

Einleitung: Die im Radiochemischen Labor der AREVA NP GmbH am Standort Erlangen anfallenden Laborabfälle müssen vor dem Verlassen des Kontrollbereiches zur uneingeschränkten Freigabe gemäß § 29 StrlSchV [1] einer Freigabemessung unterzogen werden. Gemäß der Festlegungen des Bayerischen Landesamtes für Umwelt (LfU) [2] gilt, dass vom Laborbetreiber nur solche Abfälle eigenständig und uneingeschränkt freigegeben werden dürfen, bei denen die Aktivitätskonzentration max. 10 % des Freigabegrenzwertes (§ 29 StrlSchV) gemäß der Summenformel beträgt. Für Abfälle mit höheren Aktivitätskonzentrationen zwischen 10 % und 100 % der Freigabewerte nach § 29 StrlSchV wird beim LfU ein Freigabeantrag gestellt. Bei nuklidspezifischen Messungen sind dadurch unter Verwendung eines definierten Standardnuklidvektors für die Radionuklide Co-60 und Cs-137 sehr niedrige Aktivitätskonzentrationen von typischerweise jeweils ca. 5 mBq/g einzuhalten. Mit den vorhanden stationären Gamma-Labormessplätzen waren unter Anbetracht der unterschiedlichen Abfallarten (z.B. Bauschutt, Öle, Papier, sonstige Mischabfälle) und deren Gebindegrößen und -geometrien qualitätsgesicherte Freigabemessungen nicht sinnvoll möglich.

ISOCS-Einsatz bei Freimessungen: Ein In-Situ-Gamma-Spektrometrie-Messsystem (ISOCS) mit einem hocheffizienten Reinstgermaniumdetektor, einem Kollimatorsystem, sowie einer Software zur rechnerischen Modellierung der Messobjekte (Geometrie, Dichteverteilung, etc.) unter Nutzung der sog. „Monte-Carlo-Simulation“ wurde beschafft. Dieses Messsystem wurde für allgemeinen Laborabfall qualifiziert, so dass insbesondere Gebinde mit einem hohen natürli-

chen Radioaktivitätsanteil routinemäßig freigemessen werden können, bei denen eine Freimesskammer mit einfacher, aber unspezifischer Gesamt- γ -Messung die notwendige Nachweisgrenze nicht erreicht. Das Probenvolumen kann hierbei ca. 5 – 50 L betragen, unabhängig von der eigentlichen Probengeometrie. Die erforderlichen Messzeiten liegen in der Regel im Bereich von 4 – 20 Stunden.

Geplante Weiterentwicklungen: Im Rahmen der erweiterten Anwendung des In-Situ-Messsystems soll das Messverfahren des Weiteren für die folgenden Anwendungen qualifiziert bzw. optimiert werden.

1. Bestimmung des γ -Aktivitätsinventars von 200 L-Fässern mit radioaktivem Abfall unter dem Aspekt der Hot-Spot-Problematik.
2. Bestimmung des Kernbrennstoffanteils im radioaktiven Abfall.
3. Optimierung der Abschirmung bzw. der Messumgebung zur Verringerung von Untergrundstöreinflüssen.

Im Rahmen der Posterpräsentation wird über den aktuellen Stand der Arbeiten berichtet.

Literatur: [1] *Strahlenschutzverordnung* vom 20. Juli 2001 (BGBl. I S. 1714) zuletzt geändert durch das Gesetz zur Kontrolle hochradioaktiver Strahlenquellen vom 12. August 2005 [BGBl. I S. 2365]. [2] Buß K., Kucheida D., Weith K. Projekt: Entwicklung und Durchführung eines Freimesskonzeptes für behördliche Kontrollmessungen beim Heißen-Zellen-Gebäude der Siemens AG und der Framatome ANP GmbH, *LfU-Abschlussbericht* Mai 2005.

Einleitung: Das geochemische Verhalten des langlebigen, hochmobilen Radionuklids ^{79}Se ist für die Beurteilung eines Endlagers für hoch-aktiv strahlende Abfälle (HLW) von Relevanz. Berechnungen zur Bewertung der Langzeitsicherheit von Endlagern für derartige radioaktive Abfälle zeigen, dass ^{79}Se eines der Radionuklide ist, die die mögliche Emission aus dem Endlager in die Biosphäre in einem Zeitraum von 10^4 bis 10^6 Jahren nach der Einlagerung der Abfälle dominieren [1-3]. Für die Fixierung von Radionukliden, die eventuell aus hoch-aktiven nuklearen Abfällen freigesetzt werden können, ist Pyrit eine der wichtigsten Mineralphasen. Pyrit wurde in mehreren geologischen Formationen festgestellt, die für die HLW-Endlagerung in Betracht gezogen werden: zu 0,4 bis 1,9 % in „Callovo-Oxfordian“ (Frankreich), zu etwa 1 % im „Opalinus“-Ton (Schweiz) und 1-5 % im „Boom“-Ton (Belgien) [4-6]. Unsere Untersuchungen beschäftigen sich mit der Fixierung von Selen in Pyrit. Der Fokus liegt auf der Betrachtung des Selineinbaus als Feststoff-Lösungsphase in die Pyritstruktur als FeSSe-Mischmineral unter ähnlichen sauren und anoxischen Bedingungen, wie sie in einem Endlager für radioaktive Abfälle vorherrschen.

Experimentelles: Selen-dotierte Eisensulfide wurden unter Argon-Atmosphäre in einer Handschuhbox synthetisiert. Die Eisensulfide wurden bei konstanten Bedingungen aus Lösungen mit Se(-II) Konzentrationen zwischen 10^{-3} - 10^{-6} Ml^{-1} bei unterschiedlichen sauren pH- und Eh-Bedingungen gefällt. Mittels Röntgendiffraktometrie (XRD) und Rasterelektronenmikroskopie (SEM) wurden die entstandenen Mineralphasen und Kornformen untersucht. Der Se-Gehalt aus der abgefilterten Lösung wurde mit ICP-MS bestimmt und die Se-Bindungsformen mittels Röntgen-Photoelektronenspektroskopie (XPS) und der Röntgenabsorptionsanalyse (XAFS). Diese wurde an der INE-Beamline, ANKA, KIT, Karlsruhe durchgeführt. Für XAFS Untersuchungen wurden die Fe-Sulfid Proben in mit Kapton-Folie verschlossene Probenhalter eingebracht. An den Proben wurden jeweils 6-9 Energie-Scans (12,5 bis 13,5 keV) im Fluoreszenz-Modus mit einem Fünf-Elemente-Ge-Detektor durchgeführt.

Ergebnisse: Die Ergebnisse der XRD- und SEM-Analyse ergaben, dass eine Synthese von ausschließlich Se-dotierten Pyrit mit kugelförmigen Körnern erfolgte (Durchmesser 1-2 μm , Se-Gehalte bis zu 2 Gew.%). Die mit ICP-MS ermittelten Se-Gehalte in den dekantierten Lösungen zeigen, dass mehr als 90 % des Selen durch Pyrit aus der Lösung entfernt wurden. Die XPS-Messungen an den Se-dotierten Fe-Sulfiden zeigen einen reduzierten Valenzzustand des kopräzipitierten Selen. Die XANES-Messungen deuten ebenfalls auf einen reduzierten Valenzzustand so-

wie der strukturellen Substitution von Sulfid durch Selenid hin (Abb. 1).

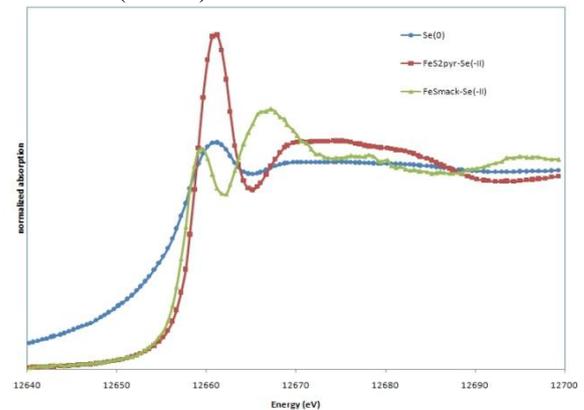


Abb. 1: XANES-Spektren von Se-dotierten Fe-Sulfiden.

Se (0) als Referenz hat einen Wert von $E_0 = 12658$ eV, Selen-dotierter Pyrit einen $E_0 = 12657$ eV und Selen-dotierter Mackinawit $E_0 = 12658$ eV. Die Ergebnisse der EXAFS-Messungen der Se-dotierten Pyrite weisen auf eine FeSSe-Bindung des im Kristallgitter eingebauten Selen hin.

Schlussfolgerungen: Unter kontrollierten Bedingungen konnte der Einbau von Se in Pyrit und dessen Vorläuferphasen erfolgreich durchgeführt und mittels XPS und EXAFS nachgewiesen werden. Der Pyrit verfügt allgemein über eine große Aufnahmekapazität für Selenid. Der spektroskopische Nachweis mit EXAFS hinsichtlich der Speziation und dem Einbau von Radionukliden in stabile Mineralphasen stellt eine Schlüsselanalytik für den Nachweis der Langzeitsicherheit von Untertagedeponien dar.

Danksagung: Die Autoren danken der Helmholtz-Gemeinschaft für die Finanzierung des „Virtual Institute of Advanced RadioGeochemistry“, der Angstroemquelle Karlsruhe (ANKA) für die Bereitstellung von Messzeit. Tanja Vítová und Jörg Rothe gebührt Dank für die Unterstützung bei den Messungen an der INE Beamline sowie Claudia Mössner für die Hilfe bei den ICP-MS-Analysen.

Literatur: [1] Malekifarsani A., Skachek M.A. *J. Environ. Radioact.* **100** (2009) 807-814. [2] Umeki H. *Soc. Symp. Proc.* **663** (2001). [3] Séby F., Potin-Gautier M., Giffaut E., Donard O. *Analisis* **26** (1998) 193-198. [4] De Craen M., Van Geet M., Wang L., Put M. *Phys. and Chem. of the Earth* **29** (2004) 91-103. [5] Gaucher E., Robelin C., Matray J.M., Negral G., Gros Y., Heitz J.F., Vinsot A., Rebours H., Cassagnabere A., Bouchet A. *Phys. and Chem. of the Earth* **29** (2004) 55-77. [6] Corkum A.G., Martin C.D. *Inter. J. of Rock Mech. and Min. Sci.* **44** (2007) 196-209.

BESTIMMUNG VON ^{14}C UND ^3H IN GRAPHIT AUS DEM THERMISCHEN KANAL DES KERNFORSCHUNGSREAKTORS IRT 2000 IN SOFIA. L. Dobrev, Tz. Valova, B. Slavchev, A. Nikiforova, E. Geleva, T. Grigorov, Tz. Simeonova, M. Iovtchev, Institute for Nuclear Research & Nuclear Energy, Bulgarian Academy of Sciences, ldobrev@inrne.bas.bg , zpeneva@inrne.bas.bg

Radiokohlenstoff (^{14}C) und Tritium (^3H) werden leicht in allen Strukturebenen der Biosphäre aufgenommen, da die Elemente C und H in den Biomakromolekülen sowie in fast allen am Metabolismus beteiligten chemischen Verbindungen vertreten sind. Obwohl sie als Radionuklide der mittleren bzw. niedrigen Radiotoxizität eingestuft sind, ist ihre Bestimmung sowohl für den Strahlenschutz der Arbeitenden im Bereich ionisierender Strahlung als auch für die Bevölkerung und die Umwelt relevant.

In der vorliegenden Arbeit wird die Bestimmung der ^{14}C - und ^3H -Aktivität in Graphitproben berichtet, die während der Rekonstruktion des Kernforschungsreaktors IRT 2000 aus dem thermischen Kanal („Zentralsäule“) entnommen wurden. Das analytische Verfahren beruht auf der Verbrennung der Probe und Abtrennen des ^{14}C und ^3H aus dem Gasgemisch mit nachfolgender Messung der aufgefangenen Fraktionen mittels Liquidszintillationsspektrometer.

Einleitung: Einige Anlagen zur geothermischen Energiegewinnung haben ein Problem durch Abscheidung radioaktiver Rückstände (Scales) aus dem Thermalwasser. Die Scales enthalten u.a. Erdalkalisulfate, Blei und Bleisulfid. Als Radionuklide sind Ra-226, Pb-210, Ra-228 und Th-228 in variierender Zusammensetzung vertreten. Die Entfernung der Scales aus den oberirdischen Anlagenteilen (Ventile, Wärmetauscher, Rohrleitungen) ist zur Erhaltung der Funktionsfähigkeit und zur Begrenzung der Dosisleistung für das Wartungspersonal erforderlich.

Falls die Scales überwachungsbedürftige Rückstände sind, müssen sie vor der Entsorgung durch Deponierung aus der behördlichen Überwachung entlassen werden. Dabei muss eine Annahmeerklärung des Deponiebetreibers vorliegen, bevor der Antrag an die Behörde gestellt werden kann. Für die Entsorgung der Scales sind folglich abfallrechtliche, radiologische und nicht zu vergessen transportrechtliche Aspekte zu beachten [1]. Mit diesen Fragen sind die Betreiber der geothermischen Anlagen häufig überfordert.

Falls der Radionuklidgehalt im Scale eine Einzelfallentscheidung nach StrlSchV §98 (1) bedingt, muss nachgewiesen werden, dass die resultierende Strahlenexposition von Einzelpersonen der Bevölkerung den Richtwert von 1 mSv nicht überschreitet.

Immobilisierung: Im vorgestellten Fall wiesen die Scales Radionuklidgehalte bis 300 Bq/g auf und erforderten folglich eine Einzelfallentscheidung. Bereits zur Einhaltung der Zuordnungswerte der Depo-nieklasse III war eine Verringerung der Bleikonzentration im Eluat unumgänglich. Durch mechanische und chemische Fixierung der Scales mit einem Bindemittel sollten gleichzeitig die Mobilisierbarkeit der Radionuklide und Schwermetalle vermindert sowie eine relevante Exposition durch Staubinkorporation bei der Deponierung ausgeschlossen werden. Als Bindemittel wurde ein Geopolymer verwendet.

Seit Jahrzehnten werden Geopolymere zur Stabilisierung und Immobilisierung toxischer und radioaktiver Stäube und Schlämme erfolgreich angewandt [2].

Das Geopolymer bildet sich durch Polykondensation aus Alumosilikaten im alkalischen Medium bei Raumtemperatur. Im Gegensatz zu Portlandzement ist Geopolymer ein kalkfreies Bindemittel und folglich resistent gegenüber Sulfatangriff.

Die Herstellung des Immobilisates erfolgte mit Geräten, wie sie auch beim Zementieren von Abfällen verwendet werden. Außer den zur Deponierung vorgesehenen Gebinden wurden Prüfkörper zum Nachweis der geforderten Eigenschaften gefertigt. Zur Verdichtung des viskosen Gemisches Geopolymer-Scale in den Formen und Behältern wurde ein Rütteltisch eingesetzt. Nach einer Aushärtezeit von 28 Tagen wurden die Prüfkörper einem Auslaugversuch unterzogen. Beim sogenannten Trogttest für monolithisches Material [3] wird der Prüfkörper 24 Stunden lang von der 10-fachen Wassermenge (bezogen auf die Trockensubstanz des Immobilisats) umströmt.

Die Mobilisierbarkeit der Radionuklide Ra-226, Pb-210, Ra-228 und Th-228 nahm durch die Einbindung in die Geopolymermatrix um den Faktor 30 – 40 ab. Für Blei wurde ein Faktor 53 ermittelt. Eine Verbesserung der Eluateigenschaften wurde auch für Chlorid, das mit ca. 2 % in den Scales enthalten ist, erreicht.

Die vereinfachte radiologische Bewertung des Grundwasserpades [4] auf der Grundlage der Eluatzusammensetzung liefert Werte deutlich unter dem Prüfwert von 0,1 mSv. Damit sollte die Entlassung der Scales aus der Überwachung per Einzelfallentscheidung realistisch sein.

Literatur: [1] Degering D. et al. *Schlussbericht BMU 0329937C* Verbundvorhaben: Langfristige Betriebssicherheit geothermischer Anlagen – Mobilisierung und Ablagerungsprozesse natürlicher Radionuklide (2009). [2] Hermann E., Kunze C. *UP 1-2* (2001) 17-20. [3] *LAGA EW 98 T*. [4] Leitfaden zur radiologischen Untersuchung und Bewertung bergbaulicher Altlasten, Leitfadenelement Grundwasserpfad bei Halden des Alt- und Uranbergbaus, *GRS-A-3116*, Mai 2003.

NEUTRON ACTIVATION ANALYSIS OF HONEY SAMPLES. Timóteo Siloé, Frederico André, Ho Manh Dung, Maria do Carmo Freitas*, URSN-ITN, Technological and Nuclear Institute, E.N. 10, 2686-953 Sacavém, Portugal, *Corresponding author: cfreitas@itn.pt

Honey is a natural substance produced by bees of the species *Apis mellifera* from the nectar of flowers. It is a highly saturated water solution composed of two sugars, glucose and fructose, and smaller amounts of other sugars, as well as acids, proteins, and minerals.

The exact composition of honey depends largely on the flowers used by the bees, which in turn depends on the surrounding flora and ecosystem. In eucalyptus honey, large amounts of K, Na, Ca, and Mg, and trace amounts of Fe, Cu, Cr, and Pb were found.

Twenty one commercialized honeys with Spanish origin were analysed and Na, K, Ca, Mg, Cu, Fe, and Mn were determined; these chemical elements as well as Cu, P, Cl, Si, and S were also obtained from Galician honeys.

In Turkish honeys, Cr, As, Sb, K, Br, Zn, Fe, and Co were determined.

Lead was found in honeys from Malaysia.

It is quite likely that some metal traces originate from production and storage processes such as during centrifugation and/or maturation of the honey. For instance, tin was found to be the result of contamination from the container's lid.

Honey has also been used as a bioindicator in Arizona [1].

Samples of honeys from Azores Islands and Portugal mainland were analysed before for chemical elements by instrumental neutron activation. K, Cl, Na, Mg, and Rb were found in all the samples. Higher amounts of K were found in darker honeys. Except for Flores and Faial honeys, the Azores honeys correlated very well at the 95 % confidence level; the same occurred for the mainland honeys [1].

Neutron activation analysis, using the k_0 standardized method [2], demonstrated to be a very good technique to deal with such small amount of chemical element contents as in honey. Its sensitivity at ppb, and sometimes even ppt, level makes it ideal for such kind of samples. Also, although honey is semi-liquid, it is easy and safe to irradiate it at the nuclear reactor. It is not necessary to change the irradiation container once use is made of ultrapure materials in the irradiation cans.

The present work determines chemical element contents in honey originated from wild and orchard flowers. The aim is to analyse the flowers too as well as the pollens. Neutron irradiations were done at the Portuguese Nuclear Reactor of the technological and Nuclear Reactor of ITN, in Sacavém. Most of the determined contents are at ppb level except Ca, Fe, K, Mg, Na, and Rb.

The accuracy was evaluated by analysing standard reference materials in the same way as the samples.

With this work a good characterization of the honeys produced in Portugal is completed.

References: [1] Freitas M.C., Pacheco A.M.G., Ferreira E. Nutrients and other elements in honey from Azores and mainland Portugal. *Journal of Radioanalytical Nuclear Chemistry* **270**(1) (2006) 123-130. [2] De Corte F. The k_0 -Standardization Method – A Move to the Optimization of Neutron Activation Analysis, *Aggregé Thesis, Gent University, Belgium* (1987).

NEUTRON ACTIVATION ANALYSIS OF WHEAT SAMPLES. Catarina Galinha^{1,2,*}, Maria do Carmo Freitas², Adriano M.G. Pacheco¹, ¹CERENA-IST, Technical University of Lisbon, Av. Rovisco Pais 1, 1049-001 Lisboa, Portugal, ²URSN-ITN, Technological and Nuclear Institute, E.N. 10, 2686-953 Sacavém, Portugal; *Corresponding author: catarina.galinha@itn.pt

Cereals are very important food items for human nutrition, because of the high content in proteins, dietary fibers and some minerals such as selenium, calcium, zinc and iron. Their composition should be known so that a soil supplementation might be eventually applied [1].

One of the problems of diets based mostly in cereals is that the intake of some essential elements is unsatisfactory, because generally the cultivation soils are became exhausted. Some countries with programs that include fortification, education and supplementation had been successful in correcting some micronutrients deficiencies [2,3].

For studies of future nutrient supplementation to cereal-cultivation soils, cereals and soil samples were collected from the interior of Portugal. This paper is focused on wheat samples – soft (bread) and durum wheats; *Triticum aestivum* L. and *Triticum durum* L., respectively – from the 2009 campaign, collected at the Elvas area (Fig. 1).

Elemental concentrations are assessed by INAA through the k_0 standardized neutron activation analysis [4] and calculations are done with k_0 -IAEA program.

Quality control of the procedure is made through the analysis of NIST-SRM 1567a (Wheat Flour), NIST-SRM 1568a (Rice Flour) and GBW07404 (Soil).

This work aims to make a good characterization of the cereal areas attempting to improve the cultivation conditions. Cereals are important food items for human nutrition and so their composition should be known so that a soil supplementation might be eventually applied.



Fig. 1: Outline of mainland Portugal, showing the location of agricultural area for cereal collection. Samples herein came from the area encircled in dot.

References: [1] Ventura M.G. Studies for the evaluation of selenium levels in typical constituents of Portuguese diets, *PhD Thesis Lisbon* (2008) pp. 21-22. [2] Lyons G., Stangoulis J., Graham R. Exploiting micronutrient interaction to optimize biofortification programs: The case for inclusion of selenium and iodine in the HarvestPlus program, *Nutrition Reviews* **62**, No. 6 (2004) 247-252. [3] Koplík R., Borková M., Bicanová B., Polák J., Mestek O., Komínková J. Speciation analysis of elements in cereals flours by liquid chromatography-inductively coupled plasma mass spectrometry. *Food Chemistry* **99** (2006) 158-167. [4] De Corte F. The k_0 -Standardization Method – A Move to the Optimization of Neutron Activation Analysis, *Aggregé Thesis, Gent University, Belgium* (1987).

BESTIMMUNG DER AKTIVITÄTSVERTEILUNG IN DER LAW-EINDAMPFUNGSANLAGE DER HDB DER WAK. C.M. Gürtler¹, U.D. Hoepfener-Kramar¹, R. Müller¹, F.J. Himmerkus¹, ¹Wiederaufbereitungsanlage Karlsruhe Rückbau- und Entsorgungs-GmbH, Hauptabteilung Dekontaminationsbetriebe, 76344 Eggenstein-Leopoldshafen

Einleitung: In der LAW-Eindampfungsanlage der Hauptabteilung Dekontaminationsbetriebe (HDB) der Wiederaufbereitungsanlage Karlsruhe (WAK) werden schwach radioaktive Abwässer (Low Active Waste) verarbeitet. Das Prinzip der Anlage beruht auf der Aufkonzentrierung des Rohwassers durch einen Destillationsvorgang. Dabei reichert sich der größte Teil der Aktivität im Konzentrat an und der Wasseranteil wird abdestilliert (Destillat).

Das entstehende Konzentrat liegt als Zwischenprodukt vor und wird in der Zementierungsanlage weiterverarbeitet. Das Destillat wird nach der radiologischen Freigabe an das Chemiekklärwerk des Karlsruher Instituts für Technologie (Campus Nord) abgegeben.

Jede Stufe des Prozesses (Rohwasser, Destillat und Konzentrat) wird durch Analyse einer repräsentativen Probe beschrieben. Die Daten werden in einem Buchführungssystem erfasst.

Ziele:

- Die Ermittlung der Aktivitätsverteilung [1] anhand einer statistischen Datenauswertung der im Buchführungssystem hinterlegten Aktivitätsdaten
- Bestimmung eines Gesamtfehlers für jede Analysenmethode und die jeweilige Probenahme.

Experimentelle Datenerzeugung: An einer exemplarischen Charge aus 2009 wurde jede Stufe der Datenerzeugung experimentell untersucht. Dazu wurde eine Dreifachbeprobung des Rohwassers, Destillats und Konzentrats durchgeführt und jede dieser Proben analysiert und statistisch ausgewertet, mit dem Ziel einen Gesamtfehler für jede Analysenmethode und die jeweilige Probenahme zu erhalten. Dabei wird im Folgenden nur auf die Aktivitätsdaten (α -Gesamt, β -Gesamt, Am-241, Cs-137, Co-60, H-3, C-14) eingegangen.

Für das Rohwasser ergab sich ein Gesamtfehler der je nach Nuklid zwischen 3 % und 6 % beträgt (Ausnahme Co-60 mit 10 %). Für das Konzentrat lag dieser zwischen 1 % und 4 % beträgt (Ausnahme Co-60 mit 11%). Für das Destillat wurde der Gesamtfehler nur für H-3 bestimmt (3 %) da die Messwerte für die restlichen Nuklide nahe bzw. unter der Nachweisgrenze liegen.

Analyse der Rückstellproben: In der Eindampfungsanlage wird vom Rohwasser nach jedem neu angelieferten Abwasser nach der Homogenisierung eine Rückstellprobe gezogen, um bei evtl. Verarbeitungs-

problemen die Ursache im Nachhinein ermitteln zu können.

An einer exemplarischen Charge aus 2009 wurde jede Rückstellprobe analysiert, um zu überprüfen ob die Rückführbarkeit auf den einzelnen Abgeber auch praktisch gegeben ist. Die Auswertung ergab, dass wenn die zugefügte Menge an Abwasser im Bezug auf den schon vorhandenen Behälterinhalt groß genug ist ($\geq 1 \text{ m}^3$) die Aktivität der einzelnen Abwässer bestimmt werden kann.

Statistische Datenerfassung: Für den Zeitraum von Januar 2008 bis Juli 2009 erfolgte eine statistische Datenauswertung der im Buchführungssystem der HDB hinterlegten Aktivitätsdaten (Betrachtung der absoluten Aktivitäten [Bq]). Dabei wurden die Aktivitätsströme Rohwasser, Destillat und Konzentrat überprüft. Theoretisch müsste sich die Aktivität des Rohwassers auf das Konzentrat und Destillat verteilen (d.h. Verhältnis Rohwasser/(Konzentrat + Destillat) = 1).

Die Abweichung von diesem Sollwert ist für Am-241 (1,7) am Größten. Für die restlichen Nuklide ist die Übereinstimmung relativ gut (0,9 bis 1,2).

Die Abweichung für Am-241 lässt sich dadurch erklären, dass Am-241 an Partikel gebunden vorliegt und es somit inhomogen in der Anlage verteilt wird (Hot-Spots) zudem bei einer ungenügenden Durchmischung des Konzentratbehälters vor der Probenahme nicht vollständig erfasst wird (Absetzen der Partikel).

Bei der grafischen Auftragung der Rohwasser zu Konzentrat + Destillat Verhältnisse ergab sich, dass die Kurven von Am-241 und Co-60 weitgehend parallel verlaufen. Allerdings liegt Co-60 in der Bilanz näher am Sollwert 1 als Am-241. Daraus lässt sich schließen dass sich die Nuklide aufgrund ihrer Eigenschaften in den Stoffströmen gleich verteilen. Die Gegenüberstellung der Kurven von β -gesamt und Cs-137 ergab ebenfalls einen parallelen Verlauf. Der Grund ist, dass Cs-137 die Hauptaktivität der β -gesamt Aktivität ausmacht.

Ausblick: Die Kenntnis der Nuklidverteilung ermöglicht die Planung der Verarbeitungschargen unter Vermeidung von Überschreitung von betrieblichen, sicherheits-technischen oder endlagerrelevanten Grenzwerten sowie die Deklaration von Abfallprodukten und Sekundärreststoffen.

Literatur: [1] Gürtler C.M. Experimentelle Überprüfung der Aktivitätsverteilung der neuen LAW-Eindampfungsanlage der HDB, speziell im Hinblick auf die radiologische Ableitung, *Bachelor-Arbeit, Duale Hochschule Karlsruhe* (2009).

Einleitung: Im Strahlenschutz existieren zwei schwierige Einsatzbereiche für Gamma-spektrometrische Anwendungen. Bei geringen Aktivitäten besteht das Problem darin, die Signale der relevanten Nuklide vom natürlichen Untergrund zu trennen. Bei besonders hohen Aktivitäten dagegen kommen die Probleme von Totzeiteffekten und Pile-up, jedoch auch vom niederenergetischen Untergrund durch den unvollständigen Nachweis der höherenergetischen Linien. In beiden Fällen sucht man die Lösung bei CdZnTe- und Ge-Detektoren.

CdZnTe- und Ge-Detektoren: Sowohl Ge- als auch CdZnTe besitzen als Halbleitermaterialien ideale Voraussetzungen, als Material für hochauflösende Detektoren eingesetzt zu werden. Sie unterscheiden sich jedoch deutlich in den Wirkungsquerschnitten für Gammastrahlung, der Auflösung und der Betriebstemperatur. Daraus resultieren zudem unterschiedliche mögliche Bauformen, in denen man der Notwendigkeit eines Vakuums oder besonders niedriger Temperaturen Rechnung tragen muss. Daraus wiederum resultieren verschiedene Ausführungen möglicher Kollimatoren.

Elektronik und Software: Während bei Ge-Detektoren Standardelektronik auf DSP-Basis einge-

setzt werden kann, haben die Signale von CdZnTe-Detektoren eine schnelle und eine langsame Komponente, die eine Auflösungsver schlechterung hervorrufen kann. Eine Unterdrückung der langsamen Komponente führt zu einer deutlichen Auflösungsverbesserung.

Ein wichtiger Aspekt bei der Auswertung von Spektren, die in extrem hohen Flussdichten aufgenommen wurden, besteht im Bedarf an speziellen Algorithmen. Zudem besteht der Wunsch, den räumlichen Gegebenheiten und der Geometrie mit einer mathematischen Modellrechnung für die Effizienz zu begegnen. Bei derartigen Hochdosismessungen ist jedoch in vielen Fällen das Aktivitätsverhältnis der vorhandenen Radionuklide von Bedeutung.

Anwendung: Bei spektrometrischen Messungen in Hochdosisbereichen sind verschiedene Randbedingungen einzuhalten um hinreichend genaue Ergebnisse zu erhalten. Die Auswahlkriterien zwischen Ge- und CdZnTe-Detektoren werden anhand von Messungen am Primärkreislauf und an Austauschharzen mit beiden Systemen diskutiert. Die Gammadosisleistung betrug hierbei bis zu 100 mSv/h.

SETTING-UP CHEMISTRY LABS FOR ACCELERATOR MASS SPECTROMETRY. S. Merchel¹, C. Andermann^{2,3}, M. Arnold⁴, G. Aumaître⁴, D. Bourlès⁴, R. Braucher⁴, M. Fuchs³, R. Gloaguen³, K. Klemm³, M. Martschini⁵, T.F. Schildgen⁶, P. Steier⁵, A. Wallner⁵, C. Yildirim^{6,7}, ¹FZD, Dresden, DE, s.merchel@fzd.de, ²U de Rennes 1, FR, ³TUBA Freiberg, DE, ⁴CEREGE, Aix-en-Provence, FR, ⁵VERA, U Vienna, AT, ⁶U Potsdam, DE, ⁷Deutsches GeoForschungsZentrum, Potsdam, DE

Introduction: The AMS business is booming: Many low-energy (< 1 MV) facilities, which are fully dedicated for ¹⁴C-analysis, are under construction or in funding status. Additionally, medium-energy accelerators such as the British 5 MV-NEC machine at “SUERC” Glasgow, the French 5 MV-HVEE-machine “ASTER” at Aix-en-Provence [1] and the two German 6 MV-HVEE-machines “DREAMS” at Dresden [2] and “Cologne AMS” have been recently installed or are still in testing mode in Central Europe. Of course, these bigger machines need not only experienced physicists and technicians to get them running. It also seems to be advisable to have some experienced scientists around, who knows how to prepare AMS targets for ¹⁰Be, ²⁶Al, ³⁶Cl, ⁴¹Ca, and ¹²⁹I measurements.

Quality assurance: In contrast to the ¹⁴C-community, where e.g. round-robin exercises are routine business, the idea of quality assurance and traceable standards has only been brought up lately for the other cosmogenic radionuclides. Thus, world-wide accepted standards issued by metrology institutes are rare: NIST is selling two kinds of ¹²⁹I/¹²⁷I-standards, and the Institute for Reference Materials and Measurements (IRMM) provides one set of ⁴¹Ca/⁴⁰Ca solutions having eight different ratios [3]. Unfortunately, the most commonly used ¹⁰Be/⁹Be standard provided by NIST has been recently sold-out and will not be reissued. Other primary standard-type materials (²⁶Al, ³⁶Cl), which are not commercially available, have been prepared by diluting certified activities and subsequent analysis within round-robin exercises [4,5]. After production of big quantities of in-house secondary standards for all nuclides, cross-calibration vs. primary standard-type materials has to be performed in-house and elsewhere [1].

Finally, as commercial ⁹Be contains intrinsic ¹⁰Be up to a level of 4×10^{-14} [6] sophisticated production of in-house carriers, used as machine blanks and for processing samples, such as Be₂SiO₄ originating from a deep mine in Brazil (Fig. 1), is needed.

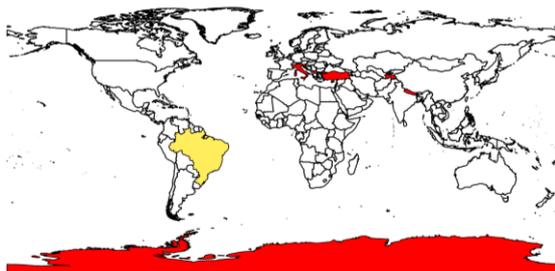


Fig. 1: Origins of terrestrial samples yet processed at FZD chemistry labs: Antarctica, Brazil (carrier), Italy, Macedonia, Nepal, Slovenia, Tajikistan and Turkey.

Only after production and measurement of all these materials, the AMS facility is ready for real sample measurements.

Real samples: As it is always not advisable to change two important “things” at the same time, here machine and chemistry, first and foremost, a close cooperation with the AMS teams of “ASTER” and “VERA” (Vienna Environmental Research Accelerator) needed to check the quality of the new chemical sample preparation at FZD.

A “good” AMS sample is defined by two main features: high stable isotope current and low isobar concentration. A high chemical yield and low concentrations of other elements – originating either from the matrix or chemical products used – are less important. A corresponding low processing blank, i.e. with a very low radionuclide/stable nuclide ratio, is, however, essential for projects working near the detection limit. For high sample throughput and reasonable costs a fast, easy and cheap chemical separation is also favorable. Though, as it is the case for most destructive analytical methods, AMS sample preparation takes much longer, i.e. 24 h (ice, water) to 2-4 weeks (sediments, rocks), and is more expensive than the actual AMS measurement [7], which takes about 10-60 min.

For ¹⁰Be-AMS-targets isolated from quartz-rich river sediments (Himalaya, erosion rate study) and a calcite-rich boulder from a Slovenian rockfall area, ⁹Be currents had been in the range of “ASTER” standards and machine blanks. The processing blanks produced at FZD were in the same order as the machine blank (1×10^{-15}), thus, more than one order of magnitude lower than the lowest sample ratio.

Ten ³⁶Cl-AMS-targets prepared from river terraces (Anatolian Plateau, Turkey, uplift rate study) will be investigated in June at “VERA”, hopefully validating the high quality of ³⁶Cl-AMS targets.

Conclusion: We successfully started AMS chemistry in 2009 at FZD and are now open to more collaborations with research institutes and universities.

Acknowledgments: Thanks to E. Strub (²⁶Al-activity), M. Bichler (neutron-irradiation of ⁹Be), C. Varajão (Be₂SiO₄ crystals), AWI & U Heidelberg (Antarctic & Italian ice/snow samples), DAAD & DFG (cash) & L. Benedetti, R.C. Finkel, I. Mrak, W. Möller, HVEE, FZD-AMS-team (great cooperation).

References: [1] Arnold M. et al. *NIMB* **268** (2010) 1954. [2] Akhmadaliev Sh. et al. *this meeting*. [3] Hennessy C. et al. *NIMB* **229** (2005) 281. [4] Merchel S., Bremser W. *NIMB* **223–224** (2004) 393. [5] Merchel S. et al. *GCA* **73** (2009) A871. [6] Merchel S. et al. *NIMB* **266** (2008) 4921. [7] Merchel S., Herperts U. *RCA* **84** (1999) 215.

IMPACT OF DANUBE WATER POLLUTION ON THE BLACK SEA SEASIDE BY THE SEA LETTUCE BIOMONITOR. C. Oprea¹, M.V. Gustova², O.D. Maslov², A.G. Belov², I.A. Oprea^{1,3}, A. Mihul³, M.G. Nedelcu⁴, I. Ion⁵, ¹Frank Laboratory of Neutron Physics (FLNP), Joint Institute for Nuclear Research (JINR), Dubna 141980, Russian Federation, E-mail: coprea2007@yahoo.co.uk, ²Flerov Laboratory for Nuclear Reactions (FLNP), Joint Institute for Nuclear Research (JINR), Dubna 141980, Russian Federation, ³Univ. of Bucharest, Faculty of Physics, Dept. of Nuclear Physics, Bucharest 76900, Romania, ⁴Univ. of Bucharest, Faculty of Chem., Dept. of Radiochemistry, ⁵National Institute for R&D in Electrical Engineering (ICPE-CA), Bucharest 76900, Romania

The presence of different heavy metals released into the Black Sea through the Danube River waters are of anthropogenic origin, proceeding from industrial and farmer wastes and bilge oil from ships and also from air pollution influenced the algae's growth and their contents [1-3]. This study presents results obtained from studying the impact of the Danube waters on the Black Sea coast. In this respect some essential and trace elements in the *Sea Lettuce* algae collected from several Romanian seaside resorts by photon neutron activation analysis and X-ray fluorescence spectrometry methods were determined [4,5]. The trace heavy metal concentrations in marine algae samples were 2.5 – 29.4 µg/g for As, 1.5 – 3.5 µg/g for Cd, 3.2 – 11.7 µg/g for Co, 0.7 – 8.5 µg/g for Cr, 2.4 – 21.9 µg/g for Cu, 201 – 350 µg/g for Fe, 0.15 –

0.18 µg/g for Hg, 15 – 85 µg/g for Mn, 1.2 – 18.3 µg/g for Pb, and 15 – 24 µg/g for Zn. The results obtained during the present research in terms of heavy metals bio-accumulation of algae show that *Sea lettuce* is a reliable bioindicator for heavy metal pollution of the coastal waters.

References: [1] Mihai S. A., Hurtgen Ch., Georgescu I.I. *J. Radioanal. Chem.* **242** 2 (1999) 419-422. [2] Oprea C.D., Pincovschi Eu. *Rom. Rep. in Phys.* **55** 2 (2003) 111-115. [3] Tuzen M., Verep B., Ogretmen O.A., Soylak M. *Environ. Monit. Assess.* **151** (2009) 363-368. [4] Tuzen M. *Fresenius Env. Bulletin* **11** 7 (2002) 405-409. [5] Van Netten C., Hopton Cann S.A., Morley D.R., van Netten J.P. *The Sci.Total. Env.* **255** (2000) 169-175.

Einleitung: Während der Behandlung von Teilen einer geothermischen Anlage erfolgt ein Umgang mit den darin enthalten natürlichen radioaktiven Stoffen in offener Form. Damit sind Inkorporationen nicht auszuschließen und bereits im Vorfeld zu betrachten. Deshalb wurden auf der Basis standardisierter Zufuhrszenarien Abschätzungen zu möglichen Inkorporationen beim Umgang mit diesen radioaktiven Stoffen durchgeführt. Im Ergebnis erfolgten zu Beginn und nach Ende der einzelnen Kampagnen begleitende Messungen durch die amtlich bestimmte Inkorporationsmessstelle im VKTA. Die Probleme bei der Interpretation der erhaltenen Messergebnisse werden vorgestellt.

Potentielles Inkorporationsrisiko: Zur Ermittlung des potenziellen Inkorporationsrisikos wurden jeweils vor Beginn der Kampagnen radiologischer Messwerte von Materialproben betrachtet. Mit dem Formalismus der ‚Richtlinie für die physikalische Strahlenschutzkontrolle – Teil 2: Inkorporationsüberwachung‘ [1] erfolgte die Abschätzung eines potentiellen Inkorporationsrisikos. Schwierigkeiten ergaben sich infolge der vorhandenen Zerfallsketten. Zur Lösung wurden modifizierte Dosiskoeffizienten verwendet. Dabei ergaben sich Werte für die effektive Folge-

dosis oberhalb von 1 mSv. Aus diesen Gründen erfolgten vor Beginn und nach Ende der Kampagnen entsprechende Inkorporationsmessungen.

Messergebnisse und Bewertungen: Eine Bewertung der Messergebnisse ist ohne eine Beachtung der natürlichen Zufuhren nicht möglich. Die erhaltenen Messergebnisse zeigten für die betrachteten beiden Kampagnen in Einzelfällen Werte, die oberhalb der durch nicht berufliche, natürliche Zufuhren erwarteten Resultate liegen. Probleme bei der Interpretation ergaben sich dabei insbesondere aufgrund der stark schwankenden natürlichen Zufuhren bzw. aus den zur Dosisabschätzung benutzten Standard-Modellen aus [1] Es wird dargestellt, in welchen Größenordnungen die abgeschätzten Dosiswerte liegen. Auf der Grundlage dieser Inkorporationsmessungen erfolgt eine Gegenüberstellung mit vor Beginn der Kampagne abgeschätzten Zufuhr- und potentiellen Dosiswerten.

Literatur: [1] Richtlinie für die physikalische Strahlenschutzkontrolle zur Ermittlung der Körperdosis Teil 2: Ermittlung der der Körperdosis bei innerer Strahlenexposition (Inkorporationsüberwachung) (§§ 40, 41 und 42 StrlSchV) vom 12. Januar 2007.

Einleitung: Die Umsetzung der Nebenbestimmungen aus der gehobenen wasserrechtlichen Erlaubnis des Planfeststellungsbeschlusses (PFB) KONRAD (Anhang 4) [1] ist seit dessen Bekanntmachung immer wieder sowohl durch die Ablieferer als auch die Produktkontrollstelle, die Gutachter, das BfS und nicht zuletzt die Aufsichtsbehörde inhaltlich und z.T. kontrovers diskutiert worden.

Zum einen sind es natürlich die zu beschreibenden Inhaltsstoffe, deren Quantifizierung (und Bilanzierung), zum anderen – und dies ist weit schwieriger – die Gewinnung belastbarer Daten.

Als Unterstützung für alle Ablieferer wurde durch die Fa. ISTec eine Stoffliste [2] erstellt, mit deren Hilfe die stoffliche Zusammensetzung zu charakterisieren ist.

Vorgehensweise: Hinweise für die Umsetzung der wasserrechtlichen Nebenbestimmungen sind u.a. in [3] enthalten.

Wir vertreten die Auffassung, dass man demnach grundsätzlich zwei Möglichkeiten der stofflichen Beschreibung und Einschätzung des Schadstoffinventars hat:

1. Ermittlung eines Stoffvektors
2. Beschreibung von Stoffen/Materialien

Die Ermittlung eines Stoffvektors setzt eine detaillierte Kenntnis der Zusammensetzung voraus. Er ist gut geeignet zur Beschreibung von abgeschlossenen Kampagnen. Im speziellen Fall wird das Vorgehen zur Beschreibung der „Zementierten AMOR-Lösung“ beschrieben. Ein Stoffvektor ist insofern unflexibel als die Zusammensetzung in festen Grenzen beschrieben wird.

Andererseits kann mit der Formulierung von Materialien die aus Bausteinen zusammengefasste Stoffliste derart erweitert werden, dass bei der Beschreibung von Abfallströmen auf diese Materialien zurückgegriffen werden kann. Dies vereinfacht die Verfahrensqualifikation sowohl für die Abliefernden als auch für den Gutachter.

Die Beschreibung enthält ggf. Schwankungsbreiten in der Zusammensetzung, das Verfahren ist damit insgesamt flexibler als die Beschreibung mittels Stoffvektor. Allerdings müssen im speziellen Fall die Zuordnung eindeutig und die Angabe zum Schadstoffgehalt definiert erfolgen.

Das aufgezeigte Beispiel „Normalbeton“ ist in der beschriebenen Zusammensetzung nicht anlagenbezogen zu betrachten.

Nach unseren Erfahrungen ist der Weg der Beschreibung mittels Stoffvektoren insbesondere für die Beschreibung von „Altabfällen“ geeignet, da es sich hierbei um abgeschlossene Vorgänge mit definierten Grenzen handelt.

Hingegen ist die flexible Beschreibung mittels Materialien besser anwendbar auf noch nicht verarbeitete Abfälle.

Aus unserer Sicht wird eine Abfallbeschreibung nicht ohne individuelle analytische Daten zum Schadstoffgehalt auskommen.

Derartige Analysendaten lassen sich auf vielfältige Weise ermitteln, z.B. anhand von Dokumentationen über den Einbau bestimmter Baustoffe, eingesetzte Betriebsmittel, chemische Analysen an analogen, zur Freigabe bestimmten Materialien oder direkt an Proben des radioaktiven Abfalls.

Umgekehrt kann damit natürlich auch der Nachweis der Schadstofffreiheit geführt werden.

Literatur: [1] Niedersächsisches Umweltministerium (2002) Planfeststellungsbeschluss für die Errichtung und den Betrieb des Bergwerkes Konrad in Salzgitter als Anlage zur Endlagerung fester oder verfestigter radioaktiver Abfälle mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung vom 22.Mai 2002, Wasserrechtliche Nebenbestimmungen. [2] Boetsch W., Gründer D., Haider C. Umsetzung der das Wasserrecht betreffenden Nebenbestimmungen des Planfeststellungsbeschlusses Konrad, Stoffliste, Stand: Oktober 2009 ISTec. [3] Brennecke P., Kugel K., Steyer S., Endlager Konrad – Vorgehensweise zur Umsetzung der wasserrechtlichen Nebenbestimmungen (Entwurf), Stand 2009, BfS.

Einleitung: Der Neutronenfluss ist eine der wesentlichsten Kenngrößen von Forschungsreaktoren. Er wird in der Regel durch Messungen bestimmt, die auf der Aktivierung von Flussmonitoren basieren.

Meistens wird Gold (z.B. Goldfolie) als Neutronenflussmonitor verwendet, da es gut bekannte und vorteilhafte nukleare Eigenschaften hat, wie z.B. einen großen Wirkungsquerschnitt für den (n,γ)-Neutroneneinfang (98,7 b für thermische Neutronen), eine geeignete Halbwertszeit (2,7 d), nur ein stabiles Isotop etc. Darüber hinaus ist Gold chemisch praktisch inert und kann in hoher Reinheit hergestellt werden. Die Aktivität des Nuklids ^{198}Au wird nach der Bestrahlung als Maß für die Menge der vom Gold eingefangenen Neutronen genommen und an geeigneten Detektoren gemessen.

Allerdings treten bei Verwendung von reinem Gold Probleme auf. Zum einen ist Gold aufgrund des hohen Neutronenflusses in Kernreaktoren für viele Zwecke zu stark aktivierbar (Totzeitprobleme). Um dieses Problem zu umgehen, muss dem Goldmonitor Zeit zum Abklingen der Aktivität gewährt werden, was, je nach Aktivierungsgrad, mehrere Wochen in Anspruch nehmen kann. Alternativ kann die Reaktorleistung verringert werden und unter Annahme eines linearen Leistungs-Flussverhältnisses auf die entsprechenden Werte bei Vollbetrieb näherungsweise extrapoliert werden. Des Weiteren treten selbst in relativ dünnen Folien Selbstabschirmungseffekte auf, was zu einer Flussdepression im Inneren der Folie führt. Sofern nicht mathematische Korrekturmodelle angewandt werden, führt dies zu falsch niedrigen Flusswerten.

Experimentelles: Ziel der Arbeit war, einen Neutronenflussmonitor in gelöster Form zum Einsatz zu bringen, der die beschriebenen Probleme umgeht. Nur in gelöster Form lässt sich eine beliebig kleine Stoffmenge noch problemlos handhaben (Verringerung der notwendigen Abklingzeit). Außerdem kann in verdünnter Form der makroskopische Wirkungsquerschnitt so gering gehalten werden, dass Selbstabsorptionseffekte vernachlässigbar werden. Lösliche Goldverbindungen enthalten zumeist Chlor, was potentiell problematisch sein kann, da auch ^{35}Cl einen beträchtlichen Wirkungsquerschnitt für den Neutroneneinfang hat und auch zu Selbstabsorptionseffekten führen kann. In Summe wurden vier Monitore miteinander verglichen:

- 1) Goldfolien wie bisher am TRIGA Reaktor in Wien üblicherweise im Einsatz;
- 2) HAuCl_4 in konz. Salzsäure (Simulation des Szenarios „Lösen der Goldfolie in Königswasser“);
- 3) chemisch reines HAuCl_4 in H_2O ;
- 4) ein neues Neutronenmonitormaterial:
Tetraammingold(III)nitrat (TAGN):
 $[\text{Au}(\text{NH}_3)_4](\text{NO}_3)_3$ in H_2O und Kaliumcyanid (KCN) als Stabilisator. (*Giftig!*)

Zur Aktivierung wurden (bis auf die Goldfolie) alle Monitore in fünffacher Ausführung in einem Trockenbestrahlungsrohr des Reaktors knapp hintereinander für 2 min bestrahlt. Die Messung erfolgte auf einem HPGe-Gamma-Detektor, wobei die Efficiency-Kalibrierung mit QCY48-Lösung durchgeführt wurde.

Die Goldgehalte der Lösungen wurden mit TXRF-Messungen überprüft und stimmten mit den berechneten und eingewogenen Werten überein.

Ergebnisse: Bei der Bestrahlung der reinen HAuCl_4 Lösung in H_2O tritt Radiolyse auf, was sich durch intensive Rotfärbung und langsames Ausfällen eines weinroten Niederschlags äußerte. Sowohl in der salzsauren Probe als auch der KCN-stabilisierten Probe traten diese Zersetzungen nicht oder nur sehr untergeordnet auf. Die Ergebnisse der Neutronenflussmessung sind in Abb. 1 illustriert.

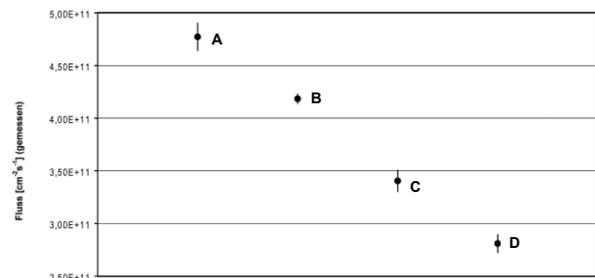


Abb. 1: Zusammenfassung der Neutronenflussmessungen: A = TAGN in H_2O , B = HAuCl_4 in H_2O ; C = HAuCl_4 in HCl , D = Goldfolien.

Schlussfolgerungen: Der hier vorgestellte Neutronenflussmonitor basierend auf TAGN zeigt gemäß Abb. 1 einen um rund 40% höheren Fluss an als die bislang verwendeten Goldfolien. Das System ist (nach einigen Tagen Abklingzeit) wiederverwertbar, die Monitore lassen sich bei Vollbetrieb bestrahlen und unmittelbar danach messen. Dank der niedrigen Selbstabschirmung liefert das TAGN-System den wahren Fluss und kommt ohne mathematische Korrekturen aus. Der vorgestellte Flussmonitor weist somit zahlreiche Vorteile auf und wurde zum Patent angemeldet [1].

Literatur: [1] Steinhauser G., Merz S., Villa M., Patentanmeldung (2010).

Einleitung: Der Normalbetrieb eines Forschungsreaktors stellt in der Regel kein wesentliches Forschungsgebiet mehr dar, da alle in Frage kommenden Erscheinungen bereits hinreichend untersucht worden sind und als bekannt gelten. So gesehen überrascht es, dass sich in der wissenschaftlichen Literatur (SciFinder sowie INIS Datenbank) keine Publikationen zur Gasemission aus Forschungsreaktoren finden. An der Wasseroberfläche des TRIGA Mark II Reaktors des Atominstutits in Wien können im Vollbetrieb (250 kW) kleine, aufsteigende Gasbläschen beobachtet werden, die im Zuge der vorliegenden Arbeit erstmals untersucht wurden.

Experimentelles: Die Gasbläschen wurden mit einem einfachen, wassergefüllten Trichtersystem gesammelt und mittels Gaschromatographen analysiert. Der Trichter mit einem Durchmesser sammelt pro Tag ca. 25 mL Gas, was einer Gesamttagesemission des Reaktors von rund 2,5 L entspricht.

Ergebnisse und Diskussion: Das gesammelte Gas setzt sich wie folgt zusammen:

72,5% N₂
17,2% H₂
12,0% O₂+Ar
0,23% CO₂

Auffallend ist hierbei natürlich der hohe Wasserstoffgehalt, der sich nur durch Radiolyse des Kühlwassers erklären lässt. Alle anderen Szenarien (Betazerfall des Neutrons oder Diffusion von Wasserstoff aus dem homogenen Uran-Zirconium-Hydrid Brennstoff-Moderatormischung) können als Quelle ausgeschlossen werden. Die übrigen Bestandteile erklären sich durch in Wasser gelöste Luft, die im heißen Bereich in Kernnähe wieder entgast. Diese Erklärung ist insofern schlüssig, als der am leichtesten wasserlösliche Luftbestandteil CO₂ deutlich gegenüber seinem Vorkommen in der Atmosphäre überrepräsentiert ist. Im Poster und den Proceedings werden wir den mathematischen Hintergrund zur Wasserstoffproduktion (Kaskadeneffekte) sowie Fragen zum Schutz gegen Knallgasexplosionen näher beleuchten.

Einleitung: Ablagerungen explosiver vulkanischer Eruptionen werden unter dem Überbegriff Tephrochronologie als Zeitmarken genutzt und zeichnen sich durch außerordentliche Verlässlichkeit aus. Besonders in Perioden in denen radiometrische Methoden nicht angewendet werden können, ist die Verwendung von Abfolgen solcher Aschenhorizonte ein probates Mittel zur relativen Datierung. Es ist somit auf jeden Fall möglich, perfekte Synchronisationen von Orten herzustellen, an welchen dieselben Aschenhorizonte gefunden werden. Die östliche Ägäis ist ein besonders gutes Beispiel, da hier eine ganze Reihe von großen Eruptionen stattgefunden hat und enorme Mengen vulkanischen Materials über das gesamte Gebiet verteilt wurden.

Um klare stratigraphische Beziehungen herstellen zu können, ist eine Untersuchung der möglichst ungestörten primären Ablagerungen wichtig. Die nicht vulkanische Insel Tilos liegt nahe bei den großen vulkanischen Zentren Kos und Nisyros in der Ägäis. Tatsächlich konnten große Vorkommen des sogenannten Kos-Plateau Tuffs (KPT) in fast ungestörter Abfolge auf Tilos gefunden [1], und in einer Studie [2] zur wesentlichen Verbesserung des chemischen Fingerabdrucks der KPT-Eruption herangezogen werden. Über dieser, im archäologischen Sinne uralten Eruption (161 ka [3]) wurden andere, jüngere, vulkanische Produkte gefunden und deren Herkunft zu untersuchen war die Hauptaufgabe der vorliegenden Arbeit.

Die naheliegendste Quelle dieser Eruptionsprodukte wären die beiden Caldera-bildenden Eruptionen von Nisyros (Upper- und Lower Caldera Pumice, UCP und LCP), deren Alter nur recht ungenau bekannt ist. Produkte der bronzezeitlichen „Minoischen“ Eruption von Santorini wurden auf den benachbarten Inseln Kos und Rhodos gefunden, was ihre Existenz auch auf Tilos nahe legen würde [4,5]. Auch einige ältere und gut datierte Santoriner Ausbrüche gleicher Größenordnung sollten ihre Spuren hinterlassen haben. Mit deren Nachweis könnten die beiden großen Caldera-bildenden Eruptionen LCP und UCP von Nisyros in eine wesentlich verbesserte zeitliche Abfolge inkludiert

werden. Daher wurden die oben erwähnten vulkanischen Produkte auf Tilos ausführlich beprobt und untersucht.

Als verlässliches Verfahren zur Identifikation von Eruptiva durch ihren chemischen Fingerabdruck hat sich die Neutronen Aktivierungs Analyse immer wieder bewiesen [6,7]. Folglich wurden über 100 Proben aus verschiedenen Aschenhorizonten auf Tilos und Nisyros aktivierungsanalytisch untersucht.

Überraschenderweise stellte sich heraus, dass weder UCP, LCP noch Material aus Santorini auf Tilos gefunden werden konnte. Stattdessen gehören alle untersuchten Eruptiva zur bisher geochemisch wenig erforschten Kyra-Sequenz aus Nisyros. Diese Abfolge vulkanischer Produkte wurde an der östlichen Flanke der Insel Nisyros über einen Zeitraum von etwa 40000 [8,9] Jahren gefördert. Durch die vorliegenden Daten konnte gezeigt werden, dass sie aus acht unterscheidbaren Eruptionsphasen besteht. Durch die Ablagerungen auf Tilos sind spätere Vermischungen mit anderem vulkanischem Material durch Rutschungen, Einschwemmungen etc. praktisch ausgeschlossen und es bietet sich so die einzigartige Möglichkeit, eine komplexe Abfolge durch eine intensive chemische und stratigraphische Analyse zu untersuchen. Durch die Verwendung der chemischen Fingerabdrücke der einzelnen Horizonte war die Erstellung einer detaillierten Chemo-Stratigraphie der Kyra-Sequenz erstmals möglich. Mehrere, sich ergänzende Aufschlüsse auf Tilos und Nisyros konnten so klar einander zugeordnet und wesentliche Schichtlücken auf Nisyros geschlossen werden.

Literatur: [1] Stadlbauer E. *PhD-Thesis* (1988). [2] Steinhauser G. et al. *ARI* **65** (2007) 488-503. [3] Smith P.E. et al. *Geophys Res Lett* **23** (1996) 3047-3050. [4] Keller J. *Thera and the Aegean World* (1980) 49-56. [5] Doulas C. and Papazoglou D. *Nature* **287** (1980) 322-324. [6] Peltz C. et al. *J Radioan Nucl Ch* **242** (1999) 361-377. [7] Steinhauser et al. *Appl Geochem* **21** (2006) 1362-1375. [8] Rehren T.H.H. *PhD-Thesis* (1988). [9] Volentik A.C.M et al. *Mémoires de Géologie* (2005) 44.

INTER-COMPARISONS ANALYSIS – ASSESSMENT OF OPTIMUM INSTRUMENTS FOR MINIMUM DETECTABLE AMOUNTS IN MULTI-ELEMENT TECHNIQUES.

B.J. Vieira¹, P. Bode², H.Th. Wolterbeek², M.C. Freitas¹, A. Ammerllan², ¹Instituto Tecnológico e Nuclear (Apartado 21, E.N. 10, 2686-953 Sacavém, Portugal, bvieira@itn.pt), ²Technical University Delft, Department of Radiation, Radionuclides and Reactors (Section RIH (Radiation and Isotopes in Health), Faculty of Applied Sciences, Technical University Delft; Mekelweg 15, 2629 JB Delft, The Netherlands)

Introduction: PICO-NARE observatory placed in the Pico mountain in the Atlantic Ocean gives the possibility of inferring long-range transport of aerosol across the Atlantic Ocean. Results of aerosols are compared to biomonitoring survey at similar period in order to understand altitude influence in aerosol transport. As the area is strongly influenced by marine elements (Br, Cl and Na) because the proximity to the sea, the detection limits for some trace elements, which can appear in nanogram levels, remain excessively high with poor counting statistics or detection limits due to the high Compton backgrounds resulting from the NAA produced isotopes ³⁸Cl and ²⁴Na.

Sea(marine)-related samples may suffer from mainly Na-originating effects from scattering. Some techniques can significantly decrease the analytical sensitivities of many elements of interest due to the high backgrounds arising from ³⁸Cl and ²⁴Na. Automatization concerns the possibility of processing many samples in sequence with automatic storage of the gamma spectra. INAA, ENAA with and without Compton suppression, prompt-gamma, fast epithermal/thermal irradiation, well-type (radio)analysis were used in different types of samples to acquire the most appropriate and convenient to use in routine assessment of multielement patterns in large number of samples. Samples with high concentrations of Na and

Cl were used as samples from remote places with vestigial concentration, e.g. lichens, fish powder, soil from Pico mountain, tree bark, coal fly ash, synthetic wood and estuarine sediments.

For analysis with better detection limits for Na, K, Cr and As coaxial detector present better results. For Ca, Sc, Sb, Ce and Sm well-type detector is the most appropriate. PGAA is a complement for determination of H, B, C, O, S, N, P and also for Cl, Ti, Cd and Si.

References: [1] Vermaercke P., Robouch P., Eguskiza M., De Corte F., Kennedy G., Smodiš B., R. Jaćimović, Yonezawa C., Matsue H., Lin X., Blaauw M., Kučera J. *Nucl. Instrum. Meth. A* **564** (2006) 675. [2] Rossbach M., Blaauw M. *Nucl. Instrum. Meth. A*, **564** (2006) 698. [3] Bode P. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* **222** (1997) 127. [4] Bode P. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* **222** (1997) 117. [5] Bacchi M.A., Santos L.G.C., De Nadai Fernandes E.A., Bode P., Tagliaferro F.S., França E.J. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* **271** (2007) 345. [6] Borsaru M., Biggs M., Nichols W., Bos F. *Appl. Radiat. Isot.* **54** (2001) 335. [7] Molnár G.L., Belgya T., Dabolczi L., Fazekas B., Veres Á., Bikit I, Kis Z., Östor J. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* **215** (1997) 111. [8] Molnár G.L., Révay Zs., Belgya T., Firestone R.B. *Appl. Radiat. Isot.* **53** (2000) 527. [9] Révay Z. *Nucl. Instrum. Meth. A* **564** (2006) 688.

DAMAGE FORMATION IN NEUTRON IRRADIATED 4H-SiC. E. Wendler¹, Th. Bierschenk¹, D. Alber², G. Bukalis², L. Prinsloo³, W. Wesch¹, N. van der Berg³, J. Malherbe³, E. Friedland³, ¹Institut für Festkörperphysik, Friedrich-Schiller-Universität Jena, Max-Wien-Platz 1, 07743 Jena, Germany, ²Campus Lise-Meitner, Abteilung F-A1, Elementanalytik, Helmholtz-Zentrum Berlin für Materialien und Energie GmbH, Hahn-Meitner-Platz 1, D-14109 Berlin, Germany, ³Department of Physics, University of Pretoria, 0002 Pretoria, South Africa

Fuel elements of modern high-temperature nuclear reactors (HTR) are encapsulated by CVD-layers which serve as barriers to prevent fission product release. Recent HTR designs generally make use of fuel kernels surrounded by four successive layers of low-density pyrocarbon, high-density pyrocarbon, silicon carbide and high-density pyrocarbon. During the process of nuclear reaction the layers are also exposed to neutron irradiation, which changes their structure and may influence their barrier function.

In the present contribution neutron irradiated 4H-SiC is investigated by Rutherford backscattering spectrometry (RBS), optical sub-gap spectrometry and Raman spectrometry. Irradiations were performed at the test reactor BER II of the Helmholtz-Zentrum Berlin using irradiation position DBVK M2.

For irradiation times up to 300 hours the relative concentration of displaced lattice atoms, n_{da} , as meas-

ured by RBS increases almost linearly with time and reaches a value of $n_{da} \approx 0.2$. This means that only 20 % of all atoms do not sit on their regular lattice sites. The absorption coefficient at frequencies below the fundamental absorption edge increased significantly which exhibits in a blackening of the samples. Similar as n_{da} , the absorption coefficient at a fixed wave length in the near infrared increases almost linearly with time up to the highest exposure time of 300 hours. Different results were found applying Raman spectroscopy. The main Raman peaks of 4H-SiC disappear already after irradiation for 40 hours. For higher irradiation times a weak and broad signal is observed. However, this signal is different from that of amorphous SiC. A detailed discussion of these results will be given.