

Aus dem Strahlenbiologischen Institut der
Universität München
Vorstand: Prof. Dr. A.M. Kellerer

Retrospektive Bestimmung
der
Fluenz schneller
Neutronen
in
Hiroshima

Dissertation
zum Erwerb des Doktorgrades der Humanbiologie
an der Medizinischen Fakultät der
Ludwig-Maximilians-Universität zu München

vorgelegt von

GEORG RUGEL
aus Krumbach

2002

Mit Genehmigung der Medizinischen Fakultät
der Ludwig-Maximilians-Universität München

Berichterstatter: Prof. Dr. A.M. Kellerer

Mitberichterstatter: Prof. Dr. E. Dühmke
Prof. Dr. Dr. H.-E. Wichmann

Mitbetreuung durch
den promovierten
Mitarbeiter: Dr. W. Rühm

Dekan: Prof. Dr.med. Dr.h.c. K. Peter

Tag der
mündlichen Prüfung: 26. 06. 2002

Zusammenfassung

In dieser Arbeit konnte zum ersten Mal nach über 50 Jahren die Fluenz schneller Neutronen, denen die Atombombenüberlebenden in Hiroshima ausgesetzt gewesen waren, experimentell bestimmt werden. Als Flusssonde dienten dazu Kupferproben, in denen durch schnelle Neutronen über die Kernreaktion $^{63}\text{Cu}(n,p)$ das langlebige Radioisotop ^{63}Ni erzeugt worden war. Die – auf der Basis des derzeit gültigen Dosimetriesystems DS86 – durchgeführten Rechnungen zeigen, dass die in dieser Arbeit erreichte Empfindlichkeit der hier angewendeten Methode der Beschleunigermassenspektrometrie ($^{63}\text{Ni}/\text{Ni} = 2 \cdot 10^{-14}$) es ermöglicht, ^{63}Ni in Kupferproben aus Hiroshima und Nagasaki bis zu einem Abstand von etwa 1800 m von den jeweiligen Hypozentren nachzuweisen. Bei diesen Entfernungen konnten viele Betroffene überleben. Sie stellen den Großteil der Personen, die in einer großen epidemiologischen Studie, der *Life Span Study* der japanischen Atombombenüberlebenden, erfasst sind. Die Effizienz der Methode von etwa 10^{-5} erlaubt nun die Bestimmung der Konzentration von ^{63}Ni in Probenmengen von einigen $100 \mu\text{g}$ Nickel, sodass für eine Messprobe eine Ausgangsmasse von 10 g Kupfer bereits ausreichend war. Die im Rahmen dieser Arbeit erfolgte Optimierung der Methode erlaubt derzeit den weltweit empfindlichsten Nachweis von ^{63}Ni .

Die Abschätzung der natürlichen Produktion von ^{63}Ni durch kosmische Strahlung ergab, dass diese erst bei großen Abständen vom Hypozentrum die Produktion durch Neutronen der Atombomben überdecken kann.

Im Rahmen dieser Arbeit konnten erstmals acht Kupferproben aus Hiroshima auf ihren ^{63}Ni -Gehalt untersucht werden. Die Abstände der Probenorte vom Hypozentrum reichen von 380 m bis 1880 m; eine weitere Probe stammt aus einer Entfernung von 5 km. Die Probe aus einer Entfernung von 380 m zeigte im Vergleich zum Ergebnis der DS86-Rechnung deutlich weniger Aktivität. Dieser Trend war bereits für thermische Aktivierungsprodukte bei kleinen Abständen vom Hypozentrum in Hiroshima beobachtet worden. Für einen Abstand von etwa 1 km stimmen die Messergebnisse im Wesentlichen mit DS86 überein. Weiter entfernt gelegene Proben zeigen dagegen deutlich höhere Aktivitäten als nach DS86 zu erwarten wäre. Da auch Kupferproben aus einer Entfernung von 5 km sowie eine Kupferprobe eines Kirchturmdaches aus Deutschland eine ähnliche $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$ -Konzentration im Bereich von 10^5 aufweisen, kann ein Untergrund in dem $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$ -Verhältnis der Proben aus Hiroshima nicht ausgeschlossen werden. Ohne eine Korrektur, die diesem Untergrund Rechnung trägt, ergibt sich für eine Entfernung von 1461 m eine maximale Diskrepanz zwischen Messung und DS86-Rechnung von einem Faktor 9. Dies ist bereits deutlich kleiner als die Faktoren, die aufgrund der Messung von Aktivierungsprodukten thermischer Neutronen in diesem Abstandsbereich diskutiert werden. Wird der oben erwähnte Untergrund dagegen abgezogen, stimmen die erhaltenen Ergebnisse im Rahmen der Messunsicherheiten mit DS86 überein.

Da für die Neutronendosen, denen die Atombombenüberlebenden von Hiroshima und Nagasaki ausgesetzt waren, hauptsächlich schnelle Neutronen verantwortlich waren, stellt die Messung des durch schnelle Neutronen in Kupferproben erzeugten Aktivierungsprodukts ^{63}Ni das Schlüsselexperiment zur retrospektiven Bestimmung der Neutronendosis in Hiroshima dar. In einer neuen Version der Dosimetrie für die Überlebenden der Atombomben von Hiroshima und Nagasaki werden die in der vorliegenden Arbeit erzielten Ergebnisse mit eingehen.

Inhaltsverzeichnis

Zusammenfassung	i
Inhaltsverzeichnis	iii
Prolog	vii
Einleitung	1
1 Daten zur Studie der Atombombenüberlebenden	3
1.1 Das Kollektiv der Atombombenüberlebenden von Hiroshima und Nagasaki .	3
1.2 Entwicklung zum aktuellen Dosimetriesystem DS86 und Vorstellung wichtiger Begriffe	4
1.3 Leukämien und solide Tumore in der LSS-Kohorte	13
1.4 Verifizierung der DS86-Rechnungen	14
1.4.1 Messungen der Gammafluenz	14
1.4.2 Messungen der Neutronenfluenz	15
1.5 Biologische Strahlenwirkung von Neutronen	17
2 Abschätzung der Produktion von ^{63}Ni in Kupferproben aus Hiroshima und Nagasaki	21
2.1 Methode zur Berechnung der Produktion	21
2.2 Wirkungsquerschnitt	22
2.3 Berechnung der Produktion nach DS86	23

3	Natürliche Produktion von ^{63}Ni durch kosmische Strahlung	29
3.1	Kosmische Strahlung	29
3.2	Gewinnung von Kupfer	33
3.3	Kernreaktionen, die zu ^{63}Ni führen	34
3.3.1	Durch hadronische Wechselwirkung induzierte Reaktionen in Kupfer .	34
3.3.2	Durch Myonen und γ -Strahlung induzierte Reaktionen in Kupfer . . .	37
3.3.3	Produktion von ^{63}Ni in Nickel	40
3.4	Diskussion der Produktion von ^{63}Ni durch kosmische Strahlung	41
4	Beschleunigermassenspektrometrie mit ^{63}Ni	43
4.1	Wesentliche Komponenten der Nachweismethode	43
4.1.1	Chemische Aufbereitung	44
4.1.2	Beschleunigermassenspektrometrie in Garching	45
4.1.3	Dedizierte Ionenquelle	47
4.1.4	Tandembeschleuniger	51
4.1.5	Gasgefülltes Analysiermagnetsystem: GFM und Ionisationskammer .	52
4.2	Ablauf einer Messung	56
4.2.1	Entwicklung eines „Fenstersatzes“	56
4.2.2	Bestimmung der Transmission	56
4.2.3	Bestimmung der Konzentration an ^{63}Ni	57
4.2.4	Fehlerbetrachtung	58
4.2.5	Messungen von Blanks	58
4.2.6	Messungen der Blindproben	59
4.2.7	Effizienz einer Messung	61
4.3	Vergleich mit anderen Labors	61
5	Messergebnisse	63
5.1	Proben aus Hiroshima	63
5.1.1	Bank von Japan, Filiale Hiroshima	65
5.1.2	Soja-Soßen-Brauerei	66

5.1.3	Rathaus	67
5.1.4	Grundschule der Universität von Hiroshima	68
5.1.5	Radioisotopengebäude der Universität von Hiroshima	68
5.1.6	Sumitomo Bank Hiroshima	71
5.1.7	Kusatsu-Hachiman Schrein	71
5.1.8	Motuyasu Brücke und Sanin Godo Bank	72
5.2	Thannhausener Kirchturm	73
5.3	Zusammenfassung der Messergebnisse	74
6	Diskussion	77
6.1	^{63}Ni -Ergebnisse als Funktion des Abstandes	77
6.1.1	Bewertung der ^{63}Ni -Messungen	77
6.2	Beiträge des Untergrundes	78
6.2.1	Untergrund durch kosmische Strahlung	78
6.2.2	Untergrund bei der Messung des $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$ -Verhältnisses	81
6.2.3	Betrachtung mit Untergrundkorrektur	81
6.3	Interpretation der Messungen	82
6.3.1	Vergleich mit ^{32}P -Werten und DS86	82
6.3.2	Gegenwärtige Bemühungen zum Verständnis der Diskrepanz bei Aktivierungsprodukten thermischer Neutronen	84
7	Ausblick	85
	Verzeichnis der häufig verwendeten Symbole	89
	A Neutronenfluenz und Kerma aus DS86	91
	B Konversionsfaktoren für Neutronen nach DS86	95
	C Bestrahlung einer Kupferprobe mit kalten Neutronen am HMI	97
	D Ergebnisse der Einzelmessungen	99
	Verzeichnis der Abbildungen	109

Verzeichnis der Tabellen	111
Literaturverzeichnis	114
Danksagung	127

Prolog

Am 6. August 1945 um 8.15 Uhr wurde die Stadt Hiroshima Opfer der ersten auf der Spaltung von Uran basierenden Bombe. Aufgrund der intensiven Wärmestrahlung verbrannten nahezu alle Gebäude in einem Umkreis von 2 km vom Explosionszentrum bzw. wurden infolge der immensen Druckwelle zerstört. Die nukleare Kettenreaktion setzte zudem erhebliche γ - und Neutronen-Strahlung frei. Aufgrund der unmittelbaren Auswirkungen starben bis zum Ende des Jahres 1945 etwa 140 000 Menschen der japanischen Bevölkerung in Hiroshima. Als akute Folge der zweiten Atombombe über Nagasaki am 9. August 1945 um 11.02 Uhr kamen nochmals etwa 70 000 Menschen ums Leben. Noch heute leiden die Überlebenden an den physischen und psychischen Folgen dieser Abwürfe.



Aufnahme von der Zerstörung Hiroshimas.



Aufnahme von der Zerstörung Nagasakis.

Einleitung

Die Frage nach dem Risiko durch radioaktive Strahlung findet sich immer wieder in der aktuellen wissenschaftlichen und politischen Diskussion. Die epidemiologischen Beobachtungen an den Überlebenden der Atombombenexplosionen von Hiroshima und Nagasaki [1,2] stellen die wesentliche Basis der Risikoschätzungen zur Wirkung ionisierender Strahlung dar. Die Daten zum gesundheitlichen Zustand der Atombombenüberlebenden wurden seit Anfang der 50er Jahre systematisch erfasst und epidemiologisch ausgewertet. Gleichzeitig ordnet das gegenwärtig gültige Dosimetriesystem DS86 [3] etwa 87 000 Atombombenüberlebenden individuelle Strahlendosen zu. Mit Hilfe dieser Informationen können zuverlässige Abschätzungen über die Wirkung von Strahlendosen ab etwa 100 mSv gemacht werden.

Die sogenannte *Life Span Study* der Atombombenüberlebenden ist auch insofern von großer Bedeutung, da bisher in keiner anderen epidemiologischen Studie die Auswirkungen einer Neutronenexposition auf den Menschen untersucht werden konnten. So stützen sich die Risikoschätzungen für Neutronen auf epidemiologische Beobachtungen an Untersuchungen mit reiner γ -Strahlung und auf strahlenbiologische Vergleiche der Wirkung von Neutronen mit der von γ -Strahlung. Bei Tier- und Zellexperimenten zeigt sich eine lineare Dosis-Wirkungs-Beziehung für Neutronen. Für γ - oder auch Röntgenstrahlung ist die Dosis-Wirkungs-Beziehung dagegen linear-quadratisch und verläuft bei niedrigen Dosen unterhalb der entsprechenden Beziehung für Neutronen. Damit ist bei kleinsten Dosen die relative biologische Wirksamkeit (*relative biological effectiveness, RBE*) der Neutronen gegenüber der von γ -Strahlung am größten. Je kleiner die Anfangssteigung einer Dosis-Wirkungs-Kurve für γ -Strahlung ist, desto größer ist die *RBE*. In einem gemischten γ - und Neutronenfeld, wie es bei der Atombombenexplosion in Hiroshima der Fall war, ist der Beitrag der Neutronen zur Wirkung bei kleinen Dosen deshalb besonders wichtig.

Mit dieser Arbeit ergibt sich nun erstmals seit über 50 Jahren wieder die Möglichkeit, die Fluenz der für den Großteil der Neutronendosis verantwortlichen schnellen Neutronen in Hiroshima experimentell bestimmen zu können. Außerdem erlaubt die erreichte Nachweisgrenze zum ersten Mal überhaupt aussagekräftige Messungen an Proben aus einer Entfernung von 1–2 km Abstand zum Hypozentrum. Atombombenüberlebende aus diesen Abständen waren einer so hohen Dosis ausgesetzt, dass unter ihnen deutlich erhöhte Krebsraten beobachtet werden konnten. Eine experimentelle Bestimmung der Neutronendosen ist also gerade bei diesen Abständen besonders relevant. Zusätzliche Brisanz erhält die Bestimmung der Neutronendosen dadurch, dass seit der Freigabe von DS86 immer mehr Berichte erschienen sind, die gerade für diese Abstände eine signifikante Unterschätzung der in DS86 angegebenen Flu-

enz thermischer Neutronen postulierten. Eine zusammenfassende Darstellung der bisherigen Datenlage ist in [4] gegeben.

Die momentan existierende Unsicherheit bei der Bestimmung der in DS86 angegebenen Neutronendosen für Hiroshima (insbesondere bei kleinen Dosen) stellt die Verlässlichkeit der an den Atombombenüberlebenden gewonnenen Risikoschätzung allgemein in Frage. Deshalb wurde in dieser Arbeit die Fluenz schneller Neutronen in Hiroshima erstmals auch bei großen Abständen vom Explosionszentrum experimentell bestimmt.

Gliederung der Arbeit

Kapitel 1 zeigt charakteristische Eigenschaften der Studie an den Atombombenüberlebenden von Hiroshima und Nagasaki auf. Insbesondere werden das derzeit gültige Dosimetriesystem DS86 und dessen bisherige experimentelle Überprüfungen beschrieben.

Kapitel 2 behandelt die Produktion von ^{63}Ni in Kupferproben aus Hiroshima und Nagasaki. Es wird gezeigt, dass das Isotop ^{63}Ni geeignet ist, in Hiroshima und Nagasaki die Fluenz schneller Neutronen, die hauptsächlich zur Neutronendosis beitragen, retrospektiv zu bestimmen.

Kapitel 3 fasst die Möglichkeiten der Produktion von ^{63}Ni durch kosmische Strahlung zusammen. Die $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$ -Konzentration wird abgeschätzt und mit der erwarteten Konzentration durch die Neutronen der Atombomben verglichen.

Kapitel 4 beschreibt die Messmethode der Beschleunigermassenspektrometrie, die zum Nachweis von ^{63}Ni verwendet wurde.

Kapitel 5 listet die verfügbaren Kupferproben aus Hiroshima auf und fasst die Ergebnisse aller bisher erfolgten Messungen zusammen.

Kapitel 6 enthält eine Interpretation der in dieser Arbeit erhaltenen Messergebnisse.

Kapitel 7 gibt einen Ausblick auf zukünftige Messungen, die aufgrund dieser Arbeit möglich geworden sind.

Kapitel 1

Daten zur Studie der Atombombenüberlebenden von Hiroshima und Nagasaki

In diesem Kapitel wird zuerst die Studie an den Atombombenüberlebenden vorgestellt. Nach der Erläuterung wichtiger Begriffe wird die Computersimulation für das Dosimetriesystem DS86 diskutiert, mit deren Hilfe für etwa 87 000 Atombombenüberlebende individuelle Organ Dosen berechnet wurden. Die Gesundheitsdaten der Studie werden den nach DS86 berechneten Dosen gegenübergestellt. Dann werden die bereits erfolgten experimentellen Verifikationen des Dosimetriesystems DS86 dargelegt. Schließlich wird auf die Wirkung von schnellen Neutronen speziell eingegangen.

1.1 Das Kollektiv der Atombombenüberlebenden von Hiroshima und Nagasaki

Ein Großteil unseres Wissens über Langzeiteffekte radioaktiver Strahlung auf den Menschen stammt aus Studien an den japanischen Atombombenüberlebenden. Die Daten zum gesundheitlichen Zustand von etwa 120 000 Überlebenden werden seit mehr als 50 Jahren im Rahmen der sog. *Life Span Study* (LSS) systematisch erfasst und epidemiologisch ausgewertet. Diese Untersuchungen wurden von 1947–1975 durch die *Atomic Bomb Casualty Commission* (ABCC) durchgeführt und später durch die *Radiation Effects Research Foundation* (RERF) fortgeführt. Die anfallenden wissenschaftlichen Ergebnisse werden regelmäßig von RERF in Berichten veröffentlicht [1,2]. Diese Ergebnisse stellen die Grundlage für die Ableitung der Risikoschätzungen von Langzeitwirkungen radioaktiver Strahlung auf den Menschen dar (z.B. im Bericht ICRP60 der Internationalen Kommission für Strahlenschutz (ICRP, *International Commission on Radiological Protection*) [5]).

Zu den etwa 120 000 Atombombenüberlebenden, die für die Untersuchungen ausgewählt wor-

den waren, gehören etwa 50% aller Überlebenden des Jahres 1946, welche sich im Umkreis von 2.5 km um den Explosionsort aufgehalten hatten. Als Kontrollgruppe dienen Personen, die weit entfernt waren oder sich zur Zeit des Bombenabwurfs nicht in Hiroshima bzw. Nagasaki befanden. Bei deren Auswahl wurde auf eine passende Geschlechts- und Altersverteilung geachtet. In der Kohorte sind beide Geschlechts- sowie alle Altersgruppen enthalten. Etwa 2/3 der Mitglieder stammen aus Hiroshima. Bis zum Jahr 1990 waren 46% der Mitglieder der Kohorte verstorben, wobei noch über 90% der zur Zeit der Explosion unter 20jährigen Personen lebten. Im Jahr 1995 betrug das Durchschnittsalter der Atombombenüberlebenden 66 Jahre. Für die Überlebenden gibt es regelmäßige medizinische Untersuchungen, sowie eine systematische Registrierung von Krankheiten. Das japanische Familienregister *Koseki* stellt Daten des momentanen Aufenthaltsortes sowie zum vitalen Status dieser Personen zur Verfügung. Somit spielt Migration für die Erfassung von Mortalitätsdaten keine Rolle. Die Inzidenzdaten stehen dagegen nur für Einwohner von Hiroshima und Nagasaki zur Verfügung.

Alle Atombombenüberlebenden waren zum selben Zeitpunkt (6. August in Hiroshima bzw. 9. August in Nagasaki) und akut exponiert. Daraus resultiert eine hohe Dosisleistung für die Betroffenen. Da die erhaltene Dosis mit dem Abstand vom Explosionszentrum abnimmt, ergibt sich für die Betroffenen ein breites Dosispektrum.

Das momentan gültige Dosimetriesystem DS86 ermöglicht die Berechnung individueller Organ Dosen mittels eines Rechenmodells für ca. 87 000 Atombombenüberlebende (siehe Abschnitt 1.2).

1.2 Entwicklung zum aktuellen Dosimetriesystem DS86 und Vorstellung wichtiger Begriffe

Bereits wenige Tage nach dem Abwurf der Bomben wurde damit begonnen, das Ausmaß der Zerstörungen systematisch zu erfassen [6]. So wurden beispielsweise das Hypozentrum wie auch die Höhe der Explosion schon damals bestimmt [7] (siehe auch Abbildung 1.1). Bald war klar, dass als Ursache der Zerstörung nur eine nukleare Waffe in Frage kommen konnte. Daher wurde versucht, die erzeugte Radioaktivität über Aktivierungsprodukte der Strahlung zu bestimmen. Von besonderem Interesse ist die Messung des Radionuklides ^{32}P (Halbwertszeit $T_{1/2} = 14.26$ d), das damals durch schnelle Neutronen in schwefelhaltigem Klebstoff von Isolatoren produziert wurde (siehe Abschnitt 1.4.2).

Vorstellung wichtiger Begriffe

Das Hypozentrum ist die senkrechte Projektion des Explosionsortes – im Folgenden Epizentrum genannt – auf den Erdboden (siehe Abbildung 1.1). Für Abstände zum Hypozentrum wird die Abkürzung r_{gr} (*ground range*) verwendet, für Abstände zum Epizentrum r_{sl} (*slant range*). Die Höhen H der Epizentren über dem Erdboden wurden zu (580 ± 15) m im Falle

von Hiroshima und (503 ± 10) m für Nagasaki abgeschätzt [3]. Der Zeitpunkt der Detonation – 6. bzw. 9. August 1945 in Hiroshima bzw. Nagasaki – wird meist mit ATB (*at time of bombing*) abgekürzt. Die Detonationsstärke betrug in Hiroshima (15 ± 3) kt TNT, in Nagasaki (21 ± 2) kt TNT [3]. Eine Kilotonne des konventionellen Sprengstoffes TNT entspricht einer Energie von $4.184 \cdot 10^{12}$ J.

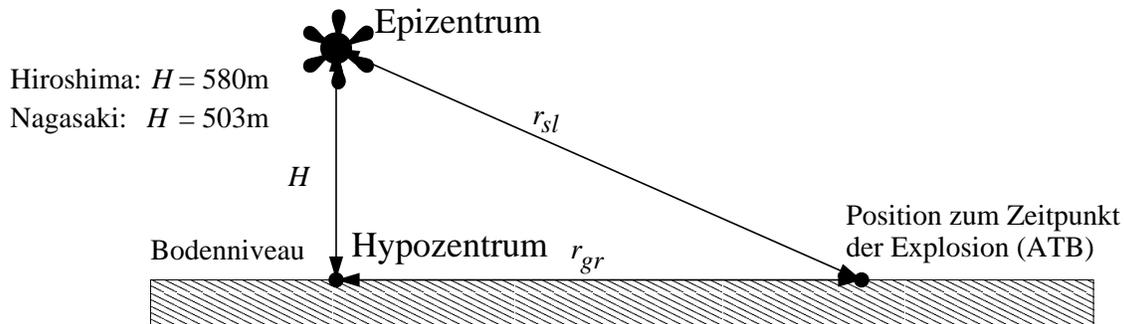


Abbildung 1.1: Definition geometrischer Abstände. r_{gr} : ground range; r_{sl} : slant range.

In der „Little Boy“ genannten Hiroshima-Bombe wurde eine unterkritische Masse Uran mit Hilfe eines herkömmlichen Sprengstoffes auf eine zweite geschossen (*gun-type-device*). Das Spaltmaterial bestand aus etwa 40 kg Uran mit einer Anreicherung an ^{235}U von etwa 25%. Die Nagasaki-Bombe („Fat Man“ genannt) war dagegen vom sogenannten Implosionstyp. Das Spaltmaterial ^{239}Pu war als Hohlkugel angeordnet. Der umgebende Sprengstoff komprimiert das Spaltmaterial auf die kritische Dichte.

Bei der Kernspaltung – der Ursache der explosionsartigen Freisetzung von Energie einer Atombombe – werden pro Spaltung im Durchschnitt etwa 2.5 Neutronen freigesetzt. Diese Spaltneutronen haben anfangs eine mittlere Energie von etwa 2 MeV^1 . Durch Wechselwirkungen mit dem Strukturmaterial der Bomben (z.B. Eisen) verschiebt sich das ursprüngliche Energiespektrum der Neutronen zu niederen Energien. Als Maßeinheit der Wechselwirkungswahrscheinlichkeit von Neutronen mit Materie wird der sogenannte Wirkungsquerschnitt σ verwendet. Der Wirkungsquerschnitt ist von der Energie der Neutronen sowie von den Kerneigenschaften des Materials abhängig. Meist wird ein Wirkungsquerschnitt in Einheiten von Barn, $1 \text{ b} = 10^{-24} \text{ cm}^2$ angegeben.

Man unterscheidet verschiedene Energiebereiche der Neutronen:

- Schnelle Neutronen
Als schnelle Neutronen werden Neutronen mit einer Energie oberhalb von etwa 1 MeV bezeichnet. Im Falle einer Atombombe geben sie einen direkten Hinweis auf die Anzahl der prompt erzeugten Neutronen. Schnelle Neutronen sind für die Neutronendosis in Gewebe maßgeblich (siehe Abschnitt 1.5).
- Epithermische Neutronen
Neutronen mit Energien zwischen 1 MeV und 0.4 eV werden als epithermische Neutronen bezeichnet. Sie entstehen aus den schnellen Neutronen durch Moderation und

¹1 MeV entspricht einer Energie von $1.6 \cdot 10^{-13}$ J.

wechselwirken ähnlich den im nächsten Abschnitt behandelten thermischen Neutronen. Der Verlauf des totalen Wirkungsquerschnitts zeigt im Bereich epithermischer Energien häufig Resonanzen. (Ferner nimmt der Wirkungsquerschnitt meist proportional zu $1/v$ - bzw. $1/\sqrt{E}$ mit der Neutronenenergie E ab.)

- Thermische Neutronen

Niederenergetische Neutronen mit Energien E kleiner als 0.4 eV werden als thermische Neutronen bezeichnet. Die Geschwindigkeit v dieser Neutronen ist relativ langsam, sodass genügend Zeit für eine Wechselwirkung mit einem Kern besteht. Der Verlauf des Wirkungsquerschnitts für Einfangsreaktionen mit thermischen Neutronen zeigt meist eine $1/v$ - bzw. eine $1/\sqrt{E}$ -Abhängigkeit (s.o.).

Bei einer Kernspaltung entsteht zudem γ -Strahlung: prompte γ -Strahlung unmittelbar bei der Spaltung und sekundäre γ -Strahlung durch Wechselwirkung mit Materie (Hülle der Atombombe, Erdboden, Holzhäuser, etc.), z.B. über Kernreaktionen via Neutroneneinfang. Die γ -Strahlung selbst wechselwirkt wiederum mit Materie über Photoeffekt, Comptonstreuung an Elektronen und Paarbildung und ionisiert so indirekt das betreffende Material.

Die bei der Kernspaltung entstehenden Atomkerne sind überwiegend instabil. Nach den Atombombenexplosionen wurden diese Spaltprodukte aus der Explosionswolke als sogenannter *fall out* auf den Erdboden ausgewaschen (*black rain*). Die hauptsächlich davon betroffenen Gebiete waren begrenzt und lagen außerhalb der Stadtzentren, in Hiroshima im Westen der Stadt im Koi-Takasu Bezirk ($r_{gr} \sim 3$ km), in Nagasaki im Nishiyama Bezirk im Osten ($r_{gr} \sim 3$ km) [3]. Im Weiteren wird daher nur auf die Dosis durch das externe Strahlungsfeld (Neutronen- und γ -Dosis) eingegangen.

Entwicklung der Dosimetriesysteme

Aufgrund einer erhöhten Anzahl beobachteter Katarakte (Linsentrübungen) [8, 9] und Leukämieerkrankungen [10, 11] wurden bereits in den 50er Jahren erste Anstrengungen unternommen, den Überlebenden der Atombombenabwürfe von Hiroshima und Nagasaki eine Dosis zuzuordnen. Nach den – auf Testexplosionen beruhenden – vorläufigen Dosimetriesystemen T57D [12] und T65D [13] wurde 1987 das momentan gültige Dosimetriesystem DS86 (*Dosimetry System 1986*) [3] eingeführt. Einen Überblick über die Entwicklung der einzelnen Dosimetriesysteme bietet beispielsweise [4].

Ein Dosimetriesystem zielt darauf ab, die absorbierten Dosen zu bestimmen, denen exponierte Personengruppen ausgesetzt waren. Die absorbierte Dosis bezeichnet die Energie, die bei Einfall von ionisierender Strahlung in einem Medium pro Masse absorbiert wird. Ihre Einheit ist das Gray ($1 \text{ Gy} = 1 \text{ J/kg}$). Als Hilfsgröße für indirekt ionisierende Teilchen wie Neutronen oder Photonen wurde die Kerma (*kinetic energy released in matter*) eingeführt. Sie entspricht der in einem Medium freigesetzten kinetischen Energie. Betrachtet man ein Volumen, für das die kinetische Energie der Sekundärteilchen, die das Volumen verlassen, der deponierten kinetischen Energie der einfallenden Sekundärteilchen entspricht, so entspricht die Kerma der in einem Volumen absorbierten Dosis. In den meisten Organen ist

diese Bedingung gut erfüllt. Die Kerma kann aus der Fluenz² und der Energie der einfallenden Photonen und Neutronen sowie der Elementzusammensetzung des betroffenen Gewebes berechnet werden. In DS86 wird beispielsweise die Kerma in Gewebe angegeben. Sie basiert auf Neutronen- und γ -Fluenzen 1 m über dem Boden (*free-in-air (FIA) kerma in tissue*, siehe Tabelle A.2). Die Abschirmungen von Gebäuden oder durch den Körper der Personen selbst müssen zur Betrachtung einer Organdosis z.B. mittels Transmissionsfaktoren dann noch berücksichtigt werden.

Strahlenart und Energiebereich	w_R
Photonen, alle Energien	1
Elektronen und Myonen, alle Energien	1
Neutronen, Energie < 10 keV	5
10 keV bis 100 keV	10
100 keV bis 2 MeV	20
2 MeV bis 20 MeV	10
> 20 MeV	5
Protonen (außer Rückstoßprotonen), Energie > 2 MeV	5
α -Teilchen, Spaltprodukte, schwere Kerne	20

Tabelle 1.1: *Strahlungswichtungsfaktoren w_R nach ICRP60 [5]. Die Werte gelten für ein von außen auf den Körper einfallendes Strahlungsfeld oder bei einer internen Strahlungsquelle für Strahlung aus dieser Quelle.*

Eine zentrale Größe im Strahlenschutz ist die Äquivalentdosis H_T :

$$H_T = \sum_R w_R \cdot D_{T,R}. \tag{1.1}$$

Hierbei stehen $D_{T,R}$ für die absorbierte Energiedosis gemittelt über ein Organ oder Gewebe T (*tissue*) durch eine externe Strahlungskomponente R und w_R für den Wichtungsfaktor der Strahlung (siehe Tabelle 1.1). Die spezielle Einheit der Äquivalentdosis H_T ist das Sievert ($1 \text{ Sv} = 1 \text{ J/kg}$). Die Strahlungswichtungsfaktoren w_R wurden von der Internationalen Kommission für Strahlenschutz (ICRP, *International Commission on Radiological Protection*) ausgewählt und stehen als repräsentative Werte für die relative biologische Wirksamkeit (*RBE, relative biological effectiveness*) der jeweiligen Strahlung, stochastische Effekte zu induzieren. Für die Energieabhängigkeit der Werte von w_R für Neutronen ist im Bericht ICRP60 auch eine analytische Funktion angegeben. Eine ausführlichere Erklärung der Begriffe findet sich in [5]. Zur biologischen Wirkung der Neutronen siehe Abschnitt 1.5.

Die Werte der *RBE* stellen das Verhältnis der Energiedosis einer Referenzstrahlung, meist ^{60}Co - γ -Strahlung, zu einer anderen Strahlungsart bei gleichem Effekt dar. Es gibt verschiedene strahleninduzierte Effekte, sogenannte Endpunkte, die betrachtet werden können. Für

²Die Fluenz F ist der Fluss Φ einer Teilchenart (in dieser Arbeit meist der Neutronen) pro Flächeneinheit und Sekunde während der Zeit t . $F = \int \Phi(t) dt$.

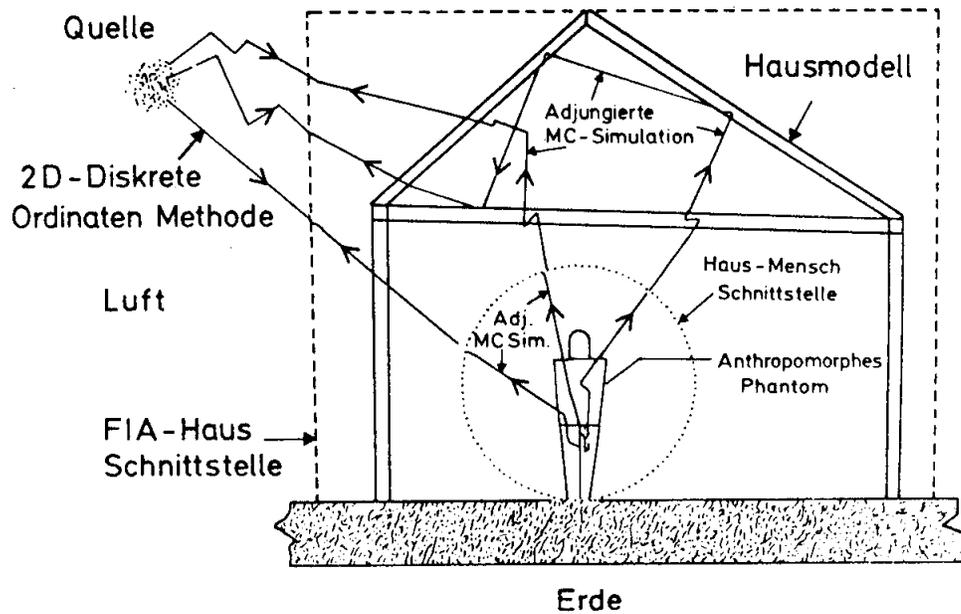


Abbildung 1.2: Illustration des DS86-Modells. Abbildung nach DS86 [3, Seite 414].

den Endpunkt einer Chromosomenabberation können beispielsweise in-vitro-Versuche zur Bestimmung der *RBE* dienen.

Die Rolle der Neutronen in Hiroshima wurde in den einzelnen Dosimetriesystemen unterschiedlich bewertet. So wurden in T65D für Hiroshima wesentlich höhere Neutronendosen abgeschätzt als in DS86. H.H. Rossi und C.W. Mays errechneten daraus eine Knochenmarkdosis für die Überlebenden in Hiroshima und Nagasaki [14]. Die Leukämierate bei der so bestimmten Dosis war dann in Hiroshima größer als in Nagasaki und deutete damit entweder auf erhöhte Werte der *RBE* für Neutronen oder auf einen Fehler bei der Dosisabschätzung hin [14,15]. Dies führte nach verschiedenen Überlegungen, siehe beispielsweise in [16], maßgeblich zu der Entwicklung von DS86. Auch im gegenwärtigen Dosimetriesystem DS86 ergibt sich für Hiroshima eine höhere Neutronendosis als für Nagasaki (siehe Anhang A), jedoch wurde den Neutronen nach DS86 in keiner Stadt eine bedeutende Rolle zugeschrieben. Bei der Auswertung der Daten der LSS wurde so ein konstanter Wert der *RBE* von 10 für die Berechnung einer Äquivalentdosis verwendet [1]. Messungen von Chromosomenabberationen in Blutproben von Überlebenden zeigten dagegen signifikante Unterschiede zwischen Hiroshima und Nagasaki [17]. Dies könnte ein Hinweis darauf sein, dass den Neutronen doch eine größere Bedeutung zuzumessen ist. Besonders bei großen Abständen erscheint eine Messung der Fluenz schneller Neutronen und damit der Dosis zur Überprüfung des Dosimetriesystems sehr wichtig. Es gab dazu verschiedene Ansätze, wie die Messung des Aktivierungsproduktes ^{60}Co in dicken Eisenproben, siehe [18], jedoch war eine direkte Messung bis zu der vorliegenden Arbeit nicht möglich.

Dosis nach DS86

Das Dosimetriesystem DS86 [3] ordnet den Atombombenüberlebenden in Hiroshima und Nagasaki individuelle Organdosen zu. DS86 basiert im Wesentlichen auf Computersimulationen, die aus gekoppelten Neutron- γ -Transport-Rechnungen vom Epizentrum bis zu einem einzelnen Organ bestehen. Die Methodik ist in Abbildung 1.2 veranschaulicht. Die aufgrund der Atombombenexplosion freigesetzten Neutronen reagieren mit den Bombenmaterialien, z.B. der Eisenhülle, sowie im Weiteren mit den Bestandteilen der Atmosphäre. Sie verlieren dabei Energie und erzeugen eine Vielzahl von Photonen (γ -Strahlung).

Ausgehend vom Quellterm der jeweiligen Atombombe wurde der Transport der γ - und Neutronenstrahlung unter Berücksichtigung der damaligen Bedingungen (Luftfeuchtigkeit der Atmosphäre, etc.) berechnet. Der Transport der prompten Neutronen- und der prompten wie auch der in Atmosphäre erzeugten γ -Strahlung wurde mit einem 2-dimensionalen Computermodell mit diskreten Ordinaten und mit einem Monte-Carlo-Code berechnet. Die daraus gewonnenen Werte stellen die Basis für die weiteren Berechnungen in DS86 dar. Das Spektrum der Neutronen ist in 46 diskreten Energiegruppen 1 m über dem Boden angegeben, für γ -Strahlung wurden 22 Energiegruppen gewählt. Die Werte der prompten Neutronenfluenz in Hiroshima sind im Anhang A aufgelistet.

Zur Überprüfung der Gültigkeit des DS86-Modells wurden verschiedene Experimente und Ergebnisse von Messungen, die bis zu diesem Zeitpunkt in Hiroshima und Nagasaki gemacht worden waren (siehe Abschnitt 1.4), herangezogen. Auch später wurde versucht, die berechneten Fluenzen durch die Messung von geeigneten Sonden zu verifizieren (siehe ebenso Abschnitt 1.4).

Als Ergebnis stellt DS86 beispielsweise energieabhängige γ - und Neutronenfluenzen als Funktion des *ground range* und entsprechende Werte der Kerma in Luft (*via kerma in tissue*) zur Verfügung.

Die Umrechnung der berechneten Fluenzen und Kermawerte in Luft in individuelle Organdosen, die momentan für 86 572 Atombombenüberlebende angewendet wird, stellt einen weiteren essentiellen Teil des Dosimetriesystems DS86 dar. Die Werte der FIA-Kerma in Gewebe sind im Anhang A für Hiroshima und Nagasaki aufgelistet. Typische japanische Häuseranordnungen wurden modelliert, um deren Abschirmungswirkung berücksichtigen zu können. Mit einer adjungierten Monte-Carlo-Technik wurden die Energie- und Winkelverteilung der γ - und der Neutronenstrahlung an einer beliebigen Stelle innerhalb eines Hauses wie auch in der nahen Umgebung der Häuser berechnet. Mit Hilfe geeigneter menschlicher Phantome in unterschiedlichen Körperhaltungen wurden unter Anwendung von weiteren Monte-Carlo-Rechnungen Transmissionsfaktoren abgeleitet, mit deren Hilfe individuelle Organdosen berechnet werden können. Tabelle 1.2 zeigt als Beispiel die Beiträge der verschiedenen Strahlungskomponenten zur berechneten Knochenmarkdosis eines erwachsenen Atombombenüberlebenden aus 1 500 m Entfernung (r_{gr}) in Hiroshima.

Die notwendigen Informationen über die individuellen Aufenthaltsorte zur Zeit der Strahlungsexposition wurden aus systematischen Befragungen in den späten 50er und frühen 60er

Strahlungsart	Dosis [mGy]
Prompte Neutronen	1.1
Verzögerte Neutronen	0.02
Prompte γ -Strahlung	102
Verzögerte γ -Strahlung	103
Durch Neutronen induzierte Komponenten:	
Prompte Neutronen-Haus- γ -Strahlung	1.3
Verzögerte Neutronen-Haus- γ -Strahlung	0.07
Prompte Neutronen-Körper- γ -Strahlung	0.9
Verzögerte Neutronen-Körper- γ -Strahlung	0.05
Gesamte Knochenmarkdosis	208.4

Tabelle 1.2: Beiträge von acht unterschiedlichen Strahlungskomponenten (DS86) zur Knochenmarkdosis eines erwachsenen Überlebenden mit Blickrichtung auf das Hypozentrum. Die Person befand sich in Hiroshima in einer Entfernung von 1500 m (r_{gr}) [19]. Prompte Neutronen-Haus- γ -Strahlung bezeichnet die durch die Wechselwirkung der prompten Neutronen mit dem Gebäude induzierte γ -Strahlung, andere Bezeichnungen analog.

Jahren gewonnen. Anzumerken ist, dass im Allgemeinen der größte Teil der Dosis sofort ($\ll 1$ min) nach der Explosion erhalten worden war.

In Abbildung 1.3 sind alle im Dosimetriesystem DS86 erfassten Atombombenüberlebenden als Punkte an ihrem damaligen Aufenthaltsort in Hiroshima dargestellt [20]. Man sieht die örtliche Verteilung der Atombombenüberlebenden, die verschiedenen Farben der Punkte repräsentieren dabei verschiedene Dosisbereiche der Dickdarmdosis der Überlebenden in DS86. Innerhalb einer Entfernung von 1 km vom Hypozentrum haben nur wenige Menschen überlebt, ab einer Entfernung von 2.5 km (r_{gr}) betrug die Dosis nur noch etwa 5 mSv und weniger. Der für epidemiologische Untersuchungen interessante Bereich liegt also zwischen 1 km und 2.5 km. In Abbildung 1.3 erkennt man außerdem die Annahme einer radialsymmetrischen Verteilung der Dosis nach DS86. Die Daten aus der LSS werden jedoch auch immer wieder im Hinblick auf Hinweise einer radialen Asymmetrie überprüft [20, 21]. Eine Studie postuliert eine asymmetrische Verteilung der Fälle [21], in einer anderen werden jedoch mit den aktuellen Daten der LSS keine Anzeichen dafür gefunden [20]. Experimentelle Messungen von durch thermische Neutronen erzeugten Radioisotopen liefern auch keinen Hinweis auf eine lokale Asymmetrie, siehe beispielsweise [22].

Tabelle 1.3 zeigt für verschiedene Abstände vom Hypozentrum Dosen nach DS86 für Knochenmark und Dickdarm, sowie die abgeschirmte Kerma, jeweils aufgeschlüsselt in eine γ - und Neutronendosis.

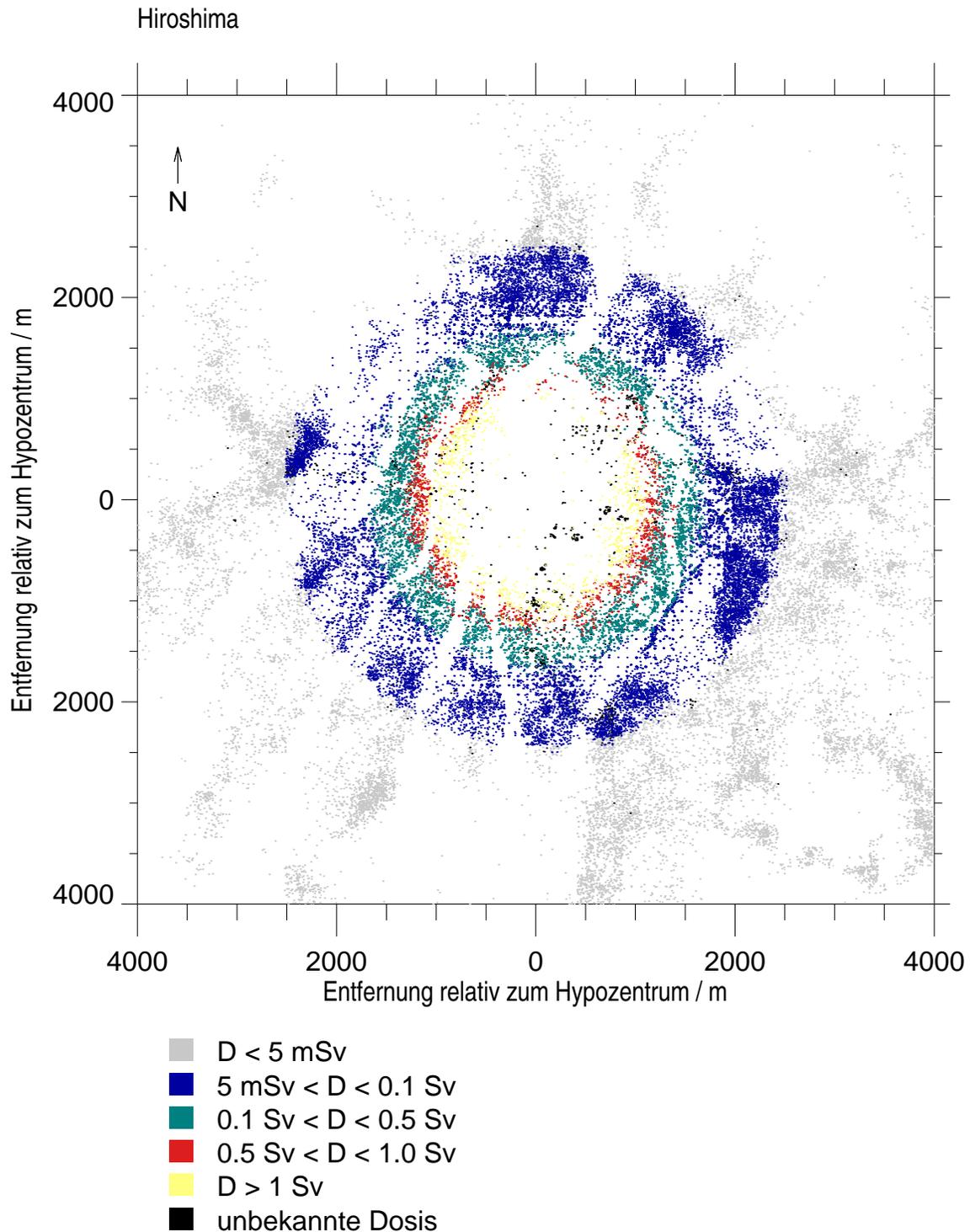


Abbildung 1.3: Örtliche Verteilung der Dosis (D) der einzelnen Atombombenüberlebenden nach DS86 in Hiroshima. Jeder Punkt steht für einen Überlebenden im Dosimetriesystem DS86, seine Farbe für die erhaltene Dickdarmdosis. Zum Vergleich siehe auch Tabelle 1.3. Die weißen Bänder, die sich durch die Abbildung ziehen, zeigen das Flussdelta des Ota. Bild nach [20].

Abstand [m]	Personen	abgeschirmte Kerma [mGy]		Knochenmarkdosis [mGy]		Dickdarmdosis [mGy]	
		Gamma	Neutronen	Gamma	Neutronen	Gamma	Neutronen
< 800	93	8759.3	964.053	7465.3	324.779	6703.2	152.103
800 –	146	3627.4	227.245	2944.0	72.714	2670.6	31.594
900 –	497	2393.1	121.787	1944.0	39.961	1768.1	18.148
1000 –	799	1667.6	69.360	1356.6	22.913	1224.6	10.529
1100 –	1234	995.3	32.014	808.5	10.807	735.4	5.196
1200 –	1790	668.2	17.272	542.6	5.934	492.3	2.876
1300 –	2236	443.6	9.185	360.6	3.205	326.9	1.590
1400 –	2540	300.6	5.012	245.1	1.785	222.8	0.907
1500 –	2750	217.0	2.913	177.4	1.048	161.6	0.541
1600 –	2895	137.4	1.495	112.7	0.554	102.6	0.292
1700 –	3149	92.7	0.804	75.9	0.298	69.0	0.157
1800 –	2912	64.4	0.450	52.8	0.167	48.1	0.088
1900 –	2737	45.2	0.255	37.0	0.095	33.7	0.050
2000 –	2573	30.1	0.133	24.7	0.050	22.4	0.027
2100 –	2708	20.6	0.072	16.8	0.027	15.3	0.013
2200 –	2865	14.3	0.040	11.7	0.015	10.6	0.009
2300 –	3007	9.9	0.022	8.1	0.010	7.3	0.002
2400 –	2521	7.2	0.013	5.9	0.004	5.3	0.000
2500 –	1293	3.0	0.006	2.5	0.000	2.3	0.000
2600 –	966	0.0	0.000	0.0	0.000	0.0	0.000
2700 –	957	0.0	0.000	0.0	0.000	0.0	0.000
>2800	17832	0.0	0.000	0.0	0.000	0.0	0.000

Tabelle 1.3: *Mittlere Kerma und Organdosen nach DS86 für 58 500 Atombombenüberlebende in Hiroshima [23]. Die abgeschirmte Kerma berücksichtigt im Gegensatz zu Werten in Luft (FIA Kerma) Effekte einer externen Abschirmung. Der mittlere Abstand in jedem Intervall ist nahe dem Mittelwert des Intervalls, mit Ausnahme des ersten und letzten Abstandsintervalls. Der mittlere Abstand für den Bereich < 800 m beträgt 703 m.*

Fehlerbetrachtung der DS86-Rechnungen

Die Unsicherheitsfaktoren für die im Rahmen von DS86 durchgeführten Berechnungen der verschiedenen Dosen setzen sich nach [19] zusammen aus:

- Systematischen Unsicherheiten (z.B. bei Wirkungsquerschnitten),
- Unsicherheiten der DS86-Methode (z.B. im Modell der Abschirmung durch Häuser),
- Unsicherheiten der Eingabedaten zur Dosisberechnung (z.B. bei der Positionsangabe der Atombombenüberlebenden).

Als Beispiel sei die Knochenmarkdosis eines erwachsenen Atombombenüberlebenden aus Hiroshima in einer Entfernung von 1 500 m mit Blickrichtung auf das Hypozentrum herausgegriffen (siehe Tabelle 1.2). Seine Dosis beträgt nach DS86 208.4 mGy, der zugehörige Bereich der gesamten Unsicherheit wird mit (25–44)% angegeben (siehe [19, Tab. 11]).

1.3 Leukämien und solide Tumore in der LSS-Kohorte

Mit dem Kollektiv der Atombombenüberlebenden (siehe Abschnitt 1.1) und der entsprechenden Zuordnung einer individuellen Dosis mittels DS86 (siehe Abschnitt 1.2) werden in den Berichten zur LSS (aktuell [1, 2]) die Beziehungen zwischen Dosis und Wirkung diskutiert. Als charakteristische Spätfolgen sind in diesem Abschnitt Todesfälle aufgrund von Leukämie und von soliden Krebserkrankungen³ angeführt.

Die Tabellen 1.4 und 1.5 zeigen die im aktuellsten Bericht zur LSS (*Report 12*) veröffentlichten Daten zu Krebsmortalität [1]. Die betroffenen Personen wurden hier verschiedenen Dosisgruppen zugeordnet. (Zum Zusammenhang zwischen der Dosis und dem Aufenthaltsort zum Zeitpunkt des Atombombenabwurfs siehe Tabelle 1.3 und Abbildung 1.3.)

Dosis [Sv]	Personen	1950–1990			1986–1990		
		beobachtete Todesfälle	erwartete Todesfälle	Dif- ferenz	beob. Todesfälle	erwartete Todesfälle	Dif- ferenz
<0.005	36 459	3 013	3 055	-42	489	496	-7
0.005–0.1	32 849	2 795	2 710	85	443	428	15
0.1–0.2	5 467	504	486	18	90	74	16
0.2–0.5	6 308	632	555	77	106	85	21
0.5–1.0	3 202	336	263	73	48	42	6
1.0–2.0	1 608	215	131	84	40	22	18
>2.0	679	83	44	39	11	7	4
Total	86 572	7 578	7 244	334	1 227	1 153	74

Tabelle 1.4: *Beobachtete und erwartete Todesfälle im aktuellen 12. Bericht der LSS (Hiroshima und Nagasaki) aufgrund von soliden Tumoren [1]. Als Referenzdosis für solide Tumore wurde die Dickdarmdosis gewählt. Für Neutronenstrahlung wird eine konstante RBE von 10 verwendet. In der Studie wird für die niederste Dosisgruppe die Dosis Null angenommen.*

In den Tabellen 1.4 und 1.5 sind die letzten fünf Jahre der Beobachtungsperiode (1986–1990) getrennt angeführt. Von den geschätzten strahleninduzierten soliden Tumoren (Spalte „Differenz“) sind etwa 22% alleine in den letzten fünf Jahren der Beobachtungsperiode aufgetreten. Da man für viele solide Tumore von einer Latenzzeit von etwa 20–30 Jahren ausgeht, ist zu erwarten, dass die LSS mit fortschreitender Zeit – insbesondere für die in jungen Jahren strahlenexponierten Personen – statistisch gesichere Erkenntnisse in Bezug auf strahleninduzierte solide Tumore zulässt. Die Latenzzeit für das Auftreten einer Leukämieerkrankung ist dagegen deutlich kürzer, deswegen kamen in den Jahren 1986–1990 kaum weitere strahleninduzierte Fälle hinzu (siehe Spalte „Differenz“ in Tabelle 1.5). Die erwartete Anzahl an Krebs-Todesfällen ergibt sich aus einem Modell, zu dem alle Personen der Studie beitragen und entspricht der Anzahl von Fällen, die für eine nicht exponierte Kohorte erwartet wird. Zur genaueren Betrachtung der Daten der Studie siehe [1].

³Als solide Krebsarten werden alle Krebsarten außer Leukämie bezeichnet, z.B.: maligne Tumore in Darm, Leber, Brust und Lunge.

Dosis [Sv]	Personen	1950–1990			1986–1990		
		beobachtete Todesfälle	erwartete Todesfälle	Dif- ferenz	beob. Todesfälle	erwartete Todesfälle	Dif- ferenz
<0.005	35 458	73	64	9	12	10	2
0.005–0.1	32 915	59	62	-3	6	9	-3
0.1–0.2	5 613	11	11	0	0	2	-2
0.2–0.5	6 342	27	12	15	4	2	2
0.5–1.0	3 425	23	7	16	2	1	1
1.0–2.0	1 914	26	4	22	1	1	0
>2.0	905	30	2	28	3	0	3
Total	86 572	249	162	87	28	25	3

Tabelle 1.5: *Beobachtete und erwartete Todesfälle im aktuellen 12. Bericht LSS (Hiroshima und Nagasaki) aufgrund von Leukämie [1]. Für Neutronenstrahlung wird eine konstante RBE von 10 verwendet. In der Studie wird für die niederste Dosisgruppe die Dosis Null angenommen. Als Referenzdosis für Leukämie dient die Knochenmarkdosis.*

1.4 Verifizierung der DS86-Rechnungen

Zur Verifizierung der in DS86 berechneten Neutronen- und γ -Fluenzen dienten verschiedene Messdaten, die bei Testexplosionen von Bomben des Nagasaki-Typs und bei Testexperimenten wie BREN (*Bare Reactor Experiment Nevada*) gewonnen worden waren [3]. Dazu waren z.B. der ungeschirmte *Health Physics Research Reaktor* (HPRR) wie auch eine ^{60}Co -Quelle auf einem 465 m hohen Turm montiert [24]. Außerdem wurden auf dem Testgelände in Nevada typische japanische Häuser aufgebaut und Fluenzsonden an geeigneten Stellen angebracht und ausgewertet, um beispielsweise die abschirmende Wirkung von Häusern zu bestimmen.

Man suchte auch geeignete Materialien in Hiroshima und Nagasaki und untersuchte diese nach Spuren der Neutronen- und γ -Bestrahlung durch die Atombomben.

1.4.1 Messungen der Gammafluenz

Durch Messungen der Thermolumineszenz bestimmter Materialien ist es möglich, die in einem Material deponierte Dosis aufgrund von γ -Strahlung zu bestimmen. Einfallende γ -Strahlung führt zur Anregung von Elektronen, die im Kristallgitter in bestimmten Energieniveaus eingefangen werden. Eine Übersicht über diese Methode bietet [26]. An vielen Proben aus Hiroshima und Nagasaki, wie z.B. in Quarz von Dachziegeln, wurden in der Vergangenheit Messungen der Thermolumineszenz durchgeführt [3]. Sie zeigen im Wesentlichen eine gute Übereinstimmung mit den entsprechenden DS86-Rechnungen. Jedoch zeigt eine Zusammenfassung der Thermolumineszenz-Messergebnisse bis zum Jahr 1995 von T. Nagatomo et al. [25] für große Abstände vom Hypozentrum (in Hiroshima) Abweichungen von den DS86-

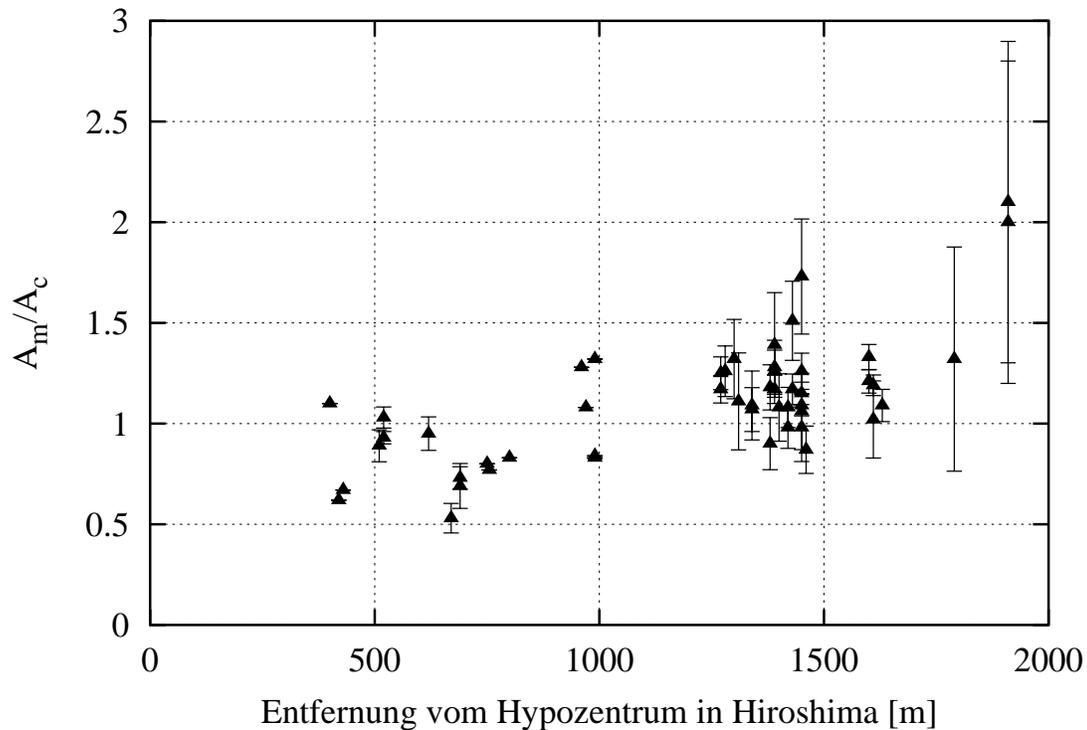


Abbildung 1.4: Messungen der Thermolumineszenz (A_m) an Proben aus Hiroshima relativ zu der nach DS86 abgeschätzten Thermolumineszenz (A_c) als Funktion des Abstandes zum Hypozentrum. Der angetragene Fehlerbereich zeigt die Unsicherheit der Messungen in den einzelnen Veröffentlichungen; zu A_c existiert meist keine Fehlerangabe. Die Daten wurden [25] und den Referenzen darin entnommen.

Rechnungen (siehe Abbildung 1.4). Mit zunehmendem Abstand vom Hypozentrum lässt sich eine zunehmende Unterschätzung der berechneten Werte erkennen, bei nahen Abständen eine Überschätzung. Die einzelnen experimentellen Werte sind [3, 25, 27–32] entnommen.

1.4.2 Messungen der Neutronenfluenz

Der retrospektive Nachweis der Neutronenfluenz ist über die Messung von radioaktiven Aktivierungsprodukten, welche durch Neutronen der Atombomben erzeugt wurden, möglich. Die Konzentration dieser Aktivierungsprodukte kann entweder über Aktivitätsmessungen oder durch direkte Zählung der Radioisotope z.B. mit Hilfe der Beschleunigermassenspektrometrie (AMS, *accelerator mass spectrometry*) bestimmt werden. Tabelle 1.6 gibt einen Überblick über die bisher veröffentlichten Messungen zur Bestimmung der Neutronenfluenz in Hiroshima. Schnelle und thermische Neutronen werden im Folgenden getrennt betrachtet.

- Schnelle Neutronen

Die Messungen von ^{32}P ($T_{1/2} = 14.26$ d), das durch die Reaktion $^{32}\text{S}(n,p)^{32}\text{P}$ ent-

Sonde	Reaktion	$T_{1/2}$	Methode	Referenzen
^{32}P	$^{32}\text{S}(n_f, p)^{32}\text{P}$	14.26 d	β	[3, 33, 34]
^{60}Co	$^{59}\text{Co}(n, \gamma)^{60}\text{Co}$	5.27 a	γ	[28, 35–41]
^{152}Eu	$^{151}\text{Eu}(n, \gamma)^{152}\text{Eu}$	13.3 a	γ	[22, 37, 38, 42–44]
^{154}Eu	$^{153}\text{Eu}(n, \gamma)^{154}\text{Eu}$	8.8 a	γ	[37]
^{36}Cl	$^{35}\text{Cl}(n, \gamma)^{36}\text{Cl}$	$3.00 \cdot 10^5$ a	AMS	[45–49]
^{41}Ca	$^{40}\text{Ca}(n, \gamma)^{41}\text{Ca}$	$1.03 \cdot 10^5$ a	AMS	[48, 50–52]
^{63}Ni	$^{62}\text{Ni}(n, \gamma)^{63}\text{Ni}$	101.4 a	β	[40]

Tabelle 1.6: Zusammenfassung von in Hiroshima über Neutronenaktivierung entstandenen Radionukliden (Sonden), die bis heute gemessen und veröffentlicht wurden. Zudem sind die Halbwertszeit $T_{1/2}$ aus [53], bzw. für ^{63}Ni aus [54] und die verwendete Nachweismethode angegeben.

β : Messung über β -Aktivität;

γ : Bestimmung über Messung der γ -Linien des Zerfalls;

AMS: **a**ccelerator **m**ass **s**pectrometry, Beschleunigermassenspektrometrie (siehe Kapitel 4).

Bis zur vorliegenden Arbeit war ^{32}P das einzige gemessene Aktivierungsprodukt, das durch schnelle Neutronen (n_f) erzeugt wurde (Reaktion $^{32}\text{S}(n_f, p)^{32}\text{P}$); alle anderen aufgeführten Reaktionen sind nur auf thermische Neutronen sensitiv.

standen war⁴, wurden bereits 35–37 Tage nach der Explosion mit einem Lauritsen-Elektroskop durchgeführt [33, 34]. Wegen der Wichtigkeit dieser durch schnelle Neutronen (n_f) induzierten Reaktion wurden diese Daten später nochmals systematisch überprüft [55]. Die ^{32}P -Messungen dienten neben anderen auch zur Normierung der Detonationsstärke der Bombe auf (15 ± 3) kt TNT in Hiroshima [3]. Die Werte der Messungen von ^{32}P nahe des Hypozentrums stimmen im Bereich von etwa 10% nicht mit den DS86-Rechnungen überein (siehe Abbildung 1.5). Die in Abbildung 1.5 mit II bezeichneten Messungen wurden bereits am 15. und 16. August mit einem Geiger-Müller-Zähler durchgeführt [3]. Die genaue Position dieser Proben konnte jedoch nicht mehr zweifelsfrei rekonstruiert werden, der Fehler wird zu ± 100 m angegeben. Diese Werte wurden zudem nicht nochmals überarbeitet. Sie werden deshalb für die weitere Argumentation nicht mehr verwendet.

Für Abstände größer als 750 m (r_{gr}) haben die Messungen von ^{32}P aufgrund der großen Unsicherheiten somit keinen Aussagewert.

- Thermische Neutronen

In den letzten Jahrzehnten wurde von verschiedenen Gruppen in Japan, USA und Deutschland eine Reihe weiterer Radionuklide, die durch thermische Neutronen der Atombomben erzeugt worden waren, nachgewiesen. Die dazu angewandten Messtech-

⁴Die Notation einer Kernreaktion ist wie folgt: A(a,b)B. Reaktion des Teilchens a auf den Targetkern A, der dann unter Aussendung des Teilchens oder γ -Quants b in den Kern B übergeht.

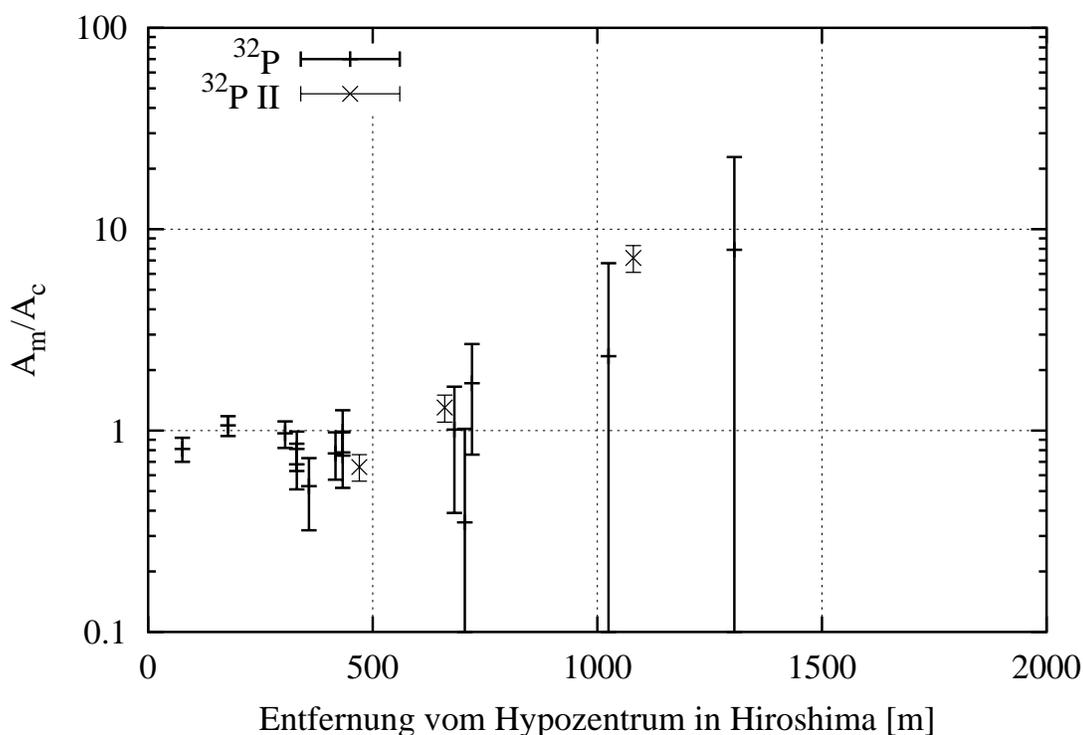


Abbildung 1.5: Messungen von ^{32}P als Sonde schneller Neutronen in Hiroshima [3, 33, 34]. A_m : gemessene Aktivität, A_c : nach DS86 berechnete Aktivität. Fehlerbalken beziehen sich auf experimentelle Unsicherheiten. II: Es gibt Zweifel bei der Positionierung dieser Proben.

niken sind in Tabelle 1.6 zusammengefasst, auf aktuelle und noch unveröffentlichte Messungen wird in Abschnitt 6.3.2 eingegangen. Nahe am Hypozentrum zeigen die Messungen geringere Werte als die DS86-Rechnungen, in großen Entfernungen jedoch teilweise drastisch höhere Werte (siehe Abbildung 1.6). Allerdings konnte mit diesen Werten nur eine indirekte Aussage über die Neutronendosis in diesen Abständen getroffen werden, da die Neutronendosis im Wesentlichen durch schnelle Neutronen hervorgerufen wird (siehe Abschnitt 1.5). Messungen eines Aktivierungsprodukts schneller Neutronen, wie in dieser Arbeit durchgeführt, sind dazu besser geeignet.

1.5 Biologische Strahlenwirkung von Neutronen

In diesem Abschnitt wird die Wechselwirkung von Neutronen mit Gewebe behandelt, die Überlegungen folgen der Abhandlung [56].

Neutronen wechselwirken infolge der fehlenden elektrischen Ladung fast ausschließlich mit den Atomkernen. Man unterscheidet dabei nach Streu- und Absorptionsprozessen. Bei Streuprozessen handelt es sich um eine mit einem Energieverlust verbundenen Ablenkung der Neutronen aus ihrer ursprünglichen Richtung. Protonen bremsen aufgrund ihrer nahezu gleichen Masse Neutronen am effektivsten. So führt beispielsweise die elastische Streuung

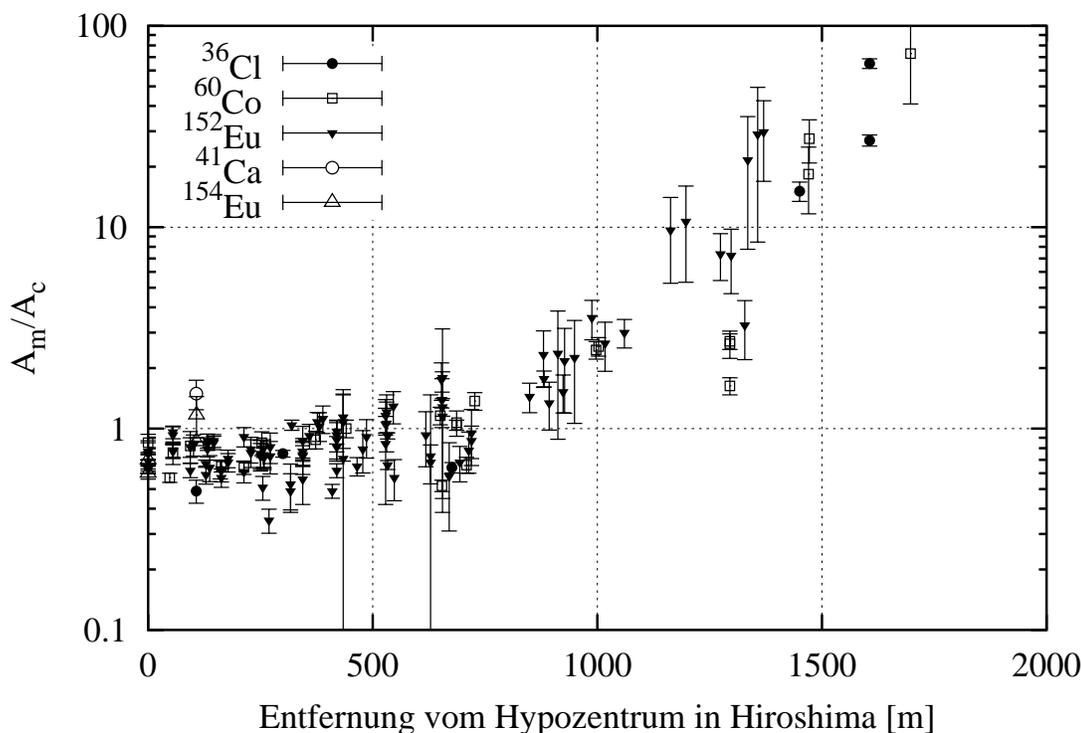


Abbildung 1.6: Messungen von Produkten thermischer Neutronen in Hiroshima im Vergleich zur Rechnung nach DS86.

A_m : gemessene Aktivität, A_c : nach DS86 berechnete Aktivität.

Fehlerbereich: Werte in den einzelnen Veröffentlichungen der Messungen; zu A_c existiert meist keine Fehlerangabe. Referenzen siehe Tabelle 1.6.

eines Neutrons an einem Proton im Mittel zu einem Energieübertrag von 50% der Neutronenenergie auf das Proton. Daher ist der Wasserstoffgehalt des betreffenden Gewebes wichtig – das menschliche Gewebe (Weichteilgewebe) beispielsweise besteht nach [57] durchschnittlich aus 63% Wasserstoff, 24% Sauerstoff, 12% Kohlenstoff und 1% Stickstoff (alle Angaben in Atomprozent). Bei Absorptionsprozessen hingegen wird das Neutron in einen Atomkern eingefangen. Die Bindungsenergie des Neutrons und ein Teil seiner kinetischen Energie wird dabei auf den Kern übertragen. Der entstehende Compoundkern kann seine Energie über die Emission von γ -Quanten und durch Teilchenemission (z.B. Protonen, α -Teilchen) abgeben. Die biologische Wirkung von Neutronen wird im Wesentlichen durch die bei der elastischen Streuung mit dem Gewebe freigesetzten Rückstoßprotonen hervorgerufen, die ihrerseits als stark ionisierende Teilchen eine dichte Schädigungsspur hinterlassen. Weiterhin sind Einfangprozesse wichtig, insbesondere $^{14}\text{N}(n,p)^{14}\text{C}$ und $^1\text{H}(n,\gamma)^2\text{H}$. Bei größeren Volumina (groß gegen die mittlere freie Weglänge der γ -Strahlung in Gewebe) tragen die dabei entstandenen γ -Quanten zur Dosis bei. Wichtige Elemente für die inelastische Streuung (z.B. n,n') sind C, N und O, deren Wirkungsquerschnitt allerdings erst ab einer Energie von etwa 5 MeV signifikant wird. Nichtelastische Streuung (z.B. n,α) wird bei den betrachteten Elementen ebenfalls erst ab einer Neutronenenergie von 5 MeV wichtig, Spallation bei noch höheren Energien. Diese Prozesse tragen allerdings kaum zur Neutronendosis der Atom-

bombenüberlebenden bei, da bei hohen Energien die Neutronenfluenzen gering waren (siehe Anhang A).

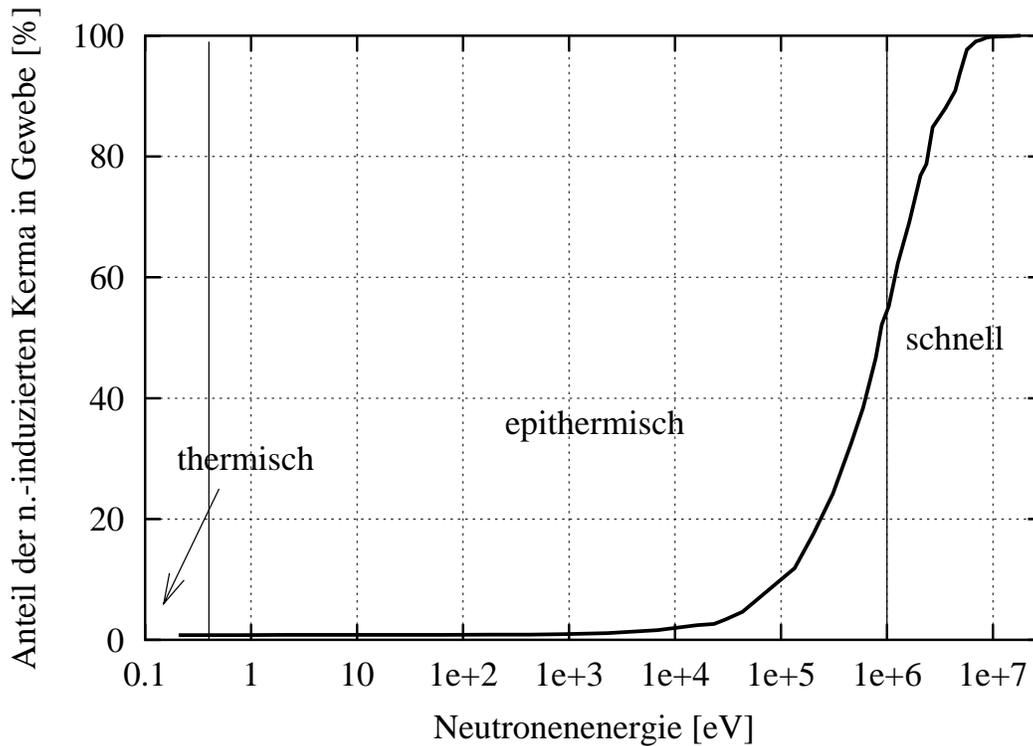


Abbildung 1.7: Anteil der neutroneninduzierten Kerma in Gewebe summiert über alle Energien bis zum entsprechenden Wert und normiert auf die entsprechende Gesamtkerma. Der prozentuale Anteil dieser Gesamtkerma wurde mit den jeweiligen Konversionsfaktoren aus DS86 (siehe Anhang B) und dem Neutronenspektrum aus DS86 im Abstand von 1 500 m vom Hypozentrum in Hiroshima berechnet. Als Energie wurde jeweils die mittlere Energie der 46 DS86-Energiegruppen aufgetragen.

In DS86 erfolgt die Umrechnung einer Neutronenfluenz in Kerma in Gewebe mit – in der Energiegruppenstruktur von DS86 angegebenen – Konversionsfaktoren (siehe Anhang B). Es sei angemerkt, dass die sekundären γ -Quanten zur neutroneninduzierten Kerma in Gewebe nichts beitragen.

Die Bedeutung der einzelnen Energiebereiche der Neutronen und deren Beiträge zur neutroneninduzierten Kerma in Gewebe in Hiroshima sollen in Abbildung 1.7 verdeutlicht werden. Der prozentuale Anteil an der neutroneninduzierten Kerma in Gewebe bis zu der an der x-Achse aufgetragenen Energie wurde mit dem Neutronenspektrum für Hiroshima (siehe Anhang A) berechnet. Die Neutronenfluenz wurde im Dosimetriesystem DS86 (siehe Abschnitt 1.2) in 46 Energiegruppen unterteilt. Die Kurve in Abbildung 1.7 beginnt bei einem Anteil von 0.76% an der gesamten neutroneninduzierten Kerma in Gewebe mit einer Energie kleiner als 0.4 eV. Im Wesentlichen wird die Kerma in Gewebe durch Neutronen mit Energien oberhalb 100 keV bestimmt.

Kapitel 2

Abschätzung der Produktion von ^{63}Ni in Kupferproben aus Hiroshima und Nagasaki

Um die Fluenz schneller Neutronen in großen Abständen vom Hypozentrum in Hiroshima ($> 1 \text{ km}$) retrospektiv bestimmen zu können, ist derzeit aus der großen Anzahl theoretisch möglicher Reaktionen die Reaktion $^{63}\text{Cu}(n,p)^{63}\text{Ni}$ am geeignetsten [58–61]. Kriterien sind eine zweckmäßige Halbwertszeit des Produktes ($5\text{--}10^9 \text{ a}$), ein ausreichend großer Wirkungsquerschnitt im Bereich schneller Neutronen und die Verfügbarkeit der Proben, damit auch heute noch aussagekräftige Messungen in großen Abständen durchgeführt werden können. In diesem Kapitel wird die in Hiroshima und Nagasaki in typischen Kupferproben zu erwartende Zahl an produzierten ^{63}Ni -Kernen abgeschätzt. Aufgrund der Halbwertszeit von (101.4 ± 1.4) Jahren [54] sind heutzutage noch etwa 70% der durch Neutronen der Atombomben erzeugten ^{63}Ni -Kerne vorhanden. Der hauptsächliche Produktionskanal für ^{63}Ni in Kupfer ist die Reaktion $^{63}\text{Cu}(n,p)^{63}\text{Ni}$. Desweiteren wird in diesem Kapitel die Produktionsrate von ^{63}Ni über Neutroneneinfang an ^{62}Ni diskutiert. Im letzten Abschnitt wird gezeigt, dass mit der in Kapitel 4 aufgezeigten Nachweisempfindlichkeit Messungen von Kupferproben aus Hiroshima mit geeigneten Entfernungen zum Explosionsort möglich sind.

2.1 Methode zur Berechnung der Produktion

Die Anzahl der in einer Kupferprobe erzeugten ^{63}Ni -Kerne ergibt sich aus Gleichung 2.1:

$$N(^{63}\text{Ni}) = \int N(^{63}\text{Cu}) \frac{d\Phi \cdot t}{dE} \sigma(E) dE. \quad (2.1)$$

$N(X)$ ist die Anzahl der Atome des jeweiligen Isotops X , $(d\Phi \cdot t)/dE$ ist die differentielle Neutronenfluenz und $\sigma(E)$ der energieabhängige Wirkungsquerschnitt z.B. der Reakti-

on $^{63}\text{Cu}(\text{n,p})^{63}\text{Ni}$ bei einer Neutronenenergie E . Im Rahmen von DS86 werden die Neutronenfluenzen als Funktion des Abstandes nicht kontinuierlich, sondern in 46 diskreten Energiegruppen angegeben. Daher wurden auch die benutzten Wirkungsquerschnitte (siehe Abb. 2.1) mittels eines FORTRAN-Programms in diese Struktur gebracht („kondensiert“). Allgemein wichtet dieses Programm Neutronenenergien unterhalb von 0.125 eV mit einer Maxwell-Boltzmann-Verteilung, oberhalb von 0.125 eV mit einer $1/E$ -Verteilung. Im Bereich schneller Neutronen ($E > 1 \text{ MeV}$), also auch bei dem für die Reaktion $^{63}\text{Cu}(\text{n,p})^{63}\text{Ni}$ bedeutenden Energiebereich, wurde der Wirkungsquerschnitt ohne Wichtung in die DS86 Energiegruppenstruktur kondensiert. Gleichung 2.1 kann nun als Summe geschrieben werden.

$$N(^{63}\text{Ni}) = \sum_{i=1}^{46} N(^{63}\text{Cu}) \Phi(E_i) \cdot t \cdot \overline{\sigma(E_i)}. \quad (2.2)$$

$\Phi(E_i) \cdot t$: Neutronenfluenz der Energiegruppe i .

$\overline{\sigma(E_i)}$: auf die Energiegruppe i kondensierter Wirkungsquerschnitt der Reaktion.

Die Neutronenfluenzen wurden DS86 entnommen. Sie sind darin für eine Höhe von 1 m über dem Boden angegeben (siehe Anhang A). Der Wirkungsquerschnitt der Reaktion wird in Abschnitt 2.2 diskutiert.

Bei gemessener ^{63}Ni -Konzentration lassen sich mittels Gleichung 2.2 Rückschlüsse auf die Neutronenfluenz der Atombomben von Hiroshima und Nagasaki ziehen.

2.2 Wirkungsquerschnitt

Zu dem Wirkungsquerschnitt der Reaktion $^{63}\text{Cu}(\text{n,p})^{63}\text{Ni}$ gibt es nur wenig veröffentlichte Messergebnisse. Jedoch sind in jüngerer Zeit verstärkt Messungen durchgeführt worden, unter anderem auch wegen der noch ungeklärten Problematik der Neutronendosis in Hiroshima. Die in Abbildung 2.1 gezeigten berechneten Wirkungsquerschnitte sind allerdings noch nicht unter Einbeziehung dieser aktuellen experimentellen Ergebnisse erstellt worden. Abbildung 2.1 zeigt die in der Literatur gefundenen Werte für den Wirkungsquerschnitt der Reaktion $^{63}\text{Cu}(\text{n,p})^{63}\text{Ni}$ zusammen mit den Datenfiles ENDF/B-VI [70], ADL-3T [71] und JENDL-3.2 [72], die über den *Nuclear Data Viewer* [69] erhalten wurden.

Die in den Veröffentlichungen [62, 73, 74] angegebenen Werte des Wirkungsquerschnittes für Energien größer als 8 MeV sind im Vergleich zu den in Abbildung 2.1 gezeigten sehr hoch (14 MeV: $(118 \pm 9) \text{ mb}$ [73]; 14.8 MeV: $(320 \pm 45) \text{ mb}$ [74]; 9.0 MeV: $(121.7 \pm 6.7) \text{ mb}$, 15.5 MeV: $(352.7 \pm 35.4) \text{ mb}$ [62]). Sie müssen jedoch nach [63] mit Vorsicht interpretiert werden, da sie nicht auf Beiträge anderer Reaktionen korrigiert wurden. Sie wurden daher nicht in Abbildung 2.1 eingezeichnet. Die aktuellen Daten von Shibata et al. [65–68] sind erst teilweise veröffentlicht, wurden jedoch in der Abbildung aufgetragen.

Wegen der spektralen Verteilung der Neutronen in Hiroshima wird ^{63}Ni in Kupfer hauptsächlich durch Neutronen mit einer Energie zwischen 1–4 MeV produziert (siehe Abschnitt 2.3).

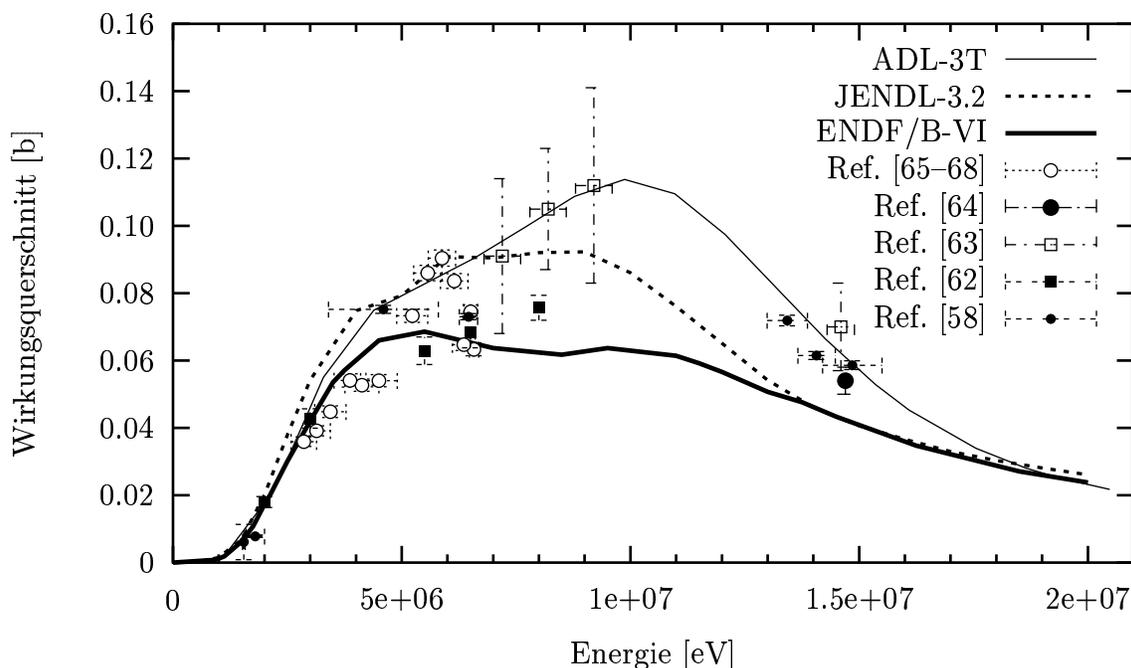


Abbildung 2.1: Anregungsfunktion für die Reaktion $^{63}\text{Cu}(n,p)^{63}\text{Ni}$. Die Linien repräsentieren berechnete Wirkungsquerschnittsverläufe [69], die Punkte mit den Fehlerbalken experimentelle Werte, weitere Bemerkungen im Text.

Als Referenz für alle weiteren Rechnungen wurde in dieser Arbeit der Wirkungsquerschnitt aus ENDF/B-VI verwendet, der laut [75] in diesem Bereich die beste Übereinstimmung mit den experimentellen Daten zeigt. S.M. Qaim bewertet die Berechnung ENDF/B-VI als veraltet (siehe Kommentar in [63]), nimmt dabei aber Bezug auf Energien oberhalb 4 MeV.

2.3 Berechnung der Produktion nach DS86

Produktion über die Reaktion $^{63}\text{Cu}(n,p)^{63}\text{Ni}$

Um die ^{63}Ni -Konzentration zu berechnen, die in unabgeschirmten Kupferproben in Hiroshima auf der Basis von DS86 erwartet werden, wurde Gleichung 2.2 angewandt. Tabelle 2.1 zeigt die Ergebnisse für verschiedene Abstände von den Hypozentren in Hiroshima und Nagasaki, zerfallskorrigiert auf das Jahr 2000. Sie wurden mit den in Abbildung 2.1 angeführten Wirkungsquerschnittsverläufen berechnet. Für die Berechnung mit ENDF/B-VI ist das $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$ -Verhältnis als Funktion des Abstandes zum Epizentrum in Hiroshima für das Jahr 1945 aufgetragen (siehe Abbildung 2.2).

Die diskutierten Berechnungen gelten streng genommen für eine unabgeschirmte Probe (FIA) 1 m über dem Boden, da die verwendeten Neutronenfluenzen in DS86 für diese Bedingungen berechnet wurden. Die erhaltenen Werte können innerhalb einer Unsicherheit von 10% auch

Abstand (r_{gr}) Hiroshima		5 m	500 m	1 000 m	1 500 m	2 000 m
ENDF/B-VI	$[^{63}\text{Ni-Atome}\cdot 10^5/\text{g Cu}]$	130	30	2.2	0.13	0.008
JENDL-3.2	$[^{63}\text{Ni-Atome}\cdot 10^5/\text{g Cu}]$	170	40	2.9	0.17	0.010
ADL-3T	$[^{63}\text{Ni-Atome}\cdot 10^5/\text{g Cu}]$	190	41	2.8	0.16	0.010
Abstand (r_{gr}) Nagasaki		5 m	500 m	1 000 m	1 500 m	2 000 m
ENDF/B-VI	$[^{63}\text{Ni-Atome}\cdot 10^5/\text{g Cu}]$	260	42	2.4	0.15	0.008
JENDL-3.2	$[^{63}\text{Ni-Atome}\cdot 10^5/\text{g Cu}]$	330	53	3.0	0.17	0.010
ADL-3T	$[^{63}\text{Ni-Atome}\cdot 10^5/\text{g Cu}]$	310	51	2.9	0.16	0.010

Tabelle 2.1: Zahl der ^{63}Ni -Kerne in 1 g Kupfer, die durch die Reaktion $^{63}\text{Cu}(n,p)^{63}\text{Ni}$ für verschiedene Abstände zum Hypozentrum in Hiroshima bzw. Nagasaki erzeugt wurden. Die Rechnung erfolgte nach Gleichung 2.2 auf der Basis von DS86 und den verschiedenen Datenfiles der Anregungsfunktionen; alle Werte sind auf das Jahr 2000 zerfallskorrigiert.

unter folgenden Bedingungen verwendet werden [76]:

- Einfallswinkel der Neutronen auf das Gebäude größer als 45 Grad; d.h. kein streifender Einfall der Neutronen, sondern möglichst frontale Bestrahlung des Gebäudes,
- Abschirmung durch ein Gebäude bzw. Baumaterial weniger als 2 cm,
- Gebäude nur aus typischen Baumaterialien.

Neutronenaktivierung von ^{62}Ni

Aufgrund von Nickelverunreinigungen des Kupfermaterials kann ^{63}Ni auch durch den Einfang thermischer Neutronen von ^{62}Ni (Isotopenhäufigkeit 3.634%) erzeugt werden. Deshalb ist es wichtig, den Gehalt an stabilem Nickel in den Kupferproben zu kennen. Die entsprechenden Werte für die gemessenen Proben sind im Anhang D aufgeführt. Der Verlauf der Anregungsfunktion ist sehr gut bekannt. Zur Abschätzung der Produktion über die Reaktion $^{62}\text{Ni}(n,\gamma)^{63}\text{Ni}$ wurde der Wirkungsquerschnitt aus ENDF/B-VI [69] sowie eine typische Verunreinigung einer Kupferprobe von 19 ppm an stabilem Nickel angenommen. In Abbildung 2.4 sind diese Ergebnisse als Funktion des Abstandes vom Hypozentrum neben der Produktion durch die (n,p)-Reaktion an Kupfer eingetragen. Bei einer großen Nickelverunreinigung von 100 ppm beträgt die Produktion durch die $^{62}\text{Ni}(n,\gamma)$ -Reaktion am Hypozentrum 15%, in 1 500 m Entfernung 1.2% der Produktion an Kupfer.

Photoneninduzierte Reaktionen

Ein Atomkern kann auch durch γ -Strahlung hoher Energie angeregt werden. Dies führt zur sogenannten Riesenresonanz. Alle Protonen schwingen dann im Kern beispielsweise gegen alle Neutronen. Regt sich das Isotop ^{64}Ni (Isotopenanteil 0.926%) nach Einfang eines

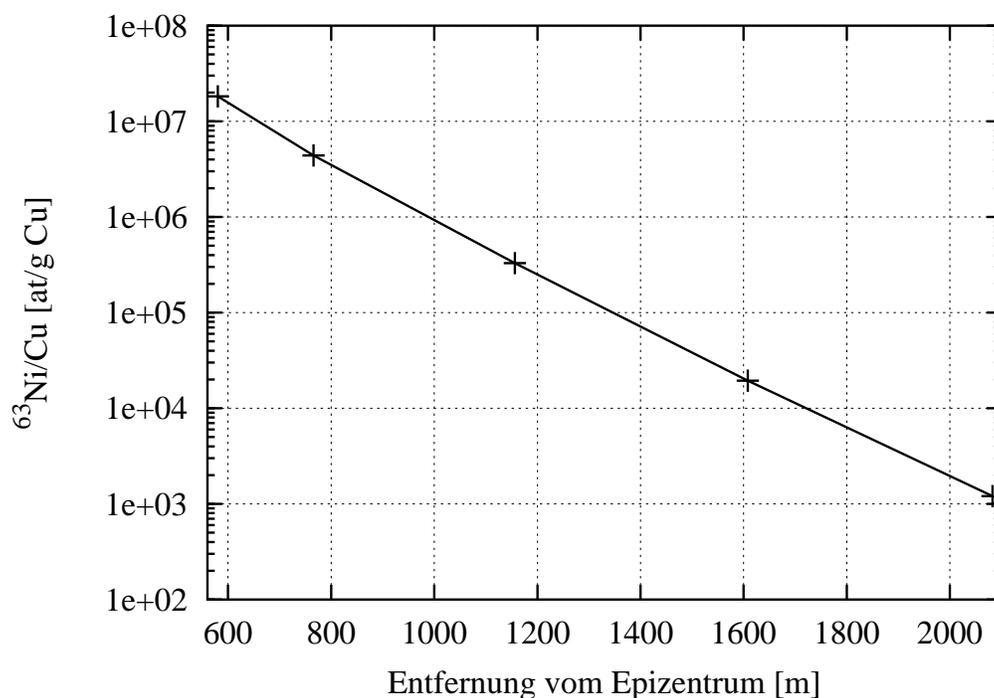


Abbildung 2.2: $^{63}\text{Ni}/\text{Cu}$ -Verhältnisse in Hiroshima im Jahr 1945 in einer Kupferprobe auf der Basis von Rechnungen nach DS86 und dem Wirkungsquerschnitt aus ENDF/B-VI als Funktion des Abstandes vom Epizentrum. Die berechneten Punkte sind miteinander verbunden.

γ -Quants durch die Emission eines Neutrons ab, entsteht ^{63}Ni . Nach generellen Überlegungen zur Abhängigkeit der Wirkungsquerschnitte bei (n,γ) -Reaktionen aus [77] kann der Wirkungsquerschnitt der Reaktion $^{64}\text{Ni}(\gamma,n)^{63}\text{Ni}$ mit einer Schwelle von 9.7 MeV aus dem Wirkungsquerschnitt der Reaktion $^{58}\text{Ni}(\gamma,n)$ [78] mit einer Schwelle bei 12.2 MeV skaliert werden. Mit den Fluenzen der γ -Strahlung nach DS86 [3] wurde in Hiroshima am Hypozentrum eine $^{63}\text{Ni}/\text{Ni}$ -Konzentration von $8 \cdot 10^{-18}$ in Nickel abgeschätzt. In Abbildung 2.4 lässt sich erkennen, dass dieser Beitrag an der Produktion vernachlässigt werden kann.

Diskussion der Ergebnisse der Abschätzung

Mit dem Abstand vom Epizentrum ändert sich das Spektrum der Neutronen. Die Reaktionsquerschnitte für Neutronen an Stickstoff und Sauerstoff – den wesentlichen Bestandteilen der Luft – haben ausgeprägte Minima. Somit gibt es für Neutronen bestimmter Energie in der Atmosphäre sogenannte „Fenster“. Dies hat auch Auswirkungen auf den Anteil der einzelnen Energiegruppen (nach DS86) an der Produktion von ^{63}Ni über die $^{63}\text{Cu}(n,p)^{63}\text{Ni}$ -Reaktion, der in Abbildung 2.3 als Funktion des Abstandes vom Hypozentrum aufgetragen ist. In der Darstellung der Neutronenspektren für verschiedene Abstände vom Hypozentrum (siehe Anhang A) erkennt man, dass das Neutronenspektrum mit zunehmendem Abstand härter wird. Daher nimmt mit zunehmendem Abstand auch die Bedeutung der Neutronen

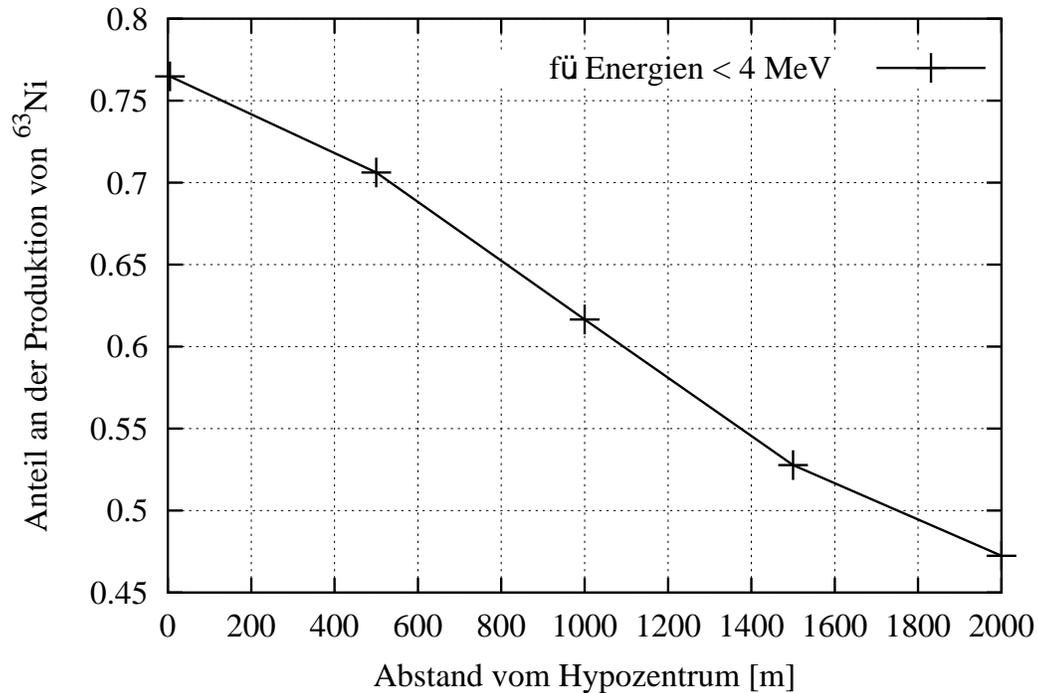


Abbildung 2.3: Anteil an der Produktion von ^{63}Ni durch Neutronen über die Reaktion $^{63}\text{Cu}(n,p)^{63}\text{Ni}$ mit Energien bis zu 4 MeV in Hiroshima; Wirkungsquerschnitt: ENDF/B-VI; Neutronenfluenzen: Energiegruppen 1–15 und 16–46 aus DS86 [3].

mit einer Energie $> 4\text{ MeV}$ (Energiegruppen 1–15 in DS86) im Vergleich zu Neutronen mit niedrigerer Energie immer mehr zu. Dies bedeutet, dass auch der Verlauf des Wirkungsquerschnittes für Energien $> 4\text{ MeV}$ wichtig werden kann. In diesem Energiebereich sind die Unterschiede der einzelnen Evaluationen groß (siehe Abschnitt 2.1). Somit erhöht sich die Unsicherheit der Abschätzung für zunehmende Abstände.

Abbildung 2.2 zeigt die für verschiedene Entfernungen vom Epizentrum in Hiroshima nach ENDF/B-VI über die Reaktion $^{63}\text{Cu}(n,p)^{63}\text{Ni}$ berechneten $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$ -Verhältnisse. Die Messgröße (siehe Kapitel 4) ist jedoch das Verhältnis $^{63}\text{Ni}/\text{Ni}$, welches in Abbildung 2.4 aufgetragen wurde. Dazu wurde angenommen, dass die potentielle Kupferprobe 19 ppm stabiles Nickel enthält und ohne die Zugabe von Trägermaterial aufbereitet wurde. Abbildung 2.4 zeigt, dass in diesem Fall die Produktion durch die (n,p)-Reaktion an Kupfer für alle Abstände vom Hypozentrum dominant ist. Außerdem deutet die waagrechte Linie den in dieser Arbeit erreichten instrumentellen Untergrund für eine Bestimmung des $^{63}\text{Ni}/\text{Ni}$ -Verhältnisses an (siehe Abschnitt 4.2.5). Damit ist die Messung von ^{63}Ni bei großen Abständen in Hiroshima und Nagasaki möglich.

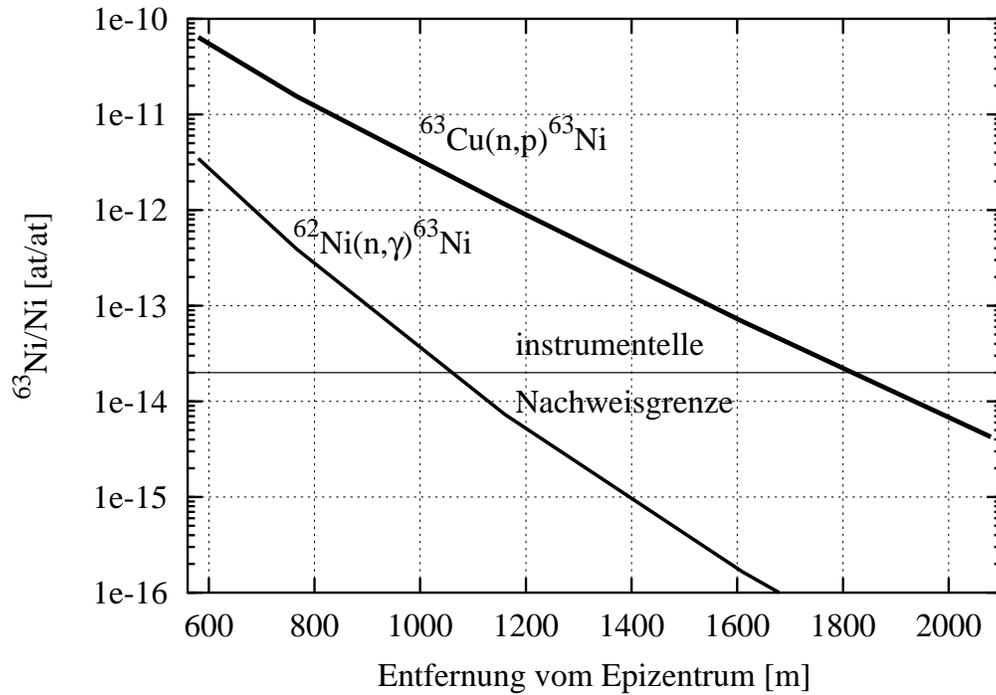


Abbildung 2.4: $^{63}\text{Ni}/\text{Ni}$ -Verhältnisse auf der Basis von DS86-Rechnungen und dem ENDF/B-VI-Wirkungsquerschnitt im Jahr 2000 für eine Kupferprobe aus Hiroshima mit einer Verunreinigung von 19 ppm Nickel. Die Produktion über $^{62}\text{Ni}(n,\gamma)^{63}\text{Ni}$ und $^{63}\text{Cu}(n,p)^{63}\text{Ni}$ ist getrennt dargestellt; durchgezogene waagrechte Linie: instrumentelle Nachweisgrenze (siehe Kapitel 4).

Kapitel 3

Natürliche Produktion von ^{63}Ni durch kosmische Strahlung

Bei den erwarteten niedrigen ^{63}Ni -Konzentrationen in Kupferproben bei großen Abständen zum Hypozentrum in Hiroshima (siehe Kapitel 2) kann auch der Beitrag der natürlichen Produktion von ^{63}Ni wichtig sein. Im Folgenden werden die Produktionsmechanismen durch kosmische Strahlung aufgezeigt und ihre Beiträge zur Gesamtproduktion von ^{63}Ni abgeschätzt. Zudem erfolgt ein Vergleich mit der nach DS86-Rechnung erwarteten zusätzlichen Produktion aus den Atombombenabwürfen.

3.1 Kosmische Strahlung

Auf die Erdatmosphäre trifft aus dem Weltraum ein Teilchenstrom, die kosmische Strahlung; diese besteht hauptsächlich aus Protonen und α -Teilchen [79]. Man unterscheidet nach dem Ursprung der Strahlung eine galaktische und eine (niederenergetischere) solare Komponente. Durch Wechselwirkung mit der Atmosphäre entstehen Kaskaden und Sekundärteilchen; zum einen hadronische Kaskaden, bestehend aus Protonen, Neutronen, Pionen und anderen stark wechselwirkenden Teilchen. Gleichzeitig entstehen auch elektromagnetische Kaskaden, die aus schwach wechselwirkenden Teilchen wie Elektronen, Positronen, Myonen, Neutrinos sowie aus Photonen bestehen (siehe Abb. 3.1). Durch Wechselwirkung dieser Teilchen mit Materie können an der Erdoberfläche Radionuklide wie ^{63}Ni erzeugt werden. Dabei dominieren im Allgemeinen neutroneninduzierte Reaktionen. In größeren Tiefen nimmt der relative Anteil der Produktion durch Myonen zu. Eine generelle Zusammenfassung wichtiger Daten zur kosmischen Strahlung wurde von O.C. Allkofer und P.K.F. Grieder zusammengestellt [80].

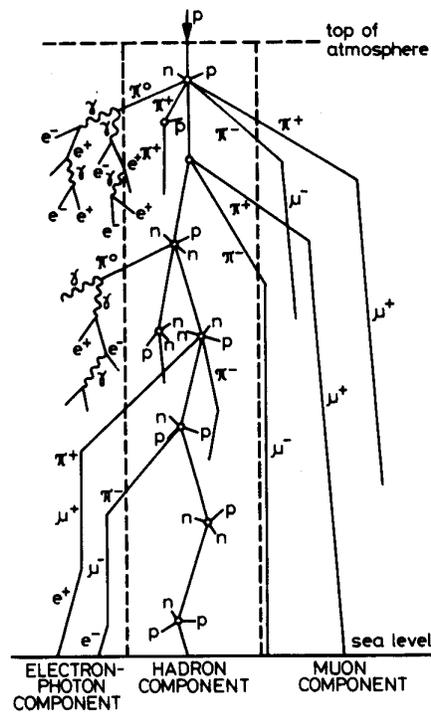


Abbildung 3.1: Schematische Darstellung der Teilchenproduktion in der Atmosphäre durch kosmische Strahlung [80].

Modulation durch den solaren Zyklus

Die Intensität der kosmischen Strahlung variiert auf der Erde mit dem 11-Jahres-Zyklus der Sonnenaktivität in antizyklischer Weise und wird beispielsweise mit sogenannten Neutronenmonitoren an vielen Orten der Erde gemessen [81–83]. Für die Abschätzung der Produktion von ^{63}Ni ist wegen der langen Zeiträume der Exposition nur der Mittelwert interessant. Die jährlichen Schwankungen betragen nicht mehr als 10% des Mittelwertes, der etwa 93% des Maximalwertes der Intensität beträgt.

Höhenabhängigkeit

Generell ist die Erdoberfläche durch die Atmosphäre von der kosmischen Strahlung abgeschirmt. J. Masarik und R.C. Reedy schätzen für hohe Breitengrade den mittleren integralen Fluss von Protonen auf die Erde mit einer Energie über 10 MeV zu $4.56 \text{ Protonen cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ ab [84]. Von diesen Primärteilchen kommt nur noch ein sehr geringer Anteil auf der Erdoberfläche an. Da man den Weg der Strahlung durch die Atmosphäre von oben nach unten betrachtet wird die atmosphärische Tiefe X_V eingeführt. Diese nimmt bis zum Meeresniveau bei Normaldruck auf 1033 g/cm^2 zu. Den Zusammenhang zwischen der Höhe H [km] über Meeresniveau und X_V [g/cm^2] zeigt Gleichung 3.1 [85].

$$H = 44.34 - 11.86 \cdot X_V^{0.19}, \quad \text{für } X_V > 230 \text{ g/cm}^2. \quad (3.1)$$

Der Fluss der kosmischen Strahlung $\Phi_{Neutron}(E, X_V)$ erreicht sein Intensitätsmaximum bei einer Höhe von etwa 16 km (entsprechend $X_V \approx 100 \text{ g/cm}^2$), dem sogenannten „Pftotzer Maximum“. Für größere atmosphärische Tiefen ändert sich die Form des Neutronenspektrums (siehe Abbildung 3.4) unterhalb einer Energie von 1 GeV nicht mehr wesentlich und kann durch Gleichung 3.2 dargestellt werden [85].

$$\frac{\Phi_{Neutron}(E, X_V)}{dE} = \Phi_{Neutron}(X_V) \cdot \frac{\Phi_{Neutron}(E)}{dE}, \quad \text{für } X_V > 100 \text{ g/cm}^2. \quad (3.2)$$

Die Höhenabhängigkeit des Neutronenflusses der kosmischen Strahlung lässt sich als Exponentialfunktion parametrisieren, siehe Gleichung 3.3.

$$\Phi_{Neutron}(X_V) = \Phi_{Neutron}(0) \cdot \exp(-\beta X_V). \quad (3.3)$$

mit $\beta = (0.0066 \pm 0.0004) \text{ cm}^2/\text{g}$ für $X_V > 600 \text{ g/cm}^2$ [85]. Messungen des Kieler Neutronenmonitors vom Mai 1995 ergeben einen Wert $\beta = (0.00721 \pm 0.00001) \text{ cm}^2/\text{g}$ [86]; eine weitere Messung von P. Goldhagen et al. ergibt einen vorläufigen Wert von $\beta = 0.008 \text{ cm}^2/\text{g}$ [87]. In der weiteren Arbeit wurde der Wert von $\beta = (0.00721 \pm 0.00001) \text{ cm}^2/\text{g}$ verwendet.

Myonen entstehen aus dem Zerfall von π -Mesonen bereits in den oberen Atmosphärenschichten. Aufgrund ihrer mittleren Lebensdauer von $\tau_{\pi^\pm} = 2.6 \cdot 10^{-8} \text{ s}$ [88] können die π -Mesonen in tiefen Atmosphärenschichten mit den Bestandteilen der Atmosphäre wechselwirken, bevor sie zu Myonen zerfallen. Die myonische Komponente der Höhenstrahlung ist relativ unabhängig von der Höhe. Unter der Erdoberfläche wie z.B. in Minen ist die hadronische Komponente der kosmischen Strahlung stark abgeschirmt. Die längerreichweitige myonische Komponente trägt deshalb hier stärker zur Produktion von Radionukliden bei.

Geomagnetische Breite

Die primäre kosmische Strahlung besteht aus geladenen Teilchen. Durch das Erdmagnetfeld werden diese bis zu einer bestimmten magnetischen Steifigkeit, dem sogenannten Cut-off-Wert, abgelenkt. An den Polen können die geladenen Teilchen wegen der senkrechten Feldlinien nahezu ungehindert in die Atmosphäre eindringen, am geomagnetischen Äquator werden sie dagegen maximal abgeschirmt. Die Produktionsrate ist also an den Polen deutlich höher als am Äquator. Dies wird in Abbildung 3.2 deutlich, die die relative Zerfallsrate von Nukliden in Abhängigkeit von der geomagnetischen Breite anhand einer Parametrisierung experimenteller Daten von D. Lal [89] zeigt. In dieser Parametrisierung ist auch die Höhenabhängigkeit berücksichtigt, siehe Tabelle 3.1.

Y. Yokoyama et al. [90] haben für unterschiedliche geomagnetische Breiten kontinentaler Gebiete relative Produktionsraten von Radionukliden berechnet, siehe Tabelle 3.2. Der qualitative Verlauf entspricht der von D. Lal angegebenen Abhängigkeit (siehe Abb. 3.2), wobei

Geomagnetische Breite [°]	Polynomialkoeffizienten			
	a_1	a_2	a_3	a_4
0	330.7	255.9	98.43	20.50
10	337.9	252.1	111.0	20.73
20	382.1	272.1	132.5	24.83
30	469.3	394.6	97.76	47.20
40	525.6	505.4	142.0	58.87
50	571.1	588.1	170.9	76.12
60–90	563.4	621.8	177.3	78.91

Tabelle 3.1: *Abhängigkeit der Intensität der kosmischen Strahlung vom geomagnetischen Breitengrad nach D. Lal [89]. Die Kernzerfallsraten in der Atmosphäre, $s [g^{-1} \cdot a^{-1}]$ wurden für verschiedene geomagnetische Breiten mit einem Polynom dritter Ordnung in der Höhe $H [km]$ angefitet: $s = a_1 + a_2 \cdot H + a_3 \cdot H^2 + a_4 \cdot H^3$.*

Konti- nent	Geomagnetische Breite [°], die dem Cut-off-Wert im jeweiligen Kontinent nahekommt									
	A	80	62	56	52	49	43	39	35	30
B	-80	-60	-50	-43	-38	-31	-25	-18	-11	0
C	80	58	52	47	44	38	32	28	20	-
D	-80	-64	-58	-53	-49	-41	-34	-28	-14	-
E	80	56	49	44	40	35	31	28	25	17
F	-80	-57	-51	-47	-44	-39	-34	-30	-26	-17
P	1.49	1.49	1.39	1.23	1.09	0.86	0.70	0.56	0.45	0.37

Tabelle 3.2: *Abhängigkeit der Intensität der kosmischen Strahlung vom geomagnetischen Breitengrad nach Y. Yokoyama et al. [90]. A: Europa, Nordafrika; B: Südafrika; C: Nordamerika; D: Südamerika; E: Asien; F: Australien. Die relative Produktionsrate P von Radionukliden ist als Funktion der geomagnetischen Breite in dem jeweiligen Kontinent aufgetragen. Die relative Produktionsrate von 1 entspricht einem Cut-off-Wert von 4.7 GV.*

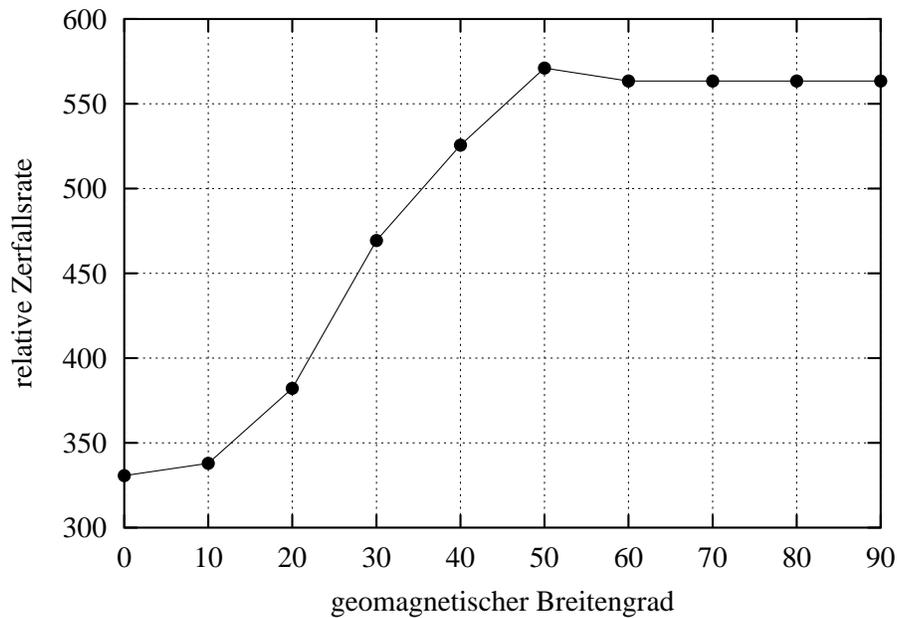


Abbildung 3.2: *Geomagnetische Abschirmung der Intensität der kosmischen Strahlung aus der Parametrisierung experimenteller Werte von D. Lal [89] für Meeresniveau, siehe Tabelle 3.1.*

sich bei niedrigen Breiten jedoch größere Unterschiede ergeben. Die Abschätzung der Produktion von ^{63}Ni wird in der Zusammenstellung der Ergebnisse in Tabelle 3.5 mit beiden Korrekturen angegeben.

Die geomagnetischen Pole sind nicht mit den geographischen identisch und wandern zudem relativ zu den geographischen Polen¹. Die Umrechnung geographischer in geomagnetische Koordinaten kann mit Hilfe von Programmen geschehen, die beispielsweise von der NASA zur Verfügung gestellt werden [91]. Die Umrechnung mittels einfacher Koordinatentransformation und dem geomagnetischen Nordpol im Jahr 1945 (79.74°N , 79.52°W [91]) ergab ähnliche geomagnetische Koordinaten.

3.2 Gewinnung von Kupfer

Für Kupferproben aus Hiroshima und Nagasaki stellt sich die Frage, ob ^{63}Ni in Kupfer schon natürlicherweise enthalten ist. In diesem Abschnitt wird nun der erste Schritt, die Gewinnung von Kupfer, erläutert. Kupfer wird seit Jahrhunderten aus Kupfermineralien abgebaut. Bei der Aufbereitung der Erze zu Kupfer werden Verunreinigungen wie Nickel und in ihm eventuell vorhandenes ^{63}Ni sehr gut abgetrennt [92]. Deshalb muss die Geschichte des Kupfers erst ab der Weiterverarbeitung betrachtet werden. Nach der Förderung des Erzes ist das Kupfer nicht mehr durch den Erdboden abgeschirmt und somit verstärkt der kosmi-

¹Der geomagnetische Nordpol verschiebt sich etwa 15 km pro Jahr (Stand 2000).

schen Strahlung ausgesetzt, wodurch ^{63}Ni über unterschiedliche Reaktionswege produziert werden kann (siehe Abschnitt 3.3). Der Beitrag von wieder eingeschmolzenem Kupfer liegt seit einigen Jahrzehnten bei etwa 40%. Selbst in heutzutage hergestelltem Kupfer kann also theoretisch altes Kupfer enthalten sein, das über viele Jahrhunderte der kosmischen Strahlung ausgesetzt war. Jedoch wird auch bei der Wiederverwertung das Kupfer üblicherweise gereinigt und Nickel wieder abgetrennt. So ist das sehr effektive Verfahren der Elektrolyse zur Reinigung von Kupfer bereits seit 1865 bekannt und wird seit 1878 großtechnisch angewendet [93]. Außerdem geht die Konzentration von ^{63}Ni in Nickel oder auch Kupfer aufgrund der – für geschichtliche Zeiträume – relativ kurzen Halbwertszeit von 101.4 Jahren nach einigen hundert Jahren in Sättigung. Selbst Kupfer, das viele Jahrhunderte lang verwendet wurde, kann maximal die Sättigungskonzentration an ^{63}Ni aufweisen. Die Dauer der Wiederverwertung und damit der verstärkten Exposition kosmischer Strahlung ist somit kein wesentlicher Parameter.

3.3 Kernreaktionen, die zu ^{63}Ni führen

Die im Folgenden diskutierten Reaktionspfade zu ^{63}Ni werden in Abbildung 3.3 anhand eines Ausschnittes aus der Nuklidkarte veranschaulicht. Die Beiträge zur Produktion von ^{63}Ni wurden unter der Annahme berechnet, dass das Kupfer an der Erdoberfläche so lange der kosmischen Strahlung ausgesetzt war, dass die ^{63}Ni -Konzentration in Sättigung ist, d.h. Erzeugung und Zerfall von ^{63}Ni befinden sich im Gleichgewicht. Dies erfolgt im Sinne einer konservativen Abschätzung. Eine vergleichsweise lange Expositionsdauer von etwa drei Halbwertszeiten – das sind etwa 300 Jahre – entspricht beispielsweise 87.5% der Sättigungsaktivität.

3.3.1 Durch hadronische Wechselwirkung induzierte Reaktionen in Kupfer

In diesem Abschnitt werden neutronen- und protoneninduzierte Reaktionen diskutiert. Für Energien oberhalb von 15 MeV gibt es noch keine experimentellen Messergebnisse für Reaktionen, die zu ^{63}Ni führen. Zur Abschätzung wurden daher bis zu einer Energie von 20 MeV die verfügbaren Werte aus Datenbanken verwendet, für höhere Energien wurden eigene Rechnungen mit CEM95 (näheres im Folgenden) durchgeführt.

Fluss der Neutronen und Protonen aufgrund der kosmischen Strahlung

Abbildung 3.4 zeigt ein in der Zeit vom 26.07.1999 bis zum 2.08.1999 in Hampton, Virginia, USA (37.04°N, 76.35°W, Cut-off-Wert: 2.702 GV) auf Meeresniveau gemessenes Neutronenspektrum in der sogenannten Lethargieauftragung. Dabei ist das differentielle Spektrum $d\Phi/d\ln E$ gegen den natürlichen Logarithmus der Neutronenenergie aufgetragen. In dieser

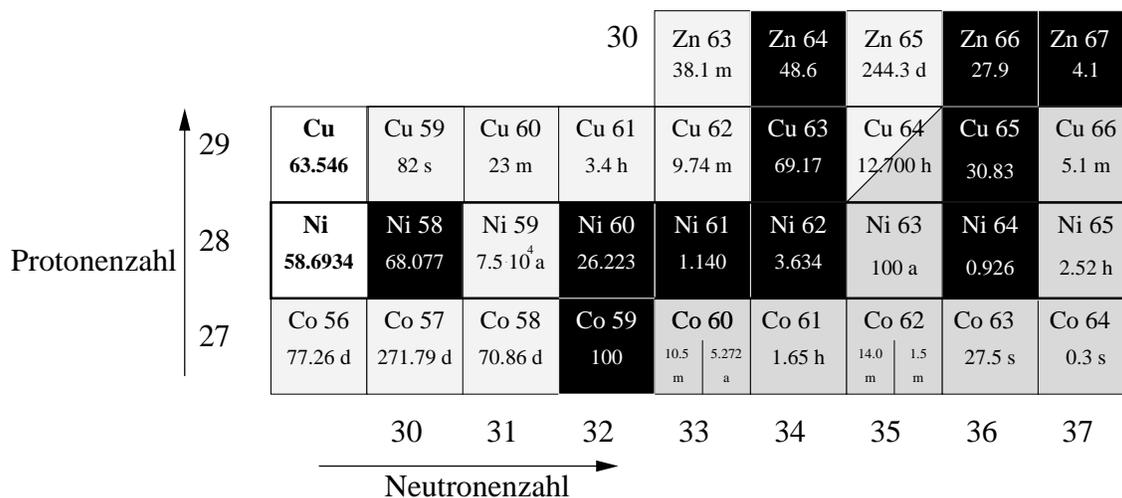


Abbildung 3.3: Ausschnitt aus der Nuklidkarte [53]. Bei stabilen Nukliden (schwarzer Hintergrund) ist der Isotopenanteil (in %) angegeben, bei radioaktiven Kernen deren Halbwertszeit. Die hellgrau unterlegten Nuklide zerfallen über β^+ -Zerfall oder Elektroneneinfang, die dunkelgrau unterlegten über β^- -Zerfall. In den weißen Feldern sind die relativen Atommassen von Kupfer und Nickel angegeben.

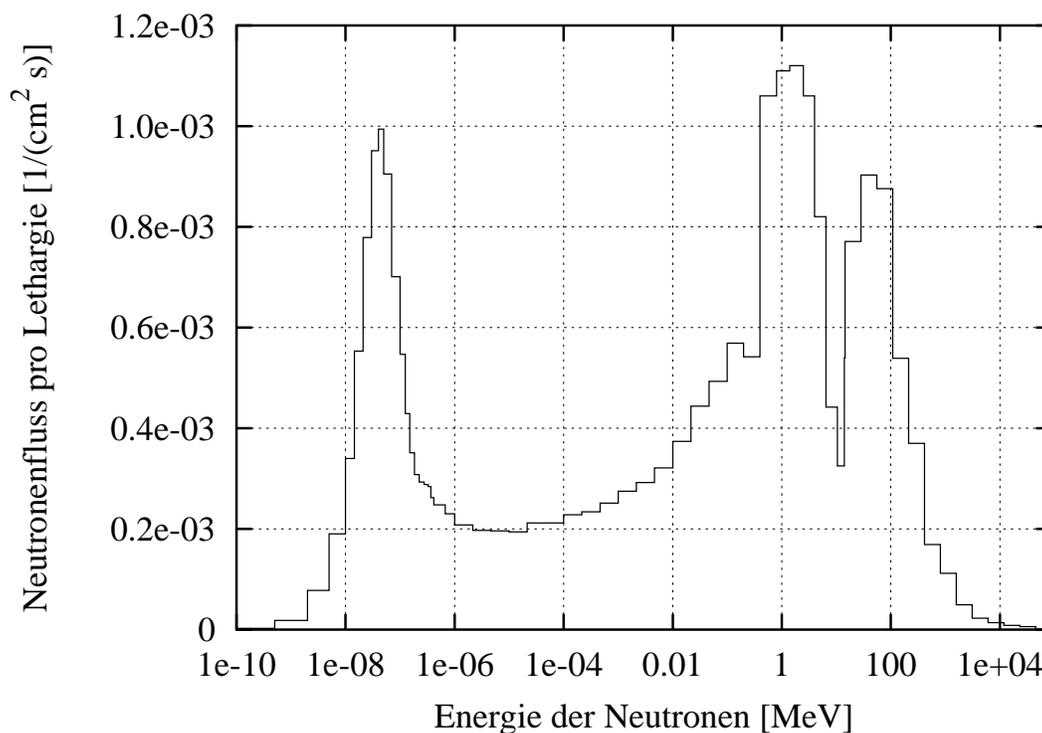


Abbildung 3.4: Neutronenspektrum der kosmischen Strahlung für Hampton, Virginia, USA (37.04°N , 76.35°W) [94, 95] in der sog. Lethargiedarstellung. Aufgetragen ist der Neutronenfluss pro Energie $d\Phi/d\ln E$ [$\text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$] über $\ln E$.

Darstellung entsprechen gleiche Flächen unter der Kurve einer gleich großen Anzahl an Neutronen. In Abbildung 3.4 sieht man drei wichtige Anteile im Spektrum:

Bei kleinen Energien dominiert der Bereich thermischer Neutronen (im Wesentlichen eine Maxwell-Boltzmann-Verteilung). Das Maximum bei etwa 2 MeV stammt von der Neutronenverdampfung angeregter Kerne der Atmosphäre. Das breite Maximum bei etwa 100 MeV entsteht aufgrund verminderter Reaktionswahrscheinlichkeit für Neutronen in Luft bei Energien zwischen 100–300 MeV.

Da das in Abbildung 3.4 gezeigte Spektrum zu einer Zeit erhöhten Neutronenflusses aufgenommen worden war (siehe [82]), wurde schließlich für die Abschätzungen der Produktion von ^{63}Ni mit einem Faktor 0.93 auf Zeiten mittlerer Sonnenaktivität umgerechnet, wie in Abschnitt 3.1 vermerkt. Außerdem wurde für reale Proben deren geomagnetische Lage und Höhe mit den in Abschnitt 3.1 diskutierten Korrekturen berücksichtigt.

Das Verhältnis von Protonen zu Neutronen ist in großer atmosphärischer Tiefe konstant. D. Lal und B. Peters geben in [96, Abb. 7] das Neutronen- wie auch das Protonenspektrum bei einem Wert von $X_V = 680 \text{ g/cm}^2$ an. Daraus wurde das Protonen- zu Neutronen-Verhältnis als Funktion der Energie berechnet und zusammen mit dem Neutronenspektrum (Abbildung 3.4) die Protonenkomponente der kosmischen Strahlung abgeleitet.

Rechnungen mit CEM

Die verfügbaren Wirkungsquerschnittsbibliotheken wie ENDF/B-VI oder JENDL-3.2 stellen für Energien oberhalb 20 MeV keine Daten bereit (z.B. [69]). Deshalb wurden die relevanten Wirkungsquerschnitte für Energien größer als etwa 20 MeV mit dem *cascade-exciton model* (CEM95) [97, 98] unter Verwendung der Standardeinstellungen berechnet. Die Ergebnisse der Rechnungen für den Energiebereich zwischen 1 MeV und 221 MeV wurden graphisch gefittet und ab einer Energie von etwa 15 MeV verwendet. Verglichen mit Werten aus Datenbanken wie z.B. ENDF/B-VI sind die mit CEM95 erhaltenen Werte im gewählten Übergangsbereich bei etwa 15 MeV ähnlich. Sie sind laut [98] für Nuklide zwischen ^{27}Al und ^{197}Au auf einen Faktor 2 genau. Ein Vergleich mit Daten bis zu 100 MeV für die Wirkungsquerschnitte der Reaktionen $^{63}\text{Cu}(n,p)^{63}\text{Ni}$ und $^{65}\text{Cu}(n,2np)^{63}\text{Ni}$, die vor kurzem von der IAEA (*International Atomic Energy Agency*) veröffentlicht wurden [99], ergibt ähnliche Ergebnisse (siehe Tabelle 3.3 und Abschnitt 3.4).

Zusammenfassung der Rechnung für den durch hadronische Wechselwirkung induzierten Anteil

Das Vorgehen zur Abschätzung der Produktion von ^{63}Ni ist analog Gleichung 2.2. Die Energiegruppenstruktur ist dem Neutronenspektrum von P. Goldhagen (siehe Abbildung 3.4) entnommen. Die verschiedenen Wirkungsquerschnitte wurden analog zu dem Verfahren in Abschnitt 2.1 in diese Struktur gebracht. Für die Produktion von ^{63}Ni durch Protonen wurde in analoger Weise vorgegangen. Die Rechnung wurde für die stabilen Kupferisotope ^{63}Cu

Reaktion zu ^{63}Ni	Produktion in Sättigung [^{63}Ni at/g Cu]	Kommentar, Ergebnisse in [^{63}Ni at/g Cu]
$^{63}\text{Cu}(n,p)$	$4.4 \cdot 10^3$	mit σ aus [99]: $7.4 \cdot 10^3$
$^{65}\text{Cu}(n,2np)$	$1.7 \cdot 10^3$	mit σ aus [99]: $1.7 \cdot 10^3$
$^{65}\text{Cu}(p,2pn)$	$1.6 \cdot 10^2$	
$^{62}\text{Ni}(n,\gamma)$	1.6	kleiner Beitrag
$^{64}\text{Ni}(n,2n)$	$1.7 \cdot 10^{-3}$	kleiner Beitrag
$^{66}\text{Zn}(n,\alpha)$	$9 \cdot 10^{-4}$	kleiner Beitrag
hadronischer Anteil	$\Sigma_{hadron} = 6.3 \cdot 10^3$	Faktor 0.93: $\Sigma_{hadron} = 6 \cdot 10^3$

Tabelle 3.3: Abschätzung der Produktion von ^{63}Ni -Atomen/g Cu, die durch hadronisch induzierte Wechselwirkung der kosmischen Strahlung in Kupfer erzeugt wurden. Dazu wurde das in Hampton, Virginia, USA, gemessene Spektrum (siehe Abb. 3.4) verwendet und als Verunreinigungen 38 ppm Nickel und eine Obergrenze von 5 ppm Zink angenommen. Der Faktor 0.93 berücksichtigt die Modulation der kosmischen Strahlung durch den solaren Zyklus.

(Isotopenanteil 69.17%) und ^{65}Cu (Isotopenanteil 30.83%) durchgeführt. Die in einer Untergrundprobe gemessene Verunreinigung [100] von 38 ppm Nickel und einer Obergrenze von 5 ppm Zink wurde berücksichtigt. Die Ergebnisse dieser Rechnungen zeigt Tabelle 3.3.

3.3.2 Durch Myonen und γ -Strahlung induzierte Reaktionen in Kupfer

Eine weitere wichtige Komponente der Höhenstrahlung stellen die positiv und negativ geladenen Myonen (μ^+ und μ^-) dar. Sie stammen zu einem großen Teil aus dem Zerfall von Pionen (π^+ , π^-) und Kaonen (K^+ , K^-). Die Myonen haben ähnliche Eigenschaften wie das Positron oder das Elektron, besitzen jedoch die 207fache Masse und haben eine Lebensdauer τ_{μ^\pm} von $2.2 \mu\text{s}$ [88]. Der Fluss der Myonen an der Erdoberfläche zeigt nur eine schwache Abhängigkeit von der Höhe über dem Erdboden und von der geomagnetischen Breite, und wird deshalb in dieser Arbeit als konstant angenommen. Auch der Einfluss des solaren Zyklusses kann vernachlässigt werden.

Generell findet sich in der Literatur, dass myoneninduzierte Reaktionen an der Erdoberfläche weniger als 10% zur Produktion kosmogener Nuklide beitragen [84]. Eine Messung von ^{32}P in Schwefel, das darin hauptsächlich über die Reaktion $^{32}\text{S}(n_f,p)^{32}\text{P}$ gebildet wurde, schreibt den Myonen einen Anteil von etwa 20% an der gesamten Produktion zu [101]. Ein Anteil von 10–20% konnte auch mit der im Folgenden dargestellten Methode abgeschätzt werden [102]. Die Produktion von ^{63}Ni , die durch Myonen und γ -Strahlung in Kupfermaterialien induziert wurde, soll in den folgenden Absätzen abgeschätzt werden. Aufgrund der verschiedenen myoneninduzierten Reaktionen wird eine Unterteilung in schnelle und gestoppte Myonen vorgenommen.

Schnelle Myonen

Schnelle Myonen reagieren mit den Atomkernen und induzieren so wiederum hadronische und elektromagnetische Schauer, die über Spallation und Einfangsreaktionen zur Produktion von ^{63}Ni beitragen können. In großen Tiefen h unter der Erdoberfläche machen schnelle Myonen (μ_{fast}) den Hauptanteil der Produktion von Radionukliden aus, an der Oberfläche tragen sie zur Produktion im Allgemeinen nur etwa 0.1% bei [103].

Die Produktionsrate $P_{\mu,fast}$ eines Radionuklides pro Gramm Targetkerne kann mit Gleichung 3.4 beschrieben werden [104].

$$P_{\mu,fast} = \sigma_0 \cdot \beta_\alpha \cdot I_{\mu,fast}(h) \cdot \overline{E}_{\mu,fast}^\alpha(h) \cdot N_T. \quad (3.4)$$

- σ_0 : Effektiver Wirkungsquerschnitt [b]
- β_α : Mittelungsfaktor
- $I_{\mu,fast}(h)$: Fluss der Myonen als Funktion der Tiefe h [$1/(\text{cm}^2 \cdot \text{s})$]
- $\overline{E}_{\mu,fast}^\alpha(h)$: Mittlere totale Myonenenergie in GeV
- α : 0.75
- N_T : Anzahl der Targetkerne [1/g]

Auf Meeresniveau ergibt sich für $\beta_\alpha \cdot I_{\mu,fast}(0) \cdot \overline{E}_{\mu,fast}^\alpha(0)$ ein Wert von ungefähr $0.08 \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ [104]. Die totale mittlere Energie \overline{E}_μ der Myonen beträgt an der Erdoberfläche etwa 7.6 GeV [105].

Für die Energieabhängigkeit der Wirkungsquerschnitte der Reaktionen wird in [106] ein Potenzgesetz mit einem effektiven Wirkungsquerschnitt σ_0 angegeben:

$$\sigma(E) = \sigma_0 \cdot E^\alpha. \quad (3.5)$$

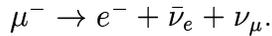
Im Rahmen der Doktorarbeit von B. Heisinger [106] wurden u.a. die Targetelemente Nickel und Kupfer mit Myonen der Energie von 100 GeV und 190 GeV bestrahlt und die Wirkungsquerschnitte $\sigma_{100 \text{ GeV}}$ und $\sigma_{190 \text{ GeV}}$ für die Produktion einer Reihe von Nukliden bestimmt [106]. Beispielsweise ergab sich für die Produktion von ^{58}Co aus Nickel ein Wert von $\sigma_{190 \text{ GeV}} = (11.7 \pm 1.2) \text{ mb}$. Aufgrund der Ähnlichkeit dieser Reaktion mit der Erzeugung von ^{63}Ni an Kupfer wird im Folgenden angenommen, dass dieser Wert auch die Produktion von ^{63}Ni an Kupfer beschreibt. Nach Gleichung 3.5 ergibt sich damit ein $\sigma_0 = 229 \mu\text{b}$. Aus Gleichung 3.4 ergibt sich dann auf Meeresniveau in Sättigung ein Wert von etwa $8 \cdot 10^2$ $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$.

Gestoppte Myonen

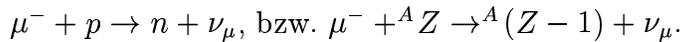
Durch die Wechselwirkung mit Materie verlieren die Myonen Energie und negative Myonen können im Coulombpotential der Atome eingefangen werden. Besteht ein Material aus

verschiedenen Komponenten, so wird der Anteil einzelner Elemente durch den chemischen Compoundfaktor f_C beschrieben. Von hohen Bohrschen Bahnen kaskadieren die Myonen innerhalb einer Zeitspanne von etwa 10^{-11} s in das myonische 1s-Niveau [107]. Konkurrierende Prozesse sind nun:

- Zerfall des Myons ($\tau_{\mu^-} = 2.2 \cdot 10^{-6}$ s [88])



- Einfang des Myons durch ein Proton im Kern (Kernladungszahl Z , Massenzahl A)



Da Myonen eine größere Masse als Elektronen haben, sind – im Bohrschen Atommodell – die Umlaufbahnen der gestoppten Myonen näher am Kern. Die Kerneinfangswahrscheinlichkeit f_D ist deshalb für Kupfer ($Z = 29$) mit 92.8% [108] schon hoch. Der entstandene angeregte Kern hat verschiedene Möglichkeiten, sich wieder abzuregen. Die Wahrscheinlichkeit, zu einem bestimmten Isotop zu zerfallen, wird als Kanalstärke f^* bezeichnet.

Zusammenfassend lässt sich die Produktionsrate eines Radionuklides aufgrund von gestoppten Myonen mit Gleichung 3.6 beschreiben:

$$P_{\mu^-}(h) = \Theta_{\mu^-}(h) \cdot f_C \cdot f_D \cdot f^*. \quad (3.6)$$

$P_{\mu^-}(h)$: Produktionsrate des betrachteten Radionuklides als Funktion der Tiefe h

$\Theta_{\mu^-}(h)$: totale Stopprate der negativen Myonen als Funktion der Tiefe h

f_C : chemischer Compoundfaktor

f_D : Einfangswahrscheinlichkeit in den Kern

f^* : effektive Kanalstärke zur Produktion eines Nuklides ${}^A(Z - 1)$

Die totale Stopprate Θ_{μ^-} der gestoppten Myonen auf der Erdoberfläche entspricht $6 \cdot 10^{-6}$ Myonen $\text{g}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ [109].

B. Heisinger [106] gibt für die Produktion von ^{63}Ni in Kupfer eine Untergrenze von f^* zu 7.25% an. Außerdem lässt sich aus dieser Arbeit auch eine Obergrenze von 25.2% ableiten. So wurde zur Abschätzung für f^* der Mittelwert dieser beiden Grenzen von 16% verwendet. Der Wert für f_C beträgt 1, da das Ausgangsmaterial Kupfer ein Element darstellt.

Mit Gleichung 3.6 ergibt sich somit in Sättigung eine Konzentration von $4.1 \cdot 10^3$ $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$, wobei der Unsicherheitsbereich allein aufgrund der Unbestimmtheit von f^* zwischen $(1.8 - 6.4) \cdot 10^3$ $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$ liegt.

γ -Strahlung

Auf dem Weg durch die Atmosphäre verlieren die Elektronen Energie und es entsteht u.a. hochenergetische γ -Strahlung. Das Spektrum der γ -Strahlung auf Meeresniveau wurde [80]

entnommen. In Abbildung 3.3 erkennt man, dass ^{63}Ni auch über die Reaktion $^{65}\text{Cu}(\gamma, \text{np})$ gebildet werden kann. Die Energieschwelle dieser Reaktion liegt bei 17.1 MeV, das Maximum des Wirkungsquerschnitts von 10.6 mb liegt bei einer Energie von 21.2 MeV [78]. Die Faltung des Spektrums der γ -Strahlung mit dem Verlauf des Wirkungsquerschnittes der Reaktion $^{65}\text{Cu}(\gamma, \text{np})^{63}\text{Ni}$ ergibt in Sättigung auf Meereshöhe etwa $3 \cdot 10^2$ $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$.

Zudem wird ^{63}Ni durch natürliche γ -Strahlung an ^{64}Ni erzeugt (siehe Abschnitt 2.3). Daraus resultiert in Sättigung ein Verhältnis von $8 \cdot 10^{-3}$ $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$.

Es sei darauf hingewiesen, dass in der Abschätzung der Produktion durch schnelle Myonen der durch γ -Strahlung induzierte Anteil bereits enthalten sein kann.

Zusammenfassung der durch Myonen und γ -Strahlung induzierten Reaktionen zur Produktion von ^{63}Ni

Reaktion zu ^{63}Ni	Produktion in Sättigung [^{63}Ni at/g Cu]	Kommentar
schnelle Myonen an Cu	$8 \cdot 10^2$	große Unsicherheit
gestoppte Myonen an Cu	$4.1 \cdot 10^3$	Bereich $(1.8-6.4) \cdot 10^3$
$^{65}\text{Cu}(\gamma, \text{np})$	$3 \cdot 10^2$	
$^{64}\text{Ni}(\gamma, \text{n})$	$8 \cdot 10^{-3}$	Annahme 38 ppm Ni
Anteil von μ^-, γ	$\Sigma_{\mu^-, \gamma} = 5.2 \cdot 10^3$	

Tabelle 3.4: Abschätzung der Produktion von ^{63}Ni -Atomen/g Cu, die durch Myonen und γ -Quanten der kosmischen Strahlung induziert wurde.

3.3.3 Produktion von ^{63}Ni in Nickel

Das Radionuklid ^{63}Ni kann auch an den beiden stabilen Nachbarisotopen ^{62}Ni und ^{64}Ni produziert werden. Die entsprechenden absoluten Beiträge zur Produktion von ^{63}Ni in einer typischen Kupferprobe mit 38 ppm Nickelverunreinigung sind in den Tabellen 3.3 und 3.4 angeführt. In diesem Abschnitt wird jedoch auf die Produktion von ^{63}Ni in Nickel eingegangen und die Ergebnisse als Verhältnis $^{63}\text{Ni}/\text{Ni}$ [at/at] angegeben. Mit dem Vorgehen aus den Abschnitten 3.3.1 und 3.3.2 ergibt sich eine $^{63}\text{Ni}/\text{Ni}$ -Konzentration von $4 \cdot 10^{-18}$. Diese Konzentration liegt um Größenordnungen tiefer als die für relevante Proben aus Hiroshima abgeschätzte Konzentration (siehe Abbildung 2.4).

Jedoch werden durch anthropogene Einflüsse auf der Erde hohe thermische Neutronenflüsse beispielsweise in Kernreaktoren oder auch bei Atombombentests verursacht. In Umweltproben wurde ^{63}Ni erstmals in der Nähe von Atollen nachgewiesen, auf denen Kernwaffentests durchgeführt worden waren [110]. Die höchste gemessene $^{63}\text{Ni}/\text{Ni}$ -Konzentration lag bei $2.1 \cdot 10^{-9}$. Als Eichpräparat findet sich ^{63}Ni heutzutage auch in industriellen Anwendungen in β -Zählern und Chromatographiesäulen. Dieses anthropogen erzeugte ^{63}Ni könnte bei der

	Hampton	Hiroshima	Thannhausen
Geographische Lage	37.04°N, 76.35°W	34.38°N, 132.45°O	48.28°N, 10.47°O
Geomagnetische Breite (1945)	48.02°N	27.59°N	44.29°N
Höhe über Meeresniveau [m]	0	0	550
X_V [g/cm ²] (Gl. 3.1)	1 033	1 033	968
Korrekturen auf entsprechende Höhe und geomagnetische Breite			
(a) nach D. Lal [89] (Tab. 3.1)	1	0.8	1.6
(b) nach Y. Yokoyama et al. [90] (Tab. 3.2 und Gl. 3.3)	1	0.4	1.2
Produktion [^{63}Ni /g Cu]			
Σ_{hadron} (a)	$6 \cdot 10^3$	$4 \cdot 10^3$	$9 \cdot 10^3$
Σ_{hadron} (b)	$6 \cdot 10^3$	$2.6 \cdot 10^3$	$7 \cdot 10^3$
$\Sigma_{\mu^-, \gamma}$	$5 \cdot 10^3$	$5 \cdot 10^3$	$5 \cdot 10^3$
Gesamt (a) [^{63}Ni /g Cu]	$1.1 \cdot 10^4$	$9 \cdot 10^3$	$1.4 \cdot 10^4$
Gesamt (b) [^{63}Ni /g Cu]	$1.1 \cdot 10^4$	$8 \cdot 10^3$	$1.2 \cdot 10^4$

Tabelle 3.5: Zusammenfassung der Produktion von ^{63}Ni (in Sättigung) durch kosmische Strahlung an verschiedenen Orten. In Hampton wurde das Neutronenspektrum experimentell bestimmt [94, 95], von Hiroshima stammen die Kupferproben (siehe Abschnitt 5.1) und aus Thannhausen wurde eine Untergrundprobe gemessen (siehe Abschnitt 5.2).

chemischen Aufbereitung (siehe Abschnitt 4.1.1) die Proben verunreinigen. Die Messung von Nullproben zeigte jedoch, dass die Proben nicht kontaminiert sind (siehe Abschnitt 4.2.5). Allerdings ist bei der Aufbereitung der Proben im Labor aus diesen Gründen besondere Vorsicht geboten.

3.4 Diskussion der Produktion von ^{63}Ni durch kosmische Strahlung

Im Folgenden werden die Unsicherheiten der Abschätzung der Produktion von ^{63}Ni durch kosmische Strahlung zusammenfassend diskutiert. Außerdem wird ein Vergleich mit der in Kapitel 2 erfolgten Abschätzung der Produktion durch Neutronen der Atombombe von Hiroshima angestellt.

Umrechnung für unterschiedliche Orte Die zwei unterschiedlichen Vorgehensweisen der Korrektur für verschiedene geomagnetische Orte (Abschnitt 3.1) ergeben unterschiedliche Abschätzungen für die Produktion von ^{63}Ni an den Orten, an denen eine Messung des

$^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$ -Verhältnisses erfolgte. Die Unterschiede fallen aber im Rahmen der Unsicherheit der ganzen Abschätzung nicht deutlich ins Gewicht.

Wirkungsquerschnitt Den stärksten Beitrag zur Produktion von ^{63}Ni in Kupfer liefert die Reaktion $^{63}\text{Cu}(n,p)^{63}\text{Ni}$. Benutzt man ab einer Energie von 15 MeV den Wirkungsquerschnitt der IAEA [99] (für kleinere Energien ENDF/B-VI), dann ergibt sich unter der Annahme eines konstanten Wirkungsquerschnittes ab 100 MeV insgesamt ein Wert von $7.4 \cdot 10^3$ $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$. Selbst unter der Annahme eines Wirkungsquerschnittes, der ab dem Maximum bei etwa 5 MeV mit 66 mb konstant hoch gehalten wird, erhält man nur einen Wert von $9 \cdot 10^3$ $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$. Aus diesen Werten ist ersichtlich, dass die in Tabelle 3.3 getroffene Abschätzung einer Produktion von $4.4 \cdot 10^3$ $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$ wohl nicht schlechter als ein Faktor zwei sein sollte.

Die Produktion von ^{63}Ni durch schnelle Myonen ist mit einer großen Unsicherheit behaftet. Der abgeschätzte Wirkungsquerschnitt von $\sigma_0 = 229 \mu\text{b}$ kann um mehr als eine Größenordnung daneben liegen, wobei der angegebene Wert konservativ erscheint. Jedoch ist der Anteil durch μ_{fast} in Kupfer sicherlich nicht dominierend für die Produktion von ^{63}Ni .

Eine weitere Abschätzung der Produktion von ^{63}Ni durch die hadronische Komponente der kosmischen Strahlung kann auch über das Verhältnis hadronisch induzierter Produktion (Σ_{hadron}) zu durch schnelle Myonen induzierter Produktion ($\Sigma_{\mu_{fast}}$) durchgeführt werden. Aus dem Vergleich der Produktion von ^{10}Be , ^{14}C , ^{26}Al , ^{36}Cl und ^{53}Mn in Targetelementen wie Sauerstoff, Silizium, Schwefel, Kalium, Calcium und Eisen ergibt sich beispielsweise ein Verhältnis $\Sigma_{hadron}/\Sigma_{\mu_{fast}}$ von 40–100. Legt man dieses Verhältnis auch für die Produktion von ^{63}Ni aus Kupfer zugrunde, ergibt sich mit dem Wert aus Tabelle 3.4 (800 $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$ durch schnelle Myonen) für den hadronischen Anteil der hohe Wert von $8 \cdot 10^4$ $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$, der damit nicht ausgeschlossen werden kann.

Da es noch keine experimentellen Werte zur Produktion von ^{63}Ni in Kupfer durch kosmische Strahlung gab, war es notwendig, Messungen an geeigneten Proben durchzuführen. Erste Messungen wurden bereits im Rahmen dieser Arbeit durchgeführt (siehe Kapitel 5 und 7).

Vergleich mit der Abschätzung in Kapitel 2 Die in der Tabelle 3.5 abgeschätzte Sättigungskonzentration von etwa $1 \cdot 10^4$ $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$ für eine Kupferprobe entspricht in Hiroshima nach DS86-Rechnungen im Jahr 1945 einem Abstand von etwa 1 600 m (r_{gr}), bzw. 1 700 m (r_{sl}). Die weitere Abschätzung (siehe oben) ergibt in Hiroshima eine Sättigungskonzentration von etwa $7 \cdot 10^4$ $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$. Dies entspricht in Hiroshima nach DS86-Rechnungen für das Jahr 1945 einem Abstand von etwa 1 260 m (r_{gr}), bzw. 1 380 m (r_{sl}). Da die Konzentrationen jedoch für den Fall der Sättigung gerechnet sind, sollte die Aktivierung durch kosmische Strahlung erst bei größeren Abständen wichtig werden. Die weitere Diskussion und der Vergleich mit gemessenen $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$ -Verhältnissen in Kupferproben erfolgt in Kapitel 6.

Kapitel 4

Beschleunigermassenspektrometrie mit ^{63}Ni

Nach der Diskussion der Produktion von ^{63}Ni durch die Neutronen der Atombomben und der Abschätzung des natürlichen Untergrundes an ^{63}Ni in Kupfermaterial wird in diesem Kapitel die in dieser Arbeit zum Nachweis von ^{63}Ni verwendete Messmethode vorgestellt. Das Radionuklid ^{63}Ni zerfällt mit einer Halbwertszeit von $T_{1/2} = (101.4 \pm 1.4) \text{ a}$ [54] durch β^- -Zerfall direkt zum Grundzustand von ^{63}Cu und damit ohne die einhergehende Emission von γ -Quanten. Die β -Endpunktenergie beträgt nur 67 keV. Damit ist der Nachweis über eine Aktivitätsmessung insbesondere bei Proben aus großen Abständen vom Epizentrum schwierig.

4.1 Wesentliche Komponenten der Nachweismethode

Die empfindlichste Methode zur Bestimmung der ^{63}Ni -Konzentration in einer Probe ist die Beschleunigermassenspektrometrie (AMS, *accelerator mass spectrometry*). Bei dieser Methode werden einzelne Kerne des Radioisotops ^{63}Ni nicht aufgrund ihres Zerfalls, sondern mit Hilfe eines Beschleunigers über kernphysikalische Methoden nachgewiesen und gezählt. Die Messgröße ist allgemein das Verhältnis des entsprechenden Radioisotops zu den stabilen Isotopen des Elementes, in diesem Falle also das Verhältnis $^{63}\text{Ni}/\text{Ni}$. Die ^{63}Ni -Atome werden im Detektor gezählt und die Konzentration relativ zu dem gemessenen Nickel-Ionenstrom bestimmt.

Eine Kupferprobe muss zuerst chemisch aufbereitet werden, um darin vorhandenes ^{63}Ni in eine für die Messung geeignete Form zu überführen [111, 112]. Von dieser aufbereiteten Probe wird in einer Ionenquelle ein Strom von negativen Nickelionen extrahiert und nachfolgend in einem Tandembeschleuniger auf hohe Energien gebracht. Danach durchlaufen die Ionen ein speziell für den Massenbereich 26 bis etwa 130 aufgebautes Nachweissystem [61, 113–116]. Das im Rahmen dieser Arbeit für ^{63}Ni optimierte System erlaubt weltweit den empfindlich-

sten Nachweis von ^{63}Ni . Im Folgenden werden die einzelnen Schritte ausführlicher beschrieben.

4.1.1 Chemische Aufbereitung

In Hiroshima wurde das Isotop ^{63}Ni in Kupfer durch schnelle Neutronen erzeugt. Das Ziel der chemischen Aufbereitung ist nun, das beim nachfolgenden Nachweis störende Isobar ^{63}Cu (siehe die folgenden Abschnitte) effektiv zu entfernen. Dies erfolgt in zwei Schritten, einer Elektrolyse und der Formung von Nickeltetracarbonyl ($\text{Ni}(\text{CO})_4$). Beide Schritte werden am *Lawrence Livermore National Laboratory* (LLNL), USA durchgeführt.

1. Elektrolyse der Probe

Eine Kupferprobe wird an der Oberfläche mit einem Schmirgelleinen poliert und danach mit deionisiertem Wasser gewaschen [117]. Dann wird eine gravimetrisch bestimmte Masse Kupfer und mit ihr auch alle Verunreinigungen des Materials – darunter auch stabiles Nickel im ppm Bereich – elektrolytisch aufgelöst. Wegen der unterschiedlichen elektrochemischen Standardpotentiale von Kupfer und Nickel ($\text{Cu}^{2+}/\text{Cu}^0$: $E^0 = +0.337\text{ V}$ und $\text{Ni}^{2+}/\text{Ni}^0$: $E^0 = -0.250\text{ V}$ [118]) wird die Lösung elektrolytisch gereinigt, wobei die Bedingungen so gewählt sind, dass Nickel in Lösung bleibt, Kupfer aber an einer Platinelektrode abgeschieden wird und aus der Lösung entfernt werden kann. Eine Beschreibung der angewandten Elektrolysetechnik findet sich in [111].

Analyse der Probe

Aus der oben erwähnten Lösung wird eine Analyseprobe gewonnen und damit der Gehalt an stabilem Nickel bestimmt. Die Analysen wurden in zwei verschiedenen Labors (Galbraith und LLNL) durchgeführt. Zudem wurde eine Kupferprobe auch am Radiochemischen Institut der TU München (RCM) vermessen. Die Werte zeigten allgemein eine gute Übereinstimmung. Die Daten der einzelnen Analysen sind im Anhang in Abschnitt D angeführt. Bei wenig Ausgangsmaterial (Kupfer) kann eine definierte Menge an stabilem Nickel als Träger zugegeben werden, um eine ausreichend große Probenmenge im Bereich von einigen hundert μg Nickel zu erhalten.

2. Erzeugung und Dekomposition von Nickeltetracarbonyl

In einem zweiten chemischen Reinigungsschritt wird die Probe gleichzeitig in den für die Messung mittels AMS nötigen Probenhalter überführt (siehe Abschnitt 4.1.3). Dazu wird das Nickel aus der Lösung in einer spezifischen Reaktion zu gasförmigem Nickel-

tetracarbonyl ($\text{Ni}(\text{CO})_4$) umgeformt¹. Dieses Gas wird in die Bohrung eines Graphitprobenhalters geleitet, wo es sich an der ca. 200°C heißen Wand thermisch zersetzt. Nickel scheidet sich im Loch des Probenhalters ab (siehe Abb. 4.1). Graphit erwies sich als geeignetes Probenhaltermaterial, andere Materialien wie Silber waren wegen der geringen Effizienz der Probendeposition ungeeignet [119]. Eine erste Beschreibung dieses Verfahrens der Probenaufbereitung für die Beschleunigermassenspektrometrie findet sich in [112].

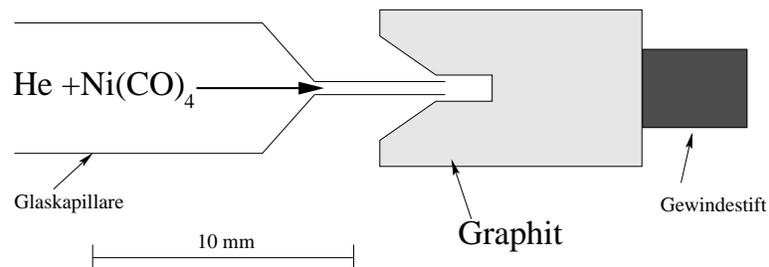


Abbildung 4.1: Skizze eines Probenhalters bei der Deposition von Nickel. Das Trägergas Helium leitet $\text{Ni}(\text{CO})_4$ in das Loch des Probenhalters aus Graphit; an den ca. 200°C heißen Wänden zersetzt sich das Gas, Nickel schlägt sich im Loch nieder.

Diese hier skizzierte Methode wurde am LLNL am dortigen *Center of Accelerator Mass Spectrometry* (CAMS) entwickelt. Dort wurde gezeigt, dass mit dieser Methode quantitativ Proben mit etwa 10^6 ^{63}Ni -Kernen aus makroskopischen Mengen Kupfer für Beschleunigermassenspektrometrie hergestellt werden können [111, 120].

4.1.2 Beschleunigermassenspektrometrie in Garching

Alle weiteren Schritte zur Bestimmung von ^{63}Ni in Kupfer wurden am Beschleunigerlabor der LMU und TU München in Garching durchgeführt. Abbildung 4.2 zeigt die wichtigen Komponenten des experimentellen Aufbaus.

Negative Ionen werden in einer speziellen, für den ^{63}Ni -Nachweis modifizierten Cäsium-Sputter-Ionenquelle erzeugt. Es folgen ein 90° -Magnet und eine elektrostatische 18° -Ablenkung. Nach einer Vorbeschleunigung (150 keV) werden die negativen Ionen in den 14 MV MP-Tandem² eingeschossen und im Terminal Elektronen abgestrippt. Anschließend durchlaufen die nun positiven Ionen die weiteren elektromagnetischen Strahlführungskomponenten, die als spezifisches Filtersystem für den Ionenstrahl wirken. Hervorzuheben ist der Wien-Filter, der 90° -Analysiermagnet und schließlich das Detektionssystem mit gasgefülltem Magneten (*gas filled magnet*, GFM) und Detektor. Damit können andere Massen sowie störende Moleküle nahezu völlig unterdrückt werden. Die Isobare ^{63}Ni und ^{63}Cu können allerdings erst im GFM und im Detektor getrennt werden. Die ^{63}Cu -Unterdrückung stellt einen

¹Kupfer bildet im Gegensatz zu Nickel keine Carbonyle (bzw. sogenannte zweikernige Carbonyle nur unterhalb von 30 Kelvin, einkernige unterhalb von 10 Kelvin [118, Seite 1326, Anmerkung 10]).

²*High Voltage Engineering Corporation* (HVEC), *Emperor* Serie.

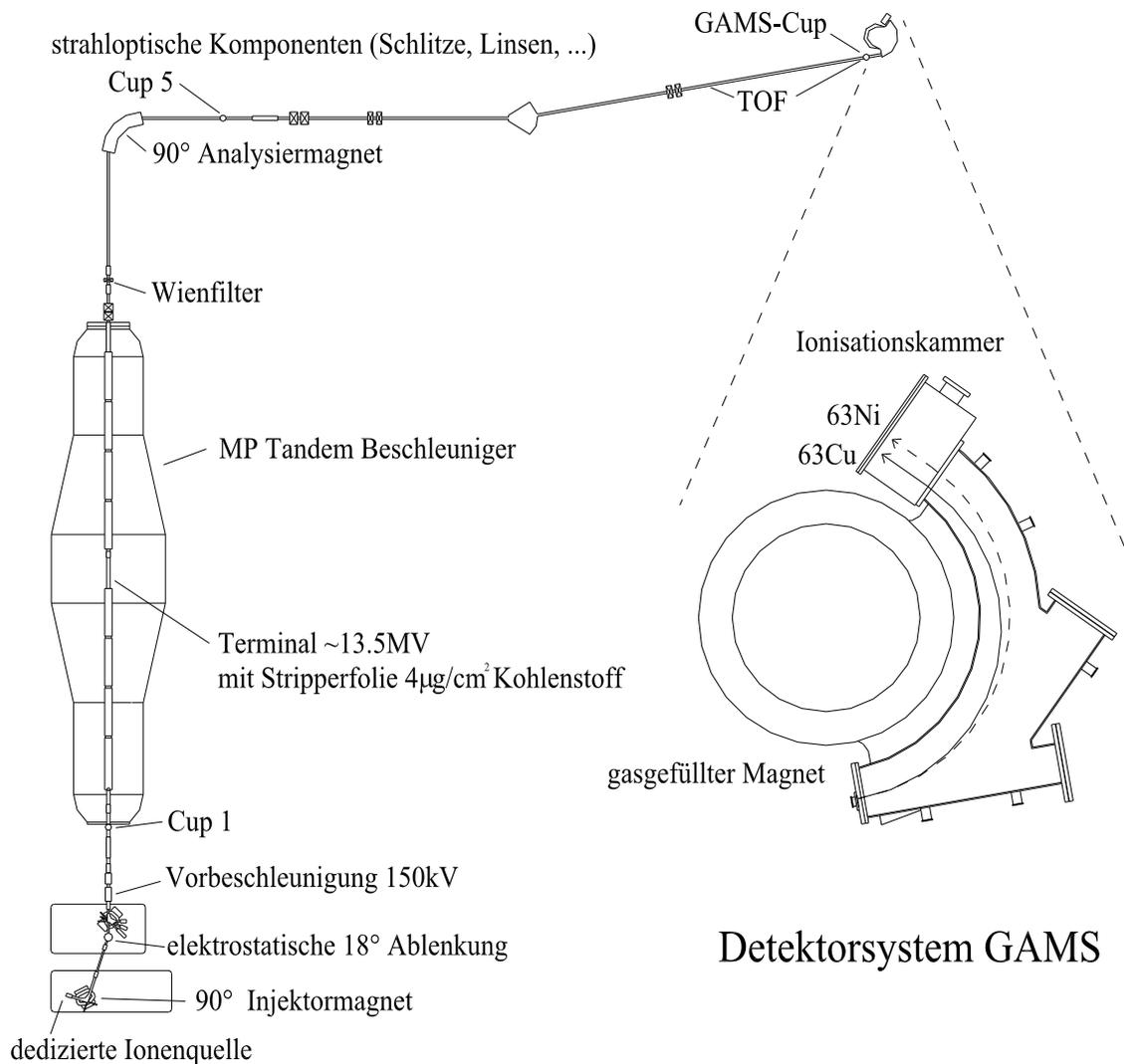


Abbildung 4.2: Experimenteller Aufbau am Beschleunigerlabor Garching. Neben den einzelnen Strahlführungskomponenten ist der Bereich des gasgefüllten Magneten mit dem Detektor vergrößert dargestellt. Die in dieser Arbeit nicht benötigte Option einer Flugzeitstrecke (TOF, *time of flight*) ist in dem Schema ebenfalls enthalten. Beim Ausschnitt des Detektorsystems GAMS (*Gas-filled Analyzing Magnet System*) sind die getrennten Teilchenbahnen der Isobare ^{63}Ni und ^{63}Cu eingezeichnet.

essentiellen Teil in der Optimierung des Systems dar. Nachfolgend werden die Komponenten beschrieben und Ergebnisse für den instrumentellen Untergrund gezeigt.

4.1.3 Dedizierte Ionenquelle

Prinzip

Die in der Beschleunigermassenspektrometrie verwendeten Ionenquellen basieren meistens auf dem von Middleton entwickelten Typ [121, 122] einer Cäsium-Sputterionenquelle. Aus einem beheizten Vorratsbehälter wird Cäsiumdampf in die Ionenquelle geleitet, wo er an einer ca. 1 000°C heißen Tantaloberfläche ionisiert wird. Der verwendete Ionisator hat meist eine konische oder sphärische Form [123–125] (siehe Abbildung 4.3(a)) um einen gut fokussierten Cäsiumstrahl erzeugen zu können. Cäsium kann als positives Ion desorbieren und wird nachfolgend mit einer „Sputterspannung“ von 6 kV auf die Probe hin beschleunigt. Die positiven Cäsiumionen treffen auf die Probenoberfläche und erzeugen dort – neben neutralen Atomen und Molekülen – positive und negative Ionen und Moleküle. Die negativen Teilchen werden durch dieselbe „Sputterspannung“ entgegengesetzt in Richtung des – in der Strahlachse offenen – Ionisators beschleunigt und mittels einer weiteren Hochspannung aus der Ionenquelle extrahiert. Die Effizienz der Bildung negativer Ionen hängt sehr empfindlich von verschiedenen Parametern ab und liegt bestenfalls im Prozentbereich. Ein wesentlicher Parameter ist dabei die sog. Elektronenaffinität, die angibt, welche Energie frei wird, wenn sich ein Elektron an ein neutrales Atom oder Molekül anlagert. Für Edelgase und auch einige Elemente, wie Stickstoff, ist die Elektronenaffinität negativ. Dies vereinfacht beispielsweise den Nachweis von ^{14}C , da das stabile Isobar ^{14}N somit keine stabilen negativen Ionen bilden kann. Nickel und auch Kupfer haben jedoch mit 1.156 eV und 1.228 eV eine annähernd gleich große Elektronenaffinität [126]. Deshalb ist die Trennung des zu messenden Radioisotops ^{63}Ni von dem – trotz aufwendiger chemischer Aufbereitung immer noch um neun Größenordnungen häufigeren – ^{63}Cu (Isotopenhäufigkeit 69.17%) bereits in der Ionenquelle nicht möglich.

Probenhalter Die Geometrie des Probenhalters trägt zur Steigerung der Effizienz bei. Abbildung 4.1 zeigt schematisch einen Probenhalter. Beim Sputtern mit Cs-Ionen werden hauptsächlich neutrale Atome und Moleküle aus dem Probenmaterial herausgeschlagen. Das mit 2 mm relativ tiefe Loch (Durchmesser ebenfalls 2 mm) des Probenhalters erhöht die Wahrscheinlichkeit für Neutralteilchen, sich an der Innenwand des Probenhalterloches wieder niederzuschlagen. Somit besteht für das Atom beim weiteren Sputterprozess nochmals die Möglichkeit, ein negatives Ion zu bilden. Durch dieses „Resputtern“ ist die Effizienz für kleine Probenmengen weiter optimiert worden [127, 128].

Modifikationen der Ionenquelle

Erste Experimente mit der im Routinebetrieb verwendeten Ionenquelle (siehe Abb. 4.3(a)) zeigten Cu/Ni Verhältnisse von 10^{-2} bis 10^{-5} bei Proben, die kein Kupfer enthalten sollten.

Dies legte die Vermutung nahe, dass dieser hohe Kupferuntergrund seinen Ursprung in der Ionenquelle selbst hatte. Aus diesem Grund wurde eine neue, für den ^{63}Ni -Nachweis modifizierte Ionenquelle in Betrieb genommen [116, 119] (siehe Abb. 4.3(b)). Die geometrischen Verhältnisse zur Extraktion von negativen Ionen sind bei beiden Ionenquellen ähnlich. Die dezidierte Ionenquelle enthält aber einige – für die Messung von ^{63}Ni -Isotopenverhältnissen mittels AMS entscheidende – Verbesserungen. Die Ausbeute an negativen Nickelionen liegt bei der verwendeten Ionenquelle im Bereich von 1% [119].

Die im Vergleich zur herkömmlichen Ionenquelle wichtigsten Änderungen, die zu einer Reduzierung des Kupferuntergrundes beitragen, sind:

- Entfernung aller Kupferteile (elektrische Leitungen, Halterungen, Dichtungen),
- offene Geometrie und große Pumpquerschnitte,
- wassergekühlte Oberfläche,
- Einlassschleuse.

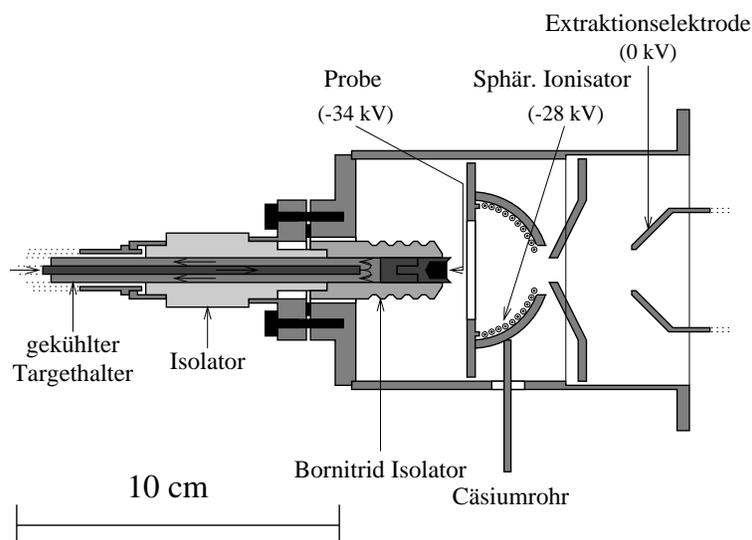
Während der Messung herrscht in der Ionenquelle ein Druck von weniger als 10^{-6} mbar. Kupfer hat einen im Vergleich zu anderen Metallen relativ hohen Sättigungsdampfdruck (siehe Abbildung 4.4). Er beträgt bei 880°C – einer typischen Temperatur in der Umgebung des Ionisators – $1.3 \cdot 10^{-6}$ mbar. Bei den anderen in Abbildung 4.4 gezeigten Elementen Nickel, Cobalt und Chrom, die Isobare bei anderen AMS-Messungen in Garching sind, ist die Verunreinigung mit dem störenden Material aus der Probe dominierend (^{60}Ni ist Isobar zu ^{60}Fe ; ^{59}Co zu ^{59}Ni ; ^{53}Cr zu ^{53}Mn). Denn trotz makroskopischer Mengen in der Ionenquelle tragen diese Materialien der Ionenquelle nicht dominierend zum Isobarenproblem der Messung von ^{60}Fe , ^{59}Ni und ^{53}Mn mit AMS bei.

Aufgrund des hohen Sättigungsdampfdruckes können dagegen alle heißen Materialien als potentielle Kupferuntergrundquelle in Betracht kommen, sowie natürlich auch Materialien, auf die der Cs^+ -Ionen-Sputterstrahl trifft.

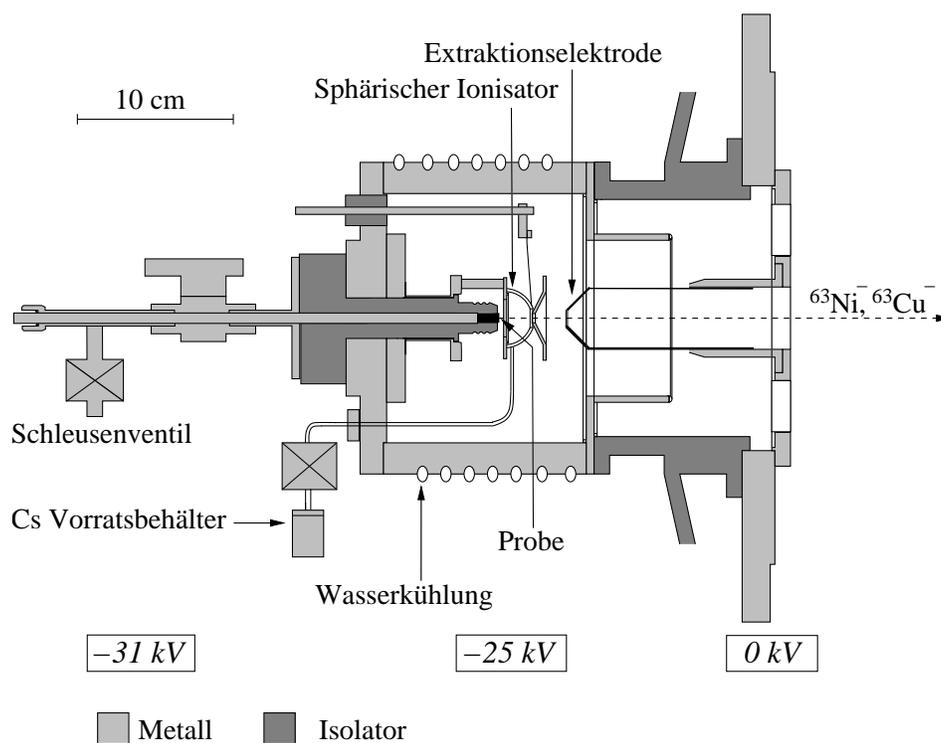
- Der Ionisator besteht aus einem sphärisch gewickelten coaxialen Tantaldraht mit einem Kupfergehalt von weniger als 5 ppm (Analyse des Herstellers Temptron Engineering, Inc., Kalifornien, USA.)
- Die Probenhalter werden aus hochreinem Graphit³ gefertigt und das Material wies in den Analysen kein Kupfer auf. Auch bei der Verarbeitung des Graphits wurde darauf geachtet, keine Verunreinigung einzutragen.
- Das in der Ionenquelle verwendete Cäsium weist die höchste kommerziell erhältliche Reinheit von 99.98% auf⁴. Cäsium, das auch am LLNL bei dortigen ^{63}Ni -Messungen zum Einsatz kommt (Cu/Ni-Verhältnis besser als 10^{-6} [130]), ergab keine Reduzierung des Cu/Ni-Verhältnisses.

³Alfa Aesar - stock#14738, Ultra 'F'purity, 99.9995%, Cu: ND (nicht nachgewiesen), d.h. < 1 ppm.

⁴Alfa Aesar - stock#10146, 99.98%.



(a) Ionenquelle für AMS im Routinebetrieb [123].



(b) Dedizierte Ionenquelle für ^{63}Ni mit Modifikationen gegenüber der im Routinebetrieb verwendeten Ionenquelle (siehe Abb. 4.3(a)) [116]. Die Bereiche der Spannungen der Ionenquelle sind im unteren Teil gekennzeichnet.

Abbildung 4.3: Ionenquellen für Beschleunigermassenspektrometrie am Beschleunigerlabor Garching. Die geometrischen Verhältnisse zur Extraktion von negativen Ionen sind bei beiden Ionenquellen ähnlich. Die im Text beschriebenen Modifikationen der Ionenquelle in Abb. 4.3(b) gegenüber der Ionenquelle in Abb. 4.3(a) führen bei den verwendeten Nickelproben zu einem um den Faktor 100 niedrigeren Wert des im Detektor gemessenen Cu/Ni-Verhältnisses.

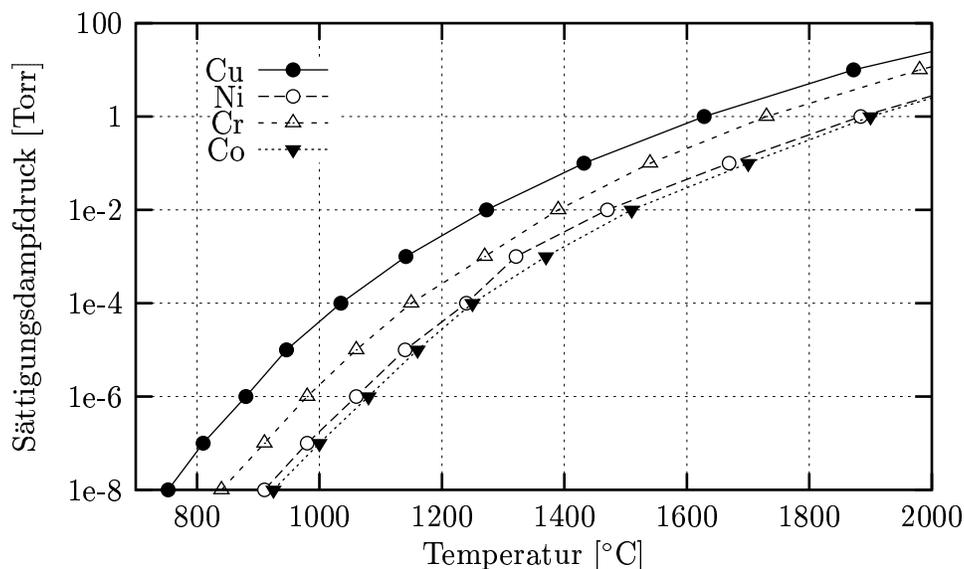


Abbildung 4.4: *Dampfdruck verschiedener in der Ionenquelle möglicherweise vorhandenen Metalle [129] (1 Torr=1.333 mbar).*

Die Ionenquelle wird nach jedem Experiment zerlegt, sandgestrahlt und mit Isopropanol (oder auch deionisiertem Wasser) gereinigt. Der verwendete Sand, das Isopropanol und das Isolatormaterial Bornitrid ergaben als Probe in der Ionenquelle geringere Cu-Zählraten im Detektor als das Tantalmaterial des Ionisators. Nach jedem Experiment wird der Ionisator draht durch einen neuen ersetzt. Die Ionenquelle selbst wird unter möglichst kupferfreien Bedingungen wieder zusammengebaut.

Spuren an Kupfer, die dennoch in der Ionenquelle verdampft sind, können in der offenen Geometrie mit den großen Freiräumen gut abgepumpt werden. Zusätzlich ist die Oberfläche der Ionenquelle mit Wasser gekühlt und bleibt im Betrieb kalt, sodass diese Oberfläche als Kühlfalle wirkt. Der Versuch, diesen Effekt zu verstärken und ein mit flüssigem Stickstoff gekühltes Schild um den Ionisator anzubringen, führte zu keiner messbaren Verbesserung (niedrigeres Cu/Ni-Verhältnis). Die Temperatur des Ionisator drahtes wird im Betrieb relativ niedrig gehalten (Heizleistung 100 W, im Vergleich bis zu 140 W bei der routinemäßigen Ionenquelle). Höhere Ionenströme werden statt mit einer hohen Ionisator temperatur mit mehr Cäsium in der Ionenquelle erreicht.

Im Zusammenspiel mit Luft in der Ionenquelle erhöht sich das gemessene Cu/Ni-Verhältnis im Detektor [119]. Dies ist kritisch, da bei jedem Probenwechsel das Vakuum gebrochen werden muss und somit eine kleine Luftmenge in die Ionenquelle gelangt. Zuerst wurde der Einfluss von Luft mit Hilfe einer mit Stickstoff gespülten Box umgangen. Inzwischen wird beim Einführen der Probe das kleine Austauschvolumen evakuiert (Vorvakuum, ca. 10^{-2} mbar). Dies genügt, um durch Probenwechsel die Kupferrate nicht zu erhöhen. Allerdings erhöht sich die Kupferrate beim erneuten Einführen einer schon verwendeten Probe. Ursache ist vermutlich die mit Cäsium belegte, reaktive Oberfläche einer einmal verwendeten Probe. In der Regel wurden Messproben deshalb nur einmal in die Ionenquelle eingeführt.

Eigenschaften der Ionenquelle

Um das Übersprechverhalten der Ionenquelle zu testen, wurde nach einer hoch konzentrierten Probe ($^{63}\text{Ni}/\text{Ni}$ -Verhältnis: $1.3 \cdot 10^{-8}$) eine Nullprobe („Blank“), d.h. eine Probe die kein ^{63}Ni enthält, gemessen. Es ergab sich für das Übersprechen von ^{63}Ni ein Wert kleiner als 10^{-5} . Somit wird eine Messung von Proben mit typischen $^{63}\text{Ni}/\text{Ni}$ -Verhältnissen von 10^{-13} , durch die Verwendung von Standards (d.h. Proben eines bekannten $^{63}\text{Ni}/\text{Ni}$ -Verhältnisses) im Bereich von 10^{-10} bis 10^{-12} nicht beeinträchtigt.

Mit dieser Ionenquelle konnte eine Reduzierung des Kupferuntergrundes um einen Faktor 100 gegenüber der herkömmlichen Ionenquelle erreicht werden. Das Cu/Ni -Verhältnis im Ionenstrahl war bestenfalls im Bereich von 10^{-6} , typischerweise wurden die Proben bei einem Verhältnis von 10^{-5} vermessen.

4.1.4 Tandembeschleuniger

Aus der Ionenquelle werden einfach negativ geladene Ionen⁵ extrahiert und durch den 90°-Injektormagneten wird eine Masse ausgewählt. Mittels einer energieselektiven elektrostatischen 18°-Ablenkung werden die negativen Ionen auf die Tandemachse gelenkt. Danach durchlaufen sie eine Vorbeschleunigungsstrecke (150 kV) und werden in den Tandembeschleuniger eingeschossen. Durch eine positive Spannung am Terminal werden die negativen Ionen zum Terminal hin beschleunigt. Dort werden den Ionen in einer Kohlenstoffolie ($\sim 4 \mu\text{g}/\text{cm}^2$) Elektronen abgestreift. Im Ionenstrahl noch vorhandene Moleküle ($^{62}\text{NiH}^-$, etc.) werden aufgebrochen. Man erzielt so eine perfekte Molekülunterdrückung. Bei einer Terminalspannung von typischerweise 13.5 MV liegt die Ausbeute an Nickelionen für den Ladungszustand 12^+ bei ca. 15%. Die nun positiven Ionen durchlaufen die Hochspannung nochmals und haben dann als $^{63}\text{Ni}^{12+}$ -Ionen am Ende der Beschleunigungsstrecke eine Energie von ca. 175.5 MeV. Wichtig für eine quantitative und empfindliche Messung ist die Stabilität der Tandemspannung und somit der Energie der $^{63}\text{Ni}^{12+}$ -Ionen. Durch die Inbetriebnahme eines neuen rotierenden Voltmeters zur Bestimmung der Beschleunigungsspannung konnte die Spannungsstabilität entscheidend verbessert werden [131]. Der neue Messplatz in Halle I (seit Mai 1998) mit dem von 90 m auf nun 50 m verkürzten Weg durch das Strahlführungssystem erlaubt es, zeitlich länger dauernde Einzelmessungen durchzuführen. Die Messbedingungen sind insgesamt stabiler und die Verluste durch das Strahlführungssystem geringer; somit wurde eine höhere und stabilere Transmission erreicht.

Wienfilter

Im Bereich um Masse 60 erlaubt ein Geschwindigkeitsfilter, der sogenannte Wienfilter, eine Unterdrückung der Nachbarisotope um drei Größenordnungen [115]. Am Beschleunigerlabor besteht dieser Filter nacheinander aus einem elektrischen, magnetischen und wiederum

⁵Mehrfach negativ geladene Ionen sind erst bei Molekülclustern möglich.

einem elektrischen Feld. Das magnetische Feld in einem Wienfilter steht senkrecht zu den elektrischen Feldern. Die Unterdrückung ist im Falle der Nachbarisotope ^{62}Ni und ^{64}Ni zusammen mit den anderen Komponenten ausreichend, sodass auf die weitere Option einer Flugzeitmessung (TOF) zur Geschwindigkeitsbestimmung der Ionen und damit der Isotopentrennung verzichtet werden konnte.

Einstellen des Strahlführungssystems

Zum Einstellen des Strahlführungssystems wird der Ionenstrom eines stabilen Nickelisotops ($^{58}\text{Ni}^-$ bzw. ^{58}Ni im Ladungszustand 11^+) zum Detektorsystem transportiert. Als erste Referenz dient die Messung des Ionenstromes ($^{58}\text{Ni}^-$) mit einem Faradaycup vor dem Tandem, dem sog. Cup 1 (siehe Abb. 4.2). Ein Faradaycup besteht aus einem geeignet geformten elektrisch leitenden Material, das zur Auslesung des Stromes mit einem Amperemeter verbunden ist. Nach Cup 1 wird das Strahlführungssystem auf eine bestimmte magnetische Steifigkeit $p/q = B \cdot \rho$ eingestellt. Dabei steht p für den Impuls der Ionen ($p = m_A \cdot v$; m_A : Masse eines Atoms mit Massenzahl A ; v : Geschwindigkeit), q für die Ladung, B für das magnetische Feld und ρ für den Ablenkradius im Magnetfeld. Zur weiteren Analyse des Ionenstrahles dienen wiederum Faradaycups. Bei der Umstellung auf das Radioisotop ^{63}Ni muss bei gleicher magnetischer Steifigkeit lediglich der Injektormagnet, die Terminalspannung und der Wienfilter (und hier nur das elektrische Feld) umgestellt werden.

4.1.5 Gasgefülltes Analysiermagnetsystem: GFM und Ionisationskammer

Das gasgefüllte Analysiermagnetsystem (GAMS, *Gas-filled Analyzing Magnet System*) besteht aus einem gasgefüllten Magneten (GFM) und einer daran anschließenden Ionisationskammer. Bis zum GFM können Isobare, also Teilchen mit gleicher Massenzahl A , im gleichen Ladungszustand nicht getrennt werden, da sie im selben Verhältnis p/q auftreten.

GFM

Am Ende des Strahlführungssystems gelangen Ionen mit gleicher magnetischer Steifigkeit – in erster Linie entsprechend der Messeinstellung Isobare wie ^{63}Ni und ^{63}Cu – zum eigentlichen Nachweissystem. Es beginnt mit einem 16t schweren 135° -Dipolmagneten mit einem mittleren Ablenkradius von 0.9 m, dessen Magnetkammer mit Stickstoff gefüllt ist⁶. Die hochenergetischen Ionen treffen auf die Atome im Gas und ändern in vielen Stößen ihren Ladungszustand q . Dieser Ladungszustand fluktuiert um einen mittleren Ladungszustand \bar{q} , der von der Geschwindigkeit des Ions v und seiner Kernladungszahl Z_P abhängt. Berechnet werden kann dieser mittels der semiempirischen Formel nach Sayer [132].

⁶Eine Captonfolie ($30 \mu\text{g}/\text{cm}^2$) trennt die mit Stickstoff gefüllte Magnetkammer vom Vakuum im Strahlrohr.

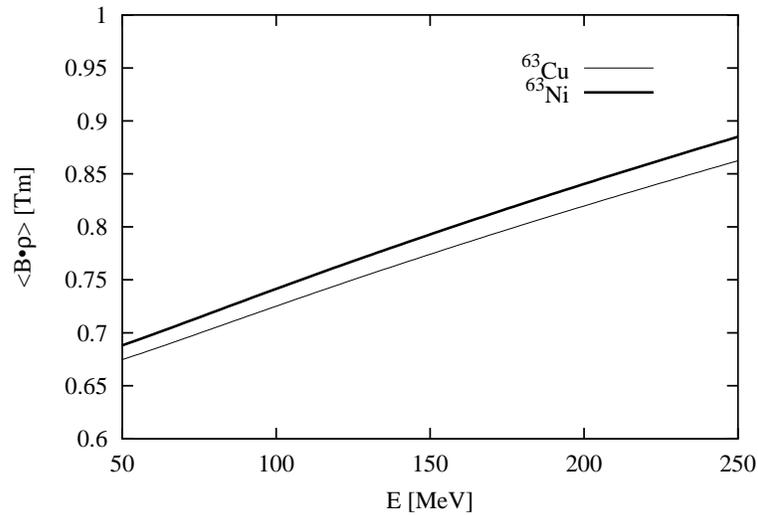


Abbildung 4.5: Mittlere magnetische Steifigkeit der Isobare ^{63}Ni und ^{63}Cu im Gas als Funktion der Ionenenergie.

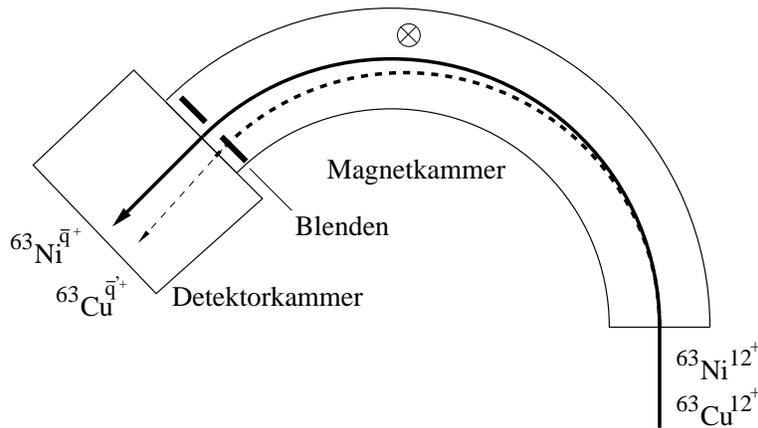


Abbildung 4.6: Weg der Isobare ^{63}Ni und ^{63}Cu durch eine gasgefüllte Magnetkammer. \otimes zeigt die Orientierung des Magnetfeldes. Das Eintrittsfenster des Detektors ist durch Blenden so abgedeckt, dass mehr als 3 Größenordnungen der ^{63}Cu -Ionen unterdrückt werden, der Großteil der ^{63}Ni -Ionen aber in den Detektor trifft.

$$\bar{q} = Z_P \cdot \left(1 - 1.08 \cdot \exp \left[-80.1 Z_P^{-0.506} \left(\frac{v}{c} \right)^{0.996} \right] \right). \quad (4.1)$$

Nach der – auch im gasgefüllten Bereich gültigen – Formel $B \cdot \rho = p/\bar{q}$ haben die Isobare ^{63}Ni und ^{63}Cu eine unterschiedliche magnetische Steifigkeit und können so in der gasgefüllten Region durch das Magnetfeld getrennt werden (siehe Abbildungen 4.5 und 4.6). Der Gasdruck ist mit etwa 7 mbar Stickstoff in der Magnetkammer so gewählt, dass die Ionen ca. 1/3 ihrer Energie in der Magnetkammer verlieren. Damit haben die Ionen noch genügend Energie für eine effektive Trennung in der nachfolgenden Ionisationskammer.

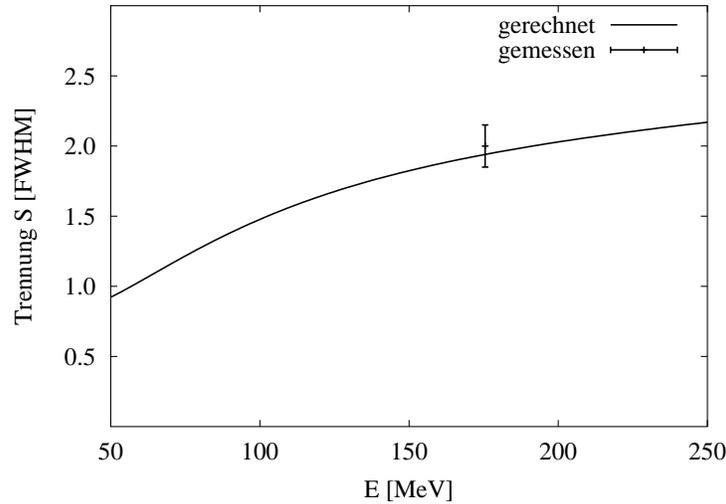


Abbildung 4.7: Trennung S der Isobare ^{63}Ni und ^{63}Cu in der Magnetkammer. Rechnung analog zu [115].

Die Trennung S der Ionen kann als Verhältnis des Abstandes D der beiden Isobare und der Breite W der Ortsverteilung einer Ionensorte nach dem GFM verstanden werden. D ist nur relativ schwach von der Energie abhängig, W zeigt allerdings eine starke Energieabhängigkeit. Eine höhere Energie der Ionen – wie sie am Garching MP-Tandem zur Verfügung steht – erlaubt geringere Werte für W . Dies ist für eine empfindliche Isobarentrennung vorteilhaft. Bei einer Energie des Ionenstrahles von 175,5 MeV wurde dessen Breite W (FWHM, *full width half maximum*) zu 1,9 cm gemessen. Der Abstand D der beiden Isobare ^{63}Cu und ^{63}Ni beträgt 3,8 cm. Damit ergibt sich eine Trennung $S_{exp} = 2$ (siehe Abbildung 4.7). Dies ist in Übereinstimmung mit der Abschätzung, die in K. Knie et al. [115] diskutiert wird. Während einer Messung wird das Magnetfeld so gewählt, dass ein großer Teil der ^{63}Ni -Ionen den nachfolgenden Detektor erreicht (ca. 80%). Die ^{63}Cu -Ionen dagegen werden aufgrund der größeren mittleren magnetischen Steifigkeit ($\langle B \cdot \rho \rangle$) durch eine Blende daran gehindert in den Detektor zu gelangen. Die Kupferunterdrückung durch den GFM betrug etwa einen Faktor von $3 \cdot 10^3$. Für die einzelnen Experimentierzeiten sind die entsprechenden Werte der Kupferunterdrückung im Anhang in Tabelle D.8 aufgeführt.

Erst durch das Ausblenden des Großteils der ^{63}Cu -Ionen aus dem Detektor ist es möglich, bei moderaten Zählraten (kHz-Bereich) im Detektor die Messung einer Probe bei hohen Ionenströmen aus der Ionenquelle durchzuführen.

Detektor

Der Nachweis der einzelnen Ionen erfolgt in einer Frischgitter-Ionisationskammer. Die Anode ist entlang der Flugbahn der eintreffenden Ionen in fünf Energieverluststreifen ($\Delta E_1 - \Delta E_5$) geteilt (siehe Abbildung 4.8). Der erste und der dritte Streifen sind diagonal geteilt, um ein Maß für den Ort und den horizontalen Einfallswinkel der Ionen zu erhalten. Aus der

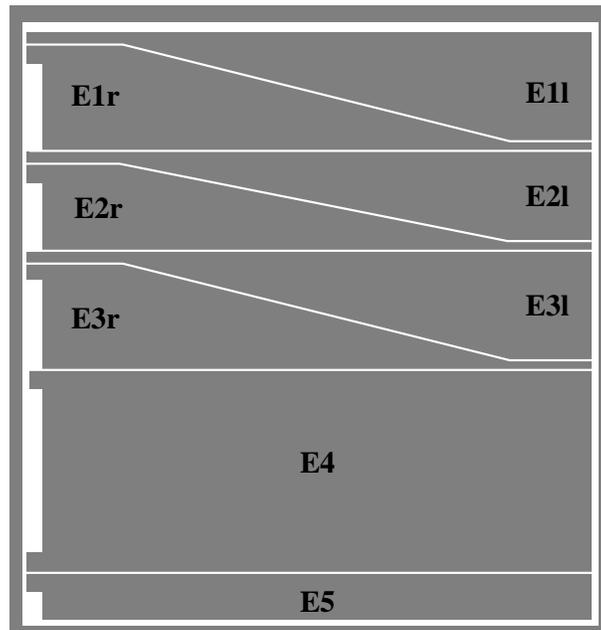


Abbildung 4.8: Ansicht der Anode der Frischgitterionisationskammer. Die Anode ist in Strahlrichtung in 5 Energieverluststreifen geteilt, wobei der erste und der dritte Streifen auch noch diagonal geteilt sind. (Die Energieverlustsektoren ΔE_{2r} und ΔE_{2l} sind im normalen Betrieb kurzgeschlossen.) Eintretende Ionen ionisieren das Zählgas (Isobutan, ~ 43 mbar), die entstehenden Ladungsträger werden mit einer Spannung zur Anode bzw. der Kathode abgesaugt, über Vorverstärker verstärkt, ausgelesen und mittels des Datenaufnahmesystems MAR_aBQU ausgewertet.

Zeitinformation zwischen dem zweiten und dem vierten Energieverluststreifen wird der vertikale Winkel bestimmt. Außerdem wird über das Frischgitter eine unabhängige Information über den totalen Energieverlust gewonnen. Eintreffende Ionen verlieren entlang ihrer Bahnelementspezifisch ihre Energie, was neben dem GFM eine weitere Möglichkeit der Isobarentrennung bietet. Der Gasdruck (Isobutan) im Detektor wird auf etwa 43 mbar eingestellt. Eine genauere Beschreibung der Detektoreigenschaften findet sich in [113, 114].

Die Datenauslese erfolgte mit dem Datenaufnahmesystem MAR_aBQU (*MBS and ROOT Based Online/Offline Utility*) [133]. Dieses Programmpaket ermöglicht die Verarbeitung hoher Datenraten und die schnelle Bearbeitung und Analyse der Rohdaten mit einem sog. „Replay“ schon während der Experimentierzeit.

Mit einem Standard, einer Probe mit bekanntem Isotopenverhältnis $^{63}\text{Ni}/\text{Ni}$, wird der Wertebereich der ^{63}Ni -Ionen in den einzelnen Detektorsignalen bestimmt. Der Vergleich mit einer Nullprobe (Blank) erlaubt es, die Fensterbedingungen so zu setzen, dass ^{63}Cu -Ionen von ^{63}Ni -Ionen unterschieden werden können. Außerdem wird mit den Informationen aller Rohdaten eines Ereignisses mittels der Methode der kleinsten quadratischen Abweichung vom Referenzwert eines ^{63}Ni -Ions eine sog. χ^2 -Analyse durchgeführt. Damit wird das Verhalten eines Ions im gesamten Detektor in die Analyse miteinbezogen.

4.2 Ablauf einer Messung

Bei der Messung eines Radionuklides mit Beschleunigermassenspektrometrie werden die Nuklide anhand ihrer Masse m_A und ihrer Kernladungszahl Z identifiziert. Dazu dienen Standards (Proben mit bekannter Anzahl des zu messenden Radionuklides) und Blanks (Proben ohne dieses Radionuklid). Mit den Standards wird die Transmission durch das ganze System bestimmt. Mit Hilfe von Blanks kann eine Aussage über den Beitrag des Untergrundes (^{63}Cu) im Detektor gemacht werden. Generell ist die Messgröße das Verhältnis der Anzahl der Ionen des Radionuklides zu den stabilen Isotopen – also im vorliegenden Fall $^{63}\text{Ni}/\text{Ni}$. Das stabile Isotop wird mit einem Faradaycup gemessen, das Radioisotop im Detektor gezählt.

4.2.1 Entwicklung eines „Fenstersatzes“

Ausgehend von einem Standard werden die Bereiche, in denen ^{63}Ni -Ereignisse in den verschiedenen mit dem Detektor aufgenommenen Spektren liegen, festgelegt. Auf diese Bereiche werden nun Fenster gesetzt, d.h. alle Ereignisse außerhalb dieser Soll-Bereiche (Fenster) werden verworfen. In einer 2-dimensionalen Darstellung werden die Signale für ΔE_4 und für den Ort betrachtet. Die Festlegung des Soll-Bereiches (2-dimensional) erfolgt mit einem sog. Cut (siehe Abbildung 4.9). Bei optimalen Fenstern treten dann in der Auftragung ΔE_4 gegen den Ort bei einem Blank keine Ereignisse im Cut auf, bei dem Standard erscheinen dort die ^{63}Ni -Ereignisse. Zu Diagnosezwecken werden auch die Nachbarisotope ^{62}Ni und ^{64}Ni (notwendigerweise in der Intensität abgeschwächt) in den Detektor geschossen.

4.2.2 Bestimmung der Transmission

Die gesamte Transmission T von Cup 1 bis zum Detektor wird normalerweise vor und nach einer Probe durch Messung eines Standards bekannter $^{63}\text{Ni}/\text{Ni}$ -Konzentration bestimmt (Gleichung 4.2).

$$T = \frac{e \cdot N}{\bar{I} \cdot t \cdot C_{St}}. \quad (4.2)$$

N ist die Anzahl der nachgewiesenen ^{63}Ni -Ereignisse im Cut, e die Elementarladung ($1.602 \cdot 10^{-19} \text{ C}$), \bar{I} der mittlere Nickel-Ionenstrom, gemessen vor und nach der Messung, t die auf die Totzeit korrigierte Zeit der Messung in Sekunden, C_{St} das bekannte Verhältnis $^{63}\text{Ni}/\text{Ni}$ im Standard.

Von Cup 1 bis zum Detektor lässt sich die Transmission in mehrere Faktoren unterteilen. Durch den Beschleuniger beträgt die Transmission etwa 50%, die Ionenausbeute im Ladungszustand 12+ (Terminalspannung 13.5 MV) beträgt etwa 15%. Durch das weitere Strahlführungssystem bis zu dem Cup vor dem GFM (GAMS-Cup, siehe Abb. 4.2) gelangen etwa 50% der Ionen. Da neben ^{63}Cu -Ionen auch ^{63}Ni -Ionen aus dem Detektor ausgeblendet

werden und enge Softwarebedingungen gesetzt werden müssen, ist die Transmission durch den GFM zum Detektor inklusive Softwarebedingungen nur etwa 25%. Insgesamt ergibt das eine Transmission im Bereich von 1% von Cup 1 bis zum Detektor. Bei den Messungen wurde der Strom immer wieder neben Cup 1 auch auf der Hochenergieseite am Cup 5 und am GAMS-Cup gemessen, um eine Kontrolle über Transmissionsschwankungen bis zum GFM zu haben. Ziel ist höchste Transmission und somit Effizienz bei ausreichender Trennung. So kann auch die Messung einer Probe mit etwa 10^6 ^{63}Ni -Atomen zu einem statistisch signifikanten Ergebnis führen (siehe Abschnitt 4.2.7).

4.2.3 Bestimmung der Konzentration an ^{63}Ni

Analog zu Gleichung 4.2 wird auch das unbekannte Isotopenverhältnis C_{Probe} einer Probe gemessen. \bar{T} ist dabei der Mittelwert der nach Gleichung 4.2 bestimmten Transmission vor und nach der Messung.

$$C_{Probe} = \frac{e \cdot N}{\bar{T} \cdot \bar{I} \cdot t}. \quad (4.3)$$

Bei einer realen Messung wird der Strom ungefähr alle 20 Minuten gemessen, um Intensitätsänderungen berücksichtigen zu können. N wird in Gleichung 4.3 dann durch $\sum_{i=1}^n N_i$ ersetzt, $\bar{I} \cdot t$ durch $\sum_{i=1}^n \bar{I}_i \cdot t_i$; n bezeichnet dabei die Anzahl der Einzelmessungen.

$$C_{Probe} = \frac{e \cdot \sum_{i=1}^n N_i}{\bar{T} \cdot \sum_{i=1}^n \bar{I}_i \cdot t_i}. \quad (4.4)$$

Bei einer Probe mit niedriger Konzentration an ^{63}Ni und zudem hohem ^{63}Cu -Untergrund treffen auch ^{63}Cu -Ionen in den ^{63}Ni -Bereich (Cut). Deshalb werden Nullproben (Blanks), die kein ^{63}Ni enthalten, verwendet, um mittels der gesamten Anzahl der Ereignisse im Detektor die Ereignisse im Cut zu normieren. Dabei zeigt sich ein Unterdrückungsfaktor in der Größenordnung von 10^{-6} . Das heißt, dass von 1 Million ^{63}Cu -Ereignissen in der Ionisationskammer ungefähr ein ^{63}Cu -Ion durch die für ^{63}Ni -Ionen ausgewählten Fenster gelangt und nicht von ^{63}Ni unterschieden werden kann. Von der Anzahl der ^{63}Ni -Ereignisse im Fenster müssen also die auf die totale Anzahl der Ereignisse im Detektor normierten vermeintlichen ^{63}Ni -Ereignisse abgezogen werden. Eine genaue Aufstellung der verschiedenen Unterdrückungsfaktoren für die einzelnen Experimentierzeiten befindet sich im Anhang in Tabelle D.8. Mit dem Hinausschieben des ^{63}Cu -Ionenstrahls aus dem Detektor und der damit verbundenen Reduzierung der Intensität von mehr als drei Größenordnungen ergibt sich eine totale Isobarenunterdrückung des Nachweissystems von mehr als neun Größenordnungen. Mit der Isobarenunterdrückung durch die Abtrennung von Kupfer bei der chemischen Aufbereitung der Probe ergibt sich insgesamt eine Isobarenunterdrückung von 18 Größenordnungen.

4.2.4 Fehlerbetrachtung

In die einzelnen Messergebnisse gehen verschiedene Unsicherheiten ein.

Standards	(3.5–5)%	
Messung des Stromes	10%	
Statistischer Fehler	$1/\sqrt{N}$	für $N \geq 21$
	nach [134]	für $N < 21$

Tabelle 4.1: *Messunsicherheiten bei der Datenauswertung.*

Die Standards wurden aus einer Standardlösung durch Verdünnung am LLNL hergestellt. Bei älteren Standards betrug die Genauigkeit 5%, bei den Standards, die seit November 1997 hergestellt werden, 3.5%. Der Fehler bei der Strommessung rührt u.a. daher, dass der Ionenstrahlstrom zeitlich nicht stabil ist und die lineare Interpolation zwischen Anfangs- und Endstrom unter Umständen die tatsächlichen Schwankungen nicht optimal beschreibt. Der dominierende Fehler ist jedoch meist statistischer Natur. Für mehr als 20 Ereignisse N wird das Gauss'sches Fehlerintervall $\pm\sqrt{N}$ verwendet. Bei weniger Ereignissen im Detektor wird analog zu G.J. Feldmann und R.D. Cousins [134] vorgegangen. Darin wird der Wertebereich der Unsicherheit für den Fall angegeben, dass ein evtl. Untergrund genau bekannt ist. Da der Untergrundwert in den AMS-Messungen nicht immer genau bekannt ist, wird auch die Untergrundprobe wie eine Messprobe behandelt. Der Maximalwert und der Minimalwert werden als Untergrund abgezogen und so ein Fehlerbereich für das Messergebnis gewonnen. Die einzelnen Fehler werden dann mittels Fehlerfortpflanzung quadratisch addiert.

Messungen von ^{63}Ni -Konzentrationen, die an verschiedenen Labors durchgeführt wurden (siehe Abschnitt 4.3), zeigen eine gute Übereinstimmung der Ergebnisse bei hohen Konzentrationen; dies zeigt, dass der systematische Fehler der AMS-Messung gering ist. Kupferproben eines Probenortes wurden in jeweils neuen Probenhaltern in verschiedenen Experimentierzeiten mit leicht geänderten Parametern vermessen, wodurch sich der systematische Fehler zudem verringert.

4.2.5 Messungen von Blanks

Entscheidend bei einer Messung ist der Vergleich mit Blanks, d.h. Nickelproben, die das Radioisotop ^{63}Ni nicht enthalten, aber ^{63}Cu -Untergrund im Detektor zeigen. In dieser Arbeit wurden verschiedene Blanks vermessen.

- „*alfa Blanks*“: Ultrareines Nickelpulver⁷ wurde in einen Probenhalter aus reinem Graphit gepresst. Diese Proben waren meist in Bezug auf das Cu/Ni-Verhältnis sehr sauber ($\ll 10^{-5}$). Deshalb eignen sie sich, den Untergrund ($^{63}\text{Ni}/\text{Ni}$) der Nachweismethode zu bestimmen, siehe Blank in Abb. 4.9.

⁷Alfa - stock# 10674 -120 mesh, 99.996%

- „AA Blanks“: Diese Blanks wurden am LLNL auf die gleiche Weise wie Messproben aus einer Nickellösung⁸ hergestellt und zeigten während der Messung auch das gleiche Stromverhalten. Im Allgemeinen sind diese Proben sehr sauber in Bezug auf das Cu/Ni-Verhältnis ($\leq 10^{-5}$), deshalb wurden sie vorzugsweise zur Bestimmung des Untergrundes verwendet.

Echte Messproben zeigten jedoch gelegentlich ein hohes Cu/Ni-Verhältnis. Dies zeigt, dass der Untergrund einerseits von der Probe, andererseits auch von der Ionenquelle kommen kann.

- „Chemie-Blanks“ und „Elektrolyse-Blanks“: Diese Proben stellen zu den eigentlichen Proben vergleichbare Blanks dar. Sogenannte *Chemie-Blanks* enthalten alle in der Chemie beteiligten Reagenzien; sog. *Elektrolyse-Blanks* werden aus Kupfer gewonnen und dann via Nickelträgerzugabe hergestellt. Diese Proben standen nicht während jeder Experimentierzeit zur Verfügung.

Abbildung 4.9 zeigt Detektorspektren eines Blanks und eines Standards. Mit Fenstern und dem Cut auf die Detektorsignale wird der Untergrund im Blank stark reduziert, im Spektrum des Standards ($^{63}\text{Ni}/\text{Ni} = (9.33 \pm 0.33) \cdot 10^{-11}$) verliert man nur relativ wenige Ereignisse. Das dargestellte Blank zeigt einen Wert für den instrumentellen Untergrund der Messapparatur von $2 \cdot 10^{-14} \text{ }^{63}\text{Ni}/\text{Ni}$. Für die einzelnen Experimentierzeiten war der Untergrund durch das störende Isobar ^{63}Cu nicht konstant. In Tabelle D.8 sind daher die entsprechenden Werte der Untergrundkorrektur separat aufgelistet. Festzuhalten bleibt, dass die Nachweisgrenze durch eine große Isobarenunterdrückung im GFM verbessert wird. Es war jedoch nicht immer möglich, die Messbedingungen so zu wählen, dass gleichzeitig bei einer großen Transmission und hoher Effizienz auch die Nachweisgrenze niedrig war.

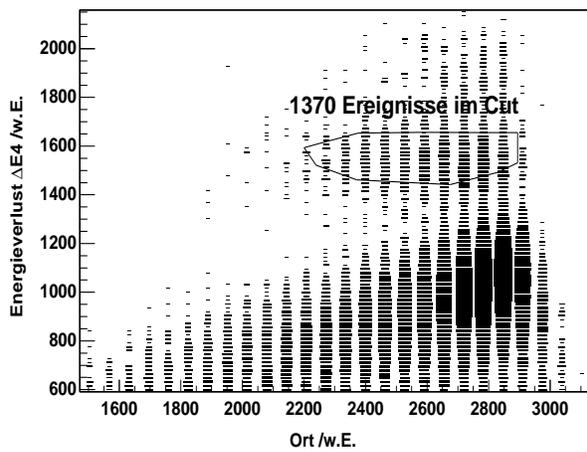
4.2.6 Messungen der Blindproben

Experimentierzeit	Probe	Messwert [$^{63}\text{Ni}/\text{Ni}$]	Sollwert [$^{63}\text{Ni}/\text{Ni}$]
Juli 1999	H643	$(3.4 \pm 0.5) \cdot 10^{-13}$	$3.67 \cdot 10^{-13}$
Dezember 1999	H644	$(4.0 \pm 1.6) \cdot 10^{-13}$	$3.67 \cdot 10^{-13}$
April 2000	H645	$(1.8_{-0.6}^{+0.8}) \cdot 10^{-13}$	$3.67 \cdot 10^{-13}$
März 2001	H827	$(5.9_{-2.6}^{+7.6}) \cdot 10^{-13}$	$3.67 \cdot 10^{-13}$
Juli 2001	H846	$(3.1 \pm 0.6) \cdot 10^{-13}$	$3.67 \cdot 10^{-13}$

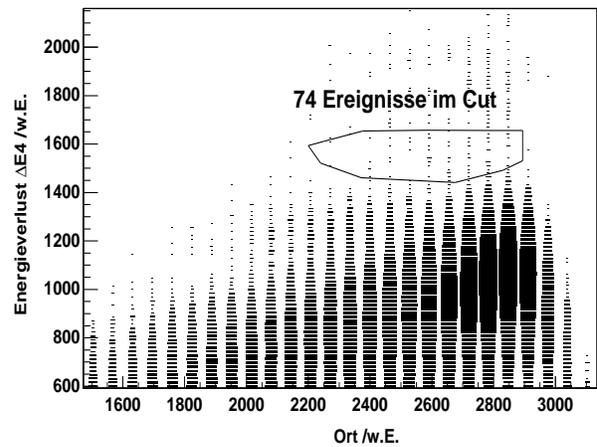
Tabelle 4.2: *Ergebnisse von Blindproben bei verschiedenen Messzeiten; Probenmasse jeweils 1 mg Nickel. Fehler des Sollwertes ca. 10%; weitere Einzelheiten zu den Messbedingungen während der jeweiligen Experimentierzeit siehe Anhang D.*

Blindproben wurden wie die Standards aus einer Standardlösung hergestellt, wiesen jedoch ein deutlich niedrigeres $^{63}\text{Ni}/\text{Ni}$ -Verhältnis von $3.67 \cdot 10^{-13}$ auf. Wie in Tabelle 4.2 ersichtlich,

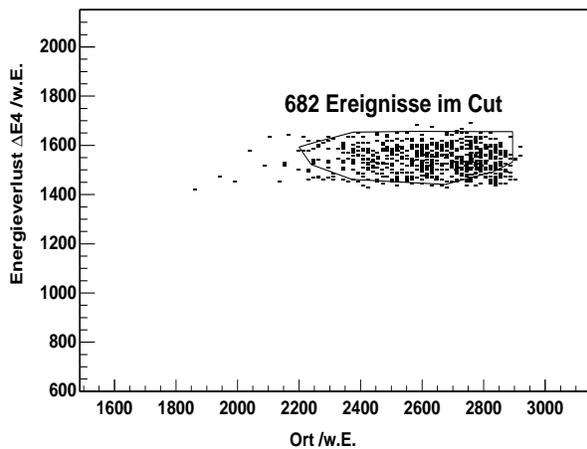
⁸VWR Scientific, USA.



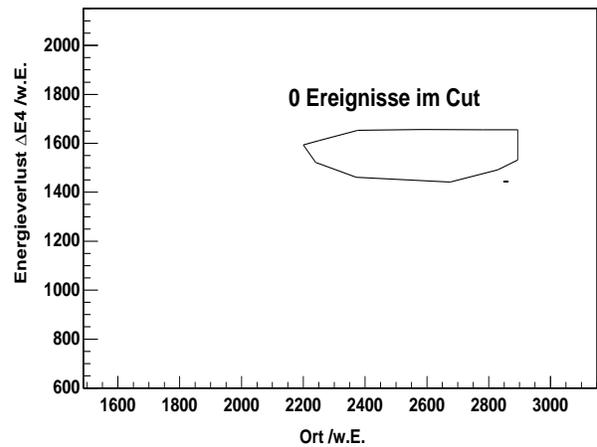
(a) Standard: $^{63}\text{Ni}/\text{Ni}$: $(9.33 \pm 0.33) \cdot 10^{-11}$,
Cup 1: $\bar{I}_{58\text{Ni}} = 190 \text{ nA}$; Messzeit t : 431 s.



(b) Blank: Cu/Ni -Verhältnis = $4 \cdot 10^{-5}$; Cup 1:
 $\bar{I}_{58\text{Ni}} = 315 \text{ nA}$; Messzeit t : 1866 s.



(c) vgl. 4.9(a) aber mit optimierten Fenstern auf
die anderen Detektorsignale.



(d) vgl. 4.9(b) aber mit optimierten Fenstern auf
die anderen Detektorsignale.

Abbildung 4.9: Spektren für Standard und Blank: Es ist jeweils das Energieverlustsignal ΔE_4 gegen den Signal Ort (in willkürlichen Einheiten) aufgetragen. Cut: der für ^{63}Ni ausgewählte Bereich. Man erkennt die effiziente Unterdrückung des Untergrundes. Ein Ereignis im Cut entspräche einem Wert von $2 \cdot 10^{-14}$ $^{63}\text{Ni}/\text{Ni}$.

konnten die Blindproben gut vermessen werden. In diesem niederen Konzentrationsbereich musste meist auf Untergrund durch ^{63}Cu korrigiert werden. Dadurch zeigen die Ergebnisse die Verlässlichkeit der Untergrundkorrektur bei hoher ^{63}Cu -Zählrate und beweisen die Reproduzierbarkeit der Messungen bei niedrigen Konzentrationen und geringen Probenmengen von etwa 1 mg Nickel.

Messung von künstlich bestrahlten Proben

Zur Überprüfung der Messmethode diene auch ein künstlich bestrahlter Kupferdraht. Dieser wurde mit Spaltneutronen einer ^{252}Cf -Quelle am *National Institute of Standards and Technology* (NIST), USA [135] bestrahlt. Die mit Hilfe von ENDF/B-VI bzw. JENDL-3 berechnete $^{63}\text{Ni}/\text{Ni}$ -Konzentration lag bei $0.87 \cdot 10^{-11}$ bzw. $1.09 \cdot 10^{-11}$, je nach verwendetem Wirkungsquerschnitt (Diskussion des Wirkungsquerschnitts siehe Abschnitt 2.2). Das Messergebnis dieser Arbeit lag bei $(1.0 \pm 0.1) \cdot 10^{-11}$ $^{63}\text{Ni}/\text{Ni}$ und liegt somit innerhalb der berechneten Werte.

4.2.7 Effizienz einer Messung

Um bei kleinsten Nickelprobenmengen im Bereich von einigen 100 μg die $^{63}\text{Ni}/\text{Ni}$ -Konzentration bestimmen zu können, ist eine hohe Effizienz des Systems wichtig. Anhand der Probe H 640, einer Probe aus Hiroshima aus einem Abstand von 1014 m (r_{gr}), wurde die totale Effizienz abgeschätzt. Dazu wurde angenommen, dass in dieser Entfernung die Aktivierung an ^{63}Ni in Kupfer der Vorhersage nach DS86 entspricht, wie es der Mittelwert aus allen Messungen dieser Entfernung auch ergibt (siehe Tabelle 5.4). Von den erwarteten $8 \cdot 10^6$ Kernen ^{63}Ni (DS86) wurden im Detektor 139 als ^{63}Ni -Ereignisse identifiziert. Etwa 10^5 ^{63}Ni -Atome in einer Kupferprobe ergeben damit etwa ein Ereignis im Detektor. Diese 10^5 ^{63}Ni -Atome entsprechen einer Aktivität von $2 \cdot 10^{-5}$ Bq. Somit liegt die gesamte Effizienz der verwendeten Methode inklusive chemischer Aufbereitung, Erzeugung negativer Ionen und dem Nachweis im Detektor bei etwa 10^{-5} .

4.3 Vergleich mit anderen Labors

Beschleunigermassenspektrometrie am LLNL

Auch am *Lawrence Livermore National Laboratory* (LLNL) wurden am dortigen *Center of Accelerator Mass Spectrometry* (CAMS) ^{63}Ni -Proben gemessen. Der dortige Aufbau an einem FN-Tandem (Maximale Terminalspannung 10 MeV) hat jedoch eine Nachweisgrenze, die um mehr als eine Größenordnung höher ist als in dieser Arbeit. Bei geringem Kupferuntergrund, einem Cu/Ni-Verhältnis von 10^{-7} im Ionenstrahl, liegt die Nachweisgrenze am LLNL bei etwa $5 \cdot 10^{-13}$ $^{63}\text{Ni}/\text{Ni}$ [61] (vgl. vorliegende Arbeit bei $2 \cdot 10^{-14}$ $^{63}\text{Ni}/\text{Ni}$, siehe Abschnitt 4.2.5). Dies liegt zum einen an der niedrigeren Energie der Ionen und zum

anderen am Nachweissystem. Anfangs beruhte dieses auf dem Nachweis der charakteristischen Röntgenstrahlung der Projektile des Ionenstrahls [112]. Inzwischen wird ^{63}Ni auch am CAMS mit einer Ionisationskammer nachgewiesen [136]. Ein GFM zur Isobarentrennung wird am CAMS jedoch nicht verwendet.

Im Rahmen eines Vergleiches wurde identisches Probenmaterial am Beschleunigerlabor in Garching und am CAMS gemessen. Die erzielten $^{63}\text{Ni}/\text{Ni}$ -Verhältnisse stimmten innerhalb der Messfehler untereinander überein: $(2.5 \pm 0.4) \cdot 10^{-11}$ (diese Arbeit) und $(2.4 \pm 0.2) \cdot 10^{-11}$ (CAMS).

Messung der β -Aktivität von ^{63}Ni

Bei genügend großer Konzentration und Menge ist es auch möglich, die Anzahl der ^{63}Ni -Kerne über deren Zerfall ($T_{1/2} = (101.4 \pm 1.4) \text{ a}$ [54]) zu bestimmen. Dies ist eine unabhängige Methode und kann bei hohen Konzentrationen als Vergleich zur Methode der AMS herangezogen werden. Im Gegensatz zu AMS hat die Aktivitätsmessung nicht Kupfer bzw. ^{63}Cu als Untergrundquelle, sondern β^- -Emitter diversen Ursprungs. Eine besondere messtechnische Schwierigkeit stellt der niedrige Endpunkt der β^- -Energie von 67 keV sowie der Zerfall ohne die Emission von γ -Quanten dar. Die mittlere Energie der β^- -Teilchen beträgt nur etwa 17 keV. Empfindliche Messungen werden durch den Untergrund anderer β^- -Emitter – besonders Tritium – beeinträchtigt. Erste Versuche mit einem Szintillatortzähler ^{63}Ni in Kupferproben aus Hiroshima nachzuweisen, zeigten bis jetzt noch keine signifikanten Werte über dem Untergrund [137], obwohl Y. Ito et al. [67] davon ausgehen, dass das Verhältnis $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$ bis zu einem Abstand von möglicherweise 1 000 m in Kupferproben aus Hiroshima bestimmt werden kann. Ein Nachteil dieser Methode ist der große Bedarf an Probenmaterial bei den erwarteten niedrigen Konzentrationen. Deswegen eignen sich nur wenige Kupferproben aus Hiroshima für die Bestimmung der ^{63}Ni -Konzentration mittels Szintillatortzählern.

In künstlich bestrahlten Kupferproben wurde die ^{63}Ni -Konzentration am CAMS mit AMS und über die β^- -Aktivität von der japanischen Gruppe um T. Shibata (siehe z.B. [67]) gemessen. Die Werte von $(49 \pm 17) \cdot 10^6$ $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$ (AMS) und $43 \cdot 10^6$ $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$ (Zerfallsmessung) stimmen im Rahmen der bekannten Unsicherheit der AMS-Messung sehr gut überein [120].

Kapitel 5

Messergebnisse

Aufgrund der Atombombenexplosionen über Hiroshima und Nagasaki wurden in einem weiten Umkreis fast alle Gebäude völlig zerstört. Manche Gebäude aus Stahlbeton überstanden die Folgen der Atombombenabwürfe jedoch als Ruinen. Eine systematische Aufstellung dieser Gebäude in Hiroshima wurde vom Friedensmuseum in Hiroshima erarbeitet [138]. Eine ähnliche Zusammenstellung existiert für Nagasaki [139].

Wegen der beinahe vollständigen Zerstörung beider Städte ist es heute, mehr als ein halbes Jahrhundert nach den Explosionen, schwierig, geeignete Proben zu finden, die den schnellen Neutronen der Atombomben ausgesetzt waren. Die Eignung einer Probe hängt wesentlich von der Anzahl der produzierten ^{63}Ni -Atome (siehe Kapitel 2), von der Masse an Kupfer (siehe Effizienz, Abschnitt 4.2.7) sowie vom Nickelgehalt der Probe (Untergrund durch die Reaktion $^{62}\text{Ni}(n, \gamma)^{63}\text{Ni}$) ab. Im Rahmen dieser Arbeit konnten neben einer Probe zur Bestimmung des durch kosmische Strahlung erzeugten Untergrundes bereits Proben von acht verschiedenen Positionen aus Hiroshima vermessen werden. Im Folgenden werden die einzelnen Proben beschrieben und alle Ergebnisse der $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$ -Konzentrationen von Kupferproben aus Hiroshima vollständig aufgeführt. Eine Diskussion dieser Ergebnisse erfolgt in Kapitel 6.

5.1 Proben aus Hiroshima

In Abbildung 5.1 ist die Lage der Probenorte in Hiroshima veranschaulicht. Im Folgenden werden die Gebäude beschrieben an denen die Proben angebracht waren. Soweit nicht anders vermerkt, sind Daten zu den Gebäuden, wie z.B. Baujahr, Jahr des Abbruchs, etc. [138] entnommen.

Weitere Details zu den Messungen wie Parameter und Kommentare zu den einzelnen Experimentierzeiten, die Anzahl an registrierten ^{63}Ni -Ereignissen, die Masse des aufbereiteten Kupfers und dessen Nickelgehalt sind dem Anhang D zu entnehmen. In den folgenden Tabellen bezeichnet in der Spalte des AMS Labors „LLNL“ Messungen an der dortigen Anlage

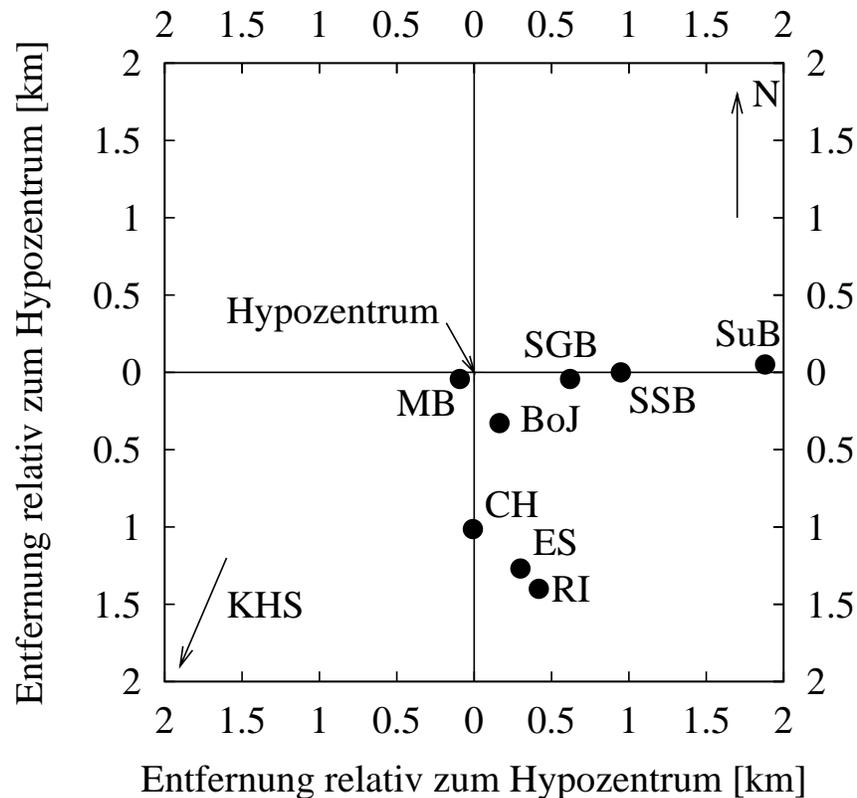


Abbildung 5.1: Lage aller gemessenen Kupferproben aus Hiroshima. Die Kürzel der Probenamen sind in Tabelle 5.1 erklärt.

Kürzel	Probenort	r_{gr} [m]	Höhe [m]	Probenart
BoJ	Bank von Japan	380	18	Blitzableiter
SSB	Soja-Soßen-Brauerei	948	15	Blitzableiter
CH	Rathaus	1 014	18	Blitzableiter
ES	Grundschule	1 304	13	Regenrinne
RI	Radioisotopengebäude	1 461	6	Regenrinne
SuB	Sumitomo Bank	1 880	10	Regenrinne
KHS	Kusatsu-Hachiman Schrein	5 062	-	Dach
<i>MB</i>	<i>Motuyasu Brücke</i>	<i>132</i>	-	<i>Kabel</i>
<i>SGB</i>	<i>Sanin Godo Bank</i>	<i>621</i>	<i>11</i>	<i>Blitzableiter</i>

Tabelle 5.1: Tabelle zu den Probenorten. Die Kürzel der Gebäude bezeichnen fortan die Kupferproben. Neben dem Abstand zum Hypozentrum (r_{gr}) ist auch die Höhe der Proben über dem Boden angegeben. Die Höhe der Probe vom Kusatsu-Hachiman Schrein hat aus geometrischen Gründen keine Relevanz mehr. Für die Proben aus der Motuyasu Brücke sowie der Sanin Godo Bank ist die Abschirmung unbekannt; sie werden deshalb getrennt aufgeführt und sind für die Interpretation der Messergebnisse (siehe Kapitel 6) nicht geeignet.

CAMS (siehe Abschnitt 4.3), „TUM“ (Technische Universität München) Messungen dieser Arbeit am Beschleunigerlabor Garching. Alle Messergebnisse sind für den Zeitpunkt der Messung angegeben und wurden nicht halbwegszeitkorrigiert. Die DS86-Rechnungen beziehen sich auf den 6. August 1945 (ATB, *at time of bombing*) und wurden auf den Zeitpunkt der Messung halbwegszeitkorrigiert.

5.1.1 Bank von Japan, Filiale Hiroshima

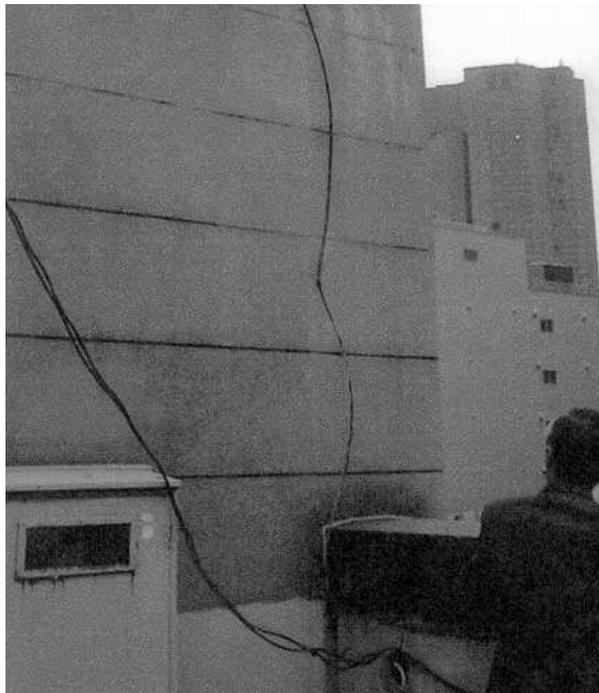


Abbildung 5.2: Auf dem Dach der Bank von Japan, Filiale Hiroshima [140]. Die Kupferdrähte waren ohne Abschirmung direkt zum Epizentrum gerichtet.

Bank von Japan, Filiale Hiroshima, 380 m (r_{gr})	Probenhalter Bezeichnung	AMS Labor	Datum der Messung	Messwert [$^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$]
	H769	TUM	August 2000	$(4.5 \pm 0.5) \cdot 10^6$
	H823	TUM	März 2001	$(5.5^{+1.4}_{-1.9}) \cdot 10^6$
	H843	TUM	Juli 2001	$(3.5 \pm 0.5) \cdot 10^6$
Fehlergewichteter Mittelwert				$(4.0 \pm 0.4) \cdot 10^6$
davon Aktivierung nach DS86 durch thermische Neutronen an ^{62}Ni				$1.7 \cdot 10^6$

Tabelle 5.2: Bank von Japan, Filiale Hiroshima: einzelne Messwerte und fehlergewichteter Mittelwert. Da das Kupfer etwa 200 ppm Nickel enthält, ist die Aktivierung über die Reaktion $^{62}\text{Ni}(n,\gamma)$ nach DS86 zusätzlich angegeben.

Auf dem Dach der Bank von Japan, Filiale Hiroshima, etwa 380 m südöstlich vom Hypozentrum, sind noch immer mehrere Blitzableiter zu sehen. Das Gebäude wurde 1936 erbaut, das Dach im Jahr 1965 renoviert. Nach Aussage eines Verantwortlichen der Bank waren diese Blitzableiter, die auf alten Photographien zu erkennen sind, auch schon im Jahr 1945 am Gebäude angebracht. Das Messergebnis bestätigt, dass dieser Blitzableiter von Neutronen der Atombombe bestrahlt worden war und nicht ersetzt wurde. Im März 2000 wurde eine Probe von einem Blitzableiter, der direkt auf das Hypozentrum gerichtet war, entnommen (siehe Abbildung 5.2). Der Blitzableiter besteht an der Gebäudewand aus mehreren Kupferdrähten, von denen einer entfernt und chemisch aufbereitet wurde. Die DS86-Rechnung der Produktion von ^{63}Ni aus Kupfer ergibt je nach verwendetem Wirkungsquerschnitt eine Konzentration zwischen $(7.2\text{--}9.3)\cdot 10^6$ $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$ (ATB) bei dieser Entfernung zum Hypozentrum [141], entsprechend $(4.9\text{--}6.4)\cdot 10^6$ $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$ (zur Messzeit). Die Höhe über dem Boden sowie die Abschirmung für das vermessene Kupferstück wird mit einem Korrekturfaktor 0.94 berücksichtigt. Aufgrund der hohen Nickelverunreinigung des Kupfers von etwa 200 ppm haben auch thermische Neutronen zur Aktivierung beigetragen. Nach DS86-Rechnung ergeben sich (zur Messzeit) zusätzlich $1.7\cdot 10^6$ $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$, die von der Reaktion $^{62}\text{Ni}(n,\gamma)^{63}\text{Ni}$ stammen.

5.1.2 Soja-Soßen-Brauerei

Soja-Soßen Brauerei, 948 m (r_{gr})	Probenhalter Bezeichnung	AMS Labor	Datum der Messung	Messwert [$^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$]
	H672+H673	TUM	April 2000	$(3.5_{-2.4}^{+2.7})\cdot 10^5$
	H770	TUM	Juli 2001	$(4.9_{-1.6}^{+1.7})\cdot 10^5$
Fehlergewichteter Mittelwert				$(4.5_{-1.3}^{+1.4})\cdot 10^5$
davon Aktivierung nach DS86 durch thermische Neutronen an ^{62}Ni				$4.0\cdot 10^4$

Tabelle 5.3: *Soja-Soßen-Brauerei: Ergebnisse einzelner Messungen. Die Probenhalter H672 und H673 sind Aliquots, die in einer Experimentierzeit gemessen wurden, sie wurden deshalb hier zusammengefasst.*

Relativ dünne Gebäudestrukturen wie Kamine konnten der Druckwelle der Explosion standhalten. Im Friedensmuseum von Hiroshima ist ein Teil des Kamines einer Soja-Soßen-Brauerei¹ aus 948 m Abstand, ausgestellt. Der Kamin wurde 1933 gebaut, 1969 abgerissen und teilweise dem Museum übergeben. Das analysierte Kupfer ist Teil eines Geflechtes aus sieben Drähten, das im oberen Teil einer Eisenhülse ($\varnothing=3$ cm, ca. 3 mm dick) in etwa 15 m Höhe am Kamin als Blitzableiter befestigt war [142]. Leider haben die Drähte einen hohen Gehalt an stabilem Nickel von (258 ± 5) ppm. Dies erschwert die Messung des ^{63}Ni -Gehaltes mittels Beschleunigermassenspektrometrie, da das Verhältnis $^{63}\text{Ni}/\text{Ni}$ dadurch relativ klein ist. Dies erklärt auch die – im Vergleich zu den anderen ^{63}Ni -Messungen dieser Arbeit – größeren Messfehler. DS86-Rechnungen ergeben eine Produktion an Kupfer

¹Ein spezieller Name für diese Soja-Soßen-Brauerei ist auch Kubota Honten.

von $4.4 \cdot 10^5$ $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$ (ATB) [143] bzw. $3.0 \cdot 10^5$ $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$ (zur Messzeit) in dieser Entfernung vom Hypozentrum. Die Korrektur auf die Höhe der Kupferprobe ergibt einen Faktor 1.1, die Abschirmung ist vergleichbar mit der Probe vom Blitzableiter des Rathauses (siehe Abs. 5.1.3) und wurde so ebenfalls zu einem Faktor 0.93 angenommen. In der Tabelle 5.3 ist neben dem Messergebnis noch die nach DS86 abgeschätzte Produktion von ^{63}Ni durch thermische Neutronen über die Reaktion $^{62}\text{Ni}(n,\gamma)^{63}\text{Ni}$ angegeben. Da das Neutronenspektrum mit zunehmendem Abstand härter wird (siehe Abb. A.1), liegt der Beitrag zur Aktivierung in dieser Entfernung trotz des hohen Nickelgehaltes nur noch bei etwa 14%.

5.1.3 Rathaus

Rathaus, 1 014 m (r_{gr})	Probenhalter Bezeichnung	AMS Labor	Datum der Messung	Messwert [$^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$]
	H461	LLNL	Mai 1998	$(7.3 \pm 4.4) \cdot 10^5$
	H462	LLNL	Mai 1998	$(6.2 \pm 2.3) \cdot 10^5$
	H563	LLNL	September 1998	$(2.7 \pm 0.4) \cdot 10^5$
Fehlergewichteter Mittelwert, LLNL				$(2.9 \pm 0.4) \cdot 10^5$
	H582	TUM	September 1998	$(1.9 \pm 0.6) \cdot 10^5$
	H583	TUM	September 1998	$(2.4 \pm 0.7) \cdot 10^5$
	H640	TUM	Juli 1999	$(3.7 \pm 0.8) \cdot 10^5$
Fehlergewichteter Mittelwert, TUM				$(2.4 \pm 0.4) \cdot 10^5$
Fehlergewichteter Mittelwert, LLNL & TUM				$(2.65 \pm 0.27) \cdot 10^5$

Tabelle 5.4: *Rathaus, Hiroshima: Einzelmessungen und fehlergewichteter Mittelwert. H563 und H582 sind Aliquots. Die Rohdaten der AMS-Messungen wurden mittels der individuellen Nickelanalysen der Kupferstücke ausgewertet (siehe Tabelle D.10). Ergebnisse vom LLNL [144].*

Das Gebäude des Rathauses der Stadt Hiroshima wurde 1928 erbaut. Im Jahr 1985 wurde es abgerissen, wobei der Blitzableiter des Gebäudes aufbewahrt wurde. Die äußere Eisenhülle des Blitzableiters hatte einen Außendurchmesser von 5 cm und eine Dicke von 0.4 cm. Im Inneren befanden sich zehn verdrehte Kupferdrähte mit einem Gesamtdurchmesser von etwa 1 cm [145]. Aufgrund der Höhe des Gebäudes ergibt sich für den Blitzableiter eine Höhe von 18 m über dem Boden. DS86-Rechnungen ergeben je nach verwendetem Wirkungsquerschnitt Werte zwischen $(3.2-3.8) \cdot 10^5$ $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$ (ATB) [143], d.h. $(2.1-2.6) \cdot 10^5$ $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$ im Jahr 1999 bei dem Abstand der Probe von 1 014 m (r_{gr}). Als Korrekturfaktor für diese Kupferprobe ergibt sich nach der Modellierung von S.D. Egbert der Wert von 1.04 gegenüber der Produktion FIA 1 m über dem Boden [143]. Die gemessene ^{63}Ni -Konzentration dieser Arbeit beträgt $(2.4 \pm 0.4) \cdot 10^5$ $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$. Tabelle 5.4 enthält auch die Ergebnisse der am LLNL durchgeführten Messungen [144] und den fehlergewichteten Mittelwert aller Messungen von $(2.65 \pm 0.27) \cdot 10^5$ $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$. Ein spezielles Problem bei diesen Proben ist die Unsicherheit in

der Bestimmung der Konzentration an stabilem Nickel (siehe Anhang Tabelle D.10). In dieser Arbeit wurde für jede Einzelprobe der entsprechende Messwert für die Nickelkonzentration verwendet. Diese Vorgehensweise erscheint wegen der unterschiedlichen Drahtstücke der Probe auch gerechtfertigt. Verwendet man dagegen den fehlergewichteten Mittelwert aller Nickelbestimmungen von (4.8 ± 0.7) ppm zur Berechnung des $^{63}\text{Ni}/\text{Cu}$ -Verhältnisses der Einzelproben, dann ergibt sich ein fehlergewichteter Mittelwert von $(2.53 \pm 0.29) \cdot 10^5$ $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$. Somit geht die große Unsicherheit und Streuung der Werte in der Nickel-Bestimmung kaum in das Endergebnis des Verhältnisses ein.

5.1.4 Grundschule der Universität von Hiroshima

Grundschule, 1 304 m (r_{gr})	Probenhalter Bezeichnung	AMS Labor	Datum der Messung	Messwert [$^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$]
	H593	TUM	September 1998	$(1.48 \pm 0.31) \cdot 10^5$
	H638	TUM	Juli 1999	$(1.11 \pm 0.30) \cdot 10^5$
	H639	TUM	Juli 1999	$(1.02 \pm 0.18) \cdot 10^5$
Fehlergewichteter Mittelwert				$(1.13 \pm 0.14) \cdot 10^5$

Tabelle 5.5: *Grundschule der Universität von Hiroshima: Ergebnisse der Messungen. Die Rohdaten der AMS-Messungen wurden mittels der individuellen Nickelanalysen der Kupferstücke ausgewertet, siehe Tab. D.11.*

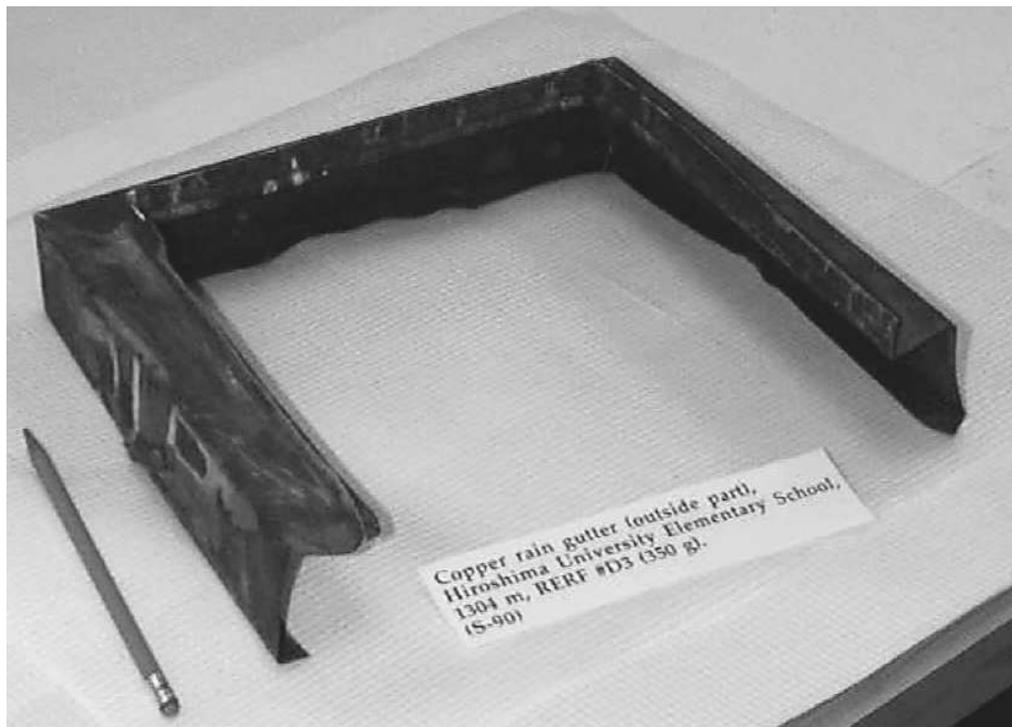
Die Grundschule der Universität von Hiroshima wurde 1938 erbaut, 1996 wurde das Gebäude abgerissen. Die Probe ist einem – für ein Flachdach typischen – oberen Behälter (Rinnenkessel) über einem Regenwasserfallrohr entnommen (siehe Abbildung 5.3(a)). In Abbildung 5.3(b) ist der tatsächlich für die Probenaufbereitung verwendete obere Teil des Rinnenkessels zu sehen. Die Höhe der Probe war 13 m, der Abstand vom Hypozentrum betrug 1 304 m. DS86-Rechnungen von S.D. Egbert ergeben je nach verwendetem Wirkungsquerschnitt (ATB) Werte von $(5.8\text{--}7.3) \cdot 10^4$ $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$ [143], entsprechend $(4.0\text{--}5.0) \cdot 10^4$ $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$ im Jahr 1999. Als Korrekturfaktor ergibt sich für diese Probe ein Wert von 0.86. Die Ergebnisse der einzelnen Messungen sind konsistent und ergeben im fehlergewichteten Mittelwert $(1.13 \pm 0.14) \cdot 10^5$ $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$ (siehe Tabelle 5.5). Die Daten der Nickelbestimmung streuen allerdings (siehe Tabelle D.11). Eine Auswertung mit dem fehlergewichteten Mittelwert der Nickelbestimmung von (15.5 ± 0.4) ppm Nickel ergibt jedoch keinen Unterschied im Ergebnis ($^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$: $(1.13 \pm 0.13) \cdot 10^5$).

5.1.5 Radioisotopengebäude der Universität von Hiroshima

Das Radioisotopengebäude der Universität von Hiroshima wurde 1934 erbaut, inzwischen wurde es abgerissen [140]. Abbildung 5.4 zeigt den vermessenen Regenwasserspeicher der Dachrinne aus einem Abstand von 1 461 m vom Hypozentrum. Rechnungen von S.D. Egbert er-



(a) Nach der Probennahme der Dachrinne im Jahr 1997 [140].



(b) Oberer Teil des Rinnenkessels, siehe Abbildung 5.3(a) [146]. Aus diesem Stück wurden die gemessenen Nickelproben aufbereitet.

Abbildung 5.3: Dachrinne, die an der Grundschule der Universität in Hiroshima in einer Entfernung von 1304 m (r_{gr}) angebracht war.



Abbildung 5.4: Regenwasserspeier des Radioisotopengebäudes der Universität Hiroshima [146], der Abstand der Probe betrug 1461 m (r_{gr}).

Radioisotopen- Gebäude, 1 461 m (r_{gr})	Probenhalter Bezeichnung	AMS Labor	Datum der Messung	Messwert [$^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$]
	H637	TUM	Dezember 1999	$(6.9 \pm 3.1) \cdot 10^4$
	H671	TUM	April 2000	$(1.5_{-0.3}^{+0.4}) \cdot 10^5$
	H767	TUM	August 2000	$(1.04 \pm 0.26) \cdot 10^5$
Fehlgewichteter Mittelwert				$(1.03 \pm 0.18) \cdot 10^5$

Tabelle 5.6: Radioisotopengebäude der Universität von Hiroshima: Ergebnisse der Messungen. Die Rohdaten der AMS-Messung wurden mittels der individuellen Nickelanalysen der Kupferstücke ausgewertet, Tab. D.12.

geben je nach Wirkungsquerschnitt ein $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$ -Verhältnis von $(2.5\text{--}3.2)\cdot 10^4$ (ATB) [143], entsprechend $(1.7\text{--}2.2)\cdot 10^4$ im Jahr 2000. Die Korrektur auf die Höhe der Probe am Gebäude ergibt einen Faktor 1.04, die Abschirmung ist vergleichbar mit der Probe vom Rinnenkessel der Grundschule (siehe Abs. 5.1.4) und wurde so ebenfalls zu einem Faktor 0.79 angenommen. Die Messungen ergeben einen fehlergewichteten Mittelwert von $(1.03\pm 0.18)\cdot 10^5$ $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$. Dieser Wert ändert sich auch bei einer Auswertung mit dem Mittelwert der Nickelverunreinigung von (9.8 ± 1.1) ppm nicht ($^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$: $(1.03\pm 0.18)\cdot 10^5$).

5.1.6 Sumitomo Bank Hiroshima

Sumitomo Bank, 1 880 m (r_{gr})	Probenhalter Bezeichnung	AMS Labor	Datum der Messung	Messwert [$^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$]
	H819	TUM	März 2001	$< 2.1\cdot 10^4$
	H837	TUM	Juli 2001	$(9.3_{-2.7}^{+3.4})\cdot 10^4$
Mittelwert				$(7.3_{-2.1}^{+2.6})\cdot 10^4$

Tabelle 5.7: *Sumitomo Bank: Ergebnisse der Messungen. Für die Berechnung des Mittelwertes wurden beide Messzeiten als eine Messung zusammengefasst.*

Das Gebäude der Higashi-Matsubara Filiale der Sumitomo Bank wurde im Jahr 1921 erbaut, die Entfernung vom Hypozentrum beträgt 1 880 m in östlicher Richtung. Die Probe stammt von der Seitenwand des Gebäudes, die zum Epizentrum gerichtet ist. Auf einem Bild vom November 1945 ist im Vordergrund ein einstöckiges Holzhaus zu sehen. Dies lässt darauf schließen, dass es im Umkreis der Bank nicht gebrannt hat [147]. Das Kupferstück war direkt an der Wand angebracht und war der Beginn des Regenwasserablaufes. Daraus ergibt sich ein Korrekturfaktor von 1.1 gegenüber der Neutronenfluenz 1 m über dem Boden FIA. DS86-Rechnungen ergeben ein Verhältnis von $(1.6\text{--}2.0)\cdot 10^3$ $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$. Die erste Messung ergab eine Obergrenze von $2.1\cdot 10^4$ $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$, eine weitere Messung jedoch ein deutliches Signal über dem Untergrund. Fasst man beide Messwerte als eine Messung auf, ergibt sich ein Mittelwert von $(7.1_{-2.1}^{+2.6})\cdot 10^4$ $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$. Zur Diskussion dieses Ergebnisses siehe auch Kapitel 6.

5.1.7 Kusatsu-Hachiman Schrein

Als erste Messung einer weit entfernten Probe aus Hiroshima, die als Untergrundprobe dienen soll, stand ein Stück Kupferblech vom Kusatsu-Hachiman Schrein zur Verfügung. Die Anlage des Kusatsu-Hachiman Schreins wurde 1931 aufgebaut. Bei einer Entfernung von mehr als 5 km vom Explosionsort ist die Aktivierung durch Neutronen der Atombombe vernachlässigbar klein. Da das Kupfer relativ viel Nickel (ca. 125 ppm) enthält, ist die zu messende $^{63}\text{Ni}/\text{Ni}$ -Konzentration klein und der Unsicherheitsbereich der Messungen relativ groß.

Kusatsu-Hachiman Schrein, 5 062 m (r_{gr})	Probenhalter Bezeichnung	AMS Labor	Datum der Messung	Messwert [$^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$]
	H821	TUM	März 2001	$<3.7 \cdot 10^5$
	H838	TUM	Juli 2001	$(6_{-5}^{+7}) \cdot 10^4$
Mittelwert				$(7_{-4}^{+7}) \cdot 10^4$

Tabelle 5.8: *Kusatsu-Hachiman Schrein, Hiroshima: Messergebnisse.*

Zwei Messungen ergeben einen Mittelwert von $(7_{-4}^{+7}) \cdot 10^4$ $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$. Dieser wurde über die Mittelung der Messwerte von $(1.14_{-1.14}^{+2.54}) \cdot 10^5$ $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$ und $(6_{-5}^{+7}) \cdot 10^4$ $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$ gewonnen.

5.1.8 Motuyasu Brücke und Sanin Godo Bank

Motuyasu Brücke, 132 m (r_{gr})	Probenhalter Bezeichnung	AMS Labor	Datum der Messung	Messwert [$^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$]
	H554	LLNL	September 1998	$(1.19 \pm 0.17) \cdot 10^6$
	H555	LLNL	September 1998	$(1.09 \pm 0.12) \cdot 10^6$
	H556	LLNL	September 1998	$(1.24 \pm 0.38) \cdot 10^6$
Fehlergewichteter Mittelwert				$(1.13 \pm 0.10) \cdot 10^6$

Tabelle 5.9: *Motuyasu Brücke: Ergebnisse der Messungen am LLNL [145] und fehlergewichteter Mittelwert. Die Abschirmung dieser Probe ist nicht bekannt.*

Die Motuyasu Brücke liegt etwa 130 m südwestlich vom Hypozentrum. In einem Laterensockel aus Granit wurde ein Kupferkabel entdeckt, das der Stromversorgung diente. Die genaue Position der gemessenen Probe innerhalb des Granitsockels konnte jedoch nicht mehr zweifelsfrei rekonstruiert werden. Wegen der daraus folgenden unklaren Abschirmung ist das Ergebnis dieser Messungen nur sehr schwer zu interpretieren. Die Messungen am LLNL ergeben fehlergewichtet einen Wert für das $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$ -Verhältnis von $(1.13 \pm 0.10) \cdot 10^6$ [145]. Die DS86-Rechnungen liefern je nach tatsächlicher Tiefe der Probe im Sockel und verwendetem Wirkungsquerschnitt $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$ -Werte im Bereich von $(0.22-13.1) \cdot 10^6$ [145]. Wegen dieser großen Unsicherheit wurden diese nur am LLNL gemessenen Daten für die weitere Interpretation nicht verwendet.

Eine weitere Kupferprobe war ein Stück eines Blitzableiters am Gebäude der Sanin Godo Bank (Abriss des Gebäudes im Jahr 1983), etwa 620 m östlich des Hypozentrums. Die Hülse eines dortigen Blitzableiters wurde von K. Shizuma auf ihre ^{60}Co -Aktivität untersucht. Die gemessene Konzentration liegt bei (0.258 ± 0.019) Bq/mg Co (ATB), die DS86-Rechnung ergibt jedoch 0.95 Bq/mg Co (ATB) [148]. Dies lässt sich als Hinweis darauf interpretieren, dass die Probe zumindest teilweise abgeschirmt war. Auch die Messung des $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$ -Verhältnisses in einer Probe des Blitzableiters zeigte verglichen mit DS86-Rechnung einen zu

Sanin Godo Bank, 621 m (r_{gr})	Probenhalter Bezeichnung	AMS Labor	Datum der Messung	Messwert [$^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$]
	H768	TUM	August 2000	$(5.4_{-1.5}^{+1.9}) \cdot 10^4$

Tabelle 5.10: *Sanin Godo Bank: Messergebnis. Es ist jedoch nicht klar, ob und wie die Probe exponiert gewesen war.*

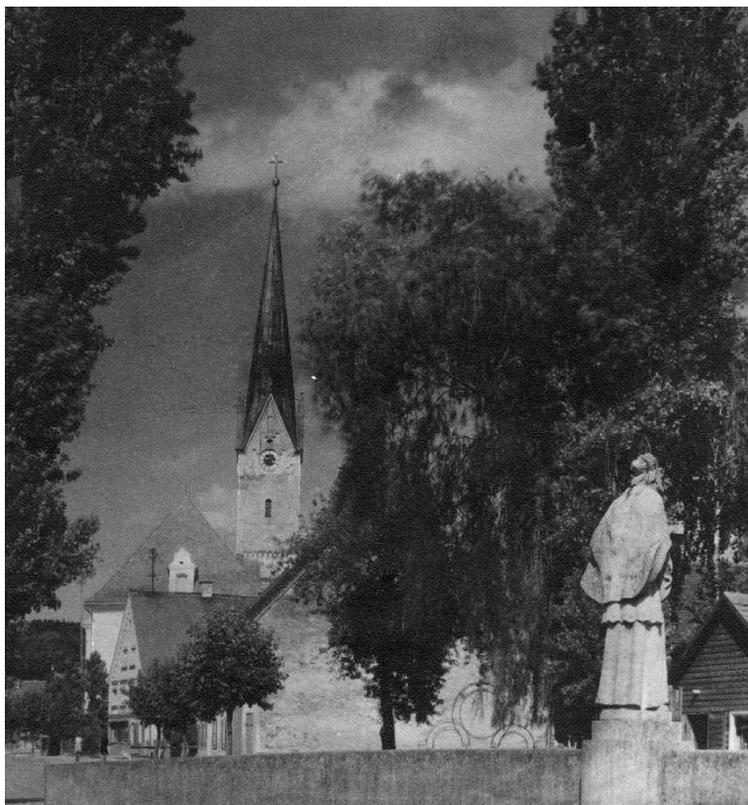


Abbildung 5.5: *Ansicht des Kirchturmes von Thannhausen mit dem Kupferdach vor dem Jahr 1952 [149]. Das Gebäude hinter den Bäumen ist das Haus mit den Werkstätten, in denen die Probe von 1952–1995 lagerte.*

geringen Wert (Messung: $(5.4_{-1.5}^{+1.9}) \cdot 10^4$ $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$; Rechnung nach DS86: $1.7 \cdot 10^6$ $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$). Deshalb wird davon ausgegangen, dass die Probe abgeschirmt gewesen war, oder nicht in dieser Entfernung bestrahlt worden war. Darum wird auch der Wert dieser Messung in der weiteren Analyse der Daten nicht weiter verwendet.

5.2 Thannhausener Kirchturm

Zur Abschätzung des natürlichen Untergrundes, siehe Kapitel 3, wurde nach einer geeigneten Probe gesucht. Als eine relativ einfach zugängliche Probe wurde ein Kupferblech errichtet,

Thannhausener Kirchturmdach	Probenhalter Bezeichnung	AMS Labor	Datum der Messung	Messwert [$^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$]
	H674	TUM	April 2000	$< 1.4 \cdot 10^5$
	H771	TUM	August 2000	$(1.5_{-0.6}^{+0.7}) \cdot 10^5$
	H772	TUM	August 2000	$(1.2 \pm 0.4) \cdot 10^5$
Mittelwert				$(1.1_{-0.4}^{+0.6}) \cdot 10^5$

Tabelle 5.11: *Thannhausener Kirchturm: Ergebnis der Messungen.*

das 1873 auf dem Thannhausener Kirchturm angebracht worden war. Die Kirche in Thannhausen liegt 499 m über Meeresniveau, der Kirchturm ist insgesamt 61 m hoch, wobei das Dach bei etwa 40 m beginnt [149]. Deshalb wurde für die Höhe der vermessenen Kupferprobe ein Mittelwert von 550 m angenommen. Nach einer kompletten Renovierung des Kirchturmes im September 1952 wurde ein Teil des Kupferbleches in einer Schmiede aufbewahrt [150]. Das Kupferblech (Wandstärke etwa 1 mm) lagerte nun 50 m tiefer und hinter einer Hauswand an verschiedenen Stellen. In Abbildung 5.5 ist im Hintergrund der Kirchturm mit dem Kupferdach zu sehen, sowie im Vordergrund hinter den Bäumen das Gebäude, in dem sich die Schmiedewerkstätten befanden. Von 1952–1963 befand sich das Kupferblech in der alten Huf- und Wagenschmiede und war dort möglicherweise von viel Eisen umgeben. Für diesen Zeitraum kann ein erhöhter Anteil schneller Neutronen im Spektrum der sekundären Neutronen der kosmischen Strahlung (siehe Abb. 3.4) nicht ausgeschlossen werden. Denn über der Oberfläche eines Materials mit hoher Kernladungszahl wie Eisen ist der Fluss schneller Neutronen bis zu einer Größenordnung erhöht [151]. Im Zeitraum 1963–1995 lagerte das Kupferblech in einem geräumigen Anbau (mit Betondecke), der neuen Schmiedewerkstatt. Dort befand sich in der Umgebung nur wenig Eisen, wie auch von 1995–2000, wo es in einer Garage (mit Betondecke) lagerte. Im Februar 2000 wurde ein Stück zur Probenaufbereitung nach Livermore geschickt, im Januar 2001 ein weiteres.

Aufgrund der Bestrahlungsgeschichte ist davon auszugehen, dass die ^{63}Ni -Konzentration in der Probe etwa 50% ihres Sättigungswertes erreicht haben sollte. Die weitere Diskussion des Messergebnisses (siehe Tabelle 5.11) erfolgt in Kapitel 6.

5.3 Zusammenfassung der Messergebnisse

In Tabelle 5.12 sind die Ergebnisse der Messungen an Kupferproben aus Hiroshima zusammengefasst, die zur retrospektiven Bestimmung der Fluenz schneller Neutronen in Hiroshima dienen. Die Rechnungen nach DS86 wurden mit dem Wirkungsquerschnitt des Datenfiles ENDF/B-VI durchgeführt (siehe Kapitel 2). Die Unsicherheit in den Berechnungen nach DS86 durch die Verwendung eines anderen Datenfiles (ADL-3T und JENDL-3.2) für die Reaktion $^{63}\text{Cu}(n,p)^{63}\text{Ni}$ beträgt ca. 25%. Aufgrund der Position des Kupfers für die jeweiligen Proben bei der Bestrahlung (ATB) ergeben sich Korrekturen für die jeweilige Probe. Die

Kürzel	Proben in Kapitel	r_{gr} [m]	r_{sl} [m]	$^{63}\text{Ni/g Cu}$	$\text{DS86 (2000): } ^{63}\text{Ni/g Cu}$			Korrektur	
				diese Arbeit	therm.	schnell	Summe	Höhe	in situ
BoJ	5.1.1	380	679	$(4.0 \pm 0.4) \cdot 10^6$	$1.7 \cdot 10^6$	$5.2 \cdot 10^6$	$6.9 \cdot 10^6$	1.15	0.81
SSB	5.1.2	948	1 104	$(4.5^{+1.4}_{-1.3}) \cdot 10^5$	$4.0 \cdot 10^4$	$2.8 \cdot 10^5$	$3.4 \cdot 10^5$	1.10	<i>0.93</i>
CH	5.1.3	1 014	1 159	$(2.65 \pm 0.27) \cdot 10^5$	$4.4 \cdot 10^2$	$2.0 \cdot 10^5$	$2.0 \cdot 10^5$	1.11	0.93
ES	5.1.4	1 304	1 422	$(1.13 \pm 0.14) \cdot 10^5$	$1.5 \cdot 10^2$	$3.9 \cdot 10^4$	$3.9 \cdot 10^4$	1.09	0.79
RI	5.1.5	1 461	1 570	$(1.03 \pm 0.18) \cdot 10^5$	$3 \cdot 10^1$	$1.6 \cdot 10^4$	$1.6 \cdot 10^4$	1.04	<i>0.79</i>
SuB	5.1.6	1 880	1 967	$(7.3^{+2.6}_{-2.1}) \cdot 10^4$	2	$1.6 \cdot 10^3$	$1.6 \cdot 10^3$	1.06	1.04
KHS	5.1.7	5 062	5 095	$(7^{+7}_{-4}) \cdot 10^4$	-	-	-	-	-

Tabelle 5.12: *Messergebnisse von Proben aus Hiroshima zum Zeitpunkt der Messung und ohne Berücksichtigung einer Abschirmung. Außerdem eigene Rechnungen nach DS86 mit dem Datenfile des Wirkungsquerschnitts aus ENDF/B-VI (siehe Kapitel 2), halbwertszeitkorrigiert auf das Jahr 2000. Die Unsicherheit in den Berechnungen nach DS86 durch die Verwendung eines anderen Datenfiles für die Reaktion $^{63}\text{Cu}(n,p)^{63}\text{Ni}$ beträgt ca. 25%. Die angegebenen Korrekturfaktoren für die schnelle Neutronenfluenz berücksichtigen einerseits die Höhe der Proben über dem Erdboden, andererseits die Abschirmung der Proben (in situ), wie der Selbstabschirmung [141, 143]. Bei den Proben von der Soja-Soßen Brauerei und dem Radioisotopengebäude stehen für die Korrekturfaktoren keine DS86-Rechnungen zur Verfügung, deshalb sind Werte für eine ähnliche Probengeometrie kursiv gedruckt eingetragen.*

Kupferproben wurden in DS86 modelliert und Korrekturfaktoren einerseits für die Höhe der Proben über dem Erdboden, andererseits für die Abschirmung der Proben (in situ), wie die Selbstabschirmung berechnet [141, 143]. Bei den Proben von der Soja-Soßen Brauerei und dem Radioisotopengebäude stehen für die Korrekturfaktoren keine DS86-Rechnungen zur Verfügung, deshalb sind Werte für eine ähnliche Probengeometrie eingetragen und in Tabelle 5.12 kursiv gedruckt. Eine Diskussion der Ergebnisse erfolgt in Kapitel 6.

Kapitel 6

Diskussion

Die in Kapitel 5 gezeigten Ergebnisse der Messungen von $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$ -Konzentrationen ermöglichen es erstmals, die im Rahmen von DS86 berechneten Fluenzen schneller Neutronen insbesondere bei großen Abständen in Hiroshima ($r_{gr} \geq 750 \text{ m}$) zu überprüfen. Außerdem ist nach über 50 Jahren erstmals ein Vergleich mit den ^{32}P -Daten möglich (siehe Abschnitt 1.4.2).

6.1 ^{63}Ni -Ergebnisse als Funktion des Abstandes

In Abbildung 6.1 sind die aufgrund der Messung des $^{63}\text{Ni}/\text{Ni}$ -Verhältnisses erhaltenen Ergebnisse für die $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$ -Konzentration als Funktion des Abstandes vom Epizentrum aufgetragen. Zum Vergleich ist die in Kapitel 2 abgeschätzte Produktion von ^{63}Ni in Kupfer nach DS86 (1 m über dem Boden FIA aufgrund der Reaktion $^{63}\text{Cu}(n,p)^{63}\text{Ni}$) als Linie eingezeichnet. Die Werte der $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$ -Konzentration nehmen mit zunehmendem Abstand vom Epizentrum ab. Dies ist ein klares Indiz für eine durch die Atombombe erzeugte Aktivität. Damit stellen die Messungen von in Kupferproben erzeugtem ^{63}Ni erstmals nach über 50 Jahren einen Nachweis von schnellen Neutronen der Atombombenexplosion über Hiroshima dar. Allerdings weisen die Ergebnisse der entfernten Proben auf einen Untergrund in der $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$ -Konzentration hin.

6.1.1 Bewertung der ^{63}Ni -Messungen

Die Messung der Kupferprobe von der Bank von Japan (r_{gr} : 380 m) deutet auf eine Überschätzung der Neutronenfluenz nach DS86 bei nahen Abständen hin. Es ist außerdem anzunehmen, dass der gemäß DS86 abgeschätzte Anteil an thermischer Aktivierung zu hoch ist. Denn auch die Messungen an thermischen Aktivierungsprodukten zeigen eine Überschätzung der Aktivierung aufgrund der DS86-Rechnungen (siehe Abbildung 1.6).

Bei einem Abstand von etwa 1 000 m (r_{gr}) stimmen die Ergebnisse der $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$ -Konzentrationen im Wesentlichen mit der DS86-Rechnung überein. Dies schließt Fehler in der Be-

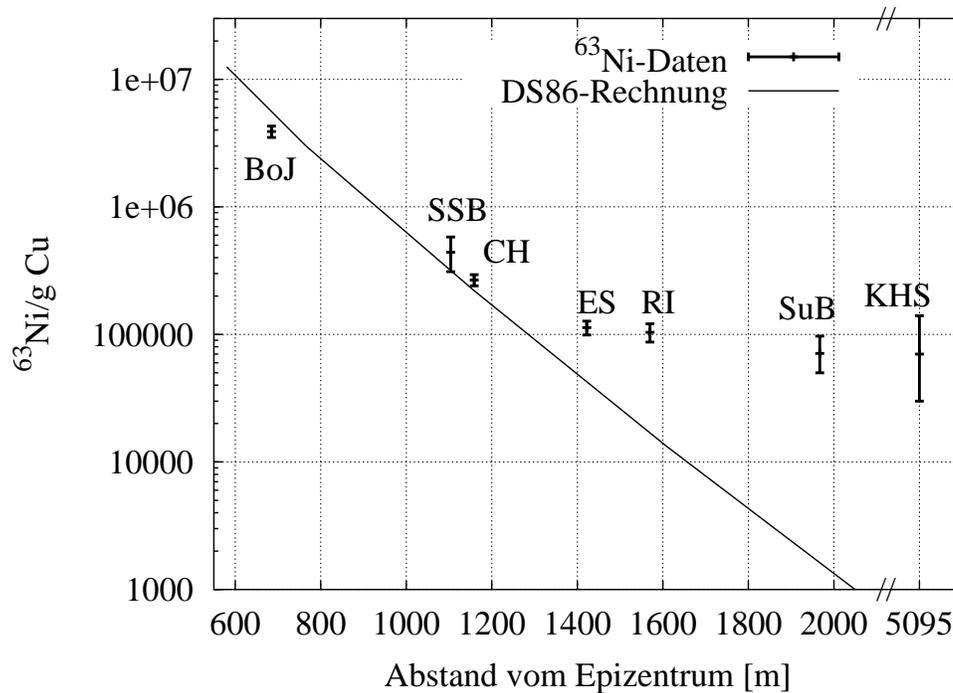


Abbildung 6.1: Daten der ^{63}Ni -Messungen in Hiroshima. Die DS86-Rechnung (für das Jahr 2000) zeigt die Abschätzung der Produktion FIA (free in air) 1 m über dem Erdboden durch schnelle Neutronen über die (n,p) -Reaktion, siehe Kapitel 2. Die Kürzel der Probenamen sind in Tabelle 5.1 erklärt.

rechnung der Neutronendosis, die aufgrund der gemessenen Aktivierung durch thermische Neutronen bei diesen Abständen vermutet worden waren, siehe Abbildung 1.6, bereits aus.

Die weiter entfernten Kupferproben zeigen jedoch deutlich höhere $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$ -Konzentrationen, als es nach den DS86-Rechnungen zu erwarten wäre. Das gemessene Verhältnis für die Probe vom Radioisotopengebäude (r_{gr} : 1 461 m) liegt nur knapp unterhalb des Verhältnisses für die Probe von der Grundschule (r_{gr} : 1 304 m), und das Verhältnis für die Probe von der Sumitomo Bank (r_{gr} : 1 880 m) liegt zudem im selben Bereich (siehe auch Tabelle 5.12). Auch für die Probe des Kusatsu-Hachiman Schreins (r_{gr} : 5 062 m) ergibt sich ein hohes $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$ -Verhältnis. Somit muss der Einfluss eines möglichen Untergrundes im $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$ -Verhältnis (siehe Abschnitt 6.2) untersucht und diskutiert werden.

6.2 Beiträge des Untergrundes

6.2.1 Untergrund durch kosmische Strahlung

Für alle gemessenen Kupferproben kann auf Grund des Alters der Bauwerke, von denen die Proben stammen, davon ausgegangen werden, dass die durch kosmische Strahlung induzierte

^{63}Ni -Aktivität nicht mehr als 50% ihres Sättigungswertes erreicht hat.

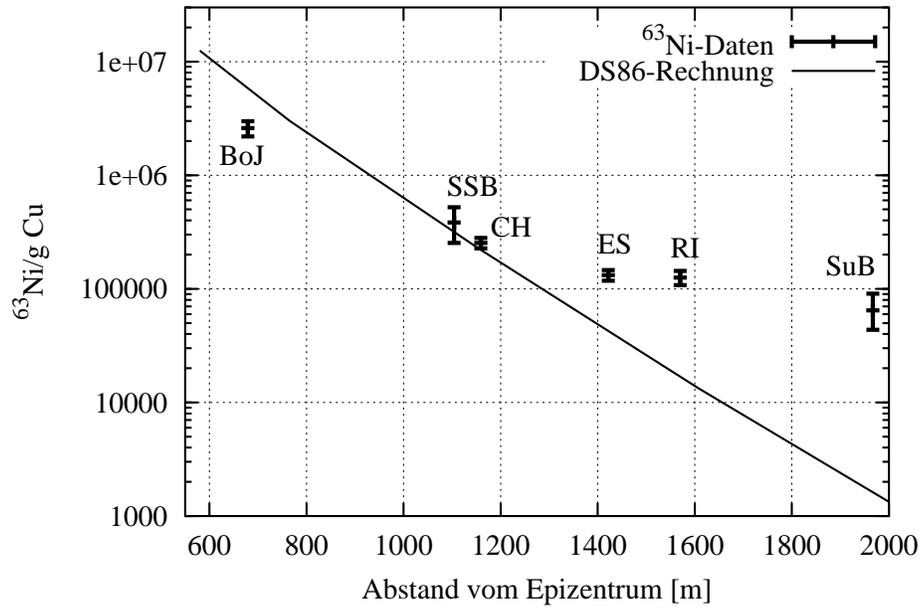
Abschätzungen des Untergrundes durch kosmische Strahlung Die in Kapitel 3 abgeschätzte $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$ -Konzentration in einem Kupferstück aus Hiroshima liegt nach Erreichen des Sättigungswertes bei etwa $1 \cdot 10^4$ $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$. Dieser aufgrund kosmogener Produktion abgeschätzte Untergrund ist jedoch so niedrig, dass dies keinen Einfluss auf die bisherigen Ergebnisse hat. Jedoch kann auch eine 7fach höhere Produktion momentan nicht ausgeschlossen werden (siehe Abschnitt 3.4). Bei einer Bestrahlungsdauer von 100 Jahren entspräche dies einem Verhältnis von etwa $4 \cdot 10^4$ $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$, was einen Teil des gemessenen Untergrundes erklären könnte. Jedoch stellen alle Überlegungen in Kapitel 3 nur Abschätzungen dar, die experimentell überprüft werden müssen. Die Vorarbeiten dazu sind bereits eingeleitet, siehe Kapitel 7.

Messung des Thannhausener Kirchtumdaches Die Untergrundprobe des Thannhausener Kirchtumdaches zeigte ein $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$ -Verhältnis von $(1.1_{-0.4}^{+0.6}) \cdot 10^5$ (siehe Abschnitt 5.2). Da dieses Verhältnis nicht mit den in Kapitel 3 behandelten Produktionswegen durch Wechselwirkung mit kosmischer Strahlung erklärt werden kann, muss von einem weiteren noch unbekanntem Beitrag zum Untergrund ausgegangen werden. Wenn man trotzdem annimmt, dass die in der Probe aus Thannhausen gemessene $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$ -Konzentration durch kosmische Strahlung produziert worden wäre, ergäbe sich für Kupferproben aus Hiroshima nach Tabelle 3.5 ein Verhältnis von etwa $8 \cdot 10^4$ $^{63}\text{Ni}/\text{Cu}$. Dieses wäre mit den aus den entfernten Proben aus Hiroshima erhaltenen $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$ -Verhältnissen kompatibel.

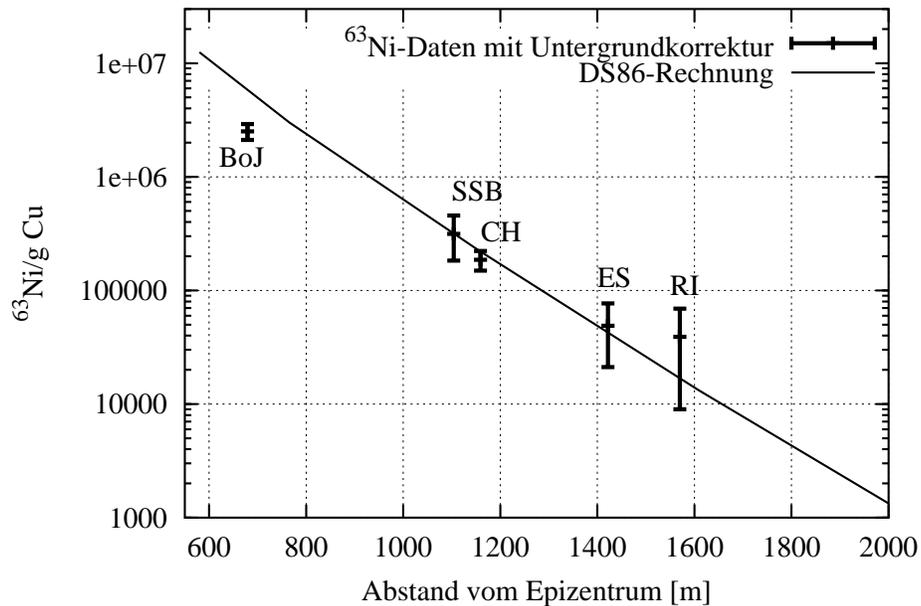
Messungen in Hiroshima Abbildung 6.2(a) zeigt nochmals die experimentell bestimmten $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$ -Konzentrationen als Funktion des Abstandes vom Epizentrum (r_{st}). Im Gegensatz zu Abbildung 6.1 wurden die gemessenen Konzentrationen auf die Abschirmungen der Kupferproben, auf die Höhe über dem Boden, sowie auf die thermische Aktivierung nach DS86-Rechnungen korrigiert (siehe Werte in Tabelle 5.12¹). Die DS86-Abschätzung des $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$ -Verhältnisses aufgrund der $^{63}\text{Cu}(n,p)^{63}\text{Ni}$ -Reaktion 1 m über dem Boden als Funktion des Abstandes vom Hypozentrum in Hiroshima (siehe Tabelle 2.1) ist als Linie eingetragen.

Weitere Proben aus großen Entfernungen in Hiroshima und auch Nagasaki wie auch von Orten mit erhöhter kosmischer Produktion von ^{63}Ni konnten im Rahmen dieser Arbeit noch nicht vermessen werden, stehen aber inzwischen zur Verfügung (siehe Kapitel 7). Sie stellen neben weiteren „Kupferblanks“ (siehe Absatz 6.2.2) den Schlüssel zum Verständnis der in dieser Arbeit noch offenen Untergrundfrage dar.

¹NB: Die Korrekturfaktoren in Tabelle 5.12 gelten für die nach DS86 berechneten Werte.



(a) Ergebnisse ohne Untergrundkorrektur.



(b) Ergebnisse der ^{63}Ni -Messungen mit der in Abschnitt 6.2.3 vorgeschlagenen Untergrundkorrektur von $(7.1 \pm 2.4) \cdot 10^4 \text{ }^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$.

Abbildung 6.2: Ergebnisse der Messungen des $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$ -Verhältnisses unter Berücksichtigung der Abschirmung der jeweiligen Probe und der Aktivierung aufgrund von thermischen Neutronen (nach DS86-Rechnung). Die DS86-Rechnung (für das Jahr 2000) zeigt die Abschätzung der Produktion FIA (free in air) 1 m über dem Erdboden durch schnelle Neutronen über die (n,p) -Reaktion, siehe Kapitel 2. Die Kürzel der Probenamen sind in Tabelle 5.1 erklärt.

Name der Probe	Gewicht Kupfer [g]	Träger Nickel [μg]	$^{63}\text{Ni}/\text{Ni}$ [at/at]	$^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$
H579	5.025	400	$(3_{-2}^{+5}) \cdot 10^{-14}$	$(2.4_{-1.5}^{+4.2}) \cdot 10^4$
H670	16.211	200	$< 2.0 \cdot 10^{-13}$	$< 2.5 \cdot 10^4$

Tabelle 6.1: *Ergebnisse der Kupferblanks. Der Anteil des stabilen Nickels im jeweiligen Kupfer ist vernachlässigbar.*

6.2.2 Untergrund bei der Messung des $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$ -Verhältnisses

Instrumenteller Untergrund Die jeweilige $^{63}\text{Ni}/\text{Ni}$ -Konzentration der einzelnen Messprobe liegt mehr als eine Größenordnung über dem instrumentellen Untergrund des Nachweissystems am Garchingener Beschleuniger. Blanks während der einzelnen Experimentierzeiten zeigten immer niedrige $^{63}\text{Ni}/\text{Ni}$ -Konzentrationen. Die Probe von der Sumitomo Bank (r_{gr} : 1 880 m), wie auch vom Thannhausener Kirchturmdach zeigten deutlich höhere $^{63}\text{Ni}/\text{Ni}$ -Konzentrationen als die Blanks während der jeweiligen Experimentierzeiten. Die gemessenen $^{63}\text{Ni}/\text{Ni}$ -Konzentrationen der Probe vom Kusatsu-Hachiman Schrein (r_{gr} : 5 062 m) lagen bedingt darüber (siehe Anhang D). Somit scheidet ein instrumenteller Untergrund bei der AMS-Messung zur Erklärung der hohen $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$ -Verhältnisse aus. Auch ein Untergrund durch eine Verunreinigung der Probe durch Nickel kann aufgrund des in Abschnitt 3.3.3 abgeschätzten $^{63}\text{Ni}/\text{Ni}$ -Verhältnisses in natürlichem Nickel ausgeschlossen werden.

Die jeweils drei Proben bei 1 304 m und bei 1 461 m wurden getrennt chemisch aufbereitet und in 2 bzw. 3 verschiedenen Experimentierzeiten konsistent vermessen, sodass es keinen Hinweis auf einen zusätzlichen systematischen Fehler bei den Messergebnissen gibt.

Kupferblank Aus der mit AMS gemessenen $^{63}\text{Ni}/\text{Ni}$ -Konzentration wird unter Berücksichtigung des stabilen Nickelgehaltes das $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$ -Verhältnis berechnet. Tabelle 6.1 zeigt die Ergebnisse zweier Kupferproben („*Elektrolyse-Blanks*“). Da den neu gekauften Kupferproben stabiles Nickel als Trägermaterial zugegeben wurde, existiert für das $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$ -Verhältnis von Kupferproben noch kein niedrigerer Wert als eine Obergrenze von $2.5 \cdot 10^4$ (Probe H670). Die ^{63}Ni -Konzentration sollte in diesem Kupfermaterial weit unterhalb des Sättigungswertes liegen; somit kommt Untergrund durch die Produktion von ^{63}Ni in diesem Kupfer durch kosmische Strahlung wohl nicht in Betracht. Eine Verunreinigung mit ^{63}Ni bei der Probenaufbereitung des Kupfermaterials zu der Nickelprobe kann jedoch mit diesen Ergebnissen nicht ausgeschlossen werden. In Zukunft ist die Aufbereitung einer großen Masse an reinem Kupfer geplant, um daraus ein niedriges $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$ -Verhältnis erhalten zu können.

6.2.3 Betrachtung mit Untergrundkorrektur

Betrachtet man die Ergebnisse der Messungen des $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$ -Verhältnisses der beiden entfernten Proben von der Sumitomo Bank (r_{gr} : 1 880 m) und des Kusatsu-Hachiman Schreins

(r_{gr} : 5 062 m) als generellen Untergrund, der für alle in Hiroshima gemessenen Proben repräsentativ ist, so kann man den fehlergewichteten Mittelwert dieser Messergebnisse von $(7.1 \pm 2.4) \cdot 10^4 {}^{63}\text{Ni/g Cu}$ von den anderen Ergebnissen abziehen (siehe Abbildung 6.2(b)).

Obiges Ergebnis liegt, wie bereits erwähnt, auch im Bereich des Ergebnisses, das sich aufgrund der Umrechnung der Probe vom Thannhausener Kirchendach auf Hiroshima ergibt ($8 \cdot 10^4 {}^{63}\text{Ni/g Cu}$). Es ist jedoch etwas höher als die Ergebnisse der Kupferblanks von etwa $2.5 \cdot 10^4 {}^{63}\text{Ni/g Cu}$. Da eine Verunreinigung in der Probenaufbereitung nicht ausgeschlossen werden kann, muss dies in Zukunft mit geeigneten Proben (Kupferblanks) noch weiter überprüft werden.

6.3 Interpretation der Messungen

6.3.1 Vergleich mit ${}^{32}\text{P}$ -Werten und DS86

Einzig die in Abschnitt 1.4.2 erwähnten Messungen von ${}^{32}\text{P}$, das über die Reaktion ${}^{32}\text{S}(n,p){}^{32}\text{P}$ entstanden war, stellten bis zu dieser Arbeit eine Messung der schnellen Neutronenfluenz dar. Die ${}^{32}\text{P}$ -Werte sind nur bis zu einem Abstand von etwa 750 m (r_{gr}) aussagekräftig, bei größeren Abständen sind die Unsicherheiten zu groß (siehe Abbildung 1.5). In Abbildung 6.3 ist für ${}^{32}\text{P}$ und ${}^{63}\text{Ni}$ jeweils das Verhältnis gemessener zu nach DS86 berechneter Aktivität aufgetragen. Für beide Isotope wurde im Rechenwert die für die jeweilige Probe charakteristische Abschirmsituation berücksichtigt. Man erkennt, dass die ${}^{63}\text{Ni}$ -Ergebnisse im Vergleich zu den ${}^{32}\text{P}$ -Daten insbesondere bei großen Abständen kleinere Messfehler aufweisen. Die ${}^{63}\text{Ni}$ -Ergebnisse deuten bei großen Abständen in Hiroshima auf eine Diskrepanz zwischen Messung und DS86-Rechnung hin (siehe Abbildung 6.3(a)). Korrigiert man die ${}^{63}\text{Ni}$ -Ergebnisse jedoch auf einen Untergrund im ${}^{63}\text{Ni/g Cu}$ -Verhältnis von $(7.1 \pm 2.4) \cdot 10^4 {}^{63}\text{Ni/g Cu}$, wie er in Proben aus großen Entfernungen vom Hypozentrum bereits bestimmt wurde (siehe Abschnitt 6.2), so lassen die ${}^{63}\text{Ni}$ -Ergebnisse keinen Hinweis auf eine Abweichung von den entsprechenden DS86-Rechnungen erkennen.

Allerdings ist der Ursprung des Untergrundes gegenwärtig noch nicht geklärt. Trotz dieser Unsicherheit in der Bewertung der Daten zeigen die Ergebnisse dieser Arbeit, dass DS86 die schnelle Neutronenfluenz in Hiroshima bei einem Abstand von 1 km vom Hypozentrum recht gut beschreibt. Für größere Abstände bleibt festzuhalten, dass eine noch mögliche Diskrepanz von einem Faktor 9 kleiner ist, als es die Messungen an Aktivierungsprodukten thermischer Neutronen mit einem Faktor von etwa 20 nahelegen (siehe Abbildung 1.6 im Vergleich mit Abbildung 6.3(a)). Bei kleinen Abständen spielt der diskutierte Untergrund keine Rolle und somit liefert die Messung des ${}^{63}\text{Ni/g Cu}$ -Verhältnisses der Kupferprobe von der Bank von Japan (r_{gr} : 380 m) dort einen deutlichen Hinweis auf eine Überschätzung der Neutronenfluenz nach DS86. Diese könnte durch eine größere Explosionshöhe erklärt werden, die die Neutronenfluenzen nahe des Hypozentrums verringern würde, die Neutronenfluenzen bei großen Abständen dagegen kaum betreffen würde.

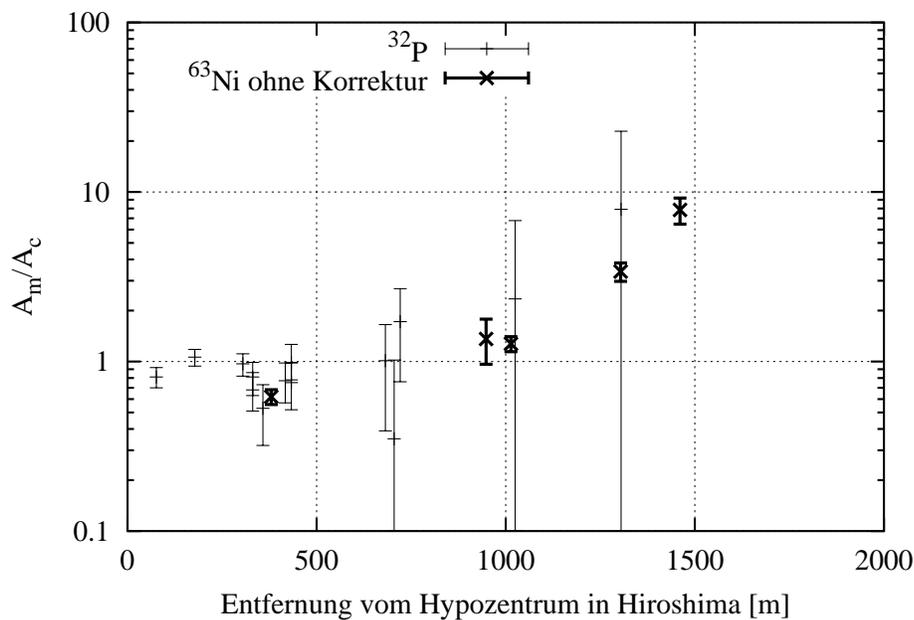
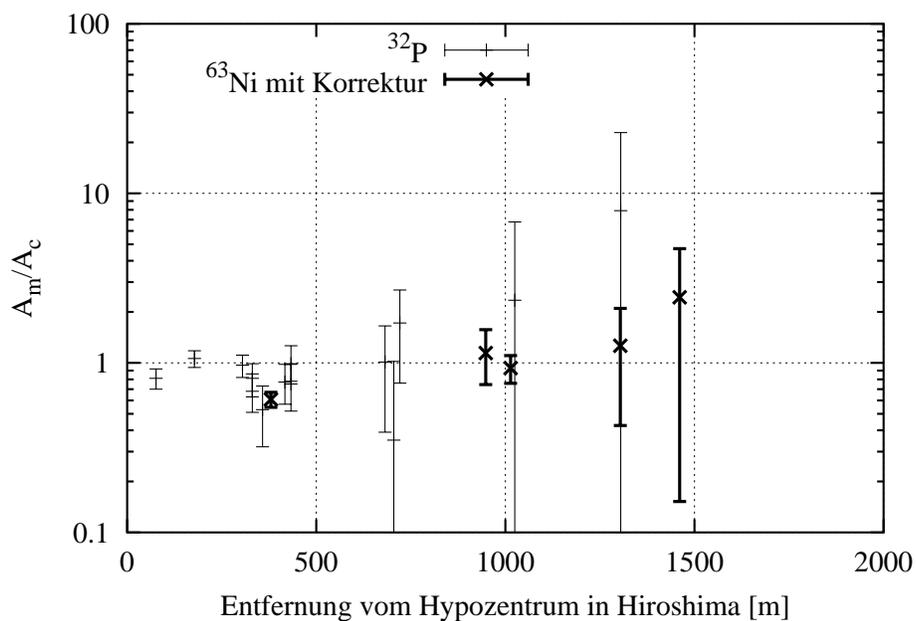
(a) $^{63}\text{Ni}/g\text{ Cu}$ -Ergebnisse ohne Untergrundkorrektur(b) $^{63}\text{Ni}/g\text{ Cu}$ -Ergebnisse mit der in Abschnitt 6.2.3 vorgeschlagenen Untergrundkorrektur von $(7.1 \pm 2.4) \cdot 10^4$ $^{63}\text{Ni}/g\text{ Cu}$.

Abbildung 6.3: Vergleich gemessener Werte (A_m , $^{63}\text{Ni}/g\text{ Cu}$ -Verhältnisse bzw. ^{32}P -Aktivität [3, 33, 34, 55]) mit nach DS86 erwarteten Werten (A_c). Abbildung 6.3(a) zeigt die Ergebnisse für ^{63}Ni ohne Untergrundkorrektur, Abbildung 6.3(b) mit Untergrundkorrektur.

6.3.2 Gegenwärtige Bemühungen zum Verständnis der Diskrepanz bei Aktivierungsprodukten thermischer Neutronen

Mögliche Gründe für die Neutronendiskrepanz thermischer Neutronen in Hiroshima

Gegenwärtig wird von verschiedenen Seiten daran gearbeitet, die bisherigen Ergebnisse der Messungen von Aktivierungsprodukten thermischer Neutronen zu überprüfen. Insbesondere die Behandlung des messtechnischen Untergrundes bei den Messungen der Aktivität von ^{60}Co und ^{152}Eu ist wichtig und wird gegenwärtig durch die erneute Messung bereits untersuchter Proben in untergrundarmen Labors überprüft. Auch der in der Probe (*in situ*) durch kosmische Strahlung erzeugte natürliche Untergrund eines Radioisotops muss insbesondere für Messergebnisse von $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Konzentrationen bei Proben aus großen Abständen genauer als in der Vergangenheit geschehen berücksichtigt werden. Darüber hinaus könnte ungünstige Probenauswahl – wie bei der Messung von $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Konzentrationen die Wahl von Oberflächenproben (Putz) von Gebäuden [47, 152] – manche experimentelle Messergebnisse in Frage stellen. Messungen der Aktivität von ^{36}Cl in Granit- und Betonproben werden momentan von verschiedenen Gruppen verstärkt durchgeführt [152–155]. Sie deuten darauf hin, dass die Diskrepanz thermischer Neutronen bei großen Entfernungen in der Vergangenheit deutlich überschätzt wurde.

Messungen in Nagasaki

Die Ergebnisse von Messungen von Fluenzsonden bei Explosionen auf dem Nevada-Testgelände, bei denen der Bombentyp der Atombombe von Nagasaki benutzt wurde, stimmen mit den Rechnungen nach DS86 überein [3]. Auch die Messung von ^{36}Cl , das durch thermische Neutronen in Nagasaki erzeugt worden war, deutet auf keine Diskrepanz von Messung zu DS86-Rechnung hin [156], was durch einige Messungen der ^{152}Eu -Aktivität bestätigt wird [157]. Andere Autoren postulieren dagegen, dass auch im Falle von Nagasaki eine Diskrepanz zwischen Messungen der Aktivität von ^{60}Co und ^{152}Eu einerseits und den entsprechenden DS86-Rechnungen andererseits existiert [158].

Alternativer Nachweis schneller Neutronen

Die vorliegende Arbeit hat bereits weitere Untersuchungen zur Bestimmung der schnellen Neutronenfluenz initiiert. So gibt es gegenwärtig Bemühungen, schnelle Neutronen nahe des Hypozentrums auch über die Reaktion $^{39}\text{K}(n,p)^{39}\text{Ar}$ experimentell nachzuweisen [4, 159].

Kapitel 7

Ausblick

Weitere Messungen

Kupferproben aus Hiroshima und Nagasaki

Mittlerweile wurden in Hiroshima und Nagasaki weitere Kupferproben gefunden (siehe Tabelle 7.1). Diese werden momentan auf ihre Eignung überprüft und sollen gegebenenfalls chemisch aufbereitet und in Garching mittels Beschleunigermassenspektrometrie vermessen werden.

Zum einen handelt es sich um Proben aus Abständen nahe des Hypozentrums, die es erlauben werden, die in dieser Arbeit bei einem Abstand von 380 m (r_{gr}) gefundene Diskrepanz zwischen Messergebnis und DS86-Rechnung weiter zu untersuchen. Sollte sich eine Diskrepanz bei kleinen Abständen bestätigen, würde dies möglicherweise zu einer neuen Festsetzung der Explosionshöhe der Atombombe von Hiroshima führen. Proben aus großen Abständen werden es andererseits erlauben, den in entfernten Proben gemessenen Untergrund besser zu verstehen und auch eventuelle individuelle Schwankungen der in den einzelnen Proben vorhandenen $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$ -Konzentration zu erkennen.

Die in Nagasaki identifizierten Proben sind wichtig, da sie eine die Studie in Hiroshima begleitende Untersuchung erlauben würden. An dieser Stelle sei darauf verwiesen, dass die an Proben aus Nagasaki durchgeführten Messungen von $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Konzentrationen zu Ergebnissen führen, die bei großen Abständen keine Diskrepanz zu DS86-Rechnungen ergeben [156].

Proben zur Messung des natürlichen Untergrundes

Die Messung der Kupferprobe des Thannhausener Kirchturmdaches ergab eine unverstanden hohe $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$ -Konzentration von etwa $1 \cdot 10^5$. Neben weiteren Messungen dieser Probe soll eine Messingprobe vom Sonnblickobservatorium (Österreich, 3 100 m über Meeresniveau) als weitere Untergrundprobe gemessen werden. Diese Probe, ein Messingschlüssel zu einem

Kupferproben	r_{gr} [m]	Richtung	Beschreibung der Probe
Hiroshima			
Atombomben-Dom	160	NW	Reste des Dachbleches
<i>Rest House</i>	170	SW	Blitzableiter
Gogoku Schrein	170	N	Beschriftungstafel
Yamaguchi Bank	490	O	Blitzableiter
Fukuya Warenhaus	710	O	Blitzableiter
E-Gebäude	1 420	S	Dachrinnenschellen
Nigitsu Schrein	1 680	NE	Kupfer am Eingangspfeiler
Ray Sanyo Buntokuden	1820	OSO	Verzierung auf dem Dach
Ohban Schrein	3 392	SO	Halterung für Seil
Kamesaki Schrein	7 500	-	Verzierung an Kupferdach
Nagasaki			
Yanabashi	300	W	Beschriftungstafel einer Brücke
Ohbashi	500	N	Beschriftungstafel einer Brücke
Mitsubishi Arms Factory	1 400	S	Kabel
Shofuku-ji Tempel	2 683	-	Verzierung auf dem Dach
Minori En	3 931	-	Blitzableiter
Hong Kong-Shanghai Bank	4 187	-	Regenrinne
Oura-Tensyudou Kirche	4 227	-	Regenrinne

Tabelle 7.1: *Potentielle neue Kupferproben aus Hiroshima und Nagasaki [160].*

Windrad, befand sich mit großer Wahrscheinlichkeit seit 1889 im Observatorium [161] und war damit einen ähnlichen Zeitraum der kosmischen Strahlung ausgesetzt wie das Kirchturmdach. Der hadronisch induzierte Anteil an der Produktion sollte in einer Höhe von 3 100 m um einen Faktor 8.7 gegenüber Meereshöhe erhöht sein, die geomagnetische Lage entspricht dagegen ungefähr der von Thannhausen. Der Gehalt an stabilem Nickel im Messingschlüssel liegt im Bereich von 100 ppm und ist damit etwa 2.5mal höher als in der Probe aus Thannhausen. Falls das in der Kupferprobe aus Thannhausen gemessene $^{63}\text{Ni}/\text{Ni}$ -Verhältnis von etwa $3 \cdot 10^{-13}$ auf die Produktion durch kosmische Strahlung zurückzuführen ist, müsste sich in der Probe vom Sonnblick ein $^{63}\text{Ni}/\text{Ni}$ -Verhältnis von etwa $6 \cdot 10^{-13}$ ergeben.

Gegenwärtig wird versucht, weitere Kupferproben zum Verständnis des Untergrundes aus unterschiedlichen Höhen über Meeresniveau zu organisieren. Falls sich für die $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$ -Konzentration in diesen Proben eine Abhängigkeit von der Höhe ergäbe, dann könnte das in dieser Arbeit in entfernten Proben aus Hiroshima gemessene $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$ -Verhältnis von etwa 10^5 eventuell auf den Einfluss kosmischer Strahlung zurückgeführt werden.

Experimentelle Bestimmung der durch Myonen induzierten ^{63}Ni -Produktion

Im Rahmen der Doktorarbeit von B. Heisinger [106] waren Kupferproben mit gestoppten und schnellen Myonen bestrahlt und die Produktion verschiedener Radionuklide darin experimentell bestimmt worden. Die Proben wurden von E. Nolte zur Verfügung gestellt [105]. Nach der chemischen Aufbereitung ist geplant, die Anzahl der in diesen Proben erzeugten ^{63}Ni -Kerne mittels AMS zu bestimmen und so die Produktionsrate von ^{63}Ni durch schnelle und gestoppte Myonen experimentell zu bestimmen.

Bestimmung des thermischen Wirkungsquerschnittes der Reaktion $^{63}\text{Cu}(n,p)^{63}\text{Ni}$

Die Reaktion $^{63}\text{Cu}(n,p)^{63}\text{Ni}$ ist exotherm (Q-Wert: +715 keV) und kann somit theoretisch durch niederenergetische thermische Neutronen induziert werden. Die Coulombschwelle hindert in diesem Falle das geladene Proton jedoch daran, aus dem angeregten Kern zu entweichen. Der Wirkungsquerschnitt der Reaktion sollte also für kleine Neutronenenergien vernachlässigbar sein. Um experimentell eine Obergrenze bzw. die Größenordnung des Wirkungsquerschnitts für niederenergetische Neutronen zu bestimmen, wurde eine Kupferprobe mit „kalten“ Neutronen bestrahlt. Ein Vorexperiment am Garchingener Forschungsreaktor ergab eine Obergrenze von etwa $90 \mu\text{b}$, wobei die Experimentierbedingungen der Bestrahlung nicht optimal waren. Daher wurde am Forschungsreaktor BER-II des Hahn Meitner Instituts (HMI) am Bestrahlungsplatz B8 eine weitere Bestrahlung durchgeführt. Die Daten dieser Bestrahlung werden in Zukunft vollständig ausgewertet. Als vorläufiges Ergebnis ergibt sich ein thermischer Wirkungsquerschnitt von etwa $50 \mu\text{b}$. Die Anzahl der – aufgrund der in der thermischen Energiegruppe von DS86 angegebenen Neutronenfluenz – erzeugten ^{63}Ni -Kerne entspräche am Hypozentrum 20% der Aktivierung durch schnelle Neutronen, in 1500 m Entfernung weniger als 1%. Bei der Probe von der Bank von Japan kann die Aktivierung aufgrund eines thermischen Anteils im Wirkungsquerschnitt so etwa 10% der Aktivierung durch schnelle Neutronen beigetragen haben. Bei den weiter entfernten Proben wird der Beitrag immer kleiner, da das Neutronenspektrum mit zunehmendem Abstand härter wird (siehe Anhang A). Die experimentellen Bedingungen bei der Bestrahlung am HMI sind im Anhang C aufgeführt.

Messungen von ^{41}Ca

Der zum Nachweis von ^{63}Ni in dieser Arbeit benutzte Experimentierplatz GAMS eignet sich auch dazu, weitere Radioisotope nachzuweisen. Für die retrospektive Bestimmung der Fluenzen thermischer Neutronen in Hiroshima ist z.B. das Radioisotop ^{41}Ca ($T_{1/2}=103\,000 \text{ a}$ [53]) interessant, das über die Reaktion $^{40}\text{Ca}(n,\gamma)^{41}\text{Ca}$ erzeugt wurde. Mit einer Messung von ^{41}Ca in Calcium-haltigem Gewebe wie z.B. im Zahnschmelz (Enamel) wäre es nach über 50 Jahren erstmals möglich, ein neutroneninduziertes Signal am Menschen zweifelsfrei nachweisen zu können.

Voraussetzung ist zum einen, dass der Calcium-Metabolismus im untersuchten Gewebe gering ist. Dies ist für Zahnschmelz der Fall. Zum anderen muss das natürlich vorhandene $^{41}\text{Ca}/\text{Ca}$ -Verhältnis deutlich unter dem durch Neutronen der Atombombe bedingten Verhältnis liegen. Erste Messungen verschiedener Zähne (Enamel) von Atombombenüberlebenden aus großen Abständen ($r_{gr} \geq 2.5 \text{ km}$) in Hiroshima ergaben bereits ein mittleres $^{41}\text{Ca}/\text{Ca}$ -Verhältnis von $(1.6_{-0.6}^{+0.7}) \cdot 10^{-15}$. Damit ist für hochexponierte Atombombenüberlebende ein $^{41}\text{Ca}/\text{Ca}$ -Verhältnis zu erwarten, das etwa einen Faktor 10 über dem Untergrund liegt. Eine besondere Bedeutung erwächst diesen Messungen aus der Tatsache, dass in Enamel von hochexponierten Atombombenüberlebenden mit der Methode der ESR (*electron spin resonance*) bereits γ -Dosen bestimmt werden konnten [162]. Damit wäre es zum erstenmal möglich, in ein und derselben biologischen Probe Spuren einer γ - und Neutronenexposition getrennt nachzuweisen.

Verzeichnis der häufig verwendeten Symbole

A Massenzahl eines Nuklides.

$B \cdot \rho$ magnetische Steifigkeit eines geladenen Teilchens [Tm].

c Lichtgeschwindigkeit; $c = 2.9979 \cdot 10^8 \text{m/s}$.

$\Delta E_1 - \Delta E_5$ Signale der einzelnen Anodensegmente.

E Energie eines Teilchens, meist angegeben in [eV].

e Elementarladung; $e = 1.602 \cdot 10^{19} \text{As}$.

EA Elektronenaffinität eines neutralen Teilchens [eV].

f^* Kanalstärke für den Zerfall eines angeregten Kerns nach Myoneneinfang.

f_D Kerneinfangswahrscheinlichkeit für Myonen.

H Höhe über dem Meeresboden angegeben in [m] bzw. auch [km].

h Tiefe unter der Erdoberfläche [m].

m_A Masse eines Atoms oder Nuklides mit der Massenzahl A .

N Anzahl der Ereignisse im Detektor.

$N(^AZ)$ Anzahl der Atome eines Isotops AZ .

q Ladungszustand eines Ions in Einheiten von [e].

r_{gr} ground range: Entfernung eines Ortes zum Hypozentrum [m].

r_{sl} slant range: Entfernung eines Ortes zum Epizentrum [m].

σ Wirkungsquerschnitt für eine Reaktion in Einheiten von Barn [$1 \text{ b} = 10^{-24} \text{ cm}^2$].

t Zeit, meist angegeben in [s].

τ mittlere Lebensdauer; $\tau = \frac{T_{1/2}}{\ln 2}$ [s].

$T_{1/2}$ Halbwertszeit, angegeben z.B. in [s].

v Geschwindigkeit eines Ions [m/s].

X_V Atmosphärische Tiefe [g/cm^2].

Z Kernladungszahl eines Atoms.

Anhang A

Neutronenfluenz und Kerma aus DS86

Tabelle A.1 zeigt die prompte Neutronenfluenz nach DS86 eingeteilt in 46 Energiegruppen im Abstand von 5, 500, 1 000, 1 500 und 2 000 m vom Hypozentrum in Hiroshima. Mit diesen Werten der Neutronenfluenz und einer Detonationsstärke von 15 kt TNT wurden die Berechnungen zur Produktion von ^{63}Ni in Kupferproben aus Hiroshima in Kapitel 2 durchgeführt. Die prompte Neutronenfluenz hat einen Anteil von mindestens 93% an der gesamten Neutronenkerma, wobei dieser Anteil mit zunehmendem Abstand sogar noch zunimmt. An der Aktivierung von Kupfer über die Reaktion $^{63}\text{Cu}(n,p)^{63}\text{Ni}$ beträgt der Anteil am Hypozentrum sogar schon mehr als 98%. Deshalb ist es eine gute Näherung, diese Werte für die Berechnungen in Kapitel 2 zu verwenden.

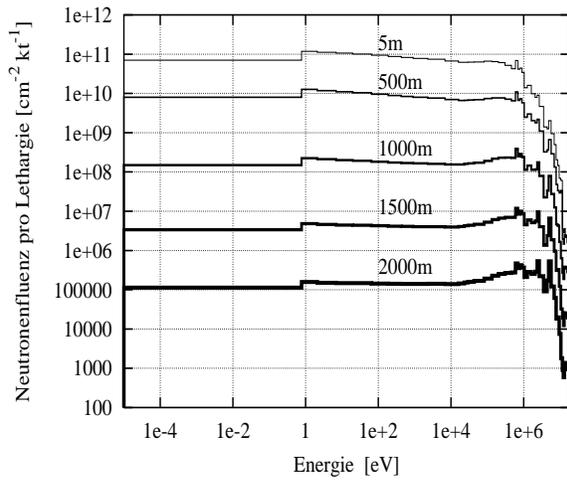
Um die Abstandsabhängigkeit des Neutronenspektrums zu veranschaulichen, wurden die Daten in den einzelnen Abbildungen A.1 graphisch aufgetragen. Es wurde die Lethargieauftragung gewählt. Dabei ergeben gleiche Flächen in den Abbildungen A.1(b) bis A.1(f) eine gleich große Anzahl von Neutronen.

Tabelle der Kerma nach DS86

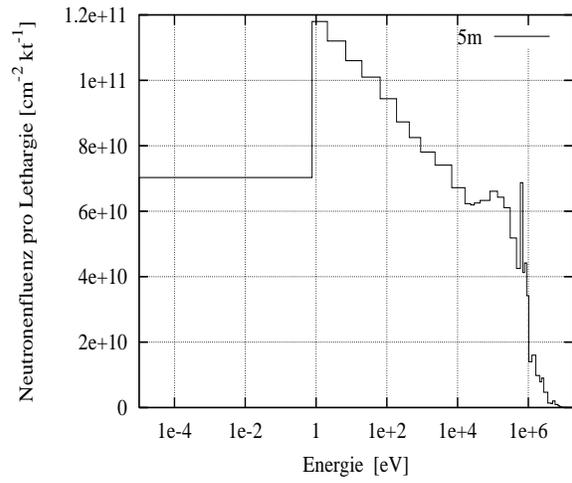
Das Dosimetriesystem DS86 ordnet momentan 86 572 Atombombenüberlebenden eine Neutronen- und eine γ -Dosis zu. In Tabelle A.2 ist die FIA-Kerma in Gewebe 1 m über dem Boden für die betroffenen Städte Hiroshima und Nagasaki angegeben. Für die Kerma wird dort noch die veraltete Einheit rad (*radiation absorbed dose*) verwendet. Die aktuelle SI-Einheit ist das Gray: $1 \text{ Gy} = 100 \text{ rad}$. Zur Umrechnung dieser Kerma in eine Organdosis (wie beispielsweise in Abbildung 1.3 angegeben) müssen die Abschirmungen von Gebäuden oder durch den Körper der Personen selbst noch z.B. mittels Transmissionsfaktoren berücksichtigt werden.

Energie gruppe	obere Grenze [MeV]	Fluenz pro Einheitsausbeute [$\text{cm}^{-2} \text{kt}^{-1}$]				
		1 Meter über dem Boden; Abstände in r_{gr}				
		5 m	500 m	1000 m	1500 m	2000 m
1	$1.9640 \cdot 10^1$	$9.59 \cdot 10^4$	$2.14 \cdot 10^5$	$4.52 \cdot 10^4$	$3.16 \cdot 10^3$	$1.51 \cdot 10^2$
2	$1.6905 \cdot 10^1$	$1.88 \cdot 10^5$	$2.05 \cdot 10^5$	$3.53 \cdot 10^4$	$2.43 \cdot 10^3$	$1.19 \cdot 10^2$
3	$1.4918 \cdot 10^1$	$1.24 \cdot 10^5$	$1.18 \cdot 10^5$	$1.90 \cdot 10^4$	$1.22 \cdot 10^3$	$5.96 \cdot 10^1$
4	$1.4191 \cdot 10^1$	$6.21 \cdot 10^4$	$5.44 \cdot 10^4$	$8.79 \cdot 10^3$	$5.89 \cdot 10^2$	$2.95 \cdot 10^1$
5	$1.3840 \cdot 10^1$	$3.63 \cdot 10^5$	$2.52 \cdot 10^5$	$3.82 \cdot 10^4$	$2.60 \cdot 10^3$	$1.37 \cdot 10^2$
6	$1.2523 \cdot 10^1$	$7.01 \cdot 10^4$	$3.64 \cdot 10^4$	$4.69 \cdot 10^3$	$3.07 \cdot 10^2$	$1.48 \cdot 10^1$
7	$1.2214 \cdot 10^1$	$3.54 \cdot 10^5$	$1.96 \cdot 10^5$	$2.74 \cdot 10^4$	$1.89 \cdot 10^3$	$9.13 \cdot 10^1$
8	$1.1052 \cdot 10^1$	$6.06 \cdot 10^6$	$3.34 \cdot 10^6$	$6.32 \cdot 10^4$	$3.24 \cdot 10^3$	$1.80 \cdot 10^2$
9	$1.0000 \cdot 10^1$	$6.90 \cdot 10^6$	$2.94 \cdot 10^6$	$1.66 \cdot 10^5$	$1.22 \cdot 10^4$	$7.50 \cdot 10^2$
10	$9.0484 \cdot 10^0$	$1.46 \cdot 10^7$	$3.34 \cdot 10^6$	$4.28 \cdot 10^5$	$3.28 \cdot 10^4$	$1.98 \cdot 10^3$
11	$8.1873 \cdot 10^0$	$2.03 \cdot 10^7$	$4.81 \cdot 10^6$	$4.65 \cdot 10^5$	$3.11 \cdot 10^4$	$1.84 \cdot 10^3$
12	$7.4082 \cdot 10^0$	$7.46 \cdot 10^7$	$1.99 \cdot 10^7$	$1.89 \cdot 10^6$	$1.44 \cdot 10^5$	$9.32 \cdot 10^3$
13	$6.3763 \cdot 10^0$	$2.35 \cdot 10^8$	$7.19 \cdot 10^7$	$6.90 \cdot 10^6$	$4.69 \cdot 10^5$	$3.02 \cdot 10^4$
14	$4.9659 \cdot 10^0$	$1.01 \cdot 10^8$	$3.32 \cdot 10^7$	$3.96 \cdot 10^6$	$3.33 \cdot 10^5$	$2.64 \cdot 10^4$
15	$4.7237 \cdot 10^0$	$1.87 \cdot 10^8$	$5.43 \cdot 10^7$	$5.03 \cdot 10^6$	$3.58 \cdot 10^5$	$2.57 \cdot 10^4$
16	$4.0657 \cdot 10^0$	$4.20 \cdot 10^8$	$9.70 \cdot 10^7$	$6.79 \cdot 10^6$	$4.08 \cdot 10^5$	$2.73 \cdot 10^4$
17	$3.0119 \cdot 10^0$	$1.09 \cdot 10^9$	$2.56 \cdot 10^8$	$1.84 \cdot 10^7$	$9.39 \cdot 10^5$	$5.16 \cdot 10^4$
18	$2.3852 \cdot 10^0$	$3.01 \cdot 10^8$	$7.32 \cdot 10^7$	$5.84 \cdot 10^6$	$3.21 \cdot 10^5$	$1.79 \cdot 10^4$
19	$2.3069 \cdot 10^0$	$1.84 \cdot 10^9$	$4.20 \cdot 10^8$	$2.71 \cdot 10^7$	$1.31 \cdot 10^6$	$6.75 \cdot 10^4$
20	$1.8268 \cdot 10^0$	$2.45 \cdot 10^9$	$5.07 \cdot 10^8$	$2.83 \cdot 10^7$	$1.28 \cdot 10^6$	$6.35 \cdot 10^4$
21	$1.4227 \cdot 10^0$	$3.99 \cdot 10^9$	$7.49 \cdot 10^8$	$3.63 \cdot 10^7$	$1.50 \cdot 10^6$	$7.10 \cdot 10^4$
22	$1.1080 \cdot 10^0$	$1.98 \cdot 10^9$	$3.52 \cdot 10^8$	$1.61 \cdot 10^7$	$6.44 \cdot 10^5$	$3.00 \cdot 10^4$
23	$9.6146 \cdot 10^{-1}$	$5.40 \cdot 10^9$	$9.19 \cdot 10^8$	$3.80 \cdot 10^7$	$1.36 \cdot 10^6$	$5.87 \cdot 10^4$
24	$8.2085 \cdot 10^{-1}$	$4.42 \cdot 10^9$	$7.32 \cdot 10^8$	$2.87 \cdot 10^7$	$9.96 \cdot 10^5$	$4.23 \cdot 10^4$
25	$7.4274 \cdot 10^{-1}$	$6.20 \cdot 10^9$	$1.00 \cdot 10^9$	$3.76 \cdot 10^7$	$1.27 \cdot 10^6$	$5.32 \cdot 10^4$
26	$6.3928 \cdot 10^{-1}$	$1.03 \cdot 10^{10}$	$1.64 \cdot 10^9$	$5.80 \cdot 10^7$	$1.79 \cdot 10^6$	$7.00 \cdot 10^4$
27	$5.5023 \cdot 10^{-1}$	$1.70 \cdot 10^{10}$	$2.59 \cdot 10^9$	$9.11 \cdot 10^7$	$2.80 \cdot 10^6$	$1.10 \cdot 10^5$
28	$3.6883 \cdot 10^{-1}$	$2.07 \cdot 10^{10}$	$2.84 \cdot 10^9$	$9.27 \cdot 10^7$	$2.78 \cdot 10^6$	$1.07 \cdot 10^5$
29	$2.4724 \cdot 10^{-1}$	$2.75 \cdot 10^{10}$	$3.46 \cdot 10^9$	$1.04 \cdot 10^8$	$3.01 \cdot 10^6$	$1.14 \cdot 10^5$
30	$1.5764 \cdot 10^{-1}$	$2.25 \cdot 10^{10}$	$2.70 \cdot 10^9$	$7.61 \cdot 10^7$	$2.15 \cdot 10^6$	$7.99 \cdot 10^4$
31	$1.1109 \cdot 10^{-1}$	$4.96 \cdot 10^{10}$	$5.57 \cdot 10^9$	$1.43 \cdot 10^8$	$3.95 \cdot 10^6$	$1.45 \cdot 10^5$
32	$5.2475 \cdot 10^{-2}$	$2.69 \cdot 10^{10}$	$2.96 \cdot 10^9$	$7.33 \cdot 10^7$	$1.97 \cdot 10^6$	$7.15 \cdot 10^4$
33	$3.4307 \cdot 10^{-2}$	$2.03 \cdot 10^{10}$	$2.21 \cdot 10^9$	$5.36 \cdot 10^7$	$1.43 \cdot 10^6$	$5.16 \cdot 10^4$
34	$2.4788 \cdot 10^{-2}$	$7.74 \cdot 10^9$	$2.70 \cdot 10^9$	$2.01 \cdot 10^7$	$5.33 \cdot 10^5$	$1.92 \cdot 10^4$
35	$2.1875 \cdot 10^{-2}$	$4.67 \cdot 10^{10}$	$4.98 \cdot 10^9$	$1.16 \cdot 10^8$	$3.05 \cdot 10^6$	$1.09 \cdot 10^5$
36	$1.0333 \cdot 10^{-2}$	$7.56 \cdot 10^{10}$	$7.87 \cdot 10^9$	$1.74 \cdot 10^8$	$4.47 \cdot 10^6$	$1.58 \cdot 10^5$
37	$3.3546 \cdot 10^{-3}$	$7.41 \cdot 10^{10}$	$7.62 \cdot 10^9$	$1.61 \cdot 10^8$	$4.04 \cdot 10^6$	$1.42 \cdot 10^5$
38	$1.2341 \cdot 10^{-3}$	$5.86 \cdot 10^{10}$	$5.99 \cdot 10^9$	$1.24 \cdot 10^8$	$3.04 \cdot 10^6$	$1.06 \cdot 10^5$
39	$5.8295 \cdot 10^{-4}$	$6.19 \cdot 10^{10}$	$6.31 \cdot 10^9$	$1.27 \cdot 10^8$	$3.08 \cdot 10^6$	$1.06 \cdot 10^5$
40	$2.7536 \cdot 10^{-4}$	$8.73 \cdot 10^{10}$	$8.89 \cdot 10^9$	$1.74 \cdot 10^8$	$4.16 \cdot 10^6$	$1.42 \cdot 10^5$
41	$1.0130 \cdot 10^{-4}$	$1.18 \cdot 10^{11}$	$1.20 \cdot 10^{10}$	$2.28 \cdot 10^8$	$5.32 \cdot 10^6$	$1.80 \cdot 10^5$
42	$2.9023 \cdot 10^{-5}$	$1.01 \cdot 10^{11}$	$1.04 \cdot 10^{10}$	$1.93 \cdot 10^8$	$4.39 \cdot 10^6$	$1.47 \cdot 10^5$
43	$1.0677 \cdot 10^{-5}$	$1.33 \cdot 10^{11}$	$1.38 \cdot 10^{10}$	$2.50 \cdot 10^8$	$5.56 \cdot 10^6$	$1.84 \cdot 10^5$
44	$3.0590 \cdot 10^{-6}$	$1.12 \cdot 10^{11}$	$1.18 \cdot 10^{10}$	$2.11 \cdot 10^8$	$4.60 \cdot 10^6$	$1.51 \cdot 10^5$
45	$1.0130 \cdot 10^{-6}$	$1.18 \cdot 10^{11}$	$1.27 \cdot 10^{10}$	$2.24 \cdot 10^8$	$4.82 \cdot 10^6$	$1.57 \cdot 10^5$
46	$4.1399 \cdot 10^{-7}$	$7.47 \cdot 10^{11}$	$8.48 \cdot 10^{10}$	$1.59 \cdot 10^9$	$3.58 \cdot 10^7$	$1.20 \cdot 10^6$
total:	$1 \cdot 10^{-11} - 1.964 \cdot 10^1$	$1.96 \cdot 10^{12}$	$2.17 \cdot 10^{11}$	$4.59 \cdot 10^9$	$1.14 \cdot 10^8$	$4.13 \cdot 10^6$

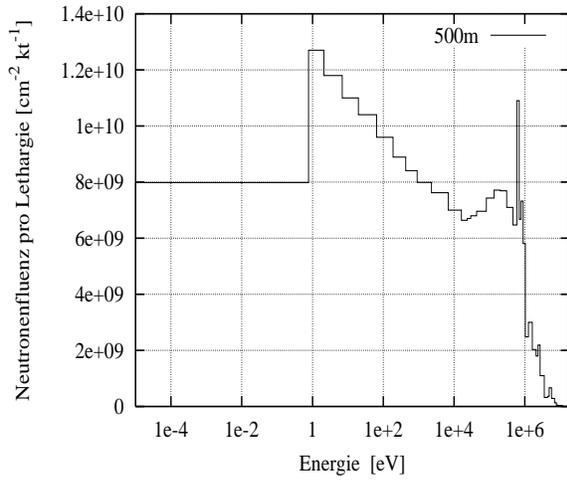
Tabelle A.1: Werte der prompten Neutronenfluenz in Hiroshima normiert auf eine Detonationsstärke von einer Kilotonne (kt) TNT; Tabelle aus [3, Seite 87f.]



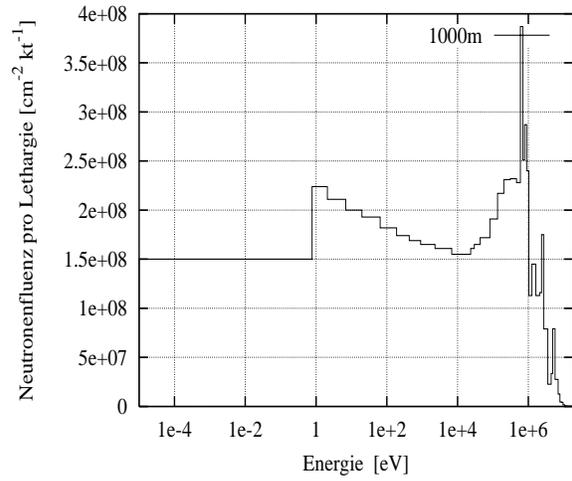
(a) Alle Abstände aus DS86 im Überblick.



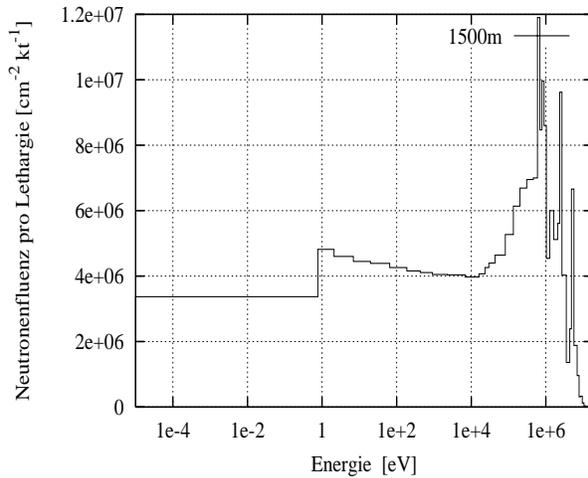
(b) Spektrum bei 5 m (r_{gr}).



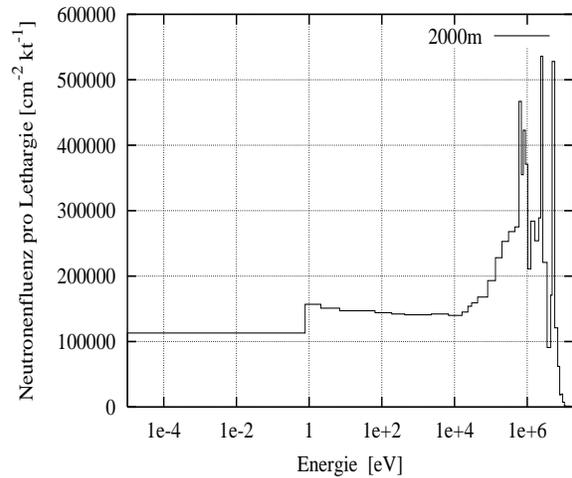
(c) Spektrum bei 500 m (r_{gr}).



(d) Spektrum bei 1000 m (r_{gr}).



(e) Spektrum bei 1500 m (r_{gr}).



(f) Spektrum bei 2000 m (r_{gr}).

Abbildung A.1: Graphische Darstellung der Neutronenspektren nach DS86 (FIA, 1 m über dem Boden) in Hiroshima. Es wurde die Lethargieauftragung gewählt, bei Abb.A.1(a) ist jedoch auch die y-Achse im log. Maßstab.

r_{gr} [m]	FIA Kerma in Gewebe [rad] einen Meter über dem Boden			
	Hiroshima		Nagasaki	
	γ -Strahlung	n-Strahlung	γ -Strahlung	n-Strahlung
100	$1.17 \cdot 10^4$	$3.31 \cdot 10^3$	$2.92 \cdot 10^4$	$1.80 \cdot 10^3$
150	$1.08 \cdot 10^4$	$2.91 \cdot 10^3$	$2.65 \cdot 10^4$	$1.59 \cdot 10^3$
200	$9.72 \cdot 10^3$	$2.48 \cdot 10^3$	$2.34 \cdot 10^4$	$1.36 \cdot 10^3$
250	$8.63 \cdot 10^3$	$2.07 \cdot 10^3$	$2.02 \cdot 10^4$	$1.13 \cdot 10^3$
300	$7.31 \cdot 10^3$	$1.70 \cdot 10^3$	$1.72 \cdot 10^4$	$9.25 \cdot 10^2$
350	$6.19 \cdot 10^3$	$1.35 \cdot 10^3$	$1.44 \cdot 10^4$	$7.36 \cdot 10^2$
400	$5.15 \cdot 10^3$	$1.05 \cdot 10^3$	$1.20 \cdot 10^4$	$5.72 \cdot 10^2$
450	$4.27 \cdot 10^3$	$8.02 \cdot 10^2$	$9.74 \cdot 10^3$	$4.39 \cdot 10^2$
500	$3.50 \cdot 10^3$	$6.04 \cdot 10^2$	$7.85 \cdot 10^3$	$3.31 \cdot 10^2$
550	$2.83 \cdot 10^3$	$4.46 \cdot 10^2$	$6.29 \cdot 10^3$	$2.46 \cdot 10^2$
600	$2.27 \cdot 10^3$	$3.28 \cdot 10^2$	$5.01 \cdot 10^3$	$1.82 \cdot 10^2$
650	$1.82 \cdot 10^3$	$2.38 \cdot 10^2$	$3.99 \cdot 10^3$	$1.34 \cdot 10^2$
700	$1.46 \cdot 10^3$	$1.71 \cdot 10^2$	$3.14 \cdot 10^3$	$9.76 \cdot 10^1$
750	$1.17 \cdot 10^3$	$1.23 \cdot 10^2$	$2.48 \cdot 10^3$	$7.11 \cdot 10^1$
800	$9.40 \cdot 10^2$	$8.81 \cdot 10^1$	$1.97 \cdot 10^3$	$5.17 \cdot 10^1$
850	$7.54 \cdot 10^2$	$6.29 \cdot 10^1$	$1.57 \cdot 10^3$	$3.76 \cdot 10^1$
900	$6.09 \cdot 10^2$	$4.47 \cdot 10^1$	$1.24 \cdot 10^3$	$2.71 \cdot 10^1$
950	$4.87 \cdot 10^2$	$3.19 \cdot 10^1$	$9.83 \cdot 10^2$	$1.97 \cdot 10^1$
1000	$3.93 \cdot 10^2$	$2.27 \cdot 10^1$	$7.83 \cdot 10^2$	$1.43 \cdot 10^1$
1050	$3.16 \cdot 10^2$	$1.61 \cdot 10^1$	$6.24 \cdot 10^2$	$1.04 \cdot 10^1$
1100	$2.55 \cdot 10^2$	$1.15 \cdot 10^1$	$4.98 \cdot 10^2$	$7.57 \cdot 10^0$
1150	$2.07 \cdot 10^2$	$8.24 \cdot 10^0$	$3.96 \cdot 10^2$	$5.44 \cdot 10^0$
1200	$1.67 \cdot 10^2$	$5.91 \cdot 10^0$	$3.18 \cdot 10^2$	$4.02 \cdot 10^0$
1250	$1.35 \cdot 10^2$	$4.24 \cdot 10^0$	$2.57 \cdot 10^2$	$2.94 \cdot 10^0$
1300	$1.10 \cdot 10^2$	$3.04 \cdot 10^0$	$2.07 \cdot 10^2$	$2.15 \cdot 10^0$
1350	$8.98 \cdot 10^1$	$2.20 \cdot 10^0$	$1.67 \cdot 10^2$	$1.58 \cdot 10^0$
1400	$7.28 \cdot 10^1$	$1.58 \cdot 10^0$	$1.35 \cdot 10^2$	$1.16 \cdot 10^0$
1450	$5.96 \cdot 10^1$	$1.15 \cdot 10^0$	$1.10 \cdot 10^2$	$8.55 \cdot 10^{-1}$
1500	$4.87 \cdot 10^1$	$8.38 \cdot 10^{-1}$	$8.93 \cdot 10^1$	$6.31 \cdot 10^{-1}$
1550	$3.96 \cdot 10^1$	$6.10 \cdot 10^{-1}$	$7.30 \cdot 10^1$	$4.67 \cdot 10^{-1}$
1600	$3.29 \cdot 10^1$	$4.46 \cdot 10^{-1}$	$5.97 \cdot 10^1$	$3.46 \cdot 10^{-1}$
1650	$2.69 \cdot 10^1$	$3.26 \cdot 10^{-1}$	$4.90 \cdot 10^1$	$2.56 \cdot 10^{-1}$
1700	$2.21 \cdot 10^1$	$2.39 \cdot 10^{-1}$	$4.02 \cdot 10^1$	$1.91 \cdot 10^{-1}$
1750	$1.82 \cdot 10^1$	$1.76 \cdot 10^{-1}$	$3.30 \cdot 10^1$	$1.42 \cdot 10^{-1}$
1800	$1.50 \cdot 10^1$	$1.30 \cdot 10^{-1}$	$2.72 \cdot 10^1$	$1.06 \cdot 10^{-1}$
1850	$1.24 \cdot 10^1$	$9.62 \cdot 10^{-2}$	$2.24 \cdot 10^1$	$7.91 \cdot 10^{-2}$
1900	$1.03 \cdot 10^1$	$7.11 \cdot 10^{-2}$	$1.85 \cdot 10^1$	$5.93 \cdot 10^{-2}$
1950	$8.52 \cdot 10^0$	$5.30 \cdot 10^{-2}$	$1.53 \cdot 10^1$	$4.44 \cdot 10^{-2}$
2000	$7.10 \cdot 10^0$	$3.92 \cdot 10^{-2}$	$1.27 \cdot 10^1$	$3.32 \cdot 10^{-2}$
2100	$4.90 \cdot 10^0$	$2.18 \cdot 10^{-2}$	$8.76 \cdot 10^0$	$1.89 \cdot 10^{-2}$
2200	$3.41 \cdot 10^0$	$1.22 \cdot 10^{-2}$	$6.05 \cdot 10^0$	$1.08 \cdot 10^{-2}$
2300	$2.37 \cdot 10^0$	$6.89 \cdot 10^{-3}$	$4.23 \cdot 10^0$	$6.16 \cdot 10^{-3}$
2400	$1.67 \cdot 10^0$	$3.90 \cdot 10^{-3}$	$2.96 \cdot 10^0$	$3.55 \cdot 10^{-3}$
2500	$1.18 \cdot 10^0$	$2.21 \cdot 10^{-3}$	$2.09 \cdot 10^0$	$2.04 \cdot 10^{-3}$

Tabelle A.2: Die Werte der Kerma in Gewebe (FIA, 1 m über dem Boden) gelten für eine Detonationsstärke von 15 kt für Hiroshima bzw. 21 kt für Nagasaki, $1 \text{ Gy} = 100 \text{ rad}$; [3, Seite 131, Tabelle 40].

Anhang B

Konversionsfaktoren für Neutronen nach DS86

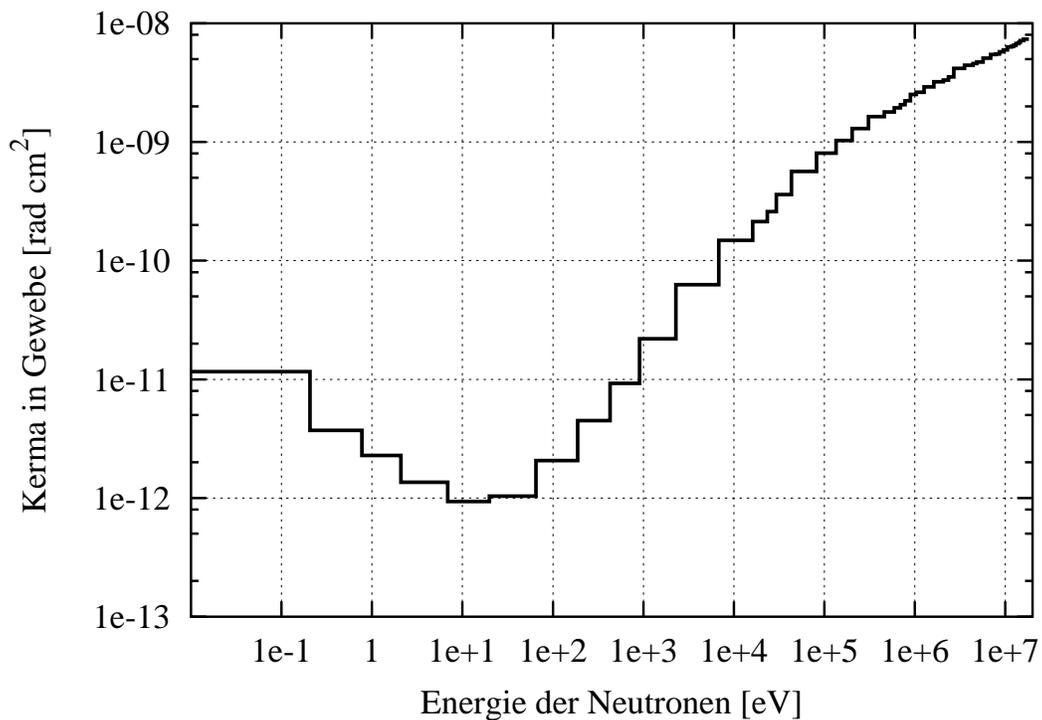


Abbildung B.1: *Fluenz-zu-Kerma-in-Gewebe-Konversionsfaktoren für Neutronen nach DS86 [3, Seite 92, Tab. 14] (siehe auch Tabelle B.1).*

Energie gruppe	obere Grenze [MeV]	Kerma in Gewebe [rad cm ²]	Energie gruppe	obere Grenze [MeV]	Kerma in Gewebe [rad cm ²]
1	1.9640·10 ¹	7.36·10 ⁻⁰⁹	24	8.2085·10 ⁻¹	2.06·10 ⁻⁰⁹
2	1.6905·10 ¹	7.14·10 ⁻⁰⁹	25	7.4274·10 ⁻¹	1.94·10 ⁻⁰⁹
3	1.4918·10 ¹	6.88·10 ⁻⁰⁹	26	6.3928·10 ⁻¹	1.79·10 ⁻⁰⁹
4	1.4191·10 ¹	6.74·10 ⁻⁰⁹	27	5.5023·10 ⁻¹	1.64·10 ⁻⁰⁹
5	1.3840·10 ¹	6.52·10 ⁻⁰⁹	28	3.6883·10 ⁻¹	1.30·10 ⁻⁰⁹
6	1.2523·10 ¹	6.38·10 ⁻⁰⁹	29	2.4724·10 ⁻¹	1.03·10 ⁻⁰⁹
7	1.2214·10 ¹	6.33·10 ⁻⁰⁹	30	1.5764·10 ⁻¹	8.07·10 ⁻¹⁰
8	1.1052·10 ¹	5.98·10 ⁻⁰⁹	31	1.1109·10 ⁻¹	5.66·10 ⁻¹⁰
9	1.0000·10 ¹	5.76·10 ⁻⁰⁹	32	5.2475·10 ⁻²	3.60·10 ⁻¹⁰
10	9.0484·10 ⁰	5.51·10 ⁻⁰⁹	33	3.4307·10 ⁻²	2.59·10 ⁻¹⁰
11	8.1873·10 ⁰	5.46·10 ⁻⁰⁹	34	2.4788·10 ⁻²	2.13·10 ⁻¹⁰
12	7.4082·10 ⁰	5.08·10 ⁻⁰⁹	35	2.1875·10 ⁻²	1.48·10 ⁻¹⁰
13	6.3763·10 ⁰	4.71·10 ⁻⁰⁹	36	1.0333·10 ⁻²	6.27·10 ⁻¹¹
14	4.9659·10 ⁰	4.58·10 ⁻⁰⁹	37	3.3546·10 ⁻³	2.20·10 ⁻¹¹
15	4.7237·10 ⁰	4.44·10 ⁻⁰⁹	38	1.2341·10 ⁻³	9.25·10 ⁻¹²
16	4.0657·10 ⁰	4.18·10 ⁻⁰⁹	39	5.8295·10 ⁻⁴	4.48·10 ⁻¹²
17	3.0119·10 ⁰	3.53·10 ⁻⁰⁹	40	2.7536·10 ⁻⁴	2.07·10 ⁻¹²
18	2.3852·10 ⁰	3.32·10 ⁻⁰⁹	41	1.0130·10 ⁻⁴	1.04·10 ⁻¹²
19	2.3069·10 ⁰	3.21·10 ⁻⁰⁹	42	2.9023·10 ⁻⁵	9.33·10 ⁻¹³
20	1.8268·10 ⁰	2.91·10 ⁻⁰⁹	43	1.0677·10 ⁻⁵	1.36·10 ⁻¹²
21	1.4227·10 ⁰	2.62·10 ⁻⁰⁹	44	3.0590·10 ⁻⁶	2.28·10 ⁻¹²
22	1.1080·10 ⁰	2.52·10 ⁻⁰⁹	45	1.0130·10 ⁻⁶	3.71·10 ⁻¹²
23	9.6146·10 ⁻¹	2.22·10 ⁻⁰⁹	46	4.1399·10 ⁻⁷	1.16·10 ⁻¹¹

Tabelle B.1: *Fluenz-zu-Kerma-in-Gewebe-Konversionsfaktoren für Neutronen nach DS86; Tabelle aus [3, Seite 92, Tab. 14]. Die Faktoren wurden in den zweidimensionalen DOT-4 Rechnungen (DS86) für Hiroshima verwendet.*

Anhang C

Bestrahlung einer Kupferprobe mit kalten Neutronen am HMI

Am Forschungsreaktor BER-II des Hahn Meitner Instituts (HMI), Berlin, am Bestrahlungsplatz B8 wurde eine hochreine Kupferprobe¹ mit kalten Neutronen bestrahlt (siehe auch Kapitel 7). Ziel ist es, den Wirkungsquerschnitt der Reaktion ${}^{63}\text{Cu}(n,p){}^{63}\text{Ni}$ bei den Energien thermischer bzw. kalter Neutronen zu bestimmen. Eine genaue Auswertung des erzeugten ${}^{63}\text{Ni}$ in Kupfer konnte im Rahmen dieser Arbeit noch nicht erfolgen. Das für die Bestrahlung mit Neutronen verwendete Kupfer enthält weniger als 0.5 ppm Nickel [163]. Somit wurden durch Neutroneneinfang an ${}^{62}\text{Ni}$ weniger als $3 \cdot 10^6$ ${}^{63}\text{Ni}$ -Atome in der bestrahlten Probe (19.433 g Kupfer) erzeugt.

In dem gekrümmten Neutronenleiter zum Bestrahlungsplatz B8, der mit ${}^{58}\text{Ni}$ beschichtet ist, werden keine schnellen Neutronen transportiert. Mit der Kupferprobe wurde auch eine Sonde zur Messung der Fluenz schneller Neutronen bestrahlt, um sicherzustellen, dass nicht doch schnelle Neutronen zur Erzeugung von ${}^{63}\text{Ni}$ beigetragen haben. Aus der Obergrenze der Aktivität von ${}^{58}\text{Co}$ ($T_{1/2} = 70.86$ d [53]) in der Flusssonde Nickel (Reaktion ${}^{58}\text{Ni}(n_f,p){}^{58}\text{Co}$, Schwelle dieser Reaktion etwa 1 MeV) kann eine Produktion von weniger als 10^4 ${}^{63}\text{Ni}$ -Kernen abgeleitet werden.

Das Spektrum der Neutronenstrahlung aus der kalten Quelle ist in [164] angegeben. Der Reaktor hatte während der Bestrahlung volle Leistung mit 10 MW, die kalte Quelle eine Temperatur von 27 K.

Die Anordnung des Probenstapels aus hochreinen Materialien zeigt Tabelle C.1. Die Aluminiumbleche pressten mittels eines Aluminium U-Profiles die Folien zusammen, um einen guten thermischen Kontakt zu gewährleisten. Die Folien wurden zu 2.5×10 cm zugeschnitten. Die Zinkfolien dienten mittels der Monitorreaktion ${}^{64}\text{Zn}(n,\gamma){}^{65}\text{Zn}$ ($\sigma_0 = 0.77$ b [53]) zur Messung der Fluenz thermischer Neutronen. Zur Umrechnung des Wirkungsquerschnittes σ_0 auf die Neutronenenergie der kalten Neutronen am Reaktor wurde ein $1/v$ -Verlauf angenommen, sodass der Wirkungsquerschnitt bei 27 K mit einem Faktor 3.33 multipliziert wurde. Diese

¹Kupferfolie, 0.25 mm dick, Puratronic, 99.9999%, Alfa Aesar stock#42974, lot#K11J15.

Umrechnung wird auch bei der Obergrenze für den thermischen Wirkungsquerschnitt der Reaktion $^{63}\text{Cu}(n,p)^{63}\text{Ni}$ angenommen werden.

Die 1115-keV- γ -Linie des Zerfalls von ^{65}Zn ($T_{1/2} = 244.3$ d [53]) wurde mit einem Germaniumdetektor gemessen. Die Messung verschiedener Zinkfolien ergab ein homogenes Strahlprofil der Neutronenfluenz (Fehler etwa 10%). Für die Messung der ^{58}Co -Aktivität ergab sich kein Signal über dem Untergrund. Damit ergeben sich die in Tabelle C.2 aufgelisteten Werte.

n-Strahl	Folie	Al	Cu	Zn	Cu	Cu	Zn	Ni	Ni	Al
→	Dicke [mm]	2	0.25	0.1	0.5	0.1	0.5	0.5	0.5	2.5

Tabelle C.1: *Bestrahlungsgeometrie am HMI. Der Pfeil gibt Richtung des Neutronenstrahles an; die Aluminiumbleche pressten mit einem Aluminium U-Profil die einzelnen Folien zusammen. Es sind die einzelnen Folien angegeben, darunter die gesamte Dicke der Lagen. Zinkfolien: Flusssonden für thermische Neutronen; Nickelfolien: Flusssonde für schnelle Neutronen.*

Bestrahlungszeit	thermische Fluenz	schnelle Fluenz
[s]	$[\frac{\text{Neutronen}}{\text{cm}^2}]$	$[\frac{\text{Neutronen}}{\text{cm}^2}]$
85740	$1.6 \cdot 10^{13}$	$< 2 \cdot 10^8$

Tabelle C.2: *Bestrahlungsdaten der Bestrahlung am HMI. Die thermische Fluenz wurde mit einer Zinkfolie bestimmt, die Obergrenze für die schnelle Fluenz aus einer Nickelfolie. Die angegebenen Werte sind noch vorläufig.*

Unter der Annahme, dass der $1/v$ -Verlauf der Anregungsfunktion auch bei der Reaktion $^{63}\text{Cu}(n,p)^{63}\text{Ni}$ gilt, ergibt sich ein Wert von $\sigma_0 \approx 50 \mu\text{b}$.

Die in der Tabelle C.2 angegebenen Werte sind aber noch vorläufig, da die Auswertung der Fluenzsonden noch nicht abgeschlossen ist. Die Messungen von ^{65}Ni ($T_{1/2} = 2.52$ h [53]) in der Nickelfolie etwa 30 h nach der Bestrahlung wie auch die Messung von ^{59}Ni ($T_{1/2} = 1.08 \cdot 10^5$ a [165]) mit AMS ergeben einen etwa 2.5mal größeren Wert der thermischen Fluenz. Doch mit diesen Werten ergibt sich ein kleinerer Wirkungsquerschnitt, sodass der Wert von $\sigma_0 \approx 50 \mu\text{b}$ eher eine Obergrenze darstellt.

Anhang D

Ergebnisse der Einzelmessungen

Die Ergebnisse der Einzelmessungen aus den unterschiedlichen Experimentierzeiten werden hier in Tabellen zusammengestellt. Dies ermöglicht, sich einen Überblick über die einzelnen Experimentierzeiten zu verschaffen. Neben dem $^{63}\text{Ni}/\text{Ni}$ -Verhältnis zum Zeitpunkt der Messung sind auch noch die Anzahl der ^{63}Ni -Ereignisse aufgeführt. Da manche Proben viel Kupfer enthielten, musste trotz der einzigartigen Unterdrückung im Nachweissystem auf Untergrund durch ^{63}Cu korrigiert werden. Diese Anzahl – ausgedrückt in Ereignissen – ist in der Spalte „UG“ aufgeführt. Die Vertrauensintervalle der Ergebnisse sind jeweils 68.27% bzw. 1σ . Die weiteren Parameter der einzelnen Experimentierzeiten zur Kupferunterdrückung sind außerdem in Tabelle D.8 zusammengefasst. Zudem ist in den Tabellen D.1 bis D.7 die eigentlich zu bestimmende Größe, das Verhältnis $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$ angegeben. Die zur Umrechnung benötigten Werte sind in den Tabellen D.10 – D.14 angegeben. Im Dezember 1999 und im März 2001 wurden die Ergebnisse mit einer konservativen Auswertung bestimmt. Verschiedene Fenstersätze ergaben dort relativ große Unterschiede. Deshalb wurde ein Fehlerbereich gewählt, der die Unsicherheit der Wahl des Fenstersatzes einschließt. Die Anzahl der Ereignisse kann somit bei diesen Experimentierzeiten nicht angegeben werden.

Im Rahmen der Arbeit wurden verschiedene Bezeichnungen für die einzelnen Proben verwendet. Einen Überblick bietet deshalb die Tabelle D.17.

Probe	Abstand	Messwert $^{63}\text{Ni}/\text{Ni}$	Ereignisse	UG	$^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$
H582, Blitzableiter	1 014 m	$(1.9\pm 0.6)\cdot 10^{-12}$	17	2.2	$(1.9\pm 0.6)\cdot 10^5$
H583, Blitzableiter	1 014 m	$(1.5\pm 0.4)\cdot 10^{-12}$	19	0.2	$(2.4\pm 0.7)\cdot 10^5$
H593, Regenrinne	1 304 m	$(6.3\pm 1.1)\cdot 10^{-13}$	38	0.6	$(1.48\pm 0.31)\cdot 10^5$
H577, WQ-Probe, bestr. Cu		$(2.5\pm 0.4)\cdot 10^{-11}$	76	0.03	$(1.11\pm 0.16)\cdot 10^7$
Nullproben, Blanks					
H574, AA blank		$1.1\cdot 10^{-13}$	1	-	-
alfa, powder blank		$< 2.1\cdot 10^{-14}$	-	-	-
alfa, powder blank		$< 2.6\cdot 10^{-14}$	-	-	-
H579, wire blank		$(3_{-2}^{+5})\cdot 10^{-14}$	1	-	$(2.4_{-1.5}^{+4.2})\cdot 10^4$
<i>Kupferunterdrückung:</i> $5.1\cdot 10^{-7}$ aus Probe H209 (wire blank) mit 2 Ereignissen					

Tabelle D.1: Messergebnisse September 1998.

Probe	Abstand	Messwert $^{63}\text{Ni}/\text{Ni}$	Ereignisse	UG	$^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$
H640, Blitzableiter	1 014 m	$(3.1\pm 0.4)\cdot 10^{-12}$	145	5.7	$(3.7\pm 0.8)\cdot 10^5$
H638, Regenrinne	1 304 m	$(4.2\pm 1.1)\cdot 10^{-13}$	33	7.3	$(1.11\pm 0.30)\cdot 10^5$
H639, Regenrinne	1 304 m	$(5.5\pm 1.0)\cdot 10^{-13}$	57	2.8	$(1.02\pm 0.18)\cdot 10^5$
H643, EQ, (Blindprobe)		$(3.4\pm 0.5)\cdot 10^{-13}$	84	3.7	-
H641, NIST (bestrahlte Probe)		$(1.0\pm 0.1)\cdot 10^{-11}$	293	0.9	$(1.3\pm 0.13)\cdot 10^7$
Nullproben, Blanks					
H635, chemistry blank		$(3.0\pm 0.8)\cdot 10^{-13}$	21	-	-
H633, AA blank		$(1.2\pm 0.3)\cdot 10^{-13}$	26	-	-
<i>Kupferunterdrückung:</i> $2.9\cdot 10^{-6}$ Mittlerer Untergrund 1. Teil mit H635!					

Tabelle D.2: Messergebnisse Juli 1999; chemistry blank: Kein Kupferdraht aber Nickelprobe mit allen beteiligten Reagenzien. Messung der Probe H640 diente zur Bestimmung der totalen Effizienz der Beschleunigermassenspektrometrie in Garching, siehe Kapitel 4.2.7.

Probe	Abstand	Messwert $^{63}\text{Ni}/\text{Ni}$	$^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$
H637, Regenrinne	1 461 m	$(5.5 \pm 2.5) \cdot 10^{-13}$	$(6.9 \pm 3.1) \cdot 10^4$
H644, EQ (Blindprobe)		$(4.0 \pm 1.6) \cdot 10^{-13}$	-
Nullproben, Blanks			
H636, <i>chemistry blank</i>		$(1.8 \pm 0.7) \cdot 10^{-13}$	-
alfa, <i>powder Blank</i>		$(5.7 \pm 2.4) \cdot 10^{-14}$	-
<i>Kupferunterdrückung:</i> $1 \cdot 10^{-5}$ aus H636, $4 \cdot 10^{-6}$ aus alfa; Mittelwert genommen und syst. Fehler zugestanden.			

Tabelle D.3: Messergebnisse Dezember 1999; keine Angabe der Ereignisse bei den Proben H637 und H644, weil den Ergebnissen nochmals ein systematischer Fehler zugestanden wurde; verschiedene Fenstersätze wurden unter Berücksichtigung der Unsicherheiten kombiniert.

Probe	Abstand	Messwert $^{63}\text{Ni}/\text{Ni}$	Ereignisse	UG	$^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$
H671, Regenrinne	1 461 m	$(1.3_{-0.3}^{+0.3}) \cdot 10^{-12}$	46	6.5	$(1.5_{-0.3}^{+0.4}) \cdot 10^5$
H672+H673, Blitzabl.	948 m	$(1.3_{-0.9}^{+1.0}) \cdot 10^{-13}$	7	2.3	$(3.5_{-2.4}^{+2.7}) \cdot 10^5$
H645, EQ (Blindprobe)		$(1.8_{-0.6}^{+0.8}) \cdot 10^{-13}$	9	0.5	-
H674, Kirchturmdachblech		$< 3 \cdot 10^{-13}$	2	2.1	$< 1.4 \cdot 10^5$
Nullproben, Blanks					
H670, <i>Elektrolyse-Blank</i>		$< 2.0 \cdot 10^{-13}$	0	-	$< 2.5 \cdot 10^4$
H664, <i>AA blank</i>		$7.1 \cdot 10^{-14}$	2	-	-
<i>Kupferunterdrückung:</i> $6 \cdot 10^{-7}$ aus allen Blanks.					

Tabelle D.4: Messergebnisse April 2000; Für die Fehlerauswertung wurde eine besondere statistische Methode verwendet [134];

Probe	Abstand	Messwert $^{63}\text{Ni}/\text{Ni}$	Ereig- nisse	UG	$^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$
H769, Blitzableiter	380 m	$(2.05 \pm 0.21) \cdot 10^{-12}$	200	0.8	$(4.5 \pm 0.5) \cdot 10^6$
H767, Regenrinne	1 461 m	$(1.09 \pm 0.25) \cdot 10^{-12}$	27	1.8	$(1.04 \pm 0.26) \cdot 10^5$
H768, Blitzableiter	621 m	$(2.6^{+0.9}_{-0.7}) \cdot 10^{-13}$	18	1.7	$(5.4^{+1.9}_{-1.5}) \cdot 10^4$
H771 Kirchturmdachblech		$(3.3^{+1.6}_{-1.3}) \cdot 10^{-13}$	8	0.5	$(1.5^{+0.7}_{-0.6}) \cdot 10^5$
H772 Kirchturmdachblech		$(2.7^{+0.9}_{-0.8}) \cdot 10^{-13}$	14	0.4	$(1.2^{+0.4}_{-0.4}) \cdot 10^5$
Nullproben, Blanks					
H754, AA blank		$(3.5^{+2.0}_{-1.6}) \cdot 10^{-14}$	5	-	-
H756, AA blank		$(0.9^{+1.5}_{-0.6}) \cdot 10^{-14}$	1	-	-
H668, AA blank		$(0.8^{+1.2}_{-0.5}) \cdot 10^{-14}$	1	-	-
<i>Kupferunterdrückung</i> $2.1 \cdot 10^{-6}$ aus H666 (AA blank mit 4 Ereignissen).					

Tabelle D.5: Messergebnisse August 2000; Die Probe H768 war wahrscheinlich nicht direkt exponiert, siehe Abschnitt 5.1.8. H771 und H772 sind Aliquots.

Probe	Abstand	Messwert $^{63}\text{Ni}/\text{Ni}$	$^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$
H823, Blitzableiter	380 m	$(2.7^{+0.7}_{-0.9}) \cdot 10^{-12}$	$(5.5^{+1.4}_{-1.9}) \cdot 10^6$
H819, Regenrinne	1 880 m	$< 1.1 \cdot 10^{-13}$	$< 2.1 \cdot 10^4$
H821, Dachblech	5 062 m	$(9^{+20}_{-9}) \cdot 10^{-14}$	$(1.14^{+2.54}_{-1.14}) \cdot 10^5$
H827, EQ (Blindprobe)		$(5.9^{+7.6}_{-2.6}) \cdot 10^{-13}$	-
Nullproben, Blanks			
H820, Kupfermonitor für Probe H819		$(1.6^{+2.0}_{-1.1}) \cdot 10^{-13}$	$(3.3^{+4.1}_{-2.3}) \cdot 10^4$
<i>Kupferunterdrückung</i>			
je nach Fenstersatz Werte im Bereich $(0.6-3.7) \cdot 10^{-6}$			

Tabelle D.6: Messergebnisse März 2001. Es zeigte sich ein hoher Untergrund während dieser Experimentierzeit; deshalb wurde auf verschiedenen Wegen ausgewertet und der fehlergewichtete Mittelwert angegeben. Das Fehlerintervall wurde konservativ gewählt; deshalb kann keine Angabe zur Anzahl der Ereignisse gemacht werden.

Probe	Abstand	Messwert $^{63}\text{Ni}/\text{Ni}$	Ereig- nisse	UG	$^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$
H843, Blitzableiter	380 m	$(1.62 \pm 0.24) \cdot 10^{-12}$	77	5.4	$(3.5 \pm 0.5) \cdot 10^6$
H770, Blitzableiter	948 m	$(1.8 \pm 0.6) \cdot 10^{-13}$	25	8.3	$(4.4^{+1.7}_{-1.6}) \cdot 10^5$
H837, Dachrinne	1 880 m	$(4.1^{+1.4}_{-1.1}) \cdot 10^{-13}$	16	1.5	$(9.3^{+3.4}_{-2.7}) \cdot 10^4$
H838, Dach	5 062 m	$(5^{+6}_{-4}) \cdot 10^{-14}$	4	1.7	$(6^{+7}_{-5}) \cdot 10^4$
künstlich bestrahlte Probe					
H844, HMI WQ-Probe		$(2.07 \pm 0.22) \cdot 10^{-11}$	201	0.9	$(1.78 \pm 0.19) \cdot 10^7$
H846, EQ (Blindprobe)		$(3.1 \pm 0.6) \cdot 10^{-13}$	62	14	-
Nullproben, Blanks					
H833, AA blank		$(4.0^{+2.8}_{-1.6}) \cdot 10^{-14}$	4	-	-
H834, AA blank		$(4.0^{+3.0}_{-2.5}) \cdot 10^{-14}$	3	-	-
H835, AA blank		$(3.9^{+2.7}_{-1.6}) \cdot 10^{-14}$	4	-	-
H825, AA blank		$(3.2^{+2.5}_{-2.1}) \cdot 10^{-14}$	3	-	-
H655, AA blank		$< 5 \cdot 10^{-14}$	0	-	-
<i>Kupferunterdrückung</i> $2.4 \cdot 10^{-6}$ aus allen Blanks (14 Ereignisse).					

Tabelle D.7: Messergebnisse Juli 2001.

Zusammenstellung Untergrund

Monat der AMS-Messung	Untergrund	GAMS Faktor	Blank [at/at] $^{63}\text{Ni}/\text{Ni}$	Trans- mission	Energie $^{63}\text{Ni}^{12+}$ [MeV]
September 98	$5 \cdot 10^{-7}$	2 700	$< 2 \cdot 10^{-14}$	1.08%	178.2
Juli 99	$(2.9 \pm 0.8) \cdot 10^{-6}$	1 780	$(1.2 \pm 0.3) \cdot 10^{-13}$	0.65%	175.6
Dezember 99	$(1.0^{+0.2}_{-0.2}) \cdot 10^{-5}$	1 200	$(6 \pm 2.4) \cdot 10^{-14}$	0.4%	175.6
April 00	$(6.1^{+6.8}_{-3.8}) \cdot 10^{-7}$	1 860	-	0.08%	175.6
August 00	$(2.1^{+3.7}_{-1.3}) \cdot 10^{-6}$	3 600	$(0.9^{+6.1}_{-2.2}) \cdot 10^{-14}$	0.9%	175.6
März 01	$\sim 2 \cdot 10^{-6}$	3 770	$(1.4^{+0.8}_{-1.0}) \cdot 10^{-14}$	-	169.1
Juli 01	$(2.4^{+0.7}_{-0.6}) \cdot 10^{-6}$	-	$(4.0^{+2.8}_{-1.6}) \cdot 10^{-14}$	0.2%	175.6

Tabelle D.8: Vergleich der einzelnen Experimentierzeiten;

Untergrund: ^{63}Cu -Unterdrückung im Detektor;

GAMS-Faktor: Herausschieben des ^{63}Cu aus dem Detektor durch den GFM;

Blank $^{63}\text{Ni}/\text{Ni}$: Wert eines Blanks während der Messungen;

Transmission: Mittlere Transmission beim verwendeten Fenstersatz.

Bestimmung des stabilen Nickel-Gehaltes

Zur Angabe des $^{63}\text{Ni}/^{63}\text{Cu}$ -Verhältnisses aus dem mittels Beschleunigermassenspektrometrie gemessenen $^{63}\text{Ni}/\text{Ni}$ -Verhältnis muss der Gehalt an stabilem Nickel bestimmt werden. Dies geschah während der Dauer der Arbeit auf unterschiedliche Weise. Die einzelnen Ergebnisse sind in den nachfolgenden Tabellen dargestellt. Bei wenig Probenmaterial wurde auch stabiles Nickel als Trägermaterial zugegeben. Die Tabellen zeigen die einzelnen Werte getrennt nach einzelnen Kupferproben. Zur Analyse wurden (5–30) ml von insgesamt etwa 250 ml der Nickellösung verwendet. Die Methode (GFAA) ist *graphite furnace atomic absorption spectrometry*.

Probe	Proben- masse [g]	Ni gesamt [μg]	Ni in Cu [$\mu\text{g/g}$]
S-94-2	9.5176	2025±138	213±15
S-94-3	3.3706	671 ± 25	199±8
S-94-4	5.9444	1 240	208

Tabelle D.9: Daten der Probe: Bank von Japan, Filiale Hiroshima. Die Werte der Probe S-94-4 sind noch vorläufig.

Probe	Proben- masse [g]	Ni Träger [μg]	Ni gesamt [μg]	Ni in Cu [$\mu\text{g/g}$]
S-88-1	36.8867	192.8	343± 27	4.1 ±0.7
S-88-2	29.6266	192.9	462± 75	9.1 ±2.5
S-88-3	39.7843	193.6	469± 85	6.9 ±2.1
LR1-B2	20.7501	193.7	579± 197	18.6±9.5
LR2-B2	15.5903	194	501± 185	19.7±11.9
fehlergew. Mittelwert Ni in Cu:				4.8 ±0.7

Tabelle D.10: Daten der Probe: Hiroshima Rathaus. Den Proben wurde stabiles Nickel als Trägermaterial zugegeben. Die Messungen wurden am LLNL mittels AAS durchgeführt. Weitere Messungen an einem Labor in Utah mittels ICP-MS. LR1-B2 und LR2-B2 wurden aus anderen Drähten als S-88-x gewonnen.

Probe	Proben- masse [g]	Ni Träger [μg]	Ni gesamt [μg]	Ni in Cu [$\mu\text{g/g}$]
S-90-1	24.1578	103.5	552	18.6
S-90-2	13.7112	104.2	356 ± 23	18.4 ± 1.71
S-90-3	24.7255	105.9	446 ± 10	13.8 ± 0.41
fehlergew. Mittelwert Ni in Cu:				15.5 ± 0.4

Tabelle D.11: *Daten der Probe: Grundschule der Universität von Hiroshima. Für die Auswertung wurde der jeweilige individuelle Messwert verwendet. Y. Ito et al. [67] gibt für die Grundschule einen Wert von (17–28) ppm Nickel an, macht aber keine Angabe zur Messmethode.*

Probe	Proben- masse [g]	Ni gesamt [μg]	Ni in Cu [$\mu\text{g/g}$]
S-92-1	12.69	115.5 ± 2.8	9.10 ± 0.22
S-92-2	17.07	144.5 ± 1.8	8.47 ± 0.10
S-92-3	11.50	113 ± 17	9.8 ± 1.5
S-92-4	14.16	154 ± 15	10.9 ± 1.1
S-92-5	12.76	147 ± 17	11.5 ± 1.3
S-92-6	12.91	115 ± 10	8.9 ± 0.8
fehlergew. Mittelwert Ni in Cu:			9.8 ± 1.1

Tabelle D.12: *Daten der Probe: Hiroshima Radioisotopengebäude. Die Nickelbestimmung der einzelnen Proben wurde in zwei Labors durchgeführt. Aufgetragen ist der Mittelwert der Messungen und die Standardabweichung. Für die Proben S-92-4, S-92-5 und S-92-6 sind die Daten der Einzelmessungen in Tabelle D.15 aufgeführt.*

Für eine Probe wurden S-92-1 und S-92-2 mit $103.9 \mu\text{g}$ Nickelträger zusammengefasst, S-92-3 und S-92-6, sowie S-92-4 und S-92-5 wurden ohne die Zugabe von Nickelträger zusammengefasst.

Probe	Proben- masse [g]	Ni gesamt [μg]	Ni in Cu [$\mu\text{g/g}$]
S-96-1	12.9505	240 ± 14	18.5 ± 1.1
S-96-2+3	13.8317	310 ± 31	22.4 ± 2
S-98-1	3.4823	432 ± 11	124 ± 3
S-98-2	5.7633	715	124

Tabelle D.13: *Daten der entfernten Proben: S-96 Sumitomo Bank, S-98 Kusatsu-Hachiman-Schrein. Die Daten zur Probe S-98-2 sind noch vorläufig.*

Probe	Proben- masse [g]	Ni gesamt [μg]	Ni in Cu [$\mu\text{g/g}$]
S-93-1	12.3145	3 181 \pm 59	258 \pm 5
S-95-2	9.7266	197 \pm 14	20.3 \pm 1.4
Church#1	9.4692	424 \pm 19	44.8 \pm 2.0

Tabelle D.14: Daten weiterer Proben. S-93-1 Soja-Soßen-Brauerei, S-95-2 Sanin Godo Bank. Church#1, Thannhausener Kirchturmdach. Die Nickelbestimmung am Radiochemischen Institut München ergab einen Wert von 38 ppm ($\pm 15\%$) [100].

	S-92-4	S-92-5	S-92-6	S-93-1	Church#1
LLNL [$\mu\text{g/ml}$]	0.576	0.644	0.500	12.66	1.658
LLNL [$\mu\text{g/ml}$]	0.626	0.607	0.488	13.05	1.614
Galbraith [$\mu\text{g/ml}$]	0.698	0.488	0.446	12.50	1.788
Galbraith [$\mu\text{g/ml}$]	0.562	0.603	0.412	12.65	1.725
Mittelwert [$\mu\text{g/ml}$]	0.62	0.59	0.46	12.72	1.696
s.d. [$\mu\text{g/ml}$]	0.06	0.07	0.04	0.24	0.076
%s.d.	10	12	9	1.9	4.5

Tabelle D.15: Einzelergebnisse von Nickel-Analysen ohne Trägerzugabe, der Fehler einer Messung liegt nach dortigen Angaben bei etwa 10%. Messmethode GFAA, gemessen am LLNL und durch die Firma Galbraith. Das Probenvolumen betrug jeweils 250 ml. Es gibt eine relativ gute Übereinstimmung der beiden Labors, weiterhin werden die Mittelwerte verwendet.

Material	Nickel [ppm]	Kommentar
Probe 1:	<0.5	hochreine Kupferfolie zur Bestrahlung mit kalten Neutronen, siehe Kapitel 7. Der Wert ist eine Obergrenze [163].
Probe 2:	28.6 \pm 2.5	Cu-Rohr; SF-Cu, Werkstoff-Nr.: 2.0090 SF-Cu wird dort eingesetzt, wo an die elektrische Leitfähigkeit keine hohen Anforderungen gestellt werden. z.B.: Rohrleitungen, Dach- und Wandbekleidungen und im Apparatebau.
Probe 3:	0.93 \pm 0.14	Cu-Flachmaterial 2.5 x 10; E-Cu57, Werkstoff-Nr.: 2.0060 E-Cu-57, durch elektrolytische Raffination hergestelltes, sauerstoffhaltiges Kupfer, das eine sehr hohe elektrische Leitfähigkeit aufweist. Anwendungen u.a. Kabel, wie auch Blitzableiter.
Probe 4:	3.11 \pm 0.32	Cu-Stange, Reinheit 99.99% Firma MaTeck, Produkt-Datenblatt, laut typ. Analyse <3 ppm Nickel.
Probe 5:	38 \pm 15%	Kupfer-Dachblech des Thannhausener Kirchturmes, Zink <5 ppm.

Tabelle D.16: Nickel-Analysen des **R**adiochemischen **I**nstituts **M**ünchen (RCM) [100].

Zusammenstellung der Namen der einzelnen Proben

Gebäude	Beschreibung in Kapitel	Bezeichnung	
		in der Chemie	als Probenhalter
Bank von Japan, Filiale Hiroshima	5.1.1	S-94-2	H769
		S-94-3	H823
		S-94-4	H843
Soja Soßen Brauerei	5.1.2	S-93-1	H672, H673
		S-93-1	H770
Hiroshima, Rathaus gemessen am LLNL	5.1.3	S-88-1	H582
		S-88-2	H583
		S-88-3	H640
		S-88-1	H563
		LR1-B2	H462
		LR2-B2	H461
Hiroshima, Grundschule der Universität	5.1.4	S-90/1	H593
		S-90/2	H638
		S-90/3	H639
Radioisotopen Gebäude	5.1.5	S-92-1+2	H637
		S-92-4+5	H671
		S-92-3+6	H767
Sumitomo Bank	5.1.6	S-96-1	H819
		S-96-2+3	H837
Kusatsu-Hachiman Schrein	5.1.7	S-98-1	H821
		S-98-2	H838
Sanin Godo Bank	5.1.8	S-95-2	H768
Thannhausen, Kirchturmdach	5.2	Church#1	H674
			H771
		anger. mit ^{65}Cu	H772

Tabelle D.17: Überblick über die Bezeichnungen der einzelnen Proben. Hier sind zusammenfassend alle internen Bezeichnungen der einzelnen Proben aufgeführt.

Verzeichnis der Abbildungen

1.1	Definition geometrischer Begriffe	5
1.2	Illustration des DS86-Modells	8
1.3	Örtliche Verteilung der Dosis nach DS86 in Hiroshima	11
1.4	Messungen der Thermolumineszenz an Proben aus Hiroshima	15
1.5	Messungen von ^{32}P als Sonde schneller Neutronen in Hiroshima	17
1.6	Messungen von Produkten thermischer Neutronen in Hiroshima	18
1.7	Anteil der neutroneninduzierten Kerma in Gewebe	19
2.1	Anregungsfunktion für die Reaktion $^{63}\text{Cu}(n,p)^{63}\text{Ni}$	23
2.2	$^{63}\text{Ni}/\text{Cu}$ -Verhältnisse in Hiroshima im Jahr 1945 nach DS86	25
2.3	Anteil an der Produktion von ^{63}Ni in Hiroshima	26
2.4	$^{63}\text{Ni}/\text{Ni}$ -Verhältnisse in Hiroshima nach DS86-Rechnung.	27
3.1	Kosmische Strahlung	30
3.2	Geomagnetische Abschirmung der kosmischen Strahlung	33
3.3	Ausschnitt aus der Nuklidkarte	35
3.4	Neutronenspektrum der kosmischen Strahlung	35
4.1	Skizze eines Probenhalters	45
4.2	Experimenteller Aufbau am Beschleunigerlabor Garching.	46
4.3	Ionenquellen für Beschleunigermassenspektrometrie.	49
4.4	Dampfdruck verschiedener Metalle	50
4.5	Mittlere magnetische Steifigkeit der Isobare ^{63}Ni und ^{63}Cu im Gas.	53
4.6	Weg der Isobare ^{63}Ni und ^{63}Cu durch eine gasgefüllte Magnetkammer.	53

4.7	Trennung der Isobare ^{63}Ni und ^{63}Cu in der Magnetkammer.	54
4.8	Ansicht der Detektoranodenplatte.	55
4.9	Spektren für Standard und Blank	60
5.1	Lage aller gemessenen Kupferproben aus Hiroshima.	64
5.2	Bank von Japan, Probennahme.	65
5.3	Probe der Grundschule Hiroshima, 1304 m.	69
5.4	Probe vom Radioisotopengebäude, 1461 m.	70
5.5	Ansicht des Kirchturmes von Thannhausen.	73
6.1	^{63}Ni -Messergebnisse, Hiroshima	78
6.2	Ergebnisse der Messungen des $^{63}\text{Ni}/\text{g Cu}$ -Verhältnisses mit Korrekturen. . . .	80
6.3	^{32}P - und ^{63}Ni -Werte im Vergleich zu DS86	83
A.1	Neutronenspektren nach DS86 in Hiroshima.	93
B.1	Fluenz-zu-Kerma-in-Gewebe-Konversionsfaktoren für Neutronen nach DS86 .	95

Verzeichnis der Tabellen

1.1	Strahlungswichtungsfaktoren w_R nach ICRP60	7
1.2	Strahlungskomponenten der Dosis nach DS86	10
1.3	Mittlere Kerma und Organdosen in Hiroshima	12
1.4	Beobachtete und erwartete Todesfälle aufgrund von soliden Tumoren	13
1.5	Beobachtete und erwartete Todesfälle aufgrund von Leukämie	14
1.6	In Hiroshima gemessene Radionuklide	16
2.1	Zahl der erzeugten ^{63}Ni -Kerne in Hiroshima und Nagasaki	24
3.1	Geomagnetische Breitengradabhängigkeit nach D. Lal	32
3.2	Geomagnetische Breitengradabhängigkeit nach Y. Yokoyama et al.	32
3.3	Hadronische Produktion von ^{63}Ni -Atomen in Kupfer	37
3.4	Myoneninduzierte Produktion von ^{63}Ni -Atomen in Kupfer	40
3.5	Produktion von ^{63}Ni durch kosmische Strahlung.	41
4.1	Messunsicherheiten	58
4.2	Ergebnisse von Blindproben	59
5.1	Tabelle zu den Probenorten.	64
5.2	Bank von Japan, Filiale Hiroshima, Ergebnisse der Messungen	65
5.3	Soja-Soßen-Brauerei, Ergebnisse der Messungen	66
5.4	Rathaus, Hiroshima, Ergebnisse der Messungen	67
5.5	Grundschule der Universität von Hiroshima, Ergebnisse der Messungen	68
5.6	Radioisotopengebäude der Universität von Hiroshima, Ergebnisse der Messungen.	70

5.7	Sumitomo Bank, Ergebnisse der Messungen.	71
5.8	Kusatsu-Hachiman Schrein, Ergebnisse der Messungen.	72
5.9	Motuyasu Brücke, Ergebnisse der Messungen am LLNL	72
5.10	Sanin Godo Bank, Ergebnis der Messung.	73
5.11	Thannhausener Kirchturm, Ergebnisse der Messungen	74
5.12	Zusammenfassung der ^{63}Ni -Messergebnisse.	75
6.1	Ergebnisse der Kupferblanks	81
7.1	Potentielle Kupferproben	86
A.1	Werte der prompten Neutronenfluenz in Hiroshima.	92
A.2	Werte der Kerma in Hiroshima und Nagasaki nach DS86	94
B.1	Fluenz-zu-Kerma-in-Gewebe-Konversionsfaktoren für Neutronen nach DS86.	96
C.1	Bestrahlungsgeometrie am HMI	98
C.2	Bestrahlungsdaten am HMI	98
D.1	Messergebnisse September 1998	100
D.2	Messergebnisse Juli 1999	100
D.3	Messergebnisse Dezember 1999	101
D.4	Messergebnisse April 2000	101
D.5	Messergebnisse August 2000	102
D.6	Messergebnisse März 2001	102
D.7	Messergebnisse Juli 2001	103
D.8	Vergleich der einzelnen Experimentierzeiten	103
D.9	Daten der Probe: Bank von Japan, Filiale Hiroshima	104
D.10	Daten der Probe: Hiroshima Rathaus	104
D.11	Daten der Probe: Hiroshima Grundschule	105
D.12	Daten der Probe: Hiroshima Radioisotopengebäude	105
D.13	Daten der entfernten Proben	105
D.14	Daten weiterer Proben	106

D.15 Einzelergebnisse von Nickelanalysen	106
D.16 Nickel-Analysen des RCM	106
D.17 Überblick über die Bezeichnungen der einzelnen Proben	107

Literaturverzeichnis

- [1] D.A. Pierce, Y. Shimizu, D.L. Preston, M. Vaeth, and K. Mabuchi. Studies of the Mortality of Atomic Bomb Survivors. Report 12, Part I. Cancer: 1950–1990. *Radiation Research*, 146:1–27, 1996.
- [2] Y. Shimizu, D.A. Pierce, D.L. Preston, and K. Mabuchi. Studies of the Mortality of Atomic Bomb Survivors. Report 12, Part II. Noncancer Mortality: 1950–1990. *Radiation Research*, 152:374–389, 1999.
- [3] W.C. Roesch, editor. *US - Japan Joint reassessment of atomic bomb radiation dosimetry in Hiroshima and Nagasaki: Final report*. Radiation Effects Research Foundation, 1987.
- [4] W. Rühm, A.M. Kellerer, G. Korschinek, T. Faestermann, K. Knie, G. Rugel, K. Kato, and E. Nolte. The dosimetry system DS86 and the neutron discrepancy in Hiroshima - historical review, present status, and future options. *Radiation Environ. Biophys.*, 37:293–310, 1998.
- [5] ICRP Publication 60, 1990. Recommendations of the International Commission on Radiological Protection. *Annals of the ICRP*, 21 No. 1–3, 1991.
- [6] S. Shimizu. Historical Sketch of the Scientific Field Survey in Hiroshima Several Days after the Atomic Bombing. *Bull. Inst. Chem. Res., Kyoto Univ.*, 60:39–54, 1982.
- [7] K. Kimura and E. Tajima. *Location of A-bomb explosion and size of the fireball*, pages 3–87. Science Council of Japan, Tokyo, 1953.
- [8] D.G. Cogan, S.F. Martin, and S.J. Kimura. Atomic bomb cataracts. *Science*, 110:654–655, 1949.
- [9] D.G. Cogan, S.F. Martin, S.J. Kimura, and H. Ikui. Ophthalmologic survey of atomic bomb survivors. *Trans. Amer. Ophthalmological Society*, 48:62–87, 1950.
- [10] J.H. Foley, W. Borges, and T. Yamawaki. Incidence of leukemia in survivors of the atomic bomb in Hiroshima and Nagasaki, Japan. *Amer. J. Medicine*, 13:311–321, 1952.
- [11] W.C. Moloney and R.D. Lange. Leukemia in atomic bomb survivors: II. Observations on early phases of leukemia. *Blood*, 9:663–685, 1954.

- [12] E.T. Arakawa. Radiation dosimetry in Hiroshima and Nagasaki atomic-bomb survivors. *The New England Journal of Medicine*, 263:488–493, 1960.
- [13] R.C. Milton and T. Shohoji. Tentative 1965 radiation dose (T65D) estimation for atomic bomb survivors. *Technical Report TR 1-68, Atomic Bomb Casualty Commission*, 1968.
- [14] H.H. Rossi and C.W. Mays. Leukemia risk from neutrons. *Health Physics*, 34:353–360, 1978.
- [15] H.H. Rossi and A.M. Kellerer. The validity of risk estimates of leukemia incidence based on Japanese data. *Radiation Research*, 58:131–140, 1974.
- [16] W.E. Loewe and E. Mendelson. Revised dose estimates at Hiroshima and Nagasaki. *Health Physics*, 41:663–666, 1981.
- [17] D.O. Stram, R. Sposto, D. Preston, S. Abrahamson, T. Honda, and A.A. Awa. Stable Chromosome Aberrations among A-bomb Survivors: An Update. *Radiation Research*, 136:29–36, 1993.
- [18] S. Kawamura, M. Izawa, T. Maruyama, E. Tanaka, and M. Hashizume. Determination of ^{60}Co to Co Ratio for the Estimation of Fast Neutron Dose from the Atomic Bombs in Hiroshima and Nagasaki. *Health Physics*, 13:801–806, 1967.
- [19] D.C. Kaul and S.D. Egbert. DS86 Uncertainty and Bias Analysis. Technical report, Science Applications International Corporation, San Diego, California 92121, 1999.
- [20] M. Chomentowski and A.M. Kellerer. Coordinate Plots of the Location ATB in the LSS cohort - Hiroshima and Nagasaki -. Technical Report SBI 205/12.98, Radiobiological Institute, Ludwig-Maximilians University Munich, 1998.
- [21] A.V. Peterson Jr., R.L. Prentice, T. Ishimaru, H. Kato, and M. Mason. Investigation of Circular Asymmetry in Cancer Mortality of Hiroshima and Nagasaki A-Bomb Survivors. *Radiation Research*, 93:184–199, 1983.
- [22] K. Shizuma, K. Iwatani, H. Hasai, M. Hoshi, T. Oka, and H. Morishima. Residual ^{152}Eu and ^{60}Co activities induced by neutrons from the Hiroshima atomic bomb. *Health Physics*, 65(3):272–282, 1993.
- [23] D.L. Preston. DS86 Gamma and Neutron Colon Dose Estimates for LSS Survivors by Distance. *RERF Update*, 9:8, 1998. <http://www.rerf.or.jp/eigo/scidata/ds86dose.htm>.
- [24] J.A. Auxier. *ICHIBAN: Radiation Dosimetry for the Survivors of the Bombings of Hiroshima and Nagasaki (Erda Critical Review)*. Department of Energy, Washington, D.C., 1977.
- [25] T. Nagatomo, M. Hoshi, and Y. Ichikawa. Thermoluminescence dosimetry of the Hiroshima atomic-bomb gamma rays between 1.59 km and 1.63 km from the hypocenter. *Health Physics*, 69(4):556–559, 1995.

- [26] I.K. Bailiff. Retrospective dosimetry with ceramics. *Radiation Measurement*, 27:923–941, 1997.
- [27] Y. Ichikawa, T. Higashimura, and T. Sidei. Thermoluminescence dosimetry of gamma rays from atomic bombs in Hiroshima and Nagasaki. *Health Physics*, 12:395–405, 1966.
- [28] T. Hashizume, T. Maruyama, A. Shiragai, E. Tanaka, M. Izawa, S. Kawamura, and S. Nagaoka. Estimation of the air dose from the atomic bombs in Hiroshima and Nagasaki. *Health Physics*, 13:149–161, 1967.
- [29] Y. Ichikawa, T. Nagatomo, M. Hoshi, and S. Kondo. Thermoluminescence dosimetry of gamma rays from the Hiroshima atomic bomb at distances of 1.27 km and 1.46 km from the hypocenter. *Health Physics*, 52:443–451, 1987.
- [30] T. Maruyama, Y. Kumamoto, and Y. Noda. Reassessment of doses from the atomic bombs in Hiroshima and Nagasaki. *Radiation Research*, 113:1–14, 1988.
- [31] T. Nagatomo, Y. Ichikawa, H. Ishii, and M. Hoshi. Thermoluminescence dosimetry of gamma-rays from the atomic bomb at Hiroshima using predose technique. *Radiation Research*, 113:227–234, 1988.
- [32] M. Hoshi, S. Sawada, Y. Ichikawa, T. Nagatomo, S. Uehara, and S. Kondo. Thermoluminescence dosimetry of γ -rays from the Hiroshima atomic bomb at distances of 1.91–2.05 km from the hypocenter. *Health Physics*, 57:1003–1008, 1989.
- [33] F. Yamasaki and A. Sugimoto. Radioactive P^{32} produced in sulfur in Hiroshima. In *Collection of Investigation Reports on Atomic Bomb Disaster*, pages 18–19, Tokyo, 1953. Japan Science Promotion Society.
- [34] A. Sugimoto. Determination of number of fast neutron particles emitted at the time of the Hiroshima a-bomb explosion. In *Collection of Investigation Reports on Atomic Bomb Disaster*, page 19, Tokyo, 1953. Japan Science Promotion Society.
- [35] M. Hoshi, K. Yokoro, S. Sawada, K. Shizuma, K. Iwatani, H. Hasai, T. Oka, H. Morishima, and D.J. Brenner. Europium-152 activity induced by Hiroshima atomic bomb neutrons: Comparison with the ^{32}P , ^{60}Co and ^{152}Eu activities in Dosimetry System 1986 (DS86). *Health Physics*, 57:831–837, 1989.
- [36] G.D. Kerr, F.F. Dyer, J.F. Emery, J.V. Pace III, R.L. Brodzinski, and J. Marcum. *Activation of Cobalt by Neutrons from the Hiroshima Bomb*. Oak Ridge National Laboratory, USA, 1990. manuscript: ORNL-6590.
- [37] T. Nakanishi, H. Ohtani, R. Mizuochi, K. Miyaji, T. Yamamoto, K. Kobayashi, and T. Imanaka. Residual neutron-induced radionuclides in samples exposed to the nuclear explosion over Hiroshima: Comparison of measured values with the calculated values. *J. Radiat. Res.*, Supplement:69–82, 1991.
- [38] K. Shizuma, K. Iwatani, H. Hasai, T. Oka, H. Morishima, and M. Hoshi. Specific Activities of ^{60}Co and ^{152}Eu in Samples Collected from the Atomic-Bomb Dome in Hiroshima. *J. Radiat. Res.*, 33:151–162, 1992.

- [39] T. Kimura and T. Hamada. Determination of Specific Activity of ^{60}Co in Steel Samples Exposed to the Atomic Bomb in Hiroshima. *Radioisotopes*, 42:17–20, 1993.
- [40] K. Shizuma, K. Iwatani, H. Hasai, T. Oka, M. Hoshi, S. Shibata, M. Imamura, and T. Shibata. Identification of ^{63}Ni and ^{60}Co produced in a steel sample by thermal neutrons from the Hiroshima atomic bomb. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 384:375–379, 1997.
- [41] K. Shizuma, K. Iwatani, H. Hasai, T. Oka, S. Endo, J. Takada, M. Hoshi, S. Fujita, T. Watanabe, and T. Imanaka. Residual ^{60}Co activity in steel samples exposed to Hiroshima atomic-bomb neutrons. *Health Physics*, 75:278–284, 1998.
- [42] T. Nakanishi, T. Imura, K. Komura, and M. Sakanoue. ^{152}Eu in samples exposed to the nuclear explosions at Hiroshima and Nagasaki. *Nature*, 302:132–134, 1983.
- [43] K. Kato, M. Habara, T. Aoyama, H. Sakata, and Y. Yoshizawa. Gamma-ray measurement of ^{152}Eu produced by neutrons from the Hiroshima atomic bomb and evaluation of neutron fluence. *Japanese Journal of Applied Physics*, 29(8):1546–1549, 1990.
- [44] K. Shizuma, K. Iwatani, H. Hasai, M. Hoshi, and T. Oka. ^{152}Eu depth profiles in granite and concrete cores exposed to the Hiroshima atomic bomb. *Health Physics*, 72(6):848–855, 1997.
- [45] G. Haberstock, J. Heinzl, G. Korschinek, H. Morinaga, E. Nolte, U. Ratzinger, K. Kato, and M. Wolf. Acceleration mass spectrometry with fully stripped ^{36}Cl ions. *Radiocarbon*, 2A:204–210, 1986.
- [46] K. Kato, M. Habara, Y. Yoshizawa, U. Biebel, G. Haberstock, J. Heinzl, G. Korschinek, H. Morinaga, and E. Nolte. Accelerator mass spectrometry of ^{36}Cl produced by neutrons from the Hiroshima bomb deduced. *Int. J. Radiat. Biol.*, 58(4):661–672, 1990.
- [47] T. Straume, S.G. Egbert, W.A. Woolson, R.C. Finkel, P.W. Kubik, H.E. Gove, P. Sharma, and M. Hoshi. Neutron discrepancies in the DS86 Hiroshima dosimetry system. *Health Physics*, 63(4):421–426, 1992.
- [48] W. Rühm, K. Kato, G. Korschinek, H. Morinaga, and E. Nolte. Neutron spectrum and yield of the Hiroshima A-bomb deduced from radionuclide measurements at one location. *Int. J. Radiat. Biol.*, 68(1):97–103, 1995.
- [49] T. Straume, L.R. Anspaugh, E.H. Haskell, J.N. Lucas, A.A. Marchetti, I.A. Likhtarev, V.V. Chumak, A.A. Romanyukha, V.T. Khrouch, Yu.I. Gavrilin, and V.F. Minenko. Emerging Technological Bases for Retrospective Dosimetry. *Stem Cells*, 15(suppl 2):183–193, 1997.
- [50] G. Korschinek, H. Morinaga, E. Nolte, E. Peisenberger, U. Ratzinger, A. Urban, P. Dragovitsch, and S. Vogt. Accelerator mass spectrometry with completely stripped ^{41}Ca and ^{53}Mn ions at the Munich Tandem Accelerator. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 29:67–71, 1987.

- [51] W. Rühm, K. Kato, G. Korschinek, H. Morinaga, and E. Nolte. ^{36}Cl and ^{41}Ca depth profiles in a Hiroshima granite stone and the Dosimetry System 1986. *Zeitschrift für Physik A - Hadrons and Nuclei*, 341:235–238, 1992.
- [52] W. Rühm. *Das Neutronenspektrum der Atombombe von Hiroshima und das Dosimetriesystem DS86*. Dissertation, Technische Universität München, 1993.
- [53] G. Pfennig, H. Klewe-Nebenius, and W. Seelmann-Eggebert. *Karlsruher Nuklidkarte*, 6. edition, 1995. Forschungszentrum Karlsruhe.
- [54] R. Collé and B.E. Zimmermann. ^{63}Ni Half-Life: a New Experimental Determination and Critical Review. *Appl. Radiat. Isot.*, 47:677–691, 1996.
- [55] T. Hamada. Measurement of ^{32}P activity induced in sulfur in Hiroshima. In *US-Japan joint workshop for reassessment of atomic bomb radiation dosimetry in Hiroshima and Nagasaki*, pages 45–56. Radiation Effects Research Foundation, 1983.
- [56] J.A. Auxier, W.S. Snyder, and T.D. Jones. Neutron interactions and penetration in tissue. In F.H. Attix and W.C. Roesch, editors, *Radiation Dosimetry*, volume 1, chapter 6. Academic Press, New York and London, second edition, 1968.
- [57] ICRP Publication 23. *Reference Man: Anatomical, Physiological and Metabolic Characteristics*. International Commission on Radiological Protection, Pergamon Press, Oxford, 1975.
- [58] T. Shibata, M. Imamura, S. Shibata, Y. Uwamino, T. Ohkubo, S. Satoh, N. Nogawa, H. Hasai, K. Shizuma, K. Iwatani, M. Hoshi, and T. Oka. A Method to Estimate the Fast-Neutron Fluence for the Hiroshima Atomic Bomb. *Journal of the Physical Society of Japan*, 63(10):3546–3547, 1994.
- [59] T. Straume, A.A. Marchetti, and J.E. McAninch. New analytical capability may provide solution to the neutron dosimetry problem in Hiroshima. *Radiation Protection Dosimetry*, 67(1):5–8, 1996.
- [60] A.A. Marchetti and T. Straume. A Search for Reactions That May be Useful for Hiroshima Dose Reconstruction. *Appl. Radiat. Isot.*, 47(1):97–103, 1996.
- [61] W. Rühm, K. Knie, G. Rugel, A.A. Marchetti, T. Faestermann, C. Wallner, J.E. McAninch, T. Straume, and G. Korschinek. Accelerator mass spectrometry of ^{63}Ni at the Munich Tandem Laboratory for estimating fast neutron fluences from the Hiroshima atomic bomb. *Health Physics*, 79(4):358–364, 2000.
- [62] C. Tsabaris, E. Wattecamps, and G. Rollin. Double differential (n,xp) and (n,x α) cross section measurements of ^{27}Al , ^{58}Ni and ^{63}Cu in the neutron energy range from 2.0 to 15.5 MeV. In J.K. Dickens, editor, *Int. Conf. on Nuclear Data for Science and Technology, Gatlinburg, May 1994*, pages 282–284, La Grange Park, Illinois, USA, 1994. American Nuclear Society.

- [63] S.M. Qaim, St. Spellerberg, F. Cserpák, and J. Csikai. Radiochemical Measurement of Excitation Function of $^{63}\text{Cu}(n,p)^{63}\text{Ni}$ Reaction from 7.2 to 14.6 MeV. *Radiochimica Acta*, 73:111–117, 1996.
- [64] L.R. Greenwood and D.L. Bowers. Production of long-lived activities in fusion materials. *Journal of Nuclear Materials*, 155-157:585–588, 1988.
- [65] S. Shibata, T. Shibata, M. Imamura, T. Ohkubo, S. Satoh, Y. Uwamino, N. Nogawa, M. Baba, S. Matsuyama, and S. Iwasaki. Measurement of the Excitation Function for $^{63}\text{Cu}(n,p)^{63}\text{Ni}$. *Annual Report, Institute for Nuclear Study, University of Tokyo*, page 123, 1994.
- [66] M. Imamura, T. Shibata, S. Shibata, T. Ohkubo, S. Satoh, and N. Nogawa. ^{252}Cf Spectrum-Averaged Cross section for the $^{63}\text{Cu}(n,p)^{63}\text{Ni}$ Reaction. *Annual Report, Institute for Nuclear Study, University of Tokyo*, pages 114–115, 1995.
- [67] Y. Ito, T. Shibata, M. Imamura, S. Shibata, N. Nogawa, Y. Uwamino, and K. Shizuma. A method to detect low-level ^{63}Ni activity for estimating fast neutron fluence from the Hiroshima atomic bomb. *Health Physics*, 76(6):635–638, 1999.
- [68] K. Takamiya, M. Akamine, S. Shibata, T. Shibata, Y. Itoh, M. Imamura, Y. Uwamino, N. Nogawa, M. Baba, S. Iwasaki, and S. Matsuyama. Excitation Function Measurement for $^{63}\text{Cu}(n,p)^{63}\text{Ni}$ at $E_n < 6.5$ MeV. Seminarvortrag von K. Takamiya am 4. Juli 2000, Radioisotope Research Center, Univ. of Tokyo., 2000.
- [69] *T-2 Nuclear Information Service, Los Alamos National Laboratory: Nuclear Data Viewer*. URL:<http://t2.lanl.gov/data/ndviewer.html>, 1998. Online Nuclear Data Service.
- [70] D.M. Hetrick, C.Y. Fu, and D.C. Larson. *ENDF/B-VI (Mod 3) evaluation*, 1992. Oak Ridge National Laboratory.
- [71] O.T. Grudzevich, A.V. Zelenetskij, A.V. Ignatyuk, and A.B. Pashchenko. *ADL-3 Neutron Activation Data Library*, 1994.
- [72] T. Nakagawa. *JENDL-3.2 evaluation*, 1993.
- [73] D.L. Allan. An experimental test of the statistical theory of nuclear reactions. *Nuclear Physics*, 24:274–299, 1961.
- [74] S.M. Grimes, R.C. Haight, K.R. Alvar, H.H. Barschall, and R.R. Borchers. Charged-particle emission in reactions of 15-MeV neutrons with isotopes of chromium, iron, nickel, and copper. *Physical Review C*, 19(6):2127–2137, 1979.
- [75] K. Takamiya. Cross Section of $^{63}\text{Cu}(n,p)^{63}\text{Ni}$ and Chemical Separation. In *US-Japan Joint Dosimetry Workshop, Hiroshima, Japan*, March 2000.
- [76] S.D. Egbert. Local shielding effects. In *US-Japan Joint Dosimetry Workshop, Hiroshima, Japan*, March 2000.

- [77] M. Barbier. *Induced Radioactivity*. North-Holland Publishing Company, Amsterdam, London, 1969.
- [78] Moscow State University, Institute of Nuclear Physics, Centre for Photonuclear Experiments Data, <http://depni.npi.msu.su/cdfe/services/index.html>. *Giant Dipole Resonance Parameters, Photonuclear Reaction Cross Sections*.
- [79] T.K. Gaisser. *Cosmic Rays and Particle Physics*. Cambridge University Press, 1990.
- [80] O.C. Allkofer and P.K.F. Grieder. *Cosmic Rays on Earth*. Fachinformationszentrum Karlsruhe, 1984. volume 25-1 of Physics Data.
- [81] C.J. Hatton and H. Carmichael. Experimental Investigation of the NM-64 Neutron Monitor. *Canadian Journal of Physics*, 42, 1964.
- [82] *Der Kieler Neutronen-Monitor*. <http://ifkki.kernphysik.uni-kiel.de/nm/NM1.html>.
- [83] *Cosmic Rays*. http://www.ngdc.noaa.gov/stp/SOLAR/COSMIC_RAYS/cosmic.html.
- [84] J. Masarik and R.C. Reedy. Terrestrial cosmogenic-nuclide production systematics calculated from numerical simulations. *Earth and Planetary Science Letters*, 136:381–395, 1995.
- [85] S. Roesler, W. Heinrich, and H. Schraube. Calculation of Radiation Fields in the Atmosphere and Comparison to Experimental Data. *Radiation Research*, 149:87–97, 1998.
- [86] H. Schraube, A. Jakes, A. Sannikov, E. Weitzenegger, S. Roesler, and W. Heinrich. The cosmic ray induced neutron spectrum at the summit of the Zugspitze (2963 m). *Radiation Protection Dosimetry*, 70:405–408, 1997.
- [87] P. Goldhagen. priv. Mitteilung, 2000. U.S. Department of Energy, Environmental Measurements Laboratory, New York, USA.
- [88] J. Bartels, D. Haidt, and A. Zichichi. Review of Particle Physics. *The European Physical Journal C*, 15:1–878, 2000.
- [89] D. Lal. Cosmic ray labeling of erosion surfaces: in situ nuclide production rates and erosion models. *Earth and Planetary Science Letters*, 104:424–439, 1991.
- [90] Y. Yokoyama, J.-L. Reyss, and F. Guichard. Production of radionuclides by cosmic rays at mountain altitudes. *Earth and Planetary Science Letters*, 36:44–50, 1977.
- [91] National Space Science Data Center (NASA), <http://nssdc.gsfc.nasa.gov/space/cgm/cgm.html>. *IGRF/DGRF Model Parameters and Corrected Geomagnetic Coordinates*, 2000.
- [92] Deutsches Kupferinstitut, Auskunfts- und Beratungsstelle für die Verwendung von Kupfer und Kupferlegierungen, Düsseldorf. *Kupfer - Vorkommen, Gewinnung, Eigenschaften, Verarbeitung, Verwendung*, 1997.

- [93] dtv Lexikon. F.A. Brockhaus GmbH, Mannheim, und Deutscher Taschenbuch Verlag GmbH & Co KG, München, 1990.
- [94] P. Goldhagen, M. Reginatto, J.W. Wilson, R.C. Singleterry, I.W. Jones, and T. Kniss. Measurement of the Energy Spectrum of Cosmic-Ray Induced Neutrons Aboard a High-Altitude Airplane and on the Ground. *Transactions of the American Nuclear Society 2000 Winter Meeting*, 83:261–262, 2000.
- [95] P. Goldhagen. Overview of aircraft radiation exposure and recent ER-2 measurements. *Health Physics*, 79(5):526–544, 2000.
- [96] D. Lal and B. Peters. *Cosmic ray produced radioactivity on earth*, volume 46 of *Handbuch der Physik*, chapter Kosmische Strahlung II, pages 551–612. Springer Verlag, Berlin, Heidelberg, New York, 1967.
- [97] K.K. Gudima, S.G. Mashnik, and V.D. Toneev. Cascade-exciton model of nuclear reactions. *Nuclear Physics A*, 401:329–361, 1983.
- [98] S.G. Mashnik, A.J. Sierk, O. Bersillon, and T. Gabriel. Cascade-exciton model analysis of proton induced reactions from 10 MeV to 5 GeV. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 414:68–72, 1998.
- [99] Yu.N. Shubin, V.P. Lunev, A.Yu. Konobeyev, and A.I. Dityuk. *File of intermediate data library MENDL*. <http://www-nds.iaea.org/ndspub/MENDL2/>.
- [100] B. Kornprobst. priv. Mitteilung, 2000. Radiochemisches Institut der TU München.
- [101] H. Mabuchi, R. Gensho, Y. Wada, and H. Hamaguchi. Phosphorus-32 induced by atmospheric cosmic rays in laboratory chemicals. *Geochemical Journal*, 4:105–110, 1971.
- [102] W. Rühm, G. Rugel, T. Faestermann, K. Knie, and G. Korschinek. On the production of ^{63}Ni due to cosmic radiation. *in Vorbereitung*, 2001.
- [103] B. Heisinger and E. Nolte. Cosmogenic in situ production of radionuclides: Exposure ages and erosion rates. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 172:790–795, 2000.
- [104] B. Heisinger, D. Lal, A.J.T. Jull, P. Kubik, S. Ivy-Ochs, S. Neumaier, K. Knie, V. Lazarev, and E. Nolte. Production of radionuclides by fast muons: Part 1: with reference to select cosmogenic radionuclides. *wird veröffentlicht in NIM B*, 2001.
- [105] E. Nolte. priv. Mitteilung, 2000. TU München, Fakultät für Physik.
- [106] B.P. Heisinger. *Myonen-induzierte Produktion von Radionukliden*. Dissertation, Technische Universität München, 1998.
- [107] S. Charalambus. Nuclear transmutation by negative stopped muons and the activity induced by the cosmic-ray muons. *Nuclear Physics A*, 166:145–161, 1971.
- [108] M. Eckhause, R.T. Siegel, R.E. Welsh, and T.A. Filippas. Muon capture rates in complex nuclei. *Nuclear Physics*, 81:575–584, 1966.

- [109] B. Heisinger, D. Lal, A.J.T. Jull, P. Kubik, S. Ivy-Ochs, K. Knie, and E. Nolte. Production of radionuclides in capture of negative muons: Part 2: with reference to select cosmogenic radionuclides. *wird veröffentlicht in NIM B*, 2001.
- [110] T.M. Beasley and E.E. Held. Nickel-63 in Marine and Terrestrial Biota, Soil, and Sediment. *Science*, 164:1161–1163, 1969.
- [111] A.A. Marchetti, L.J. Hainsworth, J.E. McAninch, M.R. Leivers, P.R. Jones, I.D. Proctor, and T. Straume. Ultra-separation of nickel from copper metal for the measurement of ^{63}Ni by AMS. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 123:230–234, 1997.
- [112] J.E. McAninch, L.J. Hainsworth, A.A. Marchetti, M.R. Leivers, P.R. Jones, A.E. Dunlop, R. Mauthe, J.S. Vogel, I.D. Proctor, and T. Straume. Measurement of ^{63}Ni and ^{59}Ni by accelerator mass spectrometry using characteristic projectile X-rays. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 123:137–143, 1997.
- [113] K. Knie. *Beschleunigermassenspektrometrie mit Isobarenseparation in einem dedizierten gasgefüllten Magneten*. Dissertation, Technische Universität München, 1996.
- [114] K. Knie, T. Faestermann, and G. Korschinek. AMS at the Munich gas-filled analyzing magnet system GAMS. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 123:128–131, 1997.
- [115] K. Knie, T. Faestermann, G. Korschinek, G. Rugel, W. Rühm, and C. Wallner. High-sensitivity AMS for heavy nuclides at the Munich Tandem accelerator. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 172:717–720, 2000.
- [116] G. Rugel, T. Faestermann, K. Knie, G. Korschinek, A.A. Marchetti, J.E. McAninch, W. Rühm, T. Straume, and C. Wallner. Accelerator mass spectrometry of ^{63}Ni using the gas-filled magnet at the Munich Tandem Laboratory. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 172:934–938, 2000.
- [117] A.A. Marchetti. priv. Mitteilung, 2000. Lawrence Livermore National Laboratory, Livermore, USA.
- [118] A.F. Holleman and E. Wiberg. *Lehrbuch der Anorganischen Chemie*. W. de Gruyter, Berlin, New York, 101. edition, 1995.
- [119] G. Rugel. Beschleunigermassenspektrometrie mit ^{63}Ni zur Bestimmung der Fluenz schneller Neutronen von der Hiroshima-Bombe. Diplomarbeit, Technische Universität München, 1998.
- [120] A.A. Marchetti. First measurements of ^{63}Ni produced by fast neutrons in copper samples from Hiroshima. In *8th International Conference on Accelerator Mass Spectrometry*, Wien, 1999.
- [121] R. Middleton. *A Negative-Ion Cookbook*. University of Philadelphia, USA, 1982.
- [122] R. Middleton. A very high intensity negative ion source. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 214:139–150, 1983.

- [123] A. Urban, G. Korschinek, and E. Nolte. Ion Source Study of AMS with ^{41}Ca at the Munich Tandem Accelerator Laboratory. In R.E.M. Hedges and E.T. Hall, editors, *Workshop on Techniques in Accelerator Mass Spectrometry*, pages 108–115, Oxford Radiocarbon Accelerator Unit, Oxford, 1986.
- [124] A. Urban. Beschleunigermassenspektrometrie mit ^{41}Ca . Diplomarbeit, Technische Universität München, 1986.
- [125] G. Korschinek, J. Sellmair, and A. Urban. A study of different ion sources for use in the ^{205}Pb experiment. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 271:328–331, 1988.
- [126] B.M. Smirnov. *Negative Ions*. McGraw-Hill, New York, 1982.
- [127] C. Wallner, T. Faestermann, U. Gerstmann, W. Hillebrand, K. Knie, G. Korschinek, C. Lierse, C. Pomar, and G. Rugel. Development of a very sensitive AMS method for the detection of supernova-produced longliving actinide nuclei in terrestrial archives. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 172:333–337, 2000.
- [128] C. Wallner. *Beschleunigermassenspektrometrie mit Supernova-erzeugten Aktiniden*. Dissertation, Technische Universität München, 2000.
- [129] M.v. Ardenne. *Tabellen zur angewandten Physik*, volume 2. VEB Deutscher Verlag der Wissenschaften, Berlin, 2nd edition, 1973.
- [130] J.E. McAninch. priv. Mitteilung, 1998. Center for Accelerator Mass Spectrometry, Lawrence Livermore National Laboratory, Livermore USA.
- [131] P. Hartung, L. Rohrer, and H. Schnitter. Generating Volt Meter. *Jahresber. des Beschleunigerlab. der Univ. und der TU München*, 1999.
- [132] R.O. Sayer. Semi-empirical formulas for heavy-ion stripping data. *Revue de Physique Appliquee*, 12:1543–1546, 1977.
- [133] R. Lutter, O. Schaile, K. Schöffel, K. Steinberger, P. Thiolf, and C. Broude. MAR_aBQU - a MBS and ROOT based online/offline utility. In *Proceedings of the 11. IEEE NPSS Real Time Conference, Real Time Computing Applications in Nuclear and Plasma Science*, Santa Fe, USA, 1999.
- [134] G.J. Feldman and R.D. Cousins. Unified approach to the classical statistical analysis of small signals. *Physical Review D*, 57(7):3873–3889, 1998.
- [135] G.P. Lamaze and J.A. Grundl. *NBS Measurement Services: Activation Foil Irradiation with Californium Fission Sources*. National Bureau of Standards, U.S. Department of Commerce, Gaithersburg, 1988.
- [136] J.E. McAninch. AMS Measurements of ^{63}Ni at LLNL. In *US-Japan Joint Dosimetry Workshop, Hiroshima, Japan*, March 2000.
- [137] T. Shibata. Present status of ^{63}Ni measurement. In *US-Japan Joint Dosimetry Workshop, Hiroshima, Japan*, March 2000.

- [138] Architectural Witnesses to the Atomic Bombing - A Record for the Future. Hiroshima Peace Memorial Museum, City of Hiroshima, 1996. verfasst in Japanisch.
- [139] Record of Exposed Structures (buildings and others) - Nagasaki 50 Years A-bomb Anniversary. City of Nagasaki, 1996. verfasst in Japanisch.
- [140] S. Fujita. priv. Mitteilung, 2000. Radiation Effects Research Foundation, Hiroshima, Japan.
- [141] S.D. Egbert. priv. Mitteilung, 2001. Science Applications International Corporation, San Diego, California, USA.
- [142] S. Fujita. New samples prospects. In *US-Japan Joint Dosimetry Workshop, Hiroshima, Japan*, March 2000.
- [143] S.D. Egbert. priv. Mitteilung, 1999. Science Applications International Corporation, San Diego, California, USA.
- [144] T. Straume. priv. Mitteilung, 2001. University of Utah, Salt Lake City, UT 84108, USA.
- [145] T. Straume. priv. Mitteilung, 2000. University of Utah, Salt Lake City, UT 84108, USA.
- [146] T. Straume. priv. Mitteilung, 1999. University of Utah, Salt Lake City, UT 84108, USA.
- [147] S. Fujita. priv. Mitteilung, 2001. Radiation Effects Research Foundation, Hiroshima, Japan.
- [148] K. Shizuma. priv. Mitteilung, 2000. Hiroshima University, Japan.
- [149] G. Rummel. *Die Pfarrgemeinde Maria Himmelfahrt Thannhausen*. Gemeindereferent Gerhard Rummel, Thannhausen, 1995.
- [150] G. Rugel. priv. Mitteilung, 1999. Mein Vater Gregor Rugel, Thannhausen.
- [151] K. O'Brien, H.A. Sandmeier, G.E. Hansen, and J.E. Campbell. Cosmic ray induced neutron background sources and fluxes for geometries of air over water, ground, iron, and aluminum. *Journal of Geophysical Research*, 83:114–120, 1978.
- [152] T. Straume. ^{36}Cl Measurements. In *US-Japan Joint Dosimetry Workshop, Hiroshima, Japan*, March 2000.
- [153] T. Huber, W. Rühm, S. Merchel, K. Kato, F. Kubo, V. Lazarev, and E. Nolte. ^{36}Cl Measurements with Respect to the Hiroshima Discrepancy. *Jahresber. des Beschleunigerlab. der Univ. und der TU München*, 1999.
- [154] T. Huber. Die Neutronendiskrepanz in Hiroshima – Messung thermischer & schneller Neutronen. Diplomarbeit, Technische Universität München, 1999.

- [155] W. Rühm, T. Huber, K. Kato, and E. Nolte. Measurement of ^{36}Cl at Munich – a status report. Technical Report SBI 212/11.00, Radiobiological Institute Ludwig - Maximilians University Munich, 2000.
- [156] T. Straume, L.J. Harris, A.A. Marchetti, and S.D. Egbert. Neutrons Confirmed in Nagasaki and at the Army Pulsed Radiation Facility: Implications for Hiroshima. *Radiation Research*, 138:193–200, 1994.
- [157] T. Nakanishi, K. Miwa, and R. Ohki. Specific Radioactivity of Europium-152 in Roof Tiles Exposed to Atomic Bomb Radiation in Nagasaki. *J. Radiat. Res.*, 39:243–250, 1998.
- [158] K. Shizuma. Recent ^{152}Eu Measurements for Nagasaki Samples. In *US-Japan Joint Dosimetry Workshop, Hiroshima, Japan*, March 2000.
- [159] T.C. Huber, W. Rühm, L. Schultz, S. Merchel, K. Kato, T. Jull, H. Loosli, A.M. Kellerer, and E. Nolte. Measurements of the Fast Neutron Fluence and of the Neutron Spectrum of the Atomic Bomb of Hiroshima. *Jahresber. des Beschleunigerlab. der Univ. und der TU München*, 1998.
- [160] W. Rühm. priv. Mitteilung, 2000. Strahlenbiologisches Institut der Universität München.
- [161] M. Mandl. priv. Mitteilung, 2001. Zentralanstalt für Meteorologie und Geodynamik, Wetterdienststelle für Salzburg und Oberösterreich, Salzburg, Österreich.
- [162] N. Nakamura, C. Miyazawa, S. Sawada, M. Akiyama, and A.A. Awa. A close correlation between electron spin resonance (ESR) dosimetry from tooth enamel and cytogenic dosimetry from lymphocytes of Hiroshima atomic-bomb survivors. *Int. J. Radiat. Biol.*, 73(6):619–627, 1998.
- [163] B. Kornprobst. priv. Mitteilung, 2001. Institut für Radiochemie, Technische Universität München.
- [164] A. Ioffe, P. Vorderwisch, and V. Zabijakin. *Influence of the BER II Cold Source Temperature on Neutron Spectra at the Exit of the Neutron Guide NL1B*. Hahn-Meitner-Institut Berlin GmbH, Berlin Neutron Scattering Center, Berlin, Germany, 1995. Internal Report 95BENSC01.
- [165] W. Rühm, B. Schneck, K. Knie, G. Korschinek, L. Zerle, E. Nolte, D. Weselka, and H. Vonach. A new half-life determination of ^{59}Ni . *Planet. Space Sci.*, 42(3):227–230, 1994.

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich bei allen bedanken, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben.

Mein Dank richtet sich in besonderer Weise an:

- Herrn Prof. Dr. A.M. Kellerer als Vorstand des Strahlenbiologischen Institutes für seine immer aufgeschlossene und wohlwollende Unterstützung dieser Arbeit, sein Interesse und seine Impulse das Projekt voranzutreiben,
- Herrn Dr. W. Rühm für die Zusammenarbeit und die sehr kompetente Betreuung dieser Arbeit, die fruchtbaren Diskussionen, und seine Vermittlung in diesem internationalen Projekt,
- Herrn Dr. G. Korschinek (TUM, Fakultät für Physik), der die Experimentierzeiten am Beschleunigerlabor ermöglichte und nicht nur damit auch gute Rahmenbedingungen der Arbeit setzte,
- Herrn Dr. T. Faestermann (TUM, Fakultät für Physik) für die immer kompetente Hilfe bei physikalischen Problemstellungen,
- Herrn Dr. K. Knie (TUM, Fakultät für Physik), der als „Erbauer“ der „GAMS“ jederzeit für ein Gelingen der Experimente sorgte.
- Herrn Prof. Dr. T. Straume (University of Utah, USA), der als „*Principal Investigator*“ der ^{63}Ni -Messungen fungierte sowie
- Herrn Dr. A.A. Marchetti (LLNL) und Herrn Dr. J.E. McAninch (ehemals LLNL), die in den USA die chemische Aufbereitung der Proben und auch die ersten Schritte der Beschleunigermassenspektrometrie organisierten.
- Die MitarbeiterInnen des Strahlenbiologischen Institutes der LMU München für die immer freundliche Aufnahme und Diskussionsbereitschaft im Institut.

- Herrn Dr. Ch. Lierse und Frau B. Kornprobst (Institut für Radiochemie, TUM) für die unabhängige Bestimmung des Nickelgehaltes im Kupferblech des Thannhausener Kirchturmdaches und bei weiteren Proben.
- Frau Dr. B. Schröder-Smeibidl stellvertretend für alle Mitarbeiter am HMI, Berlin, die es ermöglichten eine Kupferprobe für den Wirkungsquerschnitt an einem Strahlrohr zu bestrahlen.
- Herrn Dr. N. Nakamura (RERF, Japan) für seine Gastfreundschaft während eines Aufenthaltes in Hiroshima.
- Die weiteren Mitglieder unserer Gruppe am Beschleunigerlabor, die für eine gewisse Zeit hier tätig waren oder sind: Herrn A. Arazi, Frau Dr. I. Bogdanović, Frau Dipl.-Phys. A. Elhardt, Herrn Dipl.-Phys. T. Schätz, Herrn Dr. A. Wallner und Herrn Dr. C. Wallner für die Mithilfe bei diversen Strahlzeiten und den Vorbereitungen derselben sowie die kritischen Diskussionen.
- Herrn Prof. Dr. E. Nolte für die Diskussionen zum Untergrund durch kosmische Strahlung wie auch Herrn Dr. B. Heisinger, für die Informationen zu den mit Myonen bestrahlten Proben, Herrn Dr. F. Kubo für manche Hilfe bei \LaTeX -Problemen, Herrn Dipl.-Phys. T. Huber für die Diskussionen zu Messungen der Aktivierung mit thermischen Neutronen, Herrn MS. V. Lazarev besonders für die Mithilfe bei den Rechnungen mit CEM95, Frau U. Heim als Zimmerkollegin für die Hilfe bei alltäglichen Problemen, Herrn N. Gärtner als Techniker besonders für seine Wartungsarbeiten.
- Herrn F. Haftlmaier mit dem gesamten Werkstattpersonal für die stete Bereitschaft aktiv an Verbesserungen der Experimentierbedingungen mitzuhelfen.
- Die Rechnergruppe für die Hilfe und Weiterentwicklung der Datenaufnahme.
- Die Operateure und Techniker des Beschleunigerlabores, die mithelfen, diese weltweit empfindlichste Anlage zur Messung von $^{63}\text{Ni}/\text{Ni}$ -Verhältnissen instandzuhalten und zu verbessern.
- Die weiteren Gruppen am Beschleunigerlabor, die zu einer offenen Arbeitsatmosphäre beigetragen haben, die es mir erlaubte Fragen zu stellen.

und zuletzt an meine Eltern, die meine physikalische Ausbildung mitgetragen und ermöglicht haben.

Lebenslauf

Georg Rugel
Röschstraße 3
86470 Thannhausen

geboren am 10.04.1972
Familienstand: ledig

Schulbildung:

09/78-07/82 Grundschule Thannhausen
 (Landkreis Günzburg)
09/82-07/91 Gymnasium bei St. Stephan, Augsburg
 Abitur am 10.07.1991
08/91-10/92 Zivildienst: Amulante Krankenpflege St. Ulrich und Afra, Augsburg

Hochschulausbildung:

11/92-01/98 Studium der technischen Physik an der
 Technischen Universität München
 Diplomarbeit am Beschleunigerlabor Garching
 Diplom am 29.01.1998

Berufstätigkeit:

02/98-04/98 wissenschaftliche Hilfskraft am Beschleunigerlabor Garching
05/98-05/99 wissenschaftlicher Mitarbeiter am
 Strahlenbiologischen Institut der Universität München
06/99-02/01 Promotionsstipendium des Freistaates Bayern
seit 03/01 Wissenschaftlicher Angestellter am Strahlenbiologischen Institut
 der Universität München