

Fakultät für Physik der
Technischen Universität München
Lehrstuhl E15

**^{36}Cl - Messungen zur Erklärung der
Neutronen-Diskrepanz von Hiroshima**

Thomas Christian Huber

Vollständiger Abdruck der von der Fakultät für Physik
der Technischen Universität München
zur Erlangung des akademischen Grades eines
Doktors der Naturwissenschaften
genehmigten Dissertation.

Vorsitzender : Univ.-Prof. Dr. P. Ring
Prüfer der Dissertation : 1. Univ.-Prof. Dr. E. Nolte
2. Univ.-Prof. Dr. P. Böni

Die Dissertation wurde am 14.11.2002 bei der Technischen Universität
München eingereicht und durch die Fakultät für Physik am 18.12.2002
angenommen.

Zusammenfassung

In den Jahren zwischen 1986 und 1998 wurden bei Messungen von Radionukliden, die in Hiroshima durch thermische Neutronen produziert worden waren, Unterschiede zu den im derzeit gültigen Dosimetriesystem DS86 gerechneten Werten festgestellt. Diese wurden in der Literatur als sogenannte *Hiroshima-Diskrepanz* bezeichnet.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde das Radionuklid ^{36}Cl , das durch thermische Neutronen produziert worden war, in Proben aus Hiroshima gemessen. Der Großteil der Proben bestand aus Granit. Es wurden zusätzlich einige Betonproben gemessen, um mögliche Unterschiede zwischen Beton und Granit zu untersuchen. Die Proben aus Hiroshima stammten aus Abständen zwischen 109 m und 1591 m vom Hypozentrum. Granitproben aus Steinbrüchen bei Hiroshima wurden ebenfalls untersucht, um den natürlichen, durch kosmische Strahlung und Uran- Thorium-Zerfälle entstandenen ^{36}Cl -Gehalt zu bestimmen. Dazu wurde die Methode der Beschleunigermassenspektrometrie mit nacktgestriipten Ionen benutzt, die am Beschleunigerlabor der LMU und TUM bereits entwickelt worden war. Zur chemischen Aufbereitung wurde ein neues trägerfreies Verfahren eingesetzt.

Messungen von Proben, die aus Bereichen nahe des Hypozentrums stammen, zeigen auch in dieser Arbeit, wie in der Literatur beschrieben, niedrigere Werte als die DS86-Rechnungen. Eine mögliche Erklärung dafür ist, dass die Explosionshöhe, die im Dosimetriesystem DS86 mit 580 ± 15 m angenommen wird, tatsächlich höher war. Auch der Einfluss von neutronenabsorbierenden Spurenelementen, die in DS86 nicht betrachtet wurden, kann lokal die Fluenz thermischer Neutronen reduzieren. Beide Einflüsse wurden im Rahmen dieser Arbeit untersucht und diskutiert.

Messungen von Proben aus großen Abständen vom Hypozentrum zeigten bis etwa 1200 m keine signifikanten Unterschiede zu den DS86-Rechnungen. Für Proben aus größeren Abständen vom Hypozentrum lagen die Messungen höher als die DS86-Rechnungen. Vergleiche mit den Messungen der Steinbruchproben, die nicht den Neutronen der Atombombe ausgesetzt waren, zeigen, dass der Großteil des gemessenen ^{36}Cl natürlich produziert wurde. Da der natürliche ^{36}Cl -Untergrund von Tiefe im Steinbruch, Erosionsrate und chemischer Zusammensetzung des Granits abhängt, wurde für alle Proben aus Entfernungen >1000 m vom Hypozentrum ein individueller Untergrund berechnet und vom gemessenen Wert abgezogen. Diese korrigierten Werte zeigten bei großen Abständen vom Hypozentrum keine signifikanten Unterschiede zu den DS86-Rechnungen.

Derzeit wird im Rahmen einer internationalen Zusammenarbeit ein neues Dosimetriesystem DS02 entwickelt, bei der die in dieser Arbeit erzielten Ergebnisse wesentlich einfließen. Die Explosionshöhe der Bombe wird darin mit 600 m angenommen. Dadurch passen die Messungen nahe dem Hypozentrum deutlich besser zu den Rechnungen. Bei großen Abständen vom Hypozentrum passen die in dieser Arbeit gemessenen Werte perfekt zu den neuen DS02-Rechnungen.

Zusätzlich wurde in dieser Arbeit versucht, direkt die Fluenz der dosisrelevanten, schnellen Neutronen in Hiroshima durch Messung von ^{39}Ar über die Reaktion $^{39}\text{K}(n,p)^{39}\text{Ar}$ zu bestimmen. Erste Ergebnisse dieser Messungen werden beschrieben.

Inhaltsverzeichnis

Zusammenfassung	i
1 Einleitung	1
1.1 Einführung wichtiger Begriffe	1
1.2 Historischer Hintergrund	2
1.3 Die Life Span Study (LSS)	3
1.4 Das Dosimetriesystem DS86	4
1.5 Experimentelle Überprüfung der DS86-Rechnungen	6
1.5.1 Messung der γ -Fluenz	7
1.5.2 Messung der Neutronenfluenz	7
1.5.2.1 Messung der Fluenz schneller Neutronen	7
1.5.2.2 Messung der Fluenz thermischer Neutronen	9
2 Proben	13
2.1 Proben aus Hiroshima	13
2.1.1 Grabsteine von umliegenden Friedhöfen	15
2.1.2 Bohrkern von Gebäuden	19
2.1.3 Proben für ^{36}Cl und ^{152}Eu Vergleichsmessungen	25
2.2 Proben zur Bestimmung des In-situ-Untergrunds	27
2.3 Zusammenhang der Proben aus Hiroshima mit den Untergrundproben	29
2.4 Nullproben	32
3 Aufbereitung der Proben und AMS-Messung	33

3.1	Aufbereitung der Proben	33
3.1.1	Mechanische Grobaufbereitung	34
3.1.2	Chemische Aufbereitung	34
3.1.3	Tests der Aufbereitung	36
3.2	AMS-Messung	38
3.2.1	Messaufbau	38
3.2.2	Aufgenommene Spektren	40
3.2.3	Ablauf einer Messung	43
3.2.4	Messung von Nullproben	44
4	Ergebnisse der ^{36}Cl Messungen	45
4.1	Messung der Proben aus Hiroshima	45
4.2	Messung des ^{36}Cl In-situ-Untergrunds	59
4.3	Zusammenfassung	61
5	Natürliche In-situ Produktion von ^{36}Cl	63
5.1	Reaktionsmechanismen	63
5.2	Berechnung des natürlichen ^{36}Cl Untergrunds	64
5.3	Berechnung des ^{36}Cl In-situ Untergrunds in Proben aus Hiroshima und Umgebung	68
5.3.1	Vergleich von gerechnetem und gemessenem ^{36}Cl In-situ-Untergrunds in Steinbruchproben aus der Umgebung von Hiroshima	68
5.3.2	Gerechneter ^{36}Cl In-situ-Untergrund für Proben aus Hiroshima	73
6	Diskussion	77
6.1	Korrektur der gemessenen ^{36}Cl Werte mit den gerechneten Werten des In-situ-Untergrunds und Vergleich mit den DS86-Rechnungen	77
6.1.1	Diskussion der Explosionshöhe	84
6.1.2	Korrekturen durch die chemische Zusammensetzung der Proben und des Bodens	85
6.2	Das neue Dosimetriesystem DS02	90

7	Ausblick : Messung von Edelgasen in Granit	93
7.1	Messung von ^{39}Ar in Granitproben aus Hiroshima	93
7.1.1	Produktion und Zerfall von ^{39}Ar	94
7.1.2	Aufbereitung und Messung	95
7.1.3	Abschätzung der ^{39}Ar Produktion durch die Atombombe und des ^{39}Ar Untergrunds im Granit	96
7.1.4	Vorläufige Messergebnisse	97
7.2	Messung von ^3He und ^{131}Xe	97
A	Bestimmung von Konversionsfaktoren	99
B	Chemische Analysen	103
	Abbildungsverzeichnis	109
	Tabellenverzeichnis	113
	Literaturverzeichnis	115
	Danksagung	123

Kapitel 1

Einleitung

Die Spätfolgen kleiner Dosen ionisierender Strahlung auf den menschlichen Körper sind ein wichtiges und viel diskutiertes Thema. Die epidemiologischen Beobachtungen an den Atombombenüberlebenden von Hiroshima und Nagasaki [PSP⁺96,SPP⁺99] stellen die wichtigste Grundlage für Risikoabschätzungen zur Wirkung von γ - bzw. Neutronen-Strahlung dar. Etwa 120000 Überlebende der Atombombenabwürfe von Hiroshima und Nagasaki wurden in der sogenannten Life Span Study (LSS) erfasst und werden seit Anfang der 50er Jahre medizinisch überwacht. Alle Todesfälle und Todesursachen werden im Rahmen der LSS dokumentiert.

Für eine Quantifizierung von Dosiseffektbeziehungen müssen die Strahlendosen der einzelnen Überlebenden bekannt sein. Das gegenwärtig noch gültige Dosimetriesystem DS86 [Roe87] ordnet etwa 87000 Überlebenden individuelle Strahlendosen zu. Mit Hilfe dieser Informationen ist es möglich, Aussagen über Langzeitfolgen kleiner Strahlendosen bis in den Bereich von etwa 100 mSv zu machen. Da das Dosimetriesystem DS86 auf Computersimulationen basiert, ist eine experimentelle Überprüfung dieser Rechnungen notwendig.

1.1 Einführung wichtiger Begriffe

Der Explosionsort einer Atombombe wird Epizentrum genannt. Die senkrechte Projektion des Epizentrums auf den Erdboden nennt man Hypozenrum. Die Explosionshöhe H wurde in Hiroshima zu $(580 \pm 15\text{m})$ [Roe87] abgeschätzt.

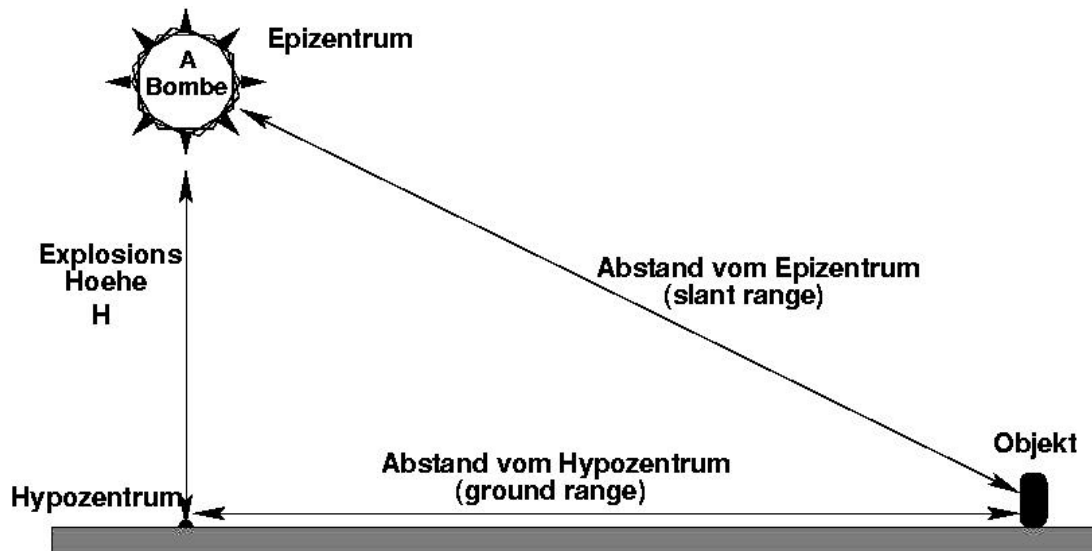


Abb. 1.1: Wichtige Abstände und Begriffe.

Für ein Objekt bzw. einen Überlebenden werden 2 Abstände angegeben: einerseits der Abstand zum Hypozentrum r_H (im Englischen ground range genannt), andererseits der Abstand zum Epizentrum r_E (im Englischen slant range genannt).

1.2 Historischer Hintergrund

Am 6. August 1945 wurde über Hiroshima die erste auf der Spaltung von Uran basierende Atombombe abgeworfen. Zu diesem Zeitpunkt befanden sich 390000 Menschen in der Stadt. In einem Umkreis von 2 km vom Hypozentrum wurden nahezu alle Gebäude durch die Druckwelle, die intensive Hitzestrahlung bzw. durch die nachfolgenden Brände zerstört (siehe Abb. 1.2). Bis zu einer Entfernung von 4 km vom Hypozentrum wurden an Opfern Verbrennungen festgestellt. Dazu kamen noch die Auswirkungen von Neutronen- und γ -Strahlung, wie z.B. Haarausfall, Übelkeit und Infektionen.

Aufgrund der unmittelbaren Auswirkungen starben in Hiroshima bis Ende des Jahres 1945 etwa 140000 Menschen.



Abb. 1.2: Blick auf den sogenannten Atombombendom und die Umgebung des Hypozentrum in Hiroshima im Oktober 1945. Abbildung aus [CoH96].

1.3 Die Life Span Study (LSS)

Von etwa 120000 Überlebenden aus Hiroshima und Nagasaki, von denen sich ein großer Teil im Umkreis von 2,5 km vom Hypozentrum aufgehalten hat, werden seit mehr als 50 Jahren im Rahmen der LSS medizinische Daten gesammelt und epidemiologisch ausgewertet. Etwa 2/3 der Untersuchten stammen aus Hiroshima. Durchgeführt wurden diese Untersuchungen von 1947-1975 von der *Atomic Bomb Casualty Commission* (ABCC), später von der *Radiation Effects Research Foundation* (RERF). Für die Überlebenden gibt es regelmäßige medizinische Untersuchungen. Alle Krankheiten und Todesfälle werden systematisch registriert [PSP⁺96,SPP⁺99]. Das Dosimetriesystem DS86 stellt für etwa 87000 untersuchte Personen mittels eines Rechenmodells individuelle Organdosen zur Verfügung. Die Strahlendosen der betroffenen Personen in Hiroshima und Nagasaki hängen vom Aufenthaltsort der Person zum Zeitpunkt der Explosion ab. Dabei spielen sowohl die Entfernung vom Epizentrum als auch die Abschirmung der umgebenden Gebäude eine Rolle. Daraus ergibt sich für die Betroffenen ein breites Dosispektrum.

Als Kontrollgruppe dienen Personen, die sich zum Zeitpunkt der Explosion weit vom Hypozentrum entfernt aufgehalten haben. Bei deren Auswahl wurde auf eine passende Geschlechts- und Altersverteilung geachtet.

1.4 Das Dosimetriesystem DS86

Bereits wenige Tage nach der Explosion war klar, dass die Ursache der Zerstörungen nur eine Nuklearwaffe sein konnte. Schon damals wurden das Hypozentrum und die Explosionshöhe bestimmt [KT53]. Außerdem wurde versucht die Strahlung durch Messung von Aktivierungsprodukten zu bestimmen. So wurde ^{32}P ($T_{1/2} = 14,26$ d), das durch schnelle Neutronen über die Reaktion $^{32}\text{S}(n,p)^{32}\text{P}$ in schwefelhaltigem Klebstoff von Isolatoren erzeugt wurde, gemessen [YS53,Sug53].

Von amerikanischer und japanischer Seite wurden seither große Anstrengungen unternommen, um die genauen Neutronen- und γ -Dosen, denen die Überlebenden ausgesetzt waren, zu bestimmen. Erste Abschätzungen der individuellen Dosen beruhten hauptsächlich auf Daten aus Testexplosionen auf dem Nevada Testgelände. Dies führte zuerst zu dem Dosimetriesystem T57D (Tentative 1957 Doses) [Ara60] und später zu T65D (Tentative 1965 Doses)[MS68]. Das nachfolgende und derzeit gültige Dosimetriesystem DS86 [Roe87] basiert dagegen im Wesentlichen auf Computerrechnungen. Bei den DS86-Rechnungen wurde zuerst der Quellterm der Bombe bestimmt. Dann wurde der Neutronen- und γ -Transport durch die Luft, unter Berücksichtigung der damals herrschenden atmosphärischen Bedingungen wie Luftfeuchtigkeit, berechnet. Als Ergebnis stellt DS86 energieabhängige Neutronen- und γ -Fluenzen als Funktion des Abstands vom Hypozentrum 1m über dem Boden im Freien zur Verfügung. Die Umrechnung dieser Fluenzen in individuelle Organdosen der Überlebenden stellt einen weiteren wichtigen Teil der DS86-Rechnungen dar. Dazu wurden typische japanische Häuser bzw. Häuseranordnungen modelliert. Dadurch können Energie- und Winkelverteilung der Neutronen- und γ -Strahlung an jeder beliebigen Stelle, sowohl innerhalb als auch in der Nähe des Hauses, berechnet werden. Zur Bestimmung der Organdosen wurden menschliche Phantome in unterschiedlichen Körperhaltungen modelliert, um Transmissionsfaktoren ableiten zu können. Die Methodik ist in Abb. 1.3 veranschaulicht. Auf diese Art wurden für mehr als 86000 Überlebende Neutronen- und γ -Dosen berechnet. In Abbildung 1.4 ist für jeden dieser Personen aus Hiroshima die erhaltene Dickdarmdosis in Abhängigkeit vom Aufenthaltsort dargestellt. Man erkennt, dass innerhalb eines Umkreises von etwa 1 km vom Hypozentrum nur sehr wenige Menschen überlebt haben. Hier war die Abschirmung so groß, dass eine genaue Berechnung der Dosis für diese Personen nicht möglich ist.

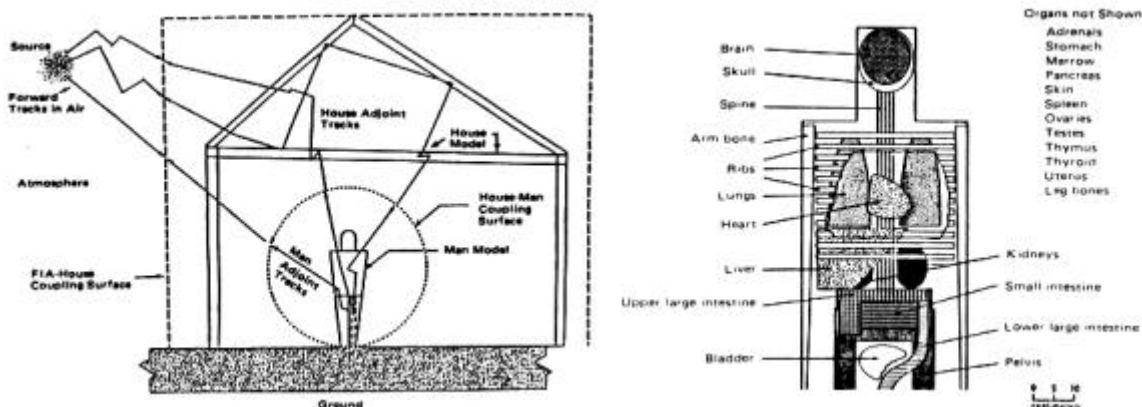


Abb. 1.3: Veranschaulichung der DS86-Rechnungen. Die linke Abbildung zeigt den Weg der Strahlung von der Bombe durch die Luft, in das Haus und zum Menschen. Die rechte Abbildung zeigt ein menschliches Phantom mit den Organen, wie es in DS86 benutzt wurde. Beide Abbildungen aus[Roe87].

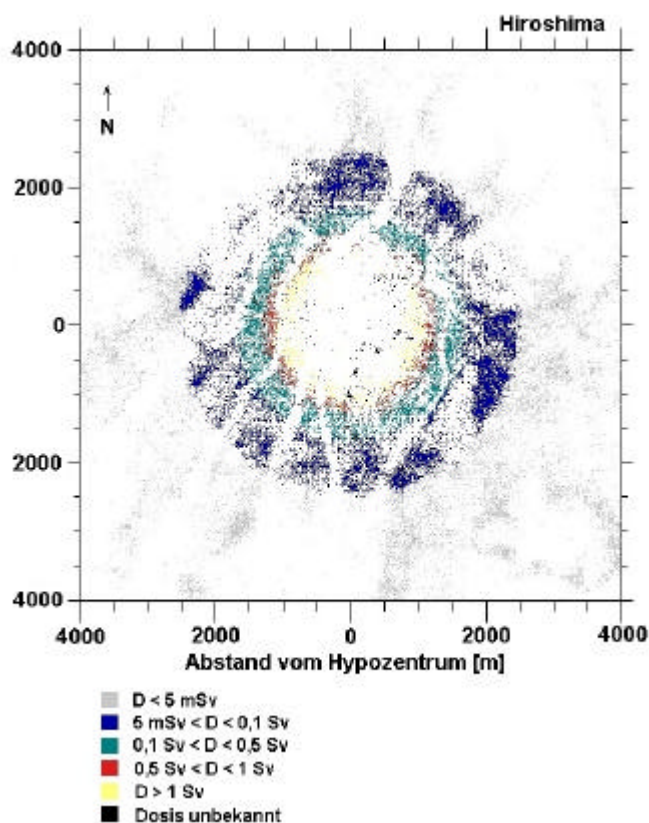


Abb. 1.4: DS86-Dickdarmdosis in Abhängigkeit vom Aufenthaltsort in Hiroshima zum Zeitpunkt der Explosion. Jeder Punkt stellt den Aufenthaltsort eines Überlebenden dar, die Farbe zeigt die erhaltene Dosis. Deutlich sind die Flussarme zu erkennen, auf denen sich nur wenige Menschen aufgehalten haben. Abbildung nach [CK98].

1.5 Experimentelle Überprüfung der DS86-Rechnungen

Als Grundlage der DS86-Rechnungen dienten Daten aus Testexplosionen von Bomben des Nagasaki-Typs. Dazu waren auf dem Testgelände in Nevada typische japanische Häuser nachgebaut und an verschiedenen Stellen Fluenzsonden angebracht worden, um z.B. die abschirmende Wirkung von Häusern zu untersuchen [Roe87]. Außerdem war ein 465 m hoher Turm gebaut worden, auf dem ein unabgeschirmter Reaktor oder eine ^{60}Co -Quelle montiert werden konnten [Aux77]. Zusätzlich hatte man auch die Hiroshima Bombe nachgebaut (little boy replica) und zwei subkritische Massen aus angereichertem ^{235}U im Innern so nah zusammen gebracht, dass das System fast kritisch wurde. Die emittierten Neutronen waren dann winkelabhängig nachgewiesen und mit DS86-Rechnungen verglichen worden.

Zusätzlich zu den Testexperimenten wurden auch in Proben aus Hiroshima und Nagasaki Spuren der Neutronen- und γ -Strahlung gemessen.

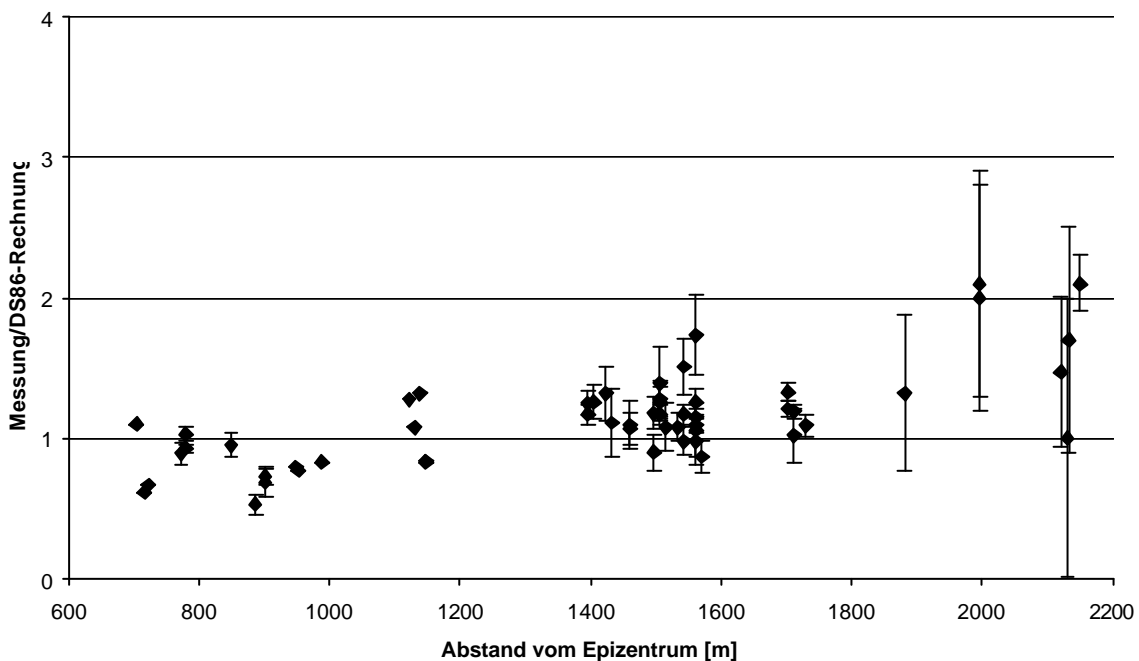


Abb 1.5: Vergleich der mittels Thermolumineszenz gemessenen mit den in DS86 gerechneten g -Fluenzen (nach[NHI95]). Die Fehlerbalken beziehen sich nur auf die experimentellen Unsicherheiten.

1.5.1 Messung der γ -Fluenz

Die Messung der Thermolumineszenz geeigneter Materialien (z.B. Quarz aus Ziegeln) ermöglichte es, die Fluenz der γ -Strahlung in diesem Material zu bestimmen. Diese Messungen wurden an vielen Proben aus Hiroshima und Nagasaki durchgeführt [Roe87]. Die an Proben aus Hiroshima erzielten Messergebnisse sind in Abb. 1.5 dargestellt. Sie zeigen im Wesentlichen eine gute Übereinstimmung mit den DS86-Rechnungen [NHI95]. Allerdings zeigt diese Zusammenstellung, dass die Messungen nahe am Epizentrum eine kleinere γ -Fluenz ergeben. Messungen bei großen Entfernungen vom Epizentrum zeigen allerdings, bei großem Fehler, eher größere γ -Fluenzen als in DS86 gerechnet.

1.5.2 Messung der Neutronenfluenz

Man unterscheidet die Neutronen nach ihrer Energie. Als schnelle Neutronen bezeichnet man Neutronen mit einer Energie größer 1MeV. Sie geben direkte Hinweise auf die prompt erzeugten Neutronen. Schnelle Neutronen sind für die Neutronendosen der Überlebenden maßgeblich verantwortlich. Bei Neutronen in einem Energiebereich von 0,4 eV bis 1 MeV spricht man von epithermischen Neutronen, für Energien kleiner 0,4 eV dagegen von thermischen Neutronen. Beide entstehen aus schnellen Neutronen durch Moderation. Wirkungsquerschnitte für (n, γ) Reaktionen fallen proportional zu $\frac{1}{\sqrt{E}}$ mit der Neutronenenergie ab, haben allerdings oft im Bereich epithermischer Energien Resonanzen.

Zur Bestimmung der Neutronenfluenz in Hiroshima wurden radioaktive Isotope, die durch Neutronen der Atombombe produziert worden waren, gemessen. Tabelle 1.1 gibt einen Überblick der bisher veröffentlichten Messungen und der dabei verwendeten Messmethoden.

1.5.2.1 Messung der Fluenz schneller Neutronen

Das erste Radionuklid, das in Hiroshima nach der Explosion nachgewiesen werden konnte, war ^{32}P , das aus Schwefel über die Reaktion $^{32}\text{S}(n,p)^{32}\text{P}$ durch schnelle Neutronen erzeugt worden war. Als Probenmaterial diente schwefelhaltiger Klebstoff, der zum Befestigen von Keramikisolatoren an Telegraphenmasten benutzt worden war.

Radio-Nuklid	Reaktion	$T_{1/2}$	Methode	Produziert durch	Referenzen
^{32}P	$^{32}\text{S}(n,p)^{32}\text{P}$	14,26 d	β - Messung	n_f	[Roe87,YS53,Sug53]
^{60}Co	$^{59}\text{Co}(n,\gamma)^{60}\text{Co}$	5,27 a	γ - Messung	$n_{th} + n_{epi}$	[HMS ⁺ 67,KDE ⁺ 90, NOM ⁺ 91,SIH ⁺ 92, KH93,SIH ⁺ 97, SIH ⁺ 98]
^{152}Eu	$^{151}\text{Eu}(n,\gamma)^{152}\text{Eu}$	13,3 a	γ - Messung	n_{th}	[SIH ⁺ 93,NOM ⁺ 91, SIH ⁺ 92,NIKS83, KHA ⁺ 90, SIH ⁺ 97, HYS ⁺ 89, OM83]
^{154}Eu	$^{153}\text{Eu}(n,\gamma)^{154}\text{Eu}$	8,8 a	γ - Messung	$n_{th} + n_{epi}$	[NOM ⁺ 91]
^{36}Cl	$^{35}\text{Cl}(n,\gamma)^{36}\text{Cl}$	$3,00 \cdot 10^5$ a	AMS	n_{th}	[HHK ⁺ 86,SEW ⁺ 92, KHY ⁺ 90,RKK ⁺ 95]
^{41}Ca	$^{40}\text{Ca}(n,\gamma)^{41}\text{Ca}$	$1,03 \cdot 10^5$ a	AMS	n_{th}	[RKK ⁺ 95,KMN ⁺ 87, RKK ⁺ 92,Rüh93]
^{63}Ni	$^{62}\text{Ni}(n,\gamma)^{63}\text{Ni}$ $^{63}\text{Cu}(n,p)^{63}\text{Ni}$	100 a	β - Messung AMS	n_{th} n_f	[SIH ⁺ 97] [Rug98,RKR ⁺ 00, Rug02]

Tabelle 1.1: Zusammenstellung der über Neutronenaktivierung entstandenen Radionuklide, die in Hiroshima gemessen wurden. n_f steht für schnelle Neutronen, n_{th} für thermische. n_{epi} deutet einen wesentlichen Beitrag des Resonanzintegrals an. Die Halbwertszeiten $T_{1/2}$ sind [Kar95] entnommen.

Diese ^{32}P -Messungen, die mit einem Lauritsen-Elektroskop bereits 35-37 Tage nach der Explosion durchgeführt worden waren, wurden wegen ihrer Wichtigkeit im Rahmen der Entwicklung von DS86 genau überprüft und zum Testen der DS86-Rechnungen benutzt. Nahe des Hypozentrums stimmen die DS86-Rechnungen gut mit den ^{32}P -Messungen überein, für große Entfernungen vom

Hypozentrum sind die Messungen wegen der großen Fehler nicht mehr aussagekräftig (vgl. Abb. 1.6).

Um die Fluenz schneller Neutronen auch bei großen Abständen experimentell zu überprüfen, werden derzeit Messungen von ^{63}Ni , das aus ^{63}Cu über die Reaktion $^{63}\text{Cu}(n,p)^{63}\text{Ni}$ entstanden ist, durchgeführt [Rug02].

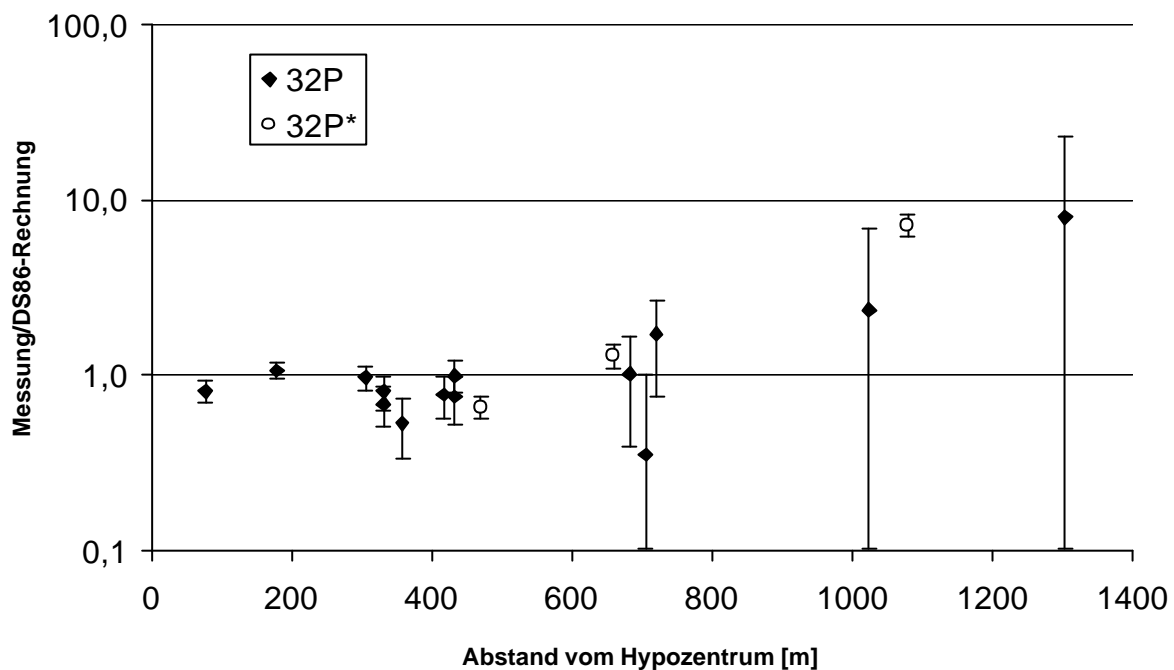


Abb 1.6: Vergleich der gemessenen [YS53,Sug53] ^{32}P -Aktivitäten mit den in DS86 gerechneten Aktivitäten. Die mit $^{32}\text{P}^*$ (o) bezeichneten Werte wurden in DS86 nicht herangezogen, da ihre genaue Position nicht mehr zweifelsfrei rekonstruiert werden konnte. Die Fehlerbalken beziehen sich nur auf experimentelle Unsicherheiten.

1.5.2.2 Messung der Fluenz thermischer Neutronen

Die meisten in Proben aus Hiroshima gemessenen Radionuklide wurden durch thermische Neutronen über (n,γ) Reaktionen erzeugt (siehe Tab. 1.1). Da thermische Neutronen durch Moderation aus schnellen Neutronen entstehen, lassen Messungen der Fluenz thermischer Neutronen indirekt Rückschlüsse auf die Fluenz schneller Neutronen zu.

In den letzten Jahrzehnten wurden von mehreren Gruppen aus Japan, USA und der TU-München Messungen veröffentlicht. Abbildung 1.7 zeigt eine Zusammenstellung der Messungen, die zu Beginn dieser Arbeit veröffentlicht waren. Nahe des Epizentrums zeigen die Messungen geringere Werte als in DS86 gerechnet. Für Entfernungen $>1000\text{m}$ ergeben sich jedoch zum Teil sehr viel größere Neutronenfluenzen als in DS86 gerechnet. Bereits im Abschlussbericht von DS86 wird auf eine Diskrepanz zwischen gerechneten und von Hashizume et al. 1967 gemessenen ^{60}Co -Werten hingewiesen [HMS⁺67][Roe87]. Dieses Phänomen wird oft als *Hiroshima-Diskrepanz* bezeichnet. Diese Diskrepanz ist umso wichtiger, da erst ab einer Entfernung von 1000m Menschen die Explosion überlebt haben. Wenn sich also bestätigt hätte, dass DS86 die Neutronenfluenz in diesem Bereich drastisch unterschätzt, so hätte dies Auswirkungen auf die Risiko-abschätzungen für Neutronen- und γ -Strahlung gehabt, die ihrerseits als Grundlage zur Bestimmung von Strahlungsrisiken dienen.

Die Klärung dieser "Hiroshima-Diskrepanz" war die Motivation für diese Arbeit, in der systematisch Granitproben aus Hiroshima auf ihren ^{36}Cl -Gehalt untersucht wurden.

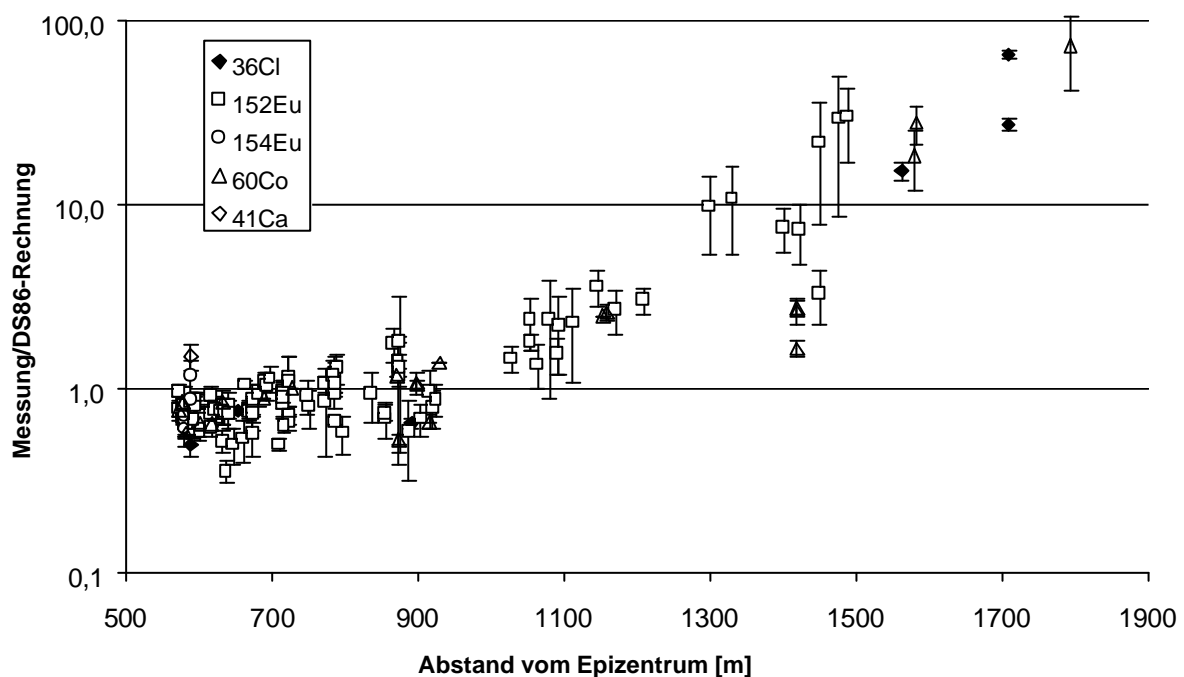


Abb. 1.7: Messungen von Radionukliden, die durch thermische Neutronen produziert wurden, im Vergleich zu den mit DS86 gerechneten Aktivierungen. Besonders ^{36}Cl -Messungen bei großen Entfernungen zeigen große Unterschiede. Stand 1999.

Gliederung der Arbeit

- Kapitel 2 gibt einen Überblick über alle Proben, die im Rahmen dieser Arbeit beschafft und untersucht wurden. Dabei wird die Herkunft der Proben und das Probenmaterial genau beschrieben.
- In Kapitel 3 wird die mechanische und chemische Probenaufbereitung beschrieben. Außerdem wird die verwendete Messmethode der Beschleunigermassenspektrometrie mit nacktgestriipten Ionen erklärt, es werden typische Spektren gezeigt und die Nachweisgrenzen bestimmt.
- Eine Zusammenstellung der Ergebnisse aller im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Proben wird in Kapitel 4 gegeben. Die Ergebnisse werden im Einzelnen diskutiert und teilweise mit anderen Messungen verglichen.
- In Kapitel 5 wird gezeigt, wie der natürliche ^{36}Cl -Untergrund für jede Probe berechnet werden kann. Es werden Rechnungen für alle Proben gezeigt, für die eine genaue Kenntnis des Untergrunds nötig ist. Die gerechneten Werte für den ^{36}Cl -Untergrund werden mit Werten verglichen, die in unbestrahlten Graniten aus der Umgebung von Hiroshima gemessen wurden.
- Eine Diskussion aller im Rahmen dieser Arbeit gemessenen und gerechneten Werte enthält Kapitel 6. Dabei werden die in Proben aus Hiroshima gemessenen Werte mit gerechneten Werten verglichen. Die Rechnungen wurden sowohl mit der im Dosimetriesystem DS86 verwendeten Methodik, als auch mit Hilfe des neuen Dosimetriesystems DS02 durchgeführt. Mögliche Abweichungen zwischen Messung und Rechnung werden diskutiert.
- Kapitel 7 bietet einen Ausblick über Messungen von Edelgasen.

Kapitel 2

Proben

Der größte Teil der in dieser Arbeit untersuchten Proben bestand aus Granit. Granit enthält Cl als Spurenelement mit einem typischen Anteil von ca. 100 ppm (siehe Anhang B). Er ist ein weit verbreiteter Baustoff. Der Vorteil gegenüber Beton liegt darin, dass eine Bestimmung des natürlicherweise vorhandenen ^{36}Cl -Gehalts relativ einfach ist. Beton wird aus verschiedenen Bestandteilen zusammengemischt, von denen jeder einen individuellen natürlichen ^{36}Cl -Gehalt hat. Da die in Abb. 1.7 gezeigten ^{36}Cl -Messungen bei großen Abständen zum Hypozentrum an Betonproben durchgeführt worden waren [SEW⁺92], erschien es trotzdem notwendig, auch Betonproben zu messen, um mögliche Unterschiede zu den Granitproben zu untersuchen.

Neben Proben aus Hiroshima wurden auch Steine aus japanischen Steinbrüchen gemessen, um den natürlicherweise durch kosmische Strahlung und Neutronen aus Uran- Thorium-Zerfällen vorhandenen ^{36}Cl -Gehalt zu bestimmen.

2.1 Proben aus Hiroshima

Durch die Atombombenexplosion und die anschließenden Brände wurden in einem weitem Umkreis vom Hypozentrum die meisten Gebäude zerstört. Nur wenige Gebäude aus Stahl-beton überstanden die Explosion als Ruine. Eine Zusammenstellung von diesen Gebäuden, aber auch von Brücken und Friedhöfen, die von der Explosion nicht vollständig zerstört wurden, gibt es vom Friedensmuseum in

Hiroshima [CoH96]. Als Proben für diese Arbeit dienten Bohrkerne von Gebäuden und Grabsteine von umliegenden Friedhöfen. Die Proben stammen aus Entfernungen von 109 m bis 1591 m vom Hypozentrum. Die meisten Proben wurden von Dr. K. Kato vom *Hiroshima Prefectural College of Health Sciences* in den Jahren 1986 bis 2002 beschafft. Die Probe vom Postal-Savings-Office wurde von Dr. Fujita (*RERF*) bereitgestellt. Von zwei Betonproben des Rotkreuz-Hospitals wurde uns Probenmaterial von

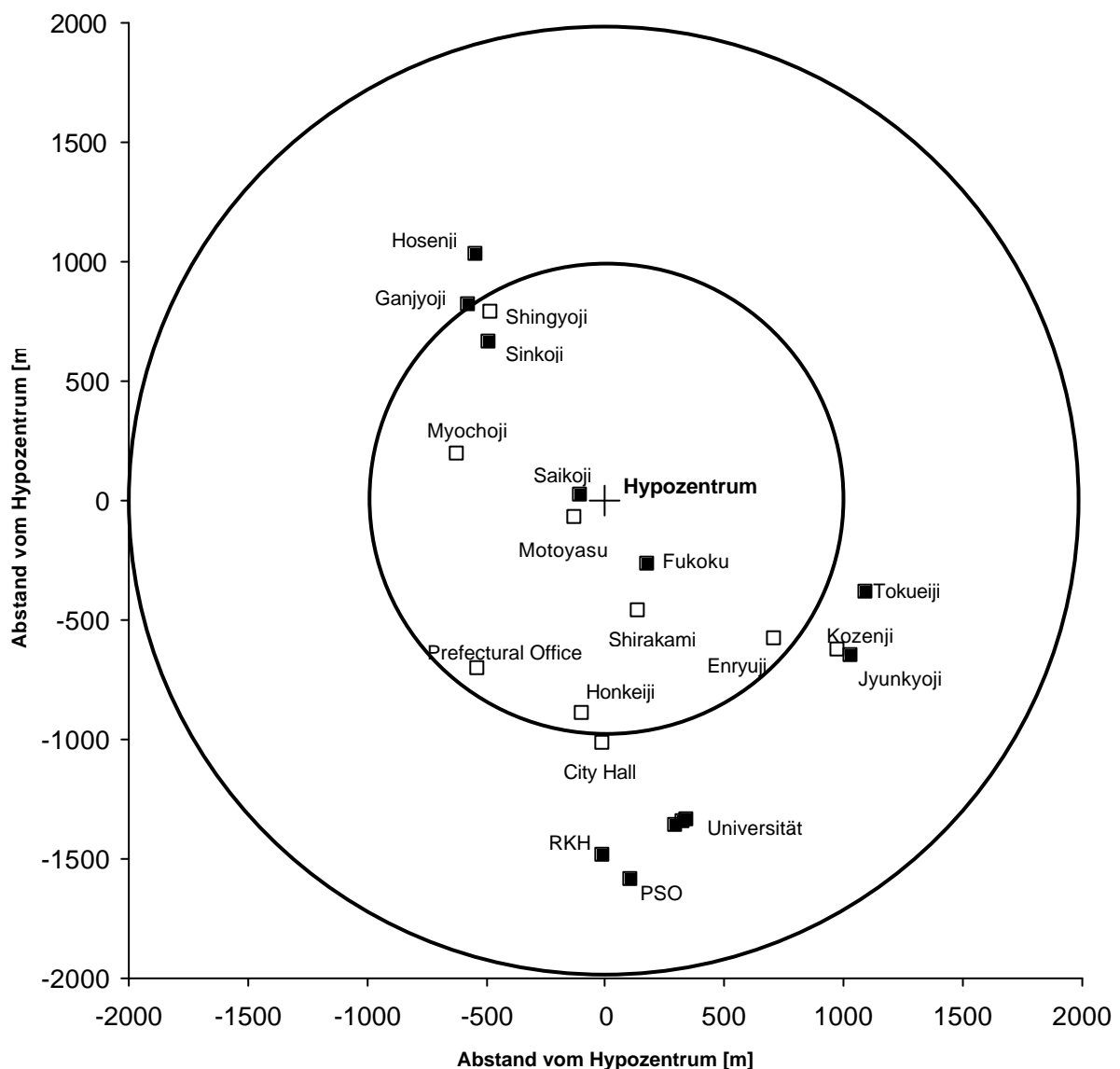


Abb. 2.1: Lage aller Granit- und Betonproben aus Hiroshima, die im Rahmen dieser Arbeit untersucht wurden. Dabei stellen \blacksquare die hauptsächlich untersuchten Steine dar. Die mit \square bezeichneten Proben sind die sog. "Vergleichsproben".

Dr. Straume (University of Utah) geschickt. Eine zweite Gruppe von Proben sind die von Dr. Hoshi (Hiroshima University) bereitgestellten sog. "Vergleichsproben". Diese Proben wurden zerteilt und an verschiedene Labors geschickt, um Vergleichsmessungen durchzuführen. Eine Darstellung aller Proben ist in Abb. 2.1 gegeben. Eine Zusammenfassung geben die Tabellen 2.1 und 2.2 .

2.1.1 Grabsteine von umliegenden Friedhöfen

Die meisten Proben, die in dieser Arbeit untersucht wurden, sind Granitgrabsteine von Friedhöfen aus Hiroshima. Grabsteine lassen sich durch Inschriften genau datieren. So ist sichergestellt, dass der Grabstein zur Zeit der Explosion bereits aufgestellt war. Grabsteine von nicht mehr benötigten Gräbern werden entweder an einem bestimmten Ort auf dem Friedhof oder entlang der Friedhofsmauer gelagert (siehe Abb. 2.5 und 2.4). Außerdem sind die Friedhöfe sehr klein. Darum ist es nicht wichtig, die genaue Lage der Grabsteine zum Zeitpunkt der Explosion zu kennen. Die Proben wurden nach dem Friedhof bzw. nach dem zugehörigen Tempel benannt.

- **Saikoji-Tempel, 109m vom Hypozentrum**

An einem Grabstein dieses Friedhofs wurden bereits in der Vergangenheit ausführliche Untersuchungen durchgeführt [RKK⁺92,RKK⁺95], und dabei wurde erstmals in einer Probe aus Hiroshima das ³⁶Cl/Cl-Verhältnis gemessen. Von diesem Grabstein wurden zwei Proben aufbereitet und gemessen, um sie mit den früheren Messungen zu vergleichen. Eine Probe stammte vom Bohrkern N31 aus einer Tiefe von 9,4-11,4 cm von der Oberfläche. Der Bohrkern N22 wurde komplett gemahlen. Davon wurden 75 g benutzt, um die zweite Probe aufzubereiten. (siehe Abb. 2.2 und 2.3).

- **Sinkoji Tempel, 830m vom Hypozentrum**

Von diesem Friedhof wurden Proben von vier Grabsteinen aufbereitet und gemessen. Dabei sollte vor allem untersucht werden, wie unterschiedlich die Ergebnisse von verschiedenen Grabsteinen eines Friedhofs sein können. Die Proben werden Sinkoji 1-4 genannt. (siehe Abbildung 2.4)



Abb. 2.2: Oberteil des Saikoji-Grabsteins (links). Saikoji Friedhof Oktober 1945 (rechts) [CoH96].

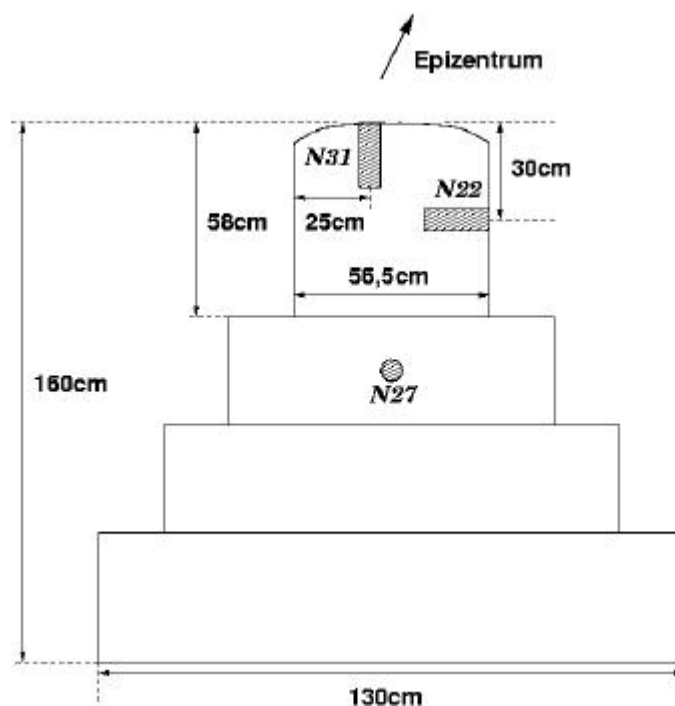


Abb. 2.3: Schnitt durch den Saikoji-Grabstein. Die Bohrkerne haben eine Länge von 21 cm und einen Durchmesser von 5 cm.



Abb. 2.4: Grabsteine auf dem Sinkoji-Friedhof. Deutlich ist zu erkennen, wie alte Grabsteine entlang der Friedhofsmauer aufgehoben werden.

- **Ganjoyoji Tempel, 1003 m vom Hypozentrum** (Abb. 2.5)
- **Tokueiji Tempel, 1158 m vom Hypozentrum**
- **Hosenji Tempel, 1167 m vom Hypozentrum**
- **Jyunkyoji Tempel, 1221 m vom Hypozentrum** (Abb. 2.6)

Zur Klärung der Hiroshima Diskrepanz (siehe Kapitel 1.5.2.2) wurden für diese Arbeit vor allem Grabsteine aus Entfernungen >1000 m vom Hypozentrum gesucht. Das Ergebnis dieser systematischen Suche waren sieben Grabsteine von vier verschiedenen Friedhöfen. Dabei stammen 3 Proben von Hosenji, zwei von Ganjoyoji und je eine von Tukueiji und Jyunkyoji.

Da die Grabsteine aus verschiedenen Richtungen relativ zum Hypozentrum stammen, konnten mögliche richtungsabhängige Asymmetrieffekte der Neutronenfluenzen ebenfalls untersucht werden.



Abb. 2.5: Blick auf den Ganjyoji-Friedhof (links) [Kat99]. Hinter dem Ganjyoji Tempel werden, wie auf allen japanischen Friedhöfen, alte Grabsteine aufbewahrt (rechts).



Abb. 2.6: Jyunkyoji-Friedhof nach der Bombardierung (links). Rechts sieht man auf einem Grabstein abgebrochene Granitstücke liegen. Diese wurden nach München geschickt und gemessen. [Kat99].

2.1.2 Bohrkerne von Gebäuden.

Neben den Granitgrabsteinen wurden auch Proben von Gebäuden untersucht. Dazu standen hauptsächlich Bohrkerne zur Verfügung. Ein Vorteil gegenüber den Grabsteinen ist eine Bestimmung

der genauen Position der Probe. So können Abschirmung und Höhe über dem Boden genau berücksichtigt werden. In Bohrkernen von Gebäuden können auch Tiefenprofile gemessen werden. Da ein freistehender Grabstein wegen der isotropen Verteilung der thermischen Neutronen von allen Seiten bestrahlt wird, ist dies hier nur begrenzt möglich. Es wurde außerdem versucht, von ein und demselben Gebäude sowohl Granit als auch Betonproben zu erhalten, um mögliche Unterschiede zu untersuchen.

Da der Großteil der Gebäude, die die Explosion überstanden hatten, inzwischen abgerissen ist, war es nicht leicht, geeignete Proben zu finden.

- **Fukoku-Gebäude, 316m vom Hypozentrum (Abb. 2.7)**

Bereits 1986, während der Untersuchungen am Saikoji Grabstein, wurde von diesem Gebäude ein 19 cm langer Bohrkern aus einer Höhe von 6,8 m als Probe genommen. Die ersten 9 cm dieses Bohrkerns bestehen aus Granit, der Rest aus Beton. Kurz nach der Probennahme wurde bereits in Japan eine Probe (0-1 cm von der Oberfläche) aufbereitet und nach München geschickt. Zur Herstellung dieser Probe wurde nur Glimmer verwendet. Im Rahmen dieser Arbeit wurden zwei weitere Proben aufbereitet: eine Granitprobe (2,2-4,5 cm von der Oberfläche) und eine Betonprobe aus einer mittleren Tiefe von 18 cm.

- **Fakultät der Wissenschaften der Universität Hiroshima (sog. E-Gebäude), 1377-1390m vom Hypozentrum (Abb. 2.8)**

Vom sogenannten E-Gebäude wurden von Granitplatten, die einen entlang des Gebäudesockels verlaufenden Regenwasserkanal abdecken, Scheiben von 10 cm Durchmesser herausgebohrt (siehe Abb. 2.9 und 2.10). Die oberen 2 cm dieser Scheiben wurden nach München geschickt. Vier Platten stammten von der Nord-West-Ecke des Gebäudes und waren direkt den Atombombenneutronen ausgesetzt. Die fünfte stammte von der Rückseite des Gebäudes und wurde somit vom Gebäude selbst abgeschirmt.



Abb. 2.7: Fukuoka-Gebäude nach der Bombardierung (links) und im Jahr 1950 (rechts). [CoH96].



Abb. 2.8: Südseite des E-Gebäudes Oktober 1945 (links) [CoH96]. Nordecke des E-Gebäudes Dezember 2000 (rechts).

Später wurden von der Fassade der Nord-West-Seite sechs Bohrkerne entnommen (siehe Abb. 2.9). Drei davon stammen aus dem Gebäudesockel aus einer Höhe von 1,2 m über dem Boden (siehe Abb. 2.10). Diese Bohrkerne bestehen außen aus Granit und innen aus Beton (siehe Abb. 2.11). Die restlichen drei Bohrkerne stammen aus Höhen von 4,93 m und 8,04 m. Sie bestehen außen aus einer Schicht Ziegel und Mörtel und innen aus Beton (Abb. 2.11).

Der Abstand des E-Gebäudes vom Hypozentrum und die Tatsache, dass sowohl Granit- als auch Betonproben zur Verfügung stehen, machen Messungen hier besonders interessant. So können in

geeigneter Entfernung einerseits die sehr hohen ^{36}Cl -Konzentrationen, die von [SEW⁺92] berichtet wurden, überprüft werden, andererseits kann untersucht werden, ob Unterschiede zwischen Beton und Granit solche Werte erklären können.

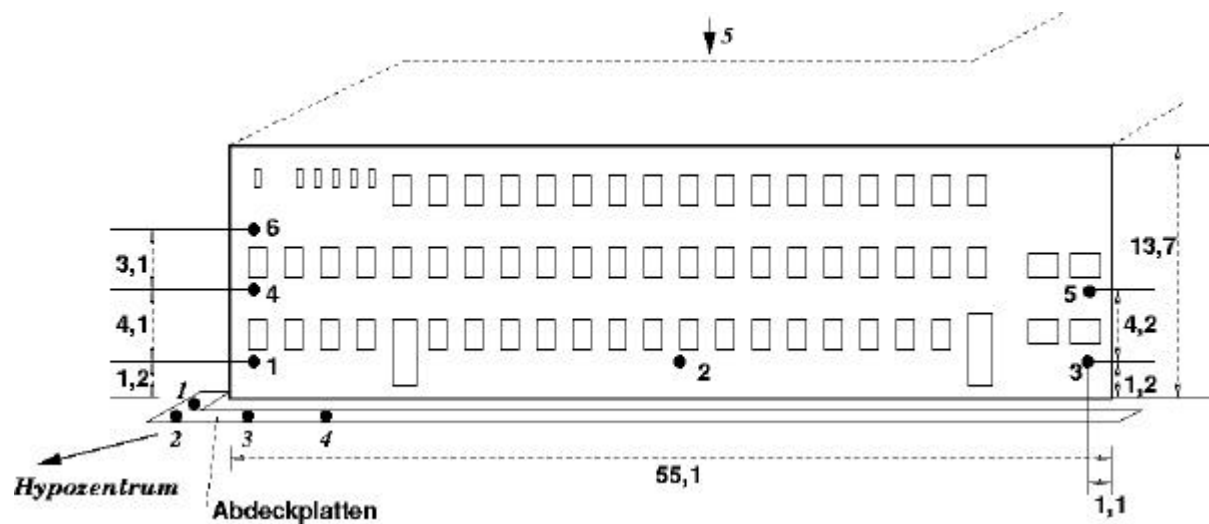


Abb 2.9: Nordwestfassade des E-Gebäudes. Dargestellt sind die Positionen der Abdeckplatten 1-4. Die Position der Abdeckplatte 5 hinter dem Gebäude ist nur angedeutet. Außerdem ist die Lage der Bohrkern 1-6 eingezeichnet. Alle Angaben in m.

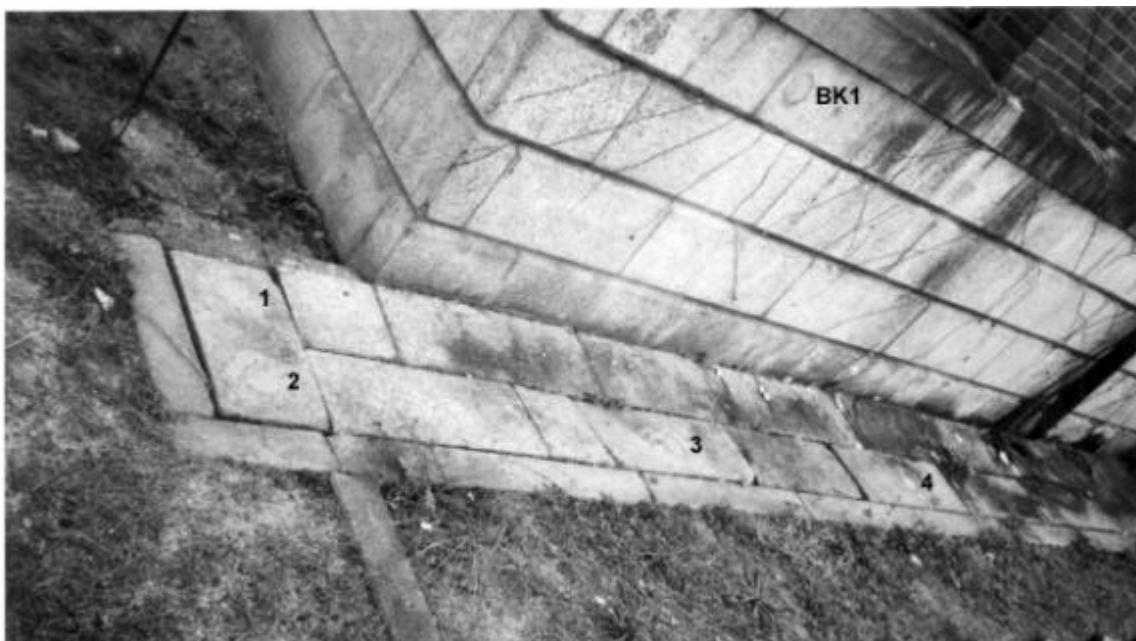


Abb. 2.10: Bild der Nord-West-Ecke des E-Gebäudes. Man kann die Bohrungen in den Abdeckplatten (1-4) und im Granitsockel (Bohrkern BK1) erkennen.

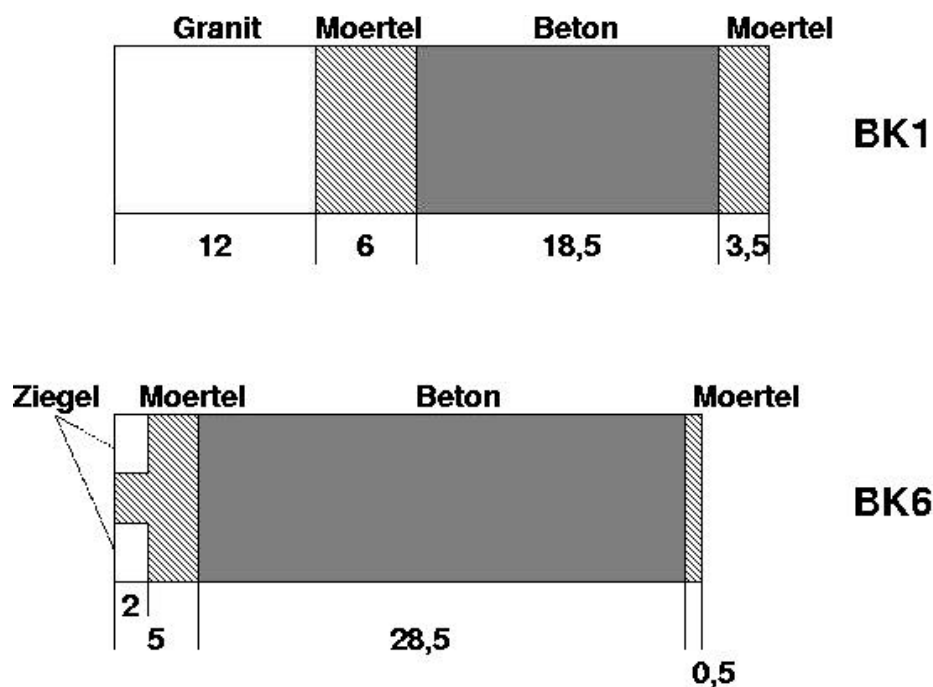


Abb. 2.11: Als Beispiel für die Bohrkerne 1-3 ist der Aufbau von Bohrkern BK1 dargestellt. Die Bohrkerne 4-6 ähneln in ihrem Aufbau dem hier gezeigten Bohrkern BK6. Links ist die Gebäudeaußenseite. Alle Angaben in cm.

- **Rotkreuz-Hospital (RKH), 1484 m vom Hypozentrum** (Abb. 2.12)

Das Probenmaterial des Rotkreuz-Hospitals wurde von Dr. Tore Straume von der Universität von Utah nach München geschickt. Die Proben stammten von einem Betonbohrkern aus einer Höhe von 20 m über dem Boden und aus Tiefen von 5,2 cm bzw. 13,9 cm. Es wurden zwei Proben geschickt, die bereits an der Universität von Perdue und am LLNL (Lawrence Livermore National Laboratory) auf ihren ^{36}Cl -Gehalt untersucht worden waren. Diese Messungen sollten überprüfen, wie gut die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Messungen mit denen anderer Labors übereinstimmen.

- **Postal-Savings-Gebäude (PSO), 1591m vom Hypozentrum** (Abb. 2.13 - 2. 14)

Von Dr. Fujita, RERF, wurde ein Bohrkern aus einer Granittrappe zur Verfügung gestellt, die sich am Eingang des Postal-Savings-Gebäude befand. Die in Abb. 1.7 gezeigten ^{36}Cl -Messungen in dieser Entfernung vom Hypozentrum wurden an Proben dieses Gebäudes durchgeführt [SEW⁺92].

Da die Unterschiede zu den DS86-Rechnungen bei diesen Messungen sehr groß sind, ist eine Messung von Granitproben dieses Gebäudes sehr wichtig.



Abb. 2.12: Rotkreuz-Hospital Oktober 1945. [CoH96].



Abb. 2.13: Postal-Savings-Gebäude im Oktober 1945 (links) und vor der Bombardierung im Jahr 1937 (rechts). Im Vordergrund (rechts) ist die Eingangstreppe zu erkennen. [CoH96].

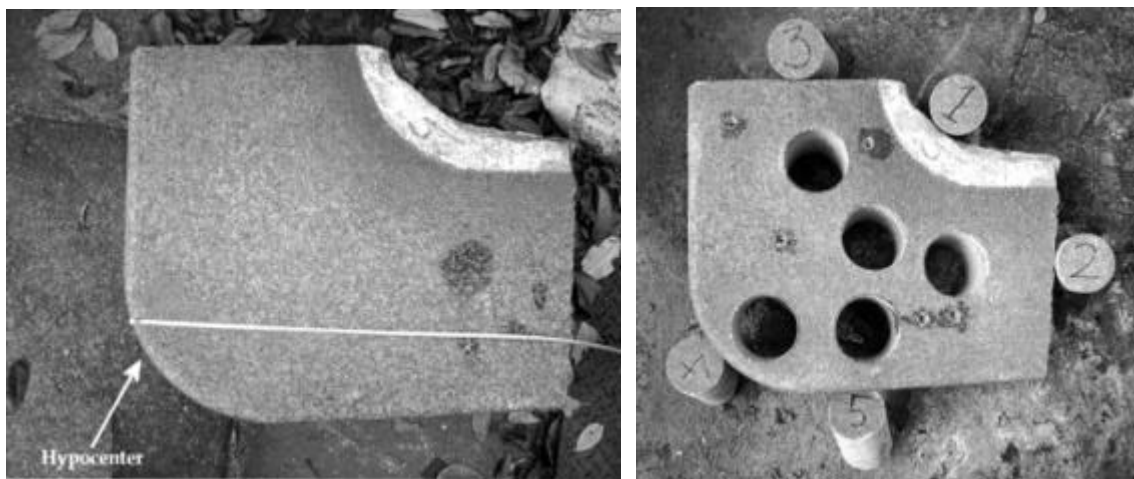


Abb. 2.14: Stufe der Eingangstreppe des Postal-Savings-Gebäude vor und nach der Probenahme im Dezember 2000. Der Bohrkern Nr. 4 wurde nach München geschickt. [Fuj00].

Ort	Probenart	Anzahl	Material	r_H [m]	r_E [m]
Saikoji-Tempel	Grabstein	1	G	109 ± 35	590
Fukoku-Gebäude	Bohrkern	1	G & B	316 ± 32	661
Sinkoji-Tempel	Grabsteine	4	G	830 ± 39	1012
Ganjyoji-Tempel	Grabsteine	2	G	1003 ± 44	1159
Tokueiji-Tempel	Grabstein	1	G	1158 ± 34	1295
Hosenji-Tempel	Grabsteine	3	G	1167 ± 50	1303
Jyunkyoji-Tempel	Grabstein	1	G	1221 ± 47	1352
Universität- E-Gebäude	Abdeckplatten	5	G	$(1377-1387) \pm 25$	1495-1503
	Bohrkerne	6	G & B	$(1377-1390) \pm 25$	1495-1506
Rotkreuz Hospital	Bohrkerne	1	B	1484	1593
Postal-Savings-G.	Treppe	1	G	1591	1694

Tab. 2.1: Übersicht der in dieser Arbeit untersuchten Proben. G steht für Granit, B für Beton. Weitere gemessene Proben für ^{36}Cl - ^{152}Eu -Vergleichsmessungen siehe Tabelle 2.2 .

2.1.3 Proben für ^{36}Cl und ^{152}Eu Vergleichsmessungen

Um die Ergebnisse, die von verschiedenen Labors für ^{36}Cl und ^{152}Eu erzielt wurden vergleichen zu können, wurden neun Proben aus einem Abstand <1500 m vom Hypozentrum und sieben weitere Proben mit Abständen >4000 m vom Hypozentrum ausgewählt. Die Proben bestanden alle aus Granit. Jede dieser Proben wurde zerteilt und je ein Stück an jedes Labors geschickt.

- **Motoyasu-Brücke, 146 m vom Hypozentrum** (Abb. 2. 15)
- **Shirakami-Schrein, 496 m vom Hypozentrum** (Abb. 2.16)
- **Honkeiji-Tempel, 893 m vom Hypozentrum**
- **Mychoji-Tempel, 654 m vom Hypozentrum**
- **Alte Präfektur, 881 m vom Hypozentrum**
- **Enryuuj-Tempel, 927 m vom Hypozentrum** (Abb. 2.17)
- **Shingyoji-Tempel, 927 m vom Hypozentrum** (Abb. 2.17)
- **Rathaus (City Hall), 1018 m vom Hypozentrum** (Abb. 2.18)
- **Kozenji-Tempel, 1163 m vom Hypozentrum**



Abb. 2.15: Motoyasu Brücke im Oktober 1945 (links) [CoH96]. Als Probe diente ein Randstein (rechts) [Fuj01].



Abb. 2.16: Shirakami-Schrein im November 1945 (links) [CoH96]. Die Probe stammt vom Steinzaun im Vordergrund. Foto der Probe (rechts) [Fuj01].



Abb. 2.17: Alte Grabsteine auf dem Enryuji- (links) und dem Shingyoji-Friedhof (rechts). [CoH96].

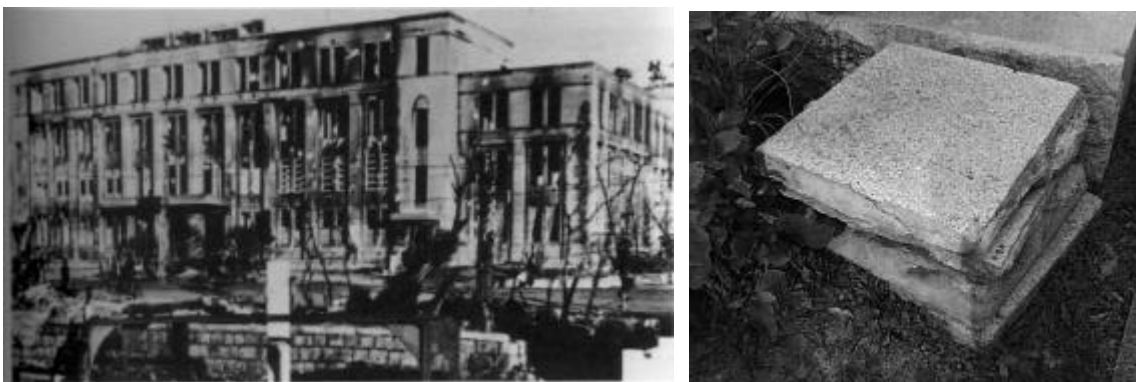


Abb. 2.18: Rathaus (City Hall) von Hiroshima nach der Bombardierung (links) [CoH96]. Abdeckplatten, die um das Rathaus verlegt waren, dienten als Proben (rechts) [Fuj01].

- **Proben aus Abständen >4000 m vom Hypozentrum**

Zur Bestimmung des Untergrunds wurden auch 7 weitere Proben gesammelt. Dabei handelt es sich um Granitgrabsteine, von den vier weit entfernten Tempeln Senngyoji (4310 m vom Hypozentrum), Kannonji (4250 m vom Hypozentrum), Senzoubo und Myokenji.

Ort	Probenart	Anzahl	r_H [m]	r_E [m]
Motoyasu-Brücke	Randstein	1	146	598
Shirakami-Schrein	Steinzaun	1	496	763
Honkeiji-Tempel	Grabstein	1	893	1065
Myochoji-Tempel	Grabstein	1	654	874
Alte Präfektur	Steinzaun	1	881	1055
Enryuji-Tempel		1	912	1080
Shingyoji-Tempel	Grabstein	1	927	1093
Rathaus	Abdeckplatten	1	1018	1171
Kozenji-Tempel		1	1163	1299
Senngyoji-Tempel	Grabstein	1	4310*	4349
Kannonji-Tempel	Grabstein	1	4250*	4289
Senzoubo	Grabsteine	3	>4000	-
Myokenji-Tempel	Grabsteine	2	>4000	-

Tab. 2.2: Zusammenfassung der Proben für die Vergleichsmessungen. * Entfernungen aus [CoH96].

2.2 Proben zur Bestimmung des In-situ-Untergrunds

Um das natürliche $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnis in Granit zu untersuchen, wurden vier verschiedene Granite aus Steinbrüchen bei Hiroshima untersucht. Alle Abschätzungen der Tiefen, aus denen der Granit stammt, basieren auf ausführlichen Gesprächen, die Dr. K. Kato, Hiroshima Prefectural College of

Health Sciences, mit den Besitzern der jeweiligen Steinbrüche bzw. den Granitherstellern geführt hat. Alle weiteren Angaben von Dr. K. Kato.

- **Aji-Granit**

Der erste, **Aji-Granit**, stammte von einem Steinbruch von der Insel Shikoku aus einer Tiefe von 10-30 m. Die Insel Shikoku ist etwa 155 km von Hiroshima entfernt. Aji-Granit stammt allgemein aus dem östlichen Sanuki-Distrikt, der im Südwesten Japans liegt. Wegen seines Aussehens und seiner Härte wird Aji-Granit oft für Grabsteine benutzt. Der in Kapitel 2.1 gezeigte Grabstein vom Saikoji Friedhof stammte ursprünglich auch aus dem zuvor genannten Steinbruch aus einer geschätzten Tiefe von 10 - 30 m.

- **Iyo-Granit** (Abb. 2.19)

Der Sockel des Saikoji-Grabsteins aber auch viele andere Grabsteine in Hiroshima bestehen aus **Iyo-Granit**. Iyo-Granit stammt von der Insel Oshima, die etwa 60 km von Hiroshima entfernt in der Ehime-Präfektur liegt. Es werden aber auch teilweise Granite, die aus anderen Steinbrüchen der Ehime-Präfektur stammen, Iyo-Granit genannt. Der in dieser Arbeit untersuchte Iyo-Granit stammte aus einer Tiefe von 5 - 60 m.



Abb 2.19: Steinbruch auf der Insel Oshima, in dem Iyo-Granit abgebaut wird. [Kat01].

- **Giin- und Odachi-Granit** (Abb. 2.20)

Von der 33 km südlich von Hiroshima gelegenen Insel Kurahashi stammen die beiden letzten untersuchten Granite. Die Granite der Insel Kurahashi werden auch als "Hiroshima-Granit" bezeichnet. Sie wurden häufig für den Bau von Brücken, Straßen und Gebäuden in Hiroshima benutzt. Vor dem 2. Weltkrieg wurden Steine von der Insel Kurahashi teilweise auch für Grabsteine benutzt. Die Abdeckplatten und der Granitsockel des E-Gebäudes bestehen ebenso aus **Giin-Granit**, wie die Granitverkleidung des Fukoku-Gebäudes. Neben dem Giin-Granit wurde auch **Odachi-Granit** aus einem benachbarten Steinbruch untersucht. Vor dem 2. Weltkrieg stammte der gesamte Granit aus einem Steinbruch. Der in dieser Arbeit untersuchte Giin-Granit stammte aus einer Tiefe von 10 - 30 m, der Odachi-Granit von 7 - 100 m. Zusätzlich wurden vom Giin-Steinbruch weitere 5 Proben aus Tiefen von 0 - 33 m untersucht.



Abb. 2.20: Bilder des Giin-Steinbruchs auf der Insel Kurahashi. [Kat02].

2.3 Zusammenhang der Proben aus Hiroshima mit den Untergrundproben

Um genaue Aussagen über den ^{36}Cl -Untergrund in Proben aus Hiroshima machen zu können, muss bestimmt werden, aus welcher Gegend bzw. aus welchem Steinbruch die Probe ursprünglich stammte und welchem Granittyp sie angehört. Für manche Proben gibt es Aufzeichnungen, aus

welchem Steinbruch der Granit geliefert wurde. Gerade jedoch für viele der untersuchten Grabsteine stehen diese Informationen nicht mehr zur Verfügung. Deshalb wurde nach anderen Methoden gesucht, um den Herkunftsort eines Granitsteins zu bestimmen.

Einerseits ist es möglich, Granite aufgrund ihres Aussehens miteinander zu vergleichen. Dabei werden Farbe, Korngröße etc. betrachtet. So können z.B. einige Giin-Granite an ihrer rötlichen Färbung oder Aji-Granite an der grauen Farbe und der feinen Körnung erkannt werden. Dagegen ist es oft schwierig, Iyo-, Odachi- und nicht rötliche Giin-Granite zu unterscheiden.

Andererseits wurden an den Steinbruchgraniten und an vielen Proben aus Hiroshima chemische Analysen durchgeführt (siehe Anhang B). Diese erlauben es auch, die chemische Zusammensetzung der Granite zu vergleichen. Dabei wurden die Bestandteile SiO_2 , Al_2O_3 , CaO , MgO , Na_2O , K_2O , Fe_2O_3 , MnO , TiO_2 , P_2O_5 , Eu , Th und Uran in den Steinbruchproben mit denen in den Proben aus Hiroshima verglichen. Man teilt dabei, für jeden dieser Bestandteile, die Differenz D von Steinbruch- und bestrahltem Probengranit durch die Standardabweichung S aller vier Steinbrüche. So wird auch berücksichtigt, ob sich der Anteil eines Bestandteils in den vier Steinbruchgraniten stark oder nur wenig unterscheidet. Dann wird dieser Wert D/S von allen 13 Bestandteilen gemittelt. Je kleiner D/S , desto eher stammt der untersuchte Granit aus dem jeweiligen Steinbruch. (siehe Tab. 2.3). Dabei kann man z.B. feststellen, dass die beiden Granite von der Insel Kurahashi Giin und Odachi sich trotz ihres stark unterschiedlichen Aussehens chemisch nur wenig unterscheiden. Dagegen unterscheiden sich Odachi und Iyo stark trotz teilweise ähnlichen Aussehens.

Zusammenfassend ist zu sagen, dass die Kombination aus optischen und chemischen Vergleichen der Steine gute Anhaltspunkte liefert, aus welchem Steinbruch ein Granit stammt. Nur eine der beiden Methoden lässt eine eindeutige Bestimmung des Steinbruchs nur in bestimmten Fällen zu.

Eine Zusammenfassung aller Proben und ihrer zugehörigen Steinbrüche gibt Tabelle 2.4.

Da der natürliche Untergrund, besonders bei niedrigen $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnissen, wichtig ist, wurde bei diesen Untersuchungen besonders auf die Proben geachtet, die sich weit entfernt vom Hypozentrum befunden hatten.

Probe	Steinbruch			
	Aji	Iyo	Giin	Odachi
Postal Savings Gebäude	2,45	1,82	0,63	0,92
E-Gebäude Abdeckplatten	2,30	1,69	0,77	0,87
E-Gebäude Granit-Sockel	3,20	2,54	0,90	1,58
Jyunkyoji	2,43	1,74	0,36	0,76
Hosenji 1	2,10	1,41	0,39	0,75
Hosenji 2	1,31	0,69	1,43	0,95
Hosenji 3	1,40	0,38	1,34	0,79
Tokueiji	2,28	1,68	0,69	0,72
Ganjyoji 1	1,89	1,35	0,72	0,55
Ganjyoji 2	1,94	1,17	0,87	0,74
Aji	0	1,04	2,38	1,75
Iyo	1,04	0	1,68	1,06
Giin	2,38	1,68	0	0,77
Odachi	1,75	1,06	0,77	0

Tab. 2.3: D/S-Werte ausgewählter Proben aus Hiroshima. Die beste Übereinstimmung ist durch Fettdruck gekennzeichnet. Werte von [Kat02].

Granit-Probe	Aufzeichnung	Optische - Analyse	Chemische - Analyse	Fazit
Saikoji	Aji	Aji	-	Aji
Fukoku	Giin	Giin	-	Giin
Sinkoji 1-4	-	Iyo	-	Iyo
Ganjyoji 1	-	Iyo	Odachi	Odachi
Ganjyoji 2	-	Iyo	Odachi	Odachi
Tokueiji	-	Iyo	Giin	Kurahashi
Hosenji 1	-	Odachi	Giin	Kurahashi
Hosenji 2	-	Iyo	Iyo	Iyo
Hosenji 3	-	Iyo	Iyo	Iyo
Jyunkyoji	-	Odachi	Giin	Kurahashi

Granit-Probe	Aufzeichnung	Optische - Analyse	Chemische - Analyse	Fazit
E-Gebäude Abdeckplatten	Giin	Giin	Giin	Giin
E-Gebäude Granit-Sockel	Giin	Giin	Giin	Giin
Postal-Savings-Gebäude	-	Odachi	Giin	Kurahashi

Tab. 2.4: Tabelle der Granitproben aus Hiroshima und den zugehörigen Steinbrüchen. Die Proben, von denen es Aufzeichnungen gibt, woher der Granit stammt, wurden vor allem deshalb chemisch und optisch analysiert, um die Analysemethoden zu überprüfen. Die Granite der Insel Kurahashi lassen sich nicht immer leicht unterscheiden, deshalb ist bei manchen Proben nur Kurahashi als Herkunftsbezeichnung genannt.

2.4 Nullproben

Zur Bestimmung des ^{36}Cl -Untergrunds der verwendeten Chemikalien, der Chemieapparatur und des Mess-Systems wurden auch Kochsalzproben (NaCl) aufbereitet und gemessen. Dazu wurde handelsübliches Kochsalz verwendet.

Kapitel 3

Aufbereitung der Proben und AMS-Messung

Am Beschleunigerlabor der TU- und LMU-München wurden bereits früher ^{36}Cl -Messungen von Granitproben aus Hiroshima durchgeführt [Hab85, KHY⁺90]. In dieser Arbeit wurde jedoch eine neue chemische Probenaufbereitung benutzt. Diese neue Methode ist einfacher und schneller als früher benutzte Methoden zur chemischen Aufbereitung. Durch Inbetriebnahme eines neuen rotierenden Voltmeters [HRS99] musste die Spannung des Tandembeschleunigers nicht mehr wie früher über Schlitzströme stabilisiert werden. Eine Zugabe von ^{36}S als Pilotstrahl zu den Proben ist so nicht mehr erforderlich. Dadurch konnte der ^{36}S Untergrund deutlich reduziert werden.

3.1 Aufbereitung der Proben

Ausgangsmaterial für die Aufbereitungen waren Granit und Betonproben. Die Steinproben wurden erst zerkleinert und gemahlen, dann wurde Cl chemisch daraus extrahiert. Da bei der AMS nur $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnisse gemessen werden, ist es nicht notwendig, das gesamte Cl aus dem Stein zu extrahieren.

3.1.1 Mechanische Grobaufbereitung

Der größte Teil der Grobaufbereitung wurde an den Lehrstühlen für Mineralogie und Geologie der TU-München durchgeführt.

- Die Bohrkerns wurden mit einer Steinsäge in Scheiben geschnitten. Diese Scheiben wurden dann mit einem Hammer in Stücke von 100-200 g zerteilt.

Von den Grabsteinen wurden mit einem Hammer ebenfalls Stücke von 100-200 g abgeschlagen. Die mittlere Tiefe von der Oberfläche dieser Proben war etwa 2 cm.

- Diese Stücke wurden dann mit destilliertem Wasser und einer Bürste gewaschen und von allen Ablagerungen befreit. Anschließend wurden die Stücke im Ofen getrocknet.
- Zuletzt wurden die Steine mit einem Hammer grob zerkleinert und in einer Achat-Scheibenschwingmühle fein gemahlen.

3.1.2 Chemische Aufbereitung

Für die spätere AMS-Messung muss das Cl als AgCl (Silberchlorid) vorliegen. Deshalb muss aus den gemahlene Steinen das Cl zuerst extrahiert und dann in die Silberchlorid-Form überführt werden. Zu diesem Zweck wurde der in Abb. 3.1 dargestellte Aufbau benutzt.

- Das gemahlene Steinpulver wurde in einen Dreihalsrundkolben geschüttet. Auf diesen wurde ein mit verdünnter Salpetersäure gefüllter Tropftrichter gesteckt. Dieser war mit einem Deckel verschlossen. Über ein Einleitrohr wurde auf der einen Seite des Kolbens Stickstoffgas eingeleitet. Auf der anderen Seite war der Kolben mit einer Waschflasche verbunden, die mit einer Silbernitratlösung (AgNO_3) gefüllt war. Diese Waschflasche wurde mit Eis gekühlt. Der Kolben wurde mit einem Heizpilz erhitzt.

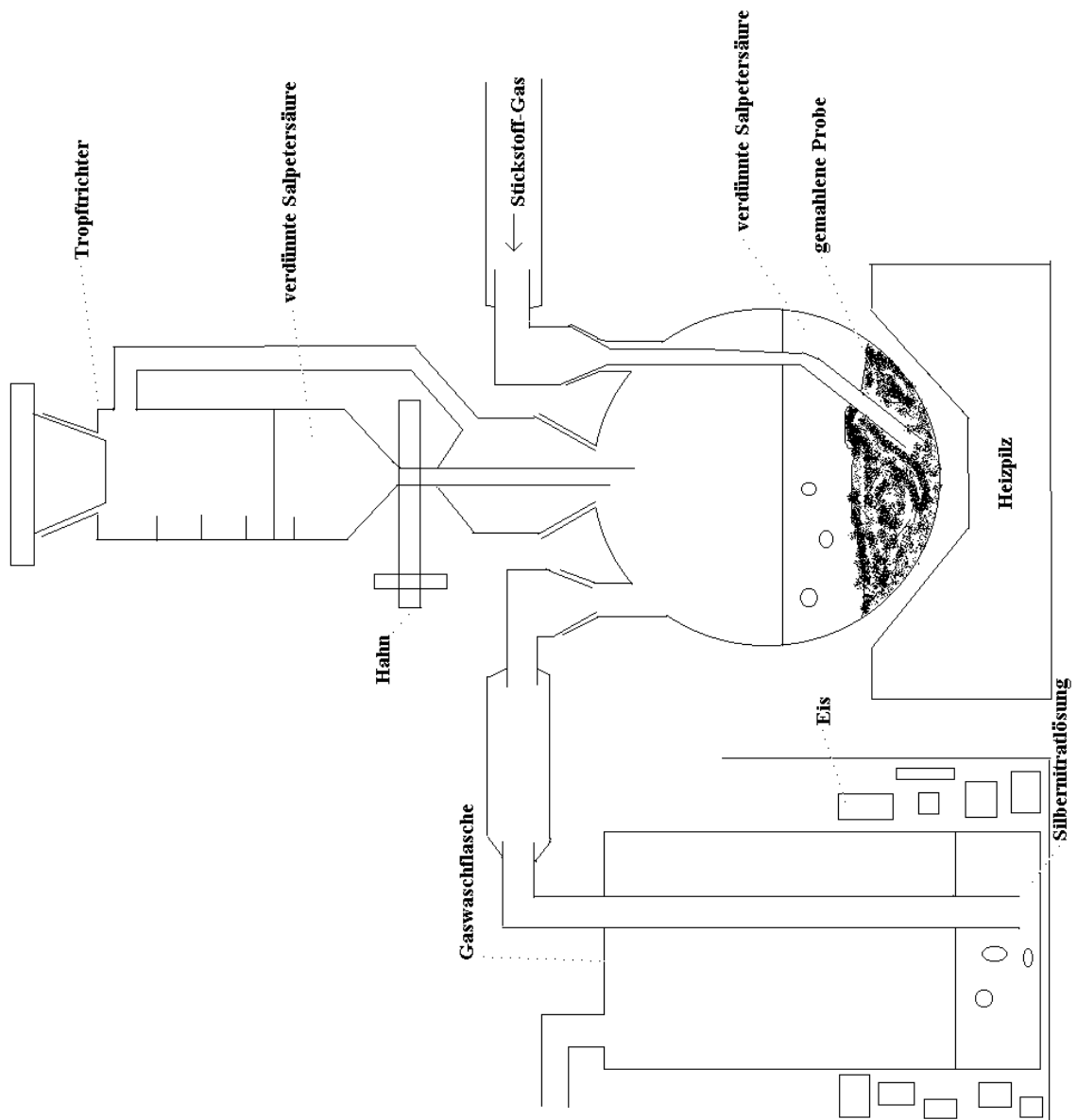


Abb. 3.1: Für die Extraktion von Cl aus Granit bzw. Beton verwendeter Aufbau. [Mer99].

- Zur Extraktion von Cl aus dem Gestein wurde nun die verdünnte Salpetersäure zu dem Steinpulver gegeben und mit Hilfe des Heizpilzes zum Kochen gebracht. Dabei wurde Cl aus dem Gestein gelöst und dann mit der verdünnten Salpetersäure in die Waschflasche destilliert. Das Silbernitrat reagiert mit dem Cl, und Silberchlorid fällt als weißer Niederschlag aus. Dieser Vorgang wurde solange fortgesetzt, bis die gesamte Flüssigkeit aus dem Kolben in die Waschflasche destilliert worden war. Alle Steckverbindungen am Kolben wurden mit Teflonband abgedichtet, so dass Gas nur durch die Waschflasche entweichen konnte.
- Die Silbernitratlösung wurde durch Zentrifugation vom Silberchlorid getrennt und abpipettiert. Das Silberchlorid wurde mit Salpetersäure und destilliertem Wasser gewaschen und in einem Ofen bei ca. 70°C getrocknet.
- Das getrocknete Silberchloridpulver wurde zuletzt gemörsert und in einen kupfernen Probenhalter gepresst.
- Alle Teile wurden nach jeder Aufbereitung mit destilliertem Wasser ausgewaschen. Der Mörser, die Waschflasche und alle Teile, die mit dem Silberchlorid Kontakt hatten, wurden zusätzlich mit Ammoniak ausgewaschen. Silberchlorid löst sich leicht in Ammoniak. Die gesamte Apparatur aus Abb. 3.1 wurde vor jeder Aufbereitung mit verdünnter Salpetersäure ausgekocht.

Eine genaue Beschreibung der chemischen Probenaufbereitung findet sich in [Hub99].

Für die Herstellung der Blankproben wurde derselbe Aufbau verwendet. Statt des Steinpulvers wurde dabei Kochsalz (NaCl) in den Kolben geschüttet.

Aus ca. 100-150 g Steinpulver bzw. ca. 10 mg Kochsalz konnten so Probenmengen von 5-50 mg Silberchlorid erhalten werden.

3.1.3 Tests der Aufbereitung

Um die mechanische Grobaufbereitung und die chemische Aufbereitung zu überprüfen, wurden verschiedene Tests durchgeführt. Diese Tests sollten zeigen, ob Chlor aus den Chemikalien, aus

Verunreinigungen der verwendeten Geräte oder aus der Luft in die Proben gelangen konnte. Solches Chlor würde die Proben verdünnen und somit das Messergebnis verfälschen, da bei der AMS das Verhältnis von ^{36}Cl zu stabilem Cl bestimmt wird.

- Zur Überprüfung der Chemikalien und des verwendeten Stickstoffgases wurde eine chemische Aufbereitung durchgeführt, ohne dass Steinpulver oder NaCl in den Kolben gefüllt wurde. Alle weiteren Schritte der Aufbereitung wurden so durchgeführt, wie bei allen anderen Proben. Dabei wurde keine messbare Menge Silberchlorid erhalten. Die Genauigkeit der verwendeten Waage lag bei 0,01 mg. Der Anteil von Silberchlorid in den Proben, der aus den Chemikalien stammt, war somit je nach Probenmenge $< 2\%$.
- Ein weiterer Beweis dafür, dass durch die chemische Aufbereitung das $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnis der Probe nicht verändert wird, wurde erhalten, indem man NaCl mit einem bekannten $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnis von $1,0 \cdot 10^{-12}$ auf zwei verschiedene Arten aufbereitete. Das NaCl wurde einmal im Kolben wie die Steinproben aufbereitet; das zweite Mal wurde das NaCl direkt in Silbernitratlösung gegeben. Dabei wurden $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnisse von $(1,0 \pm 0,2) \cdot 10^{-12}$ und $(1,1 \pm 0,3) \cdot 10^{-12}$ gemessen. Die beiden Werte stimmen im Rahmen der Fehler sehr gut überein, somit kann eine Veränderung des $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnisses durch die chemische Aufbereitung ausgeschlossen werden.
- Zuletzt wurde bei zwei Proben nach dem Mahlen das Steinpulver geteilt. Ein Teil wurde direkt aufbereitet, der andere Teil wurde noch einmal mit destilliertem Wasser gewaschen und dann erst aufbereitet. Auf diese Weise kann bestimmt werden, ob Cl aus dem Regenwasser in das Gestein eingesickert ist (vgl. [LPE⁺87, DNH⁺91]). Dieses Cl würde ausgewaschen werden, während das Cl, das im Gestein gebunden ist, davon nicht betroffen wäre. Die Ergebnisse der Messungen sind in Tabelle 3.1 zusammengefasst.

Probe	gewaschen	nicht gewaschen	Material
E-Gebäude 4-2	$(1,32 \pm 0,36) \cdot 10^{-13}$	$(1,32 \pm 0,34) \cdot 10^{-13}$	Beton
E-Gebäude 1-5a	$(2,81 \pm 0,51) \cdot 10^{-13}$	$(2,56 \pm 0,50) \cdot 10^{-13}$	Granit

Tab. 3.1: $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnisse von je einer Granit- und einer Betonprobe, die nach dem Mahlen einmal mit destilliertem Wasser gewaschen und einmal nicht gewaschen wurden.

Die Messungen zeigen keine Unterschiede zwischen den Proben, die nach dem Mahlen gewaschen wurden, und den nicht gewaschenen Proben. Somit kann eine Kontamination der Proben durch Regenwasser ebenso ausgeschlossen werden, wie eine Kontamination durch das Zerkleinern und Mahlen.

3.2 AMS - Messung

Die Beschleunigermassenspektrometrie (engl. **Accelerator Mass Spectrometry, AMS**) ist eine sehr empfindliche Methode zur Bestimmung der Konzentration langlebiger Radionuklide in einer Matrix eines stabilen Isotops (siehe z.B.[Gov99]). Im Fall des Radionuklids ^{36}Cl wird als Matrix stabiles Cl, das aus den Isotopen ^{35}Cl und ^{37}Cl besteht, verwendet.

3.2.1 Messaufbau

Für den Nachweis von ^{36}Cl wurde der von Haberstock und Mitarbeitern benutzte Aufbau verwendet [HHK⁺86]. In Abbildung 3.2 ist das gesamte am Garching Beschleunigerlabor verwendete Nachweissystem für ^{36}Cl -Messungen dargestellt. Wichtig ist dabei, dass das stabile Isobar ^{36}S , welches als Verunreinigung in den Proben vorhanden ist, von ^{36}Cl abgetrennt werden kann.

In eine Cäsium-Sputterionenquelle mit sphärischem Ionisator [Urb86], die routinemäßig am Beschleunigerlabor eingesetzt wird, werden die Silberchloridproben eingebracht. Dort werden negativ geladene Ionen erzeugt und mit Hilfe einer Extraktionsspannung von 34 kV beschleunigt. Mit dem 90°-Injektormagnet werden nun einfach-negativ geladene Ionen mit Masse 36 ausgewählt. Dabei können $^{36}\text{Cl}^-$, $^{35}\text{ClH}^-$ und $^{36}\text{S}^-$ noch nicht unterschieden werden. Nach einer Vorbeschleunigung von 150 kV werden sie in den MP-Tandembeschleuniger eingeschossen. Die Terminalspannung des Tandem betrug 10 MV. Beim Durchgang durch die Kohlenstoff-Stripperfolie im Terminal verlieren die Ionen einen Teil ihrer Elektronen und werden als positive Ionen weiterbeschleunigt. Dabei werden chemische Bindungen aufgebrochen. Moleküle wie HCl können so nicht mehr zum Messuntergrund beitragen. Über den nachfolgenden 90°-Analysemagnet wird der 8^+ Zustand ausgewählt. Die Ionen besitzen nun eine Energie von 90 MeV bzw. 2,5 MeV/Nukleon und werden nun in den Buncher und dann in den Schwerionennachbeschleuniger (SchweIN) eingeschossen.

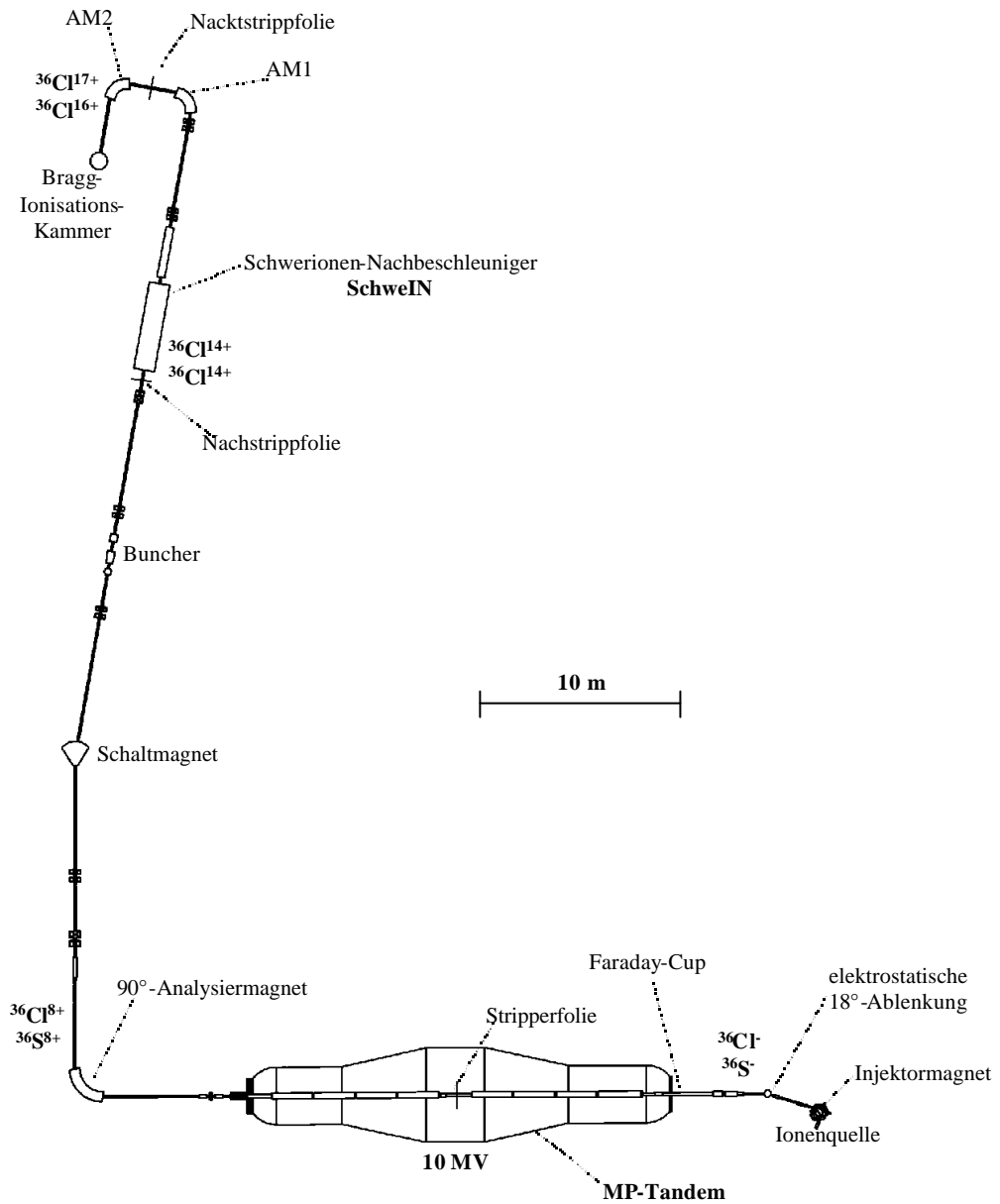


Abb. 3.2: Für die ^{36}Cl -Messungen am Garchinger Beschleunigerlabor verwendeter Messaufbau.

Zwischen dem Buncher und dem SchweIN befindet sich eine weitere Kohlenstoff-Folie ("Nachstrippfolie"), mit deren Hilfe weitere Elektronen abgestreift werden. Mit dem Magneten AM1 wird der 14^+ Zustand ausgewählt. Mit Hilfe des SchweINs werden die Ionen auf eine Energie von 4,3 MeV/Nukleon beschleunigt, um in einer weiteren Kohlenstoff-Folie ("Nacktstrippfolie") zwischen den Magneten AM1 und AM2 mit genügend hoher Wahrscheinlichkeit (etwa 7 %) alle Elektronen abstreifen zu können. Nun kann am Magneten AM2 der 17^+ Zustand ausgewählt werden. ^{36}S , der aufgrund seiner Kernladungszahl nur maximal den Ladungszustand 16^+ erreichen kann, wird so von $^{36}\text{Cl}^{17+}$ abgetrennt. In einer Bragg-Ionisationskammer [Hab85] wird aus der aufgenommenen Bragg-Kurve aus dem Maximum die Z-Information und aus dem Integral über die Gesamtkurve die Energieinformation gewonnen. So können die direkt einfallenden $^{36}\text{Cl}^{17+}$ Ionen von allen anderen Ionen, die nur durch Streuung in den Detektor gelangen, unterschieden werden. Die Aufnahme und Verarbeitung der Daten erfolgte auf Linux-Rechnern mit Hilfe des Programmpaketes MARaBOOU (MBS And ROOT Based Online/Offline Utility) [LSS⁺99].

3.2.2 Aufgenommene Spektren

Die vom Detektor erhaltenen E- und Z-Informationen werden am Rechner als Spektren dargestellt. Dabei wird das Z-Signal gegen das E-Signal aufgetragen. Ausgehend von der Messung eines Standards mit bekanntem $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnis wird ein sogenannter Cut gesetzt, der den Bereich bestimmt, in denen ^{36}Cl -Ereignisse zu erwarten sind. Ein zweiter, größerer Cut wird zusätzlich gesetzt, um zu sehen ob gestreute Ionen in die Nähe des eigentlichen Cuts gelangen können. In den Abbildungen 3.3 - 3.5 sind typische Spektren eines Standards, einer Blankprobe und einer Probe aus Hiroshima dargestellt. In Abbildung 3.6 ist ein Spektrum dargestellt, das vor November 1999 gemessen wurde. Damals wurde den Proben zur Stabilisierung der Tandemspannung ^{36}S beigemischt [Hub99]. Man kann erkennen, dass in den Spektren 3.3 - 3.5 deutlich weniger gestreute ^{36}S Ereignisse sind als im Spektrum 3.6 .

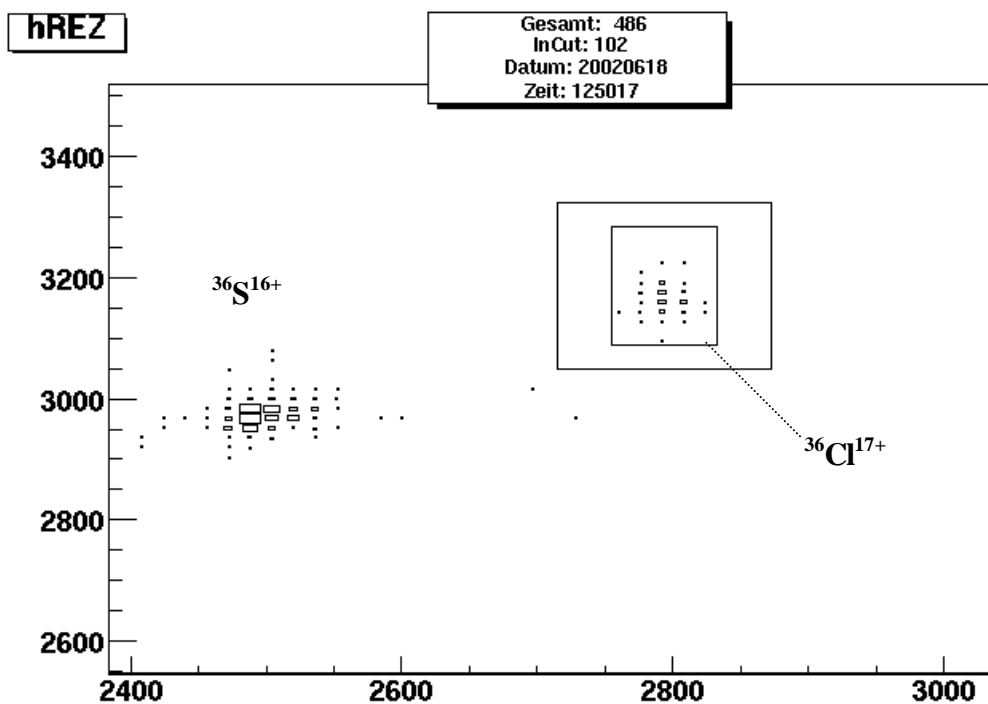


Abb. 3.3: Spektrum eines Standards mit einem $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnis von $1 \cdot 10^{-11}$.
(Messzeit $t = 413 \text{ s}$; ^{35}Cl -Strom $I = 4,0 \mu\text{A}$)

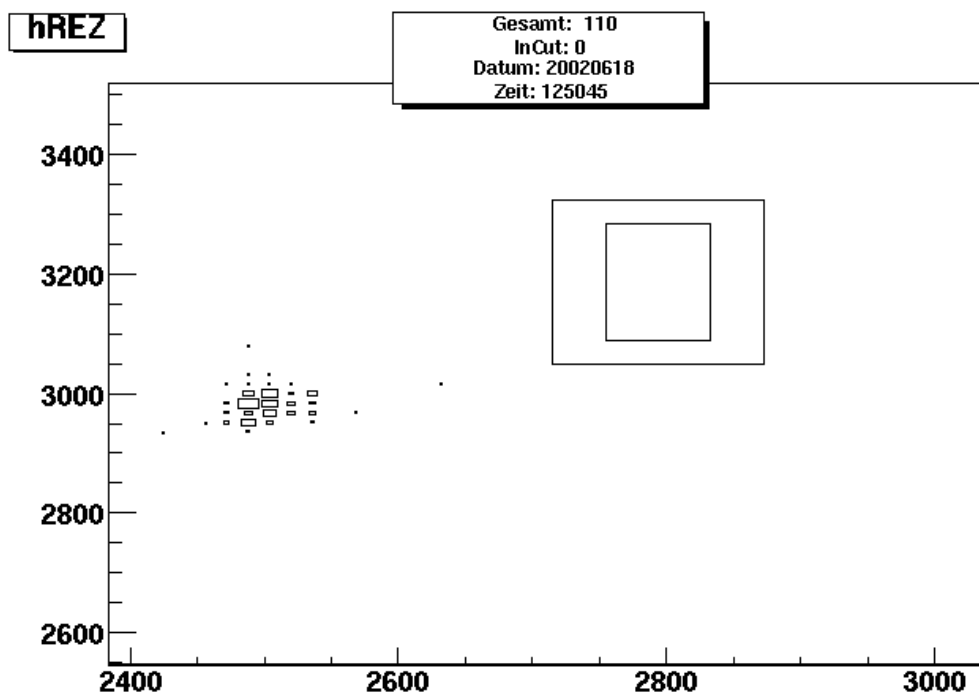


Abb. 3.4: Spektrum einer Nullprobe.
(Messzeit $t = 3063 \text{ s}$; ^{35}Cl -Strom $I = 4,8 \mu\text{A}$)

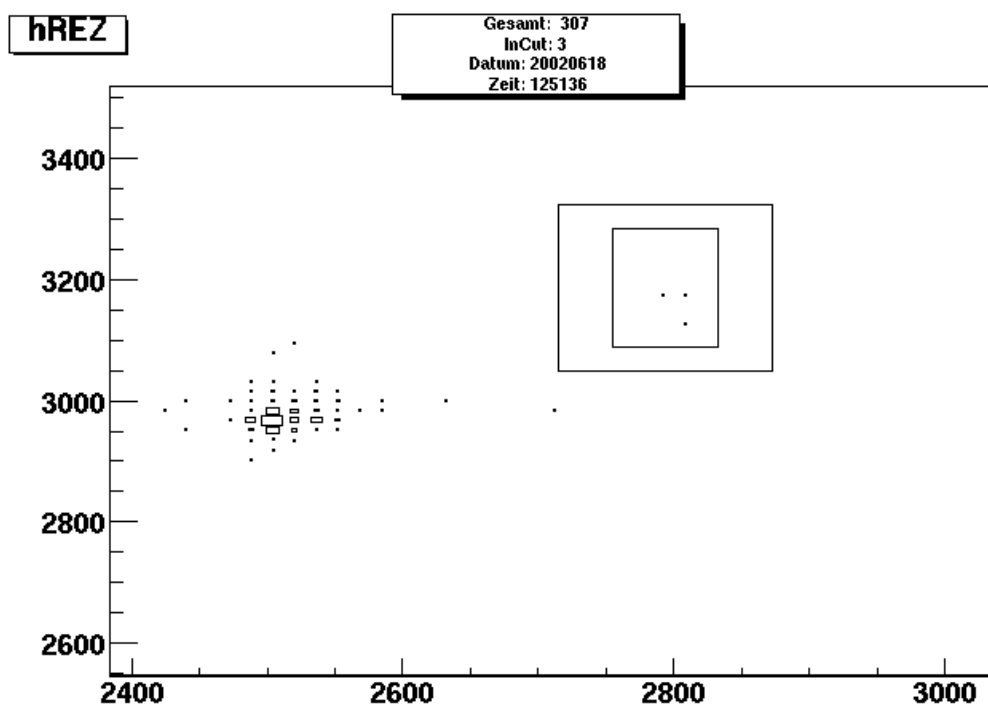


Abb. 3.5: Spektrum einer Probe aus Hiroshima.

(Messzeit $t = 752$ s ; ^{35}Cl -Strom $I = 8,3$ μA)

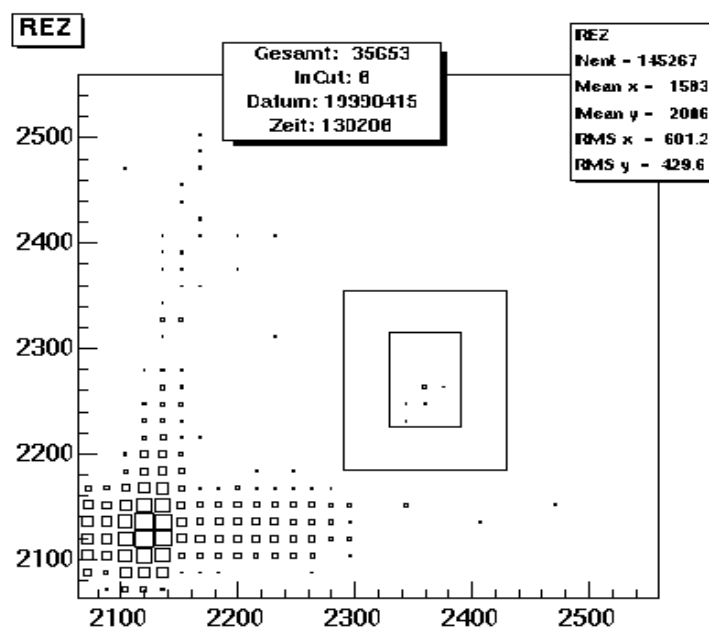


Abb. 3.6: Spektrum einer Probe aus Hiroshima von Februar 1999. Durch den beigemischten ^{36}S ist der Anteil an gestreuten ^{36}S -Ereignissen deutlich höher als in den neuen Spektren.

(Messzeit $t = 1829$ s ; ^{35}Cl -Strom $I = 1,7$ μA)

3.2.3 Ablauf der Messungen

Bei der Beschleunigermassenspektrometrie wird das $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnis gemessen. Dabei wird zuerst der Injektormagnet auf Masse 35 bzw. 37 eingestellt und der Strom am Faraday-Cup vor dem Tandem gemessen. Danach wird das gesamte System auf Masse 36 umgestellt und die ^{36}Cl -Ereignisse im Bragg-Detektor gezählt.

Vor und nach jeder Probe wird die Transmission T durch das gesamte Strahlführungssystem mit einem Standard mit bekannter $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Konzentration bestimmt. Die in dieser Arbeit verwendeten Standards hatten eine $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Konzentration von $1 \cdot 10^{-11}$. Die Transmission wurde mit Gleichung 3.1 bestimmt. Dabei waren die Messgrößen Cup-Strom, Zahl der Ereignisse und Messzeit. Typische Werte für die Gesamttransmission liegen zwischen 1 und 2 Promille.

Bei einer Probe wird aus den Messgrößen Cup-Strom, Zahl der Ereignisse, Messzeit und Transmission die $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Konzentration C_p der Probe bestimmt. Dazu wird ebenfalls Gleichung 3.1 verwendet, wobei C_s durch C_p ersetzt wird.

$$T = \frac{N \cdot e \cdot A}{I \cdot t \cdot C_s} \quad (3.1)$$

T = Transmission

N = Zahl der ^{36}Cl -Ereignisse im Detektor

e = Elementarladung [c]

I = ^{35}Cl - bzw. ^{37}Cl -Strom gemessen am Faraday-Cup [A]

t = Messzeit [s]

C_s = $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Konzentration des verwendeten Standards

A = Isotopenanteil von ^{35}Cl bzw. ^{37}Cl ; je nachdem welcher Strom verwendet wurde.

Anteil ^{35}Cl = 75,77% ; Anteil ^{37}Cl = 24,23% [Kar95].

Da die Beschleunigermassenspektrometrie mit nacktgestrüpften Ionen untergrundfrei ist, erlaubt dies für die Nachweisgrenze eine Definition von einem nachgewiesenen Ereignis pro Stunde. Für einen erreichten ^{35}Cl -Strom am Tandemeingang von $10 \mu\text{A}$ ergibt sich so für die instrumentelle Nachweisgrenze ein $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnis von $2 \cdot 10^{-15}$.

3.2.4 Messung der Nullproben

Um sowohl den ^{36}Cl -Untergrund der Aufbereitung als auch den Untergrund des Mess-Systems zu bestimmen, wurden Kochsalzproben aufbereitet und gemessen. Dabei ist zu beachten, dass das Übersprechen in der Hochstromionenquelle $\leq 1\text{ ‰}$ ist [Hub99]. Bei Verwendung eines Standards mit einem $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnis von $1 \cdot 10^{-11}$ ist also bei der Messung einer Blankprobe ein $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnis von $1 \cdot 10^{-14}$ zu erwarten. Da in allen im Rahmen dieser Arbeit gemessenen Proben die $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnisse deutlich größer waren (siehe Kap.4), schien es nicht notwendig, einen niedriger konzentrierten Standard zu verwenden. Ein niedriger konzentrierter Standard würde die Messzeiten deutlich verlängern.

Die Messungen der Blankproben aller Strahlzeiten sind in Tab. 3.2 zusammengefasst.

Strahlzeit	gemessenes $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnis der Nullproben [$\times 10^{-13}$]
Februar 1999	$(0,08 \pm 0,08)$
März 1999	$(0,2 \pm 0,13)$
November 1999	$(0,14 \pm 0,08)$
Oktober 2000	$(0,35 \pm 0,25)$
Februar 2001	$(0,12 \pm 0,07)$
August 2001	$(0,05 \pm 0,05)$
März 2002	$< (0,16 \pm 0,16)$
August 2002	$(0,07 \pm 0,07)$

Tab. 3.2: Gemessene $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnisse in den jeweiligen Nullproben der durchgeführten Strahlzeiten.

Die gemessenen Konzentrationen der Nullproben entsprechen im Wesentlichen dem Übersprechen der Ionenquelle. Bei den gemessenen $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnissen in den Proben wurde der Nullproben-Wert der jeweiligen Strahlzeit abgezogen.

Kapitel 4

Ergebnisse der ^{36}Cl Messungen

Die Ergebnisse aller im Rahmen dieser Arbeit sowohl an Proben aus Hiroshima, als auch an den Steinbruch-Proben durchgeführten Messungen (siehe Kapitel 2) werden in diesem Kapitel zusammengefasst. Die angegebenen Fehler ergeben sich aus Fehlern der Strommessung, der Transmission und den statistischen Fehlern.

4.1 Messung der Proben aus Hiroshima

Die folgenden drei Tabellen fassen alle erhaltenen $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnisse für Proben aus Hiroshima zusammen. Tabelle 4.1 zeigt die Ergebnisse aller im Rahmen dieser Arbeit beschafften und gemessenen Proben mit Ausnahme des E-Gebäudes. Aufgrund der Vielzahl der dort durchgeführten Messungen sind diese Ergebnisse gesondert in Tabelle 4.2 aufgelistet. Die gemessenen $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnisse der Proben für die ^{36}Cl - ^{152}Eu Vergleichsmessungen sind in Tabelle 4.3 gezeigt.

Man erkennt, dass die gemessenen $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnisse von $1,67 \cdot 10^{-10}$ (Motoyasu Brücke) nahe am Hypozentrum mit steigenden Abständen r_E immer weiter abfallen, bis in den Bereich von $1 \cdot 10^{-13}$ für große Abstände vom Hypozentrum.

Nach diesen Tabellen werden die Messergebnisse im Einzelnen noch diskutiert. Dabei wird auf mögliche ^{36}Cl -Beiträge in den Steinen, die durch kosmische Strahlung oder U- bzw. Th-Zerfälle natürlich produziert wurden, nicht eingegangen. Eine Diskussion folgt in Kapitel 4.2.

Probe	Nr.	r_E [m]	Material	Tiefe [cm]	$^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ [$\times 10^{-13}$]
Saikoji	N31	590	Granit	9,4-11,4	1570 ± 70
	N22	590	Granit	0-21	1300 ± 70
Fukoku- Gebäude	1	661	Glimmer	0-1	633 ± 56
	2	661	Granit	2,2-4,5	265 ± 15
	3	661	Beton	ca. 18	322 ± 36
Sinkoji	1	1012	Granit	Oberfläche	$19,5 \pm 3,5$
	2	1012	Granit	Oberfläche	$20,4 \pm 2,8$
	3	1012	Granit	Oberfläche	$21,4 \pm 2,4$
	4	1012	Granit	Oberfläche	$21,2 \pm 4,1$
Ganjoyoji	1	1159	Granit	Oberfläche	$5,5 \pm 0,6$
	2	1159	Granit	Oberfläche	$3,1 \pm 0,3$
Tukueiji	-	1295	Granit	Oberfläche	$2,6 \pm 0,4$
Hosenji	1	1303	Granit	Oberfläche	$2,6 \pm 0,6$
	2	1303	Granit	Oberfläche	$2,3 \pm 0,5$
	3	1303	Granit	Oberfläche	$2,2 \pm 0,7$
Jyunkyoji	-	1352	Granit	Oberfläche	$2,3 \pm 0,4$
Rotkreuz- Hospital	1	1593	Beton	5,2	$1,5 \pm 0,6$
	2	1593	Beton	13,9	$1,0 \pm 0,5$
PSO-Gebäude	-	1694	Granit	Oberfläche	$1,2 \pm 0,3$

Tab. 4.1: Messergebnisse aller im Rahmen dieser Arbeit beschafften und untersuchten Proben aus Hiroshima, mit Ausnahme des E-Gebäudes. r_E : Abstand vom Epizentrum.

Probe	Nr.	r_E [m]	Material	Höhe [m]	Tiefe [cm]	$^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ [$\times 10^{-13}$]
Abdeck- Platten	1	1495	Granit	-	0-2	$2,0 \pm 0,4$
	2	1495	Granit	-	0-2	$1,4 \pm 0,2$
	3	1495	Granit	-	0-2	$1,1 \pm 0,3$
	4	1495	Granit	-	0-2	$0,9 \pm 0,2$
	Mittelwert (1-4)	1-4				$1,1 \pm 0,1$
	5	1503	Granit	-	0-2	$0,9 \pm 0,3$
Bohrkern 1	1-2	1495	Granit	1,2	0,5-2,5	$1,7 \pm 0,4$
	1-4	1495	Granit	1,2	6-8	$1,2 \pm 0,2$
	1-5a	1495	Granit	1,2	8-10	$2,0 \pm 0,3$
	1-7	1495	Beton	1,2	24-26	$1,1 \pm 0,3$
	1-9	1495	Beton	1,2	33,5-35,5	$0,7 \pm 0,2$
Bohrkern 2	2-2	1501	Granit	1,2	1-3	$1,1 \pm 0,2$
Bohrkern 3	3-2	1506	Granit	1,2	1-3	$1,0 \pm 0,2$
Bohrkern 4	4-2	1495	Beton	4,9	6-8	$1,1 \pm 0,2$
Bohrkern 5	5-3	1506	Beton	4,9	6-8	$0,8 \pm 0,2$
Bohrkern 6	6-2	1495	Beton	8,4	6-8	$0,6 \pm 0,2$
	6-8	1495	Beton	8,4	24-26	$0,5 \pm 0,2$
	6-10	1495	Beton	8,4	31-33	$0,9 \pm 0,2$

Tab. 4.2: Zusammenfassung aller gemessenen $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnisse in Proben von der Nordfassade des sogenannten E-Gebäudes der Universität von Hiroshima. r_E : Abstand vom Epizentrum. Für eine genaue Lagebeschreibung der Proben siehe Abb. 2.9 .

Probe	r_E [m]	Material	$^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ [$\times 10^{-13}$]
Motoyasu Brücke	598	Granit	1670 ± 118
Shirakami Schrein	763	Granit	188 ± 15
Honkeiji	1065	Granit	$17,7 \pm 2,0$
Myochoji	874	Granit	114 ± 10
Alte Präfektur	1055	Granit	$22,1 \pm 2,1$
Enryuuji	1080	Granit	$16,8 \pm 2,1$
Shingyoji	1093	Granit	$9,9 \pm 1,1$
Rathaus (City Hall)	1171	Granit	$3,3 \pm 0,4$
Kozenji	1299	Granit	$2,2 \pm 0,4$
Senngyoji	4349	Granit	$2,6 \pm 0,7$

Tab. 4.3: Messergebnisse der Proben für die ^{36}Cl - ^{152}Eu -Vergleichsmessungen. r_E : Abstand vom Epizentrum.

· Saikoji Grabstein

In Proben dieses Grabsteins wurden bereits von Haberstock und Mitarbeitern $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Tiefenprofile mit AMS bestimmt (siehe [HHK⁺86] und [KHY⁺90]). Um die in dieser Arbeit erstmalig verwendete trägerfreie chemische Aufbereitung zu überprüfen und die damals erzielte Genauigkeit zu verbessern, wurden die beiden Proben N31 und N22 im Rahmen dieser Arbeit aufbereitet und gemessen. Die Ergebnisse dieser Messungen sind zusammen mit dem früher gemessenen Tiefenprofil in Abbildung 4.1 dargestellt.

Der Wert für die Probe N31 (Tiefe 9,4-11,4 cm) stimmt mit dem von Haberstock in dieser Tiefe gefundenen Maximum gut überein. Das Ergebnis für die Probe N22 (Tiefe 0-21 cm) liegt deutlich niedriger als N31. Mittelt man die von Haberstock erhaltenen Werte aus den Tiefen 0-22 cm, so erhält man ein mittleres $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnis von $1,27 \cdot 10^{-10}$; das stimmt mit dem für N22 gemessenen Verhältnis von $(1,30 \pm 0,07) \cdot 10^{-10}$ sehr gut überein.

Die deutlich kleineren Unsicherheiten der neuen Messungen sind auf die trägerfreie Chemie zurückzuführen.

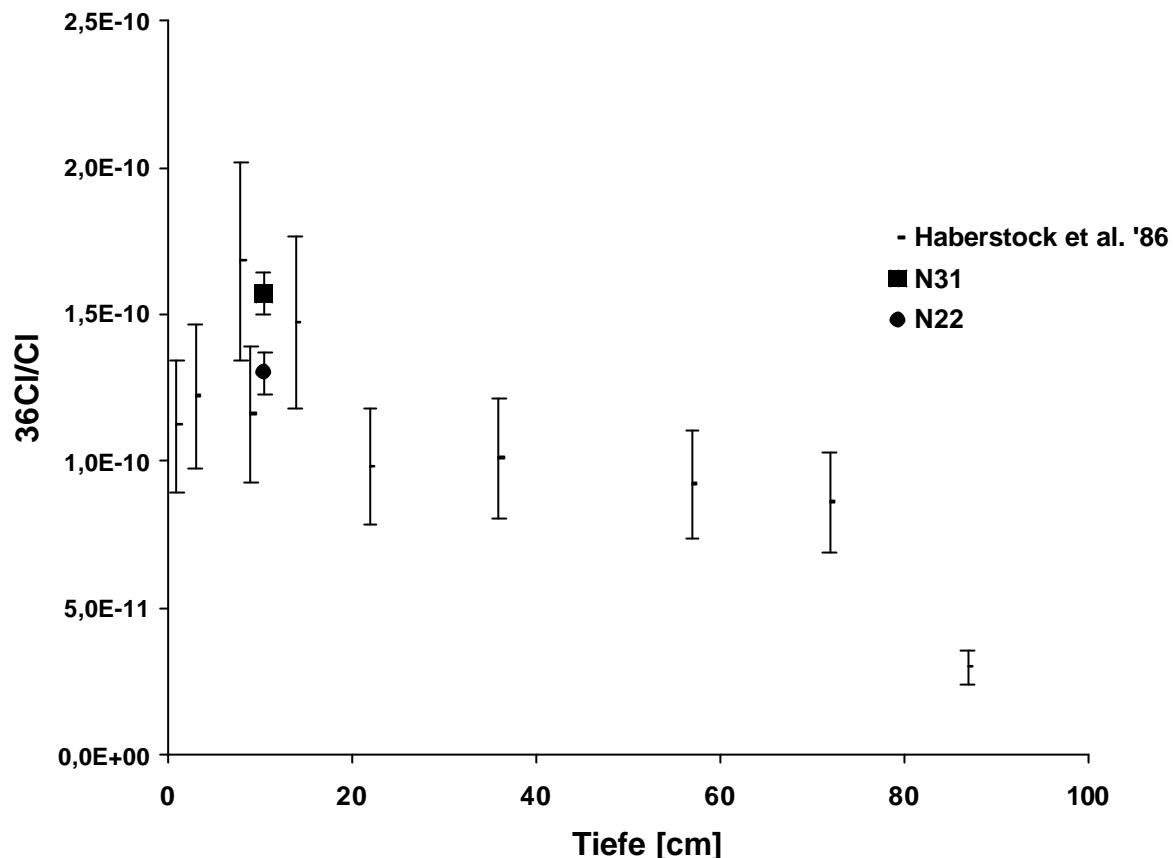


Abb. 4.1: $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Tiefenprofil im Granitgrabstein vom Saikoji-Friedhof (Werte aus [KHY⁺90]). Im Vergleich zu den beiden in dieser Arbeit gemessenen Proben N31 und N22. N31 stammt aus der Tiefe 9,4-11,4 cm; N22 repräsentiert den Mittelwert aus einem 21 cm langen Bohrkern. (siehe Abb. 2.3).

• Fukoku Gebäude

In Proben vom Fukoku-Gebäude wurden in der Vergangenheit bereits Messungen der Radioisotope ^{152}Eu und ^{60}Co durchgeführt und zum Teil veröffentlicht. Um diese mit den ^{36}Cl -Messungen zu vergleichen, werden Konversionsfaktoren benutzt, um die gemessenen Aktivitäten in die entsprechenden $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Konzentrationen umzurechnen (siehe Anhang A). Dazu wurden die Halbwertszeiten, das spezifische Gewicht und die Wirkungsquerschnitte miteinander verrechnet. Auf diese Weise ergeben sich folgende Konversionsfaktoren [Egb99]:

$$\text{Für } ^{152}\text{Eu} : 1 \text{ Bq/mg } (^{152}\text{Eu}) = 1,77 \cdot 10^{-12} \text{ } ^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$$

$$\text{Für } ^{60}\text{Co} : 1 \text{ Bq/mg } (^{60}\text{Co}) = 1,73 \cdot 10^{-11} \text{ } ^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$$

Die Messungen am Fukoku Gebäude sind in Tabelle 4.4 zusammengefasst.

Isotop	Material	Tiefe [cm]	Höhe [m]	Aktivität [Bq/mg]	entsprechendes $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verh.	Referenz
^{36}Cl	Granit	0 - 1	6,8	-	$(6,3 \pm 0,6) \cdot 10^{-11}$	Tab. 4.1
	Granit	2,2 - 4,5	6,8	-	$(2,7 \pm 0,2) \cdot 10^{-11}$	Tab 4.1
	Beton	≈ 18	6,8	-	$(3,2 \pm 0,4) \cdot 10^{-11}$	Tab. 4.1
^{152}Eu	Granit	0 - 0,3	6,0	$85,6 \pm 8,2$	$(15 \pm 1,5) \cdot 10^{-11}$	[Roe87]
	Granit	3,6 - 4,0	6,0	$62,2 \pm 12,2$	$(11 \pm 2,2) \cdot 10^{-11}$	[Roe87]
	Beton	13,8 - 14,9	6,0	$36,5 \pm 10,5$	$(6,5 \pm 1,9) \cdot 10^{-11}$	[Roe87]
	Granit	0 - 2	15,0	32 ± 17	$(5,7 \pm 3,0) \cdot 10^{-11}$	[SIH ⁺ 93]
	Granit	0 - 2	1,85	30 ± 7	$(5,3 \pm 1,3) \cdot 10^{-11}$	[Kat00]
^{60}Co	Eisen	-	22,0	5,7	$9,8 \cdot 10^{-11}$	[Kat00]

Tab. 4.4: Vergleich der Messungen am Fukoku-Gebäude. Die gemessenen Aktivitäten wurden mit Hilfe der Konversionsfaktoren in die entsprechenden $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnisse umgerechnet.

Da im Falle von ^{60}Co auch epithermische Neutronen zur Produktion beitragen, ist hier ein um etwa 10% höherer Messwert zu erwarten. Auch die Höhe der Proben über dem Boden lässt unterschiedliche Messwerte erwarten.

Der in dieser Arbeit erhaltene Wert für die Oberflächenprobe stimmt gut mit den von Shizuma [SIH⁺93] und Kato [Kat00] erhaltenen Werten überein.

Die von Nakanishi [Roe87] erhaltenen ^{152}Eu -Werte und der von Kato [Kat00] erhaltene ^{60}Co -Werte liegen dagegen deutlich höher.

· Grabsteine von Sinkoji, Ganjyoji, Tokueiji, Hosenji und Jyunkyoji

Da der genaue Standort der einzelnen Grabsteine auf dem Friedhof heute nicht mehr rekonstruiert werden kann, wurden vom Sinkoji-Friedhof vier Grabsteine gemessen. Es wurden auch von den Friedhöfen Hosenji (3) und Ganjyoji (2) mehrere Grabsteine gemessen. Durch den Vergleich dieser Messungen kann nun bestimmt werden, wie groß die Unterschiede der gemessenen $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Konzentrationen auf einem Friedhof sein können. Die Ergebnisse dieser drei Friedhöfe sind in Abb. 4.2 dargestellt.

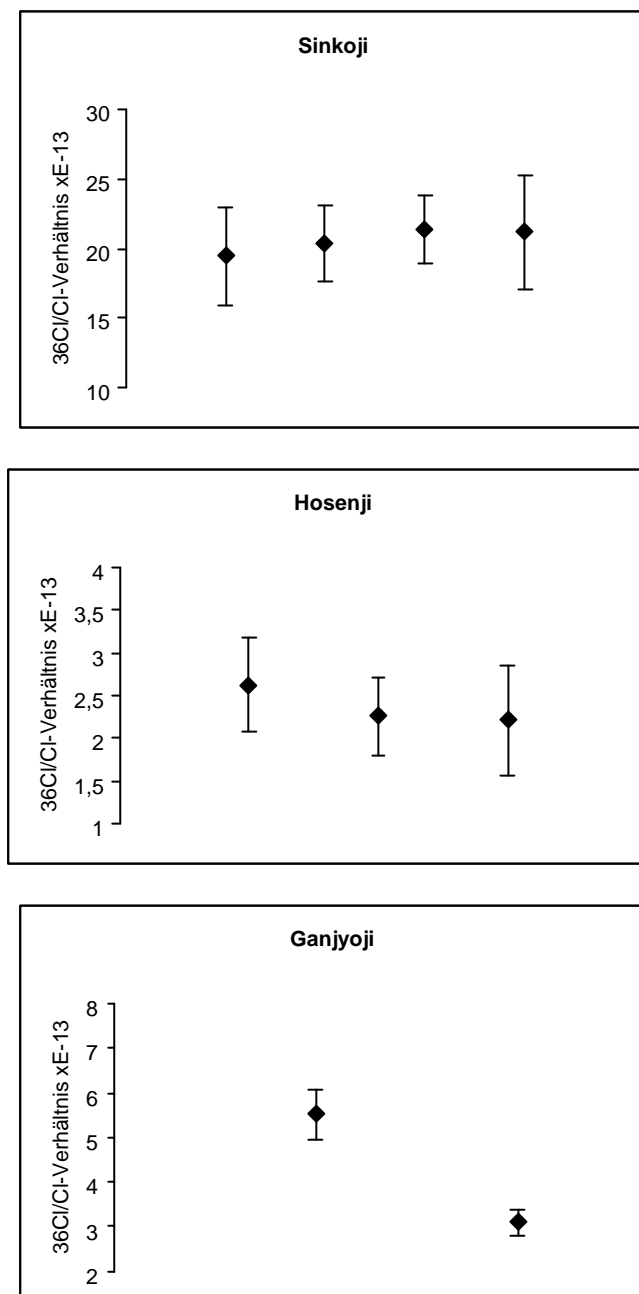


Abb. 4.2: Messergebnisse der einzelnen Grabsteine von den Friedhöfen Sinkoji, Hosenji und Ganjyoji im Vergleich.

Die Messungen bei den Friedhöfen Sinkoji und Hosenji zeigen keine Unterschiede der Einzelmessungen. Beim Ganjyoji-Friedhof ist eine der beiden gemessenen Proben deutlich niedriger als die andere. Das lässt darauf schließen, dass eine Probe möglicherweise von einem Gebäude abgeschirmt worden war.

Zusammenfassend ist festzustellen, dass eine Abschirmung einzelner Proben nicht ausgeschlossen werden kann, aber gerade die Messungen bei Sinkoji und Hosenji zeigen deutlich, dass eine Kenntnis der genauen Standorte der Grabsteine nicht notwendig ist.

Zum Zweiten können nun Grabsteine mit vergleichbaren Abständen vom Hypozentrum, aber aus verschiedenen Richtungen miteinander verglichen werden. Verglichen werden kann so Hosenji mit den beiden Grabsteinen Tokueiji und Jyunkyoji. Gerade Tokueiji und Hosenji haben sehr ähnliche Abstände zum Hypozentrum, liegen jedoch in unterschiedlichen Richtungen (vgl. Abb. 2.1). Die gemessenen $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnisse in den Proben von diesen beiden Friedhöfen passen sehr gut zusammen. Somit gibt es keine erkennbaren Anzeichen für richtungsabhängige Asymmetrieffekte der Neutronenfluenz, wie sie in [PPI⁺83] diskutiert wurden. Auch in [SIH⁺93] wurden keine Asymmetrieffekte gefunden.

• **E-Gebäude (Fakultät der Wissenschaften der Universität Hiroshima)**

Dieses Gebäude wurde aus mehreren Gründen für umfangreiche Untersuchungen ausgewählt:

- Das Gebäude ist eines der wenigen Gebäude in Hiroshima, die bis heute erhalten sind.
- Seine Entfernung zum Hypozentrum ist weit genug, um die in Kapitel 1 diskutierte Diskrepanz zu untersuchen. Gleichzeitig sind die $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnisse noch hoch genug, um AMS-Messungen leicht durchführen zu können.
- Das Gebäude besteht sowohl aus Granit als auch aus Beton. So können Messungen an Granitproben direkt mit Messungen von Betonproben verglichen werden.

Bodenplatten

Als erste Proben vom E-Gebäude wurden die Bodenplatten gemessen. Dabei wurde von den Proben 1 - 4, die alle direkt den Atombombenneutronen ausgesetzt waren, ein gewichteter Mittelwert gebildet. Der Wert dieses Mittelwerts von $(1,1 \pm 0,1) \cdot 10^{-13}$ liegt nur etwas höher als der Wert für die Probe 5 von $(0,9 \pm 0,3) \cdot 10^{-13}$, die ja durch das Gebäude selbst abgeschirmt war. Selbst wenn man die Tatsache berücksichtigt, dass thermische Neutronen weitgehend isotrop verteilt sind und Abschirmeffekte daher nicht so stark ausgeprägt sind, würde man dennoch einen stärkeren Unterschied erwarten. Dies deutet darauf hin, dass in diesen Proben die Produktion von ^{36}Cl durch die Atombombe nur eine kleine Rolle gespielt hat und der größere Teil des ^{36}Cl auf natürliche Weise entstanden ist (siehe Kapitel 4.2).

Bohrkerne

Um die Ergebnisse der Messungen an den Bodenplatten zu bestätigen und um weitere Untersuchungen durchzuführen, wurden zusätzlich zu den Bodenplatten noch 6 Bohrkerne als Proben genommen.

Die Ergebnisse der Granit-Oberflächenproben (1-2, 2-2, 3-2) stimmen sehr gut mit den Ergebnissen der Bodenplatten 1 - 4 überein. Der gewichtete Mittelwert der 3 Granit-Oberflächenproben ($1,12 \pm 0,12$) $\cdot 10^{-13}$ ist mit dem gewichteten Mittelwert der Bodenplatten 1 - 4 beinahe identisch. Die Messungen der Bodenplatten wurden somit voll bestätigt.

Da der obere Teil des Gebäudes außen mit Ziegeln verkleidet war, sind die ersten Betonproben, die gemessen werden konnten, aus einer Tiefe von 6 - 8 cm. Vergleicht man nun die Messungen 1-4 und 4-2, die aus gleicher Tiefe stammen, so ergeben sich mit $(1,2 \pm 0,2) \cdot 10^{-13}$ und $(1,1 \pm 0,2) \cdot 10^{-13}$ sehr ähnliche Werte. Auch der gewichtete Mittelwert der 3 Beton-Oberflächenproben von $(0,73 \pm 0,1) \cdot 10^{-13}$ ist vergleichbar mit dem Wert für die Granit-Proben. Somit deutet nichts darauf hin, dass Unterschiede der chemischen Zusammensetzung von Beton und Granit die von Straume und Mitarbeitern [SEW⁺92] in Beton-Proben gemessenen hohen Werte erklären kann.

Die Abbildungen 4.3 und 4.4 zeigen Tiefenprofile der Bohrkerne 1 und 6.

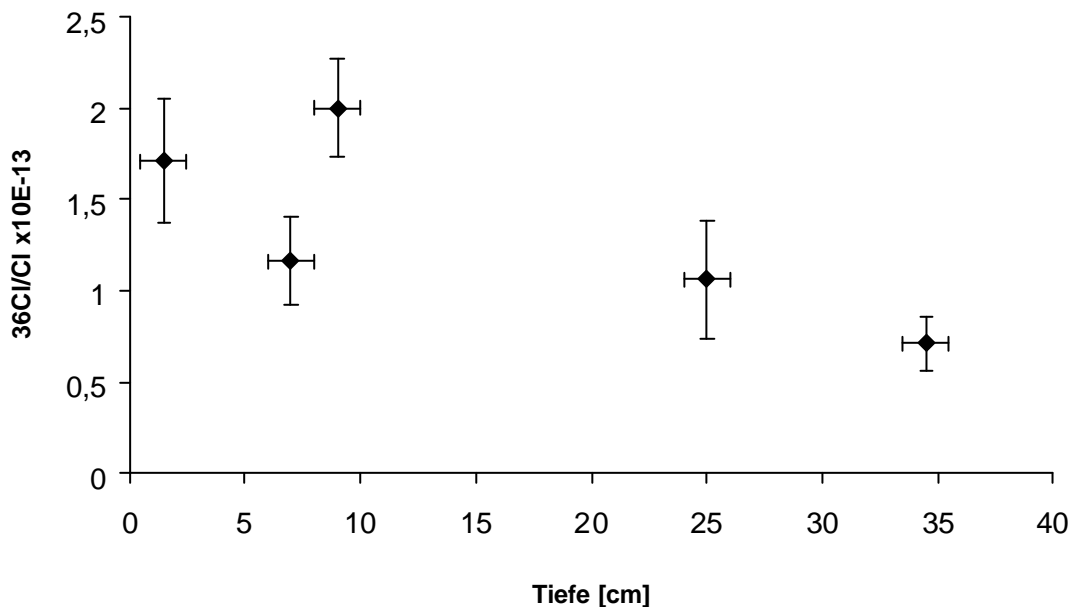


Abb. 4.3: $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Tiefenprofil im Bohrkern Nr. 1 des E-Gebäudes. Der genaue Aufbau des Bohrkerns ist in Abb. 2.11 gegeben.

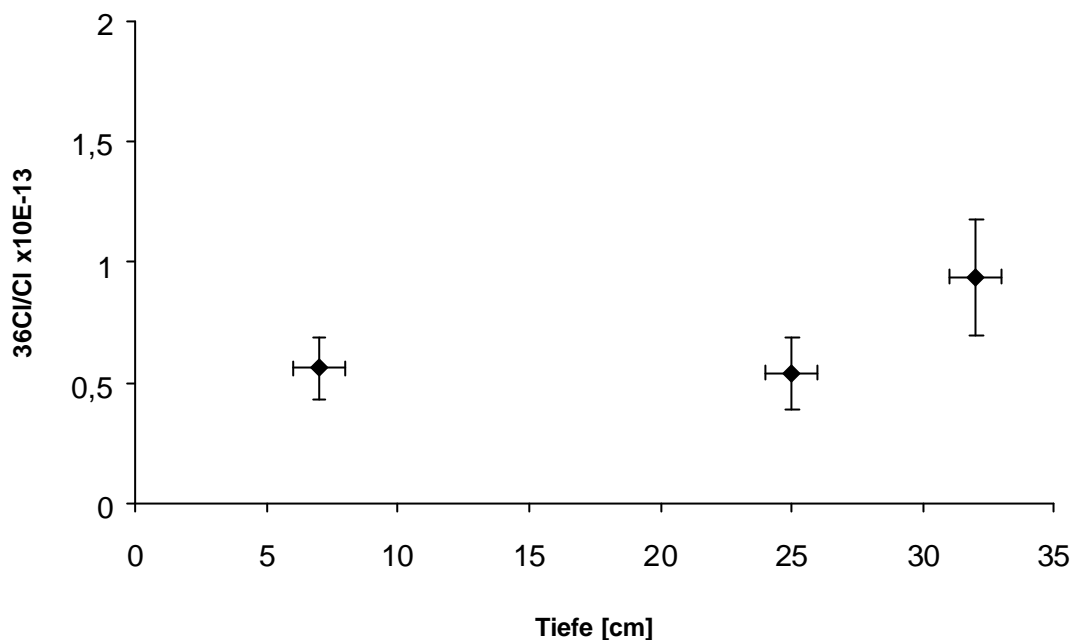


Abb. 4.4: $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Tiefenprofil im Bohrkern Nr. 6 des E-Gebäudes. Der genaue Aufbau des Bohrkerns ist in Abb. 2.11 gegeben.

Bei Bohrkern Nr. 1 wurden hohe Werte nahe der Oberfläche gemessen, die Werte aus größerer Tiefe sind deutlich niedriger. Das ist ein Tiefenprofil wie man es erwarten würde.

Bei Bohrkern Nr. 6 sind der Wert nahe der Oberfläche und der Wert bei 25 cm beinahe gleich, während der tiefste Wert sogar etwas höher liegt. Wie bereits erwähnt, gibt es Hinweise darauf, dass ein großer Teil des ^{36}Cl in diesen Steinen nicht durch die Atombombe produziert wurde, sondern natürlich produziert wurde. Da Bohrkern Nr. 6 aus Beton besteht und Beton eine Mischung aus verschiedenen Komponenten ist, könnten Unterschiede des natürlichen $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnisses in den einzelnen Komponenten dieses Tiefenprofil erklären.

• Rotkreuz-Hospital

Die Proben des Rotkreuz-Hospitals wurden nicht wie alle sonstigen Proben in München aufbereitet. Stattdessen wurde von Dr. Straume von der Universität von Utah bereits aufbereitetes Silberchlorid geschickt. Da diese Proben bereits in Livermore am LLNL und an der Universität von Perdue untersucht worden waren, erlaubte eine Messung dieser Proben in München eine Überprüfung der

Methode der Beschleunigermassenspektrometrie an den verschiedenen Labors. Die Ergebnisse sind in Tabelle 4.4 zusammengefasst.

Probennr.	Labor	$^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ [$\times 10^{-13}$]
1	München	$1,5 \pm 0,6$
	LLNL	$2,29 \pm 0,21$
	Perdue	$2,12 \pm 0,32$
2	München	$1,0 \pm 0,5$
	Perdue	$1,38 \pm 0,18$

Tab. 4.5 : Messergebnisse des Rotkreuz-Hospitals. Vergleich der verschiedenen Labors. Die Werte vom LLNL und Perdue stammen von [Str01].

Die im Rahmen dieser Arbeit in München erzielten Ergebnisse sind im Rahmen der Messunsicherheiten mit den Werten aus Livermore und Perdue kompatibel. Die relativ hohen Messunsicherheiten bei den Ergebnissen aus München sind auf die sehr kleinen Probenmengen von 1-2 mg zurückzuführen.

Zusätzlich ist auch hier festzustellen, dass die gemessenen $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnisse wie beim E-Gebäude im Bereich von $1 \cdot 10^{-13}$ liegen, obwohl das Rotkreuz-Hospital weiter vom Hypozentrum entfernt ist. Auch das weist darauf hin, dass der Großteil des ^{36}Cl natürlich produziert wurde und nur ein kleiner Teil durch die Atombombenneutronen produziert wurde.

• **PSO-Gebäude**

In Betonproben von diesem Gebäude hatte Straume et al. große Diskrepanzen zwischen Messungen und DS86-Rechnungen festgestellt [SEW⁺92]. Das in dieser Arbeit gemessene $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnis liegt auch hier, obwohl das PSO-Gebäude deutlich weiter entfernt ist als das E-Gebäude und das Rotkreuz-Hospital, im Bereich von $1 \cdot 10^{-13}$. Dies deutet wieder darauf hin, dass der Großteil des ^{36}Cl nicht atombombenproduziert ist.

· Proben der ^{36}Cl - ^{152}Eu -Vergleichsmessungen

Da uns von diesen Proben nur die Abstände vom Hypozentrum, nicht aber Informationen über genaue Geometrie und Abschirmung der einzelnen Proben zur Verfügung gestellt wurden, ist es schwierig, die Ergebnisse genau zu diskutieren. Festzuhalten ist, dass Proben aus ähnlichen Entfernungen wie zuvor gemessene Proben, wie z.B. Saikoji und Motoyasu, auch sehr ähnliche Ergebnisse liefern. So liefert auch die Messung der Kozenji-Probe mit $(2,2 \pm 0,4) \cdot 10^{-13}$ fast den identischen Wert wie die Messung der Jyunkyoji-Probe $(2,3 \pm 0,4) \cdot 10^{-13}$.

Auffällig ist der sehr hohe Wert für die Messung der Senngyoji-Probe. Bei dieser Probe erwartet man aufgrund des sehr großen Abstandes vom Hypozentrum ein sehr niedriges $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnis. Das Verhältnis ist jedoch höher als die gemessenen Verhältnisse beim E-Gebäude. Auch dieser hohe Wert deutet darauf hin, dass in dieser Probe der größte Teil des ^{36}Cl nicht durch Neutronen der Atombombe produziert wurde.

· Zusammenfassung aller Ergebnisse

Die Ergebnisse aller oberflächennahen Proben sind in Abbildung 4.5 als Funktion des Abstandes vom Epizentrum dargestellt. Dazu wurden die Werte aus Tabelle 4.1 benutzt. Vom E-Gebäude wurde der Mittelwert der Bodenplatten 1 - 4 und die Werte der oberflächennahen Proben der Bohrkerne (1-2, 2-2, 3-2, 4-2, 5-3 und 6-2) benutzt. Die Ergebnisse der ^{36}Cl - ^{152}Eu -Vergleichsmessungen sind in Tabelle 4.6 und in Abbildung 4.6 zusammengefasst bzw. dargestellt. In beiden Abbildungen sind zum Vergleich gerechnete $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnisse, die mit dem einen Meter über dem Boden geltenden DS86-Neutronenspektrum erhalten wurden, eingezeichnet. Abschirmungen sind in den Rechnungen nicht enthalten (engl. **free in air**; **FIA**).

Aus Abbildung 4.5 wird deutlich, dass die gemessenen $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnisse nahe am Epizentrum niedriger sind als die mit Hilfe von DS86 gerechneten Verhältnisse (vgl. Abb. 1.7). Für große Abstände werden ab etwa 1350 m größere Verhältnisse gemessen als mit DS86 gerechnet. Allerdings müssen für einen genauen Vergleich lokale Unterschiede, wie z.B. Geometrie, Tiefe, Höhe über dem Boden etc., für jede einzelne Probe bei den Rechnungen berücksichtigt werden. Außerdem muss für Proben aus großen Abständen, die somit ein niedriges $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnis haben, eine sorgfältige Bestimmung des natürlichen $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnisses erfolgen. Dieses natürliche $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnis muss dann von den gemessenen Verhältnissen abgezogen werden. Eine ausführliche Diskussion findet in Abschnitt 4.2 und in Kapitel 5 statt.

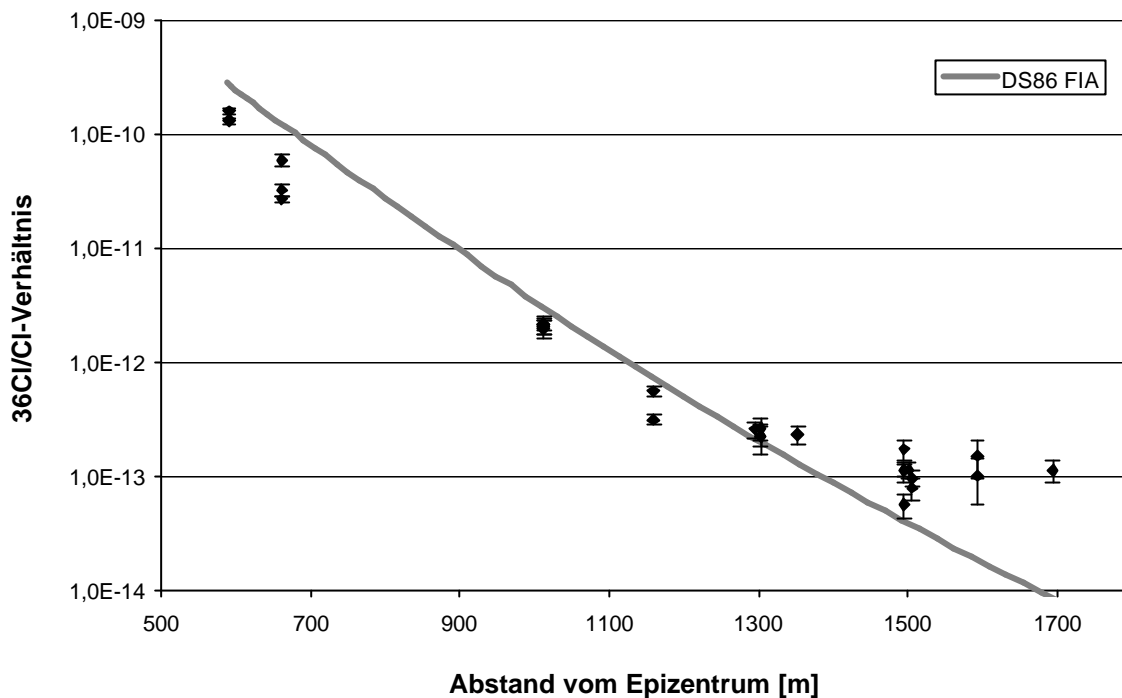


Abb. 4.5: Gemessene $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnisse in Abhängigkeit vom Abstand vom Epizentrum. Im Vergleich dazu mit DS86 gerechnete Werte [Egb01].

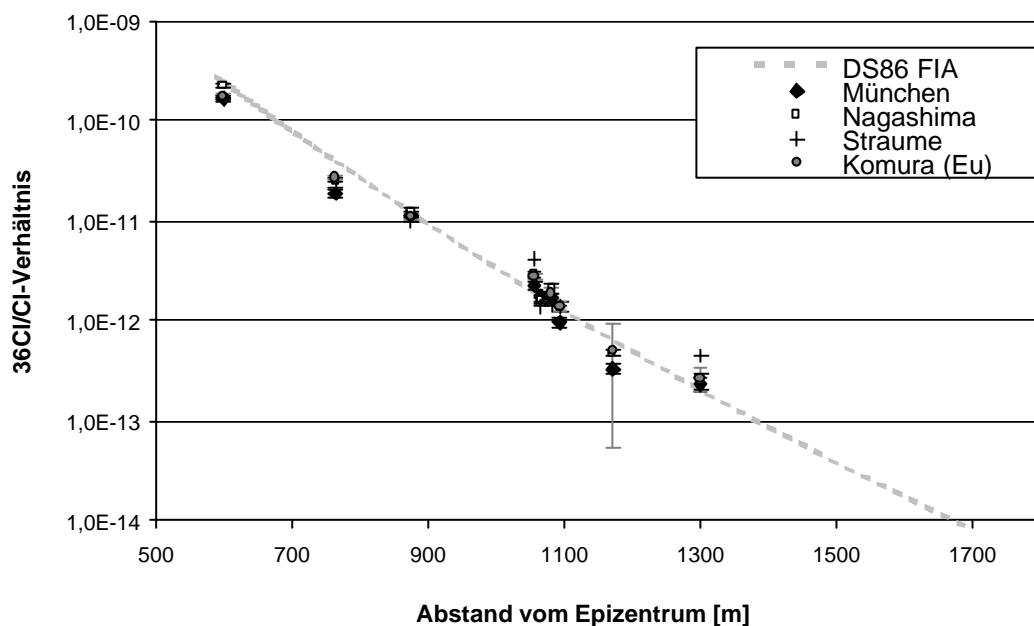


Abb. 4.6: Zusammenfassung der $^{36}\text{Cl} - ^{152}\text{Eu}$ -Vergleichsmessungen. Dargestellt sind die in dieser Arbeit erhaltenen Ergebnisse im Vergleich mit den in den USA [Str02] und Japan [Nag02] erhaltenen ^{36}Cl -Ergebnissen und den Ergebnissen der ^{152}Eu Messungen [Kom02]. Die ^{152}Eu -Aktivitäten wurden in $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnisse umgerechnet (Anhang A).

Probe	r_E [m]	Straume et al. ^{36}Cl [x 10^{-13}]	Nagashima et al. ^{36}Cl [x 10^{-13}]	München ^{36}Cl [x 10^{-13}]	Komura et al. ^{152}Eu [x 10^{-13}]
Motoyasu	598	1650 ± 9,1	2250 ± 80	1670 ± 118	1760 ± 81
Shirakami	763	215 ± 3,3	252 ± 11,7	188 ± 15	269 ± 14
Honkeiji	1065	13,9 ± 0,3	16,0 ± 1,1	17,7 ± 2,0	-
Mychoji	874	97,4 ± 2,4	125 ± 11,2	114 ± 10	110 ± 7
Alte Präfektur	1055	41,6 ± 0,6	28,8 ± 1,3	22,1 ± 2,1	27,8 ± 2,3
Enryuuj	1080	14,1 ± 0,4	20,9 ± 2,7	16,8 ± 2,1	18,8 ± 2,3
Shingyoji	1093	13,9 ± 0,3	13,7 ± 1,7	9,9 ± 1,1	13,8 ± 1,8
Rathaus	1171	-	4,8 ± 0,3	3,3 ± 0,4	5,0 ± 4,4
Kozenji	1299	4,4 ± 0,2	2,5 ± 0,45	2,2 ± 0,4	2,7 ± 0,7
Senngyoji	4349	2,7 ± 0,2	3,0 ± 0,4	2,6 ± 0,7	-

Tab. 4.6: Ergebnisse der ^{36}Cl - ^{152}Eu -Vergleichsmessungen. Zusammengefasst sind die, im Rahmen dieser Arbeit, in München gemessenen $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnisse, die in den USA von Straume et al. [Str02] und in Japan von Nagashima et al. [Nag02] gemessenen $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnisse und die in $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnisse umgerechneten (siehe Angang A) ^{152}Eu -Messungen von Komura et al. [Kom02].

Bei den ^{36}Cl - ^{152}Eu -Vergleichsmessungen liegen die von Nagashima gemessenen Werte systematisch etwas höher als die in München gemessenen Werte. Die von Straume gemessenen Werte schwanken im Vergleich zu den Werten aus München und Japan. Die von Komura gemessenen ^{152}Eu -Daten stimmen mit den Werten aus dieser Arbeit und den Werten von Nagashima im Rahmen der Unsicherheiten gut überein. Grundsätzlich zeigen alle Messungen einen sehr ähnlichen Verlauf.

Die gemessenen $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnisse und die Werte der ^{152}Eu -Messungen sind auch hier nahe am Epizentrum niedriger als die mit DS86 gerechneten. Die Messungen in größeren Entfernungen zum Epizentrum zeigen keine signifikanten Unterschiede zu den DS86-Rechnungen. Da die entfernteste Probe aus einem Abstand von 1300 m vom Epizentrum stammt, ist auch noch kein signifikanter Unterschied zu erwarten (vgl. Abb. 4.5). Die Probe vom Rathaus (1171 m vom Epizentrum) liegt

sowohl bei den Messungen aus München, als auch bei den Messungen von Nagashima deutlich niedriger als die Rechnung. Dies deutet darauf hin, dass diese Probe zum Zeitpunkt der Explosion abgeschirmt war.

4.2 Messung des ³⁶Cl In-situ-Untergrunds

Um das ³⁶Cl/Cl-Verhältnis, das natürlich in Granitproben vorkommt, zu untersuchen, wurden Proben aus 4 Steinbrüchen gemessen. Der Zusammenhang zwischen den Proben und den Steinbrüchen ist in Tabelle 2.4 dargestellt. Es wurde zuerst pro Steinbruch je eine Probe untersucht. Später wurden dann aus dem Giin-Steinbruch weitere 5 Proben aus verschiedenen Tiefen gemessen. Die Ergebnisse sind in Tabelle 4.7 zusammengestellt.

Granittyp (Steinbruch)	Nr.	Entfernung [km]	Tiefe [m]	³⁶ Cl/Cl [x10 ⁻¹³]
Aji		155	(10 - 30)*	0,23 ± 0,23
Iyo		60	(5 - 60)*	0,34 ± 0,10
Giin		33	(10 - 30)*	0,80 ± 0,15
Odachi		33	(7 - 100)*	1,24 ± 0,29
Giin (Tiefenprofil)	B1	33	Oberfläche	1,03 ± 0,22
	B2	33	1,2 - 1,3	0,90 ± 0,26
	B3	33	2,1 - 2,3	0,86 ± 0,18
	B4	33	3,2 - 3,3	0,48 ± 0,12
	C	33	26 - 33	0,94 ± 0,17

Tab. 4.7: Messergebnisse an Steinbruchproben aus der Nähe von Hiroshima, die nicht den Neutronen der Atombombe ausgesetzt waren. Die Tiefenangaben stammen von [Kat01] und [Kat02]. Die mit ()^{*} gekennzeichneten Tiefen sind geschätzt.

Die Werte der 4 Steinbrüche sind in Abbildung 4.7, die Werte des Giin-Tiefenprofils sind in Abbildung 4.8 graphisch dargestellt.

Das natürliche $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnis ist in den Proben aus den 4 Steinbrüchen stark unterschiedlich. Das bedeutet, dass für jede Granit-Probe aus Hiroshima genau bestimmt werden muss, woher der Stein stammt, um den natürlichen Untergrund richtig abziehen zu können, wenn man Proben jenseits 1300 m vom Epizentrum untersuchen will.

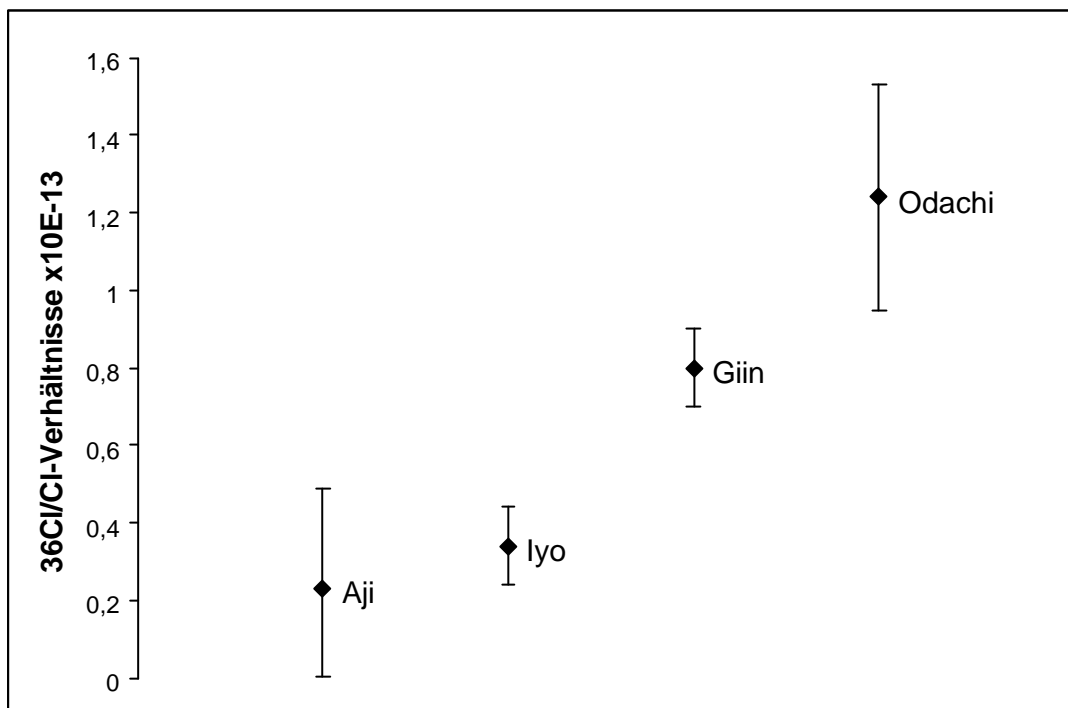


Abb. 4.7: $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnisse in Proben aus 4 Steinbrüchen in der Nähe von Hiroshima.

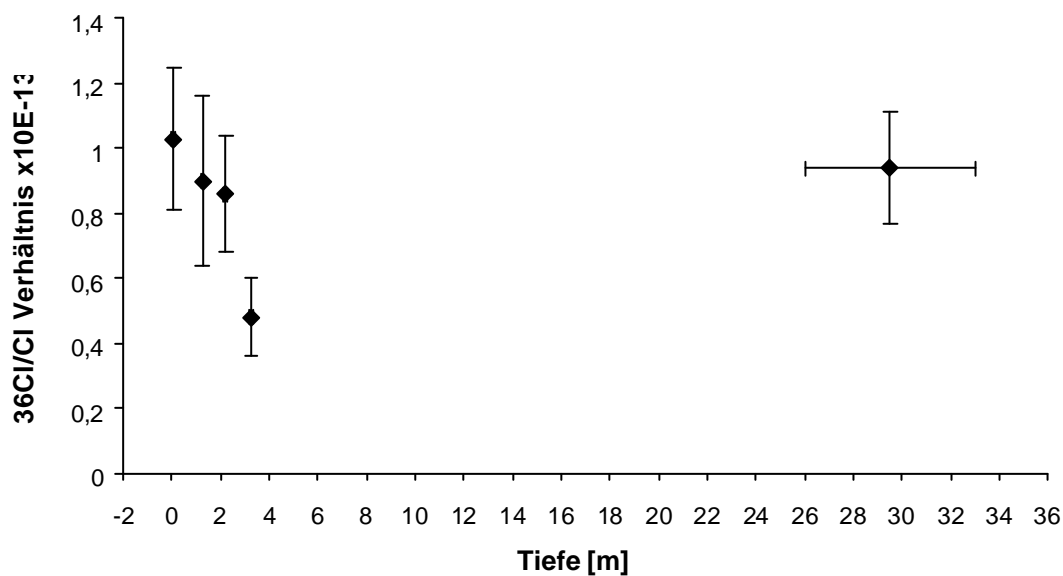


Abb. 4.8: $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnisse als Funktion der Tiefe in Proben aus dem Giin-Steinbruch auf der Insel Kurahashi.

Für Betonproben ist eine genaue Bestimmung des Untergrundes nur sehr schwer möglich, da nicht rekonstruierbar ist, woher die einzelnen Bestandteile des Betons stammen. Schwankungen des Untergrundes könnten so das Tiefenprofil von Bohrkern Nr. 6 (vgl. Abb. 4.4) erklären.

Die beiden Messungen der Steine von der Insel Kurahashi (Giin und Odachi) zeigen Werte im Bereich von $1 \cdot 10^{-13}$. Das ist genau der Bereich, in dem auch die Werte für das E-Gebäude und das PSO-Gebäude liegen (siehe Tabelle 4.1 und 4.2). So kann erklärt werden, warum die gemessenen Verhältnisse bei beiden Gebäuden in einem ähnlichen Bereich liegen, obwohl sie verschiedene Abstände vom Hypozentrum haben.

Das Tiefenprofil des Giin-Steinbruchs zeigt einen Abfall der $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnisse mit steigender Tiefe bei den 4 oberflächennahen Proben B1 - B4, jedoch wieder einen relativ hohen Wert für die Probe aus großer Tiefe. Das könnte auf eine unterschiedliche chemische Zusammensetzung der tieferen Granitschicht hindeuten. Eine genaue Analyse dieser Messungen kann nur mit Kenntnis der genauen chemischen Zusammensetzung dieser Proben erfolgen. Diese wird gegenwärtig bestimmt.

4.3 Zusammenfassung

In Abbildung 4.9 sind nun noch einmal alle Messungen zusammengefasst. Zu den DS86 FIA-Rechnungen ist nun der minimal ($0,23 \cdot 10^{-13}$) und der maximal ($1,24 \cdot 10^{-13}$) gemessene Wert für den natürlichen Untergrund addiert. So wird ein Bereich eingegrenzt, in dem man die Messwerte für Proben aus großen Abständen vom Epizentrum erwartet.

Man kann deutlich erkennen, dass die Messwerte von Proben mit Abständen größer 1300 m, die in Abbildung 4.5 noch deutlich höher als die DS86 FIA-Rechnungen lagen, nun genau in dem gemessenen Untergrundband liegen.

Aufgrund der großen Unterschiede des natürlichen $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnisses in den untersuchten Graniten ist es notwendig, für jede Probe aus Hiroshima, die aus einer Entfernung größer als 1300 m vom Epizentrum stammt, einen individuellen Untergrund zu bestimmen, der dann vom Messwert abgezogen wird. Dies erfolgt in Kapitel 5.

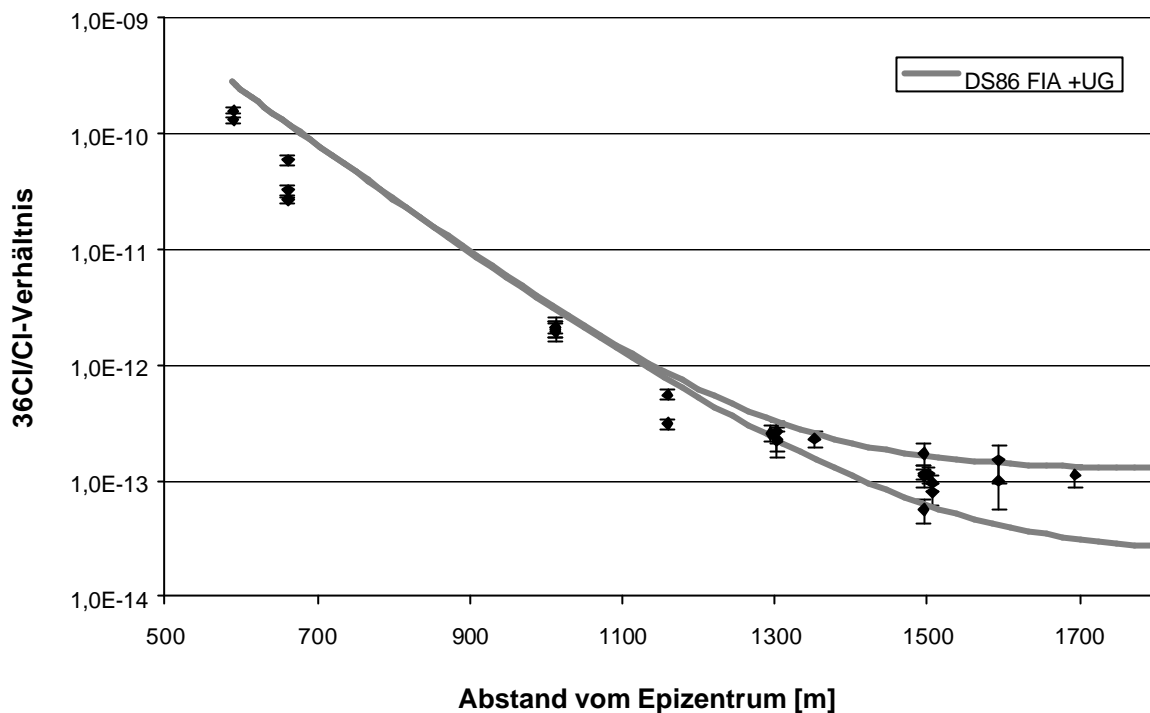


Abb. 4.9: Gemessene $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnisse in Abhängigkeit vom Abstand vom Epizentrum. Die durchgezogenen Linien zeigen mit DS86 gerechnete Werte zu denen der in Abschnitt 4.2 bestimmte maximale und minimale natürliche Untergrund addiert wurde. So ergibt sich ein Bereich für den natürlichen Untergrund, der zwischen den beiden Linien liegt.

Für einen quantitativen Vergleich der Messergebnisse mit den DS86-Rechnungen müssen zusätzlich noch für jede Probe lokale Besonderheiten, die zu einer Änderung des einen Meter über dem Boden angenommenen Neutronenspektrums führen, berücksichtigt werden. Dies erfolgt in Kapitel 6 (Diskussion).

Kapitel 5

Natürliche In-situ Produktion von ^{36}Cl

Wie in Kapitel 4 bereits festgestellt wurde, ist es aufgrund der großen Unterschiede des natürlichen ^{36}Cl -Untergrundes in den untersuchten Graniten notwendig, für alle Proben, deren $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnis im Bereich vom $\leq 1 \cdot 10^{-13}$ liegt, einen individuellen Untergrund für jede Probe zu bestimmen. In diesem Kapitel werden nun Rechnungen vorgestellt, die für jede Probe eine Bestimmung des natürlichen ^{36}Cl -Untergrundes erlauben.

5.1 Reaktionsmechanismen

In der Lithosphäre wird ^{36}Cl durch 4 verschiedene Mechanismen produziert [Hei98], [HLJ⁺02], [FOK68] :

- **Spallations- und andere Kern-Reaktionen durch die Nukleonenkomponente der Höhenstrahlung an K und Ca**
- **Teilchenemission nach dem Einfang von gestoppten negativen Myonen in K und Ca.**
- **Reaktionen an K und Ca durch hadronische und elektromagnetische Schauer, die durch schnelle Myonen induziert werden.**
- **Neutroneneinfangsreaktionen an $^{35}\text{Cl}(\text{n,g})^{36}\text{Cl}$. Die Neutronen stammen dabei von Spallationsreaktionen, Myonen-Einfangsreaktionen, Reaktionen von schnellen Myonen oder den α -Zerfällen von U und Th mit anschließenden (α, n) Reaktionen.**

Alle diese Reaktionen tragen in Granit, der jeweils etwa 2 % K und Ca enthält, zum natürlichen ^{36}Cl -Untergrund bei und müssen deshalb bei den späteren Rechnungen berücksichtigt werden.

5.2 Berechnung des natürlichen ^{36}Cl Untergrundes

Die folgenden Annahmen wurden [HLJ⁺02] entnommen. Die Tiefenabhängigkeit der Produktionsraten durch die Nukleonenkomponente, durch gestoppte negative Myonen und durch schnelle Myonen kann näherungsweise als Exponentialfunktion dargestellt werden. Die Abschirmlängen λ für diese Näherung sind $\lambda_h = 150 \text{ g/cm}^2$ für die Nukleonenkomponente, $\lambda_{\mu^-} = 1510 \text{ g/cm}^2$ für gestoppte Myonen und $\lambda_{\mu^+} = 4320 \text{ g/cm}^2$ für schnelle Myonen.

Für die Neutroneneinfangreaktionen wird angenommen, dass die Neutronen verlustfrei thermalisiert werden und nur thermische Neutronen zu den Neutroneneinfangreaktionen beitragen.

· Produktionsrate $P_h(0)$ durch die Nukleonenkomponente

Rechnet man die Produktionsrate aus [HLJ⁺02] mit Hilfe von [Lal91] auf die geomagnetische Breite von Hiroshima um, so ergibt sich auf Meereshöhe an der Oberfläche:

$$P_h(0) = (h(\text{K}) \cdot 140 + h(\text{Ca}) \cdot 37,2 + 1915 \cdot f(^{36}\text{Cl})) \text{ g}^{-1} \text{ a}^{-1} \quad (5.1)$$

mit:

$h(\text{K})$: Massenanteil von K im Granit

$h(\text{Ca})$: Massenanteil von Ca im Granit

$f(^{36}\text{Cl})$: Anteil der Neutronen, die ^{36}Cl erzeugen

$$f(^{36}\text{Cl}) = \frac{a(^{35}\text{Cl}) \cdot s(^{35}\text{Cl}(n_{th}, ?)^{36}\text{Cl})}{\sum a(Z) \cdot s_{th}(Z)} \quad (5.2)$$

mit:

$a(Z)$: Teilchenanteil des Elements bzw. Isotops Z

$\sigma_{th}(Z)$: Wirkungsquerschnitt für thermische Neutronen des Elements bzw. Isotops Z

In Gleichung 5.1 wird die ^{36}Cl -Produktionsrate durch Spallationsreaktionen an K und Ca beschrieben. Außerdem werden (n,γ) Reaktionen an ^{35}Cl durch thermische Neutronen der Nukleonenkomponente berücksichtigt.

· **Produktionsrate $P_{\mu^-}(0)$ durch gestoppte negative Myonen**

$$P_{\mu^-}(0) = (f_c(\text{K}) \cdot f_D(\text{K}) \cdot f^*(\text{K} \textcircled{\text{R}} ^{36}\text{Cl}) + f_c(\text{Ca}) \cdot f_D(\text{Ca}) \cdot f^*(\text{Ca} \textcircled{\text{R}} ^{36}\text{Cl}) + n_{\mu^-}(n) \cdot f(^{36}\text{Cl})) \cdot 190 \text{ g}^{-1} \text{ a}^{-1}$$

$$= (f_c(\text{K}) \cdot 5,33 + f_c(\text{Ca}) \cdot 7,26 + n_{\mu^-} \cdot f(^{36}\text{Cl}) \cdot 190) \text{ g}^{-1} \text{ a}^{-1} \quad (5.3)$$

mit:

$f_c(\text{Z})$: chemischer Compound Faktor des Elements Z

$f_D(\text{Z})$: Wahrscheinlichkeit, dass μ^- nicht zerfällt bevor es eingefangen wird (aus [SM87])

f^* : Wahrscheinlichkeit, dass ^{36}Cl produziert wird nach μ^- Einfang (aus [HLJ⁺02])

$n_{\mu^-}(n)$: mittlere Anzahl produzierter Neutronen pro μ^- Einfang im untersuchten Mineral

$$f_c(\text{Z}) = \frac{a(\text{Z}) \cdot P(\text{Z})}{\sum a(\text{Z}) \cdot P(\text{Z})} \quad (5.4)$$

mit:

$P(\text{Z})$: durchschnittliche Einfangswahrscheinlichkeit relativ zu Sauerstoff (aus [EH82])

$$n_{\mu^-} = \sum f_c(\text{Z}) \cdot f_D(\text{Z}) \cdot f_n(\text{Z}) \quad (5.5)$$

mit:

$f_n(\text{Z})$: mittlere Anzahl emittierter Neutronen pro μ^- Einfang des Elements Z (aus [Sin74])

Gleichung 5.3 beschreibt die Produktion von ^{36}Cl durch μ^- Einfang in K und Ca und die Produktion durch Neutroneneinfangreaktionen an ^{35}Cl ; die Neutronen stammen dabei aus μ^- - Einfangsreaktionen.

· **Produktionsrate $P_{\mu^+}(0)$ durch schnelle Myonen**

$$P_{\mu^+}(0) = (h(\text{K}) \cdot 3,49 + h(\text{Ca}) \cdot 0,739 + 12,2 \cdot f(^{36}\text{Cl})) \text{ g}^{-1} \text{ a}^{-1} \quad (5.6)$$

(Werte aus [HLJ⁺02])

· **Produktionsrate $P_{\text{U,Th}}$ durch Neutronen aus U- und Th-Zerfällen**

Durch (α, n) Reaktionen mit α -Teilchen aus den Zerfällen von ^{235}U , ^{238}U und ^{232}Th und durch Spontanspaltung von ^{238}U werden in Granit Neutronen produziert. Die Zahl dieser Neutronen ist abhängig vom U und Th-Gehalt des Granits und der restlichen chemischen Zusammensetzung. Die Neutronen produzieren ^{36}Cl über die Reaktion $^{35}\text{Cl}(n, \gamma)^{36}\text{Cl}$. Die Produktionsrate in Abhängigkeit der chemischen Zusammensetzung kann [FOK68] entnommen werden.

Gesamtproduktionsrate $P(h)$ in Abhängigkeit der Tiefe h

Mit den in [HLJ⁺02] angenommenen exponentiellen Tiefenabhängigkeiten für myoneninduzierte Reaktionen, ergibt sich:

$$P(h) = P_h(0) \cdot e^{-\frac{h}{150\text{g/cm}^2}} + P_{\mu^-} \cdot e^{-\frac{h}{1510\text{g/cm}^2}} + P_{\mu^+} \cdot e^{-\frac{h}{4320\text{g/cm}^2}} + P_{\text{U,Th}} \quad (5.7)$$

mit

h : Tiefe in m.w.e. (meter water equivalent) [g/cm²]

Unter Berücksichtigung einer von 0 verschiedenen Erosionsrate e ergibt sich die Anzahl von produzierten ^{36}Cl pro g Granit aus:

$$N(h) = \int_0^t dt' \cdot P(h + e \cdot t') \cdot e^{-\frac{t'}{\tau}} \quad (5.8)$$

mit:

t : Produktionszeitraum

e : Erosionsrate [m/Ma]

τ : mittlere Lebensdauer von ^{36}Cl

Um die natürliche In-situ Produktion in einem bestimmten Stein berechnen zu können, müssen die **Elementzusammensetzung**, die **Erosionsrate** und die **Tiefe** des Steins im Steinbruch bekannt sein.

Die Abhängigkeit der produzierten ^{36}Cl -Atome von der Erosionsrate und der Tiefe ist beispielsweise in Abb. 5.1 dargestellt. Die Anzahl der produzierten ^{36}Cl -Atome in großen Tiefen ist nur von der Elementzusammensetzung abhängig.

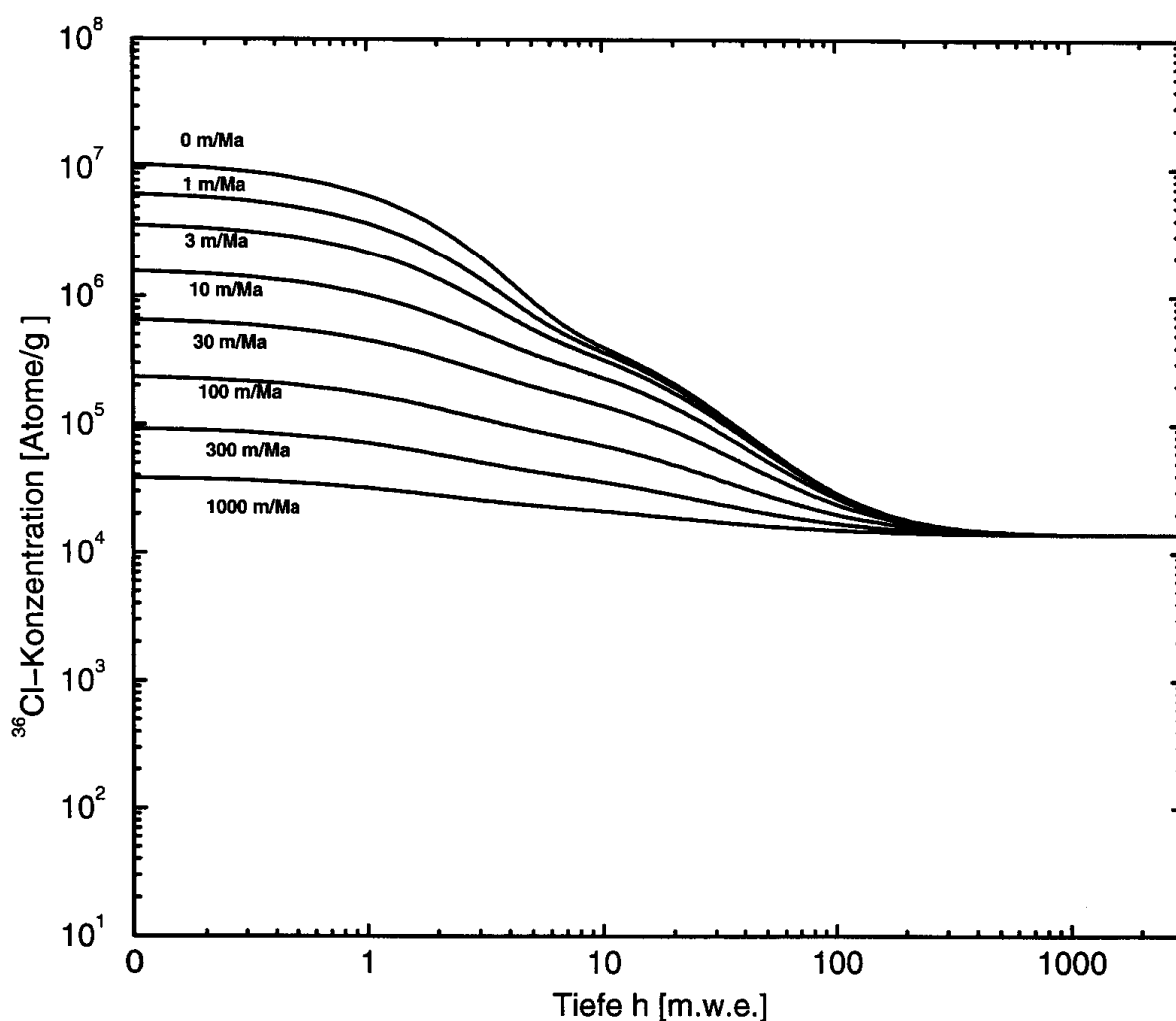


Abb. 5.1: ^{36}Cl -Sättigungskonzentrationen als Funktion der Tiefe in der Lithosphäre und der Erosionsrate (2,7m.w.e. entspricht etwa 1 m Granit). Als Elementzusammensetzung wurde die des Saikoji-Grabsteins [Rüh93] benutzt. Rechnungen nach [Hei98,Hei99].

5.3 Berechnung des ^{36}Cl In-situ-Untergrunds in Proben aus Hiroshima und Umgebung

Für alle Proben aus Abständen > 1000 m vom Hypozentrum wurden In-situ-Rechnungen durchgeführt, um einen individuellen ^{36}Cl -Untergrund für jede Probe bestimmen zu können. Zusätzlich wurde auch der natürliche In-situ-Untergrund für die Proben aus den Steinbrüchen gerechnet, um diese Rechnungen mit den Messungen zu vergleichen. Dazu wurden für alle diese Proben Elementanalysen bei der Firma X-RAL durchgeführt (Anhang B).

Zur Bestimmung der Erosionsraten in der Umgebung von Hiroshima wurden von Dr. K. Kato, Hiroshima Prefectural College of Health Sciences, umfangreiche Untersuchungen durchgeführt. Die durchschnittliche Erosionsrate weltweit ist $0,05$ mm/a (nach [KS78]). In Asien ist die durchschnittliche Erosionsrate $0,13$ mm/a (nach [KMT79]). Von Dr. K. Kato wurde die Erosionsrate, mit Hilfe von [HKB⁺99], des Giin Steinbruchs auf $0,05$ - $0,13$ mm/a und die Erosionsrate des Iyo Steinbruchs auf $0,1$ mm/a abgeschätzt. Mit einer anderen Methode nach [FSO99], bei der die Erosionsrate aus der Höhenverteilung in einem Umkreis von 6 km x 6 km ermittelt wird, ergab sich für Giin, Iyo und Aji ein mittlerer Wert von etwa $0,15$ mm/a (die Höhenverteilung ist [DM00] entnommen). Alle Angaben nach [Kat02].

Für die nachfolgenden Rechnungen wurde als typische Erosionsrate $e = 0,1$ mm/a verwendet.

Alle für die Rechnungen verwendeten Wirkungsquerschnitte sind [Kar95] entnommen.

5.3.1 Vergleich von gerechnetem und gemessenen ^{36}Cl In-situ Untergrunds in Steinbruchproben aus der Umgebung von Hiroshima

Die Messungen von Steinbruch-Proben, die nicht den Neutronen der Atombombe ausgesetzt waren, lassen direkt einen Vergleich mit den In-situ-Rechnungen zu. Auch die Messung des Grabsteins vom Senngyoji-Friedhof kann direkt mit den Rechnungen verglichen werden.

In den Abbildungen 5.2 - 5.6 sind die Rechnungen für die 4 Steinbruchproben und den Grabstein vom Senngyoji-Friedhof dargestellt. Die dicke durchgezogene Linie gilt für eine Erosionsrate von 0,1 mm/a. Die dünnen durchgezogenen Linien zeigen die Rechnung für Erosionsraten von 0,2 mm/a und 0,05 mm/a. Gleichzeitig ist als waagrechte Linie der Messwert eingezeichnet. Die Unsicherheiten der Messung sind als gestrichelte Linien dargestellt. Der Bereich zwischen dem maximal und dem minimal möglichen Messwert ist grau unterlegt, der Bereich zwischen der maximal und minimal möglichen Tiefe gelb. Bei einer mittleren Gesteinsdichte von $\rho = 2,7 \text{ g/cm}^3$ entspricht eine Tiefe von 10 m etwa 27 m.w.e..

Alle gemessenen und gerechneten $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnisse der Steinbruchproben sind in Tab. 5.1 zusammengefasst. Da 3 der 4 ursprünglich gemessenen Proben (Iyo, Odachi, Giin) aus Steingeschäften stammen, kann die Tiefe, aus der die Steine stammen, nur aufgrund ihres Aussehens geschätzt werden. Um die Tiefenabhängigkeit der Rechnungen genauer zu untersuchen, wurden vom Giin-Steinbruch Steine aus verschiedenen Tiefen genommen (B1-C). Dieser Steinbruch wurde ausgesucht, weil viele der untersuchten Proben aus Hiroshima, wie z.B. die Proben vom E-Gebäude, von der Insel Kurahashi stammen.

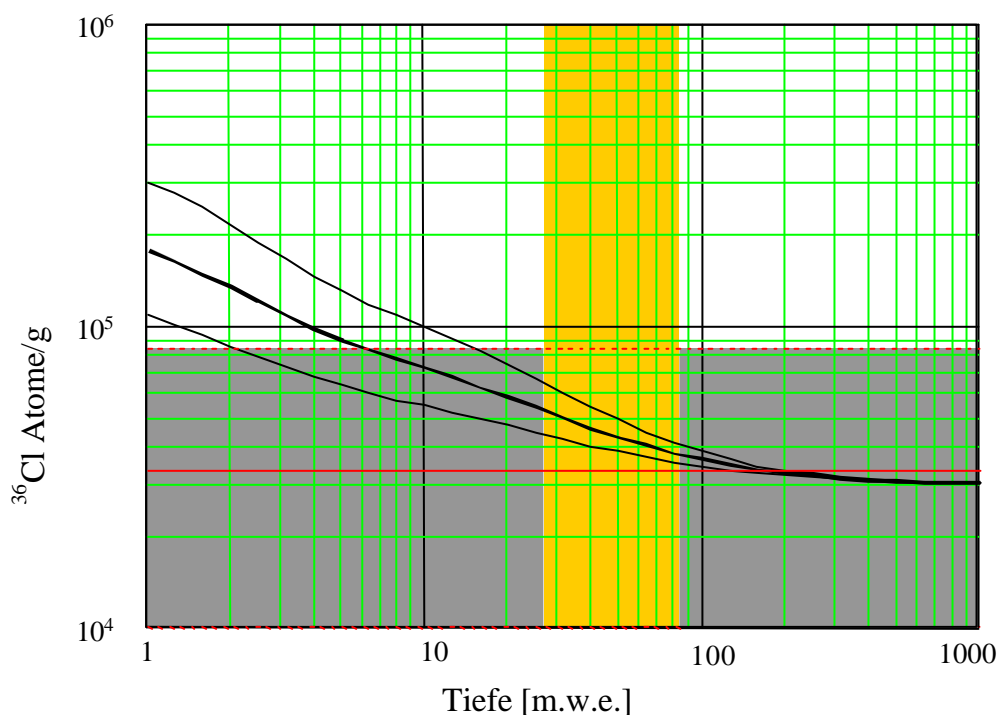


Abb. 5.2: ^{36}Cl -Sättigungskonzentrationen als Funktion der Tiefe in der Lithosphäre und der Erosionsrate für den Aji-Granit.

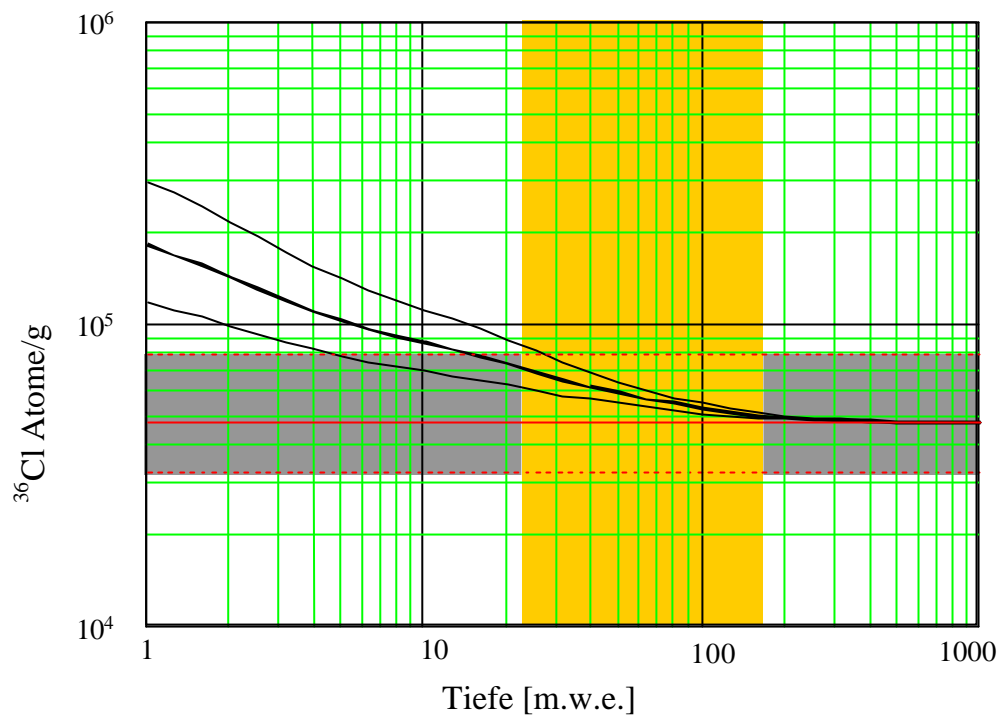


Abb. 5.3: ^{36}Cl -Sättigungskonzentrationen als Funktion der Tiefe in der Lithosphäre und der Erosionsrate für den Iyo-Granit.

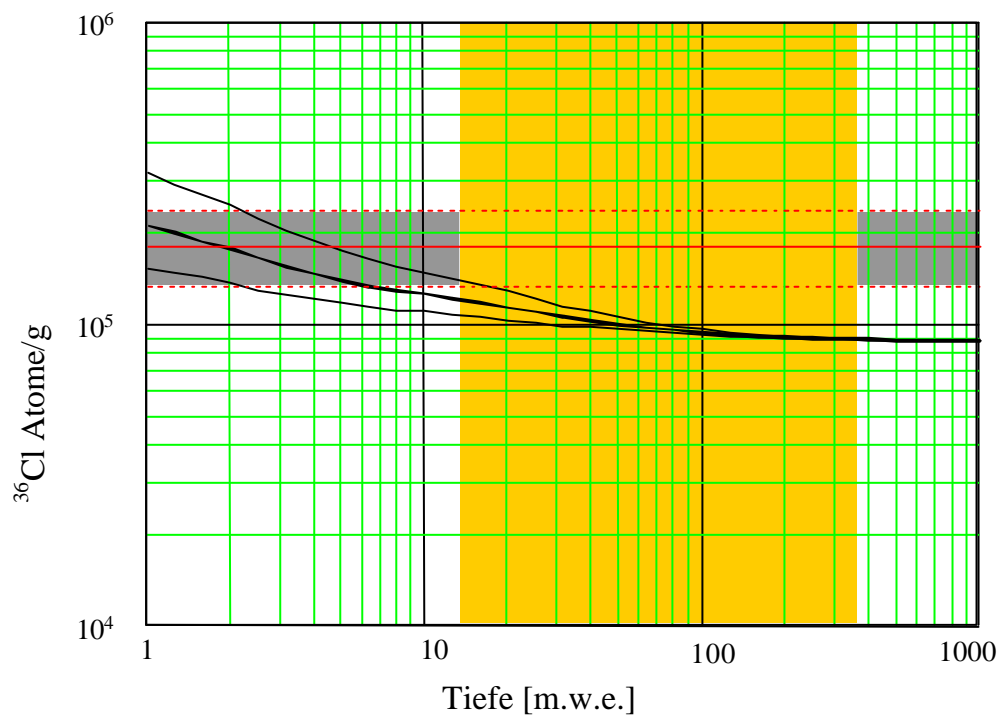


Abb. 5.4: ^{36}Cl -Sättigungskonzentrationen als Funktion der Tiefe in der Lithosphäre und der Erosionsrate für den Odachi-Granit.

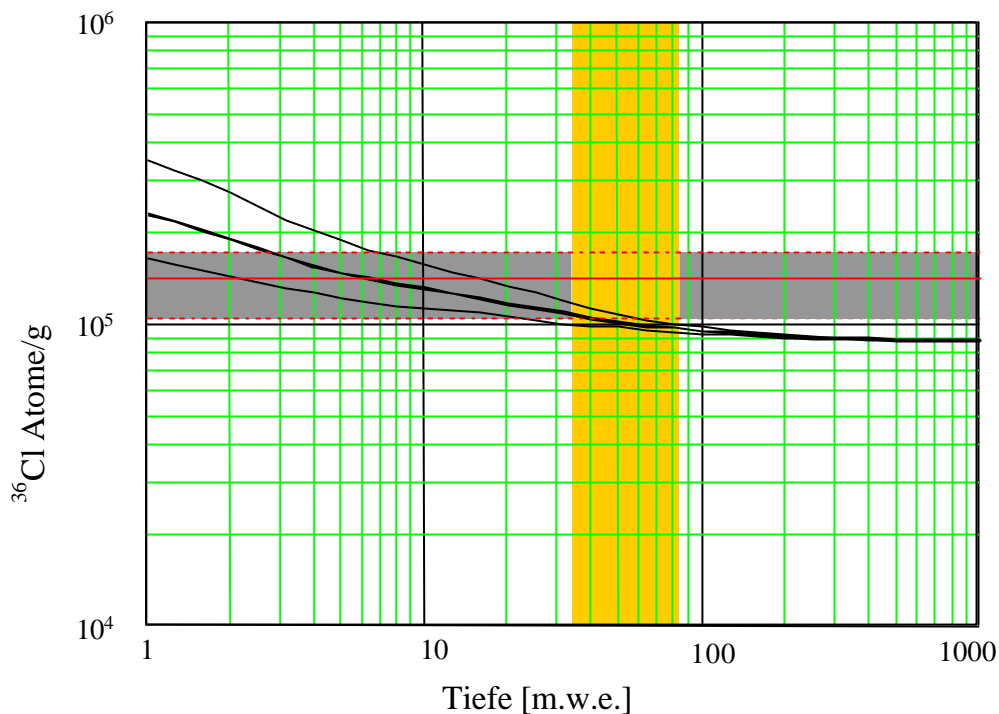


Abb. 5.5: ^{36}Cl -Sättigungskonzentrationen als Funktion der Tiefe in der Lithosphäre und der Erosionsrate für den Giin-Granit.

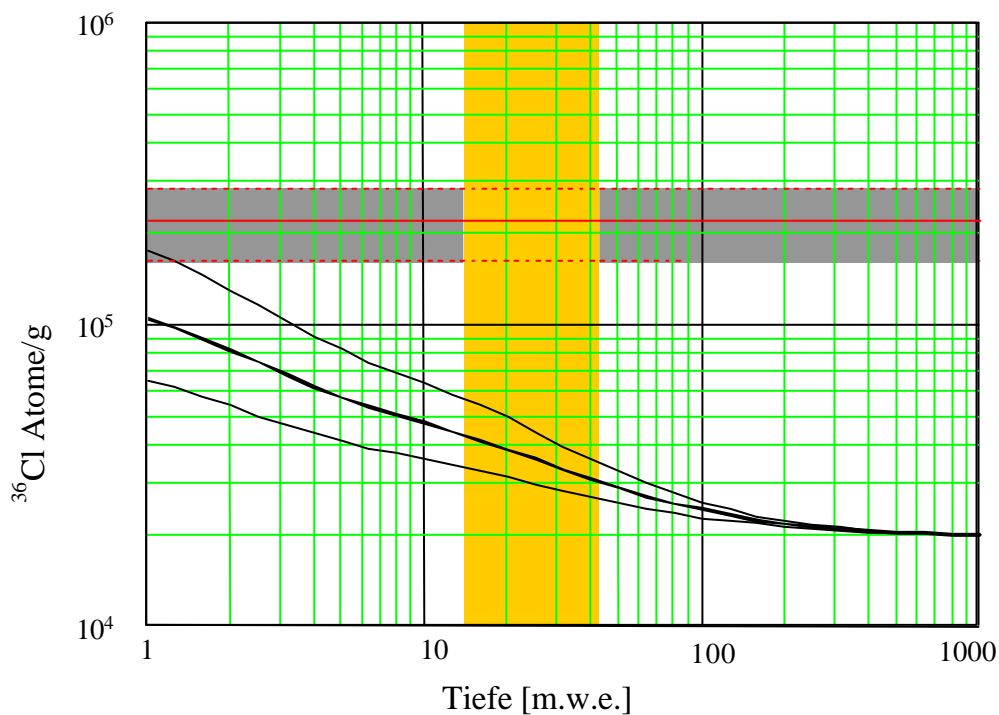


Abb. 5.6: ^{36}Cl -Sättigungskonzentrationen als Funktion der Tiefe in der Lithosphäre und der Erosionsrate für den Senngyoji-Granit.

Probe	Nr.	Tiefe [m]	$^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnis [$\times 10^{-13}$]	
			Messung	Rechnung
Aji	-	(10 - 30)*	$0,23 \pm 0,23$	$0,28 \pm 0,09$
Iyo	-	(5 - 60)*	$0,34 \pm 0,1$	$0,46 \pm 0,11$
Odachi	-	(7 - 100)*	$1,24 \pm 0,29$	$0,75 \pm 0,14$
Giin	-	(10 - 30)*	$0,80 \pm 0,15$	$0,64 \pm 0,08$
	B1	Oberfläche	$1,03 \pm 0,22$	$2,2^{**}$
	B2	1,2 - 1,3	$0,90 \pm 0,26$	$1,0^{**}$
	B3	2,1 - 2,3	$0,86 \pm 0,18$	$1,5^{**}$
	B4	3,2 - 3,3	$0,48 \pm 0,12$	$0,87^{**}$
	C	26 - 33	$0,94 \pm 0,17$	$0,54^{**}$

Tab. 5.1: Vergleich der gemessenen und der gerechneten $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnisse in den Steinbruch-Proben. Die mit () * gekennzeichneten Tiefen sind nur geschätzt. Die Unsicherheiten der Rechnung beziehen sich auf die Unsicherheiten der Tiefe. Alle Tiefenangaben nach [Kat01, Kat02]. ** Die Werte für das Giin Tiefenprofil wurden unter der Annahme erhalten, dass der Granit 50 ppm Chlor enthält.

In der Probe vom Senngyoji-Friedhof und den Proben des Giin Tiefenprofils ist der Chlor-Anteil geringer als die Nachweisgrenze von 50 ppm, die die Firma XRAL für das verwendete Verfahren zur Cl-Bestimmung angibt. Deshalb wurde für diese Rechnungen ein Cl-Anteil von 50 ppm angenommen. Da der Cl-Anteil ein wichtiger Parameter für die Rechnungen ist, könnte sich das tatsächliche $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnis in diesen Proben deutlich von den gerechneten unterscheiden. Um dieses Problem zu lösen, sind chemische Analysen mit höherer Empfindlichkeit notwendig.

Die Rechnungen für den Aji- und den Iyo-Granit stimmen gut mit den gemessenen Werten überein. Die Rechnung für den Giin- und den Odachi-Granit sind mit den Messungen im Rahmen der Unsicherheiten kompatibel, liegen jedoch etwas niedriger als die Messungen. Dies deutet darauf hin, dass die Steine aus einer geringen Tiefe von der Oberfläche stammen.

Möglicherweise ist auf der Insel Kurahashi auch die Erosionsrate etwas niedriger als die angenommene Erosionsrate von 0,1 mm/a. Die Rechnung für den Senngyoji-Granit liegt deutlich niedriger als die Messungen. Da von diesem Stein der genaue Herkunftsort nicht bekannt ist, könnte

der hohe Wert der Messung dadurch erklärt werden, dass der Stein aus einer Gegend mit niedriger Erosionsrate und aus einer geringen Tiefe stammt.

5.3.2 Gerechneter ^{36}Cl In-situ-Untergrund für Proben aus Hiroshima

Für alle Granit-Proben aus Hiroshima mit Abständen > 1000m vom Hypozentrum wurde das natürliche $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnis berechnet. Da die genaue Tiefe im Steinbruch, aus der die Steine genommen wurden, nicht bekannt ist, wurde eine vor dem 2. Weltkrieg typische Steinbruch-Tiefe von 10 ± 5 m (27 ± 13 m.w.e.) angenommen [Kat02]. Alle gerechneten $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnisse sind in Tabelle 5.2 zusammengefasst. Dabei ist eine Erosionsrate von $e = 0,1$ mm/a angenommen.

Probe		produzierte ^{36}Cl - Atome pro g Granit [$\times 10^5$]	Cl-Anteil [ppm]	In-situ $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnis [$\times 10^{-13}$]
Ganjoyoji	1	$1,85 \pm 0,15$	161	$0,68 \pm 0,05$
	2	$1,4 \pm 0,1$	126	$0,65 \pm 0,05$
Tokueiji		$2,5 \pm 0,1$	161	$0,91 \pm 0,04$
Hosenji	1	$0,9 \pm 0,1$	81	$0,65 \pm 0,07$
	2	$1,75 \pm 0,15$	188	$0,55 \pm 0,05$
	3	$0,6 \pm 0,15$	87	$0,41 \pm 0,1$
Jyunkyoji		$1,2 \pm 0,1$	106	$0,67 \pm 0,06$
E- Gebäude	Platte 1	$0,98 \pm 0,08$	62	$0,93 \pm 0,08$
	Bohrkern 1	$1,25 \pm 0,05$	64	$1,15 \pm 0,05$
PSO-Gebäude		$1,4 \pm 0,1$	87	$0,95 \pm 0,07$
Rathaus		$0,63 \pm 0,08$	50*	$0,7 \pm 0,09$
Kozenji		$0,48 \pm 0,08$	50*	$0,6 \pm 0,09$
Senngyoji		$0,38 \pm 0,08$	50*	$0,4 \pm 0,09$

Tab. 5.2: Gerechnete In-situ $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnisse von Proben aus Hiroshima. Die mit * gekennzeichneten Cl-Anteile sind nur geschätzt.

In den Abbildungen 5.7 - 5.12 sind die Rechnungen für Proben aus Hiroshima dargestellt. Die mittlere der jeweils drei Linien gilt für eine Erosionsrate von 0,1 mm/a. Die beiden anderen Linien zeigen die Rechnung für Erosionsraten von 0,2 mm/a und 0,05 mm/a. Gleichzeitig ist als waagrechte Linie die ^{36}Cl -Konzentration gezeigt, die in diesem Granit einem $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnis von $1 \cdot 10^{-13}$ entspricht. Die angenommene Tiefe von 14 - 40 m.w.e. ist in den Abbildungen 5.9 - 5.12 grau unterlegt.

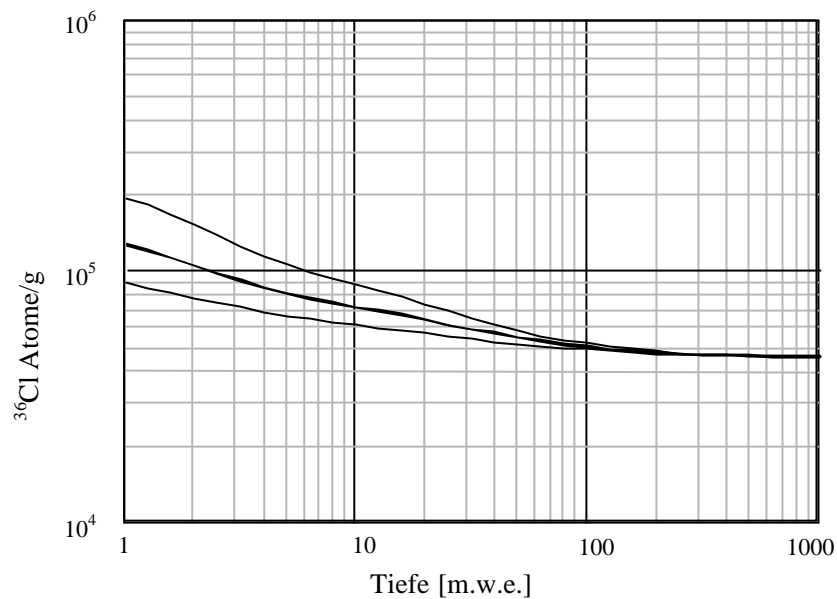


Abb. 5.7: ^{36}Cl -Sättigungskonzentrationen als Funktion der Tiefe in der Lithosphäre und der Erosionsrate für den Granit der Probe vom Rathaus.

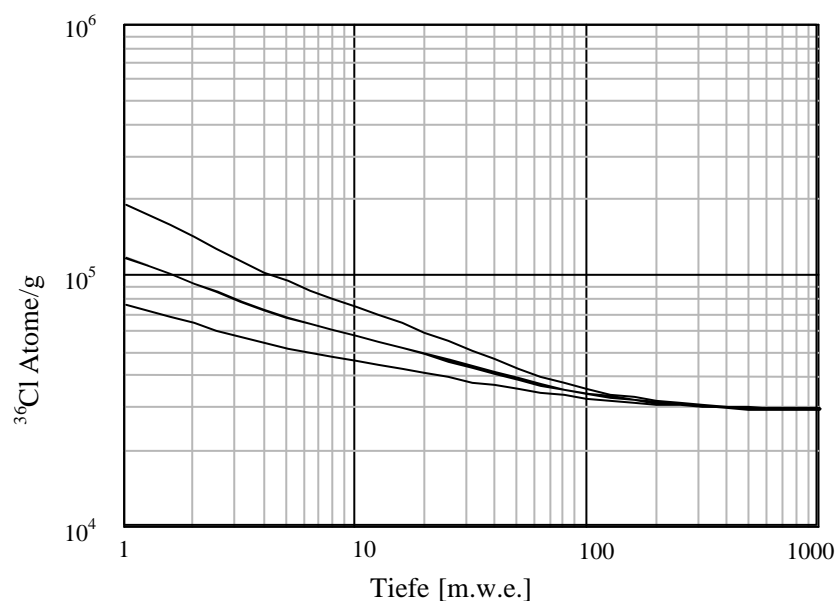


Abb. 5.8: ^{36}Cl -Sättigungskonzentrationen als Funktion der Tiefe in der Lithosphäre und der Erosionsrate für den Granit der Probe vom Kozenji-Friedhof.

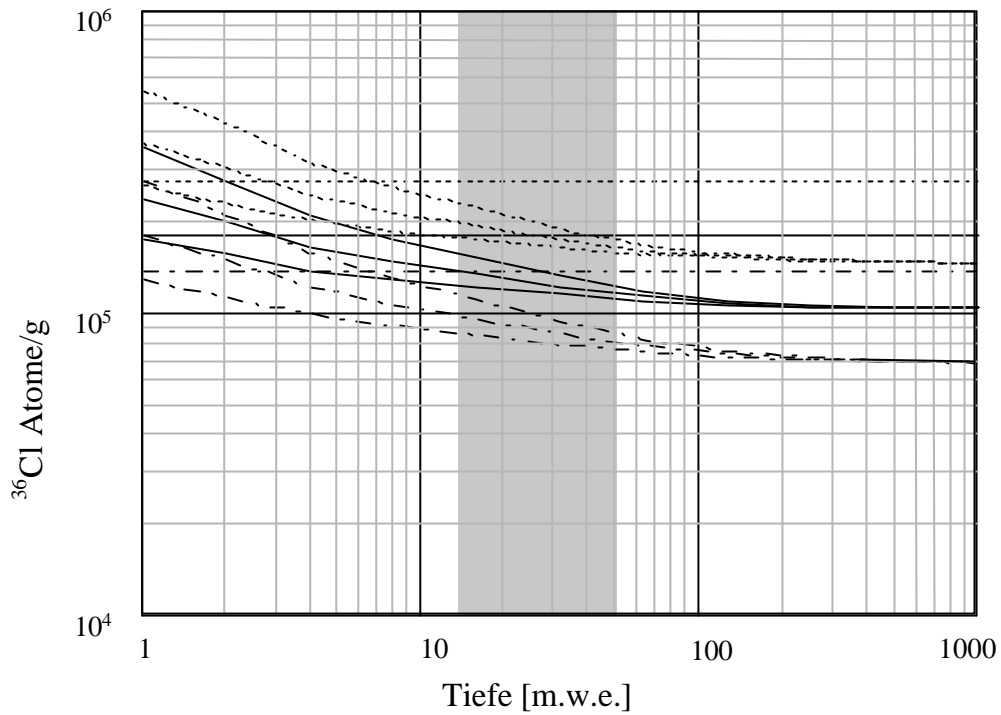


Abb. 5.9: ^{36}Cl -Sättigungskonzentrationen als Funktion der Tiefe in der Lithosphäre und der Erosionsrate für die Granite der Proben Ganjyoji(.....), Hosenji(-·-·-·-) und Jyunkyoji(—).

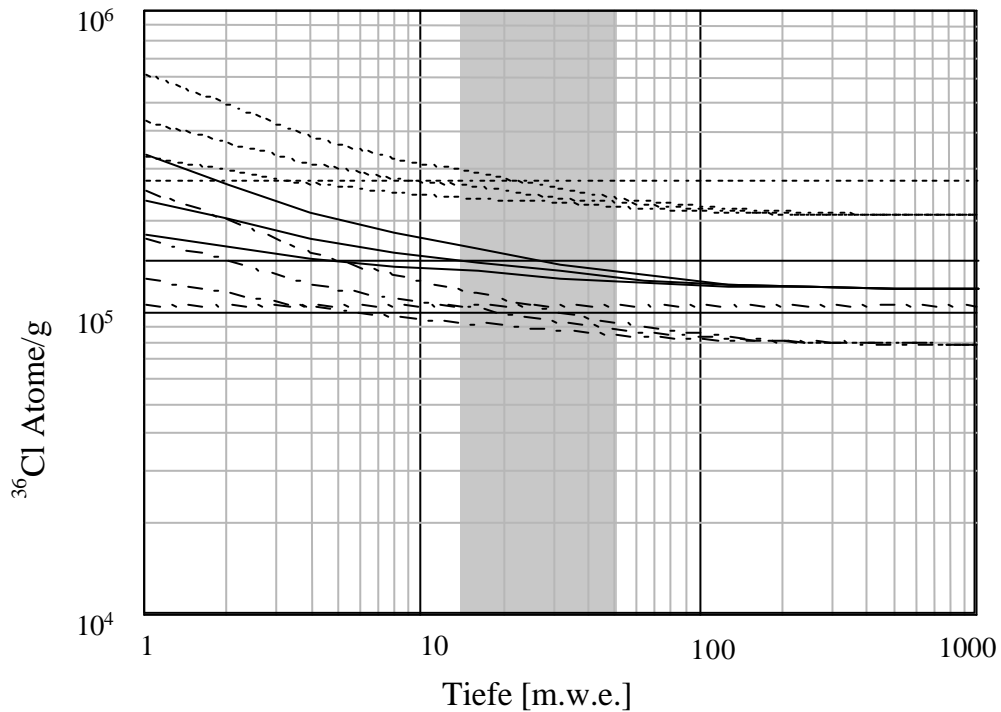


Abb. 5.10: ^{36}Cl -Sättigungskonzentrationen als Funktion der Tiefe in der Lithosphäre und der Erosionsrate für die Granite der Proben Tokueiji(.....), EG Platte1(-·-·-·-) und PSO(—).

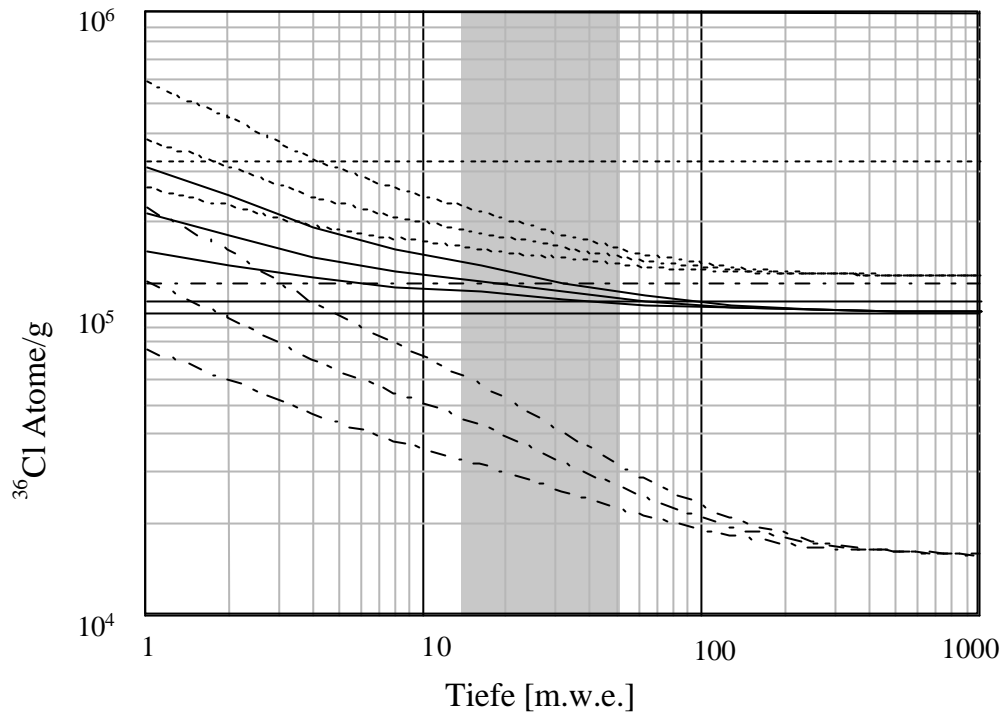


Abb. 5.11: ^{36}Cl -Sättigungskonzentrationen als Funktion der Tiefe in der Lithosphäre und der Erosionsrate für die Granite der Proben Hosenji2(---), Saikoji(-·-·-·) und EG Bohrkern1(—).

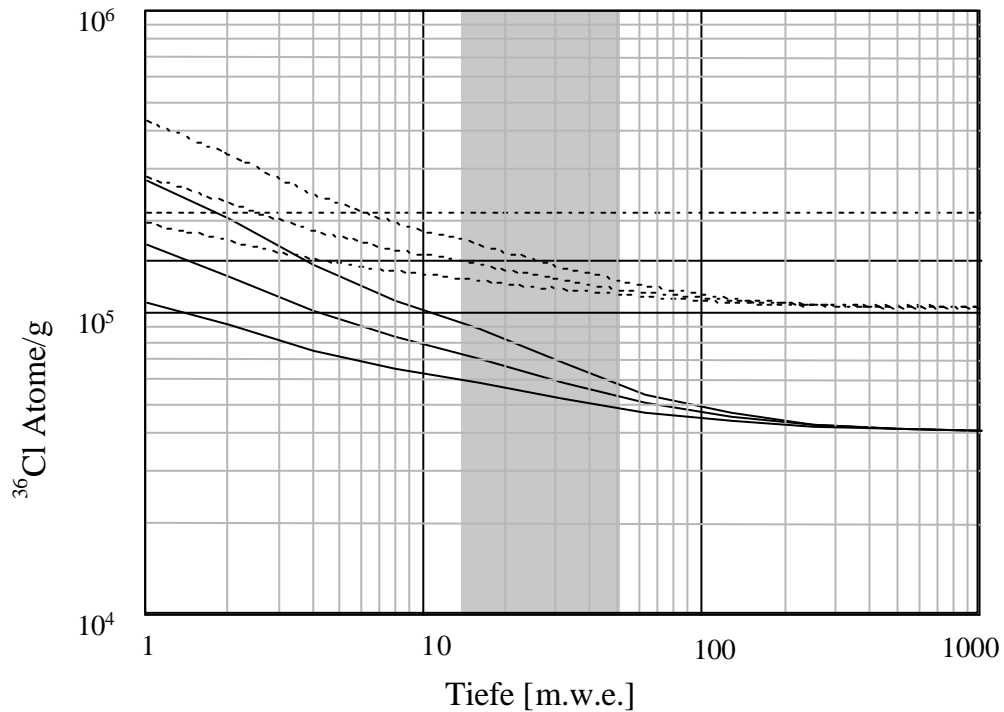


Abb. 5.12: ^{36}Cl -Sättigungskonzentrationen als Funktion der Tiefe in der Lithosphäre und der Erosionsrate für die Granite der Proben Ganjyoji2(---) und Hosenji3(—).

Kapitel 6

Diskussion

Mit den gerechneten natürlichen $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnissen ist es nun möglich die Messwerte von Proben aus Hiroshima, die Neutronen der Atombombe ausgesetzt waren, zu korrigieren. So können die korrigierten Messwerte dann mit DS86-Rechnungen verglichen werden.

6.1 Korrektur der gemessenen ^{36}Cl -Werte mit den gerechneten Werten des In-situ-Untergrunds und Vergleich mit den DS86-Rechnungen

Um das $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnis, das durch die Neutronen der Atombombenexplosion in den einzelnen Graniten erzeugt wurde, zu bestimmen, müssen nun von allen gemessenen $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnissen die gerechneten natürlichen In-situ-Verhältnisse abgezogen werden. Die so korrigierten Messwerte sind in Tabelle 6.1 zusammengestellt. In Abbildung 6.1 sind die korrigierten Messwerte im Vergleich zu DS86 FIA Rechnungen aufgetragen. Dabei wurden in Abständen > 1300 m vom Epizentrum nur Werte benutzt, für die es einen gerechneten Untergrund gibt.

Von SAIC (Science Applications International Corporation) wurden individuelle Rechnungen für die meisten Proben durchgeführt [Egb01,Egb02]. Dazu wurde die selbe Methode benutzt wie in DS86 (Wirkungsquerschnitte, Programme, Quellterme, Abschirmungen, etc.) [Roe87].

Probe		gemessenes $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnis [$\times 10^{-13}$]	gerechnetes <i>In-situ</i> $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnis [$\times 10^{-13}$]	<i>In-situ</i> korrigiertes $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnis [$\times 10^{-13}$]
Ganjoyoji	1	$5,5 \pm 0,6$	$0,68 \pm 0,05$	$4,8 \pm 0,6$
	2	$3,1 \pm 0,3$	$0,65 \pm 0,05$	$2,5 \pm 0,3$
Tokueiji		$2,6 \pm 0,4$	$0,91 \pm 0,04$	$1,7 \pm 0,4$
Hosenji	1	$2,6 \pm 0,6$	$0,65 \pm 0,07$	$2,0 \pm 0,6$
	2	$2,3 \pm 0,5$	$0,55 \pm 0,05$	$1,8 \pm 0,5$
	3	$2,2 \pm 0,7$	$0,41 \pm 0,1$	$1,8 \pm 0,7$
Jyunkyoji		$2,3 \pm 0,4$	$0,67 \pm 0,06$	$1,6 \pm 0,4$
E-Gebäude	Platte 1	$2,0 \pm 0,4$	$0,93 \pm 0,08$	$1,07 \pm 0,4$
	Bohrkern 1	$1,7 \pm 0,4$	$1,15 \pm 0,05$	$0,55 \pm 0,4$
PSO-Gebäude		$1,2 \pm 0,3$	$0,95 \pm 0,07$	$0,25 \pm 0,3$
Rathaus		$3,3 \pm 0,4$	$0,7 \pm 0,09$	$2,6 \pm 0,4$
Kozenji		$2,2 \pm 0,4$	$0,6 \pm 0,09$	$1,6 \pm 0,4$

Tab. 6.1: Korrektur der Messwerte mit dem für jede Probe individuell gerechneten natürlichem Untergrund.

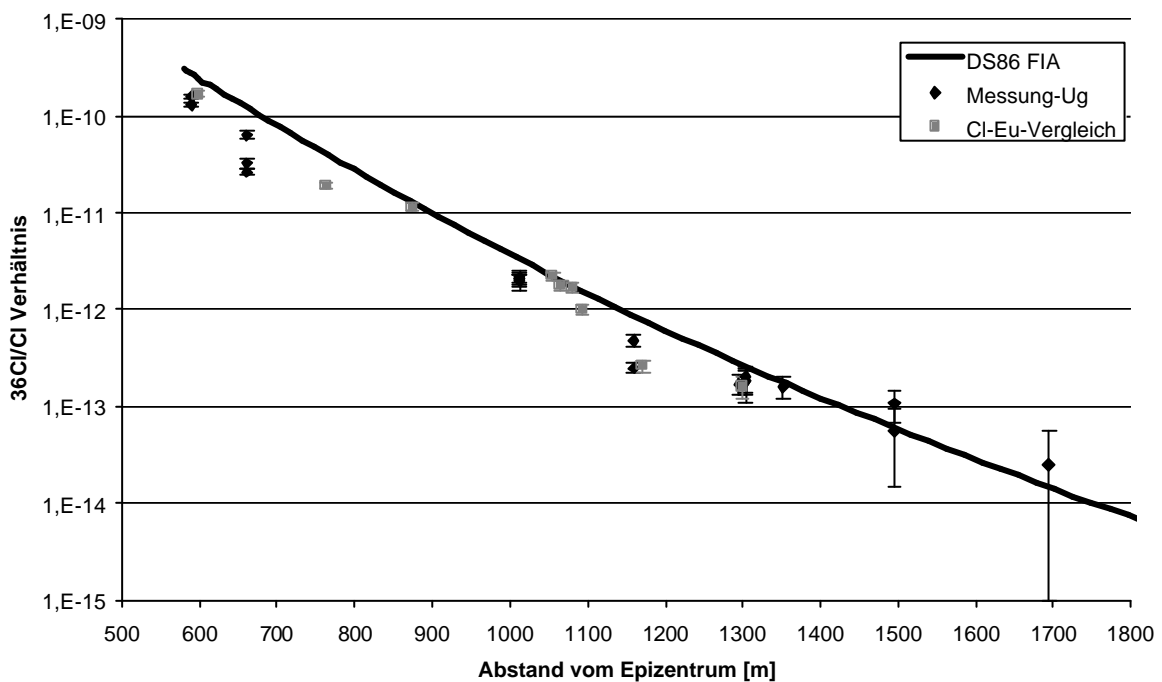


Abb. 6.1: Korrigierte $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnisse Im Vergleich mit DS86 FIA-Werten [Egb02].

Um probenspezifische Werte zu erhalten, werden abhängig von der Probengeometrie, der Höhe über dem Boden, der Tiefe und der Umgebung sogenannte Transmissionsfaktoren bestimmt. Diese werden dann mit den FIA-Werten verrechnet.

Grabsteine

Da viele der gemessenen Proben Grabsteine von Friedhöfen sind, kann für alle diese Proben eine sehr ähnliche Probengeometrie angenommen werden. Auch die Umgebung auf dem Friedhof ist für alle Proben sehr ähnlich. So kann für alle Grabsteinproben der gleiche Transmissionsfaktor angenommen werden.

Auf japanischen Friedhöfen stehen die Grabsteine sehr dicht nebeneinander. So wurde die Situation auf einem Friedhof in 1300 m Entfernung vom Hypozentrum simuliert, auf dem ein einzelner kleiner Grabstein (Maße 20cm x 20cm x 75cm) von vier größeren Grabsteinen (40cm x 40cm x 150cm) umgeben ist (siehe Abbildung 6.2). In den ersten 2 cm des kleinen Grabsteins wurde das erwartete $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnis berechnet.

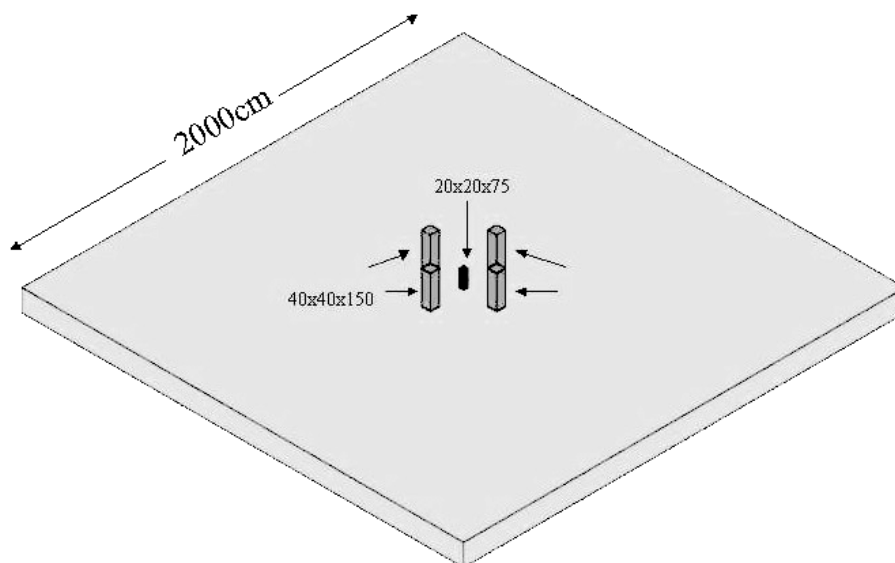


Abb. 6.2: Simulierte Situation auf einem Friedhof, in der ein kleiner Grabstein von vier großen Grabsteinen umgeben ist. Alle Angaben in cm. [Egb01].

Für den umgebenden Boden (20m x 20m) wurde einmal die Zusammensetzung verwendet, die auch in DS86 benutzt wird. Um zu berücksichtigen, dass auf dem Friedhof viele Grabsteine sehr dicht

zusammen stehen, wurden auch Rechnungen für einen reinen Granitboden durchgeführt. Die Transmissionsfaktoren (TF) für diese Simulation sind in Tabelle 6.2 aufgeführt.

Geometrie	FIA	A	B	C	D	E
$^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ [$\times 10^{-13}$]	0,715	0,508	0,593	0,513	0,583	0,505
relativ (TF)	1,0	0,71	0,83	0,72	0,82	0,71

mit:

FIA : in Luft, DS86-Boden.

A : in Luft, Granitboden.

B : 2cm in Granitgrabstein, DS86-Boden.

C : 2cm in Granitgrabstein, Granitboden.

D : 2cm in Granitgrabstein, umgeben von 4 Grabsteinen, DS86-Boden.

E : 2cm in Granitgrabstein, umgeben von 4 Grabsteinen, Granitboden.

Tab. 6.2: ^{36}Cl -Produktion durch Neutroneneinfang an ^{35}Cl für einen Granitgrabstein im Abstand 1300 m vom Hypozentrum. [Egb01].

Weder reiner Granitboden noch reiner DS86-Boden beschreiben die wirkliche Situation auf einem Friedhof genau. Die tatsächliche Umgebung ist eine Mischung aus beiden.

Von S. Egbert wurde für die DS86-Rechnungen ein TF von **0,7855** für alle untersuchten Grabsteine benutzt [Egb02].

Gebäude

Die Rechnungen für Proben aus Bohrkernen von Gebäuden, werden hier am Beispiel des sogenannten E-Gebäudes gezeigt. Es wurden sowohl Rechnungen für die Bodenplatten als auch für die Bohrkern durchgeföhrt. Die genaue Lage der Proben ist in Abbildung 2.9 dargestellt. Die Transmissionsfaktoren (TF) für die Abdeckplatten und die Bohrkern sind in Tabelle 6.3 bzw. Tabelle 6.4 dargestellt.

Für die Bohrkern 4, 5 und 6 wurde angenommen, dass sie komplett aus Beton mit einem Wassergehalt von 5 % bestehen.

Platte Nr.	1	2	3	4	5
TF	0,83	0,83	0,83	0,83	0,58

Tab. 6.3: Transmissionsfaktoren für eine mittlere Tiefe von 1 cm in den Abdeckplatten des E-Gebäudes relativ zu DS86 FIA-Rechnungen (in Luft, 1m über dem Boden, DS86-Boden). [Egb01].

Der TF der Platte Nr. 5 ist wegen der Abschirmung des Gebäudes deutlich niedriger als der der anderen Platten. Allerdings ist der Wert nur um 30 % geringer, obwohl diese Platte von einem fast 14 m hohen Gebäude abgeschirmt wurde. Der Grund dafür ist die isotrope Verteilung thermischer Neutronen.

6	1	5	10	15	20	25	Tiefe (cm)	TF									
	1,10	1,15	1,05	0,8	0,6	0,4											
4	1	5	10	15	20	25	5	TF									
	1,13	1,15	1,05	0,9	0,7	0,5			1,14	1,20	1,06	0,9	0,7	0,5			
1	1	5	10	15	20	25	2	TF	3	TF							
	1,00	0,93	0,9	0,8	0,7	0,5					1,00	0,95	0,8	0,8	0,7	0,5	1,00

Tab. 6.4: Transmissionsfaktoren der Bohrkern 1 - 6 des E-Gebäudes in Abhängigkeit von der Tiefe. Alles relativ zu DS86 FIA-Rechnungen (in Luft, 1m über dem Boden, DS86-Boden). [Egb01]. Die Tabelle spiegelt die Lage der Bohrkern an der Nordwestfassade des E-Gebäudes wieder.

Für andere Gebäude, wie z.B. das Rotkreuz-Hospital, existieren ähnliche Rechnungen. Da von vielen anderen Gebäuden nur einzelne Proben gemessen wurden, gibt es dort individuelle Rechnungen für die jeweiligen Proben.

Die Ergebnisse aller Rechnungen sind in Tabelle 6.5 zusammengestellt. Die Verhältnisse von gerechnetem zu gemessenem ³⁶Cl/Cl-Verhältnis sind in Abbildung 6.3 dargestellt. Da für den Grabstein vom Saikoji-Friedhof und das Fukoku-Gebäude keine gerechneten Tiefenprofile zur Verfügung stehen, wurden Werte für die Oberfläche benutzt.

Probe	Nr.	Messung <i>In-situ</i> korrigiert [x10 ⁻¹³]	DS86- Rechnung [x10 ⁻¹³]	Verhältnis Mess/Rech
Saikoji	N31	1570 ± 70	2140*	0,73 ± 0,03
	N22	1300 ± 70	2140*	0,61 ± 0,03
Fukoku	1	633 ± 56	963*	0,66 ± 0,06
	2	265 ± 15	963*	0,28 ± 0,02
	3	322 ± 36	963*	0,33 ± 0,04
Sinkoji	1	19,5 ± 3,5	25,9	0,75 ± 0,14
	2	20,4 ± 2,8	25,9	0,79 ± 0,11
	3	21,4 ± 2,4	25,9	0,83 ± 0,09
	4	21,2 ± 4,1	25,9	0,82 ± 0,16
Ganjyoji	1	4,8 ± 0,6	6,4	0,75 ± 0,09
	2	2,5 ± 0,3	6,7	0,37 ± 0,04
Tokueiji		1,7 ± 0,4	2,04	0,83 ± 0,20
Hosenji	1	2,0 ± 0,6	2,21	0,90 ± 0,27
	2	1,8 ± 0,5	1,8	1,00 ± 0,28
	3	1,8 ± 0,7	2,1	0,86 ± 0,33
Jyunkyoji		1,6 ± 0,4	1,4	1,14 ± 0,29
E-Gebäude	Platte 1	1,07 ± 0,4	0,68	1,57 ± 0,59
	Bohrkern 1	0,55 ± 0,4	0,66	0,83 ± 0,61
PSO-Gebäude		0,25 ± 0,3	0,08	3,13 ± 3,75
³⁶Cl - ¹⁵²Eu Vergleichsmessungen				
Motoyasu		1670 ± 118	1800	0,93 ± 0,07
Shirakami		188 ± 15	323	0,58 ± 0,05
Honkeiji		17,7 ± 2,0	15,9	1,11 ± 0,13
Mychoji		114 ± 10	102	1,12 ± 0,10
Alte Präfektur		22,1 ± 2,1	17,4	1,27 ± 0,12
Enryuji		16,8 ± 2,1	13,7	1,23 ± 0,15
Shingyoji		9,9 ± 1,1	12,2	0,81 ± 0,09
Rathaus		2,6 ± 0,4	6,2	0,42 ± 0,06
Kozenji		1,6 ± 0,4	2,1	0,76 ± 0,19

Tab. 6.5: Vergleich der gemessenen und der gerechneten ³⁶Cl/¹⁵²Eu-Verhältnisse. Alle Messungen für Proben aus Abständen > 1100m vom Epizentrum sind korrigiert auf den Untergrund. In dieser Tabelle sind nur Messungen an Proben aufgeführt, für die es auch Untergrundrechnungen gibt. Die DS86-Rechnungen wurden von SAIC durchgeführt [Egb02]. Für alle Proben, deren chemische Zusammensetzung analysiert wurde, konnte für die Rechnungen ein individuelles K/Cl-Verhältnis benutzt werden. Für alle anderen Proben wurde ein mittleres K/Cl-Verhältnis von 300 angenommen. Die angegebenen Unsicherheiten beziehen sich nur auf die Messung bzw. die Untergrundrechnungen. * sind Rechnungen für Oberflächenproben.

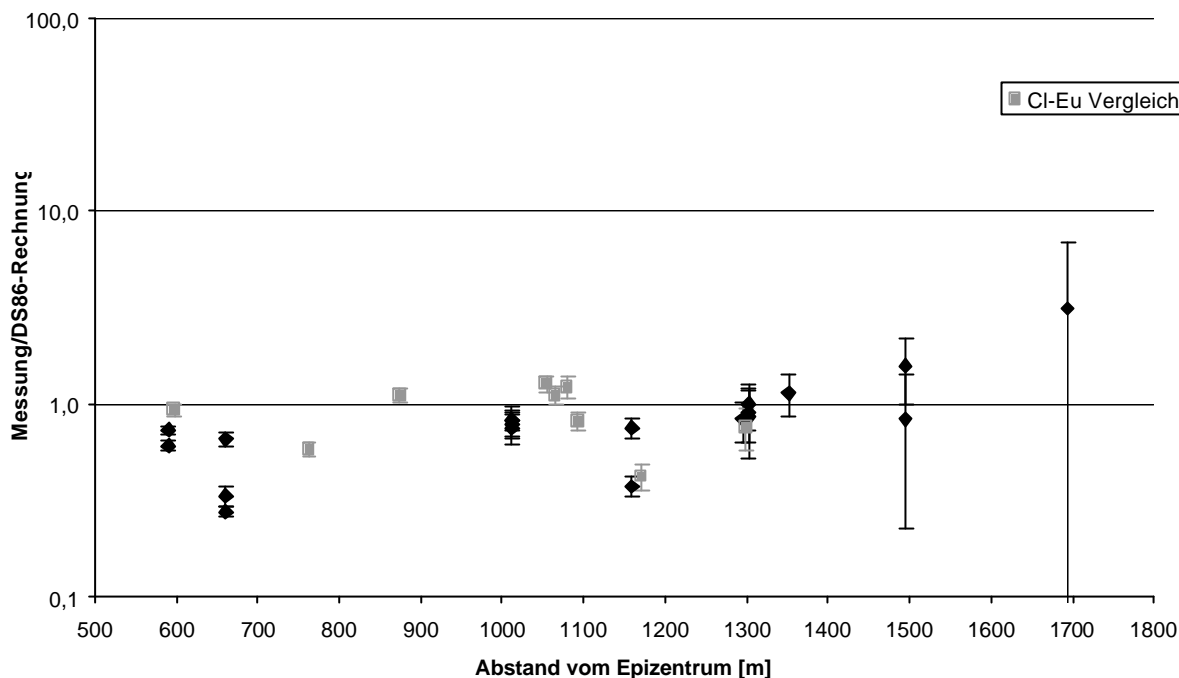


Abb. 6.3: Verhältnis von gemessenen zu gerechneten $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnissen in Abhängigkeit zum Abstand vom Epizentrum in Hiroshima. DS86-Rechnungen nach [Egb02]. Details siehe Tabelle 6.5.

Vergleicht man nun die in dieser Arbeit erhaltenen Werte aus Abbildung 6.3 mit den Werten aus Abbildung 1.7 so wird deutlich, dass die in der Literatur beschriebene so genannte Neutronendiskrepanz von Hiroshima bei großen Abständen vom Epizentrum in dieser Arbeit nicht bestätigt wird. Die Ergebnisse der CI-Eu-Vergleichsmessungen und neue Messungen der schnellen Neutronen durch ^{63}Ni [Rug02] zeigen ebenfalls keine Hinweise auf eine Diskrepanz bei großen Abständen vom Hypozentrum.

Gerade bei Proben aus Entfernungen > 1300 m vom Epizentrum spielt der natürliche ^{36}Cl -Untergrund eine sehr wichtige Rolle und muss genau untersucht werden. Individuelle Untergrundrechnungen sind dabei die einzige Möglichkeit, den ^{36}Cl -Untergrund in den einzelnen Proben retrospektiv zu bestimmen.

Bei kleinen Abständen vom Epizentrum dagegen liegen die gemessenen $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnisse deutlich niedriger als die mit DS86 gerechneten (Saikoji, Motoyasu, Fukoku, Shirakami). Von all diesen Proben ist die Lage und die Abschirmung bekannt, sodass eine Abschirmung durch Gebäude ausgeschlossen werden kann. Anders verhält es sich z.B. mit den Proben vom Ganjyoji-Friedhof,

deren Position innerhalb des Friedhofs zum Zeitpunkt der Explosion nicht genau bekannt ist. Eine Abschirmung durch den Tempel oder ein anderes Gebäude kann deshalb nicht ausgeschlossen werden und könnte die niedrigen Werte erklären.

Im Folgenden werden Aspekte diskutiert, die gerade nahe des Hypozentrums zu einer geringeren ^{36}Cl -Produktion geführt haben könnten als in DS86 vorhergesagt.

6.1.1 Diskussion der Explosionshöhe

Die Explosionshöhe der Bombe in Hiroshima wird in DS86 mit 580 ± 15 m angenommen [Roe87]. Es wurden aber auch Höhen ≥ 600 m abgeschätzt. So wurde die Explosionshöhe vom US Strategic Survey mit 610 ± 61 m angegeben [US47]. Arakawa und Nagaoka schätzten eine Höhe von 606 ± 74 m [AN61] ab, Woodbury und Mizuki 600 m [WM61]. Einen Überblick über alle zu diesem Zeitpunkt verfügbaren Daten sind in [HJC69] zusammengestellt.

Wenn die tatsächliche Explosionshöhe der Bombe höher als 580 m gewesen wäre, so würde man in DS86 die γ - und Neutronenfluenz nahe des Hypozentrums in DS86 überschätzen. In diesem Fall müssten dann nicht nur die gemessenen Neutronenfluenzen nahe des Hypozentrums niedriger sein als die Rechnungen, sondern auch die gemessenen γ -Fluenzen. Wenn man die Thermolumineszenzdaten in Abbildung 1.5 betrachtet, so kann man erkennen, dass auch hier nahe des Hypozentrums die Messungen deutlich niedriger als die Rechnungen liegen. Berechnet man für jeden Thermolumineszenzwert im Abstand < 1000 m vom Hypozentrum die Bombenhöhe für die Messung/Rechnung = 1 ist und mittelt dann alle Höhen, so ergäbe sich beispielsweise eine Bombenhöhe von 620 m.

Sowohl die Messungen von thermischen Neutronen als auch die Thermolumineszenzdaten nahe des Hypozentrums geben somit einen Hinweis darauf, dass die tatsächliche Explosionshöhe möglicherweise höher lag als in DS86 angenommen. Eine Erhöhung der Explosionshöhe im Rahmen der in DS86 angenommenen Unsicherheiten auf 600 m, wie es in DS02 (kapitel 6.2) angenommen wird, würde die Unterschiede zwischen gemessenen und gerechneten $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnissen nahe des Hypozentrums deutlich verkleinern (siehe Abbildung 6.4). Auf Rechnungen in großen Abständen vom Hypozentrum hätte eine solche Veränderung der Explosionshöhe nur wenig Einfluss.

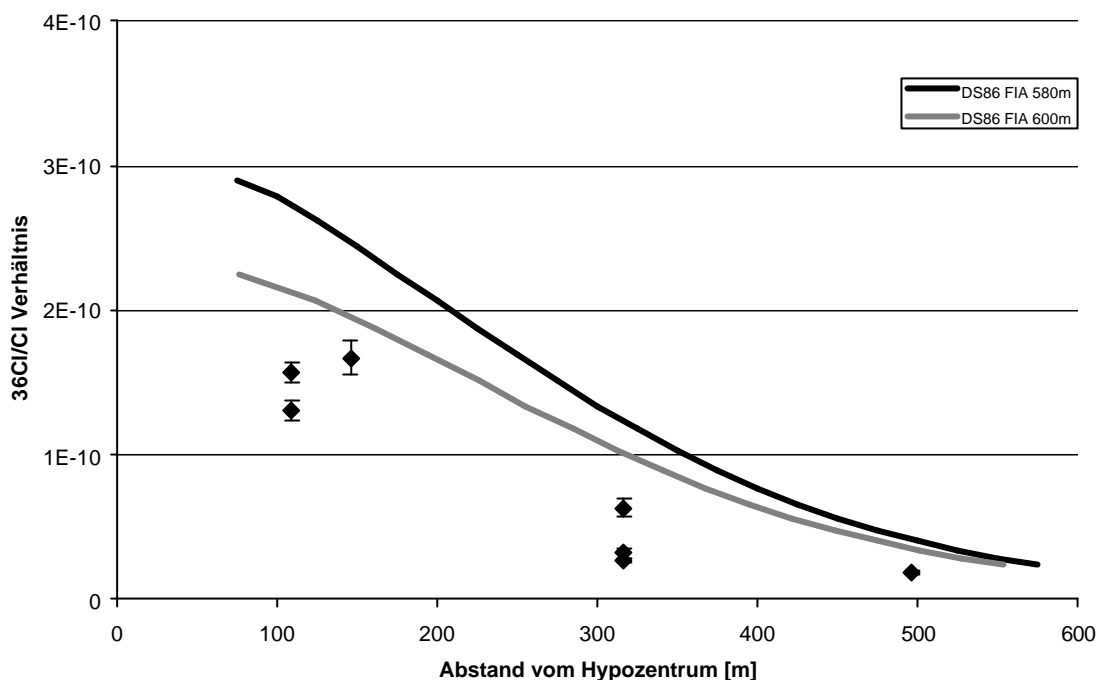


Abb. 6.4: DS86 FIA-Rechnungen für die Explosionshöhen 580 m und 600 m im Vergleich zu den Messungen (Saikoji, Motoyasu, Fukoku, Shirakami) nahe dem Hypozentrum. Eine Explosionshöhe von 600 m würde die Unterschiede zwischen gemessenen und gerechneten Werten deutlich verkleinern.

6.1.2 Korrekturen durch die chemische Zusammensetzung der Proben und des Bodens

Neutronen, die bei der Atombombenexplosion erzeugt wurden, breiten sich durch die Luft aus und dringen zum Teil in den Boden ein. Dort werden die Neutronen moderiert und anschließend entweder absorbiert oder sie verlassen den Boden als thermalisierte Neutronen. Sowohl für die Moderation als auch für die Absorption ist die chemische Zusammensetzung des Bodens ein sehr wichtiger Parameter. Das Dosimetriesystem DS86 war in erster Linie dazu bestimmt, γ - und Neutronendosen zu berechnen. So wurde z.B. Wert darauf gelegt, die schnellen Neutronen zu berechnen, die für die Dosis verantwortlich sind. Man kann daher nicht sicher davon ausgehen, dass mit DS86 gerechnete Aktivierungen durch thermische Neutronen mit den gemessenen lokal genau übereinstimmen.

· Spurenelemente im DS86-Boden

In DS86 wurde in zwei Bodenproben aus Hiroshima die Konzentration von 47 Elementen bestimmt. Eine Probe stammte aus der Nähe des Hypozentrums nahe dem sogenannten Atombomben-Dom, die zweite wurde nahe der Burg von Hiroshima genommen. Von den 47 Elementen wurden 12 ausgesucht, um den Boden in Hiroshima für die Strahlentransport-Rechnungen zu charakterisieren [Roe87]. Multipliziert man die Elementzusammensetzung mit den zugehörigen Wirkungsquerschnitten für die Absorption thermischer Neutronen, so erhält man den Anteil von Neutronen, der vom jeweiligen Element absorbiert wird. Diese Anteile für den DS86-Boden sind in Tabelle 6.6 gezeigt.

Element	H	Si	K	Fe	Al	Na	Ti	Mn	Cl	Ca	O	C
Anteil %	66,9	10,34	9,86	4,15	3,09	1,87	1,02	0,58	0,56	0,44	0,07	0,02

Tab. 6.6: Anteil absorbierter Neutronen von 12 Elementen, die in DS86 als charakteristisch ausgewählt wurden. Elementzusammensetzung aus [Roe87]. Wirkungsquerschnitte aus [Kar95].

Im DS86-Boden wurde ein Wassergehalt von 24 % Massenanteil angenommen. So wird die Absorption von Neutronen durch Wasserstoff mit einem Anteil von etwa 67 % dominiert. Elemente wie Li, B und Sm wurden in DS86 zwar untersucht, aber nicht in die Liste der charakteristischen Elemente aufgenommen. Diese Elemente können aufgrund ihrer hohen Wirkungsquerschnitte für thermische Neutronen signifikant zur Absorption beitragen. Sm besitzt einen (n,γ) Wirkungsquerschnitt von 4570 b , Li und B einen (N,α) Wirkungsquerschnitt von 71 b bzw. 760 b . Ein weiteres, aufgrund seines sehr hohen Wirkungsquerschnitts für thermische Neutronen von 48800 b wichtiges Element, wurde in DS86 nicht untersucht, nämlich Gd. Eine von Yoshida et al. veröffentlichte Studie über die Konzentrationen von Lanthaniden in Bodenproben aus Japan [YMTU98] untersuchte Proben von 77 Orten aus ganz Japan. Für Gd wurde eine mittlere Konzentration von 3,7 ppm bestimmt. Die Gd-Konzentrationen schwanken dabei zwischen 0,23 und 8,71 ppm. In dieser Studie wurden auch zwei Proben aus der Hiroshima-Präfektur untersucht. Dabei wurden Gd-Konzentrationen von 1,65 ppm und 4,48 ppm gemessen. Im Folgenden wird der Mittelwert (3,07 ppm) aus diesen beiden Messungen als repräsentativ für Böden aus Hiroshima

benutzt. In Tabelle 6.7 sind die Anteile von absorbierten Neutronen unter Berücksichtigung der Elemente Li, B, Sm und Gd dargestellt.

Element	H	Si	K	Gd	Fe	Al	B	Na	Li	Ti	Sm	Mn	Cl	Ca
Anteil %	61,5	9,50	9,06	4,48	3,81	2,84	2,25	1,72	1,35	0,94	0,60	0,53	0,51	0,41

Tab. 6.7: Anteil absorbiertes Neutronen von 14 Elementen in DS86-Boden. Statt C und O wurden jedoch Li, B, Sm und Gd betrachtet. Elementzusammensetzung aus [Roe87] und [YMTU98]. Wirkungsquerschnitte aus [Kar95].

Auch in diesem Fall wird die Absorption von Neutronen im DS86-Boden, wegen des hohen Wassergehalts, durch Wasserstoff dominiert. Die betrachteten Spurenelemente Li, B, Sm und Gd tragen jedoch mit einem Gesamtanteil von 8,7 % deutlich dazu bei.

Um den Effekt dieser Spurenelemente auf die Rechnungen zu demonstrieren wurde zum normalen DS86-Boden eine Gd-Konzentration von 5,9 ppm, repräsentativ für alle 4 Spurenelemente, hinzugefügt. Dadurch erniedrigt sich eine gerechnete ¹⁵²Eu-Aktivität im Abstand 500 m vom Hypozentrum 1 m über dem Boden in einer oberflächennahen Probe um 2 % im Vergleich zu einer Rechnung ohne die Berücksichtigung der Spurenelemente [Egb02]. Da die Konzentration der Spurenelemente im Boden sehr stark variiert, können lokal die Konzentrationen dieser Spurenelemente jedoch deutlich höher liegen als der Mittelwert. Benutzt man z.B. eine Gd-Konzentration von 20 ppm, so reduziert sich die gerechnete ¹⁵²Eu Aktivität bereits um 7 %. Der Effekt der Elemente Li, B, Sm und Gd auf die Fluenz thermischer Neutronen 1 m über dem Boden ist wegen des hohen Wassergehalts im DS86-Boden relativ gering, da hier Wasserstoff die Absorption dominiert. In einer Umgebung, die weniger Wasser enthält, wie z.B. Granit, könnte der Effekt der Spurenelemente auf die Rechnungen deutlich größer sein.

· **Granit bzw. granitreiche Umgebung**

Wie bereits erwähnt, stehen auf japanischen Friedhöfen die Grabsteine sehr dicht zusammen. Deshalb ist die Umgebung von Grabsteinen sehr reich an Granit und wird so nur unzureichend durch reinen DS86-Boden beschrieben. Ein großer Unterschied zwischen Granit und DS86-Boden ist der

Wassergehalt. Im DS86-Boden wird ein Wassergehalt von 24 % angenommen, in Granit wurde von Hasai et al. ein Wassergehalt von 0,59 % [HIS⁺87] bestimmt.

- Einfluss von granitreicher Umgebung

Die Streuung und Moderation von hochenergetischen Neutronen im Boden wird hauptsächlich durch leichte Elemente wie H, O oder Si bestimmt. Diese Prozesse beeinflussen sehr stark das Neutronenspektrum über dem Boden. Von Rühm et al. wurde gezeigt, dass bei einem (unendlich ausgedehnten) Granit-Boden die Fluenz thermischer Neutronen um 50 % abnimmt im Vergleich zu einem DS86-Boden (1 m über dem Boden, in Hiroshima) [RKK⁺95]. In Tabelle 6.2 wurden auch ³⁶Cl-Aktivierungen in Grabsteinen für verschiedene Bodenarten gerechnet. Dabei nimmt auch die gerechnete ³⁶Cl-Aktivierung deutlich ab, wenn DS86-Boden durch Granitboden ersetzt wird.

- Spurenelemente in Granitproben

Im Rahmen dieser Arbeit wurden von vielen Granitproben chemische Analysen durchgeführt (siehe Anhang B). Die Elementzusammensetzung wurde dann wie beim DS86-Boden mit den zugehörigen Wirkungsquerschnitten für die Absorption thermischer Neutronen multipliziert, um die Anteile absorbiertener Neutronen der jeweiligen Elemente zu erhalten. Dabei wurde ein Wassergehalt von 0,59 % [HIS⁺87] und ein B-Anteil von 3,1 ppm [Rüh93] angenommen. Die Anteile der wichtigsten Elemente für die Absorption thermischer Neutronen sind für den Aji-Granit, den Giin-Granit und den Granit des PSO-Gebäudes in Tabelle 6.8 dargestellt. Die Granite wurden ausgewählt, weil beim Aji-Granit der Einfluss der Spurenelemente Gd, Sm und Li am geringsten von allen untersuchten Graniten ist. Für den Granit des PSO-Gebäudes ist der Einfluss am größten. Giin-Granit besitzt eine chemische Zusammensetzung, die der Mittleren chemischen Zusammensetzung aller untersuchter Granite ähnlich ist.

Im Gegensatz zu DS86-Boden wird wegen des geringen Wassergehalts im Granit die Absorption nicht durch Wasserstoff dominiert. Die Hauptbestandteile des Granits wie Si und K sind für die Absorption von Neutronen sehr wichtig. Interessanterweise ist der Anteil von Gd wegen seines außergewöhnlich hohen Wirkungsquerschnitts vergleichbar mit Si und K. In manchen Fällen ist der Anteil von Gd sogar am größten (PSO). Auch Li trägt bis zu 10 % zur Gesamtabsorption bei. Die Elementkonzentrationen der Hauptbestandteile von Granit variieren nur sehr gering von Probe zu Probe (siehe Anhang B). Die Konzentrationen von Spurenelementen wie Gd variieren dagegen sehr stark. Das könnte zur Folge haben, dass auch die Aktivierungen durch Neutronen in Proben aus Hiroshima, aufgrund der jeweiligen chemischen Umgebung, lokale Unterschiede aufweisen. Dabei ist

zu erwarten, dass der Einfluss durch Spurenelemente auf die ^{36}Cl -Produktion umso größer ist, je tiefer die Probe in

Element	Si	Al	Ca	Na	K	Fe	Mn	Ti	H
Aji %	24,6	8,4	2,9	8,3	12,4	9,9	1,2	2,7	3,1
Giin %	20,3	5,7	1,0	5,8	18,8	5,8	0,7	1,1	2,4
PSO %	18,1	5,4	1,0	5,2	16,7	5,5	0,7	1,9	2,2

Element	Li	B	Sm	Gd	Cl	Eu	Rest
Aji %	4,6	2,3	2,0	14,9	1,1	0,3	1,3
Giin %	9,6	2,3	2,2	21,9	0,9	0,1	1,4
PSO %	9,2	2,1	3,4	27,4	0,7	0,1	0,4

Tab. 6.8: Anteil absorbiertener Neutronen der wichtigsten Elemente in Granit. Elementzusammensetzung siehe Anhang B; Wassergehalt aus [HIS⁺87]; B-Gehalt aus [Rüh93]; Wirkungsquerschnitte aus [Kar95]. Beim Aji-Granit ist der Einfluss der Spurenelemente, im Vergleich zu allen anderen untersuchten Graniten, am geringsten, bei Granit vom PSO-Gebäude ist der Einfluss am größten. Giin-Granit ist der mittleren chemischen Zusammensetzung aller Granite ähnlich.

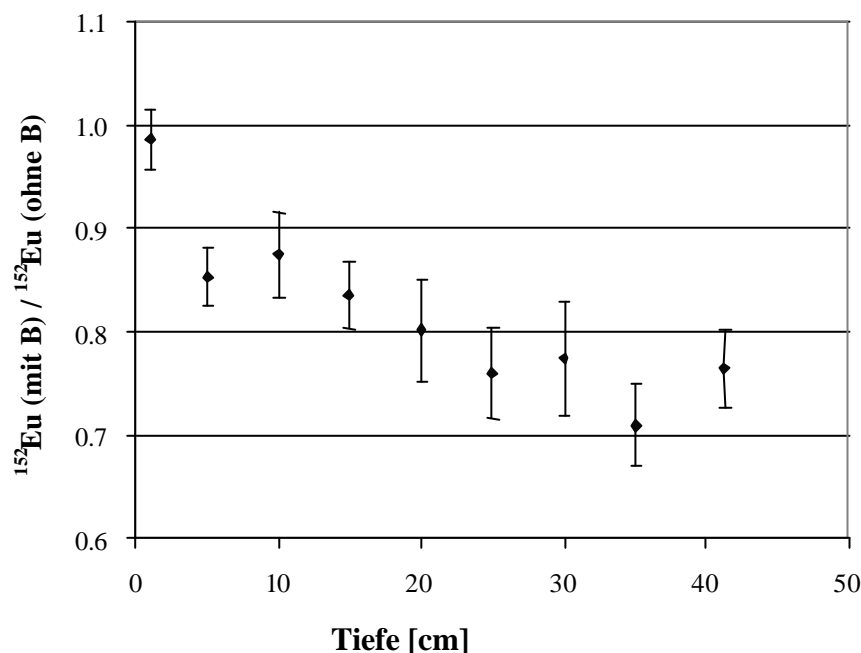


Abb. 6.5: Verhältnis von gerechneter ^{152}Eu -Aktivität unter Berücksichtigung der Spurenelemente (mit B) zu gerechneter ^{152}Eu -Aktivität ohne Berücksichtigung der Spurenelemente (ohne B) in Abhängigkeit der Tiefe. Im Boden um die Probe wurden keine Spurenelemente berücksichtigt, um den Effekt der Spurenelemente in der Probe zu demonstrieren.[Ima02].

Granit gelegen ist. In Abbildung 6.5 sind beispielsweise Auswirkungen von Spurenelementen auf das gerechnete Tiefen-profil einer Granitprobe der Motoyasu-Brücke ($r_H = 132$ m) gezeigt. Dabei wurde einmal die Elementzusammensetzung benutzt wie sie in [HIS⁺87] gegeben ist, wobei Spurenelemente nicht berücksichtigt wurden. Zum Vergleich wurden danach, repräsentativ für alle Spurenelemente, 42 ppm B angenommen und die Rechnungen wiederholt. Die Rechnungen wurden mit Hilfe des Dosimetriesystems DS02 (siehe Kapitel 6.2) durchgeführt.

Es ist deutlich erkennbar, dass die Aktivierung von Radionukliden in der Probe sehr stark durch die Anwesenheit von Spurenelementen wie Gd, Li, B oder Sm, die viele Neutronen absorbieren, beeinflusst wird.

6.2 Das neue Dosimetriesystem DS02

Bereits 1993 wurden die DS86-Rechnungen überarbeitet. Dabei wurden feinere Energie-gruppen und genauere Wirkungsquerschnitte benutzt. Diese Verbesserungen wurden auf der *8th international Conference on Radiation Shielding* in Arlington als "Rev93" vorgestellt [KWES94]. Um alle Ergebnisse und Überlegungen der letzten Jahre zusammenzufassen und um die Unterschiede zwischen gemessenen und gerechneten Aktivierungen auch nahe des Hypozentrums zu reduzieren, wird momentan ein neues Dosimetriesystem DS02 erarbeitet. Neben verbesserten Quellspektren, Energiegruppen und Wirkungsquerschnitten ist der größte Unterschied zu DS86, dass die Explosionshöhe der Bombe in Hiroshima mit 600m angenommen wird.

In Abbildung 6.6 sind FIA-Rechnungen für DS86 und DS02 in Abhängigkeit zum Abstand vom Hypozentrum dargestellt. Nahe des Hypozentrums liegen die DS02-Rechnungen wegen der Explosionshöhe von 600 m deutlich niedriger als die DS86-Rechnungen (siehe Abschnitt 6.1.1). Die Ergebnisse aller DS02-Rechnungen sind in Tabelle 6.9 zusammengestellt. Für den Grabstein vom Saikoji-Friedhof und das Fukoku-Gebäude wurden wieder Werte für die Oberfläche benutzt. In Abbildung 6.7 ist das Verhältnis Messung/DS02-Rechnung für alle Proben dargestellt.

Für die Proben aus kleinen Abständen passen die DS02-Rechnungen deutlich besser als die DS86-Rechnungen. Die Messungen von Proben aus großen Entfernungen passen auch hier gut zu den gerechneten Werten.

Probe	Nr.	Messung <i>In-situ</i> korrigiert [x10 ⁻¹³]	DS02- Rechnung [x10 ⁻¹³]	Verhältnis Mess/Rech
Saikoji	N31	1570 ± 70	1680*	0,93 ± 0,04
	N22	1300 ± 70	1680*	0,77 ± 0,04
Fukoku	1	633 ± 56	809*	0,78 ± 0,07
	2	265 ± 15	809*	0,33 ± 0,02
	3	322 ± 36	809*	0,40 ± 0,04
Sinkoji	1	19,5 ± 3,5	25,7	0,76 ± 0,14
	2	20,4 ± 2,8	25,7	0,79 ± 0,11
	3	21,4 ± 2,4	25,7	0,83 ± 0,09
	4	21,2 ± 4,1	25,7	0,82 ± 0,16
Ganjyoji	1	4,8 ± 0,6	6,7	0,72 ± 0,09
	2	2,5 ± 0,3	6,9	0,36 ± 0,04
Tokueiji		1,7 ± 0,4	2,1	0,80 ± 0,19
Hosenji	1	2,0 ± 0,6	2,1	0,95 ± 0,29
	2	1,8 ± 0,5	1,9	0,95 ± 0,26
	3	1,8 ± 0,7	2,0	0,90 ± 0,35
Jyunkyoji		1,6 ± 0,4	1,4	1,14 ± 0,29
E-Gebäude	Platte 1	1,07 ± 0,4	0,55	1,95 ± 0,73
	Bohrkern 1	0,55 ± 0,4	0,55	1,00 ± 0,73
PSO-Gebäude		0,25 ± 0,3	0,06	4,17 ± 5,00
³⁶Cl - ¹⁵²Eu Vergleichsmessungen				
Motoyasu		1670 ± 118	1420	1,18 ± 0,08
Shirakami		188 ± 15	2850	0,66 ± 0,05
Honkeiji		17,7 ± 2,0	16,0	1,11 ± 0,13
Myochoji		114 ± 10	95,7	1,19 ± 0,10
Alte Präfektur		22,1 ± 2,1	17,5	1,26 ± 0,12
Enryuji		16,8 ± 2,1	13,9	1,21 ± 0,15
Shingyoji		9,9 ± 1,1	12,4	0,80 ± 0,09
Rathaus		2,6 ± 0,4	6,3	0,41 ± 0,06
Kozenji		1,6 ± 0,4	2,1	0,76 ± 0,19

Tab. 6.9: Vergleich der gemessenen und mit Hilfe des neuen Dosimetriesystems DS02 gerechneten ³⁶Cl/Cl-Verhältnisse. Alle Messungen für Proben aus Abständen > 1100m vom Epizentrum sind korrigiert auf den Untergrund. Die DS02-Rechnungen wurden von SAIC durchgeführt. [Egb02]. Die angegebenen Unsicherheiten beziehen sich nur auf die Messung bzw. die Untergrundsrechnungen. * sind Rechnungen für Oberflächenproben.

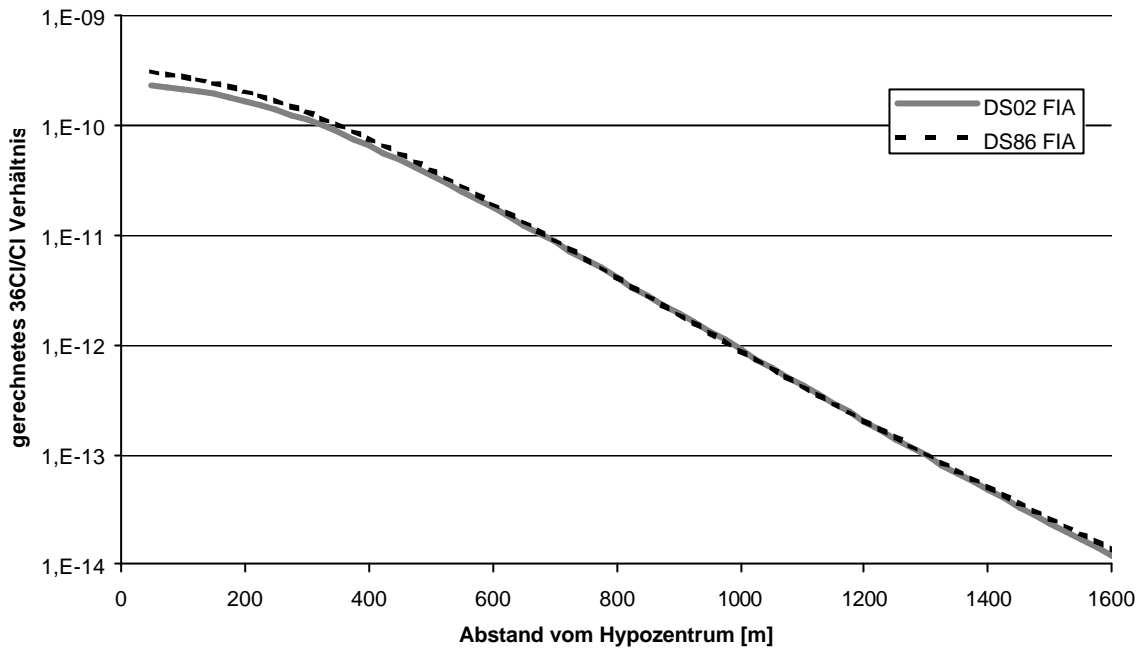


Abb. 6.6: DS86 und DS02 FIA-Rechnungen in Abhängigkeit zum Abstand vom Hypozentrum. nach [Egb02].

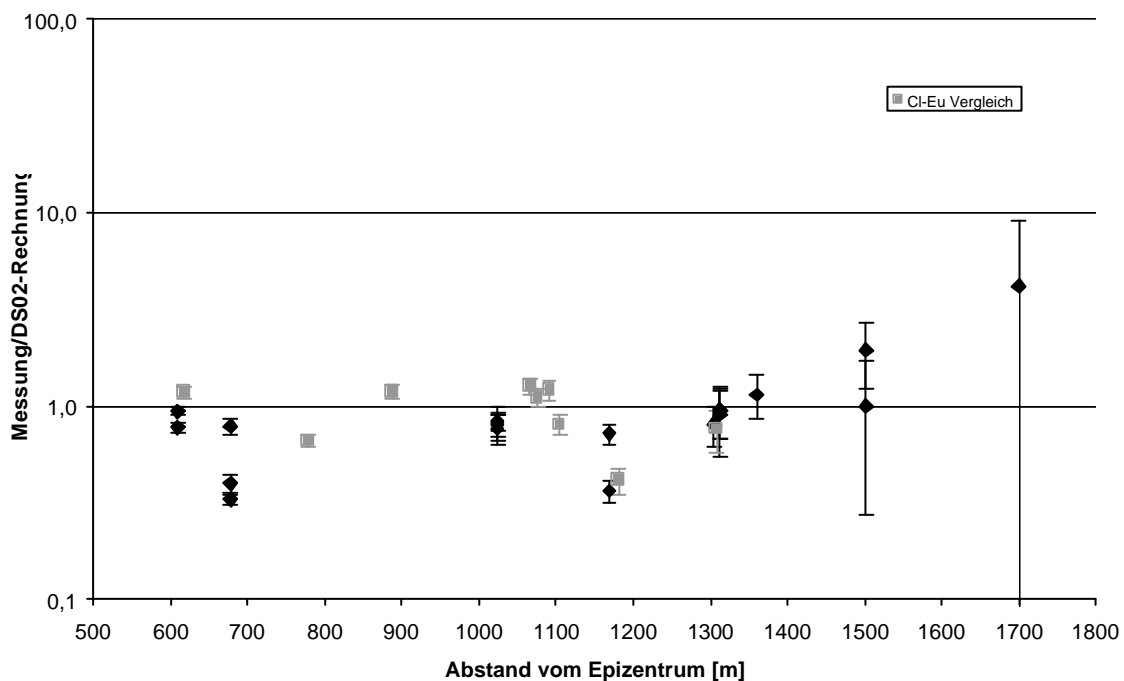


Abb. 6.7: Verhältnis von gemessenen zu gerechneten $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnissen in Abhängigkeit zum Abstand vom Epizentrum in Hiroshima. DS02-Rechnungen nach [Egb02]. Details siehe Tabelle 6.9.

Kapitel 7

Messung von Edelgasen in Granit

In der Vergangenheit wurde bereits vorgeschlagen, durch den Nachweis von ^{39}Ar und ^{131}Xe in Granitproben aus Hiroshima die Fluenz schneller bzw. epithermischer Neutronen retrospektiv zu bestimmen [RKK⁺98,Hub99,HRS⁺98]. Hier soll zusätzlich noch gezeigt werden, wie man auch eine Messung von ^3He dazu benutzen kann. Wichtig dabei ist zu wissen, ob das Edelgas im untersuchten Material fest eingeschlossen ist oder ob es entweichen kann.

Edelgase werden z.B. aus Meteoriten standardmäßig extrahiert und gemessen, um daraus Informationen über die kosmische Strahlung oder Elementkonzentrationen zu erhalten [HSF87,SWB91,LSWS92]. So kann auf eine erprobte Methode zurückgegriffen werden, die in verschiedenen Bereichen Anwendungen findet.

7.1 Messung von ^{39}Ar in Granitproben aus Hiroshima

Die größte Bedeutung von allen Edelgasmessungen hat der Nachweis von ^{39}Ar , das in Hiroshima und Nagasaki aus ^{39}K über die Reaktion $^{39}\text{K}(n,p)^{39}\text{Ar}$ durch *schnelle* Neutronen produziert wurde. Wie bereits in Kapitel 1 erwähnt, hängt die Dosis der Überlebenden hauptsächlich von den schnellen Neutronen ab. So lässt eine Messung der Fluenz schneller Neutronen direktere Rückschlüsse auf die Neutronendosen der Überlebenden zu als die Messung von Radionukliden, die durch thermische Neutronen erzeugt wurden. Von Marchetti und Straume wurde ^{39}Ar zwar neben anderen Nukliden bereits 1996 zur Messung der Fluenz schneller Neutronen in Hiroshima vorgeschlagen [MS96].

Diese Autoren favorisierten jedoch den Nachweis von ^{63}Ni in Kupferproben aus Hiroshima, wo es über die Reaktion $^{63}\text{Cu}(n,p)^{63}\text{Ni}$ durch schnelle Neutronen der Atombombe entstanden war [SMM96, MHM⁺97, Rug02]. Die Messung von ^{39}Ar bietet jedoch einen großen Vorteil gegenüber der ^{63}Ni -Messung, da Kalium (mit einem natürlichen ^{39}K -Anteil von 93,2581 % [Kar95]) makroskopischer Bestandteil von Granit und vielen anderen Gesteinen ist. Da viele der vorhandenen Proben aus Granit sind, ist es relativ einfach, geeignete Proben zu beschaffen.

^{40}Ar , das durch β^+ Zerfall des primordialen Radionuklids ^{40}K entstanden ist, wird bereits seit Jahrzehnten zur Altersbestimmung in Gesteinen gemessen [Fau86]. Dazu werden Gesteinsproben in einem Reaktor bestrahlt. Dabei wird ein Teil des ^{39}K zu ^{39}Ar und ein Teil des ^{40}K zu ^{41}Ar . Argon-Gas wird dann aus dem Gestein extrahiert. So kann der K- und der Ar-Gehalt im Gestein gleichzeitig durch Messung der β -Aktivität [KW59] oder durch Massenspektrometrie [MT66] der beiden Ar-Isotope bestimmt werden. Für diese Altersdatierungen wurde auch der Ar-Verlust in Gesteinen untersucht [TC74]. Der Verlust von Ar aus einem K-reichen Mineral erfolgt nur aus einer Oberflächenschicht, die etwa 0,08 μm dick ist. Sehr fein gekörnte Proben oder Proben, in denen das K-haltige Mineral sehr stark verteilt ist, verlieren große Mengen an ^{39}Ar . In Granit bleibt Ar gebunden, während in Beton die Retention nicht ausreichend ist [Sch98]. In diesem Fall könnten Steine, die im Beton eingeschlossen sind, benutzt werden.

7.1.1 Produktion und Zerfall von ^{39}Ar

Die Reaktion $^{39}\text{K}(n,p)^{39}\text{Ar}$ ist exotherm mit einem Q-Wert von +0,2 MeV und einer Coulombbarriere von -3,4 MeV. ^{39}Ar zerfällt mit einer Halbwertszeit von 296 a [Kar95] als reiner β -Strahler zu ^{39}K .

Der Wirkungsquerschnitt der Reaktion $^{39}\text{K}(n,p)^{39}\text{Ar}$ ist in Abbildung 7.1 dargestellt. Im Bereich zwischen 1 MeV und 5 MeV unterscheiden sich die gemessenen und gerechneten Werte deutlich. In Hiroshima wurden etwa 80 % der ^{39}Ar -Kerne von Neutronen aus diesem Energiebereich erzeugt, deshalb sind Wirkungsquerschnittsmessungen im Energiebereich zwischen 1 MeV und 5 MeV erforderlich. Aus diesem Grund wurden bereits sechs kaliumhaltige Proben mit Neutronen an der Physikalisch Technischen Bundesanstalt in Braunschweig bestrahlt [Hub99]. Es wurden dabei Neutronenenergien zwischen 1,5 MeV und 4,0 MeV benutzt. Diese bestrahlten Proben sollen zusammen mit Proben aus Hiroshima aufbereitet und gemessen werden.

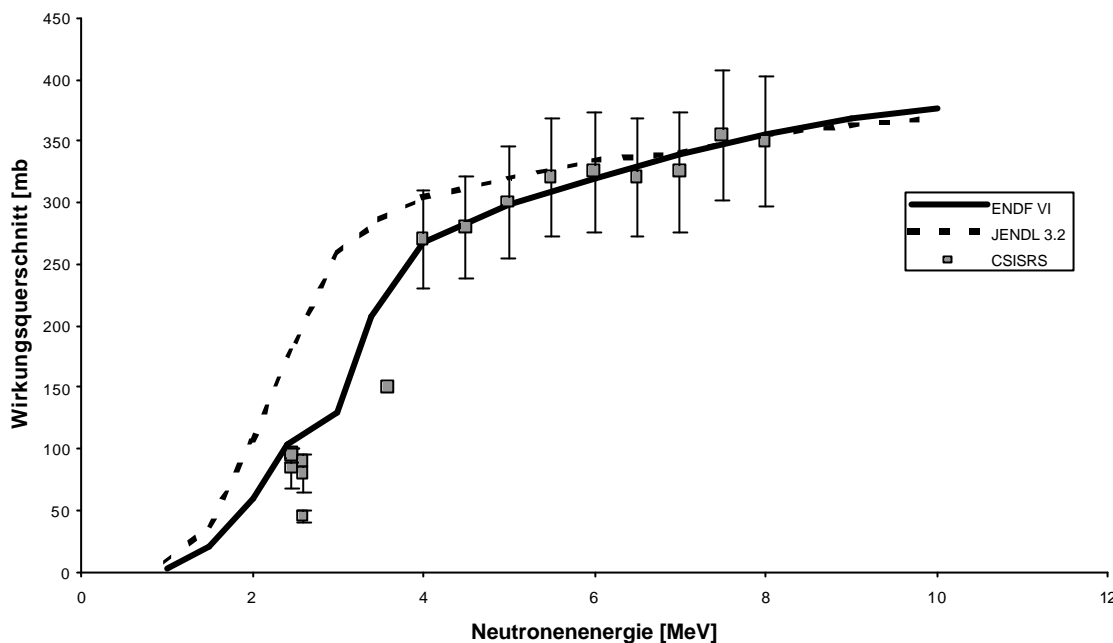


Abb. 7.1: Wirkungsquerschnitt der Reaktion $^{39}\text{K}(n,p)^{39}\text{Ar}$. ENDF VI und JENDL 3.2 sind gerechnete Werte. CSISRS ist eine Datenbank für experimentelle Werte. Alle Daten aus [Nuc97].

7.1.2 Aufbereitung und Messung

Die erste Probe aus Hiroshima, in der ^{39}Ar gemessen werden soll, ist der Grabstein vom Saikoji-Friedhof. Gleichzeitig sollen dann auch die Wirkungsquerschnittsproben und eine Probe vom Aji-Steinbruch aufbereitet und gemessen werden.

Aufbereitung

Die Extraktion des Ar erfolgt am Geologischen Institut in Apatity, Russland. Die Proben werden dort in einem Ofen geschmolzen, bis alle eingeschlossenen Gase entweichen. Das Ar wird dann mit Hilfe flüssigen Stickstoffs ausgefroren und an ein Stück Aktivkohle gebunden. Bei der Extraktion wird sogenanntes "totes" (inaktives) Argon als Träger benutzt. Danach wird das Argon wieder erwärmt und nach einigen Reinigungsschritten in eine Glasampulle eingeleitet. Diese Ampulle wird dann versiegelt. Argon, das in der Apparatur zurückgeblieben ist, wird in ein Massenspektrometer geleitet. Dort wird die Menge und Isotopenverteilung des restlichen Ar bestimmt [Tol02].

Eine Probe vom Aji-Steinbruch soll aufbereitet und gemessen werden, um den Untergrund an ^{85}Kr (System + Probe) und ^3H (System) zu überprüfen. Verunreinigungen von diesen Gasen im Ar würden die anschließende β -Messung beeinflussen. Eine erste Probe vom Saikoji-Grabstein ist bereits aufbereitet und wird derzeit gemessen.

Messung

Die Beschleunigermassenspektrometrie (AMS) mit einem Tandem-van-de-Graaff-Beschleuniger scheidet für die Messung von ^{39}Ar aus, da die AMS negative Ionen verwendet und Ar keine negativen Ionen bildet. ^{39}Ar wird jedoch standardmäßig in kleinen untergrundarmen Proportionalzählrohren an der Universität Bern gemessen [LHO80]. Dazu wird die β -Aktivität betrachtet. Der Detektor befindet sich in einem Labor, das sich 70 m.w.e. (meter water equivalent) unter der Erdoberfläche befindet. Zusätzlich wird eine 10 cm dicke Bleiabschirmung benutzt. Das Zählrohr kann mit einem Druck von bis zu 36 Atmosphären gefüllt werden. Der Detektor hat einen Untergrund von $3 \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ und eine Nachweiswahrscheinlichkeit von 65%. Die Messzeit kann bis zu 8 Wochen betragen. Bei einer solchen Messzeit kann eine Aktivität von $5 \cdot 10^{-5} \text{ s}^{-1}$ noch statistisch signifikant nachgewiesen werden.

7.1.3 Abschätzung der ^{39}Ar Produktion durch die Atombombe und des ^{39}Ar Untergrunds im Granit

Der Granit des Saikoji-Grabsteins enthält 2,5 % Kalium [Rüh93]. Eine Probe von 10 g enthält somit $3,6 \cdot 10^{21}$ ^{39}K -Atome. Wenn man das DS86-Neutronenpektrum, eine Bombenstärke von 15 kt und den Wirkungsquerschnitt aus JENDL-3.2 benutzt, ergeben sich $5,5 \cdot 10^7$ produzierte ^{39}Ar -Kerne. Dies entspricht einer β -Aktivität von etwa 3,9 mBq (2002).

Der ^{39}Ar -Untergrund in Granit wurde mit etwa 500 [RKK⁺98] bzw. 700 [Hub99] produzierten ^{39}Ar -Kernen pro g Granit abgeschätzt.

Die Anzahl der in Hiroshima produzierten ^{39}Ar -Kerne liegt damit deutlich höher als der natürliche Untergrund. Gleichzeitig ist die ^{39}Ar -Aktivität in einer Probe von 10 g deutlich höher als die Nachweiswahrscheinlichkeit des Detektors.

7.1.4 Vorläufige Messergebnisse

Eine Probe vom Saikoji-Grabstein wurde aus 0,2356 g Kalium hergestellt [Tol02]. Dies entspricht einer aufbereiteten Granitmenge von etwa 9,424 g.

Als vorläufiges Messergebnis wurde eine Aktivität von 1,5 mBq gemessen [Loo02]. Der Untergrund der Messung betrug dabei 0,5 mBq. Somit ergibt sich eine untergrundkorrigierte Aktivität von 1,06 mBq pro 10 g Granit.

Vergleicht man damit die erwarteten Aktivitäten von 3,9 mBq (JENDL-3.2) bzw. 2,5 mBq (ENDF VI), so ist die gemessene Aktivität deutlich geringer als die anhand von Rechnungen erwartete. Das deutet darauf hin, dass der Wirkungsquerschnitt der Reaktion $^{39}\text{K}(n,p)^{39}\text{Ar}$ kleiner ist als die gerechneten Wirkungsquerschnitte aus JENDL-3.2 und ENDF VI.

Eine genaue Interpretation der ^{39}Ar -Messungen kann somit erst erfolgen, wenn die bestrahlten Wirkungsquerschnittsproben aufbereitet und gemessen sind.

7.2 Messung von ^3He und ^{131}Xe

Andere Edelgase wie Xe oder He können gleichzeitig mit dem Ar aus dem Gestein extrahiert werden. Die Isotopenverteilungen von Xe oder He können massenspektrometrisch gemessen werden. Der Anteil von stabilem ^{131}Xe bzw. stabilem ^3He kann Auskunft über die Fluenz von thermischen Neutronen geben.

^{131}Xe

Wie auch Ar wird Xe standardmäßig aus Gesteinen extrahiert und gemessen [SJM⁺94]. ^{131}Xe entsteht aus ^{131}Ba , das über zwei β Zerfälle zu ^{131}Xe zerfällt. ^{131}Ba wurde in Hiroshima durch $^{130}\text{Ba}(n,\gamma)^{131}\text{Ba}$ produziert. Diese Reaktion erlaubt die Messung epithermischer Neutronen, da sie für ^{130}Ba große Resonanzen im epithermischen Bereich aufweist. So wurden im Saikoji-Grabstein etwa 2/3 des ^{131}Ba durch epithermische Neutronen im Energiebereich von 30 bis 300 eV produziert. Die Messung ist deshalb möglich, da Xe ein seltenes Element ist. Bei einem Ba-Anteil im Grabsteingranit von 960 ppm [Rüh93] und mit dem DS86-Neutronenspektrum sollte der ^{131}Xe Isotopenanteil etwa um 1 % im Vergleich zu atmosphärischem Xe erhöht sein.

^3He

^6Li besitzt, wie bereits in Kapitel 6.1.2 erwähnt, einen sehr hohen Wirkungsquerschnitt für die Reaktion $^6\text{Li}(n,\alpha)^3\text{H}$ von 940 b [Kar95] für thermische Neutronen. Das ^3H zerfällt dann über β Zerfall mit einer Halbwertszeit von 12,3 a [Kar95] zu ^3He . Da der natürliche Isotopenanteil von ^3He nur 0,000137 % beträgt, ist zu erwarten, dass ein erhöhter Anteil an ^3He in Proben aus Hiroshima messbar ist. Erste Messungen in Biotit des Saikoji-Grabsteins ergaben einen Anteil von $8,3 \cdot 10^8$ Atome/g für ^3He und $4,5 \cdot 10^{14}$ Atome/g für ^4He . Messungen von Biotit aus Proben vom Aji-Steinbruch ergaben dagegen einen ^3He Anteil von $3,0 \cdot 10^6$ Atome/g bei $3,3 \cdot 10^{14}$ Atome/g für ^4He [Tol02].

Der Anteil von ^3He im Saikoji-Grabstein ist somit deutlich höher als in der unbestrahlten Probe vom Aji-Steinbruch. Der hohe Anteil an ^3He ist vermutlich durch Neutronen der Atombombe produziert worden. Die Fluenz thermischer Neutronen, die sich daraus ergibt, liegt jedoch deutlich niedriger als die Fluenz, die aus anderen Messungen erhalten wurde. Man muss dabei davon ausgehen, dass ein Teil des ^3H bzw des ^3He aus dem Biotit entweichen konnte. Andere Mineralien wie z.B. Amphibole lassen dagegen ^3He nicht entweichen. Zur Zeit werden geeignete Proben gesucht, um die ^3He -Messungen durchführen zu können.

Anhang A

Bestimmung von Konversionsfaktoren

Hier soll am Beispiel von ^{36}Cl und ^{152}Eu gezeigt werden, wie man spezifische Aktivitäten von Eu in $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnisse umrechnen kann. Die Radioisotope sind durch folgende Reaktionen erzeugt worden:



Die Fluenz der thermischen Neutronen Φ war dabei gleich.

Für eine Kern-Reaktion gilt allgemein:

$$N^* = N_0 \cdot I \cdot s \cdot F$$

(A.1)

wobei:

N^* : Anzahl der produzierten Teilchen (^{36}Cl bzw. ^{152}Eu)

N_0 : Anzahl der Atome des Targetelements (Cl bzw. Eu)

I : Isotopenanteil des Targetisotops (^{35}Cl bzw. ^{151}Eu)

s : Wirkungsquerschnitt der Reaktion [barn]

F : Fluenz der Projektile (Neutronen) [$1/\text{m}^2$]

Bei einer AMS-Messung wird das $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnis gemessen, bei einer γ -Messung wird die spezifische Aktivität A/m (Bq/mg) bestimmt.

Für ^{36}Cl gilt also:

$$\frac{{}^{36}\text{Cl}}{\text{Cl}} = {}^{35}\text{I} \cdot s_{\text{Cl}} \cdot \text{F} \quad (\text{A.2})$$

wobei:

${}^{36}\text{Cl}$: Zahl der ^{36}Cl -Atome in der Probe

Cl : Zahl der Cl -Atome in der Probe

${}^{35}\text{I}$: Isotopenanteil von ^{35}Cl

s_{Cl} : Wirkungsquerschnitt der Reaktion $^{35}\text{Cl}(n,\gamma)^{36}\text{Cl}$ [barn]

F : Fluenz der thermischen Neutronen

Für ^{152}Eu gilt:

$$\frac{\text{A} \cdot \text{T}_{1/2}}{\ln 2} \cdot \frac{1}{\text{Eu}} \cdot \frac{\text{m}_{\text{Eu}} \cdot \text{N}_{\text{A}}}{\text{m}_{\text{Eu}} \cdot \text{N}_{\text{A}}} = \frac{\text{A} \cdot \text{T}_{1/2} \cdot \text{m}_{\text{Eu}}}{\ln 2 \cdot \text{m} \cdot \text{N}_{\text{A}}} = \frac{{}^{152}\text{Eu}}{\text{Eu}} = {}^{151}\text{I} \cdot s_{\text{Eu}} \cdot \text{F} \quad (\text{A.3})$$

bzw:

$$\frac{\text{A}}{\text{m}} = {}^{151}\text{I} \cdot s_{\text{Eu}} \cdot \frac{\ln 2 \cdot \text{N}_{\text{A}}}{\text{T}_{1/2} \cdot \text{m}_{\text{Eu}}} \cdot \text{F} \quad (\text{A.4})$$

wobei:

A : gemessene ^{152}Eu -Aktivität (rückgerechnet auf das Jahr 1945) [Bq]

$\text{T}_{1/2}$: Halbwertszeit von ^{152}Eu ($\approx 13,33\text{a}$)

Eu : Zahl der Eu -Atome in der Probe

${}^{152}\text{Eu}$: Zahl der ^{152}Eu -Atome in der Probe

m_{Eu} : spezifische Masse von Eu [g/mol]

N_{A} : Avogadrokonstante [1/mol]

m : Masse des Europiums in der Probe [mg]

${}^{151}\text{I}$: Isotopenanteil von ^{151}Eu

s_{Eu} : Wirkungsquerschnitt der Reaktion $^{151}\text{Eu}(n,\gamma)^{152}\text{Eu}$ [barn]

F : Fluenz der thermischen Neutronen

Fluenz Φ ist in Gleichung (A.2) und in (A.4) gleich. Außer den Messgrößen $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ und A/m bestehen diese Gleichungen nur aus Konstanten.

Somit ergibt sich:

$$\frac{A}{m} \cdot \frac{T_{1/2} \cdot m_{\text{Eu}}}{^{151}\text{I} \cdot s_{\text{Eu}} \cdot \ln 2 \cdot N_{\text{A}}} = \frac{^{36}\text{Cl}}{\text{Cl}} \cdot \frac{1}{^{35}\text{I} \cdot s_{\text{Cl}}} \quad (\text{A.5})$$

Somit können gemessene $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnisse in spezifische Aktivitäten umgerechnet werden. Analog dazu können alle Messungen von Radionukliden, die durch thermische Neutronen produziert wurden, umgerechnet werden.

Element	Methode	Einheit	Nachweis Grenze	Aji	Giin A	Giin B	Iyo A	Iyo B	Odachi
K2O	XRF100	%	0,01	2,31	4,4	4,62	3,23	3,25	3,77
Fe2O3	XRF100	%	0,01	2,47	1,93	1,97	2,73	2,72	2,38
MnO	XRF100	%	0,01	0,05	0,04	0,04	0,06	0,06	0,05
TiO2	XRF100	%	0,001	0,295	0,147	0,15	0,204	0,222	0,205
P2O5	XRF100	%	0,01	0,07	0,02	0,02	0,05	0,05	0,03
Cr2O3	XRF100	%	0,01	0,02	0,01	0,02	0,01	0,02	0,01
LOI	XRF100	%	0,01	0,6	0,4	0,4	0,4	0,5	0,25
Summe	XRF100	%	0,01	99,9	100,2	100	100,1	100	100,3
Be	ICP80	ppm	0,5	1,4	2,7	2,6	2	2	2,8
Na	ICP80	%	0,01	2,72	2,47	2,45	2,69	2,77	2,54
Mg	ICP80	%	0,01	0,31	0,1	0,11	0,16	0,17	0,15
Al	ICP80	%	0,01	7,87	6,22	7,44	6,34	6,79	6,94
P	ICP80	%	0,01	0,03	0,01	0,01	0,02	0,02	0,02
K	ICP80	%	0,01	1,89	3,69	3,95	2,73	2,93	3,18
Ca	ICP80	%	0,01	1,73	0,84	0,82	1,34	1,33	1,12
Sc	ICP80	ppm	0,5	3	3,9	4,2	4,3	4,5	4,5
Ti	ICP80	%	0,01	0,16	0,09	0,09	0,12	0,12	0,12
V	ICP80	ppm	2	11	7	7	6	6	9
Cr	ICP80	ppm	1	38	40	44	35	52	34
Mn	ICP80	ppm	2	313	311	312	432	447	370
Fe	ICP80	%	0,01	1,49	1,23	1,27	1,65	1,71	1,51
Co	ICP80	ppm	1	5	3	3	4	4	3
Ni	ICP80	ppm	1	4	7	4	5	4	4
Cu	ICP80	ppm	0,5	7,9	4,9	5,3	4	4,3	5,3
Zn	ICP80	ppm	0,5	53,2	54,4	53,5	59,1	61,4	60,5
As	ICP80	ppm	3	11	<3	8	<3	<3	8
Sr	ICP80	ppm	0,5	356	77,4	78,4	198	203	105
Y	ICP80	ppm	0,5	5,8	25	24	16,1	16	28,4
Zr	ICP80	ppm	0,5	3,8	22,3	24	11,1	11	20,4
Mo	ICP80	ppm	1	2	2	<1	2	2	<1
Ag	ICP80	ppm	0,2	0,4	0,4	0,4	0,4	<0.2	<0.2
Cd	ICP80	ppm	1	<1	<1	<1	<1	<1	<1
Sn	ICP80	ppm	10	<10	<10	11	<10	<10	<10
Sb	ICP80	ppm	5	<5	<5	<5	<5	<5	<5
Ba	ICP80	ppm	1	530	358	374	516	569	386
La	ICP80	ppm	0,5	21,2	15,4	14,4	17,2	18,3	23
W	ICP80	ppm	10	<10	<10	<10	<10	<10	<10
Pb	ICP80	ppm	2	11	20	17	14	17	21
Bi	ICP80	ppm	5	<5	<5	<5	<5	<5	<5
Li	ICP80	ppm	1	32	84	83	49	52	77
B	ES_4	ppm	10	<10	<10	<10	<10	<10	<10
Y	MS90	ppm	1	13	44	42	25	25	44
La	MS90	ppm	0,1	34,9	23,1	20,1	24,1	27,4	30,8
Ce	MS90	ppm	0,1	64,7	50,2	44,1	48,1	54,5	65,8
Nd	MS90	ppm	0,1	24,1	22,6	21,5	22,6	24,6	29
Sm	MS90	ppm	0,1	4,3	6,1	5,9	4,9	5,2	7
Eu	MS90	ppm	0,05	0,76	0,41	0,53	0,78	0,82	0,59
Gd	MS90	ppm	0,1	3,9	7,2	6	5	5	6,9

Tb	MS90	ppm	0,1	0,5	1,2	1,1	0,8	0,7	1,1
Element	Methode	Einheit	Nachweis Grenze	Aji	Giin A	Giin B	Iyo A	Iyo B	Odachi
Dy	MS90	ppm	0,1	2,4	7,8	6,7	4,6	4,7	7,1
Ho	MS90	ppm	0,05	0,4	1,39	1,4	0,8	0,85	1,42
Er	MS90	ppm	0,1	1,2	4,7	4,4	2,5	2,6	4,7
Tm	MS90	ppm	0,1	0,2	0,7	0,7	0,4	0,4	0,7
Yb	MS90	ppm	0,1	1,1	4,6	4	2,6	2,6	5
Lu	MS90	ppm	0,05	0,11	0,65	0,65	0,38	0,37	0,64
Th	MS90	ppm	0,1	6,6	21,5	18,1	9,2	11,1	20,9
U	MS90	ppm	0,1	0,8	4	4,2	2,2	2,1	5,5
Pr	MS90	ppm	0,1	7,5	6,5	5,6	5,9	6,8	8,2
Cl	CHM113	ppm	50	98	102	102	88	98	87

Tab. B.1: Chemische Analysen der Steinbruchgranite. Die Proben vom Giin- und Iyo-Steinbruch wurden geteilt, um zu sehen wie stark die Ergebnisse in einem Stein in zwei unabhängigen Messungen variieren. Alle Ergebnisse nach XRAL. (LOI: loss of ignition).

Chemische Analysen von Proben aus Entfernungen > 1000m vom Hypozentrum:

Elt.	Methode	Einh.	N.G.	PSO	EP1	EB1G	EB1B	Jyunk	Tok	Gan1	Gan2	Hos1	Hos2	Hos3
SiO ₂	XRF100	%	0,01	73,5	74,2	76,1	69,5	75,8	74,8	74,7	74,5	74	72,8	73,4
Al ₂ O ₃	XRF100	%	0,01	13,4	13,6	12,9	8,84	13	13	13,1	13,1	14	13,9	13,8
CaO	XRF100	%	0,01	1,48	1,33	1,09	9,02	1,38	1,53	1,76	1,61	1,43	2,08	2,11
MgO	XRF100	%	0,01	0,4	0,16	0,18	0,82	0,27	0,42	0,47	0,46	0,28	0,56	0,28
Na ₂ O	XRF100	%	0,01	3,43	3,83	3,35	1,77	3,55	3,17	3,23	3,23	3,7	3,37	3,64
K ₂ O	XRF100	%	0,01	4,3	4,24	4,56	2,13	3,84	4,41	3,93	4,2	4,13	3,88	3,35
Fe ₂ O ₃	XRF100	%	0,01	1,89	1,96	1,29	2,5	1,93	2,08	2,24	2,3	1,84	2,69	2,74
MnO	XRF100	%	0,01	0,04	0,05	0,03	0,06	0,04	0,05	0,05	0,06	0,04	0,06	0,06
TiO ₂	XRF100	%	0,001	0,173	0,125	0,085	0,26	0,156	0,19	0,214	0,213	0,152	0,264	0,185
P ₂ O ₅	XRF100	%	0,01	0,02	<0,01	<0,01	0,05	0,02	0,03	0,03	0,04	0,02	0,05	0,04
Cr ₂ O ₃	XRF100	%	0,01	0,02	0,01	0,02	<0,01	0,02	0,02	0,02	0,01	0,01	0,02	0,02
LOI	XRF100	%	0,01	0,55	0,55	0,4	4,1	0,4	0,3	0,2	0,35	0,4	0,4	0,4
Sum.	XRF100	%	0,01	99,2	100,1	100	99,1	100,3	100	99,9	100,1	100	100,1	100
Be	ICP80	ppm	0,5	5,6	2,1	1,8	0,9	2,9	1,9	2,2	1,7	3,6	2	1,8
Na	ICP80	%	0,01	2,47	2,6	2,4	1,21	2,39	2,16	2,36	2,26	2,63	2,54	2,57
Mg	ICP80	%	0,01	0,13	0,06	0,07	0,44	0,12	0,2	0,26	0,23	0,13	0,31	0,13
Al	ICP80	%	0,01	6,48	6,84	6,09	3,97	5,76	7,4	7,12	6,58	6,41	7,6	6,34
P	ICP80	%	0,01	0,01	<0,01	<0,01	0,02	0,01	0,02	0,02	0,02	0,01	0,03	0,02
K	ICP80	%	0,01	3,66	3,42	3,86	1,64	3,04	3,57	3,41	3,43	3,6	3,42	2,83
Ca	ICP80	%	0,01	0,82	0,77	0,66	5,27	0,78	0,91	1,1	0,93	0,84	1,3	1,22
Sc	ICP80	ppm	0,5	5,3	4,9	1,9	3,7	5,3	2,2	2,8	2,5	6	3,2	4,1
Ti	ICP80	%	0,01	0,09	0,07	0,05	0,13	0,09	0,11	0,13	0,12	0,09	0,16	0,1
V	ICP80	ppm	2	7	4	4	32	7	13	17	15	7	21	5
Cr	ICP80	ppm	1	36	30	31	53	30	53	50	34	69	81	41

Elt.	Methode	Einh.	N.G.	LSO	EP1	EB1G	EB1B	Jyunk	Tok	Gan1	Gan2	Hos1	Hos2	Hos3
Mn	ICP80	ppm	2	287	339	220	366	285	330	380	378	286	408	419
Fe	ICP80	%	0,01	1,19	1,21	0,84	1,43	1,14	1,27	1,49	1,38	1,2	1,76	1,64
Co	ICP80	ppm	1	3	2	2	6	4	4	4	4	4	6	4
Ni	ICP80	ppm	1	4	5	2	11	3	6	3	5	4	7	4
Cu	ICP80	ppm	0,5	7,1	4,3	2,3	36,3	8,4	3,1	3,8	2,2	12	3,4	3,7
Zn	ICP80	ppm	0,5	49,1	73,2	31,5	38,9	52,7	37	38,6	40,4	53,4	46,7	66,5
As	ICP80	ppm	3	<3	<3	<3	<3	<3	10	21	<3	<3	6	<3
Sr	ICP80	ppm	0,5	60,7	57	98	118	54,7	83,3	107	92,4	65,9	134	177
Y	ICP80	ppm	0,5	24,3	31,5	7,7	7,9	12,3	16,7	18,4	16,1	17,4	17,4	18,1
Zr	ICP80	ppm	0,5	38,3	28,4	23,8	27,4	36	28,6	24,6	30,5	28,7	23,8	12,3
Mo	ICP80	ppm	1	<1	<1	2	2	2	<1	2	1	2	1	3
Ag	ICP80	ppm	0,2	<0.2	<0.2	0,3	0,2	0,5	0,3	<0.2	<0.2	0,2	0,3	<0.2
Cd	ICP80	ppm	1	<1	<1	<1	<1	<1	<1	<1	<1	<1	<1	<1
Sn	ICP80	ppm	10	<10	<10	<10	<10	<10	<10	<10	<10	<10	<10	<10
Sb	ICP80	ppm	5	<5	<5	6	<5	<5	<5	<5	<5	<5	<5	7
Ba	ICP80	ppm	1	400	309	666	298	298	356	433	431	380	545	431
La	ICP80	ppm	0,5	24,4	14	19,4	9,2	19,3	14,3	19,3	17,8	23,3	20,9	16,7
W	ICP80	ppm	10	<10	<10	<10	<10	<10	<10	<10	<10	<10	<10	<10
Pb	ICP80	ppm	2	20	18	23	8	22	17	17	18	22	19	18
Bi	ICP80	ppm	5	<5	<5	<5	<5	<5	<5	<5	<5	<5	<5	<5
Li	ICP80	ppm	1	88	68	32	26	86	51	50	49	87	56	50
B	ES_4	ppm	10	<10	<10	<10	10	<10	<10	<10	<10	<10	<10	<10
Y	MS90	ppm	1	59	50	24	12	58	24	26	24	53	25	29
La	MS90	ppm	0,1	38,7	20,1	23,9	12,6	25,1	16,5	24,9	20,7	27,5	23,9	21
Ce	MS90	ppm	0,1	79,2	44,1	45,8	22,5	55,2	34,4	47,3	36,4	56,7	44,3	43,5
Nd	MS90	ppm	0,1	41,1	25,4	19,7	11,8	31	17,4	20,1	17,5	31,6	18,8	22
Sm	MS90	ppm	0,1	10,2	7,2	4,1	2	8,1	4	4,1	4	8,4	4,2	5,3
Eu	MS90	ppm	0,05	0,46	0,42	0,52	0,38	0,38	0,41	0,39	0,41	0,48	0,59	0,63
Gd	MS90	ppm	0,1	9,9	8,4	4	2,4	9,1	3,7	4,1	4	9,4	4	5,3
Tb	MS90	ppm	0,1	1,6	1,4	0,7	0,4	1,5	0,5	0,7	0,6	1,5	0,6	0,9
Dy	MS90	ppm	0,1	10	9	3,9	2,1	9,9	3,5	4,2	4	8,7	3,5	4,8
Ho	MS90	ppm	0,05	1,89	1,86	0,88	0,43	1,93	0,86	0,82	0,8	1,69	0,76	1,07
Er	MS90	ppm	0,1	5,8	5,3	2,4	1,4	6	2,5	3	2,5	5,6	2,4	3,1
Tm	MS90	ppm	0,1	0,9	0,7	0,3	0,2	0,8	0,5	0,5	0,4	0,9	0,3	0,4
Yb	MS90	ppm	0,1	5,5	5,4	2,2	1,2	6,3	3,2	3,3	2,9	5,9	2,6	2,8
Lu	MS90	ppm	0,05	0,81	0,67	0,33	0,21	0,87	0,45	0,4	0,4	0,89	0,36	0,35
Th	MS90	ppm	0,1	39	27,7	37,6	5,9	25,4	29,5	19,4	18,4	21,7	15,2	9,4
U	MS90	ppm	0,1	6,1	6,8	4,4	1,4	4,5	4,9	3,8	3,2	4	2,9	2,2
Pr	MS90	ppm	0,1	10,4	6	5,9	3,1	7,6	4,6	5,8	5,1	7,3	5,6	6,1
Cl	CHM113	ppm	50	87	62	64	238	106	161	161	126	81	188	87

Tab. B.2: Chemische Analysen der Granitproben vom PSO-Gebäude (PSO), E-Gebäude Abdeckplatte 1 (EP1), E-Gebäude Bohrkern 1 Granit (EB1G) und Beton (EB1B), Jyunkyoji (Jyun), Tokueiji (Tok), Ganjyoji 1&2 (Gan1 & Gan2) und Hosenji 1-3 (Hos1-Hos3). Alle Ergebnisse nach XRAL. (LOI: loss of ignition).

Chemische Analysen von Proben des Giin-Tiefenprofils und der Cl-Eu-
Vergleichsmessungen :

Elt.	Methode	Einh.	N. G.	Giin	Giin	Giin	Giin	Giin	Senn.	Koz.	C.H.
				B1	B2	B3	B4	C			
SiO2	XRF100	%	0,01	73,42	74,03	75,55	72,96	73,99	72,05	73,34	76,22
Al2O3	XRF100	%	0,01	14,21	13,26	13,07	14,22	13,61	14,08	13,54	12,35
CaO	XRF100	%	0,01	1,25	1,2	1,36	1,43	1,13	2,34	1,66	0,93
MgO	XRF100	%	0,01	0,19	0,21	0,19	0,21	0,2	0,33	0,28	0,13
Na2O	XRF100	%	0,01	3,61	3,23	3,54	3,57	3,44	3,79	3,42	3,3
K2O	XRF100	%	0,01	4,8	5,12	4,03	4,83	4,79	3,11	4,21	4,28
Fe2O3	XRF100	%	0,01	1,85	1,97	2,29	2,36	2,26	3,33	2,69	1,88
MnO	XRF100	%	0,01	0,04	0,04	0,04	0,05	0,04	0,06	0,05	0,04
TiO2	XRF100	%	0,01	0,13	0,13	0,12	0,13	0,14	0,21	0,18	0,08
P2O5	XRF100	%	0,01	0,01	0,01	0,01	0,01	0,01	0,05	0,03	<0,01
Cr2O3	XRF100	%	0,01	<0,01	0,02	<0,01	0,03	<0,01	0,02	<0,01	0,03
LOI	XRF100	%	0,01	0,35	0,35	0,15	0,15	0,65	0,15	0,5	0,15
Sum	XRF100	%	0,01	99,85	99,57	100,4	100	100,3	99,54	99,87	99,39
Be	ICP80	ppm	0,5	2,6	2,3	2,9	2,5	2,5	2	2,3	2,5
Na	ICP80	%	0,01	2,29	2,34	2,56	2,56	2,45	2,77	2,52	2,2
Mg	ICP80	%	0,01	0,06	0,09	0,07	0,08	0,09	0,17	0,13	0,04
Al	ICP80	%	0,01	5,97	6,38	6,36	6,72	6,53	6,91	6,71	5,48
P	ICP80	%	0,01	<0,01	<0,01	<0,01	<0,01	<0,01	0,02	0,01	<0,01
K	ICP80	%	0,01	3,52	4,35	3,59	4,18	4,01	2,64	3,67	3,39
Ca	ICP80	%	0,01	0,7	0,81	0,91	0,9	0,75	1,54	1,11	0,55
Sc	ICP80	ppm	0,5	3,2	5	3,1	4,4	5,1	5,1	4,2	3,3
Ti	ICP80	%	0,01	0,06	0,07	0,06	0,07	0,07	0,12	0,1	0,04
V	ICP80	ppm	2	6	5	4	5	5	5	7	<2
Cr	ICP80	ppm	1	4	84	4	122	4	130	6	128
Mn	ICP80	ppm	2	274	327	322	353	324	499	354	268
Fe	ICP80	%	0,01	1,02	1,33	1,56	1,6	1,5	2,23	1,85	1,18
Co	ICP80	ppm	1	1	<1	<1	<1	<1	2	2	<1
Ni	ICP80	ppm	1	3	4	3	6	3	5	4	5
Cu	ICP80	ppm	0,5	10,1	8,9	17	12	9,3	28,4	12,5	8,3
Zn	ICP80	ppm	0,5	70,2	78	84,2	63,2	63,2	85	58,1	69,2
As	ICP80	ppm	3	<3	<3	<3	<3	<3	<3	<3	<3
Sr	ICP80	ppm	0,5	66	74,7	76,5	84,8	67,2	217	105	38,4
Y	ICP80	ppm	0,5	19	30,1	30,9	30,5	30,7	23,3	30,7	29,3
Zr	ICP80	ppm	0,5	26,1	26,4	35,6	31,2	26,2	23,6	35,8	45,3
Mo	ICP80	ppm	1	2	3	4	4	3	3	4	3
Ag	ICP80	ppm	0,2	<0,2	<0,2	<0,2	<0,2	<0,2	<0,2	<0,2	<0,2
Cd	ICP80	ppm	1	<1	<1	<1	<1	<1	<1	<1	<1
Sn	ICP80	ppm	10	<10	<10	<10	<10	<10	<10	<10	<10
Sb	ICP80	ppm	5	<5	<5	<5	<5	<5	<5	<5	<5
Ba	ICP80	ppm	1	304	353	269	390	386	501	574	229
La	ICP80	ppm	0,5	13,2	16,2	14,3	20,4	19,3	24,6	22,6	14,6
W	ICP80	ppm	10	<10	<10	<10	<10	<10	<10	<10	<10
Pb	ICP80	ppm	2	22	27	24	26	26	19	20	20
Bi	ICP80	ppm	5	<5	<5	<5	<5	<5	<5	<5	<5
Li	ICP80	ppm	1	43	67	67	69	86	47	47	105
Cl	CHM113	ppm	50	<50	<50	<50	<50	<50	<50	<50	<50
Y	MS90	ppm	1	28	35	35	36	36	24	34	42

Elt.	Methode	Einh.	N. G.	Giin B1	Giin B2	Giin B3	Giin B4	Giin C	Senn.	Koz.	C.H.
La	MS90	ppm	0,1	17,2	16,6	14,3	21,8	19,9	25	23,2	16,4
Ce	MS90	ppm	0,1	35,6	38,2	32,1	48,2	43,6	50,3	48,8	37,8
Nd	MS90	ppm	0,1	16,5	17,2	15,3	21,6	20	20,8	21,1	17,8
Sm	MS90	ppm	0,1	4,2	4,4	4,1	5,4	5,2	4,3	5	5,2
Eu	MS90	ppm	0,05	0,54	0,51	0,5	0,58	0,56	0,88	0,62	0,37
Gd	MS90	ppm	0,1	4,4	5	4,8	5,6	5,6	4,3	5,3	6,1
Tb	MS90	ppm	0,1	0,7	0,9	0,8	0,9	0,9	0,7	0,9	1
Dy	MS90	ppm	0,1	4,6	5,7	5,5	5,9	5,8	4,1	5,6	6,8
Ho	MS90	ppm	0,05	0,97	1,22	1,22	1,25	1,16	0,86	1,19	1,45
Er	MS90	ppm	0,1	3,1	3,9	4	4,1	3,8	2,6	3,9	4,8
Tm	MS90	ppm	0,1	0,4	0,6	0,6	0,5	0,5	0,4	0,5	0,6
Yb	MS90	ppm	0,1	2,9	3,8	3,7	3,6	3,4	2,5	3,6	4,4
Lu	MS90	ppm	0,05	0,45	0,58	0,54	0,56	0,52	0,37	0,51	0,68
Th	MS90	ppm	0,1	18	12,1	43,8	17,1	18,7	8	14,7	21
U	MS90	ppm	0,1	5,3	5,8	8,3	5,6	4,4	2	2,5	5,6
Pr	MS90	ppm	0,2	4,6	4,8	4,1	6,1	5,5	5,9	5,9	4,8

Tab. B.2: Chemische Analysen der Proben für das Tiefenprofil vom Giin Steinbruch und der Proben Senngyoji, Kozenji und Rathaus (C.H.). Alle Ergebnisse nach XRAL . (LOI: loss of ignition).

Abbildungsverzeichnis

1.1	Wichtige Abstände und Begriffe	2
1.2	Blick auf den Atombombendom in Hiroshima	3
1.3	Veranschaulichung der DS86 Rechnungen	5
1.4	Dosis in Abhängigkeit vom Aufenthaltsort zum Zeitpunkt der Explosion	5
1.5	Vergleich von gemessener und gerechneter γ -Fluenz	6
1.6	Vergleich von gemessener und gerechneter ^{32}P Aktivität	9
1.7	Vergleich von gemessenen und gerechneten Aktivierungen durch thermische Neutronen	10
2.1	Lage aller Proben	14
2.2	Bilder vom Saikoji-Friedhof	16
2.3	Aufbau des Saikoji-Grabsteins	16
2.4	Sinkoji-Friedhof	17
2.5	Ganjyoji-Friedhof	18
2.6	Jyunkyoji-Friedhof	18
2.7	Fukoku-Gebäude	20
2.8	E-Gebäude	20
2.9	Nordfassade des E-Gebäudes	21
2.10	Nord-West-Ecke des E-Gebäudes	21
2.11	Aufbau der Bohrkerne vom E-Gebäude	22
2.12	Rotkreuz-Hospital	23
2.13	Postal-Savings-Gebäude	23
2.14	Eingangstreppe vom PSO-Gebäude	24
2.15	Motoyasu-Brücke	25

2.16	Shirakami-Schrein	26
2.17	Enryuji- und Shingyoji-Friedhof	26
2.18	Rathaus (City Hall)	26
2.19	Steinbruch auf der Insel Oshima	28
2.20	Giin-Steinbruch auf der Insel Kurahashi	29
3.1	Für die Extraktion von Cl verwendeter Aufbau	35
3.2	Für die ^{36}Cl -Messung verwendeter Aufbau	39
3.3	Spektrum eines Standards	41
3.4	Spektrum einer Nullprobe	41
3.5	Spektrum einer Probe aus Hiroshima (neu)	42
3.6	Spektrum einer Probe aus Hiroshima (alt)	42
4.1	$^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Tiefenprofil im Granitgrabstein vom Saikoji Friedhof	49
4.2	Messungen der Grabsteine vom Sinkoji-, Ganjoji- und Hosenji-Friedhof	51
4.3	$^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Tiefenprofil im Bohrkern 1 des E-Gebäudes	53
4.4	$^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Tiefenprofil im Bohrkern 6 des E-Gebäudes	54
4.5	Gemessene $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnisse in Abhängigkeit vom Abstand vom Epizentrum im Vergleich zu DS86 FIA	57
4.6	^{36}Cl - ^{152}Eu Vergleichsmessungen	57
4.7	Gemessene $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnisse in Proben aus Steinbrüchen in der Nähe von Hiroshima	60
4.8	$^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Tiefenprofil in Proben aus dem Giin Steinbruch	60
4.9	Gemessene $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnisse in Abhängigkeit vom Abstand vom Epizentrum im Vergleich zu DS86 FIA + gemessener ^{36}Cl Untergrund	62
5.1	Gerechnete ^{36}Cl -Konzentrationen als Funktion der Tiefe und der Erosionsrate ...	67
5.2	Gerechnete ^{36}Cl -Konzentration in Aji-Granit	69
5.3	Gerechnete ^{36}Cl -Konzentration in Iyo-Granit	70
5.4	Gerechnete ^{36}Cl -Konzentration in Odachi-Granit	70
5.5	Gerechnete ^{36}Cl -Konzentration in Giin-Granit	71

5.6	Gerechnete ^{36}Cl -Konzentration in Granit der Probe vom Senngyoji-Friedhof	71
5.7	Gerechnete ^{36}Cl -Konzentration in Granit der Probe vom Rathaus	74
5.8	Gerechnete ^{36}Cl -Konzentration in Granit der Probe vom Kozenji-Friedhof	74
5.9	Gerechnete ^{36}Cl -Konzentration in Granit der Proben Ganjyoji1, Hosenji1 und Jyunkyoji	75
5.10	Gerechnete ^{36}Cl -Konzentration in Granit der Proben Tokueiji, EG-Platte1 und PSO	75
5.11	Gerechnete ^{36}Cl -Konzentration in Granit der Proben Hosenji2, Saikoji und EG-Bohrkern1	76
5.12	Gerechnete ^{36}Cl -Konzentration in Granit der Proben Ganjyoji2 und Hosenji3	76
6.1	Korrigierte $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnisse im Vergleich mit DS86 FIA	78
6.2	Für die DS86-Rechnungen simulierte Situation auf einem Friedhof	79
6.3	Vergleich von DS86-gerechneten und in dieser Arbeit gemessenen ^{36}Cl Aktivierungen durch thermische Neutronen	83
6.4	DS86 FIA-Rechnungen für die Explosionshöhen 580m und 600m im Vergleich zu den Messungen	85
6.5	Einfluss von Spurenelementen auf die Rechnungen für Tiefenprofile	89
6.6	Vergleich von DS86- mit DS02- FIA Rechnungen.....	92
6.7	Vergleich von DS02-gerechneten und in dieser Arbeit gemessenen ^{36}Cl Aktivierungen durch thermische Neutronen	92
7.1	Wirkungsquerschnitt der Reaktion $^{39}\text{K}(\text{n,p})^{39}\text{Ar}$	95

Tabellenverzeichnis

1.1	Gemessene Radionuklide in Hiroshima	8
2.1	Übersicht der in dieser Arbeit gemessenen Proben	24
2.2	Zusammenfassung der Proben für die ^{36}Cl - ^{152}Eu Vergleichsmessungen	27
2.3	D/S-Werte ausgewählter Proben	31
2.4	Zusammenhang zwischen Proben aus Hiroshima und den Steinbrüchen	32
3.1	Vergleich der $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnisse zwischen gewaschenen und ungewaschenen Proben	37
3.2	Gemessene $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnisse in den Nullproben	44
4.1	Messergebnisse der untersuchten Proben	46
4.2	Messergebnisse der Proben vom E-Gebäude	47
4.3	Messergebnisse der Proben für die ^{36}Cl - ^{152}Eu Vergleichsmessungen.....	48
4.4	Vergleich der Messungen am Fukoku Gebäude	50
4.5	Vergleich der Messungen vom Rotkreuz-Hospital	55
4.6	Ergebnisse der ^{36}Cl - ^{152}Eu Vergleichsmessungen	58
4.7	Messergebnisse der Steinbruchproben	59
5.1	Vergleich von gemessenen und gerechneten $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnissen in den Steinbruchproben	72
5.2	Gerechnete In-situ $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnisse von Proben aus Hiroshima	73
6.1	Korrektur der Messungen mit dem individuell gerechneten Untergrund	78

6.2	Gerechnete ^{36}Cl Produktion für einen Grabstein	80
6.3	Transmissionsfaktoren für die Abdeckplatten des E-Gebäudes	81
6.4	Transmissionsfaktoren für die Bohrkernkerne des E-Gebäudes	81
6.5	Vergleich von gemessenen und mit DS86 gerechneten $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ Verhältnissen	82
6.6	Anteil absorbierter Neutronen im DS86-Boden	86
6.7	Anteil absorbierter Neutronen im DS86-Boden unter Berücksichtigung von Spurenelementen	87
6.8	Anteil absorbierter Neutronen in Granit	89
6.9	Vergleich von gemessenen und mit DS02 gerechneten $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ Verhältnissen	91
B.1	Chemische Analysen der Steinbruchgranite	103
B.2	Chemische Analysen von Proben aus Hiroshima	105
B.3	Chemische Analysen der Proben für das Giin-Tiefenprofil und ^{36}Cl - ^{152}Eu - Vergleichsproben aus Hiroshima	107

Literaturverzeichnis

- [AN61] E.T. Arakawa and S. Nagaoka. Determination of the burst point and hypocenter, Hiroshima. *J. Hiroshima Med. Ass.*, 14: 109-126, 1961. (ABCC Techn. Rep. 12-A-59).
- [Ara60] E. T. Arakawa. Radiation dosimetry in Hiroshima and Nagasaki atomic-bomb survivors. *The new England Journal of Medicine*, 263:488-493, 1960
- [Aux77] 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.
- [CK98] 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 , Ludwigs-Maximilians Universität München, 1998.
- [CoH96] Architectural witness to the atomic bombing-a record for the future. Hiroshima Peace Memorial Museum, City of Hiroshima, 1996. (Japanisch)
- [DM00] CD-ROM: Digital Map 50m Grid, Nippon III, Geographical Survey Institute, Ministry of Land, Infrastructure and Transport, Japan, Tsukuba, 2000.
- [DNH⁺91] B. Dockhorn, S. Neumaier, F. J. Hartmann, C. Petitjean, H. Faestermann and E. Nolte. Determination of Erosion Rates with cosmic ray produced ³⁶Cl. *Zeitschrift Physik, A* 341:117-119,1991.
- [Egb01] S. Egbert. priv. Mitteilung. Science Applications International Corporation, San Diego, 2001.
- [Egb02] S. Egbert. priv. Mitteilung. Science Applications International Corporation, San Diego, 2002.
- [Egb99] S. Egbert. priv. Mitteilung. Science Applications International Corporation, San Diego, 1999.
- [EH82] T. von Egidy and F.J. Hartmann. Average muonic Coulomb capture probabilities for 65 elements. *Physical Review A*, 26(5): 2355-2360, 1982.
- [Fau86] G. Faure. Principles of Isotop Geology. sec. Ed. John Wiley & Sons, 1986.

- [FOK68] Y. Feige, B.G. Oltman, and J. Kastner. Production Rates of Neutrons Due to Natural Radioactivity. *Journal of Geophysical Research*, Vol.3, No. 10, 1968
- [FSO99] O. Fujiwara, T. Sanga and H. Ohmori. Regional distribution of erosion rates over the Japanese Islands. Japan Nuclear Cycle Development Institute, Technical Report No. 5, 1999.
- [Fuj00] S. Fujita. priv. Mitteilung. Radiation Effects Research Foundation, Hiroshima, Japan, 2000.
- [Fuj01] S. Fujita. priv. Mitteilung. Radiation Effects Research Foundation, Hiroshima, Japan, 2001.
- [Gov99] H.E. Gove. From Hiroshima to the Iceman. Institute of Physics Publishing, Bristol, 1999.
- [Hab85] G. Haberstock. Massenspektrometrie mit dem Münchner Schwer-Ionen-Nachbeschleuniger (SchweIN). Diplomarbeit, Technische Universität München, 1985.
- [Hei98] B. Heisinger. Myonen-induzierte Produktion von Radionukliden. Dissertation, Technische Universität München, 1998.
- [Hei99] B. Heisinger. Priv. Mitteilungen. Technische Universität München, 1999.
- [HHK⁺86] G. Haberstock, J. Heinzl, G. Korschinek, H. Morinaga, E. Nolte, U. Ratzinger, K. Kato, and M. Wolf. Acceleration mass spectrometry with fully stripped ³⁶Cl ions. *Radiocarbon*, 2A:204-210, 1986.
- [HIS⁺87] H. Hasai, K. Iwatani, K. Shizuma, M. Hoshi, K. Yokoro, S. Sawada, T. Kosako and H. Morishima. Europium-152 depth profile of a stone bridge Pillar exposed to the Hiroshima atomic bomb: ¹⁵²Eu activities for analysis of the neutron spectrum. *Health Physics*, 53:227-239, 1987.
- [HJC69] H. H. Hubbel Jr., T. D. Jones, and J. S. Cheka. The Epicenters of the atomic bombs: Part 2. Reevaluations of all available physical data with recommended values. Technical Report ABCC TR 3-69, Hiroshima: RERF, 1969.
- [HKB⁺99] S. Hayashi, K. Kamata, M. Ban and K. Umeda. Erosion rate of stratovolcanoes - a case study of northeast Japan. Abstract for the Joint Meeting for Earth and Planetary Science, June, Tokyo, Vc-013, 1999.
- [HLJ⁺02] B. Heisinger, D. Lal, A.J.T. Jull, P. Kubik, S. Ivy-Ochs, S. Neumaier, K. Knie, V. Lazarev and E. Nolte. Production of selected cosmogenic radionuclides by muons: 1. Fast muons. *Earth and Planetary Science Letters*, 200: 345-355, 2002.

- [HLJ⁺02] B. Heisinger, D. Lal, A.J.T. Jull, P. Kubik, S. Ivy-Ochs, K. Knie and E. Nolte. Production of selected cosmogenic radionuclides by muons: 2. Capture of negative muons. *Earth and Planetary Science Letters*, 200: 357-369, 2002.
- [HMS⁺67] T. Hashizume, T. Marnyama, 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.
- [HRS99] P. Hartung, L. Rohrer and H. Schnitter. Generating Volt Meter. Jahresbericht des Beschleunigerlabors der Universität und der Technischen Universität München, 1999.
- [HSF87] E. H. Hebeda, L. Schulz, M. Freundel. *Earth Planet. Sci. Lett.* 85:79-90, 1987.
- [Hub99] T. Huber. Die Neutronendiskrepanz in Hiroshima-Messung thermischer und schneller Neutronen. Diplomarbeit, Technische Universität München, 1999.
- [HYS⁺89] 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 ³²P, ⁶⁰Co, and ¹⁵²Eu activities in the dosimetry system 1986 (DS86). *Health Physics*, 57:831-837, 1989.
- [Ima02] T. Imanaka. priv. Mitteilung. Research Reaktor Institute, Kyoto University, Japan, 2002.
- [Kar95] G. Pfennig, H. Klewe-Nebenius and W. Seelmann-Eggebert. *Karlsruher Nuklidkarte*, 6. Auflage, 1995. Forschungszentrum Karlsruhe.
- [Kat00] K. Kato. priv. Mitteilung. Hiroshima Prefectural College of Health Science, 2000.
- [Kat01] K. Kato. priv. Mitteilung. Hiroshima Prefectural College of Health Science, 2001.
- [Kat02] K. Kato. priv. Mitteilung. Hiroshima Prefectural College of Health Science, 2002.
- [Kat99] K. Kato. priv. Mitteilung. Hiroshima Prefectural College of Health Science, 1999.
- [KDE⁺90] 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. ORNL-6590, Health and Safety Research Division, 1990.
- [KH93] T. Kimura and T. Hamada. Determination of Specific Activity of ⁶⁰Co in Steel Samples Exposed to the Atomic Bomb in Hiroshima. *Radioisotopes*, Vol. 42, No. 1, 1993.

- [KHA⁺90] K. Kato, M. Habara, T. Aoyama, H. Sakata and Y. Yoshizawa. Gamma-ray measurements of ¹⁵²Eu produced by neutrons from the Hiroshima atomic bomb and evaluation of neutron fluence. Japanese Journal of Applied Physics, 29(8):1546-1549, 1990.
- [KHY⁺90] K. Kato, M. Habara, Y. Yoshizawa, U. Biebel, G. Haberstock, J. Heinzl, G. Korschinek, H. Morinaga, and E. Nolte. Accelerator mass spektrometrie of ³⁶Cl produced by neutrons from the Hiroshima bomb. Int. J. Radiat. Biol. vol.5 no. 4, 661-672, 1990.
- [KMN⁺87] G. Korschinek, H. Morinaga, E. Nolte, E. Peisenberger, U. Ratzinger, A. Urban, P. Dragovitch, and S. Vogt. Accelerator mass spektrometry with completelystripped ⁴¹Ca and ⁵³Mn ions at the Munich tandem accelerator. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, 29:67-71, 1987.
- [KMT79] Earth Science 5. Circumstance and materials on the earth surface. Edited by Kametoshi Kanmera, Shinjiro Mizutani and Kiyotaka Tinzei, Iwanami-Shoten, Tokyo, 1979.
- [Kom02] K. Komura. priv. Mitteilung. Kanazawa University, 2002.
- [KS78] Earth Science 10. Change of the earth I. Edited by Keiichi Kasahara and Shin Sugimura, Iwanami-Shoten, Tokyo, 1978.
- [KT53] K. Kimura and E. Tajima. Location of A-bomb explosion and size of the fireball, pages 3-87. Science Council of Japan, Tokyo, 1953.
- [KW59] H. Wänke and H. König. Eine neue Methode zur Kalium-Argon-Altersbestimmung und ihre Anwendungen auf Steinmeteorite. Zeitung der Naturforschung 14a:860-866, 1959.
- [KWES94] D. C. Kaul, W. A. Woolson, S. D. Egbert, and T. Straume. A brief summary of comparison between the DS86 A-bomb survivor dosimetry and in-situ measurements in light of new measurements, revised nuclear data and improved calculational methods. Proceedings of the 8th International Conference on Radiation Shilding, Arlington, Texas, 232-237, 1994.
- [Lal91] 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.
- [LHO80] H. H. Loosli, M. Heimann, and H. Oeschger. Low-level gas proportional counting in an underground laboratory. Radiocarbon, Vol. 22, No. 2, 461-469, 1980.
- [Loo02] H. Loosli. priv. Mitteilung. Universität Bern, Schweiz, 2002.

- [LPE⁺87] B. D. Leavy, F. M. Phillips, D. Elmore, P. W. Kubik and E. Gladney. Measurement of cosmic $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ in young volcanic rocks. *Nuclear Instruments and Methods in Physical Research*, B 29: 246-250, 1987.
- [LSS⁺99] R. Lutter, O. Schaile, K. Schöffel, K. Steinberger, P. Thirolf and C. Broude. MARaBOOU- 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.
- [LSWS92] T. Loeken, P. Scherer, H. W. Weber, and L. Schulz. *Chem. Erde* 52:249-259, 1992.
- [Mer99] S. Merchel. Priv. Mitteilung. Max-Planck-Institut für Chemie Mainz, 1999.
- [MHM⁺97] 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, 1997.
- [MS68] R. C. Milton, T. Shohoji. Tentative 1965 Radiation Dose Estimation for Atomic Bomb Survivors. Technical Report TR 1-68, Atomic Bomb Casualty Commission (now RERF), 1968.
- [MS96] A. A. Marchetti and T. Straume. A Search for Reaktionen That May be Useful for Hiroshima Dose Rekonstruktion. *Appl. Radiat. Isot*, 47(1):97, 1996.
- [MT66] C. M. Merrihue, G. Turner. Potassium argon dating by activation with fast neutrons. *J. Geophys. Res.*, 71:2852-2857, 1966.
- [Nag02] Y. Nagashima. priv. Mitteilung. University of Tsukuba, 2002.
- [NHI95] 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*, 69:556-559, 1995.
- [NIKS83] T. Nakanishi, T. Imura, K. Komura, and M. Sakanoue. ^{152}Eu in samples exposed to nuclear explosions at Hiroshima and Nagasaki. *Nature*, 302:132-134, 1983.
- [NOM⁺91] T. Nakanishi, H. Ohtani, R. Mizuochi, K. Miyaji, T. Yamamoto, K. Kobayashi, and T. Imanaka. Residual neutron-induced radionuclides exposed to the nuclear explosion over Hiroshima: Comparison of measured values with the calculated values. *Journal of Radiation Research, Supplement*, pages 151-162, 1991
- [Nuc97] T-2 Nuclear Information Service, Los Alamos National Laboratory: Nuclear Data Viewer. URL://www.t2.lanl.gov/data/ndviewer.html, 1997. Online Nuclear Data Service

- [OM83] S. Okajima and J. Miyajima. Measurement of neutron-induced ^{152}Eu radioaktivität. US-Japan Joint Workshop for Reassessment of Atomic Bomb Radiation Dosimetry in Hiroshima and Nagasaki, 302:132-134, 1983.
- [PPI⁺83] 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.
- [PSP⁺96] D. A. Pierce, Y. Shimizu, D. L. Preston, M. Vaeth, and K. Mabuchi. Studies of the Mortality of Atomic Bomb Survivors. Report 12, Part 1. Cancer: 1959-1990. Radiation Research, 146:1, 1996
- [RKK⁺90] W. Rühm, K. Kato, G. Korschinek, H. Morinaga, A. Urban, L. Zerle, and E. Nolte. The neutron spectrum of the Hiroshima A-bomb and the Dosimetry System DS86. Nucl. Instr. Methods, B52:557-562, 1990.
- [RKK⁺92] 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.
- [RKK⁺95] 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, 1995
- [RKK⁺98] 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. Radiat. Environ. Biophys., 37:293-310,1998.
- [RKR⁺00] 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.
- [Roe87] W.C. Roesch, editor. US-Japan Joint reassessment of atomic bomb radiation dosimetry in Hiroshima and Nagasaki: Final report. Radiation Effects Research Foundation, 1987.
- [Rug02] G. Rugel. Retrospektive Bestimmung der Fluenz schneller Neutronen in Hiroshima. Dissertation, Ludwigs-Maximilian-Universität München, 2002.
- [Rug98] G. Rugel. Beschleunigermassenspektrometrie mit ^{63}Ni zur Bestimmung der Fluenz schneller Neutronen von der Hiroshimabombe. Diplomarbeit, Technische Universität München, 1998.
- [Rüh93] W. Rühm Das Neutronenspektrum der Atombombe von Hiroshima und das Dosimetriesystem DS86. Dissertation, Technische Universität München, 1993.

- [Sch98] L. Schulz. Priv. Mitteilungen. Max-Planck-Institut für Chemie Mainz, 1998.
- [SEW⁺92] 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, 1992.
- [SIH⁺92] K. Shizuma, K. Iwatani, H. Hasai, T. Oka, H. Morishima, and M. Hoshi. Specific activities of ⁶⁰Co and ¹⁵²Eu in samples collected from the Atomic-Bomb Dome in Hiroshima. *J. Radiat. Res.*, 33:151-162, 1992.
- [SIH⁺93] K. Shizuma, K. Iwatani, H. Hasai, M. Hoshi, T. Oka, and H. Morishima. Residual ¹⁵²Eu and ⁶⁰Co activities induced by neutrons from the Hiroshima atomic bomb. *Health Physics*, 65(3): 272-282, 1993.
- [SIH⁺97] K. Shizuma, K. Iwatani, H. Hasai, T. Oka, M. Hoshi, S. Shibata, M. Imamura, and T. Shibata. Identification of ⁶³Ni and ⁶⁰Co 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.
- [SIH⁺98] K. Shizuma, K. Iwatani, H. Hasai, T. Oka, S. Endo, J. Takada, M. Hoshi, S. Fujita, T. Watanabe, and T. Imanaka. Residual ⁶⁰Co activity in steel samples exposed to the Hiroshima atomic-bomb neutrons. *Health Physics*, 75(3):1-7, 1998.
- [Sin74] P. Singer. Emission of particles following muon capture in intermediate and heavy nuclei. *Springer Tracts in Modern Physics*, 71(Nuclear Physics):39-87, Springer, Berlin-Heidelberg-New York, 1974.
- [SJM⁺94] Y. A. Shukolyukov, E. K. Jessberger, A. P. Meshik, Dang Vu Minh, and J. L. Jordan. Chemically fractionated fission-xenon in meteorites and on the Earth. *Geochemica et Cosmochemica Acta*, Vol. 58, No. 14, 3075-3092, 1994.
- [SM87] T. Suzuki and D. F. Measday. Total nuclear capture rates for negative muons. *Physical Review C*, 35(6):2212-2224, 1987.
- [SMM96] T. Straume, A. A. Marchetti, and J. E. McAninch. New analytical capability may provide solution to the neutron dosimetry problem in Hiroshima. *Radiation Protection Dosimetrie*, 67(1):5, 1996.
- [Spp⁺99] 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.
- [Str01] T. Straume. priv. Mitteilung. University of Utah, 2001.
- [Str02] T. Straume. priv. Mitteilung. University of Utah, 2002.

- [Sug53] A. Sugimoto. Determination of fast neutron particles emitted at the Time of the Hiroshima a-bomb explosion. In Collection of Investigate Reports on Atomic Bomb Diseaster, page 19, Tokyo, 1953. Japan Science Promotion Society.
- [SWB91] L. Schulz, H. W. Weber, and F. Begemann. Noble gases in H-chondrites and potential differences between Antarktic and non-Antarktic meteorites. *Geochemica et Cosmochemica Acta*, 55:59-66, 1991.
- [TC74] G. Turner and P. H. Cadogan. Possible effects of ^{39}Ar -recoil in ^{40}Ar - ^{39}Ar dating. Proceedings of the Fifth Lunar Conference (Supplement 5, *Geochemica et Cosmochemica Acta*), 2:1601-1615, 1974.
- [Tol02] I. Tolstichin. priv. Mitteilung. Geologisches Institut Apatity, Russland, 2002.
- [Urb86] A. Urban. Beschleunigermassenspektrometrie mit ^{41}Ca . Diplomarbeit, Technische Universität München, 1986.
- [US47] US Strategic Bombing Survey, Physical Damage Division. The effects of the Atomic Bomb in Hiroshima, Japan. Washington DC, US Gov. Print Off., 1947.
- [WM61] L. A. Woodbury and M. Mizuki. Location of the hypocenter and epicenter, Hiroshima. *J. Hiroshima Med. Ass.*, 14: 127-131, 1961.
- [YMTU98] S. Yoshida, Y. Muramatsu, K. Tagami and S. Uchida. Concentrations of Lanthanide elements, Th and U in 77 Japanese surface soils. *Environmental International*, 24:275-286, 1998.
- [YS53] F. Yamasaki and A. Sugimoto. Radioactive ^{32}P produced in sulfur in Hiroshima. In Collection of Investigate Reports on Atomic Bomb Diseaster, pages 18-19, Tokyo, 1953. Japan Science Promotion Society.

Acknowledgement

This work makes use of data obtained from the Radiation Effects Research Foundation (RERF) in Hiroshima, Japan. RERF is a private foundation fundet equally by the Japanese Ministry of Health and Welfare and the U.S. Department of Energy through the U.S. National Academy of Science. The conclusions in this work are of the autor and do not necessarily reflect the scientific judgement of RERF or its funding agencies.

Vielen Dank

Meinem Doktorvater Prof. Dr. E. Nolte möchte ich für seine freundliche Betreuung, dieses interessante Thema, sein großes Interesse, seine Hilfe bei Rechnungen und die Hilfe bei den Strahlzeiten danken.

Herrn Dr. W. Rühm vom Strahlenbiologischen Institut der LMU München für seine große Hilfe und Diskussionsbereitschaft, die wesentlich zum Gelingen dieser Arbeit beitrugen. Außerdem für seine Anstrengungen dieses Projekt international voranzubringen.

Herrn Dr. K. Kato (Hiroshima Prefectural College of Health Science) für die Beschaffung vieler Proben aus Hiroshima und Umgebung, aber auch für die vielen Informationen über Proben, Steinbrüche, Granittypen und Erosionsraten, deren Beschaffung ihn bis an die Grenzen seiner alpinistischen Fähigkeiten brachte.

Frau Dr. S. Merchel (BAM, Berlin) deren Idee einer einfachen trägerfreien Proben-aufbereitung stark zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen hat.

Herrn Dr. S. Egbert (SAIC, San Diego) für die Bereitstellung zahlreicher DS86- und DS02-Rechnungen.

Herrn Dr. T. Imanaka (Kyoto University) für seine Rechnungen zum Einfluss von Spurenelementen.

Dem Strahlenbiologischen Institut der LMU München und seinem Vorstand Herrn Prof. Dr. A.M. Kellerer, die mir eine Reise nach Hiroshima ermöglicht und mir in schwierigen Zeiten vorübergehend eine Anstellung gegeben haben.

Herrn Dr. H. Cullings (RERF, Hiroshima) für seine Gastfreundschaft während meiner Reise nach Hiroshima.

Herrn R. Beiderbeck und Herrn V. Ruttner für die freundliche Hilfe bei der Grobaufbereitung der Granitproben.

Dem Personal des Beschleunigers, v.a. den Operateuren und der Rechnergruppe für die Hilfe bei den Strahlzeiten.

Den weiteren Mitgliedern der AMS-Gruppe für ein gutes Arbeitsklima und ihre stetige Hilfs- und Diskussionsbereitschaft: Herrn N. Gärtner für die Hilfe am SchweIN und bei vielen kleinen Problemen; Frau U. Heim als freundliche Zimmerkollegin, die Antworten auf viele alltägliche Fragen geben konnte; Herrn Dr. F. Kubo, für viel Hilfe aber auch Gaudi während den Strahlzeiten; Herrn Dr. B. Heisinger und Herrn MS. V. Lazarev für ihre Hilfe bei den Untergrundsrechnungen; Herrn Dipl.-Phys. H. Reithmeier, allen Gästen unserer Gruppe sowie allen Mitgliedern der GAMS-Gruppe: Dr. G. Rugel, Dr. K. Knie, Dr. C. Wallner, Dr. G. Korschinek, Dr. A. Wallner und A. Arazi.

Meinen Eltern, dass sie mir dieses Studium ermöglicht haben. Meiner Schwester Steffi für die Rechtschreibkorrektur.

Ganz besonders bedanke ich mich bei meiner Freundin Elke für ihr Verständnis und ihre Unterstützung.