50%	1,49%

Tabelle 5.9.: Theoretische Aktivität der Proben mit Tritium-Standard des ATI zur Quenchbestimmung

Um die Ausbeuten der einzelnen Messungen zu erhalten werden die Messwerte der Quenchproben auf diese Aktivität bezogen und man erhält damit die Quenchkurve (siehe Tab. C.2).

Quenchkurve Damit aber auch die Ausbeute für Probenmengen die nicht denen der gemessenen Quenchproben entsprechen bestimmt werden kann, wurden die Messwerte mittels Mathematica 5.0 interpoliert um damit eine mathematische Beschreibung der Quenchkurve zu erhalten (siehe Tab. C.3, siehe Abb. 5.2).
Bei den Werten der Quenchkurve wurden die Fehler gegenüber den gemessenen Werten auf 1% aufgerundet um etwaige Pipettierfehler (0,1%) oder andere Fehler mit zu berücksichtigen. Mit Hilfe der Quenchkurve ist nun eine ziemlich genaue Bestimmung der Tritium-Aktivität des Tankwassers des TRIGA Mk-II Forschungsreaktors möglich. Für die Bestimmung der Tritium-Aktivität der Messserien Tankwasser I und II, wurden Proben zu jeweils 1 ml genommen. Daher ist vorallem der Wert der Fitkurve für 1ml im weiteren Verlauf der Arbeit von großer Bedeutung (siehe Tab. 5.10).

Probe (ml)	Ausbeute	Fehler 2σ
1,00	44,38%	1,00%

Tabelle 5.10.: Wert der Quenchkurve für 1ml Probenmenge

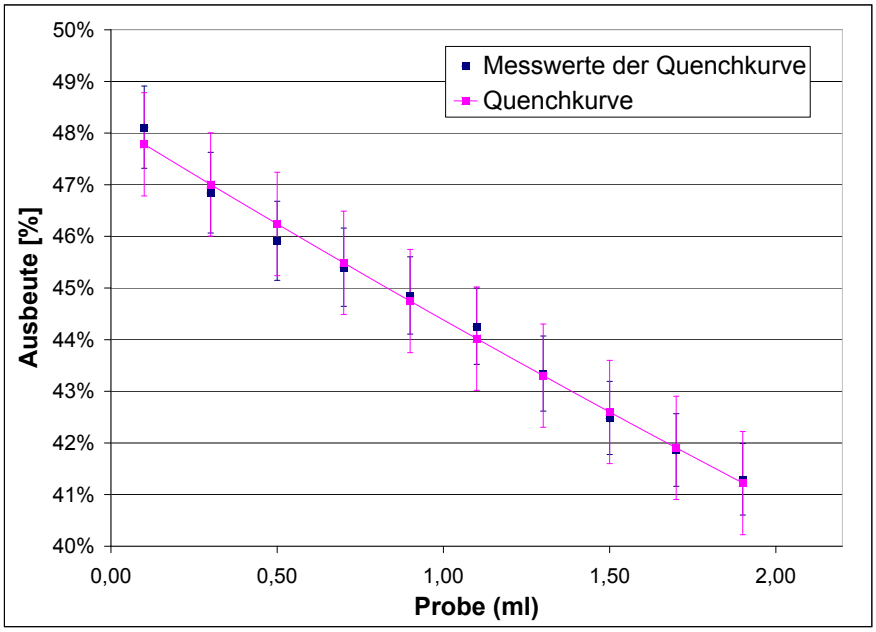


Abbildung 5.2.: Quenchkurve des Tankwassers

5.2.2. Tritium-Aktivität in Tankwasser I

Die Proben der Messserie Tankwasser I (siehe Kap. 2) wurden als Erste gemessenen (siehe Kap. 4.2.3). Zusammen mit den Proben wurden zwei Leerwerte und eine IAEA-Standard Probe mitgemessen. Die Messzeit betrug drei Stunden.
Die Messwerte der Proben von Tankwasser I sind in der Tabelle C.4 zu finden.
Mit Hilfe der Fitkurve (siehe Kap. 5.2.1, Quenchkurve) ist nun die Ausbeute für die gemessene Probenmenge und den verwendeten Cocktail bekannt (siehe Tab. 5.10). Damit kann aus den Messwerten der Proben der Messserie Tankwasser I deren Tritium-Aktivität bestimmt werden.

Aktivität Die Tritium-Aktivität der einzelnen Proben sind in der Tabelle C.5 bzw. der Abbildung 5.3 zu finden. Daraus ist deutlich erkennbar, dass sich die Messwerte, unter Berücksichtigung ihrer Fehler, innerhalb des gleichen Bereiches bewegen.
Daher kann für die Tritium-Aktivität der Messserie Tankwasser I eine Durchschnitts-aktivität der Proben berrechnet werden, mit einem Wert von 9,92 Bq/ml (siehe Tab. 5.11).

5.2.3. Tritium-Aktivität in Tankwasser II

Die Proben (siehe Kap. 4.2.1) genommen von der Messserie Tankwasser II (siehe Kap. Ausgangssituation) wurden nach dennen der Messserie Tankwasser I (siehe Kap. 5.2.2)

Aktivität[Bq/ml]	Fehler 2σ[%]
9,92	4,00%

Tabelle 5.11.: Durchschnitt der Tritium-Aktivität der Proben von Tankwasser I

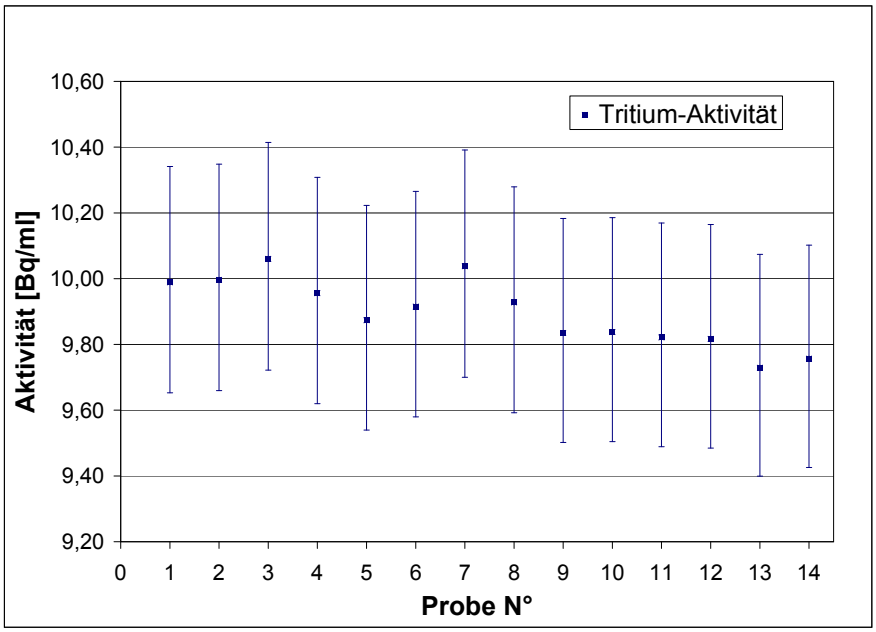


Abbildung 5.3.: Tritium-Aktivität der Proben von Tankwasser I

gemessenen. Es wurden wieder zwei Leerwerte und ein IAEA-Standard mitgemessen. Auch die Messzeit blieb, mit drei Stunden, gleich.
Die Messwerte der Proben von Tankwasser II sind in Tabelle C.6 zu finden.
Mit Hilfe der Fitkurve (siehe Kap. 5.2.1, Qunechkurve) ist nun wieder die Ausbeute für die gemessene Probenmenge und den verwendeten Cocktail bekannt (siehe Tab. 5.10). Daraus wird dann die Aktivität der einzelnen Proben der Messserie Tankwasser II berechnet.

Aktivität Aus den Ergebnissen in Tabelle C.7 und der Grafik 5.4 ist leicht ersichtlich dass innerhalb einer normalen Betriebswoche die Tritium-Aktivität des Tankwassers gleichbleibend ist.
Mit diesen Werten ist wieder eine Bestimmung der Durchschnittsaktivität der Proben der Messserie Tankwasser II einfach, sie beträgt 9,01Bq/ml (siehe Tab. 5.12).

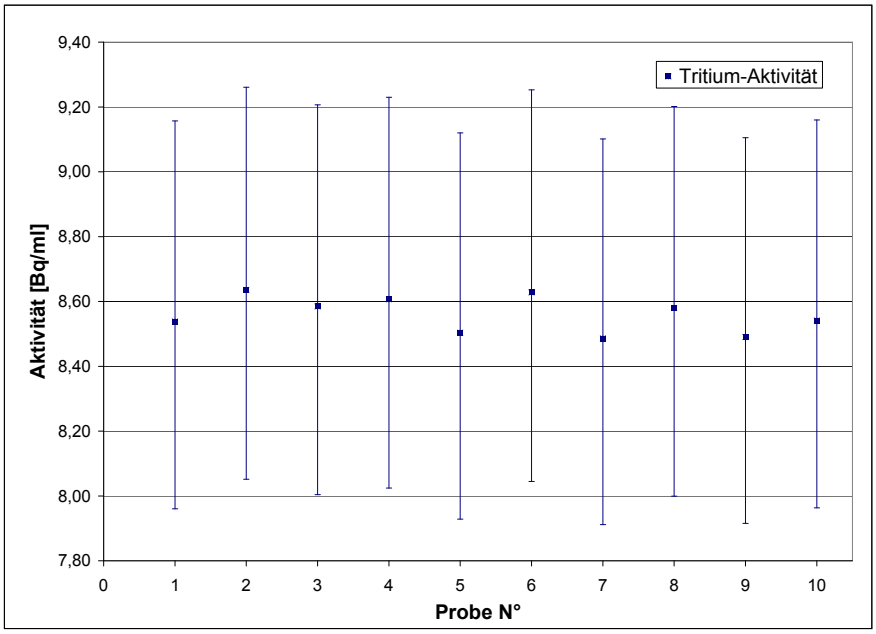


Abbildung 5.4.: Tritium-Aktivität der Proben von Tankwasser II

Aktivität [Bq/ml]	Fehler 2σ
9,01	4,00%

Tabelle 5.12.: Durchschnitt der Tritium-Aktivität der Proben von Tankwasser II

5.2.4. Tritium-Aktivität der letzten Monate

Die Durchschnittsaktivitäten der Messserien Tankwasser I und II (siehe Tab. 5.11 und 5.12 zeigen große Unterschiede. Selbst mehrmalige Wiederholungen der Messungen und wiederholte Überprüfung der Messparameter ergaben immer diesselbe Diskrepanz zwischen den Messungen.

Um zu überprüfen ob es sich dabei um 'normale' Schwankungen handelt, wurde von diversen Proben des Tankwassers, die im Laufe der letzten Monate genommen worden waren, die Tritium-Aktivität erneut gemessen.
Die Messung zeigte allerdings einen kontinuierlichen Abfall der Tritium-Aktivität im Verlauf der letzten 10 Monate.
Das genaue Ergebnis ist aus Tabelle 5.13 und Abbildung 5.5 ersichtlich.

Probe	Aktivität [Bq/ml]	Fehler
Sep.04	10,33	3,96%
Dez.04	9,58	4,06%
März.05	8,77	4,17%
April.05	8,52	4,20%
Juni.05	7,92	4,29%
Juli.05	7,90	4,30%

Tabelle 5.13.: Tritium-Aktivität im Verlauf der letzten Monate

5.3. Messergebnise der ICP-MS und der TXRF

Die Analysen des Tankwassers mittels ICP-MS und TXRF dienten hauptsächlich dazu weitere Elemente im Tankwasser zu finden.
Es sollen damit radioaktive Nuklide gefunden und identifiziert werden, die wegen ihrer geringen Aktivität, ihrer schwachen γ-Linien oder ihrer zu kurzen Halbwertszeit mit Hilfe der γ-Spektroskopie nicht zu finden waren. Die Diskussion der Messergebnisse ist in Kapitel 7 zu finden.

5.3.1. ICP-MS

Die Analyse des Reaktor-Tankwassers mittels ICP-MS wurde dankenswerterweise von Mag. Dr. Peter Spindler vom ARC Seibersdorf durchgeführt.
Das Tankwasser wurde dabei einer Standardmessung unterzogen. Für die Messungen wurde ein ICP-MS der Firma Perkin Elmer des Typs SCIEX ELAN 6100 mit Crossflow-Zerstäuber, Quadrupol-Massenfilter und automatischem Probenwechsler (AS 90)

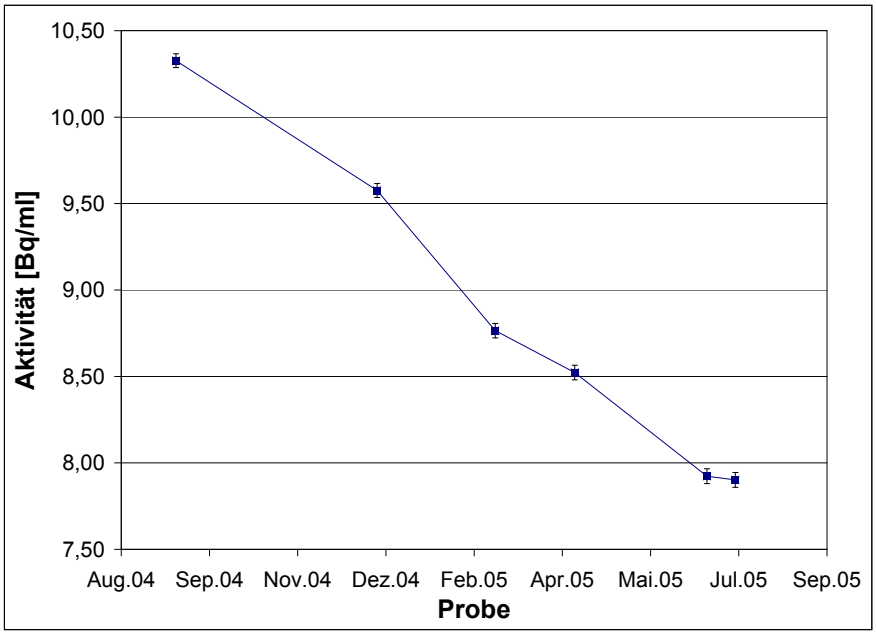


Abbildung 5.5.: Verlauf der Tritium-Aktivität in den letzten Monaten

eingesetzt.
Bei einer Nachweisgrenze von ungefähr 1ppb (µg/l) konnten Na, Cu und Zn im Tankwasser nachgewiesen werden (siehe Tab. D.1, die letzte Stelle ist die Nachweisgrenze). Allerdings waren ihre Konzentrationen im Tankwasser für eine verlässliche Quantifizierung zu gering (siehe Tab. 5.14).

Element	Konzetration [mg/l]
Na	$\leq$ 0,1
Cu	$\leq$ 0,001
Zn	$\leq$ 0,001

Tabelle 5.14.: Mit ICP-MS im Tankwasser gefundene Elemente

5.3.2. TXRF

Die Analyse des Tankwassers mittels TXRF wurde dankenswerterweise von Dipl. Ing. Dr. Peter Kregsamer am Atominstitut der Österreichischen Universitäten durchgeführt. Für die Messungen selbst wurde eine Gerät des Typs Extra II A der Firma Atomika Instruments verwendet.
Dabei wurden im Tankwasser, mit einer Nachweisgrenze von etwa 0,5-1 ppb [µg/l], K,

Ca, Cr, Mn, Fe, Cu, Zn, und Pb gemessen.
Jedoch waren die Konzentrationen der einzelnen Elemente im Tankwasser so gering dass eine genaue Quantifizierung nicht möglich war (siehe Tab. 5.15).

Element	Konzentration [mg/l]
K	$\leq$ 0,05
Ca	$\leq$ 0,2
Cr	$\leq$ 0,001
Mn	$\leq$ 0,001
Fe	$\leq$ 0,002
Cu	$\leq$ 0,001
Zn	$\leq$ 0,002
Pb	$\leq$ 0,0003

Tabelle 5.15.: Mit TXRF im Tankwasser gefundene Elemente

6. Identifizierte Elemente

Weiterführende Informationen zu den unterhalb behandelten Elementen sind bei 'RÖMPP Online' unter 'http://www.roempp.com' und im '*Handbook of Chemistry and Physics*' von Lide D. R. zu finden
Weitere Informationen zu Kernreaktionen und den zugehörigen Wirkungsquerschnitten sind im '*Neutron Activation Tables - Kernchemie in Einzeldarstellungen*' von Erdtmann G. sowie Online im '*Nuclear Data Center*' des Japanese Atomic Energy Research Institute unter 'http://wwwndc.tokai.jaeri.go.jp' und im '*National Nuclear Data Center*' des Brookhaven National Laboratory unter 'http://www.nndc.bnl.gov' zu finden.

6.1. Tritium, ^{3}H

Allgemeines Tritium (^{3}H oder T) ist ein radioaktives Isotop des Wasserstoffs (H). Der Kern besteht aus zwei Neutronen und einem Proton. Die natürliche Isotopenverteilung lautet ^{1}H : 99,985 %, ^{2}H : 0,0145 %, ^{3}H : 10^{-15} %.
Es ist ein niederenergetischer β-Strahler und zerfällt mit einer Halbwertszeit von 12,32 a zum stabilen ^{3}He mit einer maximalen Zerfallsenergie von 18,6 keV und einer mittleren Energie von $5,7$ keV.
Im Jahr 1934 wurde es von Rutherford, Oliphant und Harteck entdeckt, als sie Deuterium mit Deuteronen (Deuterium-Kerne) beschossen haben.
Tritium entsteht in der Natur durch die kosmische Strahlung in den oberen Schichten der Atmosphäre. Künstlich entsteht es bei der Explosion von Kernwaffen und beim Betrieb von Atomkraftwerken.
Am häufigsten kommt Tritium in Wassermolekülen gebunden vor (HTO, DTO, T_2O), es kann allerdings auch in Gasform vorliegen. Das so genannten Tritiumoxid oder überschweres Wasser (T_2O) verhält sich fast genauso wie normales Wasser, sein Siedepunkt liegt bei 101,51 °C, sein Schmelzpunkt bei 4,48 °C und es ist ebenfalls farb- und geruchlos.

Entstehung im Reaktor Tritium entsteht im Reaktor durch Neutroneneinfang von Deuterium (^{2}H) einem weiteren, jedoch nicht-aktiven, Isotop des Wasserstoffs.
Der Wirkungsquerschnitt für diese Reaktion beträgt $\sigma = 52$ mbarn.

$$^2\mathrm{H} + n \rightarrow {}^3\mathrm{H} + \gamma$$

6.2. Natrium, Na

Allgemeines Na ist ein metallisches Element, genauer ein Alkalimetall mit der Ordnungszahl 11. Na gehört zu den anisotopen Elementen, das heißt, es tritt in der Natur nur in Form eines einzigen stabilen Isotops auf. Im Falle von Na ist das ^{23}Na.
In der Antike bezeichneten die Ägypter wahrscheinlich die Soda ihrer Sodaseen und die aus Pflanzen gewonnene Pottasche als 'neter'. Hieraus dürfte sich das römische, schon von Plinius für Soda und Pottasche gebrauchte 'Nitrum', ebenso wie das arabische 'Natrun' herleiten.
Aus diesen ist später das Natron der arabischen Alchemisten geworden, mit dem in Europa bis etwa 1750 die miteinander verwechselten Verbindungen Soda und Pottasche bezeichnet wurden. Die Bezeichnung Niter oder Nitrum für Salpeter ist erst gegen Ende des 16 Jahrhunderts aufgekommen.
Die Verschiedenheit von Soda und Pottasche wurde 1702 von Stahl G. E. vermutet und von Monceau D. 1736 experimentell nachgewiesen.
Marggraf A. S. zeigte 1758, daß man beide Stoffe anhand der Flammenfärbungen unterscheiden kann.
Am 19.11.1807 berichtete Davy H., es sei ihm gelungen, durch Elektrolyse von schwach angefeuchteten Ätzalkalien zwei verschiedene Metalle zu gewinnen, das eine Metall nannte er Sodium (heute die französische und englische Bezeichnung für Natrium), weil es in Soda enthalten ist, das andere Potassium (heute englische und französische Bezeichnung für Kalium), weil man es aus Pottasche gewinnen kann.
Im deutschen Sprachgebiet wird Davys Sodium seit 1811, nach einem Vorschlag von Berzelius, als Natrium bezeichnet, während für Davys Potassium der von Klaproth 1796 eingeführten Ausdruck Kalium (vom arabischen al-qali, Asche, aus Pflanzenasche gewinnbar) übernommen wurde.
Na ist in der Natur ein sehr häufiges Element. Etwa 2,43% der obersten Erdkruste bestehen aus chemisch gebundenem Natrium. Es steht in der Häufigkeitsliste der Elemente an sechster Stelle.
Na tritt in den Gesteinen hauptsächlich in Form von Silicaten (zum Beispiel Natronfeldspat oder Albit) und als Steinsalz (Natriumchlorid) auf, daneben auch als Carbonat, Nitrat (vorallem als Chilesalpeter) und Kryolith, sowie in vielen anderen Mineralen.
Zum Beispiel enthält Meerwasser im Durchschnitt 27 kg Kochsalz, und damit $10,6$ kg Natrium, pro Tonne.
Für Na gibt es mannigfaltige Anwendungen in der Industrie.
Zum Beispiel die Herstellung von Natrium-Legierungen für die Goldwäscherei (Natriumamalgam), in Natrium-Dampflampen, in Kernreaktoren (Schnelle Brüter) als Kühlmittel, als Wärmeüberträger in Kraftwerken, in galvanischen Hochtemperaturzellen usw.
Darüber hinaus werden Na-Verbindungen teilweise in größeren Mengen Lebensmitteln zugesetzt.
Zum Beispiel zum Würzen (Speisesalz), zum Konservieren (Salz in Salzheringen und Sauerkraut, Natriumnitrit bzw. Natriumnitrat in Pökelfleisch), zur Herstellung von Schmelzkäse (Natriumphosphate, Natriumcitrat, Natriumbicarbonat, Natriumsalze der Propion-

säure und Sorbinsäure), als Treibmittel in Backwaren (Natriumhydrogencarbonat, Natriumpyrophosphat), zur Teigsäuerung und zur Mikrobenhemmung (Natriumdiacetat).

Entstehung in Reaktor Das im Tankwasser gemessene radioaktive Isotop des Na ist das ^{24}Na (siehe Kap. 5.1) mit einer Halbwertszeit von 15,03 h. Es entsteht im Reaktor auf zwei Arten :
Der größte Teil wird durch die (n,α)-Reaktion des ^{27}Al erzeugt.
Im Reaktortank findet sich Al in der Reaktortankhülle (besteht aus Al) und den mit Al umhüllten Brennelementen im Reaktorkern (siehe Kap 2).
Der Wirkungsquerschnitt für diese Reaktion beträgt 725 μbarn.

$$^{27}\mathrm{Al} + n \rightarrow {}^{24}\mathrm{Na} + {}^{4}_{2}He$$

Zudem entsteht ^{24}Na durch Neutroneneinfang von im Tankwasser gelösten ^{23}Na (siehe Kap. 5.3.1).
Der Wirkungsquerschnitt für diese Reaktion beträgt 530 mbarn.

$$^{23}\mathrm{Na} + n \rightarrow {}^{24}\mathrm{Na} + \gamma$$

6.3. Magnesium, Mg

Allgemeines Mg ist ein metallisches Element, genauer gesagt ein Erdalkalimetall, mit der Ordnungszahl 12. Die natürliche Isotopenverteilung lautet : ^{24}Mg : 78,70%, ^{25}Mg 10,13% und ^{26}Mg 11,17%. Etwa 1,9% der obersten Erdkruste bestehen aus Magnesium. In der Häufigkeitsliste der Elemente steht es an achter Stelle. Infolge seines unedlen Charakters ist Magnesium in der Natur nur in Form von Verbindungen anzutreffen.
Am häufigsten ist es in Silicaten verbreitet, zu den wichtigsten Mineralen dieser Art gehören Serpentin, Olivin, Pyroxen, Sepiolith (Meerschaum) und Talk. Aber auch im Magnesit, Dolomit, Carnallit, Kieserit, Kainit, Bischofit und in Bitterwässern findet sich Mg.
Auch in Lebensmittel ist Mg zu finden, wobei es in pflanzlichen Produkten häufiger vorkommt als in tierischen (in grünem Gemüsen ist Mg Bestandteil des Chlorophylls). Aber auch im Trink- und Mineralwasser ist Mg vorhanden.
Während Mg-Verbindungen schon lange bekannt waren und verwendet wurden (als Heilmittel), wurde erst 1755 von Black J. auf Unterschiede zwischen Ca- und Mg-Verbindungen (Kalkerde und Bittererde) hingewiesen. Metallisches Mg ist erstmals 1808 von Sir Davy H. durch Schmelzflußelektrolyse isoliert und 1831 von Bussy und von Liebig J. durch Reduktion von Magnesiumchlorid rein gewonnen worden.
Die industrielle Produktion wurde 1866 in Deutschland aufgenommen. Hauptsächlich wird Mg für Legierungen verwendet, besonders mit Al. Zum Korrosionsschutz des sehr

empfindlichen Mg und dessen Legierungen werden starke Lackierungen, elektrolytische sowie chemische Oxidation angewandt.
Große Bedeutung hat der Mg-Einsatz als Entschwefelungs- und Reduktionsmittel in der Fe- u. Stahlindustrie erlangt. Magnesium dient auch als Reduktionsmittel bei der Herstellung von Ti, U, Zr, Hf und Be.
In der Pyrotechnik verwendet man Mg in Leuchtsätzen und in Mg-Fackeln.

Entstehung im Reaktor Im Tankwasser wurde das Isotop ^{27}Mg, mit einer Halbwertszeit von 9,462 min, gemessen. Es entsteht aus der (n,p)-Reaktion des ^{27}Al. Wie schon vorher erwähnt bestehen die Reaktortankhülle und einige Brennelementhüllen aus Al.
Der Wirkungsquerschnitt dieser Reaktion beträgt 4 mbarn.

$$^{27}\mathrm{A}l + n \rightarrow {}^{27}\mathrm{M}g + p$$

6.4. Argon, Ar

Allgemeines Ar ist ein Edelgas mit der Ordnungszahl 18. Seine natürliche Isotopenverteilung lautet ^{36}Ar : 0,337%, ^{38}Ar : 0,063%, ^{40}Ar : 99,60%.
Ar wurde 1894 von den Engländern Ramsay und Lord Rayleigh als Bestandteil der Erdatmosphäre entdeckt. Sie bemerkten den Dichteunterschied zwischen dem für reinen N_2 gehaltenen, nach der Entfernung des O_2 aus der Luft, verbliebenen Restgas und dem durch Zersetzung von Ammoniumnitrit erhaltenen chemisch reinen N_2. Allerdings war die Existenz von Ar und der anderen, in der Luft auftretenden Edelgasen, schon mehr als ein Jahundert vorher von Cavendish vermutet worden. Diesem verblieb stets ein reaktionsträger Rest, wenn er Bestandteile der Luft in chemischer Bindung (O_2 in Wasser, N_2 mit O_2 in Salpetersäure) überführte.
Ar ist das bei weitem häufigste Edelgas. Die Luft enthält durchschnittlich 0,93 Vol.% Ar. Der Mensch atmet täglich zirka 20 Liter Ar ein und aus.
Auch in Quellwasser ist gelöstes Ar zu finden. Besonders reich an Ar sind Gase von Quellen, die aus größerer Tiefe stammen.
In der Technik gewinnt man Ar aus flüssiger Luft. Wegen seiner geringen Wärmeleitfähigkeit und chemischen Trägheit wird Ar in Mischung mit Stickstoff zur Füllung von Glühlampen, im Gemisch mit anderen Edelgasen zur Füllung von Entladungsröhren, für bestimmte Farbeffekte und in Geiger-Zählrohren, häufig im Gemisch mit Methan, verwendet.
Zudem findet es Anwendung als Schutzgas beim Elektroschweißen von Stahl, Cu, Al, Mg und bei der Ti-Herstellung. Ar wird auch als Treib- und Schutzgas bei der Verpackung von Lebensmitteln eingesetzt und als Inertgas bei der Herstellung von Most und Wein. Radioaktives ^{41}Ar wird zur Feststellung von Undichtigkeiten in Gasleitungen und zur Untersuchung der Leistungsfähigkeit von Belüftungsanlagen eingesetzt.

Entstehung im Reaktor Das bei den Messungen gefundene radioaktive ^{41}Ar, mit einer Halbwertszeit von 109,8 min, entsteht durch Neutroneneinfang des ^{40}Ar. Das in der Luft enthaltene Ar löst sich im Tankwasser.
Der Wirkungsquerschnitt für diese Reaktion beträgt 620 mbarn.

$$^{40}\mathrm{A}r + n \rightarrow {}^{41}\mathrm{A}r + \gamma$$

6.5. Chrom, Cr

Allgemeines Cr ist ein metallisches Element mit der Ordnungszahl 24. Seine natürliche Isotopenverteilung lautet : ^{50}Cr : 4,35%, ^{52}Cr : 83,79%, ^{53} : 9,5% und ^{54}Cr : 2,365%.
In reinem Zustand ist es silberglänzend, zäh, dehn- und schmiedbar. Bei Verunreinigung mit H oder O_2 ist es hart und spröde.
Bei gewöhnlicher Temperaturen ist Cr chemisch außerordentlich widerstandsfähig, es oxidiert auch an feuchter Luft kaum und verbrennt erst im Sauerstoff-Gebläse.
Vauquelin entdeckte Cr 1797 in sibirischen Bleierzen. Der Name stammt vom griechischen 'chroma' = Farbe, weil es viele, farbenprächtige Cr-Verbindungen gibt.
Cr ist in der Natur fast nur in Form von Verbindungen zu finden, lediglich in Meteoriten gelang der Nachweis von Spuren von metallischem Cr.
Der Cr-Anteil der obersten Erdkruste wird auf 0,020% geschätzt, womit Cr zu den häufigeren Elementen gehört. Das wichtigste Chromerz ist Chromit.
In unbelasteten Böden werden durchschnittliche Cr-Gehalte von 20 mg/kg bis 1800 mg/kg gefunden. Dabei liegt es fast ausschließlich in dreiwertiger schwerlöslicher (Chrom-Oxidhydrate) bzw. adsorbierter Form vor.
Im von Menschen unbeeinflußten Süßwasser liegt der durchschnittliche Cr-Gehalt etwa bei $1 - 10$ µg/l. Im Meerwasser hingegen liegen die Cr-Gehalte unter 1 µg/l.
In der Luft findet sich Cr an Staub- und Aerosolpartikel gebunden, mit Werten im Bereich von einigen ng/m^3 Die Quellen hierfür sind zu 1/3 natürlichen (Kontinentalstaub, Vulkanemissionen) und zu 2/3 anthropogenen Ursprungs (Verbrennung fossiler Energieträger, industrielle Aktivität). Alles emittierte Cr findet sich aber schließlich im Boden bzw. in Gewässersedimenten wieder.
Es ist auch in allen Lebensmitteln zu finden und ist zudem in seiner dreiwertigen Form ein essentielles Spurenelement.
In der Industrie findet Cr Verwendung als Katalysator der Ammoniak-Synthese, zur Herstellung von Cr-Stählen, nichtrostenden Stählen, Cr-Legierungen, zur Inchromierung und zum galvanischen Verchromen.
Cr-Salze sind nützliche Reduktions- und Oxidationsmittel in der Chemie und werden auch zur Herstellung von Magnetbändern eingesetzt.
Hingegen werden organische Komplexe des Cr als Entwicklerfarbstoffe in der Farbphotographie verwendet.

Entstehung im Reaktor Das im Tankwasser gemessene radioaktive Isotop des Cr ist das ^{51}Cr mit einer Halbwertszeit von 27,697 d. Es entsteht durch Neutroneneinfang von ^{50}Cr. Das Cr im Tankwasser (siehe Kap. 5.3.2) stammt aus dem Cr von im Reaktor verwendeten Stahlbauteilen.
Der Wirkungsquerschnitt für diese Reaktion beträgt 15,8 barn.

$$^{50}\mathrm{C}r + n \rightarrow {}^{51}\mathrm{C}r + \gamma$$

6.6. Mangan, Mn

Allgemeines Mn ist ein metallisches Element, genauer gesagt ein Schwermetall, mit der Ordnungszahl 25. Mn gehört zu den anisotopen Elementen und tritt in der Natur nur in Form des stabilen Isotops ^{55}Mn auf.
Der schon von Plinius beschriebene Braunstein wurde bis zur Mitte des 18 Jahrhunderts für eine Art Eisenerz gehalten. Erst 1774 gewann Gahn aus einem stark erhitzten Kohle-Braunstein-Gemisch etwas metallisches Mangan, das er Manganesium nannte. Später kürzte man Manganesium zu Mangan ab, um eine Verwechslung mit dem inzwischen entdeckten Magnesium zu vermeiden.
Mn ist das zweithäufigste Schwermetall und steht damit in der Häufigkeitsliste der Elemente der obersten Erdkruste an zwölfter Stelle. Auch auf der Sonne und in Meteoriten wurde Mangan nachgewiesen.
Es ist ein unedles Metall und kommt in der Natur nur in Verbindungen vor. Als Spurenelement findet man es in fast allen Böden, sowie, häufig zusammen mit Eisen, im Grundwasser (metallischer Geschmack).
In Lebensmitteln kommt Mn hauptsächlich in pflanzlichen Lebensmitteln, wie Nüssen, Vollkornprodukten und schwarzem Tee enthalten.
Mn ist ein essentielles Spurenelement. Es ist in der Leber, im Pankreas, den Nieren und insbesondere im Knochen zu finden. In den Zellen ist es in Mitochondrien, Lysosomen und im Zellkern angereichert.
In der Industrie wird Mn zur Desoxydierung und Entschwefelung von Stahl-, Fe-, Ni- und Cu-Schmelzen eingesetzt. Weitere Verwendung findet Mn als Zusatz zu unlegierten Werkzeugstählen, zur Erhöhung der Korrosionsbeständigkeit von Al- und Mg-Legierung und zur Verbesserung der Festigkeit in Bronzen.
Mn-Verbindungen finden ebenfalls vielseitige Anwendungen, zum Beispiel zur Herstellung von Pigmenten, im Korrosionsschutz zum Phosphatieren, als Metallseifen, als Sikkative in der Lackindustrie, in der Hochfrequenz- und Datenverarbeitungstechnik, in Trockenbatterien, als Zusatz zu Futter- und Düngemitteln, bei der Trinkwasseraufbereitung, der Abwasser- und Abluftreinigung, in der analytischen Chemie und in der Medizin.

Entstehung im Reaktor Das im Tankwasser gemessene radioaktive Isotop des Mn ist das ^{56}Mn mit einer Halbwertszeit von 2,576 h. Es entsteht durch Neutroneneinfang von im Tankwasser gelösten ^{55}Mn (siehe Kap. 5.3.2). Das Mn im Tankwasser stammt aus dem Mn von im Reaktor verwendeten Stahlbauteilen.
Der Wirkungsquerschnitt für diese Reaktion beträgt 13,2 barn.

$$^{55}\mathrm{M}n + n \rightarrow {}^{56}\mathrm{M}n + \gamma$$

6.7. Gallium, Ga

Allgemeines Ga hat die Ordnungszahl 31, und ist ein glänzend weißes, weiches, dehnbares Metall. Die natürliches Isotopenverteilung des Ga lautet : ^{69}Ga : 60,1 % und ^{71}Ga : 39,9 %. Es zeigt in seinen Verbindungen große Ähnlichkeit mit den entsprechenden Al-Verbindungen.
Nach der Aufstellung seines Periodensystems prophezeite Mendelejeff 1871, es müsse ein Al-ähnliches Element (Eka-Aluminium) mit einer Massenzahl von annähernden 68, der Dichte 5,9 und einem auffallend niedrigen Schmelzpunkt geben. Das prophezeite Element wurde vier Jahre später von Lecoq de Boisbaudran in pyrenäischen Zinkblenden entdeckt und nach seinem Vaterland als Gallium bezeichnet. Er hatte seine Existenz allerdings bereits 1863 aufgrund spektroskopischer Untersuchungen an B-Al-Verbindungen vermutet.
Etwa 0,0015% der obersten Erdkruste besteht aus Ga. Da es einen ähnlichen Ionenradius wie das verwandte Al besitzt, wird es leicht in die Kristallgitter von Al-Verbindungen (Bauxit, Tonerden usw.) eingebaut.
Der weitaus größte Teil der Ga-Produktion dient zur Herstellung von Ga-Verbindungen des Typs GaAs, die als Halbleiter Bedeutung erlangt haben. Mit Thermometern aus schwer schmelzbarem Quarzglas und Ga-Füllung lassen sich Temperaturen zwischen -15 °C und 1200 °C messen. Weitere Anwendungen findet Ga als ungiftige Sperrflüssigkeit bei höheren Temperaturen, als Wärmeaustauscher in Kernreaktoren, zu Lampenfüllungen anstelle von Quecksilber, in der Spektroskopie usw.

Entstehung im Reaktor Das im Tankwasser gemessene radioaktive Isotop des Ga ist das ^{72}Ga mit einer Halbwertszeit von 14,1 h. Es entsteht durch Neutroneneinfang von ^{71}Ga. Das Ga befindet sich in der Al-Ummantelung des Reaktortanks. Denn mit der gleichen Ladung und einem ähnlichen Ionenradius wie das Al-Ion tarnt sich das Ga im Al (Mason and Moore, 1985).
Der Wirkungsquerschnitt für diese Reaktion beträgt 4,61 barn.

$$^{71}\mathrm{G}a + n \rightarrow {}^{72}\mathrm{G}a + \gamma$$

6.8. Technetium, Tc

Allgemeines Tc ist ein Schwermetall und hat die Ordnungszahl 43. Es verfügt über kein stabiles Isotop und ist daher nur künstlich herzustellen.
Das von Mendelejew vorhergesagte Element mit der Ordnungszahl 43 glaubte man irrtümlich 1877 als Davyum, 1896 als Lucium und 1908 als Nipponium entdeckt zu haben. Noddack W., Tacke I. und Berg O. fanden 1925 in Fraktionen von aufgearbeiteten uranhaltigen Erzen röntgenspektroskopisch Hinweise auf ein neues Element. Sie interpretierten dies als Nachweis des von ihnen gesuchten Eka-Mangans.
Aufgrund neuerer kritischer Untersuchungen könnte es sich damals um ein Isotop aus der noch nicht bekannten Kernspaltung gehandelt haben.
Erst 1937 wurde Tc von Perrier und Segrè künstlich erzeugt, als sie im Zyklotron von Berkeley Molybdän-Metall mit energiereichen Deuteronen beschossen haben.
Der Name Masurium (nach der Landschaft Masurien, der Heimat Tackes I.) wurde 1949 zugunsten von Technetium (griechisch technetos = künstlich) aufgegeben, da die spektroskopisch glaubhaft gemachte Existenz dieses Elementes in der Natur nicht durch präparative Reinherstellung bewiesen worden war.
In der Erdkruste entsteht Tc in winzigen Mengen als radioaktives Spaltprodukt beim Zerfall von ^{238}U, was in der Pechblende von Katanga 1961 erstmals nachgewiesen wurde. Tc bildet sich ferner bei der Einwirkung von Neutronen (als Sekundärteilchen der kosmischen Strahlung) auf Molybdän-Minerale, und in einigen Sternspektren sind ebenfalls Tc-Linien zu finden.
Tc wird hauptsächlich bei Radiopharmazeutika (^{99m}Tc) eingesetzt. Es ist ein bemerkenswerter Katalysator für zahlreiche chemische Prozesse, zum Beispiel für die Alkoholdehydrierung. Auch für die Herstellung von Hochtemperatur-Thermoelementen und in der Supraleitfähigkeitstechnik ist es von Interesse.

Entstehung im Reaktor Das im Tankwasser gemessene radioaktive Isotop des Tc ist das ^{99m}Tc mit einer Halbwertszeit von 6,019 h. Es entsteht durch den β^--Zerfall (siehe Kap. 3.1, β-Zerfall) von ^{99}Mo mit einer Halbwertszeit von 66,194 h. Das ^{99}Mo seinerseits entsteht aus dem Neutroneneinfang des stabilen ^{98}Mo. Der Wirkungsquerschnitt für diese Reaktion beträgt 131 mbarn.
Die Quelle des Mo konnte nicht genau eruiert werden, denn nach Herstellerinformationen ist Mo in den Reaktorbauteilen nicht enthalten. Allerdings ist Mo in den Bauteilen des Wärmetauschers zu finden.
Das Mo im Wäremtauscher könnte in das, durch den Wärmetauscher fliessende, Tankwasser gelangen und damit in den Reaktortank, wo es dann dem Neutronenfluss des Reaktors ausgesetzt ist.
Jedoch steht bis zum Zeitpunkt des Endes dieser Arbeit eine Bestätigung dieser Theorie aus.

$$^{98}\mathrm{M}o + n \rightarrow {}^{99}\mathrm{M}o + \gamma \rightarrow {}^{99\mathrm{m}}\mathrm{T}c$$

6.9. Antimon, Sb

Allgemeines Sb ist ein zu den Halbmetallen gehörendes Element mit der Ordnungszahl 51. Seine natürliches Isotopenverteilung lautet : ^{121}Sb : 57,3% und ^{123}Sb : 42,7%.
Das stabile, sogenannte graue, Sb ist ein silberweiß glänzendes, sehr sprödes, leicht pulverisierbares Metall.
Metallisches Sb war schon früh den Chinesen und Babyloniern bekannt. Im Mittelalter wurde Sb besonders zur Zeit des Paracelsus als Mittel gegen alle möglichen Gebrechen gepriesen. In dem berühmten Buch 'Triumphwagen des Antimonii' von Johann Tholde (1604) findet sich bereits eine Beschreibung der Sb-Herstellung und Umschmelzung des Sulfids mit Fe und Angaben über seine Verwendung in Glockenlegierungen und Schriftmetall. Der Ursprung des Namens 'Antimon' ist unklar, möglicherweise kommt er aus dem Arabischen. Das Symbol ist vom lateinischen 'stibium' abgeleitet, womit früher das Element, jedoch in der Regel seine sulfidischen Erze bezeichnet wurden. Ungefähr 10^{-4} Gew.% der obersten Erdkruste bestehen aus Sb. Es entspricht von der Häufigkeit her eher den Elementen in der Nähe von Eu und Tb. Damit ist es seltener als manche Seltenerden-Metalle, aber häufiger als die Edelmetalle.
Erstarrungsgesteine und Sandsteine enthalten durchschnittlich 1 g Sb je Tonne, Meteoriten etwas mehr. Die wichtigsten Sb-Mineralien sind Grauspießglanz (Antimonit), Weißspießglanz (Antimonblüte, Valentinit), Senarmontit, Antimonblende (Kermesit, Rotspießglanz). Weitere Sb-haltige Minerale sind Rotgültigerze, Wolfsbergit, Zinkenit, Livingstonit, Jamesonit.
Metallisches Sb ist so spröde, dass man es weder hämmern noch walzen, ziehen noch prägen kann. Es kommt daher nur in geringen Mengen in reinem Zustand, sondern überwiegend als Legierungsbestandteil (Pb- und Sn-Legierungen) oder in Form von Verbindungen zur Anwendung.

Entstehung im Reaktor Wie in Kapitel 2 bereits erwähnt, befindet sich im TRIGA Mk-II Forschungsreaktor eine Sb-Be-Startquelle. Diese Quelle ist die Ursache für die im Tankwasser gemessenen Aktivitäten von ^{122}Sb, Halbwertszeit 64,608 h, und ^{124}Sb, Halbwertszeit 60,197 d. Sie befindet sich in einer brennelementähnlichen Kapsel im Reaktorkern, die durch ein Gewinde mit einer Kunststoffeinlage abgesichtet ist.
Die gemessenen Aktivitäten entstehen durch den Neutroneneinfang von ^{121}Sb respektive von ^{123}Sb. Der Wirkungsquerschnitt für den Neutroneneinfang von ^{121}Sb beträgt 6,33 barn, für ^{123}Sb beträgt er 4,08 barn.

$$^{121}\mathrm{S}b + n \rightarrow {}^{122}\mathrm{S}b + \gamma$$

$$^{123}\mathrm{S}b + n \rightarrow {}^{124}\mathrm{S}b + \gamma$$

6.10. Xenon, Xe

Allgemeines Xe ist ein Edelgas mit der Ordnungszahl 54. Die natürliches Isotopenverteilung von Xe lautet : ^{124}Xe : 0,096%, ^{126}Xe : 0,09%, ^{128}Xe : 1,919%, ^{129}Xe : 26,4%, ^{130}Xe : 4,08%, ^{131}Xe : 21,20%, ^{132}Xe : 26,89%, ^{134}Xe : 10,44% und ^{136}Xe : 8,87%.
Es ist ein schweres (ca. 5mal schwerer als Luft), farb-, geruch- u. geschmackloses Gas und ist in Wasser schwer löslich.
Xe wurde von Ramsay im Jahre 1898 bei der genaueren Untersuchung des aus Luft gewonnenen Rohargons entdeckt und nach dem griechischen 'xenos' für Gast, Fremder bzw. fremd benannt.
Xe gehört zu den seltensten Elementen der Erde, sein volumsmäßige Anteil an der Luft ist, verglichen mit dem des Argons (0,93 Vol.%), mit nur 86 ppb sehr klein. Allerdings enthält ein normaler Wohnraum mit 50m^3 in der Atemluft immer noch 4 ml Xenon.
In Kernreaktoren fallen Xe-Isotope zusammen mit Sr-Isotopen als Spaltprodukte von ^{235}U an.
Es gibt mannigfaltige Einsatzmöglichkeiten für Xe, problematisch ist jedoch sein verhältnismäßig hoher Preis.
So eignet sich ein Gemisch aus 80% Xe und 20% O_2 gut als Narkotikum bei Operationen. Auch Glühbirnen mit Kr-Xe-Füllung haben gegenüber Lampen mit Ar-Füllung einen besseren Wirkungsgrad.
Xe dient heute als Füllgas in Thyratrons und in Bauteilen für Radaranlagen. Es wird auch in sogenannten Xe-Hochdrucklampen eingesetzt, die in der Photochemie, der UV-Spektroskopie und zur Beleuchtung großer Flächen verwendet werden.
Zudem findet das radioaktive Isotop ^{133}Xe in der Nuklearmedizin Anwendung als Tracer.

Entstehung im Reaktor Wie schon oben erwähnt, entsteht Xe im Kernbrennstoff als Spaltprodukt von ^{235}U. Im Reaktorkern wirkt vorallem ^{135}Xe als sogenanntes 'Reaktorgift'. Durch seinen riesigen Neutroneneinfangswirkungsquerschnitt ($\sigma = 2,56 \cdot 10^6$ barn) fängt es Neutronen ein, die dann dem Reaktor fehlen um seine Kettenreaktion aufrecht zu erhalten. Erst wenn alles Xe 'verbrannt' ist, kann der Reaktor wieder normal arbeiten.
Das nun im Tankwasser gemessene ^{135}Xe, mit einer Halbwertszeit von 9,083h, entsteht durch die Spaltung des ^{235}U in zum Beispiel ^{135}Xe und ^{98}Sr.

$$^{235}\mathrm{U} + n \rightarrow {}^{135}\mathrm{X}e + {}^{98}\mathrm{S}r + 3n$$

6.11. Wolfram, W

Allgemeines Bei W handelt es sich um ein metallisches Element mit der Ordnungszahl 74. Die natürliche Isotopenverteilung des W lautet : ^{180}W : 0,13%, ^{182}W : 26,3%, ^{183}W : 14,28%, ^{184}W : 30,67% und ^{186}W : 28,6%.

Die Bergleute des sächsischen Erzgebirges beobachteten schon im ausgehenden Mittelalter, daß W-Erze die Reduktion des Zinnsteins (Kassiterit) stören und die Verschlackung begünstigen. Sie '*reißen das Zinn fort und fressen es auf wie der Wolf das Schaf*' heißt es in der bilderreichen Sprache des Mittelalters. Wahrscheinlich hatte der Ausdruck 'Wolfram' in diesem Zusammenhang vor einigen Jahrunderten die Bedeutung 'Wolfsdreck'.
Im Jahre 1758 entdeckte und beschrieb Cronstedt ein schweres Mineral, dem er den schwedischen Namen Tungsten (Schwerstein) gab. Er fand, daß dieses Mineral ein neues, unentdecktes Element enthalten müsse.
Doch erst Scheele gelang es 1781, daraus ein Oxid zu isolieren, das Wolframtrioxid. Unabhängig davon hatten zwei spanischen Chemiker, die Brüder Elhuyar de Suvisa, 1783 ein Mineral (Wolframit) zu W-Metall reduziert. Berzelius gab dem neuen Metall den Namen Wolframium.
Im deutschen Sprachraum und Skandinavien hat sich die Bezeichnung Wolfram allgemein durchgesetzt. In anderen Ländern ist dagegen der Cronstedtsche Name Tungsten üblich, der nach den IUPAC-Regeln der 90er-Jahre in der englischen Fassung weiterhin bevorzugt bleibt.
Etwa 1,5 ppm der obersten Erdkruste besteht aus W. Damit steht es in der Häufigkeit der Elemente, zwischen Arsen und Molybdän, an Stelle 37. In der Natur findet man W meist in Form von Wolframaten. Die wichtigsten W-Mineralien sind Wolframit, Scheelit, Scheelbleierz (Stolzit) und Wolframocker (Tungstit).
Ein Großteil der W-Produktion wird in W-Metall oder W-Legierungen verwendet. In der Beleuchtungs-Industrie ist W in fast allen elektrischen Glühlampen als Glühdraht zu finden.
Außerdem verwendet man W in Antikathoden von Röntgenröhren, in Thermoelementen, für Elektroden beim WIG-Schweißen (W-Inert-Gas), als Heizleiter in Hochtemperatur-Öfen, Raketendüsen und Hitzeschilde in der Raumfahrt, in hochwarmfesten Superlegierungen, Schnellarbeitsstählen und Sintermetallen.
W läßt sich mit Fe, Co, Ni und Mo weitgehend, mit Pb, Bi, Zn und Sb wenigstens teilweise legieren. Dabei überträgt es seine Härte und Säurebeständigkeit auf die Legierungen.
Große technische Bedeutung haben auch die äußerst harten und hitzebeständigen Hartmetalle, die aus Wolframcarbid mit einem metallischen Bindemittel bestehen. Sie werden zur Erzeugung von Werkzeugen zur spanabhebenden Bearbeitung verwendet.
Metallisches Wolfram hingegen wird zur Herstellung von Schwungmassen, Trimmgewichten, Strahlenschutzeinrichtungen und Wuchtgeschossen genutzt.
In Form von Wolframaten und Wolframoxid dient W zur Herstellung von Katalysatoren. Wegen seines niedrigen Ausdehnungskoeffizienten eignet sich W zur Beschichtung von Glas und von Halbleitern. Aber auch Kernbrennstoffe werden zu verschiedenen Zwecken (Erhöhung der Abriebfestigkeit, Korrosions- und Temperaturbeständigkeit) mit W beschichtet.

Entstehtung im Reaktor Durch die, wie oben beschrieben, vielfältigen Anwendungsmöglichkeiten des W ist es in einigen Reaktoreinbauten im TRIGA Mk-II zu finden.

Das im Tankwasser gemessene Isotop ^{187}W, mit einer Halbwertszeits von 23,9 h, entsteht durch den Neutroneneinfang des ^{186}W. Der Wirkungsquerschnitt für diese Reaktion beträgt 38,7 barn.

$$^{186}\mathrm{W} + n \rightarrow {}^{187}\mathrm{W} + \gamma$$

7. Diskussion der Messergebnisse

Diskussion der Messergebnisse der γ-Spektrometrie Im Rahmen dieser Arbeit konnten mit Hilfe der γ-Spektrometrie die Isotope ^{24}Na, ^{27}Mg, ^{41}Ar, ^{56}Mn, ^{51}Cr, ^{72}Ga, ^{99m}Tc, ^{122}Sb, ^{124}Sb, ^{135}Xe und ^{187}W im Tankwasser des TRIGA Mk-II Forschungsreaktors nachgewiesen werden.

Mit der Messserie Tankwasser I sollte vorallem das Abklingverhalten der radioaktiven Nuklide im Tankwasser genauer betrachtet werden. Mit Ausnahme von ^{27}Mg, wegen seiner zu kurzen Halbwertszeit, konnten alle im Tankwasser gefundenen Nuklide im Rahmen von Tankwasser I betrachtet werden.
Wie aus der Tabelle 5.5 und der Abb. 7.1 ersichtlich ist, klingen alle Nuklide mit nennwerter Aktivität innerhalb relativer kurzer Zeit ab. Die einzige Ausnahme stellt ^{99m}Tc dar.

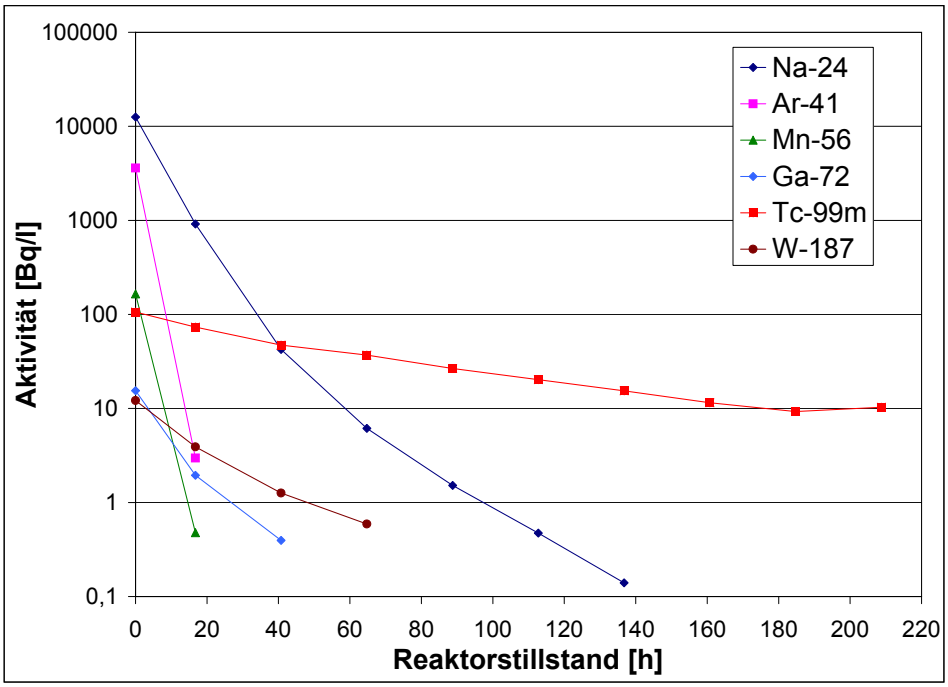


Abbildung 7.1.: Vergleich des Abklingverhaltens von ^{24}Na, ^{41}Ar, ^{56}Mn, ^{72}Ga, ^{99m}Tc und ^{187}W im Tankwasser des TRIGA Mk-II Forschungsreaktors

Obwohl Tc eine kürzere Halbwertszeit und eine viel geringere Anfangsaktivität als zum Beispiel ^{24}Na hat, ist es viel länger messbar und weist nach wenigen Tagen sogar eine höhere Aktivität auf. Der Grund hierfür ist der Ionentauscher.

Bis auf ^{41}Ar und ^{99m}Tc, werden die Ionen aller im Tankwasser gefunden Nuklide durch den Ionentauscher beständig herausgefiltert, was zu einer viel schnelleren Reduktion ihrer Aktivität führt, als es bei einer Abnahme durch radioaktiven Zerfall der Fall wäre. So wird auch zum Beispiel ^{24}Na, als einwertig positives Ion, vom Ionentauscher aus dem Tankwasser gefiltert, wodurch seine Aktivität reduziert weiter wird. (siehe Abb. 7.2).

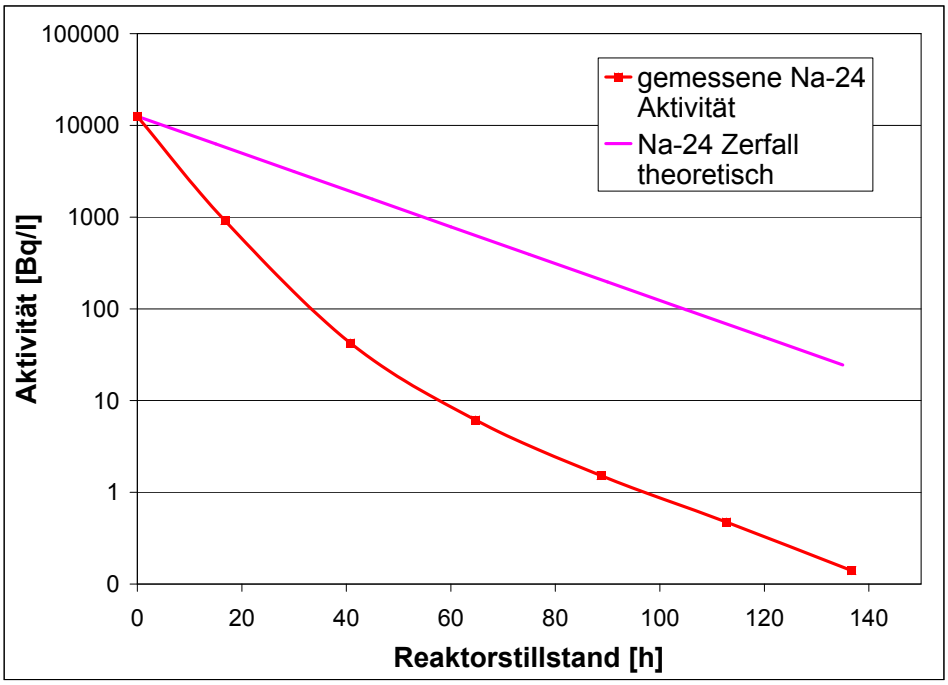


Abbildung 7.2.: Vergleich gemessener Abfall der ^{24}Na-Aktivität mit der Abnahme allein durch radioaktiven Zerfall

Beim ^{99m}Tc verhält es sich anders, in seiner im Tankwasser häufigsten Verbindung, dem Pertechnetat (TcO_4), kann es den Ionentauscher leicht passieren.

Die Messung der Halbwertszeit des dem ^{99m}Tc zugeordneten Peaks [1] ergab 6-6,8 h. Damit liegt tatsächlich ^{99m}Tc mit einer Halbwertszeit von 6,019 h vor.
Aber die Halbwertszeit des ^{99m}Tc Peaks im Tankwasser entspricht der des ^{99}Mo (siehe Abb. 7.3), seinem Mutternuklid (siehe Kap. 6.8).
Das aber liegt einzig und allein daran dass ^{99}Mo, im Gegensatz zum ^{99m}Tc, vom Ionentauscher eingefangen wird. Allerdings zerfällt es dann im Ionentauscher zum ^{99m}Tc, welches mit der Halbwertszeit von ^{99}Mo, wieder ins Tankwasser gelangt.

[1] Sowohl ^{99}Mo als auch ^{99m}Tc haben ihre γ-Hauptlinie bei $140,51$ keV

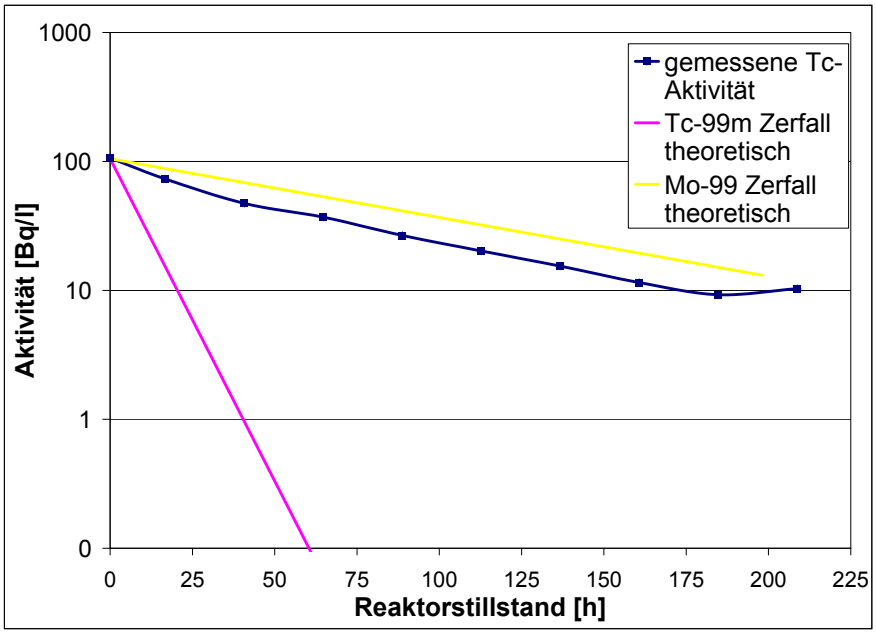


Abbildung 7.3.: Vergleich gemessene Abnahme der ^{99m}Tc-Aktivität mit dem Abnahme allein durch radioaktiven Zerfall

Das zweite, vom Ionentauscher nicht absorbierte Nuklid, ist ^{41}Ar. Jedoch entweicht es kontinuierlich aus dem Tankwasser in die Umgebungsluft, folglich nimmt seine Aktivität im Tankwasser ebenfalls schneller als zerfallsbedingt ab.

Für die ebenfalls gemessenen Isotope ^{122}Sb und ^{124}Sb gelang nur der Nachweis. Aussagen über ihr Verhalten im Tankwasser sind aufgrund ihrer geringen Aktivität leider nicht möglich.
Die Messung von ^{51}Cr gelang nur einmal, womit ebenfalls keine Aussage über das Abklingverhalten möglich ist. Allerdings dürfte der Nachweis von ^{51}Cr überhaupt nur durch ein Cr-Partikel in der Probe gelungen sein (siehe Paragraph 'Diskussion der Messergebnisse von ICP-MS und TXRF' weiter unten).

Mit der Messserie Tankwasser II hingegen sollten vorallem die Entstehungsraten der radioaktiven Nuklide im Tankwasser beobachtet werden. Mit Ausnahme von ^{51}Cr und ^{124}Sb konnten alle im Tankwasser gemessenen Nuklide betrachtet werden.
Wie aus Tabelle 5.8 ersichtlich, haben bis auf ^{99m}Tc alle Nuklide, im Großen und Ganzen ihre maximale Aktivität bereits nach dem ersten Betriebstag erreicht, so auch die vom Ionentauscher nicht absorbierten ^{41}Ar und ^{135}Xe.
Das heißt dass sich das Gleichgewicht zwischen Produktions- und Zerfallsrate der Nuklide und der 'Absorptionsrate' des Ionentauschers für diese Nuklide innerhalb weniger als sieben Betriebsstunden einstellt.

Bei ^{99m}Tc hingegen scheint es, als würde das Maximum erst zwischen dem dritten und

vierten Betriebstag, also nach zwischen 55 h und 72 h, erreicht zu werden.
Der Grund für diese Verzögerung ist, dass ^{99m}Tc den Ionentauscher fast ungehindert passieren kann.
Im Tankwasser nimmt dann die Tc-Aktivität solange zu, bis sich ein Gleichgewicht zwischen Produktions- und Zerfallsrate einstellt.
Allgemein geht man davon aus, dass das Gleichgewicht nach ungefähr zehn Halbwertszeiten erreicht ist. Das bedeutet beim ^{99m}Tc, mit einer Halbwertszeit von 6,019 h, sollte das nach etwa 60 h der Fall sein, was relativ gut mit dem Messergebniss zusammenpasst.

Bei den meisten Werten der Messung der dritten Probe, genommen vor Betriebsbegin des zweiten Tages, sind erhöhte Werte festgestellt worden. Der Grund dafür liegt in einem simplen Missverständnis, denn an diesem Tag wurde der Reaktor bereits um 8:39 h hochgefahren und war so bereits 20 min in Betrieb als die Probe genommen wurde.
Die Messwerte dieser Probe zeigen jedenfalls deutlich wie schnell die Aktivität der einzelnen Nuklide zunimmt.
Nach 20 min Betrieb sind bei ^{24}Na 15%, bei ^{41}Ar 50%, bei ^{56}Mn 35% und bei ^{72}Ga etwa 25% der maximalen Aktivität bereits erreicht.

Vorallem die Messung von ^{27}Mg hat sich im Nachhinein als sehr problematisch erwiesen, weil es im Rahmen dieser Arbeit das mit Abstand kurzlebigste Nuklid ist. Mit seiner Halbwertszeit von 9,462 min waren bei einigen Messungen bereits drei Halbwertszeiten vergangen, bevor die Messung überhaupt begonnen hatte. Für die Messung der anderen, langlebigeren Nuklide war außerden ein Messzeit von mehreren Stunden notwendig. Das zusammen mit dem relativ hohen Hintergrund tat ein übriges um die Messung von ^{27}Mg zu erschweren.
Trotz dieser Probleme ist es gelungen, ^{27}Mg nachzuweisen. Der Messwert der dritten Probe legt dabei nahe, dass die maximale Aktivität von ^{27}Mg bereits nach 20 min Betriebszeit erreicht ist.
Bei besonderem Interesse für die Messung von ^{27}Mg von Interesse so müßten sehr viel größere Proben genommen werden (z.B. 10 l) und die Messzeiten sehr viel kürzer sein (z.B. 30 min).
Bei ^{122}Sb gelang, wie bei Tankwasser I, ebenfalls nur der Nachweis.

Diskussion der Messergebnisse der Flüssigszintillation Aus den Tabellen 5.11 und 5.12 in Kapitel 5.2 ist ersichtlich, dass die Durchschnittsaktivitäten der Messserien Tankwasser I und II nicht miteinander übereinstimmen.
Selbst mehrmalige Wiederholungen der Messungen und wiederholte Überprüfung der Messparameter ergaben immer diesselbe Diskrepanz zwischen den Messungen.

Ein erster Erklärungsversuch war, dass durch ungewöhnlich viel in den Reaktortank nachgefülltes Wasser zu einer Verdünnung der Tritium-Aktivität im Tankwasser kam. Allerdings ergab eine Überprüfung der nachgefüllten Wassermenge zwischen den beiden

Messserien, dass diese im üblichen Rahmen geblieben war (siehe Kap. 2). Damit fiel diese Erklärung für die Diskrepanz der beiden Messserien aus.

Um zu überprüfen ob es sich bei dieser Diskrepanz um eine 'normale' Schwankung im Tankwasser handelt, wurde von diversen Proben des Tankwassers die im Laufe der letzten Monate genommen worden waren, die Tritium-Aktivität erneut gemessen.
Die Ergebnisse sind aus Tabelle 5.13 und Abbildung 5.5 in Kapitel 5.2.4 ersichtlich.

Die Messungen zeigten überraschenderweise einen kontinuierlichen Abfall der Tritium-Aktivität im Verlauf der letzten 10 Monate. Damit scheint klar, dass es sich bei dem Unterschied zwischen den Messserien Tankwasser I und II um keine Schwankung handelen kann. Die Werte zeigen einen Abfall der Tritium-Aktivität um mehr als 20% innerhalb von nur zehn Monaten.

Eine andere mögliche Erklärung für die Diskrepanz ist das Einbringen einer großen Tritium-Aktivität in den Reaktortank, zum Beispiel durch eine undichte Probe, die nun wieder abnimmt. Im Verlauf der letzten Jahre wurde eine große Anzahl von Proben mit Tritium-Aktivitäten im GBq-Bereich im Reaktor bestrahlt, sodass diese Erklärung durchaus im Bereich des Möglichen liegt. Mit einer Halbwertszeit von 12,32 Jahren würde sich aber die Aktivität des Tritiums erst nach etwa vier Jahren um die gemessenen 20% verringern. Damit fällt der radioaktive Zerfall als Begründung aus. Allerdings könnte es sein dass das ausgetretene Tritium in Verbindungen eingebaut ist, die vom Ionentauscher nun langsam eingefangen werden.
Jedoch steht eine Bestätigung dieser Vermutungen noch aus.

Diskussion der Messergebnisse von ICP-MS und TXRF Die mittels ICP-MS und TXRF gefundene Elemente im Tankwasser (siehe Tab. 5.14 und Tab. 5.15) werden durch den Neutronenfluss im Reaktor, mittels Neutroneneinfang, aktiviert.
Damit aber die so entstandenen radioaktiven Isotope mittels γ-Spektrometrie nachweisbar sind, muss ihre Konzentration im Tankwasser entsprechend hoch sein. Die für den Nachweis notwendige Konzentration ist von der Intensität der Emissionslinien und der Halbwertszeit der gesuchten radioaktiven Nuklide, aber auch von dem vorhandenen Hintergrund abhängig. (siehe Kap. 4.1)

Die am ehestens mit γ-Spektrometrie nachweisbaren radioaktiven Isotope der mittels ICP-MS und TXRF gefundenen Elemente sind in Tabelle 7.1 zu finden.

Die Isotope ^{24}Na und ^{56}Mn konnten mit der γ-Spektrometrie einwandfrei gemessen werden. Für Pb gibt es leider kein passendes radioaktives Isotop.

Die übrigen radioaktiven Nuklide wurden dahingehend überprüft, ob sie mittels γ-Spektrometrie eventuell doch nachweisbar waren.
Zu diesem Zweck wird die Nachweisgrenze der Emissionslinien der einzelnen Nuklide in den γ-Spektren bestimmt und mit dem zu erwartenden Messsignal verglichen.

Element	Isotop	Halbwertszeit	Emissionslinie[keV]	Wirkungsquerschnitt [barn]
Na	^{24}Na	15,00 h	1368,55	0,531
K	^{42}K	12,36 h	1524,70	1,459
Ca	^{49}Ca	8,70 min	3084,40	1,093
Cr	^{51}Cr	27,7 d	320,07	16,03
Mn	^{56}Mn	2,58 h	846,60	13,410
Fe	^{59}Fe	45,10 d	1099,22	1,300
Cu	^{66}Cu	5,10 min	1039,20	2,168
Zn	^{65}Zn	243,75 d	1115,52	0,760
Pb	-	-	-	-

Tabelle 7.1.: mit γ-Spektrometrie nachweisbare Isotope der mittels ICP-MS und TXRF im Tankwasser gefundenen Elemente

Aus der Konzentration der Nuklide im Tankwasser und der Neutronenflussdichte im Reaktortank kann die Aktivität der einzelnen Isotope berechnet werden (siehe Tab. 7.2). Um aber die Rechnung zu vereinfachen wird angenommen dass durch die lange Betriebszeit des TRIGA Mk-II Forschungsreaktors alle radioaktiven Isotope in Sättigung sind. Das heißt sie sind im Gleichgewicht, Bildungsrate und Zerfallsrate der einzelnen Nuklide sind gleich. Somit lautet die Formel für die Aktivität :

$$A = \sigma \cdot \Phi_{Tank} \cdot N$$

In diesem Zusammenhang ist σ der Neutroneinfangswirkungsquerschnitt für die jeweilige Reaktion, Φ_{Tank} ist der durchschnittlich Neutronenfluss für das gesamte Tankwasser (siehe Kap. 2, Paragraph 'Neutronenflussdichte') und N ist die Teilchenzahl.

Isotop	Detektorausbeute	Aussendewahrscheinlichkeit	Sättigungsaktivität
^{24}Na	0,725%	100,00	1,29 Bq/l
^{42}K	0,658%	17,90	0,99 Bq/l
^{49}Ca	0,100%	91,70	2,59 Bq/l
^{51}Cr	2,455%	9,83	0,18 Bq/l
^{56}Mn	1,095%	99,00	0,13 Bq/l
^{59}Fe	0,860%	56,50	0,03 Bq/l
^{66}Cu	0,900%	8,00	0,02 Bq/l
^{65}Zn	0,825%	50,75	0,01 Bq/l

Tabelle 7.2.: Sättigungsaktivität der radioaktiven Isotope der mittels ICP-MS und TXRF im Tankwasser gefundenen Elemente

Mit Hilfe der Aussendewahrscheinlichkeit und der Dektorausbeute kann man daraus das zu erwartende Messsignal errechnen.
Das Messsignal wird dann mit der Nachweisgrenze verglichen (siehe Tab. 7.3).
Die Nachweisgrenze wird dadurch bestimmt dass man in dem entsprechenden Energiebereich, in dem die charakteristischen Linien der einzelnen Nuklide auftreten sollten, den Hintergrund bestimmt. Mit der in Kapitel 4.1 im Paragraph 'Nachweisgrenze' angegebenen Formel kann daraus die Nachweisgrenze berechnet werden.

Isotop	Messsignal	Nachweisgrenze
^{24}Na	9,32E-03	1,64E-02
^{42}K	1,17E-03	1,03e-02
^{49}Ca	2,38E-03	3,32E-03
^{51}Cr	4,31E-04	1,64E-03
^{56}Mn	1,45E-03	2,55E-02
^{59}Fe	1,21E-04	8,39E-04
^{66}Cu	1,34E-05	2,77E-02
^{65}Zn	5,55E-05	8,04E-04

Tabelle 7.3.: Vergleich Messsignal-Nachweisgrenze der Isotope der mittels ICP-MS und TXRF im Tankwasser gefundenen Elemente

Aus den Ergebnissen in Tabelle 7.3 ist ersichtlich, dass das Messsignal bei allen Isotopen unterhalb der Nachweisgrenze bleibt. Denoch wurden ^{24}Na, ^{56}Mn und ^{51}Cr gemessen.

Wie in Kapitel 6.2 bereits erwähnt wurde, entsteht der Großteil des ^{24}Na nicht durch den Neutroneneinfang von ^{23}Na sondern durch die (n,α)-Reaktion von ^{27}Al. Mit den Ergebnissen aus dieser Abschätzung ist nun ersichtlich dass die, im Normalfall vorhandene, Konzentration von Na im Tankwasser kaum eine Rolle für die Produktion von ^{24}Na spielt.
Die Eigenschaft des Al, wasserunlösliche Oxidschichten zu bilden, verhindert, dass es seinerseits in großen Mengen ins Tankwasser gelangt. Das Al ist in dieser Oxidschicht fest gebunden. Allerdings können aktivierte Nuklide, wie zum Beispiel ^{24}Na nach einer (n,α)-Reaktion des ^{27}Al, mit der Rückstossenergie, erhalten durch Emission prompter γ-Quanten nach der Aktivierung, sehr wohl die Verbindung verlassen (siehe Kap. 3.5, Szilard-Chalmers-Effekt). Damit gelangen sie verstärkt ins Tankwasser.
Beim ^{56}Mn verhält es sich ähnlich. Wie in Kapitel 6.6 beschrieben entsteht ^{56}Mn durch den Neutroneneinfang von ^{55}Mn, wobei das Mn von im Reaktor verwendeten Stahlbauteilen stammt.
Im Normalfall ist Mn im Stahl fest gebunden so dass es in nur sehr kleinen Mengen ins Tankwasser gelangt.
Allerdings können aktivierte Mn-Nuklide, wieder durch die Rückstossenergie, nach einer (n,γ)-Reaktion, die Verbindungen verlassen und gelangen damit verstärkt ins Tankwasser.

Das ist die Erklärung für die Messung hoher ^{56}Mn-Aktivitäten, obwohl die Konzentration von Mn im Tankwasser gering ist, ^{56}Mn entsteht nicht durch den Neutroneneinfang von im Tankwasser gelösten ^{55}Mn, sondern durch den Neutroneneinfang von ^{55}Mn in den Stahlbauteilen des Reaktors.
Bei ^{51}Cr verhält es sich anders als bei den beiden vorherigen Nukliden. Es wurde nur bei einer einzigen Messung mittels γ-Spektrometrie gemessen.
Hierbei dürfte bei der Probennahme, durch puren Zufall, eine Probe mit einem Cr-haltiges Partikel genommen worden sein. Die nachfolgenden Messungen zeigten, dass ^{51}Cr im Normalfall nicht zu messen ist, was wohl hauptsächlich an der relativ niedrigen Aussendewahrscheinlichkeit, seiner recht großen Halbwertszeit von 27,7 d, und der damit bedingten, niedrigen Aktivität im Tankwasser liegt.

Diskussion der Ergebnisse aus der Literatur Die Ergebnisse der Messungen des Tankwassers im Rahmen dieser Arbeit des TRIGA Wien wird mit denen der TRIGA in Heidelberg (Krauss et al., 1994), Deutschland, und Bangladesh (Mollah, 1991) sowie mit dennen des Forschungsreaktors PARR-1 (Aslam et al., 1998) in Pakistan verglichen. Problematisch bei allen Ergebnissen aus der Literatur ist aber dass nur sehr wenig über die Probennahme und das Messprotokoll bekannt ist.
In Tabelle 7.4 sind die Ergebnisse der jeweiligen Messungen aufgelistet.

Die Isotope ^{24}Na, ^{51}Cr und ^{56}Mn wurden übereinstimmend im Tankwasser aller vier Forschungsreaktoren gemessen. Überraschend hingegen ist dass ^{27}Mg in Heidelberg und in Pakistan nicht gemessen wurde, ^{24}Na aber schon. Wie bereits in Kapitel 6 erwähnt, entstehen sowohl ^{27}Mg (siehe Kap. 6.3) als auch ^{24}Na (siehe Kap. 6.2) aus Al. Das heißt, wenn ^{24}Na gemessen wird, ist auch ^{27}Mg vorhanden.
Allerdings macht seine Halbwertszeit von 9,462 min das ^{27}Mg auch zum kurzlebigsten der nachgewiesenen Elemente. Deshalb besteht die Möglichkeit dass die Messung ^{27}Mg aufgrund des verwendeten Messprotokolls in Heidelberg und Pakistan nicht gelungen ist.

Das Radionuklid ^{41}Ar hingegen wurde seltsamerweise in Pakistan nicht gemessen. Das Ar im Tankwasser stammt nämlich, wie bereits in Kapitel 6.4 erwähnt, aus der Luft und wird durch den Neutronenfluss im Reaktor aktiviert. Eine mögliche Begründung für die Nicht-Messung in Pakistan ist, dass das Tankwasser bei der Probennahme, absichtlich oder unabsichtlich, entgast wurde.

Das Radionuklid ^{72}Ga ist, ausser im Rahmen dieser Arbeit, sonst bei keinen Messungen festgestellt worden. Aber sowohl Heidelberg als auch Bangladesh haben ^{54}Mn gemessen. Beide haben einen Peak bei 834 keV gefunden, der aber im Rahmen dieser Arbeit dem ^{72}Ga zugeordnet (siehe Tab. 5.2) worden ist.
Neben der Hauptlinie 833, 95 keV fanden sich in den γ-Spektren (siehe Tabellenanhang A und B) weitere Linien des ^{72}Ga. Außerdem ergab eine Überprüfung des Peaks um 834 keV eine Halbwertszeit im Bereich von 12-15 h, was wiederrum für ^{72}Ga, mit

TRIGA Wien	TRIGA Heidelberg	TRIGA Bangladesh	PARR-1
^{24}Na	^{24}Na	^{24}Na	^{24}Na
^{27}Mg	-	^{27}Mg	-
^{41}Ar	^{41}Ar	^{41}Ar	-
-	-	-	^{42}K
^{51}Cr	^{51}Cr	^{51}Cr	^{51}Cr
-	^{54}Mn	^{54}Mn	-
^{56}Mn	^{56}Mn	^{56}Mn	^{56}Mn
-	^{58}Co	-	-
-	^{60}Co	-	-
-	-	^{64}Cu	-
^{72}Ga	-	-	-
^{99m}Tc	^{99m}Tc	-	^{99m}Tc
-	-	-	^{110m}Ag
-	-	-	^{116m}In
^{122}Sb	-	-	^{122}Sb
^{124}Sb	-	-	^{124}Sb
-	-	-	^{131}I
^{135}Xe	-	-	-
^{187}W	-	-	^{187}W

Tabelle 7.4.: Vergleich der im Tankwasser der TRIGAs Wien, Heidelberg, Bangladesh und des PARR-1 in Pakistan gemessenen Radionuklide

einer Halbwertszeit von 14,1 h, spricht und gegen ^{54}Mn, das mit einer von 312 d als möglicher Kanidat ausscheidet.
In Pakistan hingegen konnte der Peak anscheinend nicht zugeordnet werden. Wie bereits in Kapitel 6.7 erwähnt, tarnt sich Ga, da es die gleiche Ladung und einen dem Al-Ion ähnlichen Ionenradius hat, im Al. Deshalb wird im Regelfall beim Vorhandensein von Al auch ^{72}Ga gemessen.

Das Radionuklid ^{99m}Tc wurde außer in Bangladesh überall gemessen, was nur mit einem vollständigen Fehlen von Mo in den Bauteilen des Reaktors erklärbar wäre.

Die Isotope ^{122}Sb und ^{124}Sb sind, ausser im TRIGA Wien, nur in Pakistan gemessen worden.

Das Isotop ^{135}Xe wurde nur im TRIGA Wien gemessen. Es entsteht, wie in Kapitel 6.10 erwähnt, als Spaltprodukt des ^{235}U. Durch den recht großen Anteil an relativ alten Brennelementen im TRIGA Wien könnte es sein dass, begünstigt durch Korrosion, verstärkt Xe ins Tankwasser gelangt und deshalb ^{135}Xe gemessen werden konnte. Eine Messung der Halbwertszeit des Peaks ergab Werte von 8-11 h, was im Bereich der Halbwertszeit von ^{135}Xe, mit 9,083 h, liegt.

Hingegen ist ^{187}W ausser im TRIGA Wien, nur in Pakistan gemessen worden. Eine mögliche Erklärung für das Nicht-Messen in Heidelberg und Bangladesh ist das Fehlen von W in den Reaktorbauteilen.

Die Isotope ^{58}Co und ^{60}Co wurden nur in Heidelberg gemessen genauso wie ^{64}Cu nur in Bangladesh gefunden wurde. Keines der Isotope konnte im Tankwasser des TRIGA Wien im Rahmen dieser Arbeit nachgewiesen werden.
Die im PARR-1 in Pakistan gemessenen Isotope ^{116m}In und ^{110m}In stammen aus den Absorberstäben. TRIGA-Reaktoren verwenden in ihren Absorberstäben Borkarbid (siehe Kap. 2), weshalb diese Isotope in ihrem Tankwasser nicht zu finden sind.

8. Zusammenfassung und Ausblick

Im Rahmen dieser Arbeit konnten ^{3}H, ^{24}Na, ^{27}Mg, ^{41}Ar, ^{56}Mn, ^{51}Cr, ^{72}Ga, ^{99m}Tc, ^{122}Sb, ^{124}Sb, ^{135}Xe und ^{187}W im Tankwasser des TRIGA Mk-II Forschungsreaktors nachgewiesen werden. Der Hauptteil der Aktivität des Tankwassers entfällt auf ^{24}Na, gefolgt vom Tritium und ^{41}Ar. Unter den gemessenen Nukliden ist Tritium das mit Abstand langlebigste Element im Tankwasser, gefolgt vom ^{99m}Tc. Abgesehen vom Tritium ist bereits nach etwa 40 h die Aktivität auf unter 100 Bq/l gesunken, nach etwa 280 h ist im Tankwasser keine Aktivität mehr zu messen. Die Ergebnisse der Messungen im Rahmen zeigen, dass bereits nach dem ersten Betriebstag das Tankwasser seine maximale Aktivität ereicht hat.

Die Ergebnisse der Aktivitäts-Messung des Tritiums sind leider nicht schlüssig. Zieht man die Halbwertszeit des Tritiums von 12,32 a in Betracht und weiters, dass Tritium im Normalfall im Reaktor als HTO vorliegt und daher nicht vom Ionentauscher zurückgehalten wird, sollte die Aktivität des Tritiums noch immer zunehmen. Beobachtet wird aber eine kontinuierliche Abnahme die allein durch den radioaktiven Zerfall nicht erklärbar ist.

Bemerkenswert ist, dass sich bei den Messungen gezeigt hat, dass selbst eigentlich vernachlässigbare Korrosionsraten der Reaktorbauteile zu nicht unerheblichen Aktivitäten führen.

Derzeit gibt es für das Tankwasser im TRIGA Mk-II Forschungsreaktor in Österreich keine gültigen strahlenschutztechnischen Bestimmungen für Grenzwerte. Allerdings gab es in den bisherigen 43 Betriebsjahren auch keinen strahlenschutztechnisch relevanten Vorfall mit Tankwasser.

Mit dieser Arbeit konnten also einige Fragen über die Entstehungsraten und das Abklingverhalten der Radionuklide im Tankwasser des TRIGA Mk-II Forschungsreaktors in Wien beantwortet werden. Gleichzeitig sind aber auch viele neue Fragen aufgetaucht.

So sollte die Tritium-Aktivität des Tankwassers weiter beobachtet werden um die Produktionsrate durch den Reaktorbetrieb zu bestimmen.
Auch eine Überprüfung der ungewöhnlichen Abnahme der Tritium-Aktivität im Tankwasser und der dafür hier vorgeschlagenen Begründungen wäre notwendig.

Durch eine häufigere Probennahme könnten auch die Entstehungsraten und das Abklingverhalten der Radionuklide, mit einer höheren zeitlichen Auflösung gemessen werden.

Bei kurzlebigeren Radionukliden wären dazu aber größere Probenmengen und kürzere Messzeiten, als die im Rahmen dieser Arbeit verwendeten, notwendig.

Die Messungen der Entstehungsraten der einzelnen Nuklide zeigten, dass abgesehen vom ^{99m}Tc, alle ihre maximale Aktivität bereits nach dem ersten Betriebstag erreichen.
Allerdings legen die Messergebnisse nahe, dass dies für manche Radionuklide bereits nach wenigen Minuten und allgemein nach ein bis zweieinhalb Stunden der Fall ist. Zum Beispiel ^{27}Mg hat nach bereits 20 min seine maximale Aktivität erreicht, bei ^{24}Na ist dies nach $2\frac{1}{2}$ h der Fall.
Die derzeitigen Messwerte liefern nur Anhaltspunkte, sodass eine genauere Messung sicherliche interessant wäre, wobei gleichzeitig überprüft werden könnte, ob diese Zeitspannen bei aufeinanderfolgenden Betriebstagen verschieden sind.

Durch die Betrachtung des Abklingverhaltens könnte man auch die 'Grenzkonzetrationen' der einzelnen Radionuklide im Tankwasser bestimmen, unterhalb derer sie vom Ionentauscher nicht mehr absorbiert werden und ihre Aktivität nur mehr durch radioaktiven Zerfall abnimmt. Damit kann auch die Effektivität des Ionentauschers während des normalen Betriebes überprüft werden.

Zuletzt sollte auch erwähnt werden, dass die Quelle für das ^{99m}Tc im Tankwasser noch immer nicht eindeutig geklärt ist.

Literaturverzeichnis

M. Aslam, M. Akram, A. Rashid, N Parveen, M. A. Atta, and S. D. Orfi. Measurement of radionuclides in the cooling system of upgraded Pakistan Research Reactor-1. *Nucleus (Islamabad)*, 35(ISSN 0029-5698), 1998.

F. Bensch, H. Böck, and W. Prochazka. Sb-Be-Photoneutronenquellen als Startquellen in Forschungsreaktoren. *Atomkernenergie*, 15, 1970.

M. Bichler. *Skriptum zur Vorlesung Radiochemie*. TU Wien, 2004.

F. Grass, G. P. Westphal, R. Lemmel, R. Gwozdz, and H. Böck. Activity of the Primary Cooling Water by a New γ-Spectrometry System. In *16th European Conference of TRIGA Users*, Pitesti, Romania, September 2000.

O. Krauss, K. Kübler, and A. Sold. Radiation Protection at the TRIGA Heidelberg II. In *14th European Conference of TRIGA Users*, Mainz, Germany, September 1994.

M. L'Annunziata, editor. *Handbook of Radioactivity Analysis*. Academic Press, 2003.

K. H. Lieser. *Einführung in die Kernchemie*. VCH Verlagsgesellschaft mbH, 1991.

B. Mason and C. B. Moore. *Grundzüge der Geochemie*, chapter 5.5. Ferdinand Enke Verlag, 1985.

A. S. Mollah. Detection of radioactive products in the cooling system of the Bangladesh research reactor. In *Third Asian symposium on research reactors*, Hitachi, Ibaraki, Japan, Novemeber 1991.

G. Pfennig, H. Klewe-Nebenius, and W. Seelmann-Eggebert. Karlsruher Nuklidkarte, 1995.

M. Tschurlovits. *Technischer Strahlenschutz I*, chapter 4. TU Wien, 2003/2004.

M. Tschurlovits, H. Böck, and E. Tschirf. A Simple Method for the Determination of the Activity-Concentration in the Pool Water. In *Fourth European Conference of TRIGA Users*, Vienna, Austria, September 1976.

H. Winter. *Einführung in die Quantenphysik, Physik für TPH (Band 3.2)*, chapter 15. TU Wien, 1999.

Abbildungsverzeichnis

1.1. Reaktorhalle 7

2.1. Reaktor Schnittbild 8
2.2. Horizontalschnitt durch den Reaktor 9
2.3. Brennelement 9
2.4. Wärmetauscher Typ Sigma 37 der Firma W. Schmidt KG 10
2.5. Reaktorbecken des TRIGA Mk-II Reaktors 12

3.1. ^{226}Ra $\rightarrow$ ^{222}Rn (Kölzer, 2005) 15
3.2. β^--Zerfall ^{137}Cs $\rightarrow$ ^{137}Ba (Kölzer, 2005) 16
3.3. β-Verteilung (Kölzer, 2005) 16
3.4. γ-Zerfall $^{137\mathrm{m}}$Ba $\rightarrow$ ^{137}Ba (Kölzer, 2005) 17
3.5. Elektroneneinfang (Kölzer, 2005) 18
3.6. Photoeffekt (Kölzer, 2005) 19
3.7. Comptoneffekt (Kölzer, 2005) 20
3.8. Paarbildungseffekt (Kölzer, 2005) 20
3.9. Annihilation von Positron und Elektron (Kölzer, 2005) 21

4.1. Auswirkungen der Wechselwirkungeffekte auf das γ-Spektrum (Bichler, 2004) 26
4.2. γ-Spektrum der Tankwasserprobe vom 23.12.04 28
4.3. Detektor Ausbeutekurve für einen HPGe-Detektor 29
4.4. Einzel-Peak 30
4.5. Überlagerte Peaks 30
4.6. HPGe-Detektor im Messraum der Abteilung Radiochemie des Atominstitut 31
4.7. Marinelli-Becher 31
4.8. 20 ml Polyethylen-Fläschchen 33
4.9. Ultima Gold XR Cocktail 33
4.10. TRI-CARB 2700 TR 34
4.11. Quadrupol-Massenspektrometer 36
4.12. ICP-MS des Typs SCIEX ELAN 6100 von Perkin Elmer 37
4.13. Spektrum einer Röntgenröhre 38

5.1. Ausbeutekurve des GEM-30195-Plus 40
5.2. Quenchkurve des Tankwassers 47

5.3. Tritium-Aktivität der Proben von Tankwasser I 48
5.4. Tritium-Aktivität der Proben von Tankwasser II 49
5.5. Verlauf der Tritium-Aktivität in den letzten Monaten 51

7.1. Vergleich des Abklingverhaltens von ^{24}Na, ^{41}Ar, ^{56}Mn, ^{72}Ga, ^{99m}Tc und ^{187}W im Tankwasser des TRIGA Mk-II Forschungsreaktors 65
7.2. Vergleich gemessener Abfall der ^{24}Na-Aktivität mit der Abnahme allein durch radioaktiven Zerfall 66
7.3. Vergleich gemessene Abnahme der ^{99m}Tc-Aktivität mit dem Abnahme allein durch radioaktiven Zerfall 67

Tabellenverzeichnis

2.1. Leistung pro Jahr in MWh des Mark TRIGA II Forschungsreaktors der Österreichischen Universitäten von 1962 bis 2004 13

5.1. Ausbeute des GEM-30195-Plus bei der Amersham Referenzlösung QCY46 40
5.2. Zur Identifikation der einzelnen radioaktiven Isotope verwendeten γ-Linien 41
5.3. Proben der Messserie Tankwasser I 42
5.5. Aktivitäten der in Tankwasser I gefundenen Isotope 43
5.6. Proben der Messserie Tankwasser II 44
5.8. Aktivitäten der in Tankwasser II gefundenen Isotope 45
5.9. Theoretische Aktivität der Proben mit Tritium-Standard des ATI zur Quenchbestimmung 46
5.10. Wert der Quenchkurve für 1ml Probenmenge 46
5.11. Durchschnitt der Tritium-Aktivität der Proben von Tankwasser I 48
5.12. Durchschnitt der Tritium-Aktivität der Proben von Tankwasser II 49
5.13. Tritium-Aktivität im Verlauf der letzten Monate 50
5.14. Mit ICP-MS im Tankwasser gefundene Elemente 51
5.15. Mit TXRF im Tankwasser gefundene Elemente 52

7.1. mit γ-Spektrometrie nachweisbare Isotope der mittels ICP-MS und TXRF im Tankwasser gefundenen Elemente 70
7.2. Sättigungsaktivität der radioaktiven Isotope der mittels ICP-MS und TXRF im Tankwasser gefundenen Elemente 70
7.3. Vergleich Messsignal-Nachweisgrenze der Isotope der mittels ICP-MS und TXRF im Tankwasser gefundenen Elemente 71
7.4. Vergleich der im Tankwasser der TRIGAs Wien, Heidelberg, Bangladesh und des PARR-1 in Pakistan gemessenen Radionuklide 73

A.2. γ-Spektrum des Leerwerts für die Messserie Tankwasser I 83
A.4. γ-Spektrum der ersten Messung der Messserie Tankwasser I 84
A.6. γ-Spektrum der zweiten Messung der Messserie Tankwasser I 85
A.8. γ-Spektrum der dritten Messung der Messserie Tankwasser I 87
A.10. γ-Spektrum der vierten Messung der Messserie Tankwasser I 87
A.12. γ-Spektrum der fünften Messung der Messserie Tankwasser I 88
A.14. γ-Spektrum der sechsten Messung der Messserie Tankwasser I 89

A.16.γ-Spektrum der siebten Messung der Messserie Tankwasser I 90
A.18.γ-Spektrum der achten Messung der Messserie Tankwasser I 91
A.20.γ-Spektrum der neunten Messung der Messserie Tankwasser I 92
A.22.γ-Spektrum der zehnten Messung der Messserie Tankwasser I 93
A.24.γ-Spektrum der elften Messung der Messserie Tankwasser I 94

B.2. γ-Spektrum des Leerwerts der Messserie Tankwasser II 96
B.4. γ-Spektrum der ersten Messung der Messserie Tankwasser II 97
B.6. γ-Spektrum der zweiten Messung der Messserie Tankwasser II 98
B.8. γ-Spektrum der dritten Messung der Messserie Tankwasser II 99
B.10.γ-Spektrum der vierten Messung der Messserie Tankwasser II 101
B.12.γ-Spektrum der fünften Messung der Messserie Tankwasser II 102
B.14.γ-Spektrum der sechsten Messung der Messserie Tankwasser II 104
B.16.γ-Spektrum der siebten Messung der Messserie Tankwasser II 104
B.18.γ-Spektrum der achten Messung der Messserie Tankwasser II 106
B.20.γ-Spektrum der neunten Messung der Messserie Tankwasser II 107
B.22.γ-Spektrum der zehnten Messung der Messserie Tankwasser II 109

C.1. Messwerte der Proben zur Qunechbestimmung 110
C.2. Ausbeute der Quench-Proben 111
C.3. Quenchkurve Tankwassers 111
C.4. Messwerte der Tankwasser I-Proben 112
C.5. Tritium-Aktivität der Proben von Tankwasser I 112
C.6. Messwerte der Tankwasser II-Proben 113
C.7. Tritium-Aktivität der Proben von Tankwasser II 113

D.1. Messergebnisse der ICP-MS (μg/l) 114

A. Messwerte der γ-Spektrometrie der Proben von Tankwasser I

Reaktor für 11-tägige Betriebspause am 23.12.04 um 15:45 h heruntergefahren

Leerwert der Messserie Tankwasser I
Probe genommen am 02.01.05 um 8:30 h
Messbeginn um 9:17 h
Messzeit : 49,25 h

Energy [keV]	Net Peak Area [cts]	Bkgnd [cts]	FWHM [keV]	Cts/s	Error
75,47	847	3076	1,019	4,78E-03	25,95%
85,14	1056	4026	1,289	5,96E-03	23,50%
87,92	326	6554	1,295	1,84E-03	22,33%
93,03	955	5097	1,335	5,39E-03	26,53%
186,00	861	5957	1,206	4,86E-03	23,23%
238,59	520	4211	1,182	2,94E-03	10,13%
295,35	461	3773	1,655	2,60E-03	10,18%
327,44	121	2404	0,343	6,87E-04	50,30%
352,08	821	2406	1,398	4,64E-03	5,70%
510,90	4206	2361	2,739	2,37E-02	7,37%
583,03	214	1288	1,307	1,21E-03	14,78%
609,15	960	1629	1,515	5,42E-03	12,37%
661,28	205	1437	1,43	1,16E-03	14,83%
910,76	326	985	1,145	1,84E-03	30,14%
968,78	209	1110	2,301	1,18E-03	13,20%
1114,66	159	660	1,708	9,02E-04	15,01%
1119,52	339	874	1,71	1,92E-03	8,19%
1172,08	190	661	1,583	1,08E-03	13,13%
1237,17	163	653	1,278	9,20E-04	49,67%
1331,23	164	460	2,626	9,26E-04	77,07%
1459,63	5208	490	2,204	2,94E-02	2,63%
1591,30	79	287	1,45	4,51E-04	20,48%
1728,12	92	265	1,831	5,21E-04	16,20%
1763,08	633	323	2,391	3,57E-03	12,39%
1845,70	41	178	1,226	2,34E-04	29,71%

2101,79	163	216	3,418	9,23E-04	44,97%
2202,01	197	206	2,342	1,12E-03	27,67%
2221,20	101	176	2,105	5,74E-04	50,91%
2445,83	54	138	2,304	3,06E-04	21,87%
2612,24	1253	99	2,918	7,07E-03	6,24%

Tabelle A.2.: γ-Spektrum des Leerwerts für die Messserie Tankwasser I

Erste Messung der Messserie Tankwasser I
Probe genommen am 23.12.04 um 15:45 h
Messbeginn um 16:21 h
Messzeit : 16,34 h
Zeit seit Reaktor Stillstand : 0 h

Energy [keV]	Net Peak Area [cts]	Bkgnd [cts]	FWHM [keV]	Cts/s	Error
73,88	9027	135735	1,366	1,57E-01	8,25%
76,17	22730	227071	1,371	3,94E-01	6,11%
85,92	21026	219274	1,195	3,65E-01	3,52%
88,80	2484	376169	1,201	4,31E-02	10,65%
98,70	5390	276166	0,548	9,34E-02	2,28%
110,63	3620	267803	1,277	6,28E-02	44,60%
135,48	4320	381674	1,476	7,49E-02	10,04%
137,97	5523	409291	1,481	9,58E-02	7,89%
141,54	194431	434371	1,487	3,37E+00	1,23%
203,00	11994	366949	3,264	2,08E-01	16,39%
245,06	2378	302991	1,446	4,12E-02	17,64%
250,88	5679	413249	1,453	9,84E-02	7,77%
272,36	2978	312829	0,991	5,16E-02	11,41%
347,50	19042	223643	1,597	3,30E-01	1,98%
352,72	1802	290318	1,602	3,13E-02	18,47%
392,29	963	110708	0,739	1,67E-02	28,83%
476,05	2390	177488	1,073	4,14E-02	56,95%
480,17	2374	326252	1,077	4,12E-02	34,52%
511,57	647936	254068	2,874	1,12E+01	0,42%
530,79	1485	138709	1,529	2,57E-02	20,66%
630,47	2562	156219	1,741	4,44E-02	11,82%
686,05	2675	164740	1,849	4,64E-02	11,36%
782,53	4436	202383	2,38	7,69E-02	35,51%
834,22	9373	209862	1,897	1,63E-01	14,11%
846,73	103475	240320	1,793	1,79E+00	1,51%

857,7	25931	252660	2,776	4,50E-01	1,46%
1014,3	3547	262000	2,343	6,15E-02	10,92%
1074,2	1934	211319	1,572	3,35E-02	18,65%
1076,96	3378	266778	1,573	5,86E-02	11,19%
1151,03	17974	368661	5,845	3,12E-01	31,79%
1292,88	1557149	108273	2,096	2,70E+01	0,15%
1368,02	5249930	98972	2,175	9,10E+01	0,07%
1459,84	1400	36306	2,055	2,43E-02	11,87%
1730,85	331247	86677	2,435	5,74E+00	0,41%
1786,71	883	73368	1,025	1,53E-02	156,68%
1809,42	14186	97952	2,314	2,46E-01	6,15%
2111,46	6341	109098	2,393	1,10E-01	3,70%
2200,05	735	58935	1,928	1,27E-02	30,24%
2241,24	467902	141727	3,487	8,11E+00	0,39%
2515,13	10311	195492	5,692	1,79E-01	34,14%
2751,63	2823555	38740	2,845	4,89E+01	0,11%
3097,75	3556	7391	2,895	6,17E-02	7,04%

Tabelle A.4.: γ-Spektrum der ersten Messung der Messserie Tankwasser I

Zweite Messung der Messserie Tankwasser I
Probe genommen am 24.12.04 um 8:30 h
Messbeginn : 9:13 h
Messzeit : 23,54 h
Zeit seit Reaktor Stillstand : 16,75 h

Energy [keV]	Net Peak Area [cts]	Bkgnd [cts]	FWHM [keV]	Cts/s	Error
74,02	1556	14043	1,306	1,85E-02	18,13%
76,38	3274	21239	1,311	3,89E-02	14,99%
86,03	1728	25096	1,050	2,05E-02	6,97%
135,55	752	45858	0,820	8,94E-03	51,42%
141,78	163091	37927	1,298	1,94E+00	0,59%
250,86	2841	37688	1,373	3,37E-02	19,37%
321,39	464	22775	1,185	5,51E-03	23,62%
347,66	2085	25608	1,594	2,48E-02	5,55%
480,40	1120	16283	1,385	1,33E-02	8,66%
511,83	30872	21399	2,746	3,66E-01	2,48%
564,95	562	15506	1,490	6,67E-03	69,50%
610,07	659	16270	1,179	7,82E-03	54,34%
630,59	291	11911	0,785	3,46E-03	26,27%
686,10	1254	12655	1,594	1,49E-02	7,53%
739,62	312	11475	0,862	3,71E-03	25,10%
811,12	241	9702	0,921	2,87E-03	122,36%
834,31	1727	14119	1,909	2,05E-02	28,91%
846,92	436	17264	1,918	5,18E-03	33,68%
857,82	2809	36623	2,711	3,33E-02	4,06%
1293,43	1875	10416	2,124	2,23E-02	15,60%
1368,15	559620	9741	2,142	6,64E+00	0,23%
1460,14	2359	4684	2,086	2,80E-02	3,03%
1730,96	35503	9320	2,447	4,21E-01	1,32%
1762,89	274	7328	1,835	3,26E-03	88,53%
2241,35	49887	15345	3,559	5,92E-01	1,21%
2612,27	478	6937	2,056	5,68E-03	14,00%
2751,73	301480	3887	3,000	3,58E+00	0,32%
3097,90	320	542	2,736	3,80E-03	8,10%

Tabelle A.6.: γ-Spektrum der zweiten Messung der Messserie Tankwasser I

Dritte Messung der Messserie Tankwasser I
Probe genommen am 25.12.04 um 8:30 h
Messbeginn : 09:15 h
Messzeit : 23,24 h
Zeit seit Reaktor Stillstand : 40,75 h

Energy [keV]	Net Peak Area [cts]	Bkgnd [cts]	FWHM [keV]	Cts/s	Error
63,28	195	1045	1,269	2,34E-03	23,33%
68,91	403	3115	1,281	4,85E-03	13,79%
72,43	640	4503	1,289	7,69E-03	13,28%
75,06	1722	6269	1,294	2,07E-02	12,16%
81,28	284	4425	1,206	3,42E-03	18,63%
84,70	550	5431	1,213	6,61E-03	11,92%
92,77	715	9255	0,804	8,60E-03	77,73%
134,26	606	9177	1,339	7,28E-03	12,74%
140,51	124814	8630	1,349	1,50E+00	0,58%
185,68	447	5090	1,705	5,37E-03	12,51%
249,87	485	4647	1,393	5,83E-03	9,78%
295,19	305	6079	1,139	3,67E-03	14,77%
351,97	743	2992	1,448	8,94E-03	21,48%
479,55	211	1149	1,089	2,55E-03	16,50%
500,74	99	1189	0,904	1,19E-03	28,56%
511,08	3566	2443	2,769	4,29E-02	6,73%
564,03	274	1330	1,436	3,30E-03	12,50%
583,27	101	1137	0,918	1,22E-03	81,20%
609,21	809	1601	1,670	9,73E-03	5,09%
618,06	140	1553	1,676	1,69E-03	21,26%
661,46	108	1099	0,947	1,31E-03	25,18%
685,69	400	1575	1,658	4,82E-03	31,67%
834,16	346	1463	1,787	4,17E-03	9,68%
911,14	163	1878	1,365	1,96E-03	51,82%
1120,29	210	1366	1,673	2,53E-03	16,90%
1173,19	147	1304	2,168	1,77E-03	89,72%
1332,57	58	361	1,051	7,04E-04	26,10%
1368,57	25787	681	2,148	3,10E-01	1,08%
1377,49	114	535	2,152	1,38E-03	16,80%
1408,23	53	337	0,569	6,38E-04	20,16%
1460,75	2597	585	2,206	3,12E-02	4,80%
1731,83	1599	634	2,373	1,92E-02	6,98%
1764,63	320	485	1,870	3,85E-03	22,52%
2103,10	83	337	1,538	1,01E-03	94,58%
2204,48	108	468	1,855	1,30E-03	68,02%
2243,00	2221	853	3,394	2,67E-02	2,13%

2614,67	634	460	2,771	7,63E-03	4,52%
2754,03	13837	241	3,008	1,66E-01	1,47%

Tabelle A.8.: γ-Spektrum der dritten Messung der Messserie Tankwasser I

Vierte Messung der Messserie Tankwasser I
Probe genommen am 26.12.04 um 8:30 h
Messbeginn : 08:45 h
Messzeit : 23,81 h
Zeit seit Reaktor Stillstand : 64,75 h

Energy [keV]	Net Peak Area [cts]	Bkgnd [cts]	FWHM [keV]	Cts/s	Error
76,14	915	2722	1,203	1,07E-02	32,33%
85,59	434	4796	1,191	5,10E-03	45,80%
93,82	709	6785	0,72	8,31E-03	3,80%
141,22	100054	7092	1,46	1,17E+00	0,30%
239,20	388	3007	1,675	4,55E-03	10,84%
295,87	258	1843	1,405	3,03E-03	53,91%
352,18	356	1899	1,46	4,18E-03	9,56%
479,78	176	1420	1,511	2,06E-03	50,19%
511,35	2340	1383	2,579	2,74E-02	2,07%
564,10	203	938	1,589	2,39E-03	54,73%
583,40	138	1017	0,949	1,62E-03	59,08%
609,19	521	1009	1,87	6,11E-03	22,11%
662,21	260	1076	1,441	3,06E-03	56,23%
685,62	192	902	1,936	2,25E-03	53,43%
910,89	275	702	2,686	3,23E-03	8,57%
1119,09	201	740	2,121	2,36E-03	11,62%
1330,66	64	263	1,253	7,57E-04	23,07%
1366,93	3801	449	2,231	4,46E-02	3,18%
1459,12	2687	301	2,518	3,15E-02	4,21%
1590,68	38	162	1,658	4,55E-04	33,20%
1729,52	264	230	2,71	3,11E-03	25,39%
1762,19	272	205	2,388	3,20E-03	6,76%
2239,6	372	204	3,552	4,36E-03	18,97%
2610,72	685	124	3,195	8,04E-03	10,06%
2749,64	2005	76	3,205	2,35E-02	3,89%

Tabelle A.10.: γ-Spektrum der vierten Messung der Messserie Tankwasser I

Fünfte Messung der Messserie Tankwasser I
Probe genommen am 27.12.04 um 8:30 h
Messbeginn : 09:03 h
Messzeit : 23,80 h
Zeit seit Reaktor Stillstand : 88,75 h

Energy [keV]	Net Peak Area [cts]	Bkgnd [cts]	FWHM [keV]	Cts/s	Error
76,01	811	2368	1,291	9,51E-03	52,20%
85,75	438	3964	1,048	5,14E-03	11,22%
141,52	72092	5948	1,450	8,46E-01	0,71%
186,38	355	2888	1,457	4,17E-03	11,98%
239,20	208	2304	0,988	2,44E-03	17,89%
296,03	431	2161	1,678	5,06E-03	33,90%
339,27	63	825	0,560	7,39E-04	47,39%
352,66	696	1681	1,592	8,17E-03	19,72%
511,46	1944	1369	2,744	2,28E-02	9,45%
564,64	78	691	0,399	9,25E-04	18,76%
583,52	114	712	0,808	1,34E-03	68,16%
596,14	74	694	0,928	8,77E-04	27,16%
609,62	787	1005	1,637	9,24E-03	4,29%
661,74	169	789	1,613	1,98E-03	13,69%
911,53	130	607	1,781	1,53E-03	15,76%
1119,94	210	621	1,614	2,47E-03	10,44%
1331,69	74	256	1,830	8,72E-04	21,37%
1368,08	939	262	2,237	1,10E-02	9,10%
1377,27	71	292	2,242	8,37E-04	23,14%
1407,52	62	195	1,622	7,34E-04	22,42%
1459,99	2634	303	2,297	3,09E-02	3,91%
1763,18	300	159	2,607	3,52E-03	12,00%
2202,45	123	94	2,503	1,45E-03	38,06%
2612,49	623	72	3,034	7,31E-03	9,30%
2751,90	457	71	2,881	5,37E-03	4,61%

Tabelle A.12.: γ-Spektrum der fünften Messung der Messserie Tankwasser I

Sechste Messung der Messserie Tankwasser I
Probe genommen am 28.12.04 um 8:30 h
Messbeginn : 09:17 h
Messzeit : 23,40 h
Zeit seit Reaktor Stillstand : 112,75 h

Energy [keV]	Net Peak Area [cts]	Bkgnd [cts]	FWHM [keV]	Cts/s	Error
75,66	739	2092	0,855	8,82E-03	66,23%
85,17	271	3164	1,001	3,23E-03	55,84%
93,30	592	5089	0,912	7,07E-03	50,56%
140,89	53823	5418	1,382	6,42E-01	0,89%
158,45	123	2018	0,287	1,48E-03	47,23%
186,22	353	2394	1,171	4,21E-03	45,59%
238,85	253	2161	1,050	3,02E-03	48,32%
295,38	297	1694	1,468	3,55E-03	11,49%
352,21	488	1657	1,438	5,82E-03	6,97%
511,13	1988	1273	2,400	2,37E-02	2,29%
583,22	220	786	1,461	2,63E-03	40,94%
602,03	136	568	1,625	1,63E-03	23,85%
609,20	558	883	1,631	6,66E-03	16,47%
661,41	133	660	1,589	1,60E-03	69,47%
860,03	72	591	1,323	8,69E-04	24,69%
910,79	202	553	1,927	2,42E-03	32,53%
968,42	127	411	1,432	1,53E-03	54,79%
1119,48	212	425	1,447	2,53E-03	31,26%
1172,43	114	472	2,073	1,36E-03	16,13%
1332,11	70	206	1,587	8,35E-04	20,58%
1367,59	288	248	2,365	3,44E-03	24,88%
1459,53	2747	270	2,083	3,28E-02	4,15%
1762,89	293	144	2,215	3,50E-03	6,36%
2201,62	107	91	2,508	1,28E-03	37,32%
2221,20	88	47	2,293	1,05E-03	12,28%
2611,95	610	75	2,755	7,28E-03	8,90%
2751,36	117	32	2,512	1,40E-03	9,84%
2976,56	11	10	0,853	1,35E-04	35,83%

Tabelle A.14.: γ-Spektrum der sechsten Messung der Messserie Tankwasser I

Siebente Messung der Messserie Tankwasser I
Probe genommen am 29.12.04 um 8:30 h
Messbeginn : um 9:07 h
Messzeit : 23,15 h
Zeit seit Reaktor Stillstand : 136,75 h

Energy [keV]	Net Peak Area [cts]	Bkgnd [cts]	FWHM [keV]	Cts/s	Error
74,60	1077	3033	3,480	1,30E-02	5,97%
186,00	3389	1,412	2,25E-03	57,02%	
93,01	227	4991	1,420	2,75E-03	56,99%
140,51	40602	6902	1,910	4,90E-01	0,53%
185,89	500	4087	1,811	6,04E-03	10,83%
238,70	163	1895	1,251	1,97E-03	25,47%
295,35	294	1975	1,972	3,55E-03	14,33%
351,94	472	1539	1,811	5,70E-03	8,79%
511,29	2021	1346	2,776	2,44E-02	2,81%
564,06	78	585	1,113	9,48E-04	27,57%
583,50	119	686	1,694	1,45E-03	22,24%
609,26	559	933	2,082	6,75E-03	6,49%
661,93	114	499	1,471	1,38E-03	20,86%
727,57	70	553	1,636	8,44E-04	32,67%
911,37	153	454	2,117	1,85E-03	15,31%
1332,59	51	219	1,292	6,25E-04	25,88%
1368,66	86	225	1,537	1,05E-03	44,14%
1377,38	51	226	1,539	6,17E-04	47,03%
1460,83	2319	234	2,235	2,80E-02	4,55%
1764,38	274	113	2,485	3,32E-03	6,85%
2204,06	81	78	2,451	9,81E-04	14,69%
2614,51	571	59	2,852	6,89E-03	4,06%
2754,29	26	29	1,742	3,15E-04	27,50%

Tabelle A.16.: γ-Spektrum der siebten Messung der Messserie Tankwasser I

Achte Messung der Messserie Tankwasser I
Probe genommen am 30.12.04 um 8:30 h
Messbeginn : 09:08 h am 30.12.04
Messzeit : 23,57 h
Zeit seit Reaktor Stillstand : 160,75 h

Energy [keV]	Net Peak Area [cts]	Bkgnd [cts]	FWHM [keV]	Cts/s	Error
75,73	728	1977	1,145	8,63E-03	35,17%
85,82	358	2873	0,314	4,24E-03	154,31%
93,53	582	3927	0,846	6,90E-03	26,25%
141,12	30821	4229	1,324	3,65E-01	1,21%
186,39	455	2641	1,325	5,40E-03	45,24%
238,90	234	1808	0,953	2,77E-03	15,04%
295,74	211	1981	0,970	2,51E-03	14,56%
352,20	516	1308	1,469	6,12E-03	24,88%
511,15	1991	1811	2,643	2,36E-02	12,52%
602,64	63	577	1,361	7,49E-04	31,54%
609,29	495	696	1,366	5,87E-03	5,83%
661,50	116	746	0,979	1,38E-03	46,00%
910,68	174	573	1,739	2,06E-03	11,46%
1115,14	49	347	1,718	5,87E-04	31,57%
1119,47	177	404	1,720	2,10E-03	10,86%
1154,17	59	284	1,442	7,02E-04	25,84%
1172,10	74	364	0,821	8,82E-04	18,08%
1236,95	107	372	1,893	1,28E-03	15,58%
1332,36	151	220	1,021	1,79E-03	42,46%
1406,77	37	131	0,943	4,47E-04	29,09%
1459,55	2269	237	2,181	2,69E-02	4,37%
1507,60	57	115	1,569	6,82E-04	19,46%
1591,18	38	141	1,646	4,62E-04	29,41%
1762,83	265	151	2,140	3,14E-03	6,72%
2201,58	118	81	2,957	1,40E-03	16,18%
2220,91	82	58	2,067	9,73E-04	13,25%
2611,88	593	35	2,556	7,03E-03	9,21%

Tabelle A.18.: γ-Spektrum der achten Messung der Messserie Tankwasser I

Neunte Messung der Messserie Tankwasser I
Probe genommen am 31.12.04 um 8:30 h
Messbeginn : 09:00 h
Messzeit : 23,51 h
Zeit seit Reaktor Stillstand : 184,75 h

Energy [keV]	Net Peak Area [cts]	Bkgnd [cts]	FWHM [keV]	Cts/s	Error
75,74	654	1706	1,446	7,77E-03	26,03%
85,32	346	2493	1,017	4,12E-03	44,03%
93,26	483	4107	1,311	5,74E-03	40,19%
140,98	24762	4139	1,414	2,94E-01	1,42%
186,16	510	2330	1,568	6,06E-03	49,55%
238,82	229	2183	0,955	2,72E-03	15,49%
352,26	345	1617	1,231	4,11E-03	9,16%
511,12	2035	1118	2,660	2,42E-02	8,61%
602,47	131	792	1,567	1,56E-03	26,20%
609,18	447	872	1,572	5,31E-03	21,52%
661,42	112	518	1,261	1,34E-03	18,43%
708,44	56	405	0,430	6,72E-04	30,30%
910,78	300	545	2,983	3,57E-03	48,96%
1119,43	159	479	1,583	1,89E-03	12,42%
1172,29	66	311	1,748	7,88E-04	24,82%
1459,65	2202	201	2,097	2,62E-02	4,72%
1762,95	252	165	2,223	3,00E-03	12,62%
2202,01	98	74	2,088	1,17E-03	36,93%
2221,25	49	65	2,119	5,90E-04	19,56%
2445,83	37	28	1,882	4,49E-04	20,94%
2612,13	637	47	2,711	7,57E-03	8,65%

Tabelle A.20.: γ-Spektrum der neunten Messung der Messserie Tankwasser I

Zehnte Messung der Messserie Tankwasser I
Probe genommen am 01.01.05 um 8.35 h
Messbeginn : 08:40
Messzeit : 15,32 h
Zeit seit Reaktor Stillstand : 208,75 h

Energy [keV]	Net Peak Area [cts]	Bkgnd [cts]	FWHM [keV]	Cts/s	Error
85,14	349	1908	1,633	6,36E-03	54,83%
140,87	17950	2773	1,528	3,27E-01	0,71%
186,01	240	2058	2,023	4,38E-03	73,88%
198,73	124	1344	0,885	2,27E-03	23,53%
352,01	323	947	2,015	5,90E-03	40,82%
511,13	1313	718	2,713	2,39E-02	13,27%
583,35	173	530	1,291	3,15E-03	37,10%
608,98	268	653	1,658	4,90E-03	8,49%
860,10	45	218	1,154	8,33E-04	62,38%
910,41	129	299	2,092	2,36E-03	12,58%
1119,63	108	206	1,883	1,99E-03	14,25%
1459,55	1538	178	2,332	2,80E-02	5,59%
1762,83	155	70	2,328	2,83E-03	25,83%
1845,37	29	41	1,652	5,34E-04	26,56%
2202,35	90	46	2,248	1,64E-03	11,94%
2612,02	372	35	2,640	6,78E-03	11,99%

Tabelle A.22.: γ-Spektrum der zehnten Messung der Messserie Tankwasser I

Elfte Messung der Messserie Tankwasser I
Probe genommen am 03.01.05 um 9:50 h
Messbeginn : 11:05 h am 04.01.05
Messzeit : 22,31 h
Zeit seit Reaktor Stillstand : 232,75 h

Energy [keV]	Net Peak Area [cts]	Bkgnd [cts]	FWHM [keV]	Cts/s	Error
74,84	552	1190	1,210	6,92E-03	37,47%
92,56	360	2350	1,061	4,51E-03	37,92%
140,39	783	2708	1,471	9,81E-03	25,39%
185,54	482	2408	1,733	6,04E-03	59,75%
208,11	165	1821	0,285	2,07E-03	8,89%
238,54	223	1772	0,798	2,80E-03	13,12%
295,58	275	1470	1,011	3,44E-03	10,87%
351,92	376	1276	1,337	4,71E-03	30,86%
511,30	1726	1080	1,847	2,16E-02	2,20%
609,22	503	736	1,407	6,31E-03	18,85%
661,40	149	657	1,213	1,87E-03	12,44%
834,95	90	426	1,483	1,13E-03	17,00%
911,29	209	450	1,715	2,62E-03	38,98%
968,83	97	363	1,390	1,22E-03	16,40%
1120,16	160	497	1,767	2,00E-03	11,27%
1173,55	90	319	1,736	1,14E-03	16,85%
1238,13	78	239	1,427	9,83E-04	1502,50%
1332,05	110	208	1,849	1,39E-03	13,04%
1460,76	2371	217	2,064	2,97E-02	4,63%
1729,78	46	74	1,063	5,86E-04	56,83%
1764,62	260	122	2,240	3,26E-03	18,91%
2030,66	26	49	1,639	3,31E-04	31,49%
2103,67	67	77	2,933	8,51E-04	41,78%
2204,10	100	82	2,915	1,26E-03	11,72%
2614,74	583	50	2,626	7,31E-03	9,14%

Tabelle A.24.: γ-Spektrum der elften Messung der Messserie Tankwasser I

B. Messwerte der Messserie Tankwasser II

Leerwert der Messserie Tankwasser II
Probe genommen am 05.03.05 um 10:30 h
Messbeginn um 10:44 h
Messzeit : 47,63 h

Energy [keV]	Net Peak Area [cts]	Bkgnd [cts]	FWHM [keV]	Cts/s	Error
73,14	399	2717	1,26	2,33E-03	30,87%
75,16	940	3609	1,265	5,49E-03	23,8%
84,90	564	4413	1,079	3,29E-03	9,78%
92,86	852	7456	1,211	4,97E-03	7,02%
185,85	712	10455	1,285	4,16E-03	8,45%
238,61	738	4635	1,089	4,31E-03	18,49%
242,01	520	4926	1,093	3,04E-03	18,82%
250,26	177	3309	0,498	1,04E-03	73,7%
295,26	1195	3824	1,373	6,97E-03	17,38%
351,96	2049	3381	1,442	1,20E-02	2,8%
510,87	4192	2426	2,570	2,45E-02	6%
582,99	299	1475	1,359	1,75E-03	11,19%
595,45	118	1268	1,119	6,90E-04	24,8%
609,05	2040	1819	1,625	1,19E-02	2,52%
629,89	176	1354	1,013	1,03E-03	16,64%
661,32	205	1341	1,533	1,20E-03	14,57%
665,24	127	1268	1,536	7,44E-04	21,46%
691,46	96	1157	0,999	5,65E-04	27,31%
767,96	249	1329	1,713	1,46E-03	126,31%
833,78	642	1279	1,523	3,75E-03	16,99%
910,69	347	889	1,781	2,03E-03	8,46%
933,97	113	804	1,234	6,61E-04	43,07%
968,11	195	956	1,451	1,14E-03	13,8%
1030,33	66	445	1,178	3,86E-04	32,8%
1115,18	104	683	1,631	6,11E-04	22,14%
1119,49	555	948	1,634	3,24E-03	5,77%

1172,45	177	740	1,711	1,04E-03	13,96%
1237,20	356	921	2,402	2,08E-03	46,04%
1331,50	158	552	1,695	9,27E-04	13,36%
1376,71	186	418	1,625	1,09E-03	38,2%
1407,17	107	474	1,682	6,27E-04	17,58%
1459,82	5315	537	2,107	3,10E-02	2,97%
1495,07	61	228	1,535	3,58E-04	87,86%
1508,00	77	279	1,636	4,53E-04	76,47%
1587,10	52	264	1,505	3,07E-04	26,39%
1591,57	77	266	1,507	4,53E-04	19,97%
1728,17	175	314	2,138	1,02E-03	34,15%
1763,29	824	304	2,179	4,81E-03	9,65%
1846,03	118	185	1,799	6,88E-04	45,91%
2102,37	113	200	2,652	6,63E-04	13,62%
2202,2	298	240	2,901	1,74E-03	22,61%
2221,73	99	176	1,684	5,78E-04	14,25%
2445,85	88	138	2,483	5,16E-04	48,69%
2612,72	1209	126	2,527	7,05E-03	6,57%

Tabelle B.2.: γ-Spektrum des Leerwerts der Messserie Tankwasser II

Erste Messung der Messserie Tankwasser II
Probe genommen am 28.02.05 um 8:56 h
Messbeginn : 11:26 h
Messzeit : 5,00 h

Energy [keV]	Net Peak Area [cts]	Bkgnd [cts]	FWHM [keV]	Cts/s	Error
76,60	659	2948	0,523	3,68E-02	65,96%
86,15	363	3435	0,908	2,03E-02	49,80%
141,70	19510	7189	1,241	1,09E+00	1,90%
511,67	22643	4023	2,776	1,27E+00	2,06%
610,42	378	2834	0,631	2,11E-02	60,55%
846,76	2867	3321	1,640	1,60E-01	6,55%
1292,83	47014	1325	1,965	2,63E+00	0,81%
1367,82	53651	1040	2,015	3,00E+00	0,74%
1459,86	549	607	2,046	3,06E-02	16,48%
1730,57	3324	726	2,244	1,86E-01	4,44%
1809,37	301	690	1,692	1,68E-02	8,89%
2240,87	4862	1380	3,307	2,72E-01	3,99%

2612,13	117	613	2,067	6,53E-03	19,30%
2751,14	28927	343	2,729	1,62E+00	1,08%

Tabelle B.4.: γ-Spektrum der ersten Messung der Messserie Tankwasser II

Zweite Messung der Messserie Tankwasser II
Probe genommen am 28.02.05 um 15:56 h
Messbeginn : 16:47 h
Messzeit : 16,34 h

Energy [keV]	Net Peak Area [cts]	Bkgnd [cts]	FWHM [keV]	Cts/s	Error
73,37	11623	120360	1,201	2,01E-01	5,93%
75,63	23076	201499	1,207	3,99E-01	4,72%
82,32	6447	190247	1,299	1,12E-01	10,38%
85,38	22271	335485	1,306	3,86E-01	7,10%
88,29	8120	421053	1,312	1,41E-01	7,75%
98,30	3977	226243	0,635	6,89E-02	3,70%
110,02	3395	291204	1,244	5,88E-02	50,80%
134,84	5711	265364	1,306	9,88E-02	7,06%
137,80	3863	344645	1,311	6,69E-02	10,10%
140,96	87334	344181	1,316	1,51E+00	2,23%
202,88	12051	337466	2,313	2,09E-01	3,63%
220,49	3790	302764	1,106	6,56E-02	7,20%
244,78	1453	279030	1,586	2,52E-02	36,41%
250,36	5603	434180	1,592	9,70E-02	28,36%
271,96	3465	336606	1,114	6,00E-02	92,53%
346,93	18352	364158	1,456	3,18E-01	1,97%
511,04	581030	224552	2,783	1,01E+01	0,47%
529,99	1966	161347	1,472	3,40E-02	14,46%
629,83	4370	165878	1,445	7,56E-02	14,59%
648,21	1051	98097	1,373	1,82E-02	25,90%
685,70	2174	150595	1,511	3,76E-02	13,00%
783,34	3875	163673	0,854	6,71E-02	2,70%
833,66	14757	351389	1,792	2,55E-01	12,62%
846,19	79473	206737	1,773	1,38E+00	1,86%
857,06	23991	219631	2,692	4,15E-01	7,12%
893,85	1782	178967	0,698	3,09E-02	4,78%
1073,77	1381	211558	1,494	2,39E-02	24,90%
1077,10	2114	227032	1,496	3,66E-02	17,13%
1146,01	4249	273400	5,659	7,36E-02	17,26%

1258,17	789	60847	1,286	1,37E-02	23,42%
1260,41	968	65010	1,287	1,68E-02	19,42%
1292,36	1275125	97718	2,043	2,21E+01	0,17%
1367,51	4940253	92632	2,071	8,55E+01	0,08%
1459,66	1409	44035	2,017	2,44E-02	11,42%
1730,38	312735	80527	2,335	5,41E+00	0,41%
1808,93	11260	84727	2,201	1,95E-01	7,11%
1877,73	1798	82221	3,015	3,11E-02	11,84%
2110,96	4554	91063	2,064	7,88E-02	17,12%
2199,72	1505	111016	1,878	2,61E-02	14,31%
2240,81	440618	134057	3,421	7,63E+00	0,40%
2514,68	8469	204883	5,044	1,47E-01	4,08%
2612,30	734	58394	2,450	1,27E-02	26,73%
2751,24	2665238	36254	2,782	4,61E+01	0,11%
2956,30	186	3473	1,829	3,23E-03	30,43%
3097,42	3143	6724	2,840	5,44E-02	5,70%

Tabelle B.6.: γ-Spektrum der zweiten Messung der Messserie Tankwasser II

Dritte Messung der Messserie Tankwasser II
Probe genommen am 01.03.05 um 8:59 h
Messbeginn : 9:35 h
Messzeit : 6,53 h

Energy [keV]	Net Peak Area [cts]	Bkgnd [cts]	FWHM [keV]	Cts/s	Error
75,74	2126	12338	1,058	9,11E-02	51,87%
85,44	1285	16143	0,884	5,51E-02	26,13%
88,14	450	28730	0,890	1,93E-02	25,55%
140,92	66686	30709	1,252	2,86E+00	1,08%
250,19	1521	25798	1,209	6,52E-02	32,39%
347,04	1076	16382	1,712	4,61E-02	9,39%
511,15	107459	18808	2,806	4,60E+00	0,83%
609,28	336	8361	1,077	1,44E-02	22,38%
629,82	528	9928	1,773	2,26E-02	15,37%
782,33	552	12237	1,919	2,37E-02	15,09%
833,94	1585	16763	1,813	6,79E-02	21,33%
843,53	6100	14376	1,718	2,61E-01	5,52%
846,44	10264	15249	1,720	4,40E-01	4,68%
857,42	1321	16391	2,285	5,66E-02	30,88%
1013,94	2164	16476	1,807	9,27E-02	20,15%
1292,79	237778	5795	1,984	1,02E+01	0,35%
1367,84	246776	4510	1,996	1,06E+01	0,35%
1460,18	600	2193	1,583	2,57E-02	25,48%
1699,41	96	1493	1,017	4,15E-03	32,86%
1730,83	15506	4204	2,372	6,64E-01	1,81%
1809,56	1241	3775	2,248	5,32E-02	4,49%
2111,89	613	4826	1,733	2,63E-02	27,14%
2200,71	182	3251	2,059	7,81E-03	27,35%
2241,41	22212	6787	3,369	9,51E-01	1,84%
2752,03	133211	1658	2,709	5,71E+00	0,49%
3098,24	135	274	2,514	5,79E-03	12,93%

Tabelle B.8.: γ-Spektrum der dritten Messung der Messserie Tankwasser II

Vierte Messung der Messserie Tankwasser II
Probe genommen am 01.03.05 um 16:01 h
Messbeginn : 16:23 h
Messzeit : 16,66 h

Energy [keV]	Net Peak Area [cts]	Bkgnd [cts]	FWHM [keV]	Cts/s	Error
73,02	10958	125674	1,251	1,86E-01	6,97%
75,18	23725	210313	1,256	4,03E-01	5,44%
85,03	17261	210034	1,197	2,93E-01	9,83%
87,81	5859	336792	1,203	9,96E-02	8,92%
134,59	3891	312340	1,195	6,61E-02	10,50%
140,57	145622	307929	1,291	2,47E+00	0,37%
146,82	2418	303028	1,222	4,11E-02	71,87%
165,52	3813	342885	0,647	6,48E-02	3,88%
196,05	1211	227483	1,119	2,06E-02	54,50%
203,28	17111	350167	2,737	2,91E-01	2,68%
217,28	4721	331977	0,957	8,02E-02	4,33%
249,88	7434	632486	1,829	1,26E-01	6,36%
269,46	1151	153254	0,665	1,96E-02	26,70%
271,41	1272	151338	0,667	2,16E-02	24,67%
294,11	1279	248586	0,837	2,17E-02	27,00%
306,66	3064	236254	1,285	5,21E-02	12,03%
339,90	1311	263737	1,396	2,23E-02	24,56%
346,53	18409	253605	1,403	3,13E-01	1,99%
352,27	1939	244851	1,409	3,29E-02	16,47%
391,82	972	121168	1,037	1,65E-02	48,29%
453,19	834	120712	0,376	1,42E-02	9,60%
510,71	641898	236532	2,769	1,09E+01	0,43%
600,39	1790	150299	1,562	3,04E-02	16,22%
629,50	5914	184741	1,579	1,01E-01	11,21%
685,20	2871	146636	1,563	4,88E-02	10,15%
782,17	3165	240226	2,170	5,38E-02	54,57%
810,40	1162	115668	0,691	1,98E-02	63,95%
833,33	19585	200736	1,818	3,33E-01	1,71%
845,96	88166	228026	1,718	1,50E+00	1,70%
856,84	25785	240445	2,816	4,38E-01	7,08%
1148,67	20167	389447	6,246	3,43E-01	28,54%
1292,29	1354339	105566	2,029	2,30E+01	0,15%
1362,47	8938	76013	2,025	1,52E-01	2,52%
1367,29	5142463	69793	2,029	8,74E+01	0,08%
1459,66	1730	42851	0,827	2,94E-02	26,32%
1462,55	998	64340	0,829	1,70E-02	23,50%
1675,70	667	48141	1,685	1,13E-02	24,91%

1730,20	323289	84557	2,287	5,49E+00	0,41%
1808,97	11766	96023	2,221	2,00E-01	2,87%
1859,56	1078	65334	2,315	1,83E-02	18,90%
1877,74	1933	143790	2,099	3,29E-02	41,64%
2111,06	5653	106544	2,466	9,60E-02	17,29%
2199,37	2239	92982	2,263	3,80E-02	10,15%
2240,71	458187	138669	3,384	7,78E+00	0,41%
2751,21	2765322	38745	2,752	4,70E+01	0,11%
2841,65	428	6359	3,292	7,28E-03	16,80%
2957,10	194	4230	1,426	3,30E-03	91,46%
3097,41	3481	7837	2,776	5,92E-02	7,59%

Tabelle B.10.: γ-Spektrum der vierten Messung der Messserie Tankwasser II

Fünfte Messung der Messserie Tankwasser II
Probe genommen am 02.03.05 um 8:39 h
Messbeginn : 9:19 h
Messzeit : 7,16 h

Energy [keV]	Net Peak Area [cts]	Bkgnd [cts]	FWHM [keV]	Cts/s	Error
75,34	805	3275	0,954	3,14E-02	63,48%
85,21	348	4490	0,533	1,36E-02	53,55%
134,44	330	8507	0,816	1,29E-02	19,91%
140,66	82578	7113	1,263	3,22E+00	0,69%
249,74	1505	4328	1,244	5,87E-02	3,97%
346,63	180	2219	1,351	7,04E-03	21,05%
351,99	372	2829	1,356	1,45E-02	11,19%
510,88	3933	2743	2,595	1,53E-01	6,91%
609,05	377	1388	1,283	1,47E-02	9,61%
629,65	287	1718	1,575	1,12E-02	12,16%
685,36	394	2347	1,908	1,54E-02	9,40%
833,45	681	1923	1,695	2,66E-02	6,03%
856,93	196	2044	1,809	7,65E-03	18,51%
1292,38	1381	1222	1,936	5,39E-02	10,05%
1367,38	63588	1166	2,026	2,48E+00	0,67%
1459,50	761	745	1,960	2,97E-02	13,60%
1730,30	4162	993	2,349	1,62E-01	3,91%
2240,82	5610	1801	3,281	2,19E-01	3,93%
2612,29	204	645	3,836	7,98E-03	12,93%
2751,34	33990	481	2,733	1,33E+00	0,97%

Tabelle B.12.: γ-Spektrum der fünften Messung der Messserie Tankwasser II

Sechste Messung der Messserie Tankwasser II
Probe genommen am 02.03.05 um 15:45
Messbeginn : 16:40 h
Messzeit : 16,11 h

Energy [keV]	Net Peak Area [cts]	Bkgnd [cts]	FWHM [keV]	Cts/s	Error
72,91	9914	113403	1,186	1,74E-01	7,14%
75,11	22250	189744	1,191	3,90E-01	5,43%
84,92	16544	206116	1,377	2,90E-01	8,68%
87,82	7100	326820	1,383	1,25E-01	8,54%
98,10	1130	198542	0,485	1,98E-02	54,57%
134,52	4533	282750	1,118	7,95E-02	33,28%
140,48	185140	330339	1,284	3,25E+00	1,12%
155,45	1812	290326	1,083	3,18E-02	20,50%
165,38	1475	214001	0,968	2,59E-02	24,56%
183,58	1064	185244	0,746	1,87E-02	31,78%
195,90	1183	181537	0,965	2,08E-02	48,55%
203,13	14394	315070	2,987	2,53E-01	3,08%
223,55	1881	265326	1,184	3,30E-02	21,23%
235,62	1499	266622	0,850	2,63E-02	25,01%
269,19	1725	273476	0,979	3,03E-02	20,84%
306,42	2661	210961	1,626	4,67E-02	13,85%
346,47	16863	209479	1,428	2,96E-01	2,05%
479,10	1461	118209	1,178	2,57E-02	18,94%
510,59	544788	210836	2,765	9,56E+00	0,49%
629,49	5185	124340	1,307	9,10E-02	18,18%
685,47	2668	172662	0,815	4,68E-02	37,38%
833,24	17091	170736	1,756	3,00E-01	1,84%
845,78	76885	204470	1,720	1,35E+00	1,83%
856,68	22721	205302	2,686	3,99E-01	7,37%
893,23	1462	123804	1,158	2,57E-02	19,24%
1150,18	17943	341246	4,719	3,15E-01	2,58%
1292,04	1191644	91500	1,981	2,09E+01	0,18%
1367,18	4642070	86326	2,034	8,14E+01	0,08%
1459,28	1370	46841	1,897	2,41E-02	44,29%
1730,08	291896	76542	2,297	5,12E+00	0,43%
1808,70	10925	72954	2,228	1,92E-01	1,97%
1877,39	1418	80753	2,653	2,49E-02	14,18%
2110,78	5565	100320	2,212	9,76E-02	15,40%
2199,48	1791	100569	1,678	3,14E-02	39,54%
2240,57	413343	125475	3,385	7,25E+00	0,42%
2751,07	2505278	33701	2,730	4,40E+01	0,12%
2841,06	316	4628	2,263	5,55E-03	19,80%

3097,24	3230	5636	2,896	5,67E-02	2,40%

Tabelle B.14.: γ-Spektrum der sechsten Messung der Messserie Tankwasser II

Siebente Messung der Messserie Tankwasser II
Probe genommen am 03.03.05 um 8:40
Messbeginn : 8:59 h
Messzeit : 7,12 h

Energy [keV]	Net Peak Area [cts]	Bkgnd [cts]	FWHM [keV]	Cts/s	Error
75,20	791	3289	1,161	3,10E-02	26,64%
84,82	435	4854	1,088	1,71E-02	41,94%
134,47	426	9804	0,920	1,67E-02	52,99%
140,56	102984	8617	1,275	4,04E+00	0,56%
249,63	1607	4353	1,373	6,30E-02	16,16%
346,49	211	1887	1,135	8,28E-03	18,26%
351,98	261	2502	1,141	1,03E-02	15,02%
479,24	373	2083	1,275	1,47E-02	10,40%
510,77	4011	2955	2,587	1,57E-01	6,77%
608,90	303	2153	1,703	1,19E-02	12,00%
629,52	431	2305	1,590	1,69E-02	8,82%
685,35	434	1917	1,391	1,70E-02	28,27%
818,10	96	1229	0,974	3,78E-03	31,87%
833,44	1527	2518	1,693	5,99E-02	11,50%
856,80	272	2180	1,469	1,07E-02	63,15%
1292,42	1467	955	2,058	5,75E-02	2,93%
1367,45	66267	1290	2,031	2,60E+00	0,65%
1459,61	816	913	2,015	3,20E-02	13,12%
1730,42	4064	1082	2,248	1,59E-01	4,11%
2200,19	127	982	2,302	4,99E-03	22,42%
2241,00	5783	2111	3,326	2,27E-01	3,73%
2612,54	257	744	2,385	1,01E-02	10,59%
2751,60	36047	477	2,757	1,41E+00	0,96%

Tabelle B.16.: γ-Spektrum der siebten Messung der Messserie Tankwasser II

Achte Messung der Messserie Tankwasser II
Probe genommen am 03.03.05 um 16:02 h
Messbeginn : 16:14 h
Messzeit : 22,31 h

Energy [keV]	Net Peak Area [cts]	Bkgnd [cts]	FWHM [keV]	Cts/s	Error
72,89	11619	131698	1,255	1,92E-01	7,20%
75,08	26415	220236	1,260	4,36E-01	5,43%
84,91	20637	239628	1,408	3,41E-01	7,95%
87,72	7302	395499	1,414	1,21E-01	7,65%
134,51	5351	359673	1,453	8,83E-02	35,89%
140,47	224593	384555	1,312	3,71E+00	0,96%
147,01	1007	201970	0,673	1,66E-02	58,51%
171,48	1979	220189	0,970	3,27E-02	19,90%
183,45	3146	323273	1,309	5,19E-02	45,60%
195,96	1621	237044	0,799	2,68E-02	41,58%
203,37	17325	338894	2,748	2,86E-01	2,67%
217,36	11067	422021	2,030	1,83E-01	29,17%
220,12	14068	627943	2,034	2,32E-01	22,69%
223,51	14786	870417	2,038	2,44E-01	18,69%
235,88	6936	907104	2,066	1,15E-01	21,91%
238,72	13070	1114762	2,070	2,16E-01	17,16%
244,14	16205	1525586	2,077	2,68E-01	10,65%
249,88	23319	1959206	2,083	3,85E-01	9,77%
256,62	8926	2109048	2,092	1,47E-01	12,27%
346,47	18156	207909	1,305	3,00E-01	2,04%
351,99	1150	219903	1,311	1,90E-02	27,40%
475,77	1256	135932	1,345	2,07E-02	74,45%
479,34	4250	257022	1,349	7,02E-02	45,08%
510,63	686024	245632	2,773	1,13E+01	0,42%
550,83	1266	122832	1,340	2,09E-02	22,88%
563,90	1299	220176	1,293	2,15E-02	76,98%
600,41	1584	156261	1,319	2,62E-02	18,22%
629,51	6252	168471	1,604	1,03E-01	20,45%
685,47	2965	164046	0,996	4,90E-02	33,51%
782,86	3337	177835	1,198	5,51E-02	75,63%
833,31	21480	196246	1,787	3,55E-01	1,59%
845,90	96786	248457	1,668	1,60E+00	1,51%
856,77	26839	249752	2,636	4,43E-01	1,39%
893,31	1254	208376	1,107	2,07E-02	23,88%
1013,42	3874	262057	1,674	6,40E-02	9,51%
1150,92	14701	385851	4,535	2,43E-01	3,25%
1292,23	1428702	110069	2,000	2,36E+01	0,16%

1312,66	492	41174	1,217	8,13E-03	35,98%
1367,32	5320025	99895	2,035	8,78E+01	0,07%
1459,37	953	34330	1,219	1,57E-02	15,86%
1730,26	334122	88403	2,298	5,52E+00	0,38%
1808,99	12565	91447	2,292	2,07E-01	7,52%
2110,91	5534	97758	2,079	9,14E-02	4,17%
2199,38	2634	73736	1,860	4,35E-02	34,20%
2240,82	475326	143452	3,387	7,85E+00	0,39%
2515,22	10139	226570	5,547	1,67E-01	3,60%
2751,37	2868239	39473	2,723	4,74E+01	0,11%
3097,61	3469	6747	2,818	5,73E-02	2,37%

Tabelle B.18.: γ-Spektrum der achten Messung der Messserie Tankwasser II

Neunte Messung der Messserie Tankwasser II
Probe genommen am 04.03.05 um 9:18
Messbeginn : 11:05 h
Messzeit : 6,43 h

Energy [keV]	Net Peak Area [cts]	Bkgnd [cts]	FWHM [keV]	Cts/s	Error
75,04	773	2850	0,983	3,36E-02	24,22%
140,44	109307	7896	1,300	4,75E+00	0,61%
249,56	1434	4325	1,366	6,23E-02	12,99%
346,33	160	2211	1,198	6,96E-03	21,84%
351,82	281	2130	1,204	1,22E-02	13,47%
479,13	301	1820	1,849	1,31E-02	11,81%
510,66	3321	2380	2,694	1,44E-01	7,92%
600,91	156	1488	1,540	6,78E-03	36,93%
608,63	386	2356	1,546	1,68E-02	29,19%
629,31	511	1384	1,477	2,22E-02	7,27%
685,05	264	1409	1,465	1,15E-02	12,48%
772,15	138	1330	0,677	6,03E-03	59,24%
833,24	1649	2201	1,759	7,16E-02	11,51%
856,99	189	1974	1,842	8,22E-03	17,68%
893,60	148	1930	0,457	6,46E-03	11,23%
1049,69	134	2221	0,896	5,84E-03	82,27%
1292,30	1736	910	2,148	7,54E-02	7,50%
1367,26	53119	976	2,036	2,31E+00	0,77%
1459,47	647	613	1,708	2,81E-02	13,89%
1730,22	3281	896	2,262	1,43E-01	4,58%
2199,41	241	1133	2,522	1,05E-02	11,49%
2240,82	4727	1509	3,284	2,05E-01	1,43%
2611,38	225	548	3,070	9,79E-03	10,77%
2751,31	28650	368	2,796	1,24E+00	1,06%

Tabelle B.20.: γ-Spektrum der neunten Messung der Messserie Tankwasser II

Zehnte Messung der Messserie Tankwasser II
Probe genommen am 04.03.05 um 15:56 h
Messbeginn : 16:14 h
Messzeit : 18,20 h

Energy [keV]	Net Peak Area [cts]	Bkgnd [cts]	FWHM [keV]	Cts/s	Error
72,96	12546	131511	1,300	1,95E-01	7,04%
75,11	25651	219851	1,305	3,99E-01	5,49%
84,90	19633	239223	1,393	3,05E-01	8,10%
87,69	6636	376326	1,399	1,03E-01	8,39%
98,12	2222	230973	0,522	3,45E-02	5,55%
122,94	1867	282521	0,450	2,90E-02	5,54%
134,87	3617	299280	0,377	5,62E-02	4,50%
140,49	253526	382808	1,307	3,94E+00	0,88%
146,94	2943	228358	1,016	4,57E-02	13,18%
150,15	1979	255251	1,021	3,08E-02	18,51%
156,10	2344	308984	0,743	3,64E-02	113,00%
171,39	2214	245675	1,215	3,44E-02	18,08%
183,83	1497	214687	0,843	2,33E-02	24,98%
192,50	1102	184165	0,786	1,71E-02	28,12%
195,87	2999	182962	0,791	4,66E-02	12,24%
203,87	16020	338507	2,914	2,49E-01	2,99%
220,55	2191	331985	1,208	3,41E-02	17,36%
249,81	7308	684516	1,573	1,14E-01	6,23%
269,24	2078	211657	1,049	3,23E-02	17,57%
271,54	2201	260163	1,052	3,42E-02	16,66%
306,60	4943	289099	1,528	7,68E-02	7,84%
346,52	18042	497458	1,337	2,80E-01	2,05%
479,58	2978	202690	1,536	4,63E-02	58,83%
510,66	696088	244770	2,778	1,08E+01	0,41%
563,50	784	109184	0,950	1,22E-02	34,27%
629,62	6163	118941	1,205	9,57E-02	19,23%
636,95	1102	177262	1,211	1,71E-02	25,83%
685,11	4069	173193	1,510	6,32E-02	30,80%
810,35	2691	214418	0,947	4,18E-02	138,78%
833,39	21785	182748	1,851	3,38E-01	1,56%
845,95	89828	212038	1,674	1,40E+00	1,59%
856,89	25535	248947	2,805	3,97E-01	7,70%
893,40	2077	180513	1,202	3,23E-02	14,63%
1013,33	3202	259069	1,633	4,97E-02	11,39%
1143,73	31022	953304	7,080	4,82E-01	10,94%
1149,04	61558	953304	7,083	9,56E-01	7,96%

1292,27	1392376	108884	1,994	2,16E+01	0,16%
1367,45	5288908	98409	2,049	8,22E+01	0,07%
1459,45	2481	113470	2,797	3,85E-02	32,27%
1595,32	671	42478	1,149	1,04E-02	54,50%
1603,42	578	51588	1,153	8,99E-03	52,51%
1730,42	334513	87341	2,316	5,20E+00	0,41%
1809,04	12403	98018	2,274	1,93E-01	8,38%
1859,25	608	55343	1,419	9,45E-03	31,12%
1878,19	1855	71849	2,460	2,88E-02	11,55%
2111,11	5323	88684	2,291	8,27E-02	4,37%
2199,53	2876	105539	3,035	4,47E-02	43,29%
2241,02	474079	147402	3,388	7,36E+00	0,38%
2398,43	852	90726	1,231	1,32E-02	27,05%
2751,62	2851346	39141	2,741	4,43E+01	0,11%
2842,19	227	4739	1,629	3,53E-03	26,95%
3097,85	3519	7410	2,771	5,47E-02	7,88%

Tabelle B.22.: γ-Spektrum der zehnten Messung der Messserie Tankwasser II

C. Messwerte der Flüssigszintillationsspektrometrie

Messwerte der Quench-Proben
Proben hergestellt am 23.05.05
Messzeit pro Probe : 3 h

Probe(ml)	Aqua dest(ml)	Zählrate[cts/s]	Fehler 2σ
0,10	0,00	157,69	0,15%
0,30	0,20	153,55	0,16%
0,50	0,40	150,51	0,16%
0,70	0,60	148,84	0,16%
0,90	0,80	147,06	0,16%
1,10	1,00	145,12	0,16%
1,30	1,20	142,13	0,17%
1,50	1,40	139,32	0,16%
1,70	1,60	137,30	0,17%
1,90	1,80	135,45	0,17%
Leerwert	-	0,74	2,24%
IAEA	1,00	43,56	0,29%

Tabelle C.1.: Messwerte der Proben zur Qunechbestimmung

Ausbeutekurve der Quench-Proben
Ausbeuten berechnet am 10.06.05

Probe(ml)	Aqua dest(ml)	Ausbeute	Fehler $+2\sigma$	Fehler -2σ
0,10	0,00	48,11%	0,81%	0,79%
0,30	0,20	46,84%	0,79%	0,77%
0,50	0,40	45,91%	0,77%	0,76%
0,70	0,60	45,39%	0,77%	0,75%
0,90	0,80	44,85%	0,76%	0,74%
1,10	1,00	44,25%	0,75%	0,73%
1,30	1,20	43,34%	0,74%	0,72%
1,50	1,40	42,48%	0,72%	0,70%
1,70	1,60	41,86%	0,71%	0,69%
1,90	1,80	41,29%	0,70%	0,69%

Tabelle C.2.: Ausbeute der Quench-Proben

Messwerte der Quench-Proben
Quenchkurve des Tankwassers erstellt am 10.06.05

Probe (1ml)	Ausbeute	Fehler 2σ
0,10	47,78%	1,00%
0,30	47,01%	1,00%
0,50	46,24%	1,00%
0,70	45,49%	1,00%
0,90	44,75%	1,00%
1,10	44,02%	1,00%
1,30	43,30%	1,00%
1,50	42,60%	1,00%
1,70	41,91%	1,00%
1,90	41,22%	1,00%

Tabelle C.3.: Quenchkurve Tankwassers

Messwerte der Proben von Tankwasser I
Proben hergestellt am 7.04.05
Messzeit pro Probe : 3 h

Proben (1ml)	Zählrate[cts/s]	Fehler 2σ
N°1 (23.12)	5,19	0,84%
N°2 (24.12)	5,19	0,84%
N°3 (25.12)	5,22	0,84%
N°4 (26.12)	5,18	0,85%
N°5 (27.12)	5,14	0,85%
N°6 (28.12)	5,16	0,85%
N°7 (29.12)	5,21	0,84%
N°8 (30.12)	5,16	0,85%
N°9 (31.12)	5,12	0,85%
N°10 (01.01)	5,12	0,85%
N°11 (02.01)	5,12	0,85%
N°12 (03.01)	5,11	0,85%
N°13 (03.01)	5,08	0,85%
N°14 (03.01)	5,09	0,85%
Leerwert	0,76	1,21%
IAEA	44,37	0,29%

Tabelle C.4.: Messwerte der Tankwasser I-Proben

Tritium-Aktivität der Proben von Tankwasser I

Probe(1ml)	Aktivität[Bq/ml]	Fehler+2σ	Fehler -2σ
N°1 (23.12)	9,99	3,52%	3,37%
N°2 (24.12)	10,00	3,52%	3,37%
N°3 (25.12)	10,06	3,52%	3,36%
N°4 (26.12)	9,96	3,54%	3,38%
N°5 (27.12)	9,87	3,54%	3,38%
N°6 (28.12)	9,91	3,54%	3,38%
N°7 (29.12)	10,04	3,52%	3,37%
N°8 (30.12)	9,93	3,54%	3,38%
N°9 (31.12)	9,83	3,54%	3,38%
N°10 (01.01)	9,84	3,54%	3,38%
N°11 (02.01)	9,82	3,54%	3,38%
N°12 (03.01)	9,82	3,54%	3,38%
N°13 (03.01)	9,73	3,54%	3,39%
N°14 (03.01)	9,76	3,54%	3,39%

Tabelle C.5.: Tritium-Aktivität der Proben von Tankwasser I

Messwerte der Proben von Tankwasser II
Proben hergestellt am 22.04.05
Messzeit pro Probe : 3 h

Proben (1ml)	Zählrate[cts/s]	Fehler 2σ
N°1 (28.02)	4,76	0,88%
N°2 (28.02)	4,80	0,88%
N°3 (01.03)	4,78	0,88%
N°4 (01.03)	4,79	0,88%
N°5 (02.03)	4,74	0,88%
N°6 (02.03)	4,80	0,88%
N°7 (03.03)	4,73	0,88%
N°8 (03.03)	4,77	0,88%
N°9 (04.03)	4,73	0,88%
N°10 (04.03)	4,76	0,88%
Leerwert	0,76	1,21%
IAEA Standard	44,89	0,29%

Tabelle C.6.: Messwerte der Tankwasser II-Proben

Tritium-Aktivität der Proben von Tankwasser I

Proben(1ml)	Aktivität[Bq/ml]	Fehler+[Bq]	Fehler+[%]	Fehler-[Bq]	Fehler - [%]
N°1 (28.02)	8,99	0,325	3,62%	0,311	3,46%
N°2 (28.02)	9,09	0,328	3,61%	0,314	3,45%
N°3 (01.03)	9,04	0,327	3,61%	0,312	3,45%
N°4 (01.03)	9,06	0,327	3,61%	0,313	3,45%
N°5 (02.03)	8,96	0,324	3,62%	0,310	3,46%
N°6 (02.03)	9,09	0,328	3,61%	0,314	3,45%
N°7 (03.03)	8,94	0,323	3,62%	0,309	3,46%
N°8 (03.03)	9,04	0,326	3,61%	0,312	3,45%
N°9 (04.03)	8,94	0,323	3,62%	0,309	3,46%
N°10 (04.03)	9,00	0,325	3,6%1	0,311	3,46%

Tabelle C.7.: Tritium-Aktivität der Proben von Tankwasser II

D. Messwerte der ICP-MS

Messungen der Tankwasser-Probe vom 22.09.04 erfolgte am 05.07.05

Element	Konz.(µg/l)	Element	Konz.(µg/l)	Element	Konz.[(µg/l)]
Li	0,0000	Se	0,000	Eu	0,0000
Be	0,0000	Rb	0,0000	Gd	0,0000
B	0,0000	Sr	0,0000	Tb	0,0000
Na	0,04	Y	0,0000	Dy	0,0000
Mg	0,00	Zr	0,0000	Ho	0,0000
Al	0,0000	Nb	0,0000	Er	0,0000
P	0,0000	Mo	0,0000	Tm	0,0000
S	0,0000	Ru	0,0000	Yb	0,0000
K	0,00	Rh	0,0000	Lu	0,0000
Ca	0,00	Pd	0,0000	Hf	0,0000
Sc	0,0000	Ag	0,0000	Ta	0,0000
Ti	0,0000	Cd	0,0000	W	0,0000
V	0,0000	In	0,0000	Re	0,0000
Cr	0,000	Sn	0,0000	Os	0,0000
Mn	0,0000	Sb	0,0000	Ir	0,0000
Fe	0,0000	Te	0,0000	Pt	0,0000
Co	0,0000	Cs	0,0000	Au	0,0000
Ni	0,0000	Ba	0,0000	Hg	0,0000
Cu	0,0001	La	0,0000	Tl	0,0000
Zn	0,0005	Ce	0,0000	Pb	0,0000
Ga	0,0000	Pr	0,0000	Bi	0,0000
Ge	0,0000	Nd	0,0000	Th	0,0000
As	0,0000	Sm	0,0000	U	0,0000

Tabelle D.1.: Messergebnisse der ICP-MS (µg/l)