

γ -spektrometrische Untersuchungen von Sedimentproben aus ehemaligen Uranabbaugebieten (Muldereion)

Bachelorarbeit

zur Erlangung des akademischen Grades

Bachelor of Science (B. Sc.)

im Studiengang Physik

GOTTFRIED WILHELM LEIBNIZ UNIVERSITÄT
HANNOVER

Fakultät für Mathematik und Physik

Institut für Radioökologie und Strahlenschutz

eingereicht von Tobias Kampmeier

geb. am 23.08.1994 in Minden

geprüft durch Prof. Dr. rer. nat. Clemens Walther

Hannover, 12.12.2016

Selbstständigkeitserklärung

Hiermit erkläre ich, Tobias Kampmeier, dass ich die vorliegende Arbeit selbständig verfasst und keine anderen als die angegebenen Hilfsmittel benutzt habe.

Die Stellen der Arbeit, die anderen Quellen im Wortlaut oder dem Sinn entsprechend nach entnommen wurden, sind durch Zitate und Angaben der Herkunft kenntlich gemacht.

Hannover, den 12. Dezember 2016

Tobias Kampmeier

Inhaltsverzeichnis

Selbstständigkeitserklärung	iii
Inhaltsverzeichnis	v
1. Einleitung	1
1.1. Einordnung der Arbeit	1
1.2. Das Muldesystem	2
1.3. Das Hochwasser 2013 in Sachsen	3
1.4. Die Wismut und der Uranerzbergbau nach 1945	4
2. Radionuklidgruppen, natürliche Zerfallsreihen und Gleichgewichte	5
2.1. Radionuklide	5
2.1.1. Primordiale Radionuklide	5
2.1.2. Radiogene Radionuklide und Zerfallsreihen	5
Uran-Radium-Reihe	6
Uran-Actinium-Reihe	7
Thoriumreihe	7
Neptuniumreihe	7
2.1.3. Anthropogene/künstliche Radionuklide	7
2.2. Radioaktive Gleich- und Ungleichgewichte	8
2.2.1. Aktivität und radioaktiver Zerfall	8
2.2.2. Natürliche geochemische Verhältnisse und Störungen der Gleichgewichte	9
3. Grundlagen der Gamma-Spektrometrie	11
3.1. Betrachtete Nuklide	12
3.2. Wechselwirkungsmechanismen von Gammaquanten mit Materie in Halbleiterdetektoren	12
3.3. Aufbau und Funktion eines Germanium-Detektors	13
3.3.1. Bauformen	14
3.4. Das Gammaspektrum	16
3.4.1. Der verwendete Detektor	19
3.5. Detektorkalibrierung	19
3.5.1. Energiekalibrierung	20
3.5.2. Efficiencykalibrierung	20
3.6. Bestimmung der spezifischen Aktivität	20
3.6.1. Ungestörte Linien	21
3.6.2. Gestörte Linien	23
3.7. Messunsicherheiten	23
3.7.1. Konformität	25
3.8. Erkennungs- und Nachweisgrenzen	25
4. Datenanalyse und Ergebnisse der Gamma-Spektrometrie	27
4.1. Probenherkunft und -aufbereitung	27
4.1.1. Mulde-II Sediment	27

4.2. Daten- und Messwertanalyse Mulde-II	29
4.2.1. Test auf Normalverteilung und logarithmische Normalverteilung	29
4.2.2. Betrachtung der Mittelwerte der spezifischen Aktivitäten	30
4.2.3. Aktivitätsverhältnisse innerhalb der Zerfallsreihen und bergbaulicher Einfluss	33
4.2.4. Betrachtung der Aktivitäten einzeln bezogen auf den Probenahmeort	36
4.2.5. Verteilung von U-238 und Ra-228 im Flussverlauf	37
4.2.6. K-40 und Cs-137	38
4.2.7. TransAqua Boden- und Litterproben	40
Ergebnisse der TransAqua Boden- und Litterproben	41
4.2.8. Ringversuch zur Bestimmung von Gammastrahlen im Wasser	42
5. Diskussion und Vergleich	45
5.0.1. Verteilung von U-238 im Flussverlauf im Vergleich	49
5.0.2. Änderung in den Flussabschnitten und Konformität	50
6. Zusammenfassung und Ausblick	53
Literatur	55
Abbildungsverzeichnis	57
Tabellenverzeichnis	59
A. Erläuterungen und Ergänzungen	63
A.1. Kapitel 2	63
A.1.1. Kosmogene Radionuklide	63
A.1.2. Radioaktive Gleichgewichte	63
A.1.3. Säkulares Gleichgewicht	65
A.1.4. Transientes Gleichgewicht	66
A.1.5. Kein Gleichgewicht	67
A.2. Kapitel 3	68
A.2.1. Photoeffekt	68
A.2.2. Comptoneffekt	69
A.2.3. Paarbildung	70
A.3. Kapitel 4	72
A.4. Kapitel 5	73
B. Messdaten	75
C. Messdatenanalyse	89
Danksagung	101

1. Einleitung

Die vorliegende Arbeit untersucht die Radionuklidgehalte in Sedimenten der Zwickauer und Vereinigten Mulde zur Abschätzung von Langzeitfolgen des ehemaligen Uranerzbergbaus in Sachsen. Sie ist somit in den Bereich der Radioökologie einzuordnen.

Die Radioökologie untersucht als interdisziplinäres Forschungsgebiet durch Zusammenführung unterschiedlichsten Fachwissens aus Physik, Chemie und Biologie, sowie der Geologie, Hydrologie, Bodenkunde und weiteren Disziplinen die Entstehung, das Vorkommen und die Verbreitung von Radionukliden in der Umwelt. Sie betrachtet dabei insbesondere den Transfer und die Expositionspfade von natürlichen und künstlichen Radionukliden in und zwischen den Umweltkompartimenten, Pflanzen und Tieren bis hin zum Menschen. Die Radioökologie versucht somit Aussagen bzgl. der Wirkung von Radioaktivität, nicht nur speziell auf den Menschen gerichtet, sondern insgesamt auf belebte und unbelebte Materie und sogar (Teil)-Ökosysteme unter dem Aspekt des Strahlenschutzes zu treffen [Sol10].

Die vorliegende Arbeit befasst sich mit der gammaspektrometrischen Analyse von Sedimenten aus der Zwickauer und Vereinigten Mulde in Sachsen im Hinblick auf Radionuklide aus vornehmlich den natürlichen Zerfallsreihen, die im Zuge der Uranerzförderung und -aufbereitung freigesetzt wurden. Zusätzlich wird auf ^{137}Cs untersucht. Ziel ist es, die Aktivitätsverhältnisse in den Sedimenten der Muldeflüsse zu bestimmen und zudem mögliche Aktivitätsänderungen im Zeitverlauf durch den Vergleich der Ergebnisse mit vorangegangenen Arbeiten hin zu untersuchen. Insbesondere soll eine mögliche Veränderung der Radionuklidgehalte des Sediments im Hinblick auf die Ergebnisse des vorangegangenen Projektes von 2009 geprüft werden.

1.1. Einordnung der Arbeit

Das Erzgebirge ist, wie dem Namen bereits zu entnehmen ist, eine bedeutende Bergbauregion mit Anfängen im Mittelalter bis zum Ende des 20. Jahrhunderts. Aus radioökologischer Sicht ist dabei insbesondere der Uranerzbergbau von Interesse, der aufgrund der großen geostrategischen Bedeutung des Urans zu Zeiten des Kalten Krieges besonders intensiv vorangetrieben wurde. Mit der Wiedervereinigung und dem Beitritt der Deutschen Demokratischen Republik zur Bundesrepublik Deutschland gingen die beim Bergbau angefallenen Hinterlassenschaften in die Verantwortung der Bundesrepublik Deutschland über. Es folgte das bisher größte Sanierungsprogramm durch die staatliche Gesellschaft Wismut, welches von Forschungseinrichtungen begleitet wurde.

Die Uranerzförderung nach dem Zweiten Weltkrieg bis in das Jahr 1990 trug maßgeblich zur Freisetzung und anschließenden Konzentration von Radionukliden in Böden Sachsens und Thüringens bei.

Der Mulde widmete sich dabei unter anderem das Projekt „Die Schwermetallsituation im Muldesystem“ [Beu+99], in dessen Rahmen auch radiometrische Untersuchungen seitens des damaligen ZSR (Zentrum für Strahlenschutz und Radioökologie) und heutigen IRS (Institut für Radioökologie und Strahlenschutz) durchgeführt wurden.

Bei Starkniederschlägen im Jahr 2002 traten die die Uranförderstätten entwässernden Flüsse

Zwickauer und Freiburger Mulde über die Ufer. Die durch die Starkniederschläge resultierenden Hochwasser bildeten Anlass für eine erneute Untersuchung des Gebietes. Zu nennen ist das Ad-hoc-Projekt „Schadstoffuntersuchungen nach dem Hochwasser vom August 2002“, Arbeitspaket 3.9 „Verlagerung natürlicher Radionuklide“ [Gel04], aus dem Ergebnisse von Proben aus Mai und Juni 2003 zu Vergleichszwecken herangezogen werden. Im Jahr 2008 wurde ein neues Verbundprojekt „Strahlung und Umwelt: Radionuklide in der Umwelt, ihr Transport in Nahrungsketten zum und im Menschen“ gestartet, welches die Ist-Situation nach dem Hochwasser 2002, jetzt mit erstmaliger Betrachtung von Acker- und Auenböden und den daraus resultierenden radiologischen Folgen für die Nahrungskette, untersuchen sollte. Das darin enthaltene Arbeitspaket 1.3 „Transport und Verfügbarkeit von Uran und langlebigen Zerfallsprodukten in Auenböden der Mulde“ [Lül09] wurde im ehemaligen Zentrum für Strahlenschutz von Torben Lüllau im Jahr 2009 bearbeitet. Dieses Projekt wird im weiteren Verlauf auch als „MuldeI“-Projekt bezeichnet.

Ein erneutes Flutereignis 2013 verheerenden Ausmaßes war Anlass für ein neues Projekt, das „MuldeII-Projekt“, in dessen Rahmen diese Arbeit einzuordnen ist. Es soll die Verlagerung von Radionukliden infolge des Flutereignisses untersuchen. Die vorliegende Arbeit ist die dritte und die das Mulde II-Projekt abschließende Arbeit. Sie schließt damit an die Arbeiten „Einfluss des Hochwassers 2013 auf die Urankontamination entlang der Mulde“ von Wiebke Matteikat [Mat14] und die von Daniel Heine „Hochwasserfolgen im Muldegebiet - Radiometrischer Nachweis von Uran und Folgeprodukten“ [Hei14] an. Das Projekt wurde in hohem Maße an das Mulde I-Projekt angelehnt, um eine bestmögliche Referenz zu erreichen. Die vorliegende Arbeit ergänzt nun Sedimente beider Flüsse.

1.2. Das Muldesystem

Die Mulde ist ein System aus drei Teilflüssen. Sie setzt sich zusammen aus der Vereinigten Mulde (VM) und ihren Quellflüssen der Zwickauer Mulde (ZM) und der Freiburger Mulde (FM). Abb. 1.1 zeigt den geographischen Verlauf der Mulde in Sachsen.

Die Zwickauer Mulde entwässert die ehemaligen Uranerzabbaugebiete Sachsens, sodass sie für dieses Projekt eine große Bedeutung hat. Sie entspringt aus zwei Quellbächen, der Roten und Weißen Mulde, die sich in der Talsperre Muldenberg vereinen und legt mit einem Gefälle von 4‰ 166 km in nördliche Richtung zurück. Durch den Oberrothenbach im Stadtteil Zwickau-Crossen werden der Zwickauer Mulde Ableitungen der industriellen Absetzanlage Helmsdorf zugeleitet. Der Oberrothenbach Bach stellt somit einen der wesentlichen Emittenten von insbesondere Uran dar [Bis12].

Der rechte Quellfluss der Vereinigten Mulde ist die Freiburger Mulde. Sie entspringt auf dem Hauptkamm des Osterzgebirges in Tschechien und fließt nach 124 km und starkem Gefälle in nordwestlicher Richtung mit der Zwickauer Mulde zusammen. Zwar entwässert die Freiburger Mulde die bedeutenden Bergbau- und Fördergebiete des Erzgebirges, jedoch wurden entlang ihres Verlaufes keine bzw. sehr geringe Mengen an Uranerzen abgebaut, da keine nennenswerten Vorkommen vorhanden sind. Entsprechend ist sie in der vorliegenden Arbeit von keiner radiologischen Relevanz.

Die Vereinigte Mulde entsteht durch den Zusammenfluss von Zwickauer und Freiburger Mulde in der Nähe der kleinen Ortschaft Sermuth im westlichen Erzgebirge. Das Einzugsgebiet der Mulde, welches sich auf etwa 7.400 km² beläuft, entwässert zu großen Teilen das Erzgebirge, ausgehend vom westlichen und mittleren Erzgebirge über das erzgebirgische Becken und das Lösshügelland bis zum nördlich angrenzenden nordsächsischen Hügelland und der Düben-

Dahlener Heide. Nach 124 km mündet die Vereinigte Mulde bei Dessau in die Elbe [RB12; Bil+].

Das starke Gefälle der Mulde macht sie zu einem der schnellstfließenden Flüsse Europas, wodurch starke Schwankungen des Wasserstands und des Abflusses bei Regenfällen im gebirgigen Einzugsgebiet bedingt sind. Die Mulde gilt als bedeutendster Schwermetalleinträger in die Elbe und damit in die Nordsee [Beu+99].

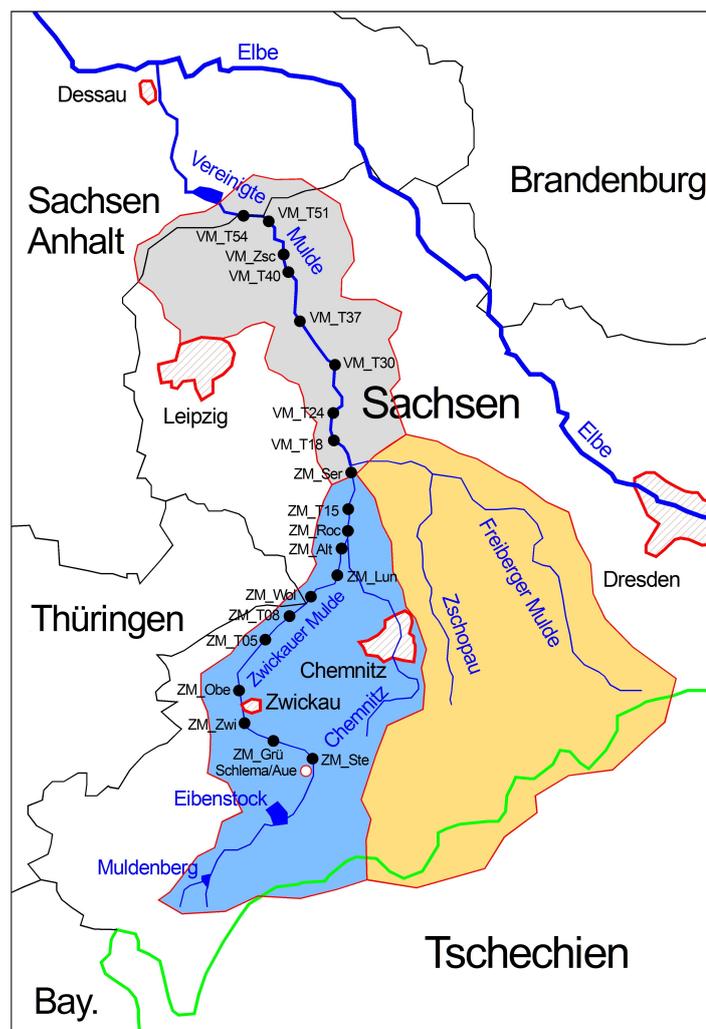


Abbildung 1.1.: Sächsisches Einzugsgebiet der Mulde

1.3. Das Hochwasser 2013 in Sachsen

In den letzten Tagen des Mai und nahezu den gesamten Juni 2013 traten in den deutschen Flussgebieten, insbesondere im Donau- und Elbegebiet und im Einzugsgebiet der Mulde, außergewöhnlich starke Hochwasser auf, die über weite Strecken neue Wasserstandsrekorde beobachten ließen. Die Folge waren großflächige Bevölkerungsevakuation, enorme Schäden an der (Verkehrs)-Infrastruktur, aber auch weiträumige Ausuferungen der Flüsse sowie Abtragung und Aufschwemmung von Sediment in und aus den Flussverläufen.

1.4. Die Wismut und der Uranerzbergbau nach 1945

Das Erzgebirge wies reichhaltige Uranerzvorkommen relativ hoher Reinheit auf. Mit dem Niedergang des Silberbergbaus rückten andere Erze in den Vordergrund und Uran gewann immer mehr an Bedeutung. Uran diente lange Zeit zur Herstellung von Keramikglasuren und zum Färben von Glas, insbesondere in den böhmischen Glashütten. Mit der Entdeckung der Kernspaltung durch Otto Hahn und Fritz Straßmann und mit dem Beginn des Kalten Krieges erhielt Uran jedoch eine hohe geostrategische Bedeutung und führte zum intensiven Abbau der Uranerzvorkommen.

Im Zeitraum von 1946 bis 1990 wurden so insgesamt 231.000 t Uran gewonnen. Damit war die Wismut viertgrößter Uranproduzent weltweit. Als die bedeutendsten Uranlagerstätten können dabei die Ronneburger Lagerstätte in Thüringen und die Lagerstätte Niederschlema-Alberoda in Sachsen genannt werden.

Nach Beendigung der Fördertätigkeiten wurde mit der Sanierung begonnen. Zum gegenwärtigen Zeitpunkt sind die wesentlichen Aufgaben unter und über Tage größtenteils abgewickelt, sodass das Sanierungsprojekt in den nächsten Jahren abgeschlossen sein wird. Ausgenommen sind dabei ausdrücklich die durch den Uranerzbergbau anfallenden Langzeitfolgen. Zu nennen sei beispielsweise die Wasseraufbereitung der Grubenabwässer. [Wis11; Wis16].

2. Radionuklidgruppen, natürliche Zerfallsreihen und Gleichgewichte

2.1. Radionuklide

Als Nuklid oder Atomart werden Atome bezeichnet, deren Kerne eine gleiche Zusammensetzung aus Protonen und Neutronen aufweisen. Es existieren etwa 270 stabile Nuklide [Sto03] und insgesamt 3992 experimentell bestätigte Nuklide [Mag+15]. Als Radionuklide werden Nuklide bezeichnet, die Kernumwandlungen unter Aussendung von ionisierender Strahlung vollziehen oder von angeregten Zuständen in ihren Grundzustand übergehen. In der Natur sind gegenwärtig etwa 80 Radionuklide in einer zum Nachweis ausreichenden Konzentration vertreten [Sti10]. Diese 80 Radionuklide können in vier Untergruppen gegliedert werden, die auf ihren Ursprung Bezug nehmen. Bei den Untergruppen handelt es sich um primordiale, kosmogene, anthropogene und radiogene Radionuklide.

2.1.1. Primordiale Radionuklide

Primordiale Radionuklide sind radioaktive Isotope, die aus der stellaren Nukleosynthese hervorgingen und bei der Entstehung der Erde vor ca. 4,5 Milliarden Jahren bereits existent waren. Alle 30 existierenden primordialen Nuklide weisen sehr lange Halbwertszeiten von einigen hundert Millionen bis Milliarden Jahren auf, sodass sie auch heute noch in nachweisbaren Mengen auf der Erde zur Verfügung stehen [Hei14]. Die Großzahl der primordialen Radionuklide wird durch die Zugehörigkeit zu einer der drei bzw. vier natürlichen Zerfallsreihen unterschieden. Zu bemerken ist jedoch, dass nicht alle Glieder der Zerfallskette vergleichbar große Halbwertszeiten aufweisen. Siehe dazu Abschnitt 2.1.2. Ihre Massenzahlen liegen zwischen $A = 40$ und $A = 240$ [Kri12].

2.1.2. Radiogene Radionuklide und Zerfallsreihen

Als radiogene Radionuklide werden Zerfallsprodukte bezeichnet, die ebenfalls wieder radioaktiv sind. Ausnahmen bilden die stabilen Endglieder der Reihe, die ebenfalls als radiogen bezeichnet werden. Diese 46 natürlichen Radionuklide gehören den drei in Abb. 2.1 dargestellten Zerfallsreihen an.

Am Anfang dieser Reihen stehen sehr langlebige, primordiale Mutternuklide, ${}^{232}_{90}\text{Th}$, ${}^{235}_{92}\text{U}$ und ${}^{238}_{92}\text{U}$. Da die Nukleonenzahl mit jedem α -Zerfall um vier Einheiten abnimmt, der β^- -Zerfall die Masse des Kerns jedoch stets unberührt lässt, sind die Differenzen zwischen den Nukleonenzahlen der Glieder einer Zerfallsreihe Vielfache von vier. Alle drei natürlichen Zerfallsreihen enden bei einem stabilen Nuklid des Bleis mit der magischen Protonenzahl $Z = 82$ [Sto03].

2. Radionuklidgruppen, natürliche Zerfallsreihen und Gleichgewichte

^{238}U Zerfallskette ($A = 4n + 2$)										^{234}Th	100%	^{238}U								
										$\leftarrow \alpha$	$4,5 \cdot 10^4 \text{ a}$									
										^{234}Pa										
										$1,2 \text{ m+}$										
										^{214}Pb	99,98%	^{218}Po	100%	^{222}Rn	100%	^{226}Ra	100%	^{230}Th	100%	^{234}U
										$26,8 \text{ m}$	$\leftarrow \alpha$	$3,05 \text{ m}$	$\leftarrow \alpha$	$3,825 \text{ d}$	$\leftarrow \alpha$	1600 a	$\leftarrow \alpha$	$7,5 \cdot 10^4 \text{ a}$	$\leftarrow \alpha$	$2,5 \cdot 10^5 \text{ a}$
										^{210}Tl	0,4%	^{214}Bi	100%	^{218}At						
										$1,30 \text{ m}$	$\leftarrow \alpha$	$19,9 \text{ m}$	$\leftarrow \alpha$	2 s						
										^{206}Hg	$75 \cdot 10^{-6} \%$	^{210}Pb	100%	^{214}Po						
										$8,15 \text{ m}$	$\leftarrow \alpha$	$22,3 \text{ a}$	$\leftarrow \alpha$	$0,16 \text{ ms}$						
										^{206}Tl	$5 \cdot 10^{-5} \%$	^{210}Bi								
										$4,2 \text{ m}$	$\leftarrow \alpha$	$5,0 \text{ d}$								
										^{206}Pb	100%	^{210}Po								
										stable	$\leftarrow \alpha$	$138,4 \text{ d}$								
Z = 80	81	82	83	84	85	86	87	88	89	90	91	92								

^{232}Th Zerfallskette ($A = 4n$)										^{228}Ra	100%	^{232}Th							
										$5,75 \text{ a}$	$\leftarrow \alpha$	$14 \cdot 10^9 \text{ a}$							
										^{228}Ac									
										$6,13 \text{ h}$									
										^{212}Pb	100%	^{216}Po	100%	^{220}Rn	100%	^{224}Ra	100%	^{228}Th	
										$10,6 \text{ h}$	$\leftarrow \alpha$	$0,15 \text{ s}$	$\leftarrow \alpha$	$55,6 \text{ s}$	$\leftarrow \alpha$	$3,66 \text{ d}$	$\leftarrow \alpha$	$1,91 \text{ a}$	
										^{208}Tl	36,2%	^{212}Bi							
										$3,1 \text{ m}$	$\leftarrow \alpha$	$60,6 \text{ m}$							
										^{208}Pb	100%	^{212}Po							
										stable	$\leftarrow \alpha$	$0,3 \cdot 10^{-6} \text{ s}$							
Z = 80	81	82	83	84	85	86	87	88	89	90	91	92							

^{235}U Zerfallskette ($A = 4n + 3$)										^{231}Th	100%	^{235}U							
										$25,5 \text{ h}$	$\leftarrow \alpha$	$7 \cdot 10^8 \text{ a}$							
										^{215}Bi	97%	^{219}At	$4 \cdot 10^{-3} \%$	^{223}Fr	1,2%	^{227}Ac	100%	^{231}Pa	
										$7,4 \text{ m}$	$\leftarrow \alpha$	$0,9 \text{ m}$	$\leftarrow \alpha$	$21,8 \text{ m}$	$\leftarrow \alpha$	$21,8 \text{ a}$	$\leftarrow \alpha$	$3,3 \cdot 10^4 \text{ a}$	
										^{211}Pb	$>99,9 \%$	^{215}Po	100%	^{219}Rn	100%	^{223}Ra	100%	^{227}Th	
										$36,1 \text{ m}$	$\leftarrow \alpha$	$1,8 \text{ ms}$	$\leftarrow \alpha$	$3,96 \text{ s}$	$\leftarrow \alpha$	$11,4 \text{ d}$	$\leftarrow \alpha$	$18,7 \text{ d}$	
										^{207}Tl	99,68%	^{211}Bi	100%	^{215}At					
										$4,8 \text{ m}$	$\leftarrow \alpha$	$2,13 \text{ m}$	$\leftarrow \alpha$	$0,1 \text{ ms}$					
										^{207}Pb	100%	^{211}Po							
										stable	$\leftarrow \alpha$	$0,52 \text{ s}$							
Z = 80	81	82	83	84	85	86	87	88	89	90	91	92							

Abbildung 2.1.: Die drei natürlichen Zerfallsreihen [Fri14]

Uran-Radium-Reihe

Anfangsglied der Uran-Radium-Reihe ist das Nuklid $^{238}_{92}\text{U}$. Natururan besteht zu etwa 99,3% aus diesem und es besitzt eine Halbwertszeit von $T_{1/2} = 4,468 \cdot 10^9 \text{ a}$. Die Folgeprodukte befinden sich mit dem Uran in einem ungestörten System im radioaktiven Gleichgewicht, weshalb die Aktivität konstant und unter den Zerfallsprodukten gleich ist. Dies liegt jedoch nur in abgeschlossenen und ungestörten Systemen vor. Siehe dazu Abschnitt 2.2. Die Reihe beinhaltet 14 Umwandlungsprozesse, teils mit mehreren Verzweigungen. Sie endet mit dem stabilen Bleiisotop $^{206}_{82}\text{Pb}$. Die Nukleonenzahl der auch als Uran-Radium-Reihe bekannten Zerfallskette, lässt sich durch die Beziehung

$$A = 4n + 2 \text{ mit } n = 59, \dots, 51 \tag{2.1}$$

bestimmen.

Uran-Actinium-Reihe

Der Name der Uran-Actinium Reihe geht fälschlicherweise auf die zwei Nuklide $^{231}_{91}\text{Pa}$ und $^{227}_{89}\text{Ac}$ zurück. Wie sich jedoch später herausstellte, ist das eigentliche Mutternuklid $^{235}_{92}\text{U}$, welches zu etwa 0,7% in Natururan vorkommt und eine Halbwertszeit von $T_{1/2} = 7,038 \cdot 10^8$ a besitzt. Aus diesen Gründen wird die Reihe auch als Uran-Actiniumreihe bezeichnet, deren Nukleonenzahlen sich durch

$$A = 4n + 3 \text{ mit } n = 58, \dots, 51 \quad (2.2)$$

darstellen, an deren Ende das stabile Bleisotop $^{207}_{82}\text{Pb}$ steht.

Thoriumreihe

Die Thorium-Reihe besitzt als Ausgangsnuklid das Isotop $^{232}_{90}\text{Th}$ mit einer Halbwertszeit $T_{1/2} = 1,405 \cdot 10^{10}$ a.

Das Endnuklid der Reihe ist $^{208}_{82}\text{Pb}$ und die Nukleonenzahlen lassen sich durch

$$A = 4n \text{ mit } n = 58, \dots, 52 \quad (2.3)$$

bestimmen.

Neptuniumreihe

Es fällt auf, dass bei Betrachtung der Formeln zur Berechnung der Nukleonenzahlen die Beziehung

$$A = 4n + 1 \quad (2.4)$$

fehlt. Die Existenz dieser so genannten Neptunium-Reihe wurde bereits 1947 bestätigt. Die Reihe ist jedoch aufgrund des am Anfang stehenden Transurannuklids $^{237}_{93}\text{Np}$ mit einer Halbwertszeit von $T_{1/2} = 2,14 \cdot 10^6$ a gegenwärtig nicht mehr existent, da die Halbwertszeit im Vergleich zum Erdalter gering ist. Im Unterschied zu den drei bisher betrachteten Umwandlungsreihen, die jeweils bei einem Bleisotop enden, endet die Neptuniumreihe nach elf Umwandlungsschritten bei $^{209}_{83}\text{Bi}$, welches nicht stabil ist, jedoch eine Halbwertszeit von $1,9 \cdot 10^{19}$ a besitzt, weshalb es als nahezu stabil angesehen werden kann [Sto03].

2.1.3. Anthropogene/künstliche Radionuklide

In den letzten gut 70 Jahren sind zum einen durch Kernwaffentests und zum anderen durch Unfälle und Freisetzungen bei der friedlichen Nutzung der Kernenergie so genannte anthropogene Radionuklide in die Umwelt gelangt, die nur aufgrund des Menschen in messbarer Konzentration vorliegen. Ein Beispiel für ein solches Isotop ist ^{137}Cs , welches bei Kernwaffentests und auch bei Reaktorunglücken wie 1986 in Tschernobyl in großen Mengen freigesetzt wurde.

Des Weiteren wird eine Differenzierung in kosmogene Radionuklide unternommen. Da kosmogene Radionuklide für diese Arbeit jedoch nicht von Relevanz sind, sind weitere Erläuterungen dazu im Anhang unter A zu finden.

2.2. Radioaktive Gleich- und Ungleichgewichte

2.2.1. Aktivität und radioaktiver Zerfall

Die Aktivität A eines Radionuklids in einer Probe ist definiert als der statistische Erwartungswert des Quotienten aus der Anzahl der radioaktiven Zerfälle und dem Zeitintervall, in dem eben diese erfolgen [Kri12].

$$A = -\frac{dN(t)}{dt} = \lambda \cdot N(t) \quad (2.5)$$

Dabei bezeichne N die Anzahl der Kernzerfälle und λ die Zerfallskonstante, deren Kehrwert τ als mittlere Lebensdauer bezeichnet wird. Die SI-Einheit der Aktivität ist die reziproke Sekunde 1/s. Seit 1975 trägt diese Einheit den Namen Becquerel, zu Ehren des Entdeckers der natürlichen Radioaktivität, Henri Becquerel [Sto03]. Es gilt entsprechend

$$1 \text{ Becquerel} = 1 \text{ Bq} = \text{s}^{-1}. \quad (2.6)$$

In der Praxis wird seltener die Aktivität direkt, sondern ein beliebiger ihr im proportionalen Zusammenhang stehender Messeffekt bestimmt. Oftmals werden mehrere Teilchen oder Quanten bei einem Kernzerfall emittiert, weshalb die Aktivität nicht zwangsläufig mit der von einer radioaktiven Strahlungsquelle ausgesandten Teilchenzahl im betrachteten Zeitintervall identisch sein muss.

Spontane Kernumwandlungen, sowie Übergänge angeregter Zustände von Kernen in andere Niveaus, unterliegen statistischen Gesetzen und damit auch Schwankungen. Aus diesem Grund ist der exakte Zeitpunkt einer Kernumwandlung nicht bestimmbar. Die Wahrscheinlichkeit für einen Zerfall oder eine Kernumwandlung lässt sich hingegen angeben. Diese Wahrscheinlichkeit ist proportional zu der bereits erwähnten Zerfallskonstante λ . Für jedes Nuklid ist die Zerfallswahrscheinlichkeit wohldefiniert.

Zur Herleitung des Zerfallsgesetzes wird ein Kollektiv aus N gleichen instabilen Kernen betrachtet, die auf gleiche Art zerfallen. Die Abnahme der Anzahl instabiler Kerne dN pro Zeiteinheit dt ist dabei proportional zur Anzahl der instabilen Kerne im Kollektiv und zur Zerfallskonstanten λ . Es ergibt sich somit die differentielle Form des Zerfallsgesetzes

$$\frac{dN}{dt} = -\lambda \cdot N. \quad (2.7)$$

Wird Gleichung (2.7) integriert, erhält man das Zerfallsgesetz in exponentieller Form

$$N(t) = N_0 \cdot e^{-\lambda \cdot t}, \quad (2.8)$$

wobei $N(t)$ die Anzahl der Atome zur Zeit t und N_0 die anfängliche Anzahl zum Zeitpunkt $t = 0$ bedeutet [Kri12]. Folglich erfahren in einem Zeitraum von 0 bis t im Mittel

$$\Delta N = N_0(1 - e^{-\lambda \cdot t}) \quad (2.9)$$

von ursprünglich N_0 Kernen eine Umwandlung. Die Umwandlung des Anteils an Kernen ist pro Zeitintervall also konstant. Die Zeit $\tau = 1/\lambda$, in der N_0 auf N_0/e gesunken ist, wird als mittlere Lebensdauer τ bezeichnet. Sie ist ebenfalls charakteristisch für ein Nuklid, wie auch die Zerfallskonstante und ebenso die so genannte Halbwertszeit.

Oft wird anstelle der mittleren Lebensdauer die Halbwertszeit $T_{1/2}$ verwendet. Dies ist die

Zeit, in der die Anzahl der betrachteten Kerne jeweils auf die Hälfte abfällt. Zwischen τ , $T_{1/2}$ und λ bestehen die Beziehungen

$$T_{1/2} = \tau \ln 2 = \frac{\ln 2}{\lambda} = \frac{0,6931}{\lambda}. \quad (2.10)$$

Wird nun nicht die Abnahme der Mutterkerne des Kollektivs betrachtet, sondern die Anzahl der Zerfälle aus dem Kollektiv, so erhält man die bereits durch Gleichung 2.5 definierte Aktivität [Sto03].

Viele Radionuklide zerfallen zu Tochterprodukten, die ebenfalls Umwandlungsprozesse vollziehen. Ist dies der Fall, so kann das vorgestellte Zeitgesetz keine hinreichende Beschreibung des Zerfalls liefern. Eine ausführliche Herleitung sowie mögliche, sich aus den Zerfallszeiten von Mutter- und Tochternuklid ergebende Gleichgewichtskonstellationen, sind im Anhang unter A.1.2 nachzulesen.

2.2.2. Natürliche geochemische Verhältnisse und Störungen der Gleichgewichte

Im Allgemeinen kann ein natürlicher Gleichgewichtszustand zwischen den Nukliden der bereits in 2.1.2 erwähnten natürlichen Zerfallsreihen angenommen werden. Liegt dieses Gleichgewicht vor, so bestehen ebenfalls feste Aktivitätsverhältnisse zwischen der Uran-Radium- und Thoriumreihe. Es stellt sich im Folgenden die Frage, wie eine Unterscheidung zwischen einem natürlichen Zustand und anthropogenen Einflüssen (Uranerzbergbau) getroffen werden kann. Geologische Formationen können als nahezu abgeschlossene Systeme betrachtet werden. In solchen Formationen ist die Einstellung eines säkularen Gleichgewichts von Nukliden der natürlichen Zerfallsreihen des sich im Gestein befindlichen Uranerzes möglich. Sind die Formationen jedoch nicht mehr geschlossen, weil bspw. das Gestein an der Oberfläche der Witterung ausgesetzt ist, kann es zu Störungen bzw. Verschiebungen der natürlichen Gleichgewichtslage kommen. Ein weiterer Grund für ein herrschendes Ungleichgewicht ist zudem der anthropogene Einfluss in dem Untersuchungsgebiet - hier speziell der Uranerzbergbau, der durch die Aufarbeitung des Erzes, das anfallende Tailingmaterial und durch die Aufschüttung von Halden Einfluss auf das Gleichgewicht nimmt. Auf diese Weise gelangen durch Auswaschen aufgrund von Regen oder Hochwasser von kontaminiertem Material Radionuklide in die Umwelt oder die Mobilität einzelner Nuklide wird erhöht. Störungen verschiedener Gleichgewichte erlauben somit Rückschlüsse auf ihre Ursachen. Tabelle 2.1 zeigt die zu den jeweiligen Nukliden gehörenden Aktivitätsverhältnisse und Ursachen für Störungen auf.

Tabelle 2.1.: Ursachen für Störungen von geochemischen Verhältnissen und die zugehörigen Indikatoren in Form von Aktivitätsverhältnissen zwischen einzelnen Radionukliden nach [Mic+05]

Ursache des Verhältnisses	Verhältnis/ Indikator
Natürliches geochemisches Verhältnis	$\frac{A(^{210}\text{Pb})}{A(^{226}\text{Ra})} = \frac{A(^{226}\text{Ra})}{A(^{238}\text{U})} = 1; \frac{A(^{228}\text{Ra})}{A(^{238}\text{U})} > 0,5$
Eintrag von Uranerz enthaltendem Material und partikulärer Transport	$\frac{A(^{210}\text{Pb})}{A(^{226}\text{Ra})} = \frac{A(^{226}\text{Ra})}{A(^{238}\text{U})} = 1; \frac{A(^{228}\text{Ra})}{A(^{238}\text{U})} < 0,5$
Anreicherung/Ausfällung von gelöst transportiertem Uran	$\frac{A(^{210}\text{Pb})}{A(^{226}\text{Ra})} = 1; \frac{A(^{226}\text{Ra})}{A(^{238}\text{U})} < 1$
Auswaschung/ Mobilisierung von Uran	$\frac{A(^{210}\text{Pb})}{A(^{226}\text{Ra})} = 1; \frac{A(^{226}\text{Ra})}{A(^{238}\text{U})} > 1$
Eintrag von Tailingmaterial (part. Transport) Anreicherung/Ausfällung von gelöst transportiertem Radium	$\frac{A(^{210}\text{Pb})}{A(^{226}\text{Ra})} > 1; \frac{A(^{226}\text{Ra})}{A(^{238}\text{U})} > 1$

3. Grundlagen der Gamma-Spektrometrie

In diesem Kapitel wird die Funktionsweise der Gammaspektrometrie vorgestellt. Dafür werden die für die Spektrometrie elementaren Wechselwirkungen vorgestellt und erläutert, die nach der Auflistung der in dieser Arbeit betrachteten Nuklide folgen. Zu nennen sind der Photoeffekt, der Comptoneffekt und die Paarbildung.

Es folgen Erläuterungen zur Detektortheorie, mögliche Aufbauten und notwendigen Kalibrierungen.

Die Ausführungen zur Auswertung der durch die Messungen erhaltenen Datengrundlage sind an die Arbeiten von [Taw12; Hei14; Sti10; Lül09] und [Bir09] angelehnt.

3.1. Betrachtete Nuklide

Tabelle 3.1.: Betrachtete Radionuklide mit Energien der Gammalinien und Emissionswahrscheinlichkeiten

Mutternuklid	γ emitt. Tochter nuklid	Energie [keV]	E.-wahrscheinlichkeit
^{238}U	^{234}Th	63,25	0,041
	^{234m}Pa	1001,03	0,00839
^{230}Th		67,67	0,0038
^{228}Ra	^{214}Pb	295,22	0,1851
		609,31	0,446
	^{214}Bi	1120,29	0,147
		1764,49	0,151
^{210}Pb		46,54	0,0425
^{235}U		143,76	0,1096
		163,33	0,0508
		205,31	0,0501
^{227}Ac	^{227}Th	235,97	0,123
		401,81	0,064
	^{211}Pb	404,85	0,0378
^{228}Ra	^{228}Ac	209,25	0,0389
		409,46	0,0194
		911,2	0,258
		968,97	0,158
^{228}Th	^{212}Pb	238,63	0,433
	^{208}Tl	860,56	0,0447
^{137}Cs		661,66	0,85
^{40}K		1460,83	0,1067

3.2. Wechselwirkungsmechanismen von Gammaquanten mit Materie in Halbleiterdetektoren

Die Wechselwirkung von γ -Strahlung bzw. im Allgemeinen Photonenstrahlung mit Materie findet über fünf elementare Mechanismen statt.

Die Wechselwirkungen können dabei zwischen Gamma-Quant und Atomhülle oder Atomkern bzw. dem Coulombfeld des Atomkerns auftreten.

Zu den Hüllenwechselwirkungen zählen die klassische Streuung, die auch als kohärent bezeichnet wird, bei der kein Energieübertrag stattfindet, sowie der photoelektrische Effekt und der Comptoneffekt, bei denen es sich um inkohärente Streuung handelt.

Die Wechselwirkung mit dem Coulombfeld des Kerns wird als Paarbildung bezeichnet und als Kernphotoeffekt die Wechselwirkung von Photonen mit dem Kern oder einzelnen Nukleonen des Atoms.

Von den genannten fünf grundlegenden Wechselwirkungsmechanismen sind jedoch nur drei Prozesse von maßgeblicher Bedeutung für die Gammaspektrometrie. Zu nennen ist der Photoeffekt, bei dem ein Elektron durch ein Photon aus einer inneren Elektronenschale gelöst wird, das Photon absorbiert wird und das Elektron dessen Energie aufnimmt. Der Comptoneffekt, bei dem das Photon bei der Wechselwirkung einen Teil seiner Energie verliert, seine Richtung ändert und zudem ein Hüllenelektron herauslöst und zuletzt die Paarbildung, bei der ein Photon im elektrischen Feld des Kerns ein Elektron-Positron-Paar bildet und dabei vernichtet wird. Die Wahrscheinlichkeit des Auftretens des Kernphotoeffekts ist verschwindend klein und ist damit nicht von Relevanz. Da bei der klassischen Streuung kein Energieübertrag stattfindet, ist dieser Mechanismus gänzlich ungeeignet, um Einfluss auf die Gammaspektrometrie zu nehmen. Es kann jedoch zu Streuung aus dem Detektorvolumen heraus oder hinein kommen, sodass durch andere Mechanismen ein Energieübertrag des Gammaquants möglich ist. Da die Mechanismen auch zum Verständnis der Spektrometrie von Relevanz sind, werden der Photoeffekt, der Comptoneffekt und die Paarbildung im Anhang A.2 näher erläutert.

3.3. Aufbau und Funktion eines Germanium-Detektors

In diesem Abschnitt soll die Funktions- und Arbeitsweise eines Germaniumdetektors bzw. dessen Einzelkomponenten bei der Detektion von Gammaquanten und ionisierender Strahlung näher erläutert werden. Zum Nachweis ionisierender Strahlung wird die Gesamtzahl der Ladungsträgerpaare, die durch die einfallende Primärstrahlung im Zählvolumen erzeugt wird, verwendet. Als Detektorvolumen dient ein bei Normalbedingungen isolierender, hochreiner Einkristall, an dessen jeweils gegenüberliegenden Seiten Elektroden ausgebildet sind. An diese wird die Betriebsspannung des Detektors angelegt. Als Detektormaterial wird im Allgemeinen hochreines Silizium oder Germanium verwendet. Die Betriebsspannung wird über einen Arbeitswiderstand zugeführt, an dem auch das Ausgangssignal in Form von Spannungspulsen abgegriffen werden kann.

Dringt ionisierende Strahlung in das Arbeitsvolumen des Detektors ein, so entstehen frei bewegliche Elektronen-Defektelektronen-Paare, die durch das elektrische Feld (hervorgerufen durch die angelegte Detektorbetriebsspannung) getrennt und zu den Feldgrenzen geführt werden.

Es handelt sich somit um einen p-n-Übergang in Sperrrichtung, dessen Verarmungszone durch die angelegte Spannung variiert werden kann. Durch Influenz wird ein Impuls erzeugt, der an der Messelektronik als Spannungsimpuls abgegriffen werden kann. So kann mit weiteren elektronischen Systemen die Energie der Teilchen oder Quanten bestimmt und analysiert werden. Der Vorteil bei der Verwendung von Halbleiterdetektoren liegt bei der um den Faktor 10^3 größeren Dichte des Halbleitermaterials gegenüber gasgefüllten Zählern, was einen größeren Energieverlust bei den Abbremsprozessen von Gammaquanten und geladenen Teilchen zur Folge hat. Selbst hochenergetische Teilchen können so innerhalb weniger Zentimeter gestoppt werden.

Ein weiterer Vorteil gegenüber gasgefüllten Systemen ist die Energieauflösung eines Germaniumdetektors. Zur Erzeugung eines Ladungsträgerpaares sind bei Germanium lediglich 2,8 eV notwendig. Zudem ist zu bemerken, dass ein linearer Zusammenhang zwischen der Höhe des durch die Primärquanten oder -teilchen erzeugten Ausgangsimpulses am Arbeitswiderstand des Detektors und der tatsächlich auf den Detektor treffenden Kernstrahlung besteht.

Abb. 3.1 zeigt den Aufbau eines herkömmlichen mit Stickstoff gekühlten Halbleiterdetektors.

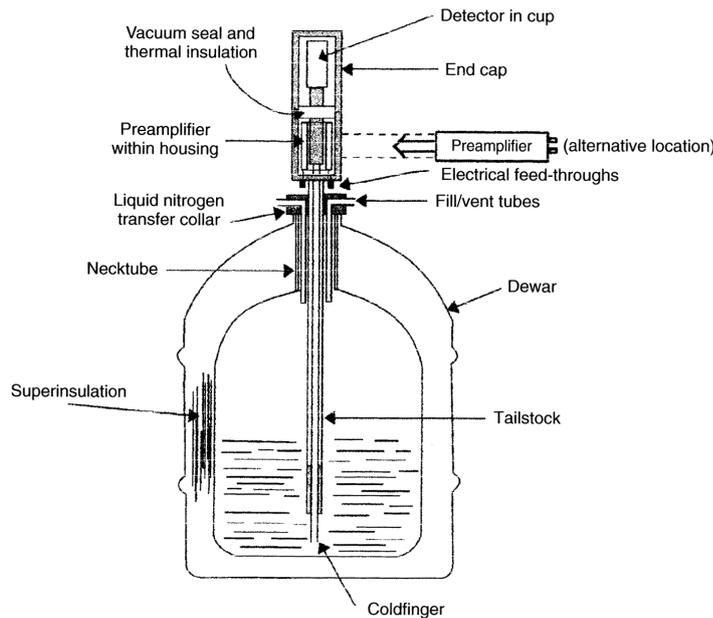


Abbildung 3.1.: Aufbau eines mit Stickstoff gekühlten Halbleiterdetektors [Gil08]

3.3.1. Bauformen

Ein Sperrschicht-Halbleiterdetektor nutzt die Verarmungszone des im Kristall befindlichen p-n-Übergangs, der den für die eintreffende Strahlung empfindlichen Bereich darstellt.

Die in den Detektoren verwendeten Kristalle lassen sich dabei wiederum unterscheiden. Je nachdem, ob die im Kristall verbleibenden Fremdatome (hervorgerufen durch Dotierung) Elektronenakzeptoren oder -donatoren sind, wird von n-Typ-Germanium (auch ν -Typ-Germanium) bzw. p-Typ-Germanium (auch π -Typ-Germanium) gesprochen.

Es handelt sich also um n- bzw. p-Halbleiter. Bei Anlegen der Betriebsspannung an den stark dotierten n^+ - bzw. p^+ -Elektroden bildet sich im Fall eines n-Typ-Germaniumkristalls ein p^+ -n-Übergang, im Fall von p-Germanium ein n^+ -p-Übergang aus. Die Breite des Übergangs bzw. der Verarmungszone kann mit dieser Spannung variiert werden.

Wird ein Silizium- oder Germanium-Halbleiterdetektor bei Raumtemperatur betrieben, so hat bspw. das Silizium einen spezifischen Widerstand von etwa $2,2 \cdot 10^5 \Omega\text{cm}$, der einer Elektron-Defektelektron-Konzentration von $n = p = 1,7 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-3}$ entspricht. Das dadurch entstehende Rauschen ist selbst bei kleinen Detektorausmaßen sehr groß, sodass eine adäquate Nutzung unmöglich ist. Aus diesem Grund wird der Detektorkristall mithilfe von Stickstoff auf 77 K gekühlt, wodurch sich der Rauschstrom reduziert.

Eine weitere Möglichkeit zur Dotierung wird beim so genannten diffundierten Sperrschichtzähler angewendet. Bei ihm liegt die Verarmungszone nicht, wie bei den bisher beschriebenen Zählertypen, unmittelbar an der Kristalloberfläche, sondern im Kristall. Erzeugt wird der p-n-Übergang dadurch, dass geeignete Störatome bei höherer Temperatur in den Kristall hineindiffundieren. Je nach Art des Ausgangskristalls werden Akzeptor- oder Donatoratome eindiffundiert [Bük71].

Zur Herstellung von noch größeren und empfindlicheren Detektorvolumina, wurde das Koaxialdriftverfahren entwickelt. Der Ausgangskristall hat eine trapezoide Form. In dem Kristall werden von allen Seitenflächen und der Unterseite Lithiumatome hineindiffundiert und -gedrftet. Die Oberseite bleibt dabei unberührt. Als Endprodukt entsteht nach Beendigung

des Driftverfahrens in der Mitte des Kristalls ein Kern aus p-leitendem Ausgangsmaterial, der umgeben von der kompensierten Zone ist.

Werden Ober- und Unterseite von dem Driftprozess ausgeschlossen, so spricht man von einem zweiseitig offenen koaxialgedrifteten Detektor. Wird außer der Mantelfläche auch noch von einer Stirnseite gedriftet, so spricht man von einem offenen koaxialgedrifteten Detektor.

Der messbare Energiebereich und die Nachweiswahrscheinlichkeiten von HPGe-Detektoren¹ hängen von der Größe und der Form des Kristalls, jedoch auch vom Material und der Stärke des Detektorfensters ab. Übliche Detektorfenster bestehen aus Beryllium, Aluminium, oder Kunststoff, wobei Beryllium und Kunststoff aufgrund ihrer niedrigen Kernladungszahl für niederenergetische Gammastrahlung durchlässiger sind, als bspw. Aluminium [Lül09].

In Abbildung 3.3 sind gängige Bauformen, deren schematische Darstellung der Nachweiswahrscheinlichkeit und zugehörige messbare Energiebereiche dargestellt.

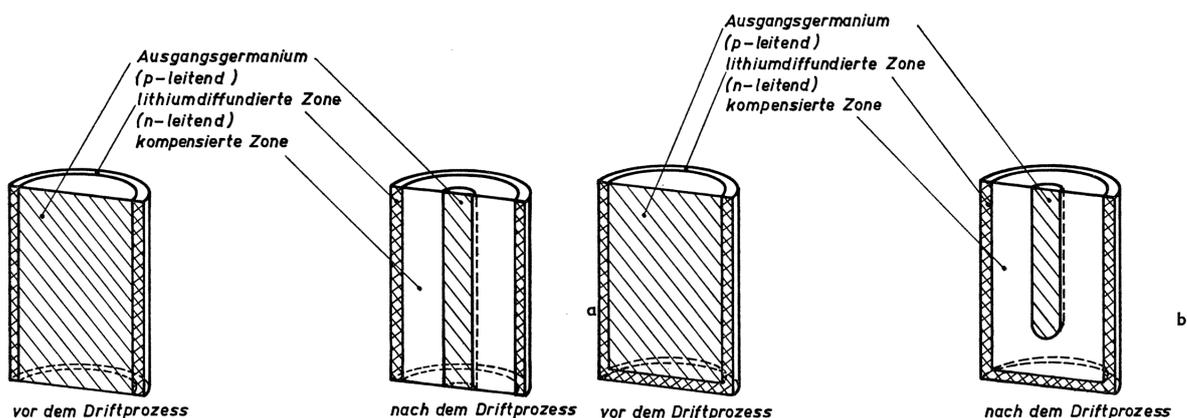


Abbildung 3.2.: Durch das Koaxialdriftverfahren hergestellte zylindrische Ge(Li)-Detektoren. a) zweiseitig offener Germaniumdetektor, b) einseitig offener Germaniumdetektor [Bük71]

¹ Auch HPGe-Detektoren genannt (engl.: High-Purity Germanium detector)

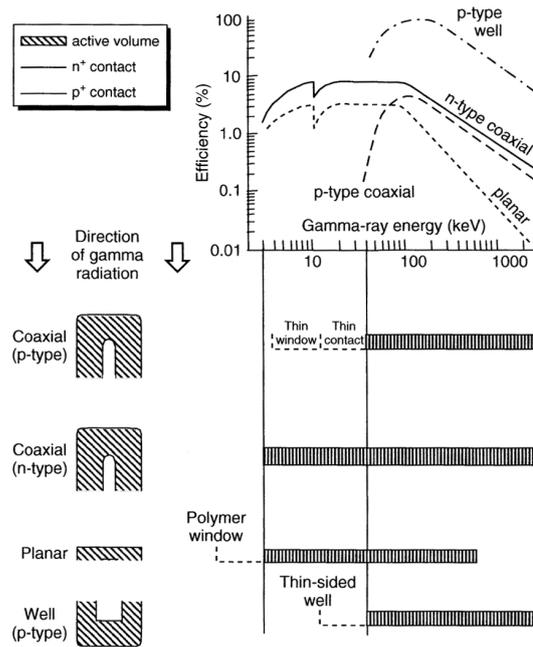


Abbildung 3.3.: Absorptionskoeffizienten für Gammaquanten in Germanium in Abhängigkeit von der Energie [Gil08]

Wegen ihrer vergleichsweise dünneren Totschicht von p^+ -Kontakten gegenüber eines durch Lithium-Diffusion erzeugten n^+ -Kontakts sind n-Typ-HPGe-Detektoren im Allgemeinen besser für den Nachweis von niederenergetischer Gammastrahlung geeignet [Lül09].

Abbildung 3.4 zeigt die zwei möglichen Konfigurationen von coaxialen HPGe-Detektoren. Bei einem p-Typ-Germaniumdetektor befindet sich der n^+ -Kontakt an der Außenseite, der p^+ -Kontakt an der Innenseite des Kristalls. Bei einem n-Typ Detektorkristall sind die Anordnungen entsprechend vertauscht.

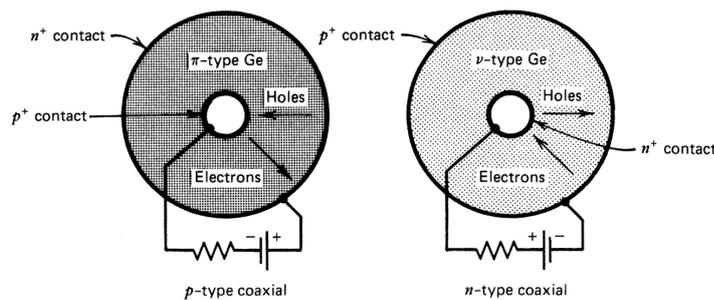


Abbildung 3.4.: Schematischer Aufbau von coaxialen HPGe-Detektoren [Kno10]

3.4. Das Gammaskpektrum

Wird ein Spektrum mithilfe eines Halbleiterdetektors aufgenommen, so erhält man ein Spektrum, das sogenannte Impulshöhenspektrum, in dem die Zählrate zu der Energie bzw. den der Energie zugeordneten Kanälen aufgetragen ist.

Um nachfolgend auf die Energie der Gammaquanten zu schließen, muss jedoch zuerst geklärt werden, auf welche Weise die im Spektrum auftretenden Impulshöhen entstehen und, ob die ausgegebenen Signale mit der Quantenenergie korrelieren.

Beispielhaft sei dies im Folgenden an ^{137}Cs in Abb. 3.5 und ^{28}Al in Abb. 3.6 verdeutlicht. ^{137}Cs zerfällt zu $^{137\text{m}}\text{Ba}$, wobei dieses Tochternuklid ein Gammaquant mit der Energie 661,66 keV emittiert, um den stabilen Grundzustand anzunehmen.

Angenommen, die dem Detektor nachfolgende Messelektronik würde die gesamte Energie des Photons messen, so bekäme man spezifische, dem Nuklid zuweisbare Impulshöhen, was gegenwärtig nicht der Fall ist. Das tatsächliche Spektrum zeigt deutliche Abweichungen, wonach diese einfache zugrundeliegende Theorie nicht greift.

Grund für diese Abweichungen sind die bereits in Kapitel 3.2 beschriebenen Wechselwirkungen mit dem Detektormaterial.

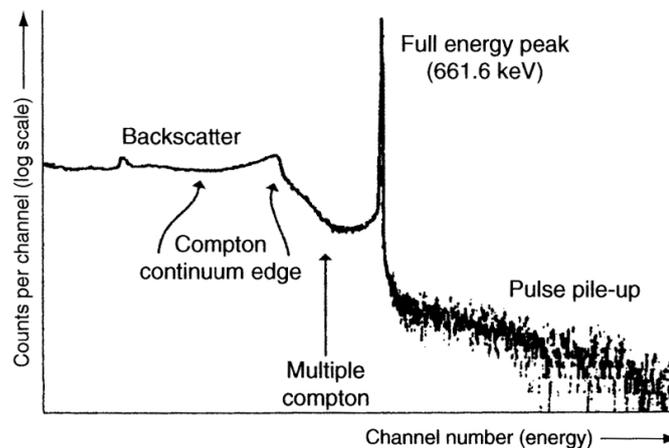


Abbildung 3.5.: Impulshöhenspektrum am Beispiel von ^{137}Cs [Gil08]

Unterhalb einer Photonenenergie von 1022 keV finden durch Photonen hervorgerufene Photo- und Comptonwechselwirkungen statt.

Wird die dem Photoeffekt nachfolgende Photostrahlung (freigeschlagene Elektronen oder auch Röntgenquanten) vollständig im Detektor absorbiert, entspricht das daraus ausgelöste Ausgangssignal der totalen Photonenenergie. Der resultierende Peak wird auch als Photopeak bezeichnet. Wird jedoch nicht die gesamte Energie abgegeben, verlässt die charakteristische Röntgenstrahlung den Detektor ohne weitere Wechselwirkungen, so kann nur der bis dahin abgegebene Energieanteil im Spektrum angezeigt werden. Der Photoeffekt ist jedoch wegen seiner $1/E^3$ - bis $1/E$ -Abhängigkeit unwahrscheinlich, was den Comptoneffekt zum wichtigsten Wechselwirkungsprozess macht.

Beim Comptoneffekt wird richtungsabhängig primäre Photonenenergie auf Comptonelektronen übertragen. Diese Comptonelektronen werden aufgrund ihrer geringen Reichweite meist vollständig im Detektor absorbiert und durch den daraus resultierenden Impuls nachgewiesen. Es kann jedoch passieren, dass der beim Photon verbleibende Energieanteil mit dem Photon aus dem Detektor austritt. Die daraus resultierende Energieverteilung der Comptonelektronen wird Comptonkontinuum genannt.

Bei vollständiger Absorption im Detektor, beispielsweise durch einen nachfolgenden Photoeffekt, wird die totale Photonenenergie gemessen. Dies entspricht dem Photopeak.

Die Ausprägung des Comptonkontinuums hängt von dem Detektormaterial und von der Detektormasse bzw. dessen Ausmaße ab. Je größer der Detektor, je größer die Dichte und je höher die Ordnungszahl des Detektormaterials, desto wahrscheinlicher wird eine Totalabsorption der Photonenenergie.

Entsprechend kann mit der Wahl der Kristallgröße das Peak-zu Comptonkontinuum-Verhältnis beeinflusst werden.

Eine Begrenzung für hohe Energien des Kontinuums stellt die Comptonkante dar. Ihr entspricht die maximal auf ein Elektron übertragbare Energie.

Falls es an den bereits Comptongestreuten Photonen zu weiteren Comptonstreuungen kommt, finden partielle Absorptionen der Energien der entsprechenden Comptonelektronen statt. Die Folge sind multiple Comptonstreuungen, die eine Abflachung der Comptonkante zur Folge haben. Siehe hierzu Abb. 3.6.

Bei kleinen Detektoraufbauten kann im niederenergetischen Bereich Röntgenstrahlung auftreten, die durch die Wechselwirkungen mit dem Detektormaterial entsteht. Verlässt diese ohne weitere Wechselwirkungseffekte den Halbleiterkristall, so entstehen Escape-Linien der Röntgenstrahlung.

Summenpeaks entstehen, wenn mehrere Photonen zeitgleich absorbiert werden, sodass die Messelektronik zwischen den Photonen nicht differenzieren kann. Bei der dabei entstehenden Photolinie handelt es sich um die Summe der Einzelphotonenenergien.

Bei Photonenenergien oberhalb von 1,022 MeV kann es zum Paarbildungseffekt kommen. Elektron und Positron werden im Allgemeinen im Detektormaterial abgebremst und anschließend absorbiert. Bei der Absorption des Positrons kommt es mit einem Elektron zur Anihilation, wobei Quanten mit einer Energie von 511 keV freigesetzt werden. Wird die Vernichtungsstrahlung im Detektor absorbiert, kommt es zu einem entsprechenden Impuls wie bei einer Photoabsorption.

Verlassen jedoch die Vernichtungsquanten den Detektor ohne eine weitere Wechselwirkung und wird die Rest-Photonenenergie total absorbiert, so entstehen die so genannten Escape-Peaks im Impulshöhenspektrum. Deren Impulshöhen sind um den Anteil eines oder beider 511 keV-Quanten vermindert und liegen bei $E_{SE} = E_{\gamma} - 511 \text{ keV}$ bei Betrachtung des Single-Escape-Peaks und bei $E_{DE} = E_{\gamma} - 1022 \text{ keV}$.

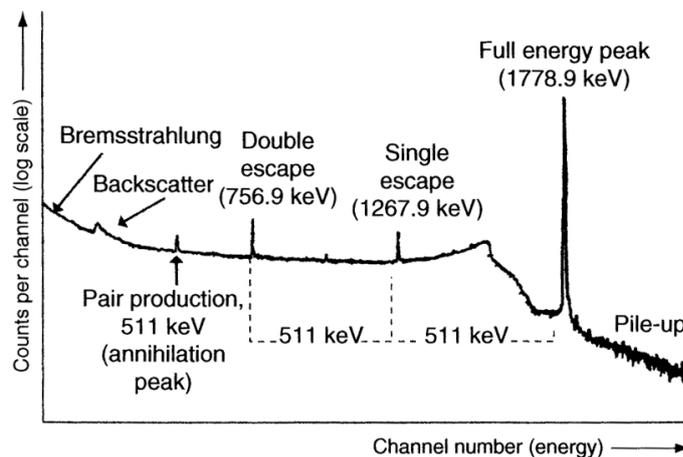


Abbildung 3.6.: Impulshöhenspektrum am Beispiel von ^{28}Al [Gil08]

Rückstreupeaks (oder auch Backscatter Peak) entstehen durch Photonen, die zuvor den Detektor verlassen haben, jedoch durch Comptonprozesse mit der Detektorabschirmung eine Rückstreuung in Richtung des Halbleiterkristalls stattfindet und dieser das Rückstreuphoton absorbiert.

Die Differenz zwischen anfänglicher Photonenenergie und den Comptonelektronen bildet die Lage des Peaks im Spektrum.

Da der Rückstreuwinkel des Photons in der Regel nicht 180° beträgt, läuft der Rückstreupeak, ähnlich zur Comptonkante, auseinander. Für exakt 180° wäre die Differenzenergie zwischen Photopeak und der Comptonkante erreicht.

Die Energie der Photonen wird über zahlreiche Einzelprozesse an den Detektorkristall abgegeben und durch die Messelektronik nachgewiesen. Deshalb kommt es zu statistischen Fluktuationen der Energieanteile. Aus diesem Grund zeigen reale Spektren keine scharfen Linien, sondern Gaußkurven, wie es der Photopeak im Spektrum darstellt. Abhängig sind die statistischen Schwankungen der Signale von den Halbleiterkristalleigenschaften und den darin dominierend stattfindenden Wechselwirkungen.

3.4.1. Der verwendete Detektor

In dieser Arbeit wird zur Untersuchung der Proben ein Koaxial-Germaniumdetektor mit einem 5 mm Kohlenstoff-Epoxid-Verbund-Fensterkristall verwendet.

Bei dem Halbleiterdetektor handelt es sich um Detektor Nr. 6. Er wurde gewählt, weil dieser aufgrund seines vergleichsweise weit herausragenden Germanium-Messkopfes am besten für Messungen von Marinelli-Geometrien geeignet ist. Bei dem Halbleiterkristall selbst handelt es sich um einen p-Typ-Kristall, der sich zur Untersuchung von Gammaenergien im Bereich von 40 keV bis 1800 keV eignet. Die technischen Spezifikationen des verwendeten Detektors sind in der nachfolgenden Tabelle 3.2 gelistet.

Tabelle 3.2.: Technische Spezifikationen des Germaniumhalbleiterdetektors

Halbleiterdetektortyp	P-Typ
Kristallaufbau	koaxial
Hersteller	Canberra
Modellnummer	GX3018
Seriennummer	b 99154
Betriebsspannung	4500V
Kristalldurchmesser	60mm
Kristalllänge	53,5mm
Fenstermaterial	Carbon-Epoxid
Abstand Kristall-Fenster	5mm
Rel. Efficiency	35%
Peak zu Compton Verhältnis	58:1
FWHM (122keV)	0,875keV
FWHM (1332keV)	1,8keV

3.5. Detektorkalibrierung

Damit die durch die Gammamessung erhaltenen Ergebnisse eine Grundlage zur Abschätzung der Aktivität der einzelnen Radionuklide im Probenmaterial bieten können, sind vor Messbeginn Kalibrierungen notwendig [Gil08].

3.5.1. Energiekalibrierung

Nach dem Detektieren der Signale in Abhängigkeit der zur Verfügung stehenden Kanäle mittels Vielkanalanalysator (MCA), muss den Kanälen die zugehörige Energie zugeordnet werden. Für die Messung wird ein mit einer Multinuklidlösung versetzter Wasserstandard (QCY) verwendet. Die darin enthaltenen Nuklide sind bekannt, sodass nachfolgend den im Spektrum auftretenden Full-Energy-Peaks bekannter Nuklide die jeweilige Energie zugeordnet werden kann.

Eine eigens für diese Arbeit durchgeführte Energiekalibrierung erfolgte jedoch nicht, sondern es wurden die Einstellungen vorangegangener Messungen übernommen.

3.5.2. Efficiencykalibrierung

Die Full-Energy-Peak-Efficiency (kurz Efficiency) berücksichtigt Impulse, die einen Einfluss auf den entsprechenden Full-Energy-Peak eines Gammaquants haben. Weitere mögliche Bezeichnungen sind Ansprech- oder Nachweiswahrscheinlichkeit, weil sie das Verhältnis zwischen der im Detektor nachgewiesenen und von der Probe tatsächlich emittierten Gammaquanten beschreibt. Entsprechend gilt für die Efficiency:

$$\epsilon = \frac{r_{\text{Detektor}}}{r_{\text{emittiert}}} \quad (3.1)$$

Die Efficiency ist sowohl von der Messgeometrie, als auch von der Energie der Gammaquanten abhängig. Auch die Dichte der Probe ist nicht zu vernachlässigen, da sie Einfluss auf die Selbstabsorption innerhalb der Probe hat.

Zur Kalibrierung der Efficiency wird eine Matrix erstellt, die der zu messenden Probe in Größe, Geometrie und Dichte ähnelt. Sie besteht aus einer homogen in der Probenmatrix verteilten Menge Multinuklidlösung bekannter Aktivität. Es ist sinnvoll als Standardlösung den QCY48 Standard zu verwenden, da die darin enthaltenen Radionuklide Gammaquanten im später zu untersuchenden Energiebereich emittieren. Mit der gemessenen Gammarate der Lösung und der zuvor bekannten Rate der einzelnen Radionuklide in der Standardlösung kann so die Efficiency zur jeweiligen Energie des Gammaquants berechnet werden. Zur Erstellung einer kontinuierlichen Energieverteilung $\epsilon(E_\gamma)$ wird eine Interpolation mithilfe der Jäckel-Westmeier-Funktion [JWP87] durchgeführt:

$$\epsilon(E) = e^{\frac{2}{\pi}(a_1 + a_2 \ln(E) + a_3 \ln(E)^2)} \cdot \arctan\left(e^{a_4 + a_5 \ln(E) + a_6 \ln(E)^3}\right) - 25 \quad (3.2)$$

Da die Dichte Einfluss auf die Efficiency nimmt, sollte idealerweise zu jeder Probe eine Kalibrierung mit einer eigens zur Probe angesetzten Matrix durchgeführt werden [Taw12]. Da diese umfangreiche Dichtekalibrierung aus Zeitgründen nicht möglich ist, wird auf Werte vorangegangener Arbeiten [Hei14; Mat14; Lül09] und [Bir09] zurückgegriffen. Zuordnungen sind in Tabelle B.2 im Anhang zu entnehmen.

3.6. Bestimmung der spezifischen Aktivität

Bei der Auswertung der Messergebnisse in dieser Arbeit wird die spezifische Aktivität Bq/kg der untersuchten Proben betrachtet. Um eine Vergleichbarkeit der Proben herstellen zu können, dürfen die ermittelten Werte nicht von der jeweiligen Probenmasse abhängig sein. Nur so ist eine unabhängige Betrachtung möglich.

Zur Bestimmung der spezifischen Aktivität der Radionuklide in den Sedimentproben wird jeweils die Nettopeakfläche mit zugehöriger Unsicherheit der entsprechenden Gammalinie eines Radionuklids verwendet. Das Impulshöhenspektrum wurde unter Verwendung der Software Genie2000 von Canberra aufgenommen und ausgewertet.

Es ist möglich, dass ein Nuklid nicht nur eine charakteristische Gammalinie, sondern mehrere aufweist. Ist dies der Fall, so wurde die spezifische Aktivität aus dem Mittelwert aller Linien des Nuklids bestimmt. Sämtliche Aktivitätsberechnungen wurden mit Microsoft Office Excel 2016 durchgeführt.

Dabei ist anzumerken, dass, anders als in den vorangegangenen Arbeiten, die Arbeitsmappe grundlegend umgeschrieben wurde, sodass die Gammalinien zur Mittelwertberechnung automatisch ausgewählt werden. Auswahlkriterium ist die Nachweisgrenze. Linien mit Aktivitäten unter der Nachweisgrenze sind zur Mittelwertberechnung nicht verwendet worden. Auch Aktivitäten vereinzelter Nuklide, die kleiner als Null aufgrund höheren Untergrunds der Linie selbst oder einer Störlinie waren, wurden Null gesetzt, sodass keine Berechnungsfehler von diesen Nukliden ausgehen können.

Ist die Aktivität des betrachteten Nuklids nach den oben genannten Berechnungsgrundlagen null, so wird die Nachweisgrenze ausgewiesen. Auch hier wird mittels Excel automatisch selektiert. Als Referenzwert wird die Nachweisgrenze der Gammalinie ausgewiesen, die die größte Emissionswahrscheinlichkeit aufweist. Jedoch ist dies nur der Fall, wenn diese Gammalinie einen Quotienten von $a/a^\# \geq 1$ aufweist und somit als nachgewiesen angenommen werden kann. Ist dies nicht der Fall, so wird auf die Gammalinie mit zweitgrößter Emissionswahrscheinlichkeit zurückgegriffen und nach den genannten Kriterien geprüft. Ist das Kriterium bei keiner der betrachteten Linien erfüllt, so wird auch keine Nachweisgrenze angegeben, lediglich, dass die berechnete Aktivität unter der Nachweisgrenze liegt.

Es ist auch möglich, dass einige Nuklide keine Gammalinien oder Gammalinien mit einer sehr geringen Emissionswahrscheinlichkeit aufweisen, die durch den verwendeten Detektor nicht nachgewiesen werden können. In diesem Fall wurde die spezifische Aktivität der Tochter-nuklide bestimmt, die Gammaumwandlungen vollziehen. Voraussetzung dafür ist jedoch das Vorliegen eines säkularen Gleichgewichts zwischen Mutter- und Tochternukliden. Siehe dazu Abschnitt A.1.3. Als Äquilibrationszeit wurde ein Zeitraum von $>$ drei Wochen gewählt. Außerdem ist für die Auswertung insbesondere zu beachten, ob es sich bei den betrachteten Gammalinien um gestörte oder ungestörte Gammalinien handelt. Einzelheiten finden sich dazu in den Abschnitten 3.6.1 und 3.6.2.

3.6.1. Ungestörte Linien

Zur Bestimmung der Aktivität aus ungestörten Gammalinien wird die Nettozählrate r_n der zugehörigen Peaks im Impulshöhenspektrum bestimmt. Sie ergibt sich aus der Differenz von Bruttozählrate r_b und Nulleffekt r_0 :

$$\begin{aligned} r_n &= r_b - r_0 \\ &= \frac{n_b}{t_m} - \frac{n_0}{t_0}. \end{aligned} \quad (3.3)$$

n_b bezeichne dabei die Bruttocounts mit zugehöriger Messzeit t_m und n_0 die Counts aus der Nullmessung mit Messzeit t_0 aus selbiger. Für die Unsicherheiten der daraus ermittelten Nettozählraten ergibt sich aus der Gaußschen Varianzfortpflanzung

$$u(r_n) = \sqrt{\frac{u^2(n_b)}{t_m^2} + \frac{u^2(n_0)}{t_0^2}}. \quad (3.4)$$

$u(n_b)$ und $u(n_0)$ bezeichnen dabei die Messunsicherheit der Bruttozählrate und die der Nullmessung.

Radionuklide können auf unterschiedlichen Wegen zerfallen. Sind verschiedene Zerfälle möglich, so tritt jeder Zerfall mit einer bestimmten Wahrscheinlichkeit auf. Bei der Bestimmung der spezifischen Aktivität aus der Nettozählrate muss dies beachtet werden.

Die Wahrscheinlichkeit, mit der ein charakteristisches Gammaquant bei einem Zerfall emittiert wird, wird Emissionswahrscheinlichkeit p genannt. Ist die Efficiency ε bekannt, so kann die Aktivität A des Radionuklids abgeschätzt werden zu

$$A = \frac{k_s}{\varepsilon p} \cdot r_n \quad (3.5)$$

k_s beschreibt hierbei den Summationskorrekturfaktor. Dieser berücksichtigt die Wahrscheinlichkeit des Auftretens von zwei gleichzeitig im Detektor registrierten Photonen und damit die Addition zu einem Summenimpuls.

Fließt zudem die Masse m der untersuchten Probe mit ein, so ergibt sich die spezifische Aktivität zu

$$\begin{aligned} a &= \frac{k_s}{m \cdot \varepsilon \cdot p} \cdot r_n \\ &= \omega \cdot r_n. \end{aligned} \quad (3.6)$$

Die Unsicherheit der spezifischen Aktivität setzt sich wie folgt zusammen:

$$u(a) = \sqrt{r_n^2 \cdot u^2(\omega) + \omega^2 \cdot u^2(r_n)} \quad (3.7)$$

$u(r_n)$ entspricht der Unsicherheit der Nettozählrate und wird von Genie2000 zu jedem Peak gesondert ermittelt und ausgegeben. Für $u^2(\omega)$ gilt

$$u^2(\omega) = u^2(k_s) + u^2(m) + u^2(\varepsilon) + u^2(p). \quad (3.8)$$

Ist der Summenkorrekturfaktor $k_s \neq 1$, so wird für ihn eine Unsicherheit von 10% angesetzt. Für $k_s = 1$ ist eine Summenkorrektur nicht nötig.

Die Berechnungen orientieren sich allgemein an den vorangegangenen Arbeiten, um eine größtmögliche Vergleichbarkeit der Messergebnisse zu gewährleisten.

Für die Masse wird eine Unsicherheit $u(m)$ von 0,5 g angenommen. Die Unsicherheit setzt sich zusammen aus der Unsicherheit der Waage KERN EG-2200-2NM mit einer bauartbedingten Unsicherheit von $d = 0,1$ g, mit der die Proben eingewogen wurden.

Für die Unsicherheit der Efficiency $u(\varepsilon)$ wird für Werte unter 100 keV 10% angenommen, für Werte zwischen 100 keV und 200 keV 7% und für Werte über 200 keV 5% [Taw12].

3.6.2. Gestörte Linien

Liegen zwei Emissionslinien zu nahe beieinander, sodass der Detektor diese Linien nicht gesondert auflösen kann, so kommt es zu gestörten Linien. Es ist daher bei der Auswertung darauf zu achten, ob der betrachtete Peak durch andere Gammalinien aus der Probe gestört wird. Die Abschätzung der spezifischen Aktivität wird dabei deutlich erschwert, da in dem Fall einer Störung der Einfluss des Störnuklids von der eigentlich betrachteten Linie des zugehörigen Nuklids subtrahiert werden muss. Für gestörte Linien ergibt sich

$$\begin{aligned}
 a_c &= \omega \cdot \left(\left(\frac{n_b}{t_m} - \frac{n_0}{t_0} \right) - \frac{n_{n'}}{t_m} \right) \\
 &= \omega \cdot \left(\left(\frac{n_b}{t_m} - \frac{n_0}{t_0} \right) - \frac{a' \cdot t_m}{\omega'} \right) \\
 &= \omega \cdot \left(\frac{n_b}{t_m} - \frac{n_0}{t_0} \right) - \frac{\omega}{\omega'} \cdot a' \\
 &= a - \frac{\omega}{\omega'} \cdot a'.
 \end{aligned} \tag{3.9}$$

a' sei dabei die spezifische Aktivität des Nuklids, n'_n die Nettozählrate und ω' der bereits bekannte Faktor aus Gl. (3.6), jedoch mit bereits erfolgter Berücksichtigung der Störlinie.

Die Unsicherheit für gestörte Linien ergibt sich zu

$$\begin{aligned}
 u(a_c) &= \sqrt{u^2(a) + u^2\left(\frac{\omega}{\omega'} \cdot a\right)} \\
 &= \sqrt{r_n^2 \cdot u^2(\omega) + \omega^2 \cdot u^2(r_n) + u^2\left(\frac{\omega}{\omega'} \cdot a'\right)}.
 \end{aligned} \tag{3.10}$$

3.7. Messunsicherheiten

Aufgrund von Toleranzen von Messgeräten, Messfehlern und Einflüssen von außen ist es unmöglich, mittels einer Messung die wahre Messgröße zu bestimmen, sodass auf Methoden und Werkzeuge der Statistik zurückgegriffen werden muss.

Das Ziel einer Messung kann somit nur sein, einen Schätzwert mit entsprechender Unsicherheit anzugeben.

Man spricht von direkter Mehrfachmessung, wenn mehrere voneinander unabhängige Messungen durchgeführt werden und die dabei zu bestimmende Größe direkt gemessen wird.

Die unabhängig gewonnenen Messwerte x_i streuen nach einer Wahrscheinlichkeitsverteilung um einen Mittelwert. Für n unabhängige Messungen, bei denen die Zufallsgrößen einen additiven Zusammenhang bilden, stellt der arithmetische Mittelwert, oder auch unberichtigtes Messergebnis [WW05], die beste Näherung dar:

$$\bar{x} = \frac{1}{n} \cdot \sum_{i=1}^n x_i. \tag{3.11}$$

Die dem Mittelwert \bar{x} zugewiesene Standardabweichung stellt dabei ein Maß für die Streuung der einzelnen Messgrößen x_i um den Erwartungs- bzw. Mittelwert dar. Sie definiert sich zu

$$s = \sqrt{\frac{1}{(n-1)} \sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})^2}. \quad (3.12)$$

Für Zufallsgrößen, bei denen kein additiver, sondern ein multiplikativer Zusammenhang besteht, stellt der geometrische Mittelwert die beste Näherung dar. Er ergibt sich zu

$$\bar{x}_{geom} = \sqrt[n]{\prod_{i=1}^n x_i}. \quad (3.13)$$

Die geometrische Standardabweichung definiert sich somit zu

$$s_{geom} = \exp \left(\sqrt{\frac{1}{n-1} \sum_{i=1}^n (\ln(x_i) - \ln(\bar{x}_{geom}))^2} \right). \quad (3.14)$$

Es ist notwendig, bei einigen Nukliden zur Aktivitätsbestimmung auf die Tochternuklide zurückzugreifen, da ihre Emissionswahrscheinlichkeiten gering sein können oder Interferenzen zwischen anderen Nukliden bestehen. Tochternuklide zu betrachten ist möglich, wenn sich diese mit ihren Mutternukliden im säkularen Gleichgewicht befinden. Zur Bestimmung der spezifischen Aktivität wurde dabei auf den gewichteten Mittelwert

$$\bar{x}_{gew} = \frac{\sum_{i=1}^n \left(\frac{x_i}{u^2(x_i)} \right)}{\sum_{i=1}^n \left(\frac{1}{u^2(x_i)} \right)} \quad (3.15)$$

zurückgegriffen, bei dem der Vorteil besteht, dass Messwerte mit großer Unsicherheit einen kleineren Einfluss auf das Endergebnis haben als Messwerte mit vergleichsweise geringer Unsicherheit. Für die Unsicherheit des gewichteten Mittelwerts ergibt sich

$$u(\bar{x}_{gew}) = \frac{1}{\sqrt{\sum_{i=1}^n \frac{1}{u^2(x_i)}}}. \quad (3.16)$$

In der Regel kann eine Messgröße jedoch nicht direkt gemessen werden. Sie errechnet sich aus der Messung weiterer Messgrößen, die sich direkt messen lassen. Somit ergibt sich eine Funktion aus diesen direkt bestimmbaren Größen der Form

$$y = F(x_1, \dots, x_n), \quad (3.17)$$

deren Messunsicherheit sich durch die gaußsche Fehlerfortpflanzung bestimmen lässt. Die Unsicherheit definiert sich über

$$u^2(y) = \sum_{i=1}^n \left(\frac{\partial F}{\partial x_i} \right)^2 u^2(x_i). \quad (3.18)$$

3.7.1. Konformität

Für den Vergleich von zwei Messwerten sind Kriterien aufzustellen, die es erlauben, Aussagen über die Verträglichkeit der Werte im Rahmen ihrer Unsicherheit zu stellen. Hierfür wird auf das Konformitätskriterium als Entscheidungskriterium aus [WW05] zurückgegriffen.

Ist für zwei Messwerte x_1 und x_2 die Ungleichung

$$|x_1 - x_2| \leq \beta \cdot \sqrt{u^2(x_1) + u^2(x_2)} \quad (3.19)$$

erfüllt, so kann von einer Verträglichkeit der betrachteten Messwerte ausgegangen werden. Für eine hinreichend scharfe Aussage wurde $\beta = \sqrt{2}$ gewählt.

3.8. Erkennungs- und Nachweisgrenzen

Liegt der Messwert a oberhalb der Erkennungsgrenze a^* , so kann die Existenz eines Nuklids mit einer Irrtumswahrscheinlichkeit von α in der Probe angenommen werden. Die Erkennungsgrenze berechnet sich zu

$$\begin{aligned} a^* &= k_{1-\alpha} \cdot u(0) \\ &= k_{1-\alpha} \cdot \omega \cdot u(r_n) \\ &= k_{1-\alpha} \cdot \omega \cdot \sqrt{\frac{u^2(n_b)}{t_b^2} + \frac{u^2(n_0)}{t_0^2}} \end{aligned} \quad (3.20)$$

mit $\omega = \frac{k_s}{\varepsilon_{pm}}$.

Für die Erkennungsgrenze gestörter Linien gilt

$$a_c^* = k \cdot \sqrt{\left(\frac{a'}{\omega'}\right)^2 \cdot u^2(\omega) + \omega^2 \cdot u^2(r_n) + u^2\left(\frac{\omega}{\omega'} \cdot a'\right)}. \quad (3.21)$$

Liegt der gemessene Wert für die spezifische Aktivität eines Nuklids über der Nachweisgrenze $a^\#$, so kann das Nuklid unter Berücksichtigung der Irrtumswahrscheinlichkeit β als nachgewiesen betrachtet werden. Für ungestörte Linien ergibt sich für die Nachweisgrenze

$$\begin{aligned} a^\# &= a^* + k_{1-\beta} \cdot u(a^\#) \\ &= a^* + k_{1-\beta} \cdot \sqrt{\left(\frac{a^\# \cdot u(\omega)}{\omega}\right)^2 + \omega^2 \cdot u^2(r_n)}, \end{aligned} \quad (3.22)$$

woraus sich durch Umstellen

$$a^\# = \frac{2 \cdot a^*}{1 - \left(k \cdot \frac{u(\omega)}{\omega}\right)^2} \quad (3.23)$$

ergibt. Für die Nachweisgrenze gestörter Linien gilt

$$a_c^\# = 2 \cdot \frac{a_c^* + \frac{1}{\omega' \cdot \omega} \cdot a' \cdot k^2 \cdot u_{rel}^2(\omega)}{1 - k^2 \cdot \left(\frac{u(\omega)}{\omega}\right)^2}. \quad (3.24)$$

4. Datenanalyse und Ergebnisse der Gamma-Spektrometrie

Im Rahmen der in dieser Arbeit angewendeten Gammaskpektrometrie wurden nicht nur Proben des Mulde-II-Projektes gemessen und ausgewertet. Während der Equilibrierungszeit fanden zwei Probenahmefahrten des TransAqua-Verbundprojektes ins Fuhrberger-Feld statt. Es wurden zwei Waldbodenproben und zwei zugehörige Litterproben genommen, die zusammen mit zwei Ackerbodenproben aus dem Jahr 2015 ebenfalls aufbereitet und gammaskpektrometrisch vermessen wurden. Des Weiteren wurde ein Ringversuch des Bundesamtes für Strahlenschutz zur Validierung, bestehend aus einer Modellwasserprobe und einer Realwasserprobe, gammaskpektrometrisch auf ihre Nuklidgehalte untersucht. Weitere Informationen sind in Abschnitt 4.2.8 zu finden.

4.1. Probenherkunft und -aufbereitung

In diesem Abschnitt werden nachfolgend die Herkunft und die Aufbereitung der Proben für die Gammaskpektrometrie erläutert. Insgesamt wurden im Rahmen dieser Arbeit 20 Sedimentproben des Mulde-II-Projekts, 6 Waldboden-, Ackerland- und Litterproben sowie zwei Wässer des Ringversuchs gammaskpektrometrisch vermessen und ausgewertet.

4.1.1. Mulde-II Sediment

Die in dieser Arbeit untersuchten Sedimentproben aus der Zwickauer und Vereinigten Mulde wurden bei zwei Probenahmefahrten im Zeitraum vom 14.11.2013 bis 17.11.2013 und vom 19.11.2013 bis 23.11.2013 genommen. Eine genaue Auflistung der Probenahmestellen ist im Anhang B.3 zu finden. Die einzelnen Proben wurden mithilfe einer Küchenkelle, die an einem langen Holzstiel befestigt war, genommen. Es wurde versucht, geringe Mengen an Sediment von möglichst vielen Stellen des Flussabschnitts zu nehmen. Das Sediment wurde mittels eines Siebs mit 1 mm Maschenabstand gesiebt und teils für Messungen (pH-Wert, Redoxwert u.a.) vor Ort verwendet. Das Sediment wurde in zwei ein Liter Kautexflaschen abgefüllt, luftdicht verschlossen und eingefroren. In diesem Zustand wurden die Proben für diese Arbeit übernommen.

Im Rahmen dieser Arbeit erfolgte die weitere Aufbereitung für die Gammaskpektrometrie. Die 20 Sedimentproben wurden in zwei Durchgängen verarbeitet.

Die Proben wurden in ihren Kautexflaschen aufgetaut und anschließend bei 55 °C im Trockenschrank für ca. eine Woche getrocknet. Danach wurde das Sediment ausgeschüttet und in mit zusätzlicher Aluminiumfolie ausgelegten Aluschalen ausgebreitet. Anschließend wurde nochmals für ca. eine Woche bei 55 °C getrocknet. Anschließend wurden die Kautexflaschen ausgeschlagen, um möglichst alles vorhandene Sediment aus den Flaschen zu entfernen. Die Aluschalen wurden nun nochmals in den Trockenschrank gestellt, diesmal bei 105 °C, bis eine Massenkonstanz nach ca. zehn Tagen erreicht war. Die Massenkonstanz wurde durch dreimaliges Wiegen der Proben nach einem 2-3,5 h Abkühlvorgang sichergestellt. Danach wurden

die Sedimente im Trockenschrank gelagert, um einer Aufnahme von Luftfeuchtigkeit entgegenzuwirken. Anschließend wurden die Proben einzeln aus dem Trockenschrank genommen und zermörsert. Dabei wurden mittels einer Pinzette größere Steine und organisches Material aus der Probe entfernt. Nach der Selektion und Zerkleinerung wurde das Sediment durch ein Sieb mit Maschenweite von einem Millimeter gesiebt. Die zurückgehaltenen Bestandteile größer 1 mm wurden nochmals mit Pistill zerkleinert und gesiebt. Alle jetzt noch vom Sieb zurückgehaltenen Bestandteile wurden verworfen. Nach diesem 2,5-3 Stunden dauernden Bearbeitungsschritt wurde die Probe jeweils wieder zurück in den Trockenschrank gestellt, vorher jedoch gründlichst durchmischt und homogenisiert, da sich das feinere Sediment häufig am Rand der Aluschale angesammelt hat. Im nächsten Schritt wurde jede Probe in ein Marinelligefäß mit ca. 560 ml Inhalt gefüllt. Das Befüllen des Bechers geschah in mehreren Schritten bis zur unteren Kante des Marinellibebers. Zwischen den einzelnen Schritten wurde mit einem Metallstab und einem Löffel zur Verdichtung des Sediments gegen den Becher geklopft. Um eine konstante Füllhöhe des Marinellibebers sicherzustellen, wurde mithilfe eines Metallspatels das Sediment auf Höhe der unteren Gefäßkante glattgestrichen. Im Anschluss wurde eine passend zugeschnittene Kunststoffolie auf den Gefäßkragen geklebt, um einen Transportschutz zu schaffen, der eine Verlagerung des Sediments im Becher verhindern soll. Andererseits dient die Folie dazu eine Radonanreicherung im oberen Gefäßabschnitt zu verhindern bzw. zu minimieren. Als Klebemittel wurde der „Montagekleber Super“ der Firma Pattex verwendet. Nach einer Trocknungszeit von 24 Stunden wurde der Deckel des Marinellibebers ebenfalls mit dem Montagekleber verklebt. Anschließend wurden die Proben ca. vier Wochen ruhen gelassen, damit sich das Gleichgewicht zwischen ^{226}Ra und ^{222}Rn in der Uran-Radium-Reihe wieder einstellen konnte. Während der Probenaufbereitung konnte das gasförmig vorliegende ^{222}Rn entweichen, da infolge der Aufarbeitung eine Störung des Gleichgewichts erfolgte. Eine Auflistung der Sedimentproben ist in Tabelle B.3 einzusehen.

Insgesamt wurden zwölf Sedimente der Zwickauer und acht Sedimente der Vereinigten Mulde genommen. Begonnen wurde in der Zwickauer Mulde mit der Probe ZM_Ste bei Flusskilometer 52,31, die Probenahme abgeschlossen mit der Probe VM_T54 bei Kilometer 252,81 in der Vereinigten Mulde. Somit wurde ein Flussabschnitt von 201,21 km Länge beprobt. Die verwendeten Kilometerangaben beziehen sich auf das Mulde-I-Projekt von 2008 aus [Lül09].

Tabelle 4.1.: Übersicht der Probenentnahmepunkte mit Zuordnung der Flusskilometer.

Als Referenz dient die Kilometrisierung von 2008. Zusätzlich sind die Abweichungen von 2008 zu 2013 angegeben

Nr.	Probe	Mulde	Flusskilometer	Flusskilometer 2008	Differenz [km]
1	ZM_Ste	ZM	51,62	52,31	-0,69
2	ZM_Grü	ZM	61,24	61,53	-0,29
3	ZM_Zwi	ZM	73,37	73,42	-0,05
4	ZM_Obe	ZM	83,58	82,84	0,74
5	ZM_T05	ZM	103,33	103	0,33
6	ZM_T08	ZM	109,93	109,98	-0,05
7	ZM_Wol	ZM	112,77	112,76	0,01
8	ZM_Lun	ZM	132,32	130,75	1,57
9	ZM_Alt	ZM	134,2	133,81	0,39
10	ZM_Roc	ZM	144,31	144,27	0,04
11	ZM_T15	ZM	150,53	150,89	-0,36
12	ZM_Ser	ZM	161,94	161,65	0,29
13	VM_T18	VM	166,17	166,18	-0,01
14	VM_T24	VM	176,27	176,09	0,18
15	VM_T30	VM	191,24	191,25	-0,01
16	VM_T37	VM	208,76	208,82	-0,06
17	VM_T40	VM	215,69	215,63	0,06
18	VM_Zsc	VM	223,9	223,91	-0,01
19	VM_T51	VM	242,33	242,35	-0,02
20	VM_T54	VM	252,83	252,81	0,02

4.2. Daten- und Messwertanalyse Mulde-II

4.2.1. Test auf Normalverteilung und logarithmische Normalverteilung

Ein Test auf Normal- und logarithmische Normalverteilung lässt Aussagen über mögliche Einflussfaktoren zu. Die allgemein in der Natur vorzufindende Verteilung ist eine logarithmische Normalverteilung. Alle ermittelten Messwerte der Sedimentproben wurden mithilfe des Shapiro-Wilk-Tests auf eine Normalverteilung und auch auf eine logarithmische Normalverteilung geprüft. Die Tests wurden mit OriginPro2016 durchgeführt. Eine Normalverteilung weist auf einen additiven Zusammenhang der Einflussfaktoren hin, eine logarithmische Normalverteilung lässt Rückschlüsse auf einen multiplikativen Einfluss von Störgrößen zu. Bei der Betrachtung wird zwischen Zwickauer Mulde, Vereinigter Mulde und dem gesamten Flussabschnitt unterschieden.

Bei Betrachtung der Zwickauer Mulde kann eine Normalverteilung für ^{238}U , ^{226}Ra , ^{210}Pb , ^{235}U und ^{137}Cs zurückgewiesen werden. Eine logarithmische Normalverteilung kann hingegen für keines der betrachteten Nuklide abgelehnt werden. Für die Vereinigte Mulde können bezüglich der betrachteten Radionuklide die gleichen Aussagen getroffen werden. Eine logarithmische Normalverteilung kann für ^{238}U und ^{235}U abgelehnt werden.

Unter Berücksichtigung aller 20 Sedimentproben kann eine Normalverteilung von ^{238}U , ^{210}Pb , ^{235}U und ^{137}Cs zurückgewiesen werden. Eine Normalverteilung von ^{226}Ra kann jedoch nicht abgelehnt werden. Eine logarithmische Normalverteilung kann für kein Radionuklid zurückgewiesen werden. Somit kann von multiplikativen und additiven Einflüssen ausgegangen werden,

wobei sich ein rein additiver Einfluss nur bei ^{238}U und ^{235}U der Vereinigten Mulde abzeichnet. Bei den Proben der Zwickauer Mulde kann von additiven Einflüssen nicht ausgegangen werden. Eine ausführliche Übersicht über die Ergebnisse der Prüfung auf Normalverteilung und logarithmische Normalverteilung ist in den Tabellen C.1 bis C.6 im Anhang einzusehen. Die Ergebnisse zeigen, dass für den Großteil der betrachteten Nuklide, insbesondere bei der Betrachtung der Zwickauer und Vereinigten Mulde als Probenumfang, eine logarithmische Normalverteilung nicht abgelehnt werden kann. Dieses Ergebnis stimmt mit den Erwartungen bzgl. einer natürlichen Verteilung überein.

4.2.2. Betrachtung der Mittelwerte der spezifischen Aktivitäten

In Tabelle 4.2 sind die arithmetischen und geometrischen Mittelwerte der spezifischen Aktivitäten für die Zwickauer Mulde, der Vereinigten Mulde sowie der Betrachtung beider Flussabschnitte zusammen dargestellt.

Es ist zu berücksichtigen, dass für ^{227}Ac lediglich zwei Messwerte für die Vereinigte Mulde, zehn Messwerte für die Zwickauer Mulde und entsprechend 12 Messwerte für die Gesamtbetrachtung zur Verfügung stehen, da spezifische Aktivitäten, die unter der Nachweisgrenze liegen, nicht in der Auswertung berücksichtigt werden. Folglich kann über ^{227}Ac nur eine geringe Aussage getätigt werden.

Bei allen betrachteten Nukliden liegen der jeweilige arithmetische und geometrische Mittelwert nahe beieinander. Sie stimmen unter Berücksichtigung ihrer Standardabweichungen miteinander überein. Jedoch ist anzumerken, dass die jeweiligen Standardabweichungen zu den Radionukliden sehr hoch sind und teils nur knapp unter den Mittelwerten liegen.

Tabelle 4.2.: Arithmetische Mittelwerte und geometrische Mittelwerte der spezifischen Aktivitäten der betrachteten Nuklide mit zugehörigen Standardabweichungen (SD)

	Nuklid	n	arith. Mittel	arith. SD	geom. Mittel	geom. SD
Vereinigte Mulde	U-238	8,00	61,29	51,92	50,83	1,78
	Ra-226	8,00	52,62	43,27	42,97	1,87
	Pb-210	8,00	40,49	18,89	37,69	1,46
	U-235	8,00	3,40	2,36	2,96	1,67
	Ac-227	2,00	4,89	2,23	4,63	1,60
	Ra-228	8,00	23,80	9,10	22,56	1,40
	Th-228	8,00	25,75	9,00	24,53	1,39
	Cs-137	8,00	1,31	1,18	0,99	2,13
	K-40	8,00	556,04	76,44	551,25	1,15
Zwickauer Mulde	U-238	12,00	141,52	78,63	126,07	1,62
	Ra-226	12,00	107,37	41,50	101,34	1,41
	Pb-210	12,00	78,01	28,20	74,36	1,36
	U-235	12,00	7,36	3,44	6,76	1,52
	Ac-227	10,00	6,00	1,94	5,74	1,37
	Ra-228	12,00	33,46	7,73	32,65	1,26
	Th-228	12,00	37,57	9,07	36,58	1,27
	Cs-137	12,00	2,03	1,18	1,79	1,71
	K-40	12,00	667,40	85,95	662,45	1,14
Gesamtfluss	U-238	20,00	109,43	78,73	87,66	1,98
	Ra-226	20,00	85,47	49,44	71,90	1,88
	Pb-210	20,00	63,00	30,78	56,66	1,61
	U-235	20,00	5,78	3,59	4,86	1,84
	Ac-227	12,00	5,82	1,92	5,54	1,39
	Ra-228	20,00	29,59	9,42	28,17	1,39
	Th-228	20,00	32,85	10,62	31,18	1,40
	Cs-137	20,00	1,74	1,21	1,41	1,98
	K-40	20,00	622,86	97,79	615,51	1,17

Damit eine Aussage über die Belastung der Sedimentproben vorgenommen werden kann, werden die arithmetischen Mittelwerte der spezifischen Aktivitäten der Sedimente von ^{238}U , ^{226}Ra und ^{210}Pb als Repräsentanten der Uran-Radium und ^{228}Ra für die Thorium-Reihe näher betrachtet. Sie werden mit den jeweiligen Mittelwerten der spezifischen Aktivitäten aus der Freiburger Mulde verglichen. Der Vergleich bietet sich an, da entlang der Freiburger Mulde kein Uranerzbergbau stattgefunden hat und somit arithmetische Mittelwerte als Referenzdaten für den Untergrund dienen können. Zum Vergleich werden die Messergebnisse der Freiburger Mulde von 2008 aus [Bis12] herangezogen und sind in Tabelle 4.3 gelistet. Aufgrund der hohen Standardabweichungen, die aus der hohen Variabilität der Einzelmessungen folgen, sind jedoch nur bedingt stichhaltige Aussagen möglich.

Tabelle 4.3.: Aufstellung der Hintergrundaktivitäten.

Gelistet sind die arithmetischen Mittelwerte der spezifischen Aktivitäten der Sedimente von ^{238}U , ^{226}Ra , ^{210}Pb und ^{228}Ra mit ihren als Unsicherheit angegebenen Standardabweichungen sowie die Messergebnisse der Freiburger Mulde.

Jahr	U-238		Ra-226		Pb-210		Ra-228	
	Mittel [Bq/kg]	SD [Bq/kg]	Mittel [Bq/kg]	SD [Bq/kg]	Mittel [Bq/kg]	SD [Bq/kg]	Mittel [Bq/kg]	SD [Bq/kg]
2013 VM	61,29	51,92	52,62	43,27	40,49	18,89	23,8	9,1
2013 ZM	141,52	78,63	107,37	41,5	78,01	28,2	33,46	7,73
2013 Ges.	109,43	78,73	85,47	49,44	63,0	30,78	29,59	9,42
2008	38,77	10,72	49,03	28,84	61,10	45,48	42,5	16,93
Probe	a	u(a)	a	u(a)	a	u(a)	a	u(a)
FM_Nos	46,35	7,46	69,43	11,01	93,26	9,09	54,47	3,28
FM_Ser	31,20	7,01	28,64	0,93	28,94	3,15	30,53	2,19

Beim Vergleich der arithmetischen Mittelwerte der spezifischen Aktivitäten des Sediments von 2013 mit denen von 2008 fällt auf, dass insbesondere die Vertreter der Uran-Radium-Reihe ^{238}U und ^{226}Ra deutlich über dem Untergrund liegen. Wird zusätzlich zwischen Zwickauer und Vereinigter Mulde differenziert, so ist eine Verdopplung der mittleren Aktivitäten von Zwickauer im Vergleich zu Vereinigter Mulde zu erkennen. Mit einem Faktor von 2,3 stellt ^{238}U den größten Wert dar, es folgen ^{226}Ra mit 2,04 und ^{210}Pb mit 1,93. Auch wenn die Mittelwerte der Vereinigten Mulde lediglich halb so groß wie die der Zwickauer Mulde sind, so liegen sie dennoch überwiegend über dem Untergrund. So ist der Wert für ^{238}U der Vereinigten Mulde um den Faktor 1,58 im Vergleich zur Freiburger Mulde und die spezifische Aktivität der Zwickauer Mulde um 3,65 im Vergleich zur Freiburger Mulde erhöht. Anders verhält es sich jedoch mit ^{226}Ra und ^{210}Pb in der Vereinigten Mulde. Die Ergebnisse liegen im Rahmen ihrer Unsicherheiten auf Niveau des Untergrundes, wobei bei ^{210}Pb anzumerken ist, dass das arithmetische Mittel ca. 20 Bq/kg unter dem Untergrundmittel liegt, die Unsicherheiten jedoch so groß sind, dass keine spezifischeren Aussagen getroffen werden können. Für ^{228}Ra liegen sowohl der Wert der Zwickauer Mulde, als auch der der Vereinigten Mulde unter dem Untergrund. Die Differenz liegt jedoch im Rahmen der Unsicherheit. Entsprechend analoge Aussagen können über die gemittelten spezifischen Aktivitäten über das gesamt betrachtete Flusssystem getroffen werden. ^{238}U und ^{226}Ra liegen um einen Faktor von 2,82 und 1,74 über dem Untergrund, ^{210}Pb und ^{228}Ra im Rahmen der Unsicherheit auf gleichem Niveau mit dem Untergrund der Freiburger Mulde. Für ^{228}Ra ist kein Unterschied zwischen Zwickauer und Vereinigter Mulde erkennbar.

Zusammenfassend kann jedoch ein Gefälle der mittleren Aktivitäten von der Zwickauer zur Vereinigten Mulde erkannt werden, die zum Ende des beprobten Flusslaufs der Vereinigten Mulde mit dem natürlichen Untergrund verträglich sind. Gründe für die festgestellte Abnahme der Mittelwerte der spezifischen Aktivitäten werden im Kapitel 5 näher erläutert.

4.2.3. Aktivitätsverhältnisse innerhalb der Zerfallsreihen und bergbaulicher Einfluss

Ein wesentlicher Aspekt dieser Arbeit stellt die Untersuchung auf den Einfluss des Hochwassers von 2013 auf die Verteilung von Radionukliden uranbergbaulichen Ursprungs dar. Wie bereits in Kapitel 2.1 erwähnt, lassen die Aktivitätsverhältnisse verschiedener Nuklide eine Aussage auf die Ursache bei einer möglichen Verschiebung des Gleichgewichtes zu. Mithilfe eines Zweinuklidplots, in dem die Aktivitäten zweier im Gleichgewicht zueinander stehenden Nuklide gegeneinander aufgetragen sind, lassen sich mögliche Verschiebungen des Gleichgewichts grafisch darstellen. Im Folgenden sind die spezifischen Aktivitäten der in 2.1 genannten Verhältnisse grafisch dargestellt.

Abbildung 4.1 zeigt die spezifischen Aktivitäten von ^{238}U und ^{226}Ra in einem Zweinuklidplot gegeneinander aufgetragen. Dabei wird zwischen den spezifischen Aktivitäten der Zwickauer Mulde (schwarz) und der Vereinigten Mulde (rot) unterschieden. Die gestrichelte Linie bildet in dem Graph das 1:1-Verhältnis und stellt das natürliche geochemische Verhältnis (säkulares Gleichgewicht) der beiden Nuklide dar. Zusätzlich sind für die Zwickauer und Vereinigten Mulde jeweils lineare Anpassungen (Trendlinien) zur Abschätzung der Abweichung vom säkularen Gleichgewicht vorgenommen worden. In Abbildung 4.1 ist zu erkennen, dass sich ^{238}U und ^{226}Ra nur bis etwa 100 Bq/kg im Rahmen ihrer Unsicherheiten im säkularen Gleichgewicht befinden. Ausnahmen hierbei bilden die Proben VM_T40 und Vm_Zsc, deren Gleichgewicht in Richtung des ^{238}U verschoben ist. Die Probe ZM_Lun ist als einzige in Richtung des ^{226}Ra verschoben. Ab spezifischen Aktivitäten von 100 Bq/kg zeigt sich mit steigenden Werten ein immer ausgeprägteres Ungleichgewicht zum ^{238}U , an dem auch die Einbeziehung der Unsicherheiten keinen Einfluss mehr nimmt. Es liegt somit ein Uranüberschuss vor.

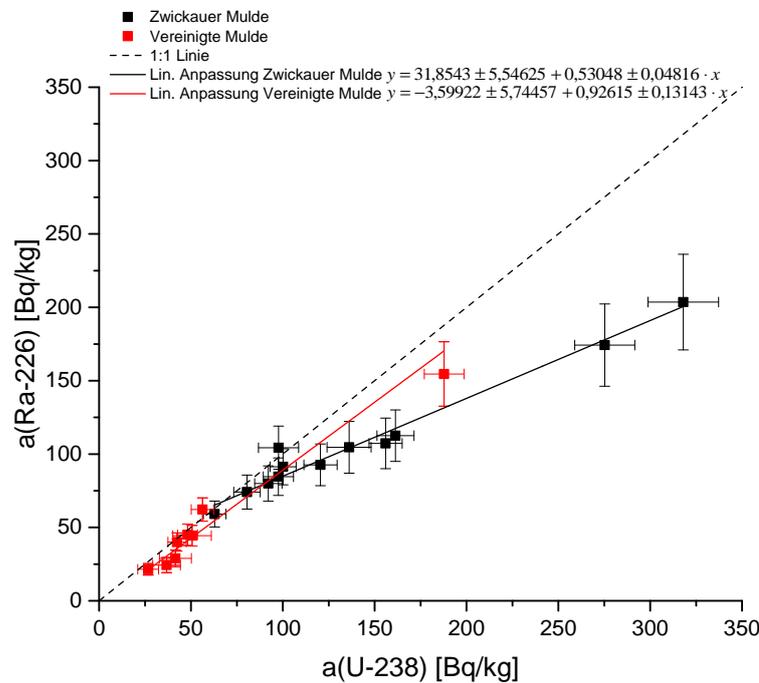


Abbildung 4.1.: Zwei-Nuklid-Plot der spezifischen Aktivitäten von ^{238}U und ^{226}Ra

Die Trendlinien zeigen, dass das Gleichgewicht der Proben aus der Vereinigten Mulde mit einer Steigung von $0,926 \pm 0,131$ weitaus weniger untereinander gestört ist als das der Zwickauer

Mulde mit einer Steigung von $0,53 \pm 0,048$.

Bestätigt werden diese Aussagen durch Abbildung A.5 im Anhang, welche das Verhältnis ^{227}Ac zu ^{235}U zeigt. Weitere Erläuterungen finden sich dort ebenfalls.

Im Zwei-Nuklid-Plot 4.2 ist das Verhältnis von ^{228}Ra zu ^{238}U dargestellt. Es ist zu erkennen, dass bis zu einer spezifischen Aktivität von etwa 50 Bq/kg die spezifischen Aktivitäten der Sedimentproben im Rahmen ihrer Unsicherheiten auf der Trendlinie liegen. Mit Ausnahme der Probe VM_T24, die leicht in Richtung des ^{228}Ra verschoben ist, sind alle weiteren Proben oberhalb der Marke von 50 Bq/kg stark in Richtung des ^{238}U verschoben. Diesen Sachverhalt spiegeln auch die linearen Anpassungen der spezifischen Aktivitäten wieder. Für die Zwickauer Mulde ergibt sich eine Steigung der Trendlinie von $0,062 \pm 0,028$ und für die Vereinigte Mulde $0,17 \pm 0,036$. Folglich ist für Aktivitäten größer 50 Bq/kg das Verhältnis kleiner als 0,5.

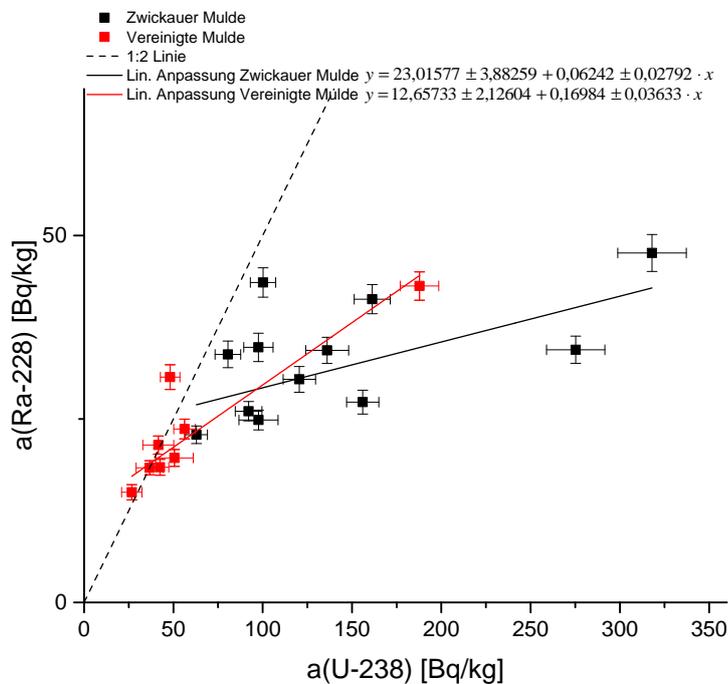


Abbildung 4.2.: Zwei-Nuklid-Plot der spezifischen Aktivitäten von ^{238}U und ^{228}Ra

Um weitere Aussagen über die vorliegenden geochemischen Verhältnisse zu bekommen, ist es hilfreich, Drei-Nuklid-Plots zu betrachten.

In Abbildung 4.3 ist das Aktivitätsverhältnis von ^{226}Ra zu ^{238}U gegen das Verhältnis von ^{228}Ra zu ^{238}U aufgetragen. Es ist zu erkennen, dass das Verhältnis ^{228}Ra zu ^{238}U für alle Proben bis auf vier der Vereinigten Mulde kleiner als 0,5 ist. Diese Beobachtung wird in Abbildung 4.2 ebenfalls bestätigt.

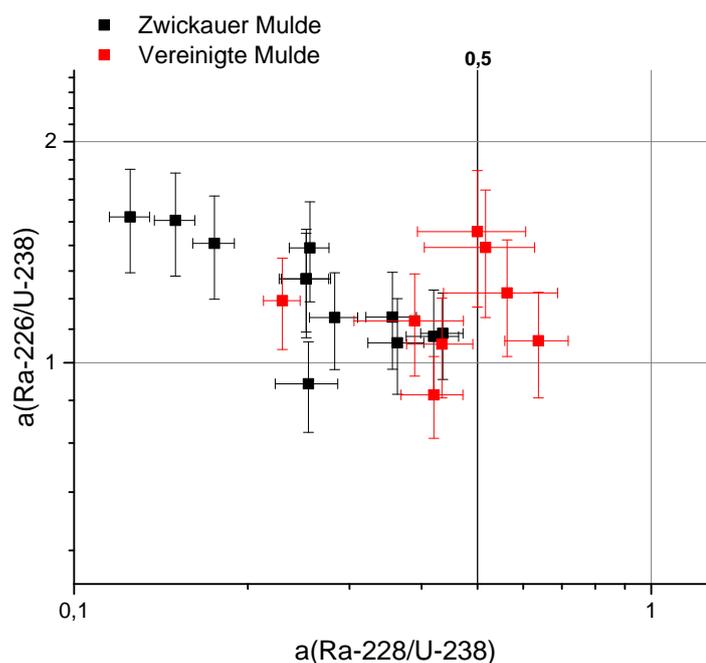


Abbildung 4.3.: Drei-Nuklid-Plot der spezifischen Aktivitäten von ^{238}U und ^{226}Ra und ^{228}Ra

Zudem ist das Verhältnis ^{226}Ra zu ^{238}U mit Ausnahme von einer Probe aus der Zwickauer Mulde und der Probe aus der Vereinigten Mulde, dessen Verhältnis von ^{228}Ra zu ^{238}U bereits größer 0,5 war, größer als eins. Weitere Erkenntnisse kann eine Betrachtung des Verhältnisses ^{210}Pb zu ^{226}Ra bringen. In Abbildung 4.4 ist dieses dargestellt.

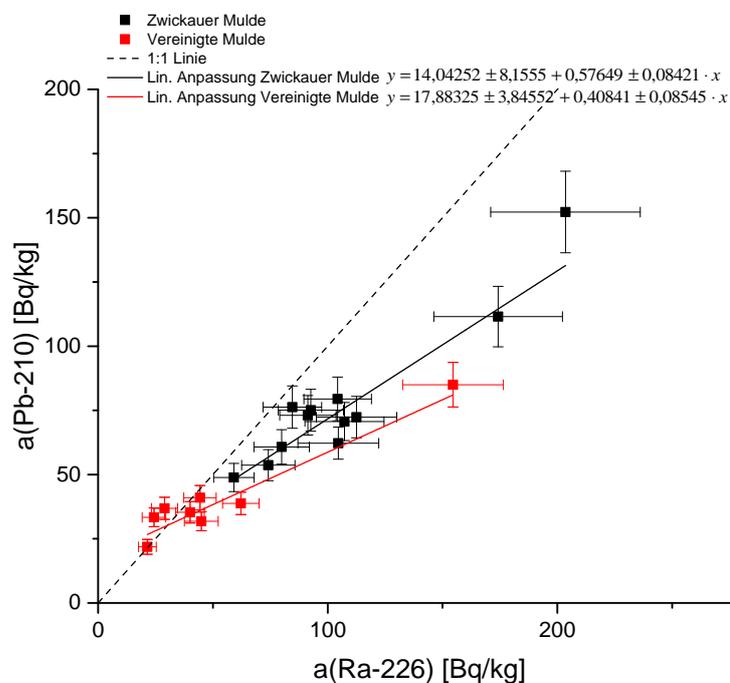


Abbildung 4.4.: Zwei-Nuklid-Plot der spezifischen Aktivitäten von ^{226}Ra und ^{210}Pb

Es zeigt sich auch hier wieder eine deutliche Verschiebung des Gleichgewichts. Ab einer spezifischen Aktivität von 50 Bq/kg von ^{226}Ra ist eine teils deutliche Verschiebung des Gleichgewichts zu ^{210}Pb zu erkennen. Unter der spezifischen Aktivität von 50 Bq/kg ist eine geringfügige Abweichung von zwei Proben der Vereinigten Mulde zu ^{210}Pb zu erkennen, die unter Berücksichtigung ihrer Unsicherheiten jedoch noch auf der Gleichgewichtslinie liegen. Auch hier weisen die Trendlinien eine geringere Steigung als die Gleichgewichtslinie auf. In diesem Verhältnis ist erstmals die Steigung der Trendlinie durch die Messwerte der Vereinigten Mulde mit $0,408 \pm 0,0855$ niedriger als die Steigung durch die Messpunkte der Zwickauer Mulde mit $0,576 \pm 0,0842$. Anzumerken ist dabei jedoch, dass lediglich zwei Werte der Zwickauer Mulde die Gleichgewichtslinie unter Berücksichtigung ihrer Unsicherheiten schneiden. Diese Erkenntnisse können jetzt zusammen mit dem Verhältnis ^{238}U zu ^{226}Ra in einem Drei-Nuklid-Plot dargestellt werden.

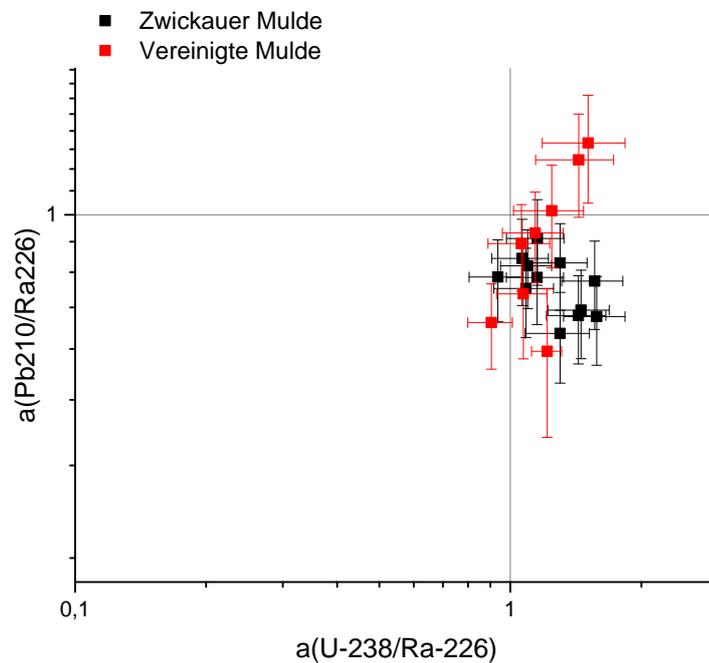


Abbildung 4.5.: Drei-Nuklid-Plot der spezifischen Aktivitäten von ^{238}U und ^{226}Ra und ^{210}Pb

In Abbildung 4.5 sind die Verhältnisse ^{210}Pb zu ^{226}Ra und ^{238}U zu ^{226}Ra dargestellt. Dieses Verhältnis ist zwar mit jeweils einer Ausnahme der Zwickauer und Vereinigten Mulde größer als 1, jedoch kann die 1 im Rahmen der Unsicherheiten dennoch erreicht werden. Auch dieser Plot deckt sich mit den Aussagen der Abbildung 4.4, da drei Messwerte der Vereinigten Mulde über dem Verhältnis von 1 liegen, zwei davon deutlich.

4.2.4. Betrachtung der Aktivitäten einzeln bezogen auf den Probenahmeort

In den vorangestellten Abschnitten wurde erwähnt, dass, insbesondere bei der Zwickauer Mulde, aber auch schwächer ausgeprägt bei der Vereinigten Mulde, eine Störung der radioaktiven Gleichgewichte vorliegt. Zur genaueren Betrachtung, wie stark sich der bei den Mittelwerten beobachtete Effekt auch bei den Einzelproben auswirkt, werden die spezifischen Aktivitäten

von ^{238}U , ^{228}Ra , ^{226}Ra und ^{210}Pb gesondert für die 20 untersuchten Sedimente betrachtet. Abbildung 4.6 zeigt die Ergebnisse.

Auch hier setzt sich der Trend, der schon in den Mittelwerten erkennbar ist, fort. Bei Betrachtung der einzelnen Sedimente liegt das Aktivitätsniveau der Radionuklide ^{238}U , ^{226}Ra und ^{210}Pb bei fast allen Sedimenten, mit Ausnahme der Probe VM_T37, über dem der Vereinigten Mulde. In der Zwickauer Mulde liegen die Aktivitäten von ^{226}Ra und ^{210}Pb teils deutlich unter der Aktivität von ^{238}U . Grundsätzlich sind die Aktivitäten niedriger einzuordnen, bei den Proben ZM_Alt, ZM_Roc, ZM_Ser, ZM_T05 und ZM_T15 sind sie jedoch noch unter Berücksichtigung der Unsicherheit mit der spezifischen Aktivität von ^{238}U vereinbar. Eine Besonderheit ist die Probe ZM_Lun. Zwar korrelieren die spezifischen Aktivitäten von ^{238}U und ^{226}Ra miteinander, jedoch ist dies die einzige Probe, die eine tendenziell höhere Aktivität von ^{226}Ra aufweist. In der Vereinigten Mulde sind die Nuklide im Rahmen ihrer Unsicherheiten mit der jeweiligen Aktivität des ^{238}U vereinbar, jedoch auch hier wieder die Ausnahme der Probe VM_T37. Unter Berücksichtigung der Unsicherheit sind die Aktivitäten von ^{226}Ra und ^{210}Pb zwar miteinander vereinbar, jedoch ist auffällig, dass die spezifische Aktivität von ^{226}Ra grundsätzlich höher anzusehen ist, als die von ^{210}Pb . In der Vereinigten Mulde ist dies für VM_T40, VM_T51, VM_T54 und VM_Zsc nicht zutreffend, für die anderen Proben der Vereinigten Mulde hingegen schon.

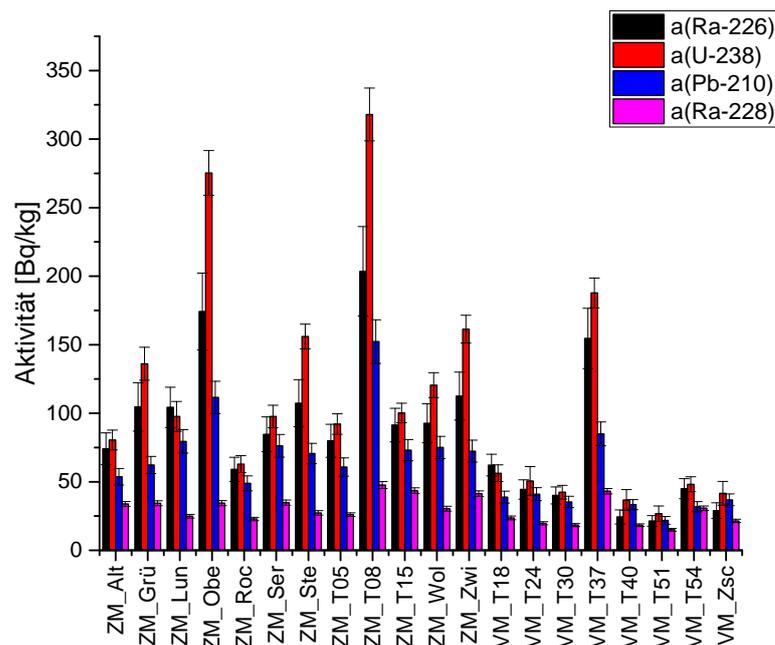


Abbildung 4.6.: Aktivitäten von ^{238}U , ^{228}Ra , ^{226}Ra und ^{210}Pb an den Probenahmeorten

4.2.5. Verteilung von U-238 und Ra-228 im Flussverlauf

In den vorangestellten Abschnitten stellte sich bereits ein immer noch vorliegender uranbergbaulicher Einfluss, insbesondere in der Zwickauer Mulde, heraus. Um einen Überblick über die Gebiete zu erhalten, in denen dieser Einfluss noch erkennbar ist, ist in Abbildung 4.7 das Aktivitätsverhältnis von ^{228}Ra zu ^{238}U über den Flussverlauf von Zwickauer und Vereinigter Mulde aufgetragen.

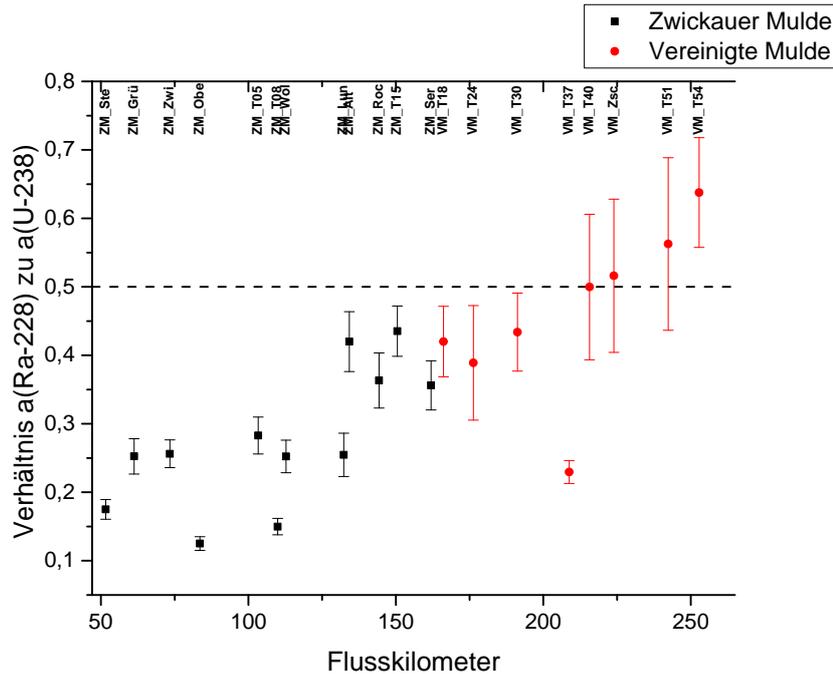


Abbildung 4.7.: Verhältnis der Aktivität von ^{228}Ra zu ^{238}U im Flussverlauf

Wie bereits in Abschnitt 2.1 erwähnt, kann das Aktivitätsverhältnis Aufschluss über eine uranbergbauliche Beeinflussung liefern. Werte unter 0,5 stellen ein Indiz für einen bergbaulichen Einfluss dar. Alle Sedimentproben der Zwickauer Mulde liegen auch unter Berücksichtigung ihrer Unsicherheiten deutlich unter 0,5. Gleiches gilt für vier Proben der Vereinigten Mulde. Die Probe VM_T40 bei Flusskilometer 215 liegt auf dem Niveau von 0,5. Die nachfolgenden Aktivitäten der Proben VM_Zsc und VM_T51 liegen mit ihren Aktivitätsverhältnissen über 0,5, die Probe VM_T51 sogar eingeschlossen ihrer Unsicherheiten.

4.2.6. K-40 und Cs-137

^{40}K und ^{137}Cs können keiner natürlichen Zerfallsreihe zugeordnet werden. Aus diesem Grund wird eine separate Betrachtung der spezifischen Aktivitäten durchgeführt.

Abbildung 4.8 zeigt die spezifischen Aktivitäten der Sedimentproben aus Zwickauer und Vereinigter Mulde. Anders als bei den zuvor betrachteten spezifischen Aktivitäten ist bei ^{137}Cs kein signifikanter Unterschied zwischen Zwickauer und Vereinigter Mulde erkennbar, jedoch ist für Proben der Vereinigten Mulde eine leicht geringere Aktivität im Vergleich zu erkennen. Die Probe VM_T30 weist mit 0,39 Bq/kg die geringste Aktivität aller betrachteten Proben auf, jedoch ist die Probe VM_T37 mit 4 Bq/kg die zweithöchste gemessene Aktivität hinter ZM_T08 mit 5,41 Bq/kg.

Die Betrachtung der spezifischen Aktivitäten von ^{40}K , Abbildung A.6, zeigt keine nennenswerten Auffälligkeiten. Aus diesem Grund ist eine graphische Darstellung im Anhang zu finden. In Abbildung 4.9 sind die prozentualen Änderungen von ^{137}Cs und ^{40}K in Bezug auf die Werte von 2008 dargestellt. Es ist zu erkennen, dass überwiegend eine Abnahme sowohl bei ^{40}K , als auch bei ^{137}Cs stattgefunden hat. Zudem sind die Änderungen bei ^{40}K , prozentual gesehen, deutlich geringer, als beim ^{137}Cs . Ein Zusammenhang zwischen den Sedimenten der Zwickauer und Vereinigten Mulde ist nicht zu erkennen. Die deutlichste Änderung für ^{137}Cs und auch

^{40}K ist bei ZM_Lun eingetreten. Die Zunahme von ^{137}Cs liegt bei 209% und die Abnahme von ^{40}K bei 38%. Weitere Zunahmen von ^{137}Cs ist bei ZM_Obe, VM_T37 und VM_T51 zu verzeichnen, die zwischen 1,7 für ZM_Obe und 47% bzw. 74% für VM_T37 und VM_T51 liegen. Zunahmen von ^{40}K treten in ZM_Ste, ZM_T08 und VM_T51 auf, die zwischen 2 bis 8,5 Prozent.

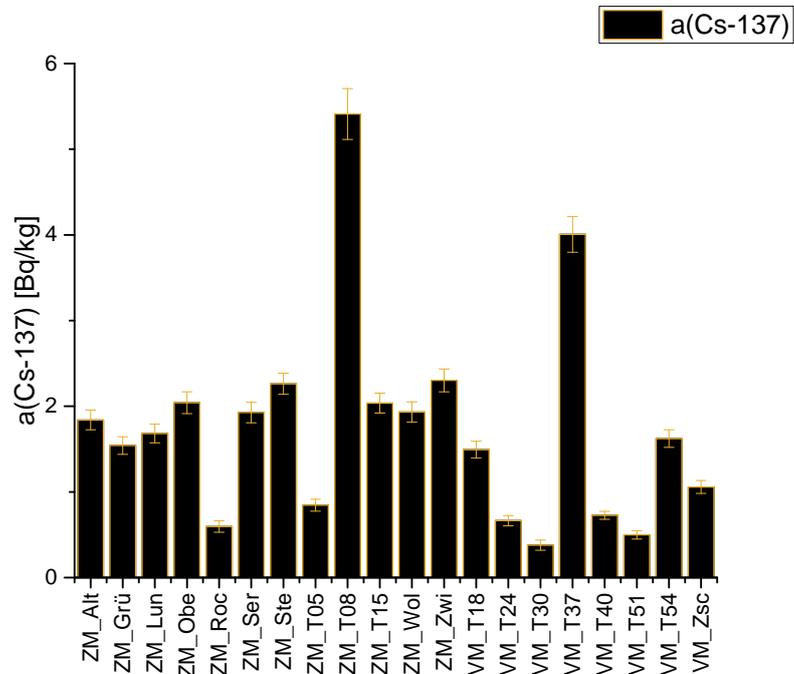


Abbildung 4.8.: Verteilung der Aktivität von ^{137}Cs an den Probenahmestellen

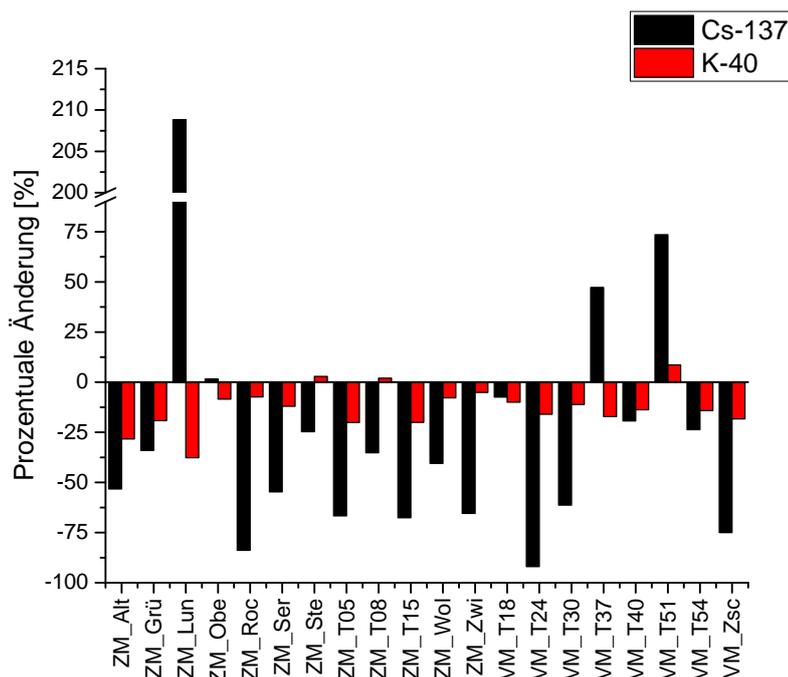


Abbildung 4.9.: Prozentuale Änderung zu den Messergebnissen des Mulde-I-Projektes von ^{40}K und ^{137}Cs an den Probenahmestellen

4.2.7. TransAqua Boden- und Litterproben

Diese Arbeit liefert aufgrund der gammaspektrometrischen Untersuchung der Boden- und Litterproben einen Beitrag zum BMBF-Verbundprojekt TransAqua, welches sich mit dem „Transfer von Radionukliden in aquatischen Ökosystemen“ beschäftigt. Ziel ist es, aus den Ergebnissen ein tiefgehendes Verständnis über die Ausbreitung von künstlichen Radionukliden in Wassersystemen bei einer möglichen Freisetzung zu erhalten. Die Proben stammen allesamt aus dem Fuhrberger Feld. Weitere Informationen zur Herkunft der Proben und über das BMBF-Verbundprojekt TransAqua können der Arbeit von Sebastian Faßbender [Faß16] entnommen werden. Eine Aufstellung der Proben mit Datum der Probenahme ist dem Anhang B.5 zu entnehmen.

Bei der Aufbereitung der Waldboden- und Litterproben wurde ähnlich wie beim Sediment vorgegangen. Da sich jedoch erheblich mehr organisches Material und kleine Steine im Probenmaterial befanden, wurde zweischrittig gesiebt, um das Bodenskelett zu entfernen. Folgend wurde, wie in 4.1.1 beschrieben, die Probe getrocknet und verpackt.

Die Litterproben SW1 Wald und T3 Wald wurden ebenfalls bei 105°C getrocknet. Zur Herstellung einer möglichst homogenen Probe wurde der Litter mittels eines Küchenhäckslers zerkleinert und anschließend durch ein 2 mm Sieb gesiebt. Der Rückstand wurde aufgefangen und ein weiteres Mal gehäckselt und wiederum gesiebt. Insgesamt drei Durchgänge je Probe wurden durchgeführt. Der jetzt noch verbliebene Rückstand wurde verworfen, da er im Wesentlichen aus groben Holzstücken und kleinen Steinen bestand. Im weiteren Verlauf folgt ein analoges Vorgehen zur Probenaufbereitung wie bereits in 4.1.1 beschrieben wurde.

Ergebnisse der TransAqua Boden- und Litterproben

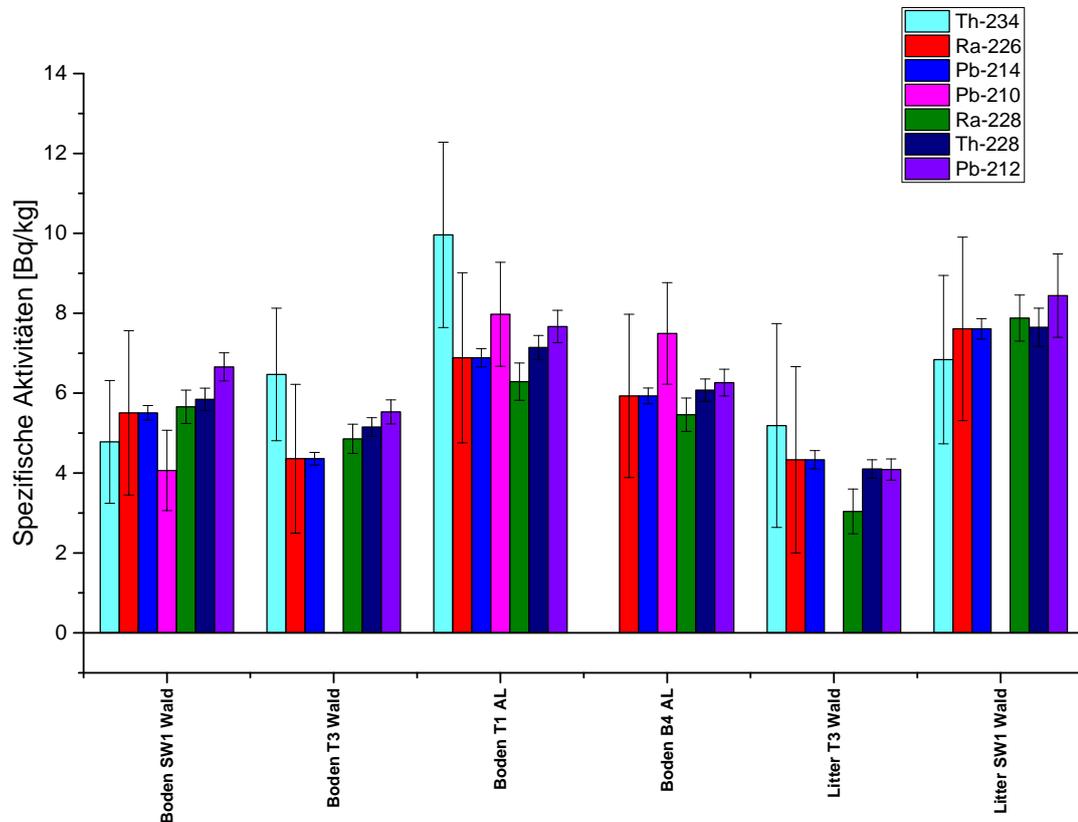


Abbildung 4.10.: Spezifischen Aktivitäten von ausgewählten Radionukliden aus der Uran-Radium- und Thoriumreihe

Die Abbildung 4.10 zeigt die spezifischen Aktivitäten aus der Uran-Radium- und Thoriumreihe. Die Analyse der Boden- und Litterproben zeigt, dass eine Vielzahl an Radionukliden der Uran-Radium- und Thoriumreihe enthalten sind. Die spezifische Aktivität von ^{234}Th liegt in der Bodenprobe B4 unter der Nachweisgrenze. Auf die Darstellung von ^{210}Pb wurde verzichtet. Für die geringe Dichte der Litterproben liegen keine Jäckel-Westmeier-Koeffizienten vor, sodass, insbesondere für Radionuklide mit niederenergetischer Gammastrahlung, keine aussagekräftige Aktivitätsbestimmung möglich ist. Die Glieder der Uran-Radium- und Thoriumreihe liegen innerhalb ihrer Unsicherheiten in gleichen Verhältnissen und damit nahezu in einem säkularen Gleichgewicht vor.

Abbildung 4.11 zeigt die Verteilung von ^{137}Cs und ^{40}K in den untersuchten Proben. Es fällt auf, dass in den Bodenproben im Vergleich zu den zugehörigen Litterproben eine deutlich geringere spezifische Aktivität von ^{137}Cs zu erkennen ist. Auffällig ist auch die niedrige spezifische Aktivität von ^{40}K in der Probe Boden SW1 Wald von lediglich 14 Bq/kg im Vergleich zur Litterprobe. Auch die Bodenprobe T3 Wald weist eine Aktivität von mehr als dem Zweifachen der Aktivität der zugehörigen Litterprobe auf. Die im Vergleich zu den zugehörigen Bodenproben extrem hohen spezifischen Aktivitäten des ^{137}Cs im Litter können zum jetzigen Zeitpunkt nicht abschließend erklärt werden. Ein Zusammenhang der im Vergleich zu den Waldbodenproben etwas höheren ^{40}K -Aktivitäten in den Ackerböden kann möglicherweise auf die in der Landwirtschaft verbreitete Kaliumdüngung zurückgeführt werden.

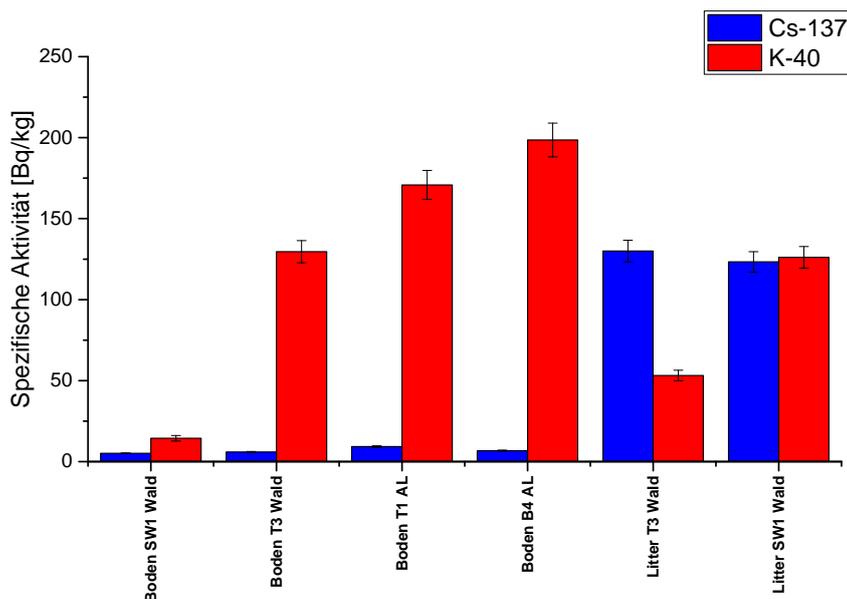


Abbildung 4.11.: Spezifische Aktivitäten von ^{137}Cs und ^{40}K

4.2.8. Ringversuch zur Bestimmung von Gammastrahlen im Wasser

Die Leitstelle für Radioaktivitätsüberwachung von Trinkwasser, Grundwasser, Abwasser, Klärschlamm und weiteren Abfällen des Bundesamtes für Strahlenschutz führte Anfang Oktober 2016 einen Ringversuch zum Nachweis von gammastrahlenden Nukliden in Wasser durch. Aufgabe war es, jeweils zwei getrennte Messungen von einem Modellwasser, welches aus einer Standardlösung der PTB mit Aktivitäten verschiedenster Radionuklide zwischen 1 Bq/l bis 100 Bq/l versetzt wurde und einer Realwasserprobe durchzuführen, die Radionuklide in einem Aktivitätsbereich von 0,2 Bq/l bis 100 Bq/l enthält. Als Referenzdatum wurde der 01. Oktober 2016 angegeben. Das IRS hat an diesem Ringversuch teilgenommen und insgesamt sechs Gammamessungen (je drei pro Probe) durchgeführt. Die für eine Vielzahl der betrachteten Radionuklide notwendigen Summationskorrekturfaktoren wurden [DS90] entnommen und mittels [SS00] auf mögliche Störlinien, sowohl zwischen den betrachteten Radionukliden, als auch aus dem Untergrund, geprüft und bei Vorliegen in die Berechnung aufgenommen. Die 22 möglichen Nuklide und deren berechnete Aktivitäten sind in Tabelle 4.4 nachfolgend gelistet. Die Real- und Modellwasserprobe wurden in 560 ml Marinellibecker geschüttet und mit Parafilm auslaufsicher verschlossen. Im Anschluss konnte sofort mit den Messungen begonnen werden. Die ausführlichen Ergebnisse sind dem Anhang ab Tabelle B.7 zu entnehmen, ebenso das dem BfS übersandte Formular. Eine Rückmeldung des BfS über die Stimmigkeit der berechneten spezifischen Aktivitäten ist im Rahmen dieser Arbeit jedoch nicht mehr zu erwarten.

Tabelle 4.4.: Übersicht über die übermittelten Ergebnisse des Modellwassers und Realwassers an das BfS

Nuklid	Probe 1/2016		Probe 2/2016	
	Messung 1 [Bq/l]	Messung 2 [Bq/l]	Messung 1 [Bq/l]	Messung 2 [Bq/l]
Na-22	< 0,0026	< 0,0073	< 0,0024	< 0,0018
K-40	< 1,03	< 2,58		
Cr-51	< 0,0067	< 0,0208	< 0,0069	< 0,0052
Mn-54	10,87 ± 0,56	10,86 ± 0,57	< 0,3	< 0,3
Fe-59	< 0,0032	< 0,1	< 0,0033	< 0,0025
Co-57	< 0,087	< 0,27	1,24 ± 0,08	1,26 ± 0,08
Co-58	< 0,0015	< 0,0046	< 0,0015	< 0,0012
Co-60	9,23 ± 0,73	9,2 ± 0,74	8,23 ± 0,65	8,11 ± 0,64
Zn-65	13,44 ± 0,69	13,53 ± 0,73	< 0,0036	< 0,0027
Sr-85	< 0,001	< 0,003	< 0,001	< 0,0077
Y-88	< 0,0028	< 0,0086	< 0,0028	< 0,0022
Ru-106	< 0,013	< 0,04	< 0,0133	< 0,01
Cd-109	< 0,014	< 0,044	< 0,0145	< 0,011
Sb-125	< 0,0013	< 0,0042		
I-131	< 0,0009	< 0,0028	< 0,0009	< 0,0007
Cs-134	27,74 ± 1,21	27,74 ± 1,21	2,37 ± 0,14	2,32 ± 0,13
Cs-137	16,39 ± 0,084	16,36 ± 0,86	7,74 ± 0,4	7,68 ± 0,4
Ba-133	< 0,0012	< 0,0038	< 0,0013	< 0,001
Ce-139	< 0,0005	< 0,0015	< 0,0005	< 0,0004
La-140	< 0,0064	< 0,02	< 0,0066	0,005
Eu-152	< 0,0029	< 0,009	0,79 ± 0,08	0,75 ± 0,07
Hg-203	< 0,0007	< 0,0022	< 0,0007	< 0,0006
Am-241	4,23 ± 0,44	4,39 ± 0,48	4,34 ± 0,45	4,29 ± 0,44

5. Diskussion und Vergleich

Für diese Arbeit, die sich zu einem Großteil mit geochemischen Verhältnissen von Radionukliden zur Klärung eines möglichen uranbergbaulichen Einflusses und Veränderungen durch das Muldehochwasser 2013 befasst, sind die Abbildungen 4.1 und 4.2 von zentraler Bedeutung. Es muss geklärt werden, welche Aussagen aus den Abbildungen zu ziehen sind. Wie bereits zu Abbildung 4.1 erwähnt wurde, ist das Gleichgewicht zwischen ^{238}U und ^{226}Ra in Richtung des ^{238}U für beide Flussabschnitte verschoben. Die Steigung der Trendlinie zu den Werten der Zwickauer Mulde ist im Vergleich zu der Trendliniensteigung der Vereinigten Mulde geringer. Somit ist eine stärkere Verschiebung des Gleichgewichts in der Zwickauer Mulde und damit gleichzeitig höhere Urangehalte in den Proben im Vergleich zur Vereinigten Mulde gezeigt. Es stellt sich im Nachfolgenden die Frage, wie diese Verschiebung erklärt werden kann. Zur Beantwortung der Frage muss allem voran gestellt die Herkunft der betrachteten Nuklide geklärt werden. Aufgrund der Sanierungsarbeiten ist ein frischer Eintrag von Tailingmaterial aus den Uranerzbergbaugebieten auszuschließen. Eine weitere, jedoch wegen der erfolgenden Wasseraufbereitung mittlerweile nur noch an einigen Standorten relevante, Kontaminationsquelle, wäre das Grubenwasser. Ein partikulärer Transport oder sich in Lösung befindliches ^{238}U und ^{226}Ra im Grubenwasser wäre denkbar, wobei das ^{238}U in sauerstoffarmen Bereichen des Flusses ausfällen und oder an das Sediment gebunden werden könnte, hingegen das ^{226}Ra weiter in Lösung bleibt und weggetragen wird. In Anbetracht der Tatsache, dass, wie im Folgenden noch näher erläutert wird, eine grundsätzliche Abnahme der Aktivitäten seit Beginn der Sanierungsmaßnahmen und im Vergleich zu 2008 erkennbar ist, ist ein kontinuierlicher Eintrag von Radionukliden durch das Grubenwasser recht unwahrscheinlich bzw. nur in Konzentrationen vorhanden, die sich nicht auf die Radionuklidkonzentrationen in erhöhender Wirkung auf das Sediment auswirken. Eine weitere Möglichkeit wäre die Verlagerung von bereits vorhandenem ^{238}U , welches gelöst wird und im weiteren Verlauf des Flusses ausfällt und zu höheren spezifischen Aktivitäten im Vergleich zu 2008 führt. Es wird deutlich, dass dieses Verhältnis lediglich ein Indiz für einen möglichen uranerzbergbaulichen Einfluss sein kann, jedoch kein Nachweis.

Zusammen mit den Erkenntnissen aus der Verschiebung des Gleichgewichts von ^{238}U zu ^{226}Ra kann mithilfe der Betrachtung des Gleichgewichts ^{238}U zu ^{228}Ra eine eindeutige Aussage über einen vorliegenden Einfluss des Uranerzbergbaus getätigt werden. ^{228}Ra wird als Tochter des ^{232}Th verwendet, um die spezifische Aktivität des ^{232}Th zu bestimmen. Aus diesem Grund wird im weiteren Verlauf auch vom ^{238}U zu ^{232}Th -Verhältnis gesprochen. Das Verhältnis ^{238}U zu ^{232}Th zeigt zusammen mit dem Verhältnis ^{238}U und ^{226}Ra die Einflüsse von Rohstoffen aus dem Uranerzbergbau auf. Mit den Beobachtungen aus 4.2 kann somit von einem Einfluss des Uranerzbergbaus im Muldesystem gesprochen werden, wobei der Einfluss in der Zwickauer Mulde größer als in der Vereinigten Mulde ist. In Abbildung 4.2 liegt das Verhältnis der Probe VM_T37, abgegrenzt von den anderen Proben der Vereinigten Mulde, in Richtung des ^{238}U verschoben. Ohne die Berücksichtigung dieser Sedimentprobe bei der Berechnung der Trendlinie wäre die Steigung der linearen Anpassung noch deutlich näher an dem empirisch gefundenen und geltenden 1:2-Verhältnis und würde eine deutlich geringere uranerzbergbauliche Belastung der Vereinigten Mulde zeigen. Auf weitere Besonderheiten der Probe VM_T54, die eine Erklärung für die klare Abgrenzung dieser Probe von den anderen betrachteten Sedimenten liefern, wird später noch einmal eingegangen. Diese Aussage wird auch durch die

Abbildung A.5 im Anhang bestätigt, die die Konsistenz in der Uran-Actinium-Reihe widerspiegelt und entsprechend eine ähnliche Verschiebung in Richtung des ^{235}U aufzeigt.

Der Drei-Nuklid-Plot 4.3 verdeutlicht noch einmal die aus den Verhältnissen ^{232}Th zu ^{238}U und ^{226}Ra zu ^{238}U gewonnenen Erkenntnisse durch Einzeichnen der Niveaulinie bei dem ^{232}Th zu ^{238}U Verhältnis von 0,5. Zu erkennen ist, dass vier Proben mit Verhältnissen von ^{232}Th zu ^{238}U über 0,5 liegen. Dieser Sachverhalt zeigt, dass für diese Proben im Rahmen ihrer Unsicherheit eine uranbergbauliche Beeinflussung vorliegen kann, jedoch nicht zwangsläufig muss. Unter Berücksichtigung der Unsicherheit ist ein uranbergbaulicher Einfluss der Probe VM_T37 hinsichtlich der bisher betrachteten geochemischen Verhältnisse auszuschließen.

Bei Betrachtung des Verhältnisses ^{210}Pb zu ^{226}Ra wurde in Abbildung 4.5 erkannt, dass drei Messwerte der Vereinigten Mulde über dem Verhältnis von 1 liegen, zwei davon deutlich und auch wieder die Probe VM_T54 unter Berücksichtigung der Unsicherheiten ein Verhältnis ^{210}Pb zu ^{226}Ra von echt größer 1 aufweist.

Allgemein kann so unter Berücksichtigung der Verhältnisse aus Kapitel 2.1 ein uranbergbaulicher Einfluss nicht bestritten werden. Es ist jedoch von einer geringeren Beeinflussung der Vereinigten Mulde im Vergleich zur Zwickauer Mulde auszugehen.

Diese Aussage bestätigt auch Abbildung 4.7. Erst ab Flusskilometer 215 kann von einem natürlichen Verhältnis gesprochen werden, wobei die Unsicherheiten der Proben VM_T40, VM_Zsc und VM_T51 jedoch Verhältnisse kleiner 0,5 abdecken. Lediglich bei der Probe VM_T54 bei Flusskilometer 252,83 kann ein bergbaulicher Einfluss unter Einbeziehung der Unsicherheiten ausgeschlossen werden. Insgesamt deutet sich mit zunehmender Flusslänge eine Zunahme des Verhältnisses an, also ein Rückgang der bergbaulichen Beeinflussung. Diese Erkenntnisse decken sich auch mit den Beobachtungen aus [Lül09].

Die Messwerte des Mulde-II-Projekts sollen mit denen von vorangegangenen Projekten verglichen werden. Dafür werden die Messwerte des Projektes „Schwermetallsituation im Muldesystem“ [Beu+99] aus dem Jahr 1993, die Messwerte aus dem Ad-hoc-Projekts „Schadstoffuntersuchungen nach dem Hochwasser vom August 2002“, Arbeitspaket 3.9 „Verlagerung natürlicher Radionuklide“ [Gel04; Mic+05] sowie die Ergebnisse Lüllaus aus dem Mulde-I-Projekte [Lül09] herangezogen.

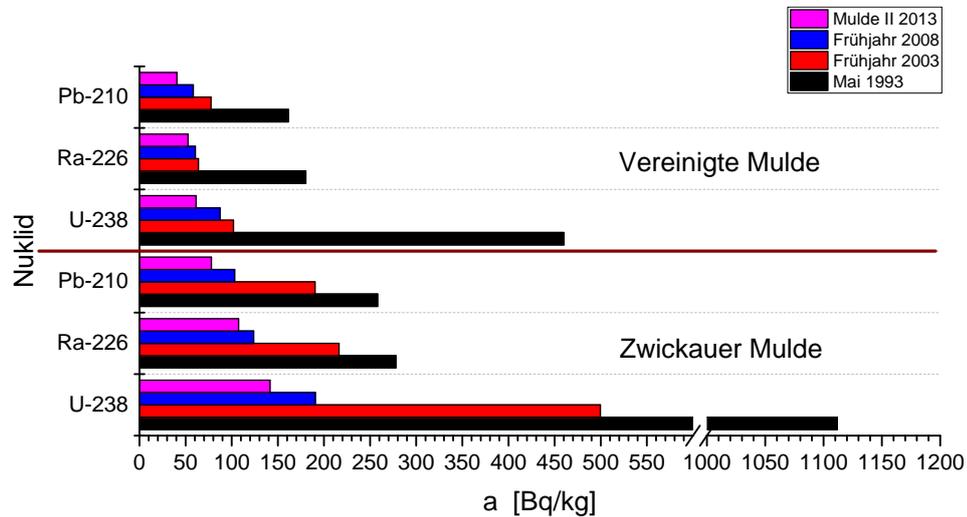


Abbildung 5.1.: Arithmetische Mittelwerte der spezifischen Aktivitäten der Sedimente von ^{238}U , ^{226}Ra und ^{210}Pb von 1993, 2003, 2008 und den Proben von 2013 aus dem Mulde-II-Projekt aus der Zwickauer und Vereinigten Mulde

Ein Vorteil bei dem Vergleich der zahlreichen Messwerte ist darin begründet, dass sich die Projekte an den gleichen Probenahmestellen orientieren. Abbildung 5.1 zeigt die zeitliche Entwicklung des arithmetischen Mittelwertes der spezifischen Aktivitäten von ^{238}U , ^{226}Ra und ^{210}Pb der Zwickauer und Vereinigten Mulde von 1993, 2003, 2008 und 2013. Die zugrunde gelegten Messwerte können Tabelle B.4 im Anhang entnommen werden.

Bei allen betrachteten Radionukliden der Zwickauer Mulde ist ein starker Trend zu sinkenden Radionuklidkonzentrationen zu erkennen. Von 1993 bis 2013 ist für ^{238}U eine Abnahme um 87%, für ^{226}Ra um 61% und für ^{210}Pb um 70% zu verzeichnen. Grund hierfür dürfte die Einstellung des Uranerzbergbaus und die darauffolgende Sanierung der Förderstätten gewesen sein. Von 1993 bis 2003 sind die spezifischen Aktivitäten von ^{238}U um 55%, die von ^{226}Ra um 22% und von ^{210}Pb um 26% gefallen. Von 2003 bis 2008 erfolgte ein Absinken von ^{238}U um 62%, von ^{226}Ra um 43% und von ^{210}Pb um 46%. Zwischen 2008 und 2013 sanken die Radionuklidgehalte von ^{238}U , ^{226}Ra und ^{210}Pb nochmals um 26%, 13% und 31%. Die Absenkung der Radionuklidgehalte ist auf die Sanierungsarbeiten zurückzuführen und auf die Tatsache, dass die Proben aus einem Fließgewässer stammen, somit eine ständige Mobilisierung von Sediment und untergeordnet eine Sedimentation kontaminierter Materials zu erwarten ist. Insbesondere ist der Einfluss der Wasseraufbereitungsanlagen der Grubenwässer erkennbar, da es zu keinem erneuten Eintrag von Radionukliden kommt. Jedoch trat zudem im August 2002 das so genannte Jahrhunderthochwasser auf und im Juni 2013 das bereits in Abschnitt 1.3 erwähnte Hochwasser ähnlichen Ausmaßes. Eine durch die Hochwasser eingeleitete bzw. verstärkte Verlagerung kontaminierter Sedimente hat vermutlich einen nicht unerheblichen Einfluss gehabt. Jedoch kann der vorliegenden Datengrundlage keine Dif-

ferenzierung zwischen einer normalen Abnahme der Aktivitäten durch in Lösung gehen der Radionuklide, sowie partikulärem Transport und Sedimentation kontaminierten Sediments und den extremen Hochwässern getätigt werden. Den Messwerten ist jedoch ein überproportional hohes Absinken der Uranaktivitäten im Vergleich zu Radium und Blei zu entnehmen. Radium und Blei weisen ähnliche Aktivitäten auf, insbesondere im Intervall 1993 bis 2003. Die mittleren spezifischen Aktivitäten der Vereinigten Mulde sind von 1993 bis 2013 um 87% bei ^{238}U , um 71%, bei ^{226}Ra und um 75% bei ^{210}Pb gesunken. Die Abnahme ist, verglichen mit der Zwickauer Mulde, für ^{238}U übereinstimmend, für ^{226}Ra und ^{210}Pb ähnlich. Von 1993 bis 2003 haben die Radionuklidkonzentrationen bei ^{238}U um 78%, bei ^{226}Ra um 65% und bei ^{210}Pb um 52% abgenommen. Ein weiteres Absinken der Aktivitäten folgte von 2003 bis 2008 um 14% bei ^{238}U , um 5% bei ^{226}Ra und um 25% bei ^{210}Pb . Im Zeitraum von 2008 bis 2013 sanken die Aktivitäten nochmals um 30% bei ^{238}U , um 13% bei ^{226}Ra und um 31% bei ^{210}Pb . Die Abnahme der spezifischen Uranaktivität ist, wie zuvor bei der Zwickauer Mulde, höher als die des Radiums und die des Bleis. Beim Vergleich des ^{226}Ra mit ^{210}Pb ist der Zeitraum 2003 bis 2008 zu erwähnen, in dem sich die Aktivitäten um den Faktor 5 unterscheiden und auch 2008-2013, in dem die Abnahme des Bleis annähernd doppelt so hoch wie die des Radiums gewesen ist. Zu erkennen ist hier eine stets höhere Abnahme von Blei als von Radium. Bei der Vereinigten Mulde trat die größte Abnahme der Kontamination im Zeitraum 1993 bis 2003 auf. Von 2003-2008 lässt sich nur eine geringfügige Abnahme erkennen, die jedoch im Intervall 2008 bis 2013, zumindest bei Uran und Radium, erheblich zunimmt. Bei einem Vergleich der Zwickauer Mulde mit der Vereinigten Mulde fällt auf, dass die Aktivitätsabnahme zwischen 2003 und 2008 bei der Zwickauer Mulde höher war und zudem die Differenz zwischen der Aktivitätsabnahme beider Zeitintervalle weniger groß.

Zusammenfassend kann die Abnahme der Aktivität sämtlicher Radionuklide im Wesentlichen auf den Einfluss der Wasseraufbereitungsanlagen und den Abtransport aufgrund des Fließgewässers sowohl der partikulär vorliegenden Sedimente, als auch der gelösten Radionuklide zurückgeführt werden. Die geringere Aktivitätsabnahme des Bleis im Vergleich zu Radium lässt auf einen partikulären Eintrag des Bleis im Sediment schließen. Zu berücksichtigen ist zudem noch, dass vier der acht untersuchten Sedimentproben der Vereinigten Mulde bereits mit dem natürlichen Untergrund der Freiburger Mulde vereinbar sind. Bei entsprechend wenig vorhandener Aktivität ist eine Abnahme im Verlauf der Zeit merklich geringer im Vergleich zu Flussabschnitten, in denen deutlich erhöhte Aktivitäten über dem natürlichen Niveau zu finden sind.

Es ist schwierig aus Mittelwerten, die zudem noch eine hohe Standardabweichung aufweisen, Rückschlüsse auf mögliche Einflüsse des Muldehochwassers von 2013 zu schließen. Aus diesem Grund wird die Verteilung der spezifischen Aktivitäten von ^{238}U im Flussverlauf dargestellt

5.0.1. Verteilung von U-238 im Flussverlauf im Vergleich

Abbildung 5.2 zeigt den Verlauf der spezifischen Aktivität von ^{238}U entlang der Zwickauer und Vereinigten Mulde. Es sind die Aktivitäten des aktuellen Projekts Mulde-II und zudem Vergleichswerte aus den Jahren 1993, 2003 und des Mulde-I-Projektes von 2008 dargestellt.

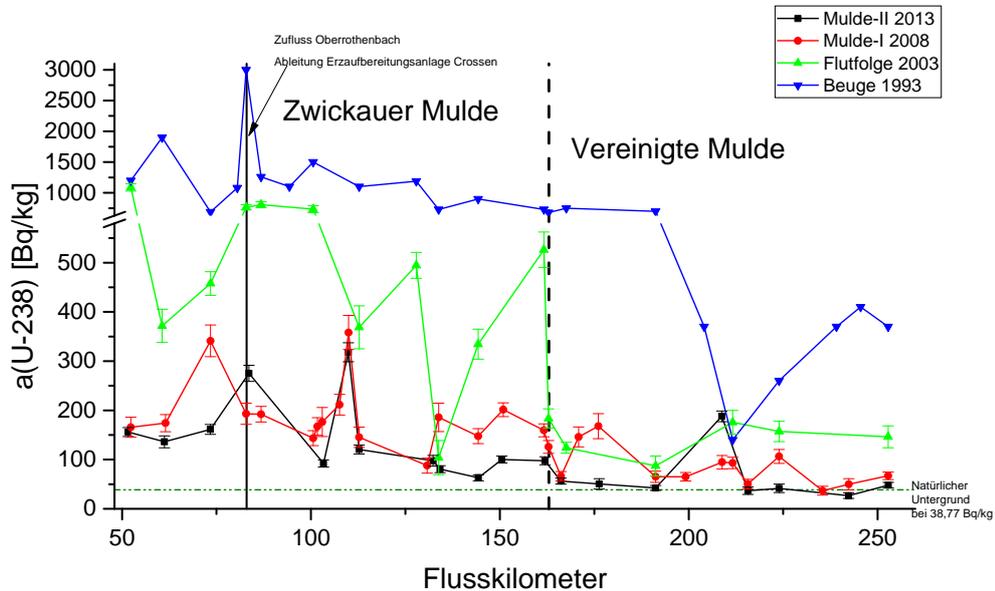


Abbildung 5.2.: Verteilung der spezifischen Aktivität von ^{238}U der Sedimente des Mulde-II-Projektes und vorangegangener Projekte im Flussverlauf

Die gestrichelte Linie kennzeichnet den Untergrund der Freiburger Mulde und wird im Rahmen dieser Arbeit als natürlicher Untergrund bezeichnet. Zwar fand im Einzugsgebiet der Freiburger Mulde Bergbau statt, jedoch kein Uranerzbergbau. Die Aktivität des Untergrundes setzt sich, wie bereits in Tabelle 4.3 dargestellt, aus spezifischen Aktivitäten von Proben der Freiburger Mulde zusammen. Die Probe FM_Nos wurde nahe der Stadt Nossen im Mittellauf der Freiburger Mulde genommen, die Probe FM_Ser nahe Sermuth, gut 1,5 km vor dem Zusammenfluss von Freiburger und Zwickauer Mulde.

Bei Betrachtung der Mittelwerte fällt der starke Abfall der Aktivität seit 1993 auf. Dennoch liegen die betrachteten Aktivitätsverläufe überwiegend über dem Referenzwert aus der uranbergbaulich unbelasteten Freiburger Mulde. Erst ab Flusskilometer 216 ist im Verlauf der Messwerte aus 2013 eine im Rahmen der Unsicherheit liegende Unterschreitung der Referenzlinie zu erkennen. Lediglich für VM_T51 kann eine Aktivität oberhalb der Referenz gänzlich ausgeschlossen werden. Auch hier zeigt das Überschreiten der Aktivitäten über die Referenzaktivität den uranbergbaulichen Einfluss. Die Aktivitätsverläufe weisen teils große Schwankungen auf, die durch Korngrößen und damit verbundene Sedimentationsbedingungen mitbeeinflusst sein können.

Ausführliche Beschreibungen und Erklärungsansätze der Daten von 1993 sind in [Bis12] und [Beu+99] nachzulesen.

Der Verlauf der spezifischen Aktivitäten von 2003 unterliegt starken Schwankungen. Der Übergang Zwickauer zu Vereinigter Mulde ist deutlich erkennbar, bei dem sich ein Niveau von et-

wa 150 Bq entlang der Vereinigten Mulde einstellt. Die Schwankungen können möglicherweise durch das Hochwasser 2002 und die dadurch hervorgerufene Verlagerungen des Sediments erklärt werden

Verglichen mit den Ergebnissen des Mulde-I-Projektes fällt auf, dass die Schwankungen entlang der Zwickauer Mulde zurückgegangen sind. Auffälligkeiten zeigt der Verlauf bei Kilometer 73 und 110. Eine Erklärung für Kilometer 73 ist spekulativ. Ein Erklärungsansatz wäre hier der Korngrößeneffekt. Bei Flusskilometer 110 ist eine Verunreinigung des Sediments durch Auenland nicht ausgeschlossen, da sich dort Abbruchstellen ausbilden [Bis12]. Eine Kontamination durch den Zufluss des Oberrothenbachs, der Ableitungen der zur Uranaufbereitungsanlage Crossen gehörenden IAA Helmsdorf bei Kilometer 83 zuleitete, ist nicht zu erkennen. Ab Flusskilometer 210 erreichen die Werte mit Berücksichtigung der Unsicherheit den natürlichen Untergrund, der durch die Freiburger Mulde repräsentiert wird.

Im Verlauf der Werte von 2013 ist im Vergleich zu 2008 kein signifikanter Anstieg bei Kilometer 73 zu erkennen. Jedoch ist der Zufluss des Oberrothenbachs mit 275 Bq/kg deutlich. Es stellt sich die Frage, ob das Sediment des vorherigen Messpunktes durch das Hochwasser 2013 verlagert wurde und somit ein erneuter Anstieg an dem Zufluss des Oberrothenbachs erfolgt ist, oder möglicherweise kontaminiertes Sediment aus tieferen Schichten freigelegt wurde, da bei der Probenahme tiefere Schichten nicht berücksichtigt werden. Ein ausführlicher Bericht über die Probenahme 2013 mit Einzelheiten über den Probenentnahmevergang ist dem Anhang beigelegt. Ebenfalls ist ein Anstieg bei Flusskilometer 110 von nahezu gleicher Höhe zu verzeichnen. Ab Flusskilometer fallen die Aktivitäten leicht unter das Niveau von 2008 bis Flusskilometer 208, wo ein Anstieg von dem natürlichen Untergrund auf 187 Bq/kg deutlich auf das Aktivitätsniveau von 2008 steigt. Bei dieser Probenahmestelle handelt es sich um die bereits mehrfach erwähnte Probe VM_T37. Ab Flusskilometer liegen die Aktivitäten weiterhin auf Niveau der Freiburger Referenzaktivität, teils sogar unter dem besagten Niveau.

5.0.2. Änderung in den Flussabschnitten und Konformität

Nachfolgend sollen die Änderungen der spezifischen Aktivitäten in den Sedimenten seit 2008 betrachtet werden. Nach Auswertung des Konformitätskriteriums sind lediglich 28,5% mit den Werten von 2008 verträglich. 9% weisen Veränderungen auf, bei denen eine Zunahme der Aktivitäten vorliegt.

Abbildung 5.3 zeigt die Änderungen der spezifischen Aktivitäten im Vergleich zu 2008 von ^{238}U , ^{228}Ra , ^{226}Ra und ^{210}Pb der jeweiligen Sedimente. Zunahmen von ^{238}U sind bei den Proben ZM_Lun, ZM_Obe, der bereits mehrfach erwähnten VM_T37 und VM_T51 zu erkennen. Die Zunahme der Aktivitäten schwankt dabei zwischen 9,8 Bq/kg für ZM_Lun und 82 Bq/kg für ZM_Obe, sowie zwischen 8,1 Bq/kg der Probe VM_T51 und 93 Bq/kg von VM_T37 in der Vereinigten Mulde. Die deutlichste Änderung von ^{238}U ist in ZM_Zwi eingetreten. Hier hat eine Abnahme von 180 Bq/kg stattgefunden. Generell liegen die Abnahmen des ^{238}U zwischen 40 Bq/kg und 105 Bq/kg bzw. zwischen 6% und 57% in der Zwickauer Mulde und zwischen 10 Bq/kg und 65 Bq/kg bzw. zwischen 15% und 70% in der Vereinigten Mulde. Eine Ausnahme bildet die Probe VM_T24, bei der eine Abnahme von 117 Bq/kg vorliegt. Es kann somit allgemein von geringeren Aktivitätsänderungen bezüglich des ^{238}U in der Vereinigten Mulde gesprochen werden. Bei ^{210}Pb tritt die größte Abnahme bei VM_T24 von 67 Bq/kg ein. Eine deutliche Erhöhung ist nur bei VM_T37 von 27 Bq/kg erkennbar. Eine weitere Zunahme zeigt in der Vereinigten Mulde nur noch VM_T51 von 6,2 Bq/kg, bei der im Rahmen des Konformitätskriteriums von einer Zunahme gesprochen werden kann. Weitere Zunahmen sind bei den Proben ZM_Lun und ZM_Obe zu erkennen, diese liegen jedoch unter Berücksichtigung der Konformität im Rahmen der Unsicherheiten. Eine gleiche Situation liegt bei den Zu- oder

Abnahmen von ZM_Wol, VM_T18, VM_T30, VM_T40 und VM_T54 vor.

^{228}Ra zeigt im Vergleich zu den bisher genannten Radionukliden die geringsten Zu- oder Abnahmen. Unter Berücksichtigung der Konformität kann jedoch nur für ZM_Obe, ZM_T08 und VM_T40 eine Änderung im Rahmen der Unsicherheit festgestellt werden. Die einzigen Zunahmen der Aktivität von ^{228}Ra , die im Übrigen nur in der Vereinigten Mulde vorliegen, sind bei VM_T37, VM_T51 und VM_T54 zu erkennen, bei denen es sich nach dem Konformitätskriterium um echte Zunahmen handelt. Alle Proben, die eine Zunahme von ^{238}U zeigen, sind begleitet von einer Zunahme von ^{226}Ra . Jedoch treten bei VM_T54, VM_T18 und ZM_T08 unabhängig voneinander Aktivitätserhöhungen auf, die im Rahmen der Unsicherheit mit den Werten von 2008 verträglich ist. Eine Zunahme von ^{227}Ac außerhalb der Unsicherheiten ist bei den Proben ZM_Lun, ZM_Ste und VM_T37 zu erkennen. Bei allen anderen Proben ist eine tendenzielle Abnahme der Aktivität meistens im Rahmen der Unsicherheit zu erkennen, jedoch auch vereinzelt außerhalb der Unsicherheit. Weitere Daten zum Konformitätskriterium und Erkenntnisse möglicher Zu- oder Abnahmen der spezifischen Aktivität der untersuchten Nuklide finden sich in den Tabellen B.10 bis B.15 im Anhang. Eine weitere Abbildung, die die prozentuale Abnahme der Aktivitäten ^{238}U , ^{228}Ra , ^{226}Ra und ^{210}Pb im Vergleich zu 2008 zeigt, ist ebenfalls dem Anhang in A.7 beigelegt.

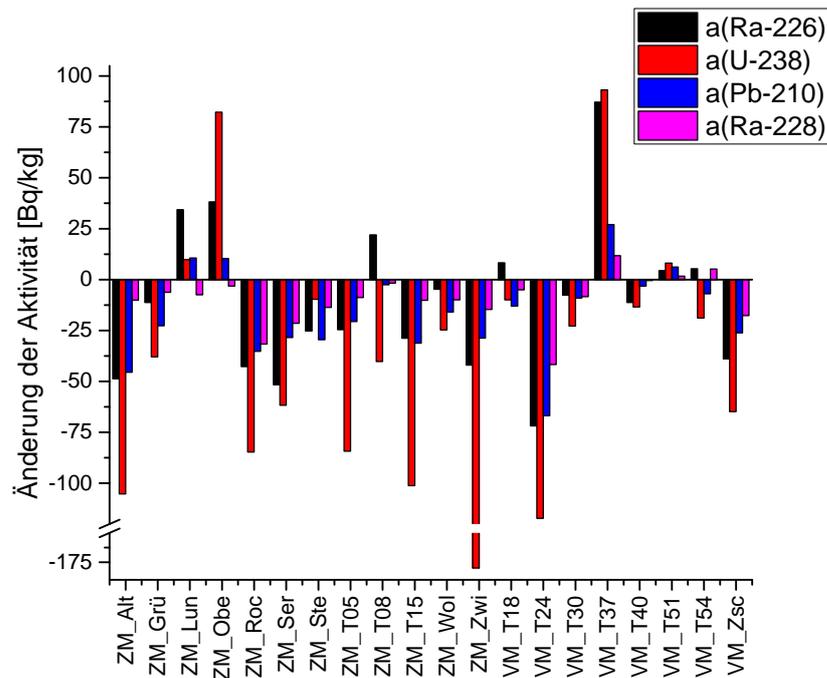


Abbildung 5.3.: Änderung der massenbezogenen Aktivitäten von ^{238}U , ^{228}Ra , ^{226}Ra und ^{210}Pb an den Probenahmeorten im Vergleich zu 2008

Auch hier kristallisieren sich Unregelmäßigkeiten der Proben VM_T37 und ZM_T08 heraus. Die Probe VM_T37 weist im Vergleich zu den übrigen Proben der Vereinigten Mulde sehr hohe Aktivitäten aller betrachteten Radionuklide und außerdem noch eine Zunahme seit 2008 auf. Auch ZM_T08 ist insofern besonders, da dies die Probe mit der höchsten spezifischen Aktivität von ^{238}U und ^{228}Ra ist.

Auch die spezifischen Aktivitäten des ^{137}Cs in Abbildung 4.8 spiegeln die hohen Aktivitäten der Proben VM_T37 und ZM_T08 wieder. Zurückzuführen sind die erhöhten Aktivitäten auf

Korngrößeneffekte, auf allgemein die Eigenschaften des Sediments und die 2013 herrschende Probenahmesituation. Je kleiner der Partikel, desto größer ist im Verhältnis seine Oberfläche und damit einhergehend das Adsorptionsvermögen für gelöste Radionuklide. Einen besonderen Einfluss hat jedoch die Zusammensetzung des Sediments. Es ist nicht auszuschließen, dass das 2013 genommene Sediment einen höheren Tonmineralanteil aufweist und dadurch ^{137}Cs besser adsorbiert als die Probe aus dem Mulde-I-Projekt. Eine Probenentnahme war nur unmittelbar am Ufer aufgrund des starken Gefälles zur Flussmitte hin möglich. Eine Kontamination des Sediments durch Erde ist wahrscheinlich. Im Detail ist die Probenahme im Probenahmebericht C.1 im Anhang nachzulesen.

Auch die prozentualen Änderungen der Aktivitätskonzentrationen von ^{137}Cs und ^{40}K weisen einen allgemeinen Trend zur Abnahme auf. Die Proben VM_T37 und ZM_Lun, geographisch der Zufluss des Oberrothenbachs, haben eine Sonderstellung, die nicht überrascht. Auch hier lässt Abbildung 5.3 den Schluss zu, dass eine Kontamination durch das ubiquitäre Vorhandensein des Cäsiums in der Umwelt im Flusssediment rückläufig ist, somit weniger Aktivität aus den Böden ausgespült wird, als im Sediment der Zwickauer und Vereinigten Mulde. Bei den Probenahmestellen, an denen keine signifikante Änderung festzustellen ist, scheint das ^{137}Cs fest im Sediment gebunden zu sein. Eine Verteilung der spezifischen Aktivität von ^{40}K ist in Abbildung A.6 dargestellt.

6. Zusammenfassung und Ausblick

Die im Rahmen dieser Arbeit gefundenen Ergebnisse der gammaspektrometrischen Untersuchung von Sedimentproben aus der Zwickauer und Vereinigten Mulde zeigen, dass auf dem überwiegenden Teil der beprobten Flussabschnitte weiterhin ein uranbergbaulicher Einfluss zu erkennen ist. Es zeigt sich, dass die Zwickauer und Vereinigte Mulde jedoch unterschiedlich stark durch den Bergbau beeinflusst sind. Die Zwickauer Mulde ist weiterhin deutlich belastet. Jedoch konnte im Vergleich zu früheren Untersuchungen, insbesondere zu [Beu+99] und [Mic+05], aber auch zu den Ergebnissen des Mulde-I-Projektes eine Abnahme der Mittelwerte aller darauf untersuchten Radionuklide festgestellt werden. Die höchste im Mulde-II-Projekt gemessene spezifische Aktivität des ^{238}U liegt bei 318 Bq/kg, der Maximalwert des Mulde-I-Projektes bei 358,2 Bq/kg. Unter Berücksichtigung des Konformitätskriteriums kann hier von keiner signifikanten Änderung der spezifischen Aktivität ausgegangen werden. Beide Messwerte liegen jedoch deutlich unter dem Wert von 1000 Bq/kg, die zuvor im Flutfolgeprojekt gemessen wurden. Zudem liegen weiterhin deutliche Ungleichgewichte zwischen ^{238}U , ^{226}Ra und ^{210}Pb vor. Der Rückgang der mittleren Aktivitäten seit 1993 kann jedoch auf die greifenden Sanierungsmaßnahmen der ehemals uranerzfördernden Einzugsgebiete der Mulde und auf das Fließgewässer mit seinen transportierenden Eigenschaften zurückgeführt werden.

Die Änderung der Radionuklidgehalte in der Vereinigten Mulde hat sich im Vergleich zu der Situation zu 2008 nicht wesentlich geändert. Der uranerzbergbauliche Einfluss ist im Allgemeinen zwar noch erkennbar, jedoch nähern sich die Radionuklidkonzentrationen, insbesondere ab Flusskilometer 215, dem in dieser Arbeit gesetzten natürlichen Verhältnis der Freiburger Mulde an. Zurückzuführen ist dies nicht zuletzt durch Verdünnungseffekte, die sich insbesondere auf den Unterlauf der Vereinigten Mulde auswirken. Bei vier der acht untersuchten Proben der Vereinigten Mulde konnte der Uranerzbergbau nicht explizit nachgewiesen werden, jedoch bei drei dieser Proben ein bergbaulicher Einfluss auch nicht ausgeschlossen werden kann.

In drei Proben zeigen sich Zunahmen spezifischer Aktivitäten aus der Uran-Radium-Reihe, die nicht im Rahmen der Unsicherheit liegen. Insbesondere ist dies in ZM_Obe, ZM_T08 und VM_T37 der Fall. ZM_Obe beprobt den Zulauf des Oberrothenbachs, die zwei anderen genannten Proben weisen keine geographische Besonderheit auf. Eine mögliche Erklärung der Zunahme der spezifischen Aktivitäten ist eine Verlagerung der Sedimente infolge des Hochwassers 2013, die aufgrund der vorliegenden Daten nicht ausgeschlossen werden kann, sowie eine mögliche Kontamination durch sich am Ufer befindliche Erde, sowie durch die probenspezifischen Eigenschaften der Sedimente, wie Korngrößeneffekt und chemischer Zusammensetzung. Im Vergleich zu den untersuchten Bodenproben von [Hei14] und [Mat14] liegen die spezifischen Aktivitäten unter denen des Grün- und Ackerlands. Im Verlauf der Zeit erfolgte kein oder nur ein nicht nachweisbarer Eintrag von Radionukliden in das Sediment. Vielmehr erfolgte überwiegend ein Abtransport, sodass in Zukunft eine voranschreitende Annäherung an das Aktivitätsniveau der Freiburger Mulde geschehen wird. Auch geschieht der Abtransport der Radionuklide im Fluss schneller im Vergleich zu den untersuchten Böden, wie die Untersuchungen zeigen. Es ist nach jetzigem Stand davon auszugehen, dass die extremen Hochwässer im Vergleich zu den jährlich auftretenden Hochwässern normalen Ausmaßes auf den untersuchten Grünland- und Ackerböden keine signifikanten Aktivitätsänderungen herbeigeführt

und dabei die Aktivitätskonzentrationen durch Auftragen des Sediments sowohl auf Böden, als auch durch Abtragung von Boden in die Mulde nicht verändert haben.

Literatur

- [16] *Lexikon der Geographie - Kosmogene Radionuklide*. November 2016.
- [Beu+99] P. Beuge u. a. *Die Schwermetallsituation im Muldesystem: Schlußbericht zu den Fördervorhaben Band I-III*. Hrsg. von Universität Hamburg. Freiberg, Hamburg, 1999.
- [Bil+] Wanja Bilinski u. a. *Ereignisanalyse Hochwasser Juni 2013*. Hrsg. von Sächsisches Landesamt für Umwelt, Landwirtschaft und Geologie.
- [Bir09] Jonny Hubertus Birkhan. » γ -Spektrometrie an Bodenproben von als Grünland genutzten Auenflächen der Zwickauer und Vereinigten Mulde«. Diplomarbeit. Hannover: Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover, 21. Januar 2008 - 28. März 2009.
- [Bis12] Stefan Bister. »Radioökologische Untersuchungen landwirtschaftlich genutzter Auen der Mulde zu den Folgen des ehemaligen Uranbergbaus«. Dissertation. Hannover: Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover, 2012.
- [Bük71] Harald Bükler. *Theorie und Praxis der Halbleiterdetektoren für Kernstrahlung*. Bd. 17. Technische Physik in Einzeldarstellungen. Berlin und Heidelberg: Springer, 1971.
- [DS90] Klaus Debertain und Ulrich Schötzig. *Bedeutung von Summationskorrekturen bei der Gammastrahlen-Spektrometrie mit Germaniumdetektoren*. Braunschweig: Physikalisch-Technische Bundesanstalt, 1990.
- [Faß16] Sebastian Faßbender. »Nachweis von Radionukliden in norddeutschen Trinkwasserreservoir«. Masterarbeit. Hannover: Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover, 2016.
- [Fri14] Harry Friedmann. *Einführung in die Kernphysik*. Hoboken: Wiley, 2014.
- [Gel04] Walter Geller, Hrsg. *Schadstoffbelastung nach dem Elbe-Hochwasser 2002: Endbericht des Ad-hoc-Projekts "Schadstoffuntersuchungen nach dem Hochwasser vom August 2002 - Ermittlung der Gefährdungspotentiale an Elbe und Mulde"*. Magdeburg und Halle, Saale: Universitäts- und Landesbibliothek Sachsen-Anhalt, 2004.
- [Gil08] Gordon Gilmore. *Practical gamma-ray spectrometry*. 2nd ed. Chichester, England und Hoboken, NJ: Wiley, 2008.
- [Hei14] Daniel Heine. »Hochwasserfolgen im Muldegebiet: Radiometrischer Nachweis von Uran und Folgeprodukten«. Bachelorarbeit. Hannover: Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover, 8.12.2014.
- [HHK81] Lieselott Herforth, Klaus Hübner und Hartwig Koch. *Praktikum der Radioaktivität und der Radiochemie: Teil I Radioaktivität Teil II Radiochemie*. Bd. 8. Physikalische Reihe, Lehrbücher und Monographien aus dem Gebiete der exakten Wissenschaften. Basel und s.l.: Birkhäuser Basel, 1981.
- [JWP87] B. Jäckel, W. Westmeier und P. Patzelt. »On the photopeak efficiency of germanium gamma-ray detectors«. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* 261.3 (1987), S. 543–548.
- [KL13] Jens-Volker Kratz und Karl Heinrich Lieser. *Nuclear and Radiochemistry: Fundamentals and Applications*. 3., rev. ed. Weinheim: Wiley, 2013.

- [Kno10] Glenn Frederick Knoll. *Radiation detection and measurement*. 4. ed. Hoboken, NJ: Wiley, 2010.
- [Kri12] Hanno Krieger. *Grundlagen der Strahlungsphysik und des Strahlenschutzes*. 4., überarb. u. erw. Aufl. Wiesbaden: Vieweg + Teubner, 2012.
- [Lül09] Torben Lüllau. »Gammaspectrometrische Untersuchungen von anthropogen beeinflussten Umweltproben«. Diplomarbeit. Hannover: Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover, April 2009.
- [Mag+15] Joseph Magill u. a. *Karlsruher Nuklidkarte*. 9. Auflage. Eggenstein-Leopoldshafen und Lage: Nucleonica GmbH und Marktdienste Haberbeck GmbH, 2015.
- [Mat14] Wiebke Matteikat. »Einfluss des Hochwassers 2013 auf die Urankontamination entlang der Mulde«. Bachelorarbeit. Hannover: Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover, 13.03.2014.
- [Mic+05] Rolf Michel u. a. »Radionuclides in the Mulde River System after the August-2002 Flood«. In: *Acta hydrochimica et hydrobiologica* 33.5 (2005), S. 492–506.
- [RB12] Beate Riebe und Stefan Bister. *Transport und Verfügbarkeit von Uran und langlebigen Zerfallsprodukten in Auenböden der Mulde: Abschlussbericht Förderkennzeichen 02 NUK 002D. Gefördert durch das Bundesministerium für Bildung und Forschung*. Hrsg. von Leibniz Universität Hannover. 2012.
- [Sol10] Alexander Solle. »Gamma-Spektrometrie an Bodenproben von als Ackerland genutzten Auenflächen der Vereinigten Mulde«. Diplomarbeit. Hannover: Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover, 13. Januar 2010.
- [SS00] Ulrich Schötzig und Heinrich Schrader. *Halbwertszeiten und Photonen-Emissionswahrscheinlichkeiten von häufig verwendeten Radionukliden*. 5., erw. und korr. Aufl. Bd. 16,5. PTB-Bericht Ra. Bremerhaven: Wirtschaftsverl. NW, 2000.
- [Sti10] Christian Stieghorst. »Gammaspectrometrische Untersuchung von Uran und seinen langlebigen Zerfallsprodukten an landwirtschaftlich genutzten Auenböden entlang der Zwickauer Mulde und Vereinigten Mulde«. Diplomarbeit. Hannover: Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover, Januar 2010.
- [Sto03] Werner Stolz. *Radioaktivität: Grundlagen - Messung - Anwendungen*. 4., überarbeitete und erweiterte Auflage. Wiesbaden und s.l.: Vieweg+Teubner Verlag, 2003.
- [Taw12] Frank Tawussi. »Gammaspectrometrische Untersuchung von Umweltproben - Von der natürlichen Radioaktivität zum Fallout von Fukushima«. Masterarbeit. Hannover: Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover, September 2012.
- [Wil90] Marvin Wilkening. *Radon in the environment*. Bd. 40. Studies in environmental science. New York, NY, U.S.A, Amsterdam und New York: Distributors for the U.S. and Canada Elsevier Science Pub. Co und Elsevier, 1990.
- [Wis11] Öffentlichkeitsarbeit Wismut GmbH. *Chronik der Wismut: Mit erweitertem Sanierungsteil (1998-2010)*. CD-ROM. Jagdschänkenstraße 29, 09117 Chemnitz, 2011.
- [Wis16] Wismut GmbH. www.wismut.de. aufgerufen im Juni 2016.
- [WW05] Klaus Weise und Wolfgang Wöger. *Meßunsicherheit und Meßdatenauswertung*. Forschen - Messen - Prüfen. Weinheim: Wiley-VCH, 2005.
- [Zim52] K. E. Zimen. *Angewandte Radioaktivität*. Berlin, Heidelberg und s.l.: Springer Berlin Heidelberg, 1952.

Abbildungsverzeichnis

1.1. Sächsisches Einzugsgebiet der Mulde	3
2.1. Die drei natürlichen Zerfallsreihen [Fri14]	6
3.1. Aufbau eines mit Stickstoff gekühlten Halbleiterdetektors [Gil08]	14
3.2. Durch das Koaxialdriftverfahren hergestellte zylindrische Ge(Li)-Detektoren. a) zweiseitig offener Germaniumdetektor, b) einseitig offener Germaniumdetektor [Bük71]	15
3.3. Absorptionskoeffizienten für Gammaquanten in Germanium in Abhängigkeit von der Energie [Gil08]	16
3.4. Schematischer Aufbau von koaxialen HPGe-Detektoren [Kno10]	16
3.5. Impulshöhenspektrum am Beispiel von ^{137}Cs [Gil08]	17
3.6. Impulshöhenspektrum am Beispiel von ^{28}Al [Gil08]	18
4.1. Zwei-Nuklid-Plot der spezifischen Aktivitäten von ^{238}U und ^{226}Ra	33
4.2. Zwei-Nuklid-Plot der spezifischen Aktivitäten von ^{238}U und ^{228}Ra	34
4.3. Drei-Nuklid-Plot der spezifischen Aktivitäten von ^{238}U und ^{226}Ra und ^{228}Ra	35
4.4. Zwei-Nuklid-Plot der spezifischen Aktivitäten von ^{226}Ra und ^{210}Pb	35
4.5. Drei-Nuklid-Plot der spezifischen Aktivitäten von ^{238}U und ^{226}Ra und ^{210}Pb	36
4.6. Aktivitäten von ^{238}U , ^{228}Ra , ^{226}Ra und ^{210}Pb an den Probenahmeorten	37
4.7. Verhältnis der Aktivität von ^{228}Ra zu ^{238}U im Flussverlauf	38
4.8. Verteilung der Aktivität von ^{137}Cs an den Probenahmestellen	39
4.9. Prozentuale Änderung zu den Messergebnissen des Mulde-I-Projektes von ^{40}K und ^{137}Cs an den Probenahmestellen	40
4.10. Spezifischen Aktivitäten von ausgewählten Radionukliden aus der Uran-Radium- und Thoriumreihe	41
4.11. Spezifische Aktivitäten von ^{137}Cs und ^{40}K	42
5.1. Arithmetische Mittelwerte der spezifischen Aktivitäten der Sedimente von ^{238}U , ^{226}Ra und ^{210}Pb von 1993, 2003, 2008 und den Proben von 2013 aus dem Mulde-II-Projekt aus der Zwickauer und Vereinigten Mulde	47
5.2. Verteilung der spezifischen Aktivität von ^{238}U der Sedimente des Mulde-II-Projektes und vorangegangener Projekte im Flussverlauf	49
5.3. Änderung der massenbezogenen Aktivitäten von ^{238}U , ^{228}Ra , ^{226}Ra und ^{210}Pb an den Probenahmeorten im Vergleich zu 2008	51
A.1. Säkulares Gleichgewicht - Relative Aktivitäten der Mutter- und Tochternuklid nach der Separation von ^{238}U und ^{234}Th [Gil08]	66
A.2. Transientes Gleichgewicht - Relative Aktivitäten von Mutter- und Tochternuklid nach der Separation von ^{95}Zr und ^{95}Nb [Gil08]	67
A.3. Kein Gleichgewicht - Relative Aktivitäten von Mutter- und Tochternuklid nach der Separation von ^{210}Bi zu ^{210}Po [Gil08]	68
A.4. Absorptionskoeffizienten für Gammaquanten in Germanium in Abhängigkeit von der Energie [Gil08]	71

A.5. Zwei-Nuklid-Plot der spezifischen Aktivitäten von ^{235}U und ^{227}Ac	72
A.6. Verteilung der Aktivität von ^{40}K an den Probenahmestellen	73
A.7. Prozentuale Änderung der massenbezogenen Aktivitäten von ^{238}U , ^{228}Ra , ^{226}Ra und ^{210}Pb an den Probenahmeorten	73
C.1. Probenahmebericht Seite 1	92
C.2. Probenahmebericht Seite 2	93
C.3. Probenahmebericht Seite 3	94
C.4. Probenahmebericht Seite 4	95
C.5. Probenahmebericht Seite 5	96
C.6. Probenahmebericht Seite 6	97
C.7. Probenahmebericht Seite 7	98

Tabellenverzeichnis

2.1. Ursachen für Störungen von geochemischen Verhältnissen und die zugehörigen Indikatoren in Form von Aktivitätsverhältnissen zwischen einzelnen Radionukliden nach [Mic+05]	10
3.1. Betrachtete Radionuklide mit Energien der Gammalinien und Emissionswahrscheinlichkeiten	12
3.2. Technische Spezifikationen des Germaniumhalbleiterdetektors	19
4.1. Übersicht der Probenentnahmepunkte mit Zuordnung der Flusskilometer. Als Referenz dient die Kilometrisierung von 2008. Zusätzlich sind die Abweichungen von 2008 zu 2013 angegeben	29
4.2. Arithmetische Mittelwerte und geometrische Mittelwerte der spezifischen Aktivitäten der betrachteten Nuklide mit zugehörigen Standardabweichungen (SD)	31
4.3. Aufstellung der Hintergrundaktivitäten. Gelistet sind die arithmetischen Mittelwerte der spezifischen Aktivitäten der Sedimente von ^{238}U , ^{226}Ra , ^{210}Pb und ^{228}Ra mit ihren als Unsicherheit angegebenen Standardabweichungen sowie die Messergebnisse der Freiburger Mulde.	32
4.4. Übersicht über die übermittelten Ergebnisse des Modellwassers und Realwassers an das BfS	43
B.1. Angewendete Software zur Textverarbeitung, Tabellenkalkulation und Grafikerstellung	75
B.2. Dichtestandards mit zugehöriger Dichte, auf die im Rahmen dieser Arbeit zurückgegriffen werden konnte	75
B.3. Verzeichnis der untersuchten Mulde-II-Proben Gammasspektrometrisch vermessene Sedimentproben aus der Zwickauer und Vereinigten Mulde mit Probenentnahmedatum mit Uhrzeit, Messdatum, Geografischer Lage, Füllgewicht des Marinellibechers, Dichte und Efficiency.	76
B.4. Mittelwerte	77
B.5. Verzeichnis der untersuchten TransAqua-Proben Gammasspektrometrisch vermessene Sedimentproben aus der Zwickauer und Vereinigten Mulde mit Probenentnahmedatum mit Uhrzeit, Messdatum, Geografischer Lage, Füllgewicht des Marinellibechers, Dichte und Efficiency.	78
B.6. Spezifische Aktivitäten ausgewählter Radionuklide aus der Uran-Radium- und Thoriumreihe der TransAqua Boden- und Litterproben	79
B.7. Messergebnisse des Ringversuchs „Gammastrahlen in Wasser“ Tabelle 1/3	80
B.8. Messergebnisse des Ringversuchs „Gammastrahlen in Wasser“ Tabelle 2/3	81
B.9. Messergebnisse des Ringversuchs „Gammastrahlen in Wasser“ Tabelle 3/3	82
B.10. Messergebnisse des Mulde-II-Projekts. Überprüfung auf Konformität der Messergebnisse des Mulde-II-Projekts mit den Ergebnissen des Mulde-I-Projekts (A). Die Konformität berechnet sich zu $\sqrt{2} \cdot \sqrt{u^2(x_1) + u^2(x_2)}$. Nuklide, deren spezifische Aktivitäten unter der Nachweisgrenze liegen, sind mit u.N. gekennzeichnet. Tabelle 1a	83

B.11. Messergebnisse des Mulde-II-Projekts. Überprüfung auf Konformität der Messergebnisse des Mulde-II-Projekts mit den Ergebnissen des Mulde-I-Projekts (A). Die Konformität berechnet sich zu $\sqrt{2} \cdot \sqrt{u^2(x_1) + u^2(x_2)}$. Nuklide, deren spezifische Aktivitäten unter der Nachweisgrenze liegen, sind mit u.N. gekennzeichnet. Tabelle 1b	84
B.12. Messergebnisse des Mulde-II-Projekts. Überprüfung auf Konformität der Messergebnisse des Mulde-II-Projekts mit den Ergebnissen des Mulde-I-Projekts (A). Die Konformität berechnet sich zu $\sqrt{2} \cdot \sqrt{u^2(x_1) + u^2(x_2)}$. Nuklide, deren spezifische Aktivitäten unter der Nachweisgrenze liegen, sind mit u.N. gekennzeichnet. Tabelle 2a	85
B.13. Messergebnisse des Mulde-II-Projekts. Überprüfung auf Konformität der Messergebnisse des Mulde-II-Projekts mit den Ergebnissen des Mulde-I-Projekts (A). Die Konformität berechnet sich zu $\sqrt{2} \cdot \sqrt{u^2(x_1) + u^2(x_2)}$. Nuklide, deren spezifische Aktivitäten unter der Nachweisgrenze liegen, sind mit u.N. gekennzeichnet. Tabelle 2b	86
B.14. Messergebnisse des Mulde-II-Projekts. Überprüfung auf Konformität der Messergebnisse des Mulde-II-Projekts mit den Ergebnissen des Mulde-I-Projekts (A). Die Konformität berechnet sich zu $\sqrt{2} \cdot \sqrt{u^2(x_1) + u^2(x_2)}$. Nuklide, deren spezifische Aktivitäten unter der Nachweisgrenze liegen, sind mit u.N. gekennzeichnet. Tabelle 3a	87
B.15. Messergebnisse des Mulde-II-Projekts. Überprüfung auf Konformität der Messergebnisse des Mulde-II-Projekts mit den Ergebnissen des Mulde-I-Projekts (A). Die Konformität berechnet sich zu $\sqrt{2} \cdot \sqrt{u^2(x_1) + u^2(x_2)}$. Nuklide, deren spezifische Aktivitäten unter der Nachweisgrenze liegen, sind mit u.N. gekennzeichnet. Tabelle 3b	88
C.1. Test auf Normalverteilung Überprüfung der Messwerte des gesamten Flussverlaufs auf Normalverteilung mittels Shapiro-Wilk-Test. W beschreibt die Prüfgröße, n ist der Stichprobenumfang. α ist das Signifikanzniveau (es wurde $\alpha = 0,05$ gewählt). Für $P < \alpha$ kann die Annahme einer Normalverteilung abgelehnt werden.	89
C.2. Test auf Normalverteilung Überprüfung der Messwerte der Zwickauer Mulde auf Normalverteilung mittels Shapiro-Wilk-Test. W beschreibt die Prüfgröße, n ist der Stichprobenumfang. α ist das Signifikanzniveau (es wurde $\alpha = 0,05$ gewählt). Für $P < \alpha$ kann die Annahme einer Normalverteilung abgelehnt werden.	89
C.3. Test auf Normalverteilung Überprüfung der Messwerte der Vereinigten Mulde auf Normalverteilung mittels Shapiro-Wilk-Test. W beschreibt die Prüfgröße, n ist der Stichprobenumfang. α ist das Signifikanzniveau (es wurde $\alpha = 0,05$ gewählt). Für $P < \alpha$ kann die Annahme einer Normalverteilung abgelehnt werden.	90
C.4. Test auf logarithmische Normalverteilung Überprüfung der Messwerte des gesamten Flussverlaufs auf Normalverteilung mittels Shapiro-Wilk-Test. W beschreibt die Prüfgröße, n ist der Stichprobenumfang. α ist das Signifikanzniveau (es wurde $\alpha = 0,05$ gewählt). Für $P < \alpha$ kann die Annahme einer Normalverteilung abgelehnt werden.	90

C.5. Test auf logarithmische Normalverteilung Überprüfung der Messwerte der Zwickauer Mulde auf Normalverteilung mittels Shapiro-Wilk-Test. W beschreibt die Prüfgröße, n ist der Stichprobenumfang. α ist das Signifikanzniveau (es wurde $\alpha = 0,05$ gewählt). Für $P < \alpha$ kann die Annahme einer Normalverteilung abgelehnt werden.	91
C.6. Test auf logarithmische Normalverteilung Überprüfung der Messwerte der Vereinigten Mulde auf Normalverteilung mittels Shapiro-Wilk-Test. W beschreibt die Prüfgröße, n ist der Stichprobenumfang. α ist das Signifikanzniveau (es wurde $\alpha = 0,05$ gewählt). Für $P < \alpha$ kann die Annahme einer Normalverteilung abgelehnt werden.	91

A. Erläuterungen und Ergänzungen

A.1. Kapitel 2

A.1.1. Kosmogene Radionuklide

Unaufhörlich trifft hochenergetische, ionisierende Strahlung, die so genannte Höhenstrahlung oder kosmische Strahlung, auf die Erdatmosphäre. Die hauptsächlich in der kosmischen Strahlung enthaltenen Protonen und Heliumkerne weisen dabei Energien von 10^9 bis 10^{20} Elektronvolt auf, die aufgrund der hohen Energien beim Eintreten in die Erdatmosphäre in Wechselwirkung mit Luftatomen treten und so ein Strahlungsfeld aus Protonen, Neutronen, Mesonen, Gammaquanten und anderen hochenergetischen Teilchen in Form eines Teilchenschauers erzeugen und die Erdatmosphäre durchsetzen [Kri12]. Radioaktive Isotope und auch stabile Isotope reichern sich im Sediment in linearer Abhängigkeit von der Dauer der Exposition zur Strahlung an. Dabei seien Böden und auch Lössablagerungen mit langsamer Sedimentation genannt [16]. Ein Beispiel für ein durch Spallationsneutronen in der Atmosphäre erzeugtes kosmogenes Radionuklid ist das Kohlenstoffisotop ^{14}C . Es entsteht durch eine N-P-Reaktion.

A.1.2. Radioaktive Gleichgewichte

Der überwiegende Teil der in dieser Arbeit betrachteten Radionuklide ist Teil der bereits erwähnten drei natürlichen Zerfallsreihen. Somit sind die Tochterprodukte der betrachteten Zerfälle im Allgemeinen nicht stabil, sondern zerfallen über weitere radioaktive Umwandlungen. Das im Abschnitt 2.2.1 eingeführte Zeitgesetz der Radioaktivität ist zur hinreichenden Beschreibung in der kennengelernten einfachen Form nicht mehr anwendbar. Für eine Beschreibung müssen Bildung und Zerfall jedes einzelnen Tochternuklids und auch deren Anregungszustände im Nuklid selbst betrachtet werden [Kri12].

Stimmt die Aktivität der Radionuklide innerhalb der Zerfallskette

$$\text{Nuklid 1} \rightarrow \text{Nuklid 2} \rightarrow \dots \rightarrow \text{Nuklid } n \tag{A.1}$$

annähernd überein, so befinden sich die Radionuklide in einem säkularen Gleichgewichtszustand¹. Um diesen Ablauf von Zerfallsprozessen beschreiben zu können, müssen zunächst einige Annahmen getroffen werden.

Sei N im Folgenden die Anzahl der vorliegenden Mutternuklide zur Zeit t mit Index N_1 . Die Anzahl der Atome des durch den Zerfall des Mutternuklids neu gebildete Tochternuklid sei N_2 , zusätzlich gelte $N_2 = 0$ zum Zeitpunkt $t = 0$. Zur Analyse sei außerdem vorausgesetzt, dass das Mutternuklid ausschließlich in reiner Form vorliegt und nur über einen Zerfallskanal in das Tochternuklid zerfällt, was für nachfolgende Generationen ebenfalls gelten soll. Zu jedem Zeitpunkt wird die Nettoproduktionsrate des Tochternuklids bestimmt durch die Abbaurate des Mutternuklids, die lediglich durch die Zerfallsrate des Tochternuklids verringert wird. Es

¹Voraussetzung des Vorliegens eines säk. Gleichgewichts ist ein langlebigeres Mutternuklid im Vergleich zur Halbwertszeit aller Töchter

ergibt sich somit

$$\frac{dN_2}{dt} = -\frac{dN_1}{dt} - \lambda_2 N_2 = \lambda_1 N_1 - \lambda_2 N_2 \quad (\text{A.2})$$

Der erste Term stellt den Zerfall der Mutter dar und ist gleichbedeutend mit der Produktion des Tochternuklids. Der zweite Term stellt den Zerfall der Tochter dar. Da das Mutternuklid in dieser Betrachtung nicht nachproduziert wird, gilt das bekannte Zerfallsgesetz, welches eingesetzt in Gl. A.2 eine lineare Differentialgleichung erster Ordnung liefert:

$$\frac{dN_2}{dt} + \lambda_2 \cdot N_2(t) - \lambda_1 \cdot N_1^0 \cdot e^{-\lambda_1 t} = 0 \quad (\text{A.3})$$

Die Lösung der Differentialgleichung erster Ordnung ist

$$N_2 = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_1^0 \left(e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t} \right) + N_2^0 e^{-\lambda_2 t}, \quad (\text{A.4})$$

wobei N_2^0 die Anzahl der Atome vom Tochternuklid zur Zeit $t = 0$ darstellt.

Sind Mutter- und Tochternuklid voneinander quantitativ getrennt zum Zeitpunkt $t = 0$, bilden sich zwei Fraktionen. In der Fraktion, die das Tochternuklid enthält, wird das Tochternuklid nicht länger durch den Zerfall der Mutter erzeugt und für die das Mutternuklid enthaltende Fraktion lässt sich das Anwachsen der Tochteraktivität im Zeitverlauf beobachten. Damit ergibt sich die vereinfachte Gleichung

$$N_2 = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_1^0 \left(e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t} \right) \quad (\text{A.5})$$

Weitere Umstellungen liefern letztlich

$$N_2 = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_1 \left[1 - e^{-(\lambda_2 - \lambda_1)t} \right]. \quad (\text{A.6})$$

Damit Aussagen über die zeitliche Entwicklung von Aktivitätsverhältnissen getroffen werden können, wird Gleichung A.6, die eine Aussage über die Teilchenanzahl N trifft, in eine Gleichung für Aussagen über die Aktivität umgeformt. Um die Aktivität berechnen zu können, muss lediglich mit der Zerfallskonstanten λ multipliziert werden. Nach äquivalenter Multiplikation von λ_2 und nachfolgender Division durch $A_1(t)$ ergibt sich letztlich

$$\frac{A_2(t)}{A_1(t)} = \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} \left[1 - e^{(\lambda_1 - \lambda_2)t} \right] \quad (\text{A.7})$$

In einer radioaktiven Umwandlungsreihe ändert sich die Kernanzahl N_i des i -ten Nuklids durch die Abnahme aufgrund der Umwandlung ($-\lambda_i N_i$) und durch Nacherzeugung, die im Folgenden durch eine Funktion $q_i(t)$ beschrieben werden soll. Somit ist die Differenz von Nacherzeugung und Abnahme die zeitliche Änderung von $N_i(t)$ und es gilt

$$\frac{dN_i(t)}{dt} = q_i(t) - \lambda_i N_i(t). \quad (\text{A.8})$$

Die allgemeine Lösung dieser Differentialgleichung lautet

$$N_i(t) = \left[N_i(0) + \int_0^t q_i(t') e^{\lambda_i t'} dt' \right] e^{-\lambda_i t} \quad (\text{A.9})$$

Die Gleichungen A.6 bzw. A.9 sollen nachfolgend für drei Spezialfälle näher betrachtet werden. Dabei handelt es sich um das säkulare, transiente und kein Gleichgewicht. Für diese Arbeit ist jedoch nur das säkulare Gleichgewicht maßgebend. Nähere Erläuterungen zum transienten Gleichgewicht und kein Gleichgewicht sind in A im Anhang zu finden.

Gleichgewichtszustände sind in sofern von Relevanz, weil sie bei der Bestimmung von Radionukliden mithilfe der Gammaskopie eine wichtige Rolle einnehmen [Lül09; KL13; Wil90; HHK81; Sol10].

A.1.3. Säkulares Gleichgewicht

Beim säkularen Gleichgewicht - oder auch Dauergleichgewicht genannt - findet eine konstante Nacherzeugung der Tochternuklide statt. Dies ist immer dann der Fall, wenn sich ein langlebiges Mutternuklid in ein im Vergleich sehr kurzlebige Tochternuklid umwandelt, somit

$$T_{1/2,1} \gg T_{1/2,2} \text{ bzw. } \lambda_1 \ll \lambda_2 \quad (\text{A.10})$$

gilt. Die Aktivität A_1 des Mutternuklids nimmt während des Betrachtungszeitraums nicht, oder nur vernachlässigbar wenig ab, so dass sie für die Nacherzeugung konstant ist und

$$q_2(t) = \lambda_1 N_i = A_1 = \text{const.} \quad (\text{A.11})$$

beträgt. Aus Gleichung A.9 ergibt sich unter Berücksichtigung von Gl. A.11 die Gleichung

$$N_2(t) = \frac{A_1}{\lambda_2} + \left[N_2(0) - \frac{A_1}{\lambda_2} \right] e^{-\lambda_2 t}, \quad (\text{A.12})$$

deren asymptotisches Verhalten ($t \rightarrow \infty$)

$$N_2(\infty) = \frac{A_1}{\lambda_2} \text{ bzw. } A_2(\infty) = A_1 \quad (\text{A.13})$$

einen Gleichgewichtszustand beschreibt. Eine zweite, vielleicht intuitivere Herangehensweise ist die Betrachtung von Gleichung A.7. Da die Halbwertszeit des Mutternuklids, wie bereits erwähnt, sehr groß ist im Vergleich zu derjenigen der Tochter, kann λ_1 vernachlässigt werden. Gleichung A.7 vereinfacht sich derart, dass das Aktivitätsverhältnis fortan nur noch von der Tochter bestimmt wird und es gilt

$$\frac{A_2(t)}{A_1(t)} = 1 - e^{-\lambda_2 t} = 1 - \underbrace{e^{-\frac{\ln(2)}{T_{1/2,2}} \cdot t}}_{\approx 0} \approx 1 \quad (\text{A.14})$$

Ein solches Gleichgewicht ist in Abbildung A.1 dargestellt.

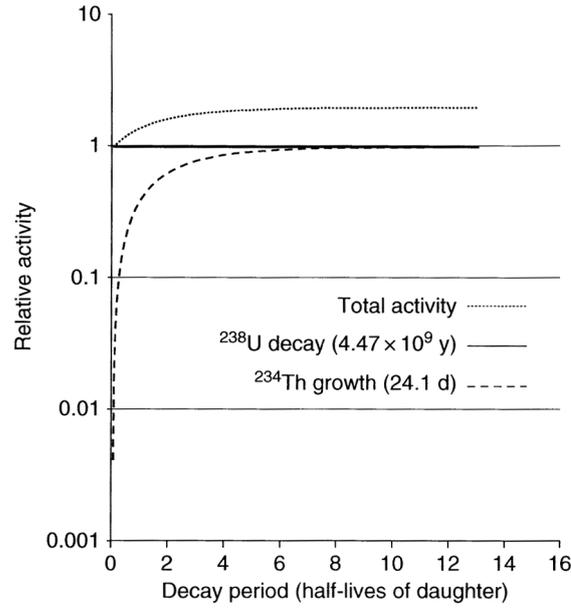


Abbildung A.1.: Säkulares Gleichgewicht - Relative Aktivitäten der Mutter- und Tochternuklid nach der Separation von ^{238}U und ^{234}Th [Gil08]

Im säkularen Gleichgewicht sind die Aktivitäten von Mutter- und Tochternukliden somit gleich. Innerhalb von sechs Halbwertszeiten der Tochter hat das Tochternuklid circa den Wert der Aktivität der Mutter erreicht, denn das Aktivitätsverhältnis beträgt bereits ungefähr 98,4%. Nach zehn Halbwertszeiten kann ein Gleichgewichtszustand angenommen werden. Das Aktivitätsverhältnis ist zu dieser Zeit auf mehr als 99,9% angestiegen [HHK81; Lül09].

A.1.4. Transientes Gleichgewicht

Ein transientes Gleichgewicht liegt vor, wenn die Halbwertszeit des Mutternuklids größer als die der Tochter ist, jedoch λ_M im Beobachtungszeitraum nicht vernachlässigt werden kann. Für das auch als laufendes Gleichgewicht bezeichnete Gleichgewicht gilt also

$$q_2(t) = \lambda_1 N_1(0) e^{-\lambda_1 t} \quad (\text{A.15})$$

und es ergibt sich aus Gleichung A.9

$$N_2 = \frac{1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_1^0 \left(e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t} \right) + N_2^0 e^{-\lambda_2 t} \quad (\text{A.16})$$

Für $t = 0$ und $t \rightarrow \infty$ existiert kein Tochternuklid. Es muss folgerichtig also eine Zeit t_{Max} geben, für die $N_2(t_{Max})$ ein Maximum annimmt. Berechnet werden kann dies durch Differenzieren von $N_2(t)$ nach der Zeit und anschließendes Nullsetzen.

$$t_{Max} = \frac{1}{\lambda_2 - \lambda_1} \ln \frac{\lambda_2}{\lambda_1} \quad (\text{A.17})$$

²Ist $N_2^0 = 0$, so ist in Gl. A.16 das additive Glied $N_2^0 e^{-\lambda_2 t}$ zu streichen.

Ist das Mutternuklid langlebiger als das Tochternuklid, gilt also $\lambda_1 < \lambda_2$, aber nicht $\lambda_1 \ll \lambda_2$, so stellt sich im asymptotischen Grenzfall das transiente Gleichgewicht

$$N_2(t) = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_1^0 e^{-\lambda_1 t} \quad \text{bzw.} \quad (\text{A.18})$$

$$A_2(t) = \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} A_1(t) \quad (\text{A.19})$$

ein. Grafisch dargestellt zeigt Abbildung A.2 ein transientes bzw. laufendes Gleichgewicht.

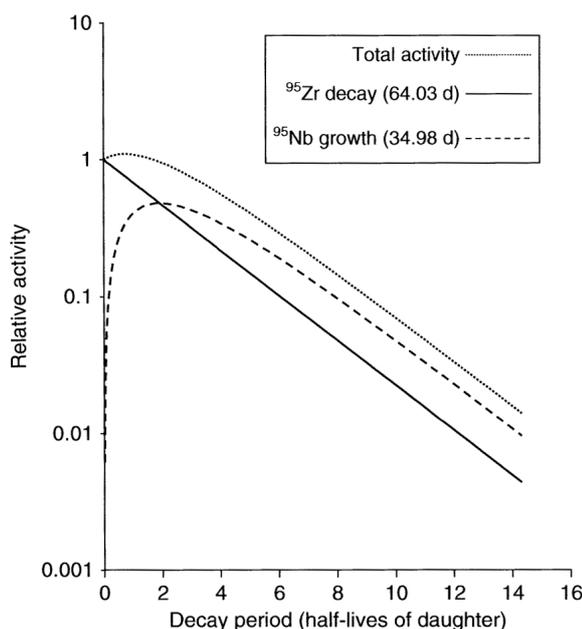


Abbildung A.2.: Transientes Gleichgewicht - Relative Aktivitäten von Mutter- und Tochternuklid nach der Separation von ^{95}Zr und ^{95}Nb [Gil08]

Die Aktivität des Tochternuklids klingt im transienten Gleichgewicht mit der Halbwertszeit der Mutter exponentiell ab, jedoch ist wegen $\lambda_2/(\lambda_2 - \lambda_1) > 1$ die Tochteraktivität eben um diesen konstanten Faktor größer als die der Mutter. Ebenso gilt für die Atomanzahl der Tochtersubstanz im laufenden Gleichgewicht, dass diese $T_{1/2,1}/(T_{1/2,1} - T_{1/2,2})$ mal größer ist als die Menge im dauernden Gleichgewichtszustand. Für Halbwertszeit-Verhältnisse wie in A.10 geht Gleichung A.19 in A.13 über.

Im säkularen Gleichgewicht verhalten sich also die Anzahlen der Atome von Mutter- und Tochternuklid wie ihre Halbwertszeiten. Im laufenden Gleichgewicht ist das Mengenverhältnis jedoch zugunsten der Tochtersubstanz verschoben, der Abfall der Tochtersubstanz somit dem der Muttersubstanz um einen bestimmten Betrag hinterher läuft [Lül09; Sto03; HHK81] und [Zim52].

A.1.5. Kein Gleichgewicht

Ist das Tochternuklid langlebiger als das Mutternuklid, gilt also $\lambda_1 > \lambda_2$ bzw. $T_{1/2,1} < T_{1/2,2}$, so stellt sich kein Gleichgewicht ein.

Zur Berechnung kann A.16 herangezogen werden. Werden Mutter- und Tochternuklid voneinander getrennt, so wächst die Aktivität der Tochter aufgrund ihrer Nacherzeugung an, erreicht ein Maximum und fällt letztlich mit der Halbwertszeit des Tochter wieder ab. Abb. A.3 zeigt als Beispiel die Umwandlung von ^{210}Bi zu ^{210}Po .

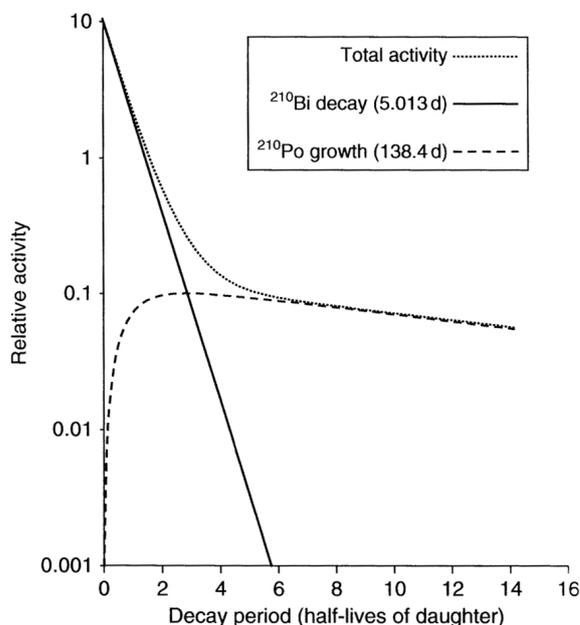


Abbildung A.3.: Kein Gleichgewicht - Relative Aktivitäten von Mutter- und Tochternuklid nach der Separation von ^{210}Bi zu ^{210}Po [Gil08]

A.2. Kapitel 3

A.2.1. Photoeffekt

Beim Photoeffekt, photoelektrischen Effekt, oder auch Photoionisation genannt, wird die gesamte Energie eines Photons $E_\gamma = h\nu$ an ein Hüllenelektron abgegeben. Im Allgemeinen werden Elektronen aus der K-, L-, oder M-Schale gelöst, wobei die Wahrscheinlichkeit des Auslösens aus der K-Schale 80% beträgt, die restlichen 20% sich auf die übrigen Schalen verteilen [Sto03].

Durch das Herauslösen des Elektrons wird das Atom ionisiert, das herausgelöste Elektron wird als Photoelektron bezeichnet. Aufgrund der Impulserhaltung kann der Photoeffekt jedoch nicht mit freien Elektronen stattfinden, weil sie nicht in der Lage sind, den Photonenimpuls komplett zu absorbieren.

Der Impulsübertrag des Photons muss somit auf das Photoelektron und das ionisierte Restatom übertragen werden. Weil die übertragene Energie auf das ionisierte Restatom jedoch vernachlässigbar klein ist, ergibt sich die Energie des Photoelektrons E_e als Differenz zwischen Photonenenergie E_γ und Bindungsenergie des Elektrons E_b und es gilt

$$E_e = E_\gamma - E_b. \quad (\text{A.20})$$

Durch die Verschiebung der Elektronen von den äußeren Schalen auf den durch den photoelektrischen Effekt freigewordenen Platz ist der Photoeffekt im Allgemeinen von einer Emission

von Röntgenquanten mit einer Energie begleitet, die sich aus der Differenz der Bindungsenergien ergibt. Zudem liegt eine Asymmetrie der räumlich verteilten Photoelektronen vor. Weiche Gammaquanten rufen bevorzugt einen 90° Winkel zwischen der Flugrichtung der Photoelektronen und den Gammaquanten hervor, wobei bei höherenergetischen Quanten der Winkel kleiner ausfällt. Hier findet die Winkelverteilung bevorzugt in Vorwärtsrichtung statt.

Walther Heitler hat für Gammaenergien, die größer als die Elektronenbindungsenergie der K-Schale des betroffenen Absorberatoms ist, den Photoeffekt-Absorptionskoeffizienten abgeleitet. Dieser lautet

$$\mu_{Phot} \sim 10^{-33} N Z^5 E_\gamma^{-3,5} [cm^{-1}]. \quad (A.21)$$

N bezeichnet die Anzahl der Absorberatome pro Kubikzentimeter, Z die Ordnungszahl der Absorberatome und E_γ die Energie des einfallenden Photons.

Gleichung A.21 macht deutlich, dass der Photoeffektabsorptionskoeffizient mit der fünften Potenz des Absorbers zunimmt, jedoch auch mit der Photonenenergie wiederum schnell abnimmt.

Für Silizium ($Z = 14$) ist der Photoeffekt beispielsweise nur bis einer Photonenenergie von ca. 200 keV von Relevanz, während er bei Germanium ($Z = 32$) bis etwa 600 keV eine merkliche Rolle einnimmt [Sto03; Bük71] und [Kri12].

A.2.2. Comptoneffekt

Der Comptoneffekt kann als inelastische Wechselwirkung zwischen einem Photon und einem äußeren, schwach gebundenen Hüllenelektron eines Absorberatoms verstanden werden.

Während beim Photoeffekt die gesamte Energie des Photons an ein gebundenes Elektron übertragen wird, wird bei der Comptonstreuung nur ein Teil der Photonenenergie und des Impulses an das Elektron übertragen, wobei das Photon zusätzlich eine Richtungsänderung erfährt. Das Rückstoßelektron, auch als Compton-Elektron bezeichnet, verlässt die Atomhülle, wodurch das Atom einfach ionisiert wird. Im Vergleich zum Photoeffekt gewinnt dieser Streuprozess mit zunehmender Energie der primären Gammastrahlung an Bedeutung. Für den Energieverlust der Gammastrahlung ist die Compton-Wechselwirkung für Silizium im Energiebereich zwischen 60 keV und 15 MeV und für Germanium zwischen 160 keV und 8,5 MeV der dominierende Mechanismus.

Ein wesentlicher Unterschied des Compton-Streuprozesses zur elastischen Streuung besteht in der Wellenlänge des gestreuten Gammaquants. Nach der Streuung hat es eine größere Wellenlänge, d. h. eine niedrigere Energie als das primäre Gammaquant. Die Energie des gestreuten Gammaquants hängt vom Streuwinkel, d. h. dem Winkel zwischen Einfallsrichtung des Photons und letztlich seiner Streurichtung ab. Trifft ein Photon mit der Energie E_γ auf ein Hüllenelektron des Absorbermaterials und es findet ein Compton-Streuprozess statt, so geht das gestreute Quant mit der Energie E'_γ unter dem Streuwinkel Θ aus der Streuung hervor. Sei im Folgenden die Elektronenbindungsenergie im Atom vernachlässigt, so ergibt sich folgender Zusammenhang zwischen der Einfallsenergie E_γ , der Energie des ausfallenden Quants E'_γ und dem Streuwinkel Θ :

$$E'_\gamma = \frac{E_\gamma}{1 + \frac{E_\gamma}{m_0 c^2} (1 - \cos \Theta)} \quad (A.22)$$

Dabei bezeichne $m_0 c^2$ die Elektronenruheenergie.

Die Energie des Compton-Elektrons ergibt sich zu

$$E_e = E_\gamma - E'_\gamma. \quad (A.23)$$

Für die Rückstoßelektronen ergibt sich ein kontinuierliches Spektrum. Sie können Energien zwischen Null und einem Maximalwert annehmen, der einem Minimum von E'_γ entspricht. Aus Gl. A.22 folgt, dass dieses Maximum bei $\Theta = 180^\circ$ auftritt. Damit ergibt sich eine Maximalenergie des gestreuten Elektrons zu

$$(E_e)_{max} = \frac{2E_\gamma^2}{m_0c^2 + 2E_\gamma} \quad (\text{A.24})$$

mit m_0 der Ruhemasse der Elektronen und der Lichtgeschwindigkeit $c = 3 \cdot 10^8$ m/s. Im Energiespektrum der Compton-Elektronen bestimmt Gl. A.24 und damit das Energiemaximum $(E_e)_{max}$ die so genannte Comptonkante, auf die in Kapitel 3.4 eingehender Bezug genommen wird.

Jedes Hüllenelektron im Absorbermaterial trägt zum Compton-Effekt bei, weshalb der Compton-Absorptionskoeffizient zur Elektronendichte im Absorbermaterial, also zum Produkt NZ proportional ist. N bezeichne in diesem Zusammenhang die Atomanzahl und Z die Kernladungszahl.

Oskar Benjamin Klein und Yoshio Nishina leiteten für die Energien $E_\gamma > 1$ MeV den Ausdruck

$$\mu_{Compton} \sim 1,25 \cdot 10^{-25} NZ / \left\{ E_\gamma \cdot \left(\ln [2E_\gamma/m_0c^2] + \frac{1}{2} \right) \right\} [cm^{-1}] \quad (\text{A.25})$$

her. Aus diesem Zusammenhang geht hervor, dass der Absorptionskoeffizient für den Compton-Effekt umgekehrt proportional zur Energie der einfallenden Gammaquanten ist [Sto03; Bük71] und [Kri12].

A.2.3. Paarbildung

Liegt die Energie der einfallenden Gammaquanten über 1,02 MeV, so kann es zu einer dritten Wechselwirkung zwischen Photon und Atom kommen - der Paarbildung.

Mit zunehmender Energie gewinnt der Paarbildungsmechanismus immer mehr an Bedeutung und überwiegt sogar bei hohen Energien. Als Beispiele seien $E_\gamma > 15$ MeV für Silizium und $E_\gamma > 8,5$ MeV für Germanium angegeben.

Gammaquanten oberhalb von 1,02 MeV werden im Coulombfeld der Absorberatomkerne vollständig absorbiert, wobei ein Elektron-Positron-Paar entsteht. Aus Gründen der Impuls-, Ladungs- und Energieerhaltung muss stets ein dritter Stoßpartner vorhanden sein. Dieser ist meist ein Atomkern, der den Impuls übernimmt, aber wegen seiner verhältnismäßig großen Masse keine Rückstoßenergie aufnimmt.

Überschüssige Energie $E_\gamma - 1,02$ MeV verteilt sich somit als kinetische Energie auf das Elektron und das Positron. Es gilt

$$E_{e^-} + E_{e^+} = E_\gamma - 2m_0c^2. \quad (\text{A.26})$$

Liegen die Energien der einfallenden Photonen im Bereich der Schwellenenergie für die Paarbildung, so ergibt sich für den Paarbildungs-Absorptionskoeffizienten eine Abhängigkeit von der Einfallsenergie der Primärquanten E_γ und der Ordnungszahl der Absorberatome Z zu

$$\mu_{Paar} \sim NZ^2 (E_\gamma - 2m_0c^2). \quad (\text{A.27})$$

Für höhere Energien der Primärquanten ergibt sich jedoch ein anderer Zusammenhang, nämlich

$$\mu_{Paar} \sim NZ^2 \ln E_\gamma. \quad (\text{A.28})$$

Desweiteren kann ein entstandenes Positron bei Wechselwirkung mit einem Elektron mit eben diesem annihilieren. Bei der Annihilation entstehen zwei Gammaquanten mit charakteristischen Energien von 511 keV, der Ruheenergie des Elektrons, die das Elektron in Ruhe aufgrund seiner Masse besitzt. Diese so genannte Vernichtungsstrahlung kann im Gammaskpektrum als Annihilationspeak betrachtet werden.

Je nachdem, ob ein Photon (Single Escape (SE)), oder beide Photonen (Double Escape (DE)) den Detektor verlassen, treten Peaks im Spektrum bei $E_\gamma - 511 \text{ keV}$ oder $E_\gamma - 1022 \text{ keV}$ auf [Sto03; Kri12; Bük71] und [Hei14].

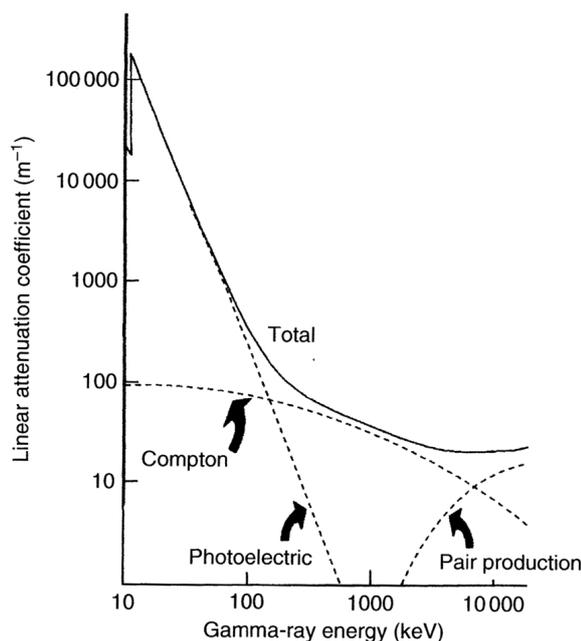


Abbildung A.4.: Absorptionskoeffizienten für Gammaquanten in Germanium in Abhängigkeit von der Energie [Gil08]

In Abb. A.4 ist der Verlauf der Absorptionskoeffizienten für den Photo-, Compton- und den Paarbildungseffekt im Germaniumkristall dargestellt.

Zusätzlich zu den drei Einzelabsorptionskoeffizienten ist der totale Absorptionskoeffizient aufgetragen.

Er ergibt sich durch Addition der Einzelabsorptionskoeffizienten zu

$$\mu_{total} = \mu_{Phot} + \mu_{Compton} + \mu_{Paar}. \quad (\text{A.29})$$

A.3. Kapitel 4

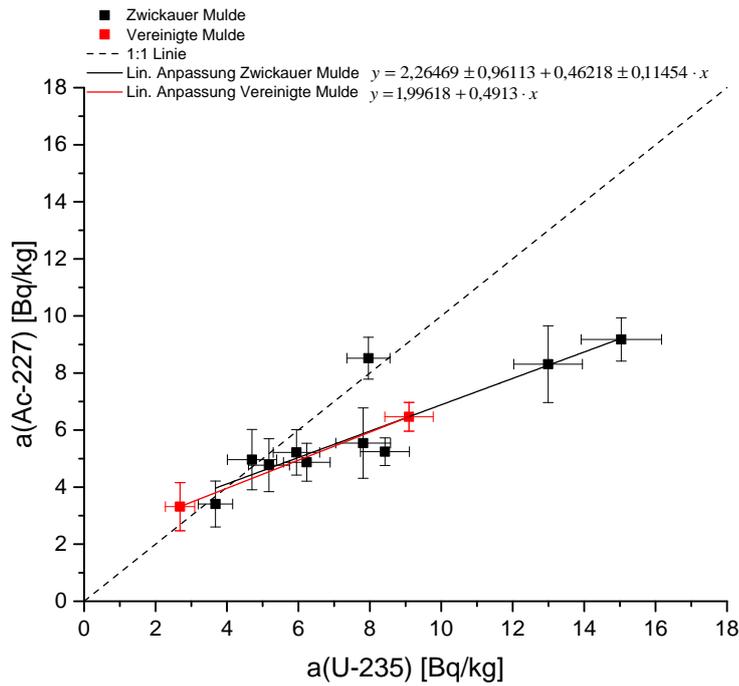


Abbildung A.5.: Zwei-Nuklid-Plot der spezifischen Aktivitäten von ^{235}U und ^{227}Ac

Es liegen wesentlich geringere Aktivitäten als in Abbildung 4.1 vor, dennoch sind die Abweichungen vom Gleichgewicht ähnlich stark ausgeprägt. Auch hier zeigen die Steigungen der linearen Anpassungen für die Zwickauer Mulde von $0,462 \pm 0,115$ und der Vereinigten Mulde von $1,491$ insbesondere für höhere Aktivitäten eine Verschiebung des Gleichgewichts in Richtung des ^{235}U . Ein Gleichgewichtszustand kann bis ca. 6 Bq/kg angenommen werden. Eine Ausnahme bildet die Probe *ZM_Ste* mit $7,96 \text{ Bq/kg}$ ^{235}U .

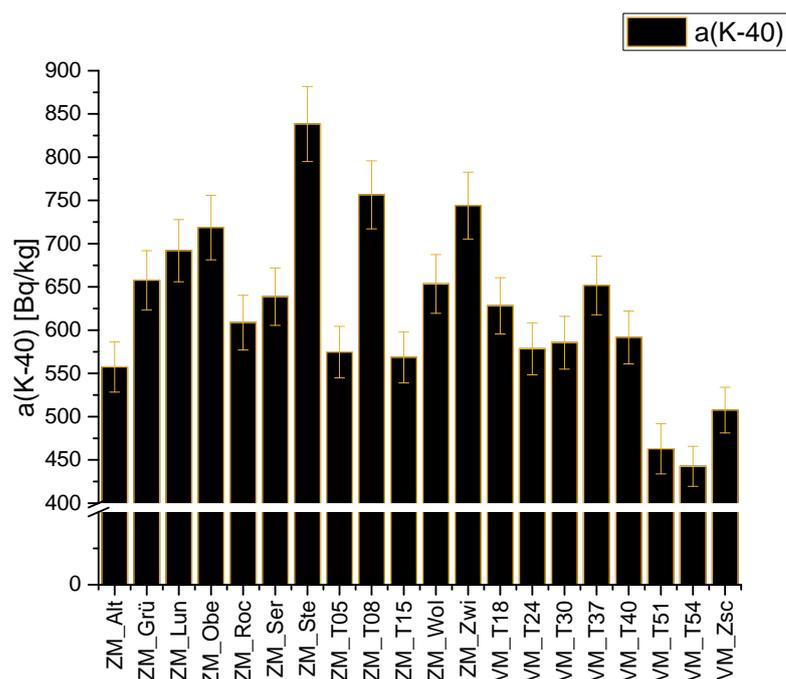


Abbildung A.6.: Verteilung der Aktivität von ^{40}K an den Probenahmestellen

A.4. Kapitel 5

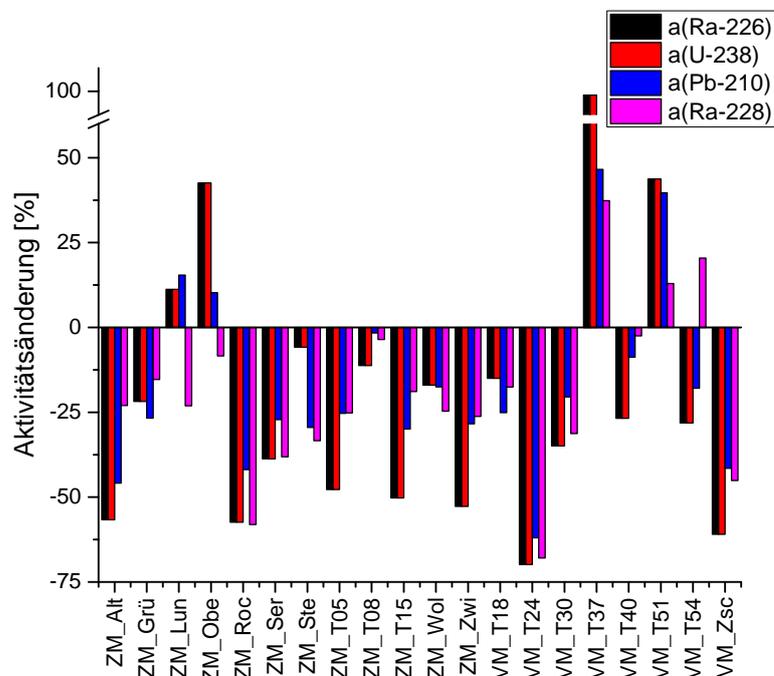


Abbildung A.7.: Prozentuale Änderung der massenbezogenen Aktivitäten von ^{238}U , ^{226}Ra , ^{210}Pb und ^{228}Ra an den Probenahmeorten

Die Betrachtung der spezifischen Aktivitäten von ^{40}K , Abbildung A.6, zeigt keine nennenswerten Auffälligkeiten. Aus diesem Grund ist eine graphische Darstellung im Anhang zu finden. Bei der Betrachtung der spezifischen Aktivitäten von ^{40}K , Abbildung A.6, sind keine Auffälligkeiten der Aktivitäten in Bezug auf die Flussabschnitte erkennbar, jedoch bildet die Probe VM_T54 mit 442,6 Bq/kg die untere Grenze der gemessenen massenbezogenen Aktivitäten. Die höchste Aktivität enthält die Probe ZM_Ste mit 838,4 Bq/kg, dicht gefolgt von ZM_T08 und ZM_Zwi, die unter Berücksichtigung ihrer Unsicherheiten miteinander korrelieren. Gleiches gilt für ZM_Alt, ZM_Roc, ZM_T05, ZM_T15, VM_T44, VM_T30 und VM_T40, die sich im Rahmen ihrer Unsicherheiten bei 575 Bq/kg befinden.

B. Messdaten

Tabelle B.1.: Angewendete Software zur Textverarbeitung, Tabellenkalkulation und Grafikerstellung

Anwendung	Software
Textverarbeitung	TexnicCenter; Miktex 2.9
Tabellenkalkulation	Microsoft Office Excel 2016
Datenanalyse und Grafikerstellung	OriginPro 2016 (64bit)
Erstellung u. Auswertung Gammaspectren	Genie 2000

Tabelle B.2.: Dichtestandards mit zugehöriger Dichte, auf die im Rahmen dieser Arbeit zurückgegriffen werden konnte

Dichtestandard	Dichte [g/cm ³]
D9 4M HCl	1,07
D8 T01A_Wi_OM10	1,12
D6 Bentonit	1,18
D10 131 50-65cm	1,37
D4 Kreideton	1,57
D2 ZM_T05	1,7
D3 ZM-Roc	1,7
D1 VM_T51_2	1,94
D5 13/1 25-35cm	1,36
D7 13/1 35-40cm	1,18
D11 Sediment	1,23
D12 Quarzsand	1,42

Tabelle B.3.: Verzeichnis der untersuchten Mulde-II-Proben

Gammaskpektrometrisch vermessene Sedimentproben aus der Zwickauer und Vereinigten Mulde mit Probenentnahmedatum mit Uhrzeit, Messdatum, Geografischer Lage, Füllgewicht des Marinellibeckers, Dichte und Efficiency.

Nr.	Probe	Mulde	Datum	Uhrzeit	Rechtswert	Hochwert	Messdatum	Messzeit [h]	Masse [g]	Dichte [g/cm ³]	Efficiency
1	ZM_Ste	ZM	15.11.2013	09:15	4547610	5611656	15.08.2016	71,75	852,1	1,522	D4 Kreideton
2	ZM_Grü	ZM	15.11.2013	11:40	4542096	5613036	23.08.2016	23,91	910,9	1,627	D4 Kreideton
3	ZM_Zwi	ZM	15.11.2013	14:14	4535296	5618812	17.08.2016	23,64	878,6	1,569	D4 Kreideton
4	ZM_Obe	ZM	16.11.2013	09:34	4534194	5626965	10.08.2016	23,56	907,3	1,620	D4 Kreideton
5	ZM_T05	ZM	14.11.2013	14:30	4541292	5637176	11.08.2016	24,81	915,9	1,636	D2 ZM_T05
6	ZM_T08	ZM	16.11.2013	13:01	4545001	5640494	12.08.2016	24,38	662,4	1,183	D6 Beufonit
7	ZM_Wol	ZM	16.11.2013	16:05	4547056	5641358	24.08.2016	23,42	885	1,580	D4 Kreideton
8	ZM_Lum	ZM	17.11.2013	08:35	4553559	5650046	25.08.2016	23,54	868,1	1,550	D4 Kreideton
9	ZM_Alt	ZM	17.11.2013	10:40	4554415	5651561	26.08.2016	23,36	891,7	1,592	D4 Kreideton
10	ZM_Roc	ZM	19.11.2013	13:06	4556635	5657334	18.08.2016	24,61	867,4	1,549	D4 Kreideton
11	ZM_T15	ZM	19.11.2013	15:33	4556171	5661652	22.08.2016	38,77	873,2	1,559	D4 Kreideton
12	ZM_Ser	ZM	20.11.2013	08:15	4555367	5669719	16.08.2016	22,93	860,4	1,536	D4 Kreideton
13	VM_T18	VM	20.11.2013	10:47	4554308	5672536	06.09.2016	23,71	819	1,463	D12 Quarzsand
14	VM_T24	VM	20.11.2013	13:30	4551764	5679954	02.09.2016	23,97	855,9	1,528	D4 Kreideton
15	VM_T30	VM	21.11.2013	08:35	4552508	5688401	01.09.2016	23,85	915,6	1,635	D4 Kreideton
16	VM_T37	VM	21.11.2013	11:47	4545627	5699835	29.08.2016	70,63	691,5	1,235	D11 Sediment
17	VM_T40	VM	21.11.2013	14:39	4545171	5704990	05.09.2016	70,02	846,5	1,512	D4 Kreideton
18	VM_Zsc	VM	22.11.2013	08:40	4542634	5707919	08.09.2016	24,10	850,5	1,519	D4 Kreideton
19	VM_T51	VM	22.11.2013	11:38	4539443	5718437	30.08.2016	23,35	879,8	1,571	D4 Kreideton
20	VM_T54	VM	22.11.2013	14:37	4531152	5719915	07.09.2016	24,38	823,2	1,470	D12 Quarzsand

Tabelle B.4.: Mittelwerte

	Nuklid	Mai 93	Frühjahr 2003	Frühjahr 2008	Mulde II 2013
		Bq/kg	Bq/kg	Bq/kg	Bq/kg
Zwickauer Mulde	U-238	1111,67	499,60	190,62	141,52
	Ra-226	277,94	216,30	123,74	107,37
	Pb-210	258,08	190,30	103,19	78,01
Vereinigte Mulde	U-238	460,00	101,90	87,25	61,29
	Ra-226	180,38	63,80	60,50	52,62
	Pb-210	161,50	77,40	58,30	40,49

Tabelle B.5.: Verzeichnis der untersuchten TransAqua-Proben

Gammaspektrometrisch vermessene Sedimentproben aus der Zwickauer und Vereinigten Mulde mit Probenentnahmedatum mit Uhrzeit, Messdatum, Geografischer Lage, Füllgewicht des Marinellibeckers, Dichte und Efficiency.

Nr.	Probe	Mulde	Datum	Masse [g]	Messdatum	Messzeit [h]	Dichte [g/cm³]	Efficiency
1	Boden SW1 Wald	Waldboden	07.07.2016	831,7	09.09.2016	23,66	1,485	D12 Quarzsand
2	Boden T3 Wald	Waldboden	07.07.2016	793	14.09.2016	24,36	1,416	D12 Quarzsand
3	Boden T1 AL	Ackerboden	23.10.2015	801	31.08.2016	24,04	1,430	D12 Quarzsand
4	Boden B4 AL	Ackerboden	23.10.2015	820	15.09.2016	22,61	1,464	D12 Quarzsand
1	Litter T3 Wald	Litter	07.07.2016	256,2	12.09.2016	29,01	0,458	Wasserstandard
2	Litter SW1 Wald	Litter	07.07.2016	294,9	13.09.2016	71,54	0,527	Wasserstandard

Tabelle B.6.: Spezifische Aktivitäten ausgewählter Radionuklide aus der Uran-Radium- und Thoriumreihe der TransActa Boden- und Litterproben

Probe	U-238		Th-234		Ra-226		Pb-214		Pb-210	
	a [Bq/kg]	u(a) [Bq/kg]								
Boden SW1 Wald	4,78	1,54	4,78	1,54	5,51	2,06	5,51	0,18	4,07	1,01
Boden T3 Wald	6,47	1,66	6,47	1,66	4,36	1,86	4,36	0,16	0,00	0,15
Boden T1 AL	9,96	2,32	9,96	2,32	6,88	2,13	6,88	0,23	7,97	1,30
Boden B4 AL	0,00	0,00	–	–	5,93	2,04	5,93	0,20	7,49	1,27
Litter T3 Wald	0,00	0,00	5,19	2,55	4,33	2,33	4,33	0,23	268,62	27,40
Litter SW1 Wald	6,84	2,11	6,84	2,11	7,61	2,30	7,61	0,26	206,68	20,91
	U-235		Ra-228		Th-228		Pb-212			
	a [Bq/kg]	u(a) [Bq/kg]								
Boden SW1 Wald	0,37	0,26	5,66	0,42	5,85	0,28	6,66	0,35		
Boden T3 Wald	0,37	0,24	4,86	0,37	5,15	0,24	5,53	0,30		
Boden T1 AL	0,53	0,30	6,29	0,47	7,14	0,30	7,67	0,40		
Boden B4 AL	0,46	0,27	5,46	0,42	6,08	0,28	6,26	0,33		
Litter T3 Wald	0,53	0,27	3,04	0,56	4,10	0,23	4,09	0,26		
Litter SW1 Wald	0,62	0,32	7,88	0,58	7,65	0,48	8,44	1,04		
	Cs-137		K-40							
	a [Bq/kg]	u(a) [Bq/kg]	a [Bq/kg]	u(a) [Bq/kg]						
Boden SW1 Wald	5,12	0,27	14,43	1,71						
Boden T3 Wald	5,93	0,31	129,58	6,83						
Boden T1 AL	9,29	0,48	170,79	8,96						
Boden B4 AL	6,75	0,35	198,55	10,45						
Litter T3 Wald	129,98	6,68	53,20	3,18						
Litter SW1 Wald	123,29	6,31	126,11	6,67						

Tabelle B.7.: Messergebnisse des Ringversuchs „Gammastrahlen in Wasser“ Tabelle 1/3

Na-22			K-40			Cr-51			Mn-54				
Probe	Messdatum	a	[Bq/kg]	u(a)	a#	a	[Bq/kg]	u(a)	a#	a	[Bq/kg]	u(a)	a#
Ref.Dat. 01.10.2016													
BFS Ringversuch Probe 1-1	42663	0	0,0000	0,0000	0,0023	0,0000	0,2839	0,0000	1,0321	0,0000	10,4023	0,5315	0,3641
BFS Ringversuch Probe 1-2	42684	0	0,0000	0,0000	0,0057	10,8676	1,0356	0,0000	2,7074	0,0000	9,8593	0,5089	0,4219
BFS Ringversuch Probe 1-3	42722	0	0,0000	0,0000	0,0073	0,0000	0,4506	0,0000	2,5793	0,0000	9,7577	0,5127	0,5270
BFS Ringversuch Probe 2-1	42681	0	0,0000	0,0000	0,0024	1,4070	0,3676	0,0000	1,1341	0,0000	0,0000	0,0000	0,0015
BFS Ringversuch Probe 2-2	42683	0	0,0000	0,0000	0,0035	0,5530	0,5293	0,0000	1,8625	0,0000	0,2526	0,0276	0,0838
BFS Ringversuch Probe 2-3	42688	0	0,0000	0,0000	0,0018	2,0079	0,3470	0,0000	0,9443	0,0000	0,1448	0,0184	0,0184
Probe 1-1 Rückrechnung	20 Tage	0									10,8747	0,5557	
Probe 1-2 Rückrechnung	40 Tage	0									10,7751	0,5562	
Probe 1-3 Rückrechnung	48 Tage	0									10,8552	0,5704	
Probe 2-1 Rückrechnung	37 Tage	0									0,0000	0,0000	
Probe 2-2 Rückrechnung	39 Tage	0									0,2755	0,0301	
Probe 2-3 Rückrechnung	44 Tage	0									0,1597	0,0202	
Halbwertszeit [d]		950,5								27,705	312,15		
Na-22													
K-40													
Cr-51													
Mn-54													
Ref.Dat. 01.10.2016													
BFS Ringversuch Probe 1-1	42663	0,0000	0,0000	0,0000	0,0032	0,0000	0,0000	0,0000	0,0868	0,0000	9,1677	0,7275	0,2974
BFS Ringversuch Probe 1-2	42684	0,0000	0,0000	0,0077	0,0000	0,0000	0,0000	0,0000	0,2095	0,0000	8,9834	0,7169	0,4613
BFS Ringversuch Probe 1-3	42722	0,0000	0,0000	0,0100	0,0000	0,0000	0,0000	0,0000	0,2704	0,0000	9,0402	0,7233	0,5217
BFS Ringversuch Probe 2-1	42681	0,0000	0,0000	0,0033	1,1273	0,0771	0,1058	0,0000	0,1058	0,0000	8,1216	0,6447	0,2868
BFS Ringversuch Probe 2-2	42683	0,0000	0,0000	0,0048	1,1277	0,1005	0,1382	0,0000	0,1382	0,0000	8,1457	0,6497	0,4086
BFS Ringversuch Probe 2-3	42688	0,0000	0,0000	0,0025	1,1285	0,0737	0,0859	0,0000	0,0859	0,0000	7,9805	0,6330	0,2451
Probe 1-1 Rückrechnung	20 Tage	0,0000	0,0000		0,0000	0,0000	0,0000	0,0000		0,0000	9,2340	0,7327	
Probe 1-2 Rückrechnung	40 Tage	0,0000	0,0000		0,0000	0,0000	0,0000	0,0000		0,0000	9,1138	0,7273	
Probe 1-3 Rückrechnung	48 Tage	0,0000	0,0000		0,0000	0,0000	0,0000	0,0000		0,0000	9,1977	0,7359	
Probe 2-1 Rückrechnung	37 Tage	0,0000	0,0000		1,2388	0,0847	0,0847	0,0000	0,0000	0,0000	8,2305	0,6534	
Probe 2-2 Rückrechnung	39 Tage	0,0000	0,0000		1,2457	0,1110	0,1110	0,0000	0,0000	0,0000	8,2608	0,6589	
Probe 2-3 Rückrechnung	44 Tage	0,0000	0,0000		1,2625	0,0824	0,0824	0,0000	0,0000	0,0000	8,1079	0,6431	
Halbwertszeit [d]		44,59			271,83		70,86				1925,3		

Tabelle B.8.: Messergebnisse des Ringversuchs „Gammastrahlen in Wasser“ Tabelle 2/3

Probe			Zn-65				Sr-85				Y-88				Ru-106			
Probe	Messdatum	a	u(a)	a#	[Bq/kg]	a	u(a)	a#	[Bq/kg]	a	u(a)	a#	[Bq/kg]	a	u(a)	a#	[Bq/kg]	
Ref.Dat. 01.10.2016																		
BFS Ringversuch Probe 1-1	42663	12,6958	0,6539	0,4906	0,0000	0,0000	0,0000	0,0010	0,0000	0,0000	0,0000	0,0028	0,0000	0,0000	0,0000	0,0000	0,0129	
BFS Ringversuch Probe 1-2	42684	11,9656	0,6448	0,7878	0,0000	0,0000	0,0024	0,0000	0,0000	0,0000	0,0000	0,0067	0,0000	0,0000	0,0000	0,0000	0,0310	
BFS Ringversuch Probe 1-3	42722	11,8025	0,6374	0,7918	0,0000	0,0000	0,0031	0,0000	0,0000	0,0000	0,0000	0,0086	0,0000	0,0000	0,0000	0,0000	0,0401	
BFS Ringversuch Probe 2-1	42681	0,0000	0,0000	0,0036	0,0000	0,0000	0,0010	0,0000	0,0000	0,0000	0,0000	0,0028	0,0000	0,0000	0,0000	0,0000	0,0133	
BFS Ringversuch Probe 2-2	42683	0,0000	0,0000	0,0052	0,0000	0,0000	0,0015	0,0000	0,0000	0,0000	0,0000	0,0041	0,0000	0,0000	0,0000	0,0000	0,0193	
BFS Ringversuch Probe 2-3	42688	0,0000	0,0000	0,0027	0,1850	0,0247	0,0770	0,0000	0,0000	0,0000	0,0000	0,0021	0,0000	0,0000	0,0000	0,0000	0,0100	
Probe 1-1 Rückrechnung	20 Tage	13,4382	0,6922		0,0000	0,0000	0,0000		0,0000	0,0000	0,0000		0,0000	0,0000	0,0000	0,0000		
Probe 1-2 Rückrechnung	40 Tage	13,4058	0,7224		0,0000	0,0000	0,0000		0,0000	0,0000	0,0000		0,0000	0,0000	0,0000	0,0000		
Probe 1-3 Rückrechnung	48 Tage	13,5272	0,7305		0,0000	0,0000	0,0000		0,0000	0,0000	0,0000		0,0000	0,0000	0,0000	0,0000		
Probe 2-1 Rückrechnung	37 Tage	0,0000	0,0000		0,0000	0,0000	0,0000		0,0000	0,0000	0,0000		0,0000	0,0000	0,0000	0,0000		
Probe 2-2 Rückrechnung	39 Tage	0,0000	0,0000		0,0000	0,0000	0,0000		0,0000	0,0000	0,0000		0,0000	0,0000	0,0000	0,0000		
Probe 2-3 Rückrechnung	44 Tage	0,0000	0,0000		0,2961	0,0396			0,0000	0,0000	0,0000		0,0000	0,0000	0,0000	0,0000		
Halbwertszeit [d]		243,94			64,849				106,63					373,59				
Probe Cd-109																		
Ref.Dat. 01.10.2016																		
BFS Ringversuch Probe 1-1	42663	0,0000	0,0000	0,0141	0,0000	0,0000	0,0000	0,0013	0,0000	0,0000	0,0000	0,0009	0,0000	0,0000	0,0000	0,0000	0,9735	
BFS Ringversuch Probe 1-2	42684	0,0000	0,0000	0,0340	0,0000	0,0000	0,0032	0,0000	0,0000	0,0000	0,0000	0,0022	0,0000	0,0000	0,0000	0,0000	1,2248	
BFS Ringversuch Probe 1-3	42722	0,0000	0,0000	0,0439	0,0000	0,0000	0,0042	0,0000	0,0000	0,0000	0,0000	0,0028	0,0000	0,0000	0,0000	0,0000	1,3458	
BFS Ringversuch Probe 2-1	42681	0,0000	0,0000	0,0145	4,0606	0,1591	0,0014	0,0000	0,0000	0,0000	0,0000	0,0009	0,0000	0,0000	0,1353	0,2000	0,2000	
BFS Ringversuch Probe 2-2	42683	0,0000	0,0000	0,0211	0,9255	0,0706	0,1410	0,0000	0,0000	0,0000	0,0000	0,0014	0,0000	0,0000	0,1390	0,1594	0,1594	
BFS Ringversuch Probe 2-3	42688	0,0000	0,0000	0,0110	0,6491	0,0483	0,1140	0,0000	0,0000	0,0000	0,0000	0,0007	0,0000	0,0000	0,1294	0,1772	0,1772	
Probe 1-1 Rückrechnung	20 Tage	0,0000	0,0000		0,0000	0,0000			0,0000	0,0000	0,0000		0,0000	0,0000	0,0000	0,0000		
Probe 1-2 Rückrechnung	40 Tage	0,0000	0,0000		0,0000	0,0000			0,0000	0,0000	0,0000		0,0000	0,0000	0,0000	0,0000		
Probe 1-3 Rückrechnung	48 Tage	0,0000	0,0000		0,0000	0,0000			0,0000	0,0000	0,0000		0,0000	0,0000	0,0000	0,0000		
Probe 2-1 Rückrechnung	37 Tage	0,0000	0,0000		4,1653	0,1632			0,0000	0,0000	0,0000		0,0000	0,0000	0,1400	0,1400		
Probe 2-2 Rückrechnung	39 Tage	0,0000	0,0000		0,9506	0,0726			0,0000	0,0000	0,0000		0,0000	0,0000	0,1441	0,1441		
Probe 2-3 Rückrechnung	44 Tage	0,0000	0,0000		0,6691	0,0498			0,0000	0,0000	0,0000		0,0000	0,0000	0,1347	0,1347		
Halbwertszeit [d]		462,1			1007,7				8,0207					754				
Probe Cs-134																		

Tabelle B.9.: Messergebnisse des Ringversuchs „Gammastrahlen in Wasser“ Tabelle 3/3

Probe			Cs-137			Ba-133			Ce-139			La-140					
Probe	Messdatum	a	[Bq/kg]	a#	u(a)	[Bq/kg]	a#	u(a)	[Bq/kg]	a	u(a)	[Bq/kg]	a#	u(a)	[Bq/kg]	a#	
Ref.Dat. 01.10.2016																	
BFS Ringversuch Probe 1-1	42663	16,3692	0,8349	0,5315	0,0000	0,0000	0,0000	0,0000	0,0000	0,0000	0,0000	0,0000	0,0005	0,0000	0,0000	0,0064	
BFS Ringversuch Probe 1-2	42684	16,2116	0,8468	0,8064	0,0000	0,0000	0,0029	0,0000	0,0000	0,0000	0,0000	0,0000	0,0012	0,0000	0,0000	0,0155	
BFS Ringversuch Probe 1-3	42722	16,3122	0,8539	0,8337	0,0000	0,0000	0,0038	0,0000	0,0000	0,0000	0,0000	0,0000	0,0015	0,0000	0,0000	0,0200	
BFS Ringversuch Probe 2-1	42681	7,7185	0,4036	0,3881	0,0000	0,0000	0,0013	0,0000	0,0000	0,0000	0,0000	0,0000	0,0005	0,0000	0,0000	0,0066	
BFS Ringversuch Probe 2-2	42683	7,5635	0,3868	0,2650	0,0000	0,0000	0,0018	0,0000	0,0000	0,0000	0,0000	0,0000	0,0007	0,0000	0,0000	0,0097	
BFS Ringversuch Probe 2-3	42688	7,6612	0,3942	0,3038	0,0000	0,0000	0,0009	0,0000	0,0000	0,0000	0,0000	0,0000	0,0004	0,0000	0,0000	0,0050	
Probe 1-1 Rückrechnung	20 Tage	16,3899	0,8360		0,0000	0,0000		0,0000	0,0000	0,0000	0,0000	0,0000		0,0000	0,0000		
Probe 1-2 Rückrechnung	40 Tage	16,2525	0,8490		0,0000	0,0000		0,0000	0,0000	0,0000	0,0000	0,0000		0,0000	0,0000		
Probe 1-3 Rückrechnung	48 Tage	16,3616	0,8565		0,0000	0,0000		0,0000	0,0000	0,0000	0,0000	0,0000		0,0000	0,0000		
Probe 2-1 Rückrechnung	37 Tage	7,7365	0,4045		0,0000	0,0000		0,0000	0,0000	0,0000	0,0000	0,0000		0,0000	0,0000		
Probe 2-2 Rückrechnung	39 Tage	7,5821	0,3878		0,0000	0,0000		0,0000	0,0000	0,0000	0,0000	0,0000		0,0000	0,0000		
Probe 2-3 Rückrechnung	44 Tage	7,6824	0,3953		0,0000	0,0000		0,0000	0,0000	0,0000	0,0000	0,0000		0,0000	0,0000		
Halbwertszeit [d]		11000			3848					137,66					1,6781		
Eu-152																	
Hg-203																	
Am-241																	
Ref.Dat. 01.10.2016																	
BFS Ringversuch Probe 1-1	42663	0,0000	0,0000	0,0029	0,0000	0,0000	0,0007	0,0000	0,0000	4,2277	0,4393	0,3744					
BFS Ringversuch Probe 1-2	42684	0,0000	0,0000	0,0070	0,0000	0,0000	0,0017	0,0000	0,0000	4,0076	0,4434	0,6327					
BFS Ringversuch Probe 1-3	42722	0,0000	0,0000	0,0090	0,0000	0,0000	0,0022	0,0000	0,0000	4,3878	0,4827	0,6705					
BFS Ringversuch Probe 2-1	42681	0,7900	0,0821	0,2155	0,0000	0,0000	0,0007	0,0000	0,0000	4,3416	0,4485	0,3475					
BFS Ringversuch Probe 2-2	42683	0,6471	0,1957	0,0043	0,0000	0,0000	0,0011	0,0000	0,0000	4,4245	0,4591	0,3847					
BFS Ringversuch Probe 2-3	42688	0,7452	0,0695	0,1869	0,0000	0,0000	0,0006	0,0000	0,0000	4,2881	0,4403	0,2992					
Probe 1-1 Rückrechnung	20 Tage	0,0000	0,0000		0,0000	0,0000		0,0000	0,0000	4,2281	0,4393						
Probe 1-2 Rückrechnung	40 Tage	0,0000	0,0000		0,0000	0,0000		0,0000	0,0000	4,0083	0,4435						
Probe 1-3 Rückrechnung	48 Tage	0,0000	0,0000		0,0000	0,0000		0,0000	0,0000	4,3888	0,4828						
Probe 2-1 Rückrechnung	37 Tage	0,7941	0,0825		0,0000	0,0000		0,0000	0,0000	4,3423	0,4486						
Probe 2-2 Rückrechnung	39 Tage	0,6507	0,1968		0,0000	0,0000		0,0000	0,0000	4,4253	0,4592						
Probe 2-3 Rückrechnung	44 Tage	0,7498	0,0699		0,0000	0,0000		0,0000	0,0000	4,2889	0,4404						
Halbwertszeit [d]		4943			46,604					157850							

Tabelle B.10.: Messergebnisse des Mulde-II-Projekts.

Überprüfung auf Konformität der Messergebnisse des Mulde-II-Projekts mit den Ergebnissen des Mulde-I-Projekts (A). Die Konformität berechnet sich zu $\sqrt{2} \cdot \sqrt{u^2(x_1) + u^2(x_2)}$. Nuklide, deren spezifische Aktivitäten unter der Nachweisgrenze liegen, sind mit u.N. gekennzeichnet. Tabelle 1a

	U-238		Th-230		Ra-226		Pb-210		U-235		Ac-227	
	(Bq/kg)	u(a) (Bq/kg)										
ZM_Alt	80,51	7,19	u.N.	u.N.	74,12	11,60	53,66	6,06	5,04	1,14	u.N.	u.N.
ZM_AltA	185,72	28,84	146,66	31,71	122,83	3,41	99,15	10,52	8,60	0,66	5,98	1,33
$ x_1 - x_2 $	105,21		146,66		48,71		45,49		3,56		5,98	
Konformität	42,03		44,85		17,10		17,18		1,86		1,88	
ZM_Grü	136,10	12,02	u.N.	u.N.	104,64	17,62	62,24	6,26	8,42	0,69	5,24	0,48
ZM_GrüA	174,02	17,52	101,60	22,90	115,89	15,05	84,92	12,36	8,20	0,68	4,22	0,84
$ x_1 - x_2 $	37,91		101,60		11,26		22,68		0,22		1,02	
Konformität	30,05		32,38		32,77		19,60		1,37		1,37	
ZM_Lun	97,66	10,93	u.N.	u.N.	104,33	14,71	79,45	8,54	5,95	0,65	5,22	0,80
ZM_LunA	87,79	15,15	86,52	24,14	69,97	2,12	68,82	13,12	3,85	0,38	2,75	0,64
$ x_1 - x_2 $	9,87		86,52		34,36		10,63		2,10		2,47	
Konformität	26,42		34,14		21,02		22,14		1,07		1,44	
ZM_Obe	275,28	16,34	u.N.	u.N.	174,25	28,00	111,55	11,78	12,99	0,96	8,31	1,35
ZM_ObeA	193,07	21,50	183,40	64,16	136,10	3,76	101,20	11,03	9,05	0,59	5,02	0,75
$ x_1 - x_2 $	82,21		183,40		38,15		10,35		3,94		3,29	
Konformität	38,19		90,74		39,95		22,82		1,59		2,18	
ZM_Roc	62,92	6,16	u.N.	u.N.	59,11	8,80	48,84	5,50	3,68	0,48	3,41	0,81
ZM_RocA	147,64	15,30	86,52	36,11	101,79	16,10	84,06	10,58	6,54	0,71	4,12	0,73
$ x_1 - x_2 $	84,72		86,52		42,67		35,22		2,86		0,71	
Konformität	23,32		51,07		25,95		16,86		1,21		1,53	
ZM_Ser	97,63	8,20	u.N.	u.N.	84,61	12,76	76,26	8,25	5,35	1,24	u.N.	u.N.
ZM_SerA	159,35	13,24	137,85	35,10	136,28	17,19	104,69	17,31	7,14	0,79	6,01	0,90
$ x_1 - x_2 $	61,72		137,85		51,66		28,42		1,78		6,01	
Konformität	22,02		49,64		30,28		27,11		2,07		1,27	
ZM_Ste	155,98	9,02	u.N.	u.N.	107,31	17,21	70,65	7,41	7,96	0,60	8,52	0,73
ZM_SteA	165,61	20,44	128,45	34,53	132,56	3,79	100,14	12,89	7,84	0,53	6,22	1,02
$ x_1 - x_2 $	9,64		128,45		25,25		29,49		0,12		2,30	
Konformität	31,60		48,84		24,93		21,03		1,14		1,77	
ZM_T05	92,12	7,47	u.N.	u.N.	79,99	12,04	60,77	6,71	5,18	0,57	4,77	0,93
ZM_T05A	176,39	29,55	77,98	19,01	104,52	13,80	81,37	12,46	7,19	0,61	4,11	0,64
$ x_1 - x_2 $	84,27		77,98		24,58		20,60		2,01		0,66	
Konformität	43,10		26,88		25,89		20,01		1,18		1,60	

Tabelle B.11.: Messergebnisse des Mulde-II-Projekts. Überprüfung auf Konformität der Messergebnisse des Mulde-II-Projekts mit den Ergebnissen des Mulde-I-Projekts (A). Die Konformität berechnet sich zu $\sqrt{2} \cdot \sqrt{u^2(x_1) + u^2(x_2)}$. Nuklide, deren spezifische Aktivitäten unter der Nachweisgrenze liegen, sind mit u.N. gekennzeichnet. Tabelle 1b

	Ra-228		Th-228		Cs-137		K-40	
	a	u(a)	a	u(a)	a	u(a)	a	u(a)
	(Bq/kg)	(Bq/kg)	(Bq/kg)	(Bq/kg)	(Bq/kg)	(Bq/kg)	(Bq/kg)	(Bq/kg)
ZM_Alt	33,81	1,82	37,03	1,53	1,84	0,11	557,51	29,08
ZM_AltA	43,92	3,14	43,00	1,60	3,93	0,28	777,49	41,16
$ x_1 - x_2 $	10,11	5,97	3,13	0,42	2,09		219,98	
Konformität	5,13				0,42		71,27	
ZM_Grü	34,36	1,78	39,20	1,62	1,54	0,10	657,72	34,18
ZM_GrüA	40,58	2,50	38,30	1,60	2,34	0,22	813,46	42,35
$ x_1 - x_2 $	6,22	0,90	0,90	0,79	0,79		155,74	
Konformität	4,34		3,22	0,34	0,34		76,96	
ZM_Lun	24,87	1,35	27,80	1,16	1,68	0,11	691,98	35,96
ZM_LunA	32,33	2,05	32,80	1,60	0,54	0,08	1110,29	57,62
$ x_1 - x_2 $	7,46	5,00	5,00	1,14	1,14		418,31	
Konformität	3,47		2,80	0,19	0,19		96,06	
ZM_Obe	34,44	1,85	38,86	1,62	2,04	0,13	718,70	37,30
ZM_ObeA	37,60	2,39	37,90	1,40	2,01	0,16	785,11	41,52
$ x_1 - x_2 $	3,16	0,96	0,96	0,03	0,03		66,41	
Konformität	4,27		3,03	0,29	0,29		78,93	
ZM_Roc	22,86	1,19	24,37	1,02	0,60	0,07	608,77	31,61
ZM_RocA	54,50	3,25	52,10	1,90	3,69	0,34	656,92	34,22
$ x_1 - x_2 $	31,65	27,73	27,73	3,10	3,10		48,14	
Konformität	4,90		3,05	0,49	0,49		65,88	
ZM_Ser	34,76	1,93	38,29	1,59	1,93	0,12	638,70	33,18
ZM_SerA	56,17	3,39	55,80	2,30	4,25	0,31	726,02	38,83
$ x_1 - x_2 $	21,41	17,51	17,51	2,33	2,33		87,33	
Konformität	5,52		3,95	0,47	0,47		72,23	
ZM_Ste	27,31	1,62	36,94	1,51	2,26	0,12	838,36	43,36
ZM_SteA	40,98	2,69	39,00	1,60	3,00	0,30	815,13	44,28
$ x_1 - x_2 $	13,67	2,06	2,06	0,74	0,74		23,23	
Konformität	4,44		3,11	0,46	0,46		87,65	
ZM_T05	26,06	1,32	26,67	1,12	0,84	0,07	574,61	29,81
ZM_T05A	34,83	2,16	39,20	1,40	2,54	0,19	719,64	37,87
$ x_1 - x_2 $	8,77	12,53	12,53	1,69	1,69		145,03	
Konformität	3,58		2,53	0,28	0,28		68,16	

Tabelle B.12.: Messergebnisse des Mulde-II-Projekts.

Überprüfung auf Konformität der Messergebnisse des Mulde-II-Projekts mit den Ergebnissen des Mulde-I-Projekts (A). Die Konformität berechnet sich zu $\sqrt{2} \cdot \sqrt{u^2(x_1) + u^2(x_2)}$. Nuklide, deren spezifische Aktivitäten unter der Nachweisgrenze liegen, sind mit u.N. gekennzeichnet. Tabelle 2a

	U-238		Th-230		Ra-226		Pb-210		U-235		Ac-227	
	^a (Bq/kg)	u(a) (Bq/kg)										
ZM_T08	318,00	19,22	u.N.	32,58	203,55	5,00	152,25	15,90	15,04	1,13	9,17	0,76
ZM_T08A	358,18	34,78	29,80	5,00	181,54	22,01	154,74	16,45	16,71	1,22	8,66	1,08
$ x_1 - x_2 $	40,19		170,85		170,85		2,49		1,67		0,52	
Konformität	56,20		42,15		46,62		32,35		2,35		1,87	
ZM_T15	100,20	7,10	u.N.	12,28	91,37	17,98	73,06	7,70	4,70	0,69	4,96	1,06
ZM_T15A	201,34	14,06	34,66	17,98	120,18		104,30	12,58	8,96	0,67	5,39	0,71
$ x_1 - x_2 $	101,14		172,17		28,81		31,24		4,26		0,43	
Konformität	22,28		49,02		30,80		20,86		1,36		1,80	
ZM_Wol	120,52	9,05	u.N.	14,20	92,66	2,71	75,05	8,13	6,24	0,65	4,87	0,66
ZM_WolA	145,22	20,63	25,38	2,71	97,40	15,95	91,00	13,53	7,36	0,45	5,08	0,80
$ x_1 - x_2 $	24,70		125,35		4,74		15,95		1,13		0,21	
Konformität	31,86		35,89		20,45		22,32		1,12		1,46	
ZM_Zwi	161,35	10,11	u.N.	17,50	112,55	28,00	72,37	8,04	7,81	0,77	5,54	1,23
ZM_ZwiA	341,22	32,09	43,33	28,00	154,56		101,06	13,31	15,32	1,02	5,67	1,08
$ x_1 - x_2 $	179,86		138,64		42,00		28,69		7,50		0,13	
Konformität	47,58		61,28		46,70		22,00		1,80		2,32	
VM_T18	56,26	6,10	u.N.	7,94	62,19	1,56	38,79	4,36	2,69	0,41	3,32	0,84
VM_T18A	66,19	9,32	28,36	1,56	53,94		51,77	9,15	3,20	0,28	2,58	0,52
$ x_1 - x_2 $	9,93		40,96		8,25		12,98		0,52		0,74	
Konformität	15,75		40,96		11,44		14,33		0,71		1,40	
VM_T24	50,61	10,47	u.N.	7,05	44,38	19,81	40,99	4,74	2,88	0,82	u.N.	u.N.
VM_T24A	167,86	25,52	26,95	19,81	116,21		107,83	12,88	8,04	0,93	5,18	0,91
$ x_1 - x_2 $	117,26		93,45		71,82		66,85		5,16		5,18	
Konformität	39,01		38,11		29,73		19,41		1,75		1,29	
VM_T30	42,46	4,99	u.N.	6,21	40,65	1,40	35,30	4,16	2,42	0,76	u.N.	u.N.
VM_T30A	65,24	11,43	24,61	1,40	47,69		44,40	5,00	3,12	0,34	1,82	0,53
$ x_1 - x_2 $	22,78		71,86		7,64		9,10		0,70		1,82	
Konformität	17,64		34,80		9,01		9,20		1,18		0,74	
VM_T37	187,83	10,79	u.N.	21,97	154,58	12,69	84,99	8,70	9,10	0,68	6,47	0,51
VM_T37A	94,66	13,57	15,64	12,69	67,42		57,98	8,06	4,64	0,80	2,60	0,48
$ x_1 - x_2 $	93,16		52,78		87,16		27,01		4,64		3,87	
Konformität	24,52		22,11		35,89		16,78		1,48		0,98	

Tabelle B.13.: Messergebnisse des Mulde-II-Projekts. Überprüfung auf Konformität der Messergebnisse des Mulde-II-Projekts mit den Ergebnissen des Mulde-I-Projekts (A). Die Konformität berechnet sich zu $\sqrt{2} \cdot \sqrt{u^2(x_1) + u^2(x_2)}$. Nuklide, deren spezifische Aktivitäten unter der Nachweisgrenze liegen, sind mit u.N. gekennzeichnet. Tabelle 2b

	Ra-228		Th-228		Cs-137		K-40	
	a	u(a)	a	u(a)	a	u(a)	a	u(a)
	(Bq/kg)	(Bq/kg)	(Bq/kg)	(Bq/kg)	(Bq/kg)	(Bq/kg)	(Bq/kg)	(Bq/kg)
ZM_T08	47,64	2,51	56,79	2,35	5,41	0,30	756,50	39,31
ZM_T08A	49,38	3,51	35,40	1,40	8,35	0,56	742,01	39,72
$ x_1 - x_2 $	1,74		21,39		2,94		14,49	
Konformität	6,10		3,87		0,89		79,03	
ZM_T15	43,61	2,01	47,05	1,93	2,04	0,12	568,63	29,58
ZM_T15A	53,77	3,61	53,40	1,80	6,29	0,40	711,13	38,76
$ x_1 - x_2 $	10,16		6,35		4,25		142,49	
Konformität	5,85		3,73		0,59		68,96	
ZM_W01	30,41	1,75	34,01	1,41	1,93	0,12	653,38	33,95
ZM_W01A	40,37	2,96	38,90	1,40	3,25	0,27	708,48	37,34
$ x_1 - x_2 $	9,97		4,89		1,32		55,10	
Konformität	4,86		2,81		0,41		71,38	
ZM_Zwi	41,34	1,99	43,87	1,82	2,30	0,13	744,00	38,61
ZM_ZwiA	56,01	3,35	55,10	2,30	6,65	0,43	784,04	42,10
$ x_1 - x_2 $	14,68		11,23		4,35		40,04	
Konformität	5,51		4,15		0,64		80,78	
VM_T18	23,63	1,35	26,47	1,11	1,49	0,10	628,14	32,59
VM_T18A	28,67	1,82	27,70	1,10	1,61	0,13	697,97	36,91
$ x_1 - x_2 $	5,03		1,23		0,12		69,82	
Konformität	3,20		2,21		0,23		69,64	
VM_T24	19,69	1,15	21,14	0,89	0,66	0,06	578,44	30,04
VM_T24A	61,37	4,47	54,70	2,30	8,24	0,63	688,74	36,64
$ x_1 - x_2 $	41,67		33,56		7,58		110,30	
Konformität	6,53		3,49		0,90		67,01	
VM_T30	18,42	1,08	19,81	0,83	0,38	0,06	585,48	30,47
VM_T30A	26,79	1,98	26,20	1,10	0,98	0,09	659,00	34,20
$ x_1 - x_2 $	8,37		6,39		0,60		73,52	
Konformität	3,20		1,95		0,16		64,78	
VM_T37	43,13	1,94	42,85	1,76	4,01	0,21	651,76	33,94
VM_T37A	31,39	2,39	30,30	1,30	2,72	0,22	786,57	41,81
$ x_1 - x_2 $	11,73		12,55		1,28		134,81	
Konformität	4,35		3,10		0,43		76,16	

Tabelle B.14.: Messergebnisse des Mulde-II-Projekts.

Überprüfung auf Konformität der Messergebnisse des Mulde-II-Projekts mit den Ergebnissen des Mulde-I-Projekts (A). Die Konformität berechnet sich zu $\sqrt{2} \cdot \sqrt{u^2(x_1) + u^2(x_2)}$. Nuklide, deren spezifische Aktivitäten unter der Nachweisgrenze liegen, sind mit u.N. gekennzeichnet. Tabelle 3a

	U-238		Th-230		Ra-226		Pb-210		U-235		Ac-227	
	$\frac{a}{(Bq/kg)}$	$\frac{u(a)}{(Bq/kg)}$										
VM_T40	36,73	7,57	u.N.	5,13	24,35	5,13	33,37	3,64	2,68	2,10	2,12	0,33
VM_T40A	50,14	9,81	21,23	1,06	35,54	1,06	36,58	5,17	2,10	2,12	2,12	0,33
$ x_1 - x_2 $	13,41		39,14		11,19		3,21		0,59	0,59	0,47	
Konformität	17,52		30,03		7,40		8,95		0,68	0,68	0,47	
VM_T51	26,71	5,69	u.N.	3,87	21,45	3,87	21,84	2,89	1,44	1,44	u.N.	u.N.
VM_T51A	49,75	11,56	19,54	1,25	39,19	1,25	40,01	5,27	2,58	2,58	1,76	0,46
$ x_1 - x_2 $	23,04		48,00		17,73		18,17		1,14	1,14	1,76	
Konformität	18,22		27,63		5,75		8,50		0,93	0,93	0,66	
VM_T54	48,16	5,45	u.N.	7,36	44,96	7,36	31,80	3,69	3,14	3,14	u.N.	u.N.
VM_T54A	67,04	7,72	15,18	1,16	39,61	1,16	38,73	4,70	3,03	3,03	1,68	0,40
$ x_1 - x_2 $	18,87		41,35		5,35		6,93		0,11	0,11	1,68	
Konformität	13,37		21,46		10,54		8,46		1,23	1,23	0,56	
VM_Zsc	41,55	8,68	u.N.	5,70	28,95	5,70	36,85	4,32	2,82	2,82	u.N.	u.N.
VM_ZscA	106,43	14,06	17,74	13,05	67,88	13,05	62,98	7,04	5,40	5,40	3,80	0,62
$ x_1 - x_2 $	64,87		67,59		38,93		26,13		2,58	2,58	3,80	
Konformität	23,37		25,09		20,14		11,68		0,98	0,98	0,88	

Tabelle B.15.: Messergebnisse des Mulde-II-Projekts. Überprüfung auf Konformität der Messergebnisse des Mulde-II-Projekts mit den Ergebnissen des Mulde-I-Projekts (A). Die Konformität berechnet sich zu $\sqrt{2} \cdot \sqrt{u^2(x_1) + u^2(x_2)}$. Nuklide, deren spezifische Aktivitäten unter der Nachweisgrenze liegen, sind mit u.N. gekennzeichnet. Tabelle 3b

	Ra-228		Th-228		Cs-137		K-40	
	$\frac{a}{(Bq/kg)}$	$\frac{u(a)}{(Bq/kg)}$	$\frac{a}{(Bq/kg)}$	$\frac{u(a)}{(Bq/kg)}$	$\frac{a}{(Bq/kg)}$	$\frac{u(a)}{(Bq/kg)}$	$\frac{a}{(Bq/kg)}$	$\frac{u(a)}{(Bq/kg)}$
VM_T40	18,35	0,96	20,59	0,84	0,73	0,05	591,54	30,63
VM_T40A	18,82	1,31	19,10	0,70	0,90	0,11	685,59	35,86
$ x_1 - x_2 $	0,47		1,49		0,17		94,05	
Konformität	2,30		1,55		0,17		66,69	
VM_T51	15,02	1,03	15,67	0,66	0,50	0,05	462,86	29,08
VM_T51A	32,62	2,52	30,50	1,20	1,50	0,10	620,41	33,06
$ x_1 - x_2 $	17,59		14,83		1,00		157,55	
Konformität	3,86		1,94		0,16		62,27	
VM_T54	30,71	1,68	35,09	1,45	1,62	0,10	442,57	23,04
VM_T54A	25,50	1,66	24,70	1,30	2,13	0,18	515,87	27,30
$ x_1 - x_2 $	5,21		10,39		0,50		73,31	
Konformität	3,34		2,75		0,29		50,52	
VM_Zsc	21,45	1,23	24,41	1,02	1,06	0,08	507,53	26,45
VM_ZscA	39,07	2,45	37,30	1,50	4,22	0,40	621,25	32,46
$ x_1 - x_2 $	17,62		12,89		3,17		113,72	
Konformität	3,87		2,56		0,58		59,22	

C. Messdatenanalyse

Tabelle C.1.: Test auf Normalverteilung

Überprüfung der Messwerte des gesamten Flussverlaufs auf Normalverteilung mittels Shapiro-Wilk-Test. W beschreibt die Prüfgröße, n ist der Stichprobenumfang. α ist das Signifikanzniveau (es wurde $\alpha = 0,05$ gewählt). Für $P < \alpha$ kann die Annahme einer Normalverteilung abgelehnt werden.

Nuklid	n	W	P	normal
U-238	20	0,84994	0,00532	Normalverteilung zurückweisen
Ra-226	20	0,92976	0,15282	Normalverteilung kann nicht zurückgewiesen werden.
Pb-210	20	0,895	0,03326	Normalverteilung zurückweisen
U-235	20	0,88271	0,0198	Normalverteilung zurückweisen
Ac-227	12	0,89675	0,14401	Normalverteilung kann nicht zurückgewiesen werden.
Ra-228	20	0,9569	0,484	Normalverteilung kann nicht zurückgewiesen werden.
Th-228	20	0,96495	0,64678	Normalverteilung kann nicht zurückgewiesen werden.
Cs-137	20	0,82859	0,00238	Normalverteilung zurückweisen
K-40	20	0,98183	0,95548	Normalverteilung kann nicht zurückgewiesen werden.

Tabelle C.2.: Test auf Normalverteilung

Überprüfung der Messwerte der Zwickauer Mulde auf Normalverteilung mittels Shapiro-Wilk-Test. W beschreibt die Prüfgröße, n ist der Stichprobenumfang. α ist das Signifikanzniveau (es wurde $\alpha = 0,05$ gewählt). Für $P < \alpha$ kann die Annahme einer Normalverteilung abgelehnt werden.

Nuklid	n	W	P	normal
U-238	12	0,80577	0,01091	Normalverteilung zurückweisen
Ra-226	12	0,8275	0,01958	Normalverteilung zurückweisen
Pb-210	12	0,78536	0,00642	Normalverteilung zurückweisen
U-235	12	0,83694	0,02542	Normalverteilung zurückweisen
Ac-227	10	0,8488	0,0562	Normalverteilung kann nicht zurückgewiesen werden.
Ra-228	12	0,94672	0,58962	Normalverteilung kann nicht zurückgewiesen werden.
Th-228	12	0,95012	0,6388	Normalverteilung kann nicht zurückgewiesen werden.
Cs-137	12	0,7335	0,00181	Normalverteilung zurückweisen
K-40	12	0,9543	0,70047	Normalverteilung kann nicht zurückgewiesen werden.

Tabelle C.3.: Test auf Normalverteilung

Überprüfung der Messwerte der Vereinigten Mulde auf Normalverteilung mittels Shapiro-Wilk-Test. W beschreibt die Prüfgröße, n ist der Stichprobenumfang. α ist das Signifikanzniveau (es wurde $\alpha = 0,05$ gewählt). Für $P < \alpha$ kann die Annahme einer Normalverteilung abgelehnt werden.

Nuklid	n	W	P	normal
U-238	8	0,59077	1,24E-04	Normalverteilung zurückweisen
Ra-226	8	0,69705	0,00209	Normalverteilung zurückweisen
Pb-210	8	0,71134	0,00302	Normalverteilung zurückweisen
U-235	8	0,61702	2,51E-04	Normalverteilung zurückweisen
Ra-228	8	0,82973	0,05899	Normalverteilung kann nicht zurückgewiesen werden.
Th-228	8	0,89273	0,24806	Normalverteilung kann nicht zurückgewiesen werden.
Cs-137	8	0,75576	0,00946	Normalverteilung zurückweisen
K-40	8	0,9198	0,42823	Normalverteilung kann nicht zurückgewiesen werden.

Tabelle C.4.: Test auf logarithmische Normalverteilung

Überprüfung der Messwerte des gesamten Flussverlaufs auf Normalverteilung mittels Shapiro-Wilk-Test. W beschreibt die Prüfgröße, n ist der Stichprobenumfang. α ist das Signifikanzniveau (es wurde $\alpha = 0,05$ gewählt). Für $P < \alpha$ kann die Annahme einer Normalverteilung abgelehnt werden.

Nuklid	n	W	P	log.-normal
U-238	20	0,97616	0,87559	Normalverteilung kann nicht zurückgewiesen werden.
Ra-226	20	0,96234	0,5915	Normalverteilung kann nicht zurückgewiesen werden.
Pb-210	20	0,97412	0,8384	Normalverteilung kann nicht zurückgewiesen werden.
U-235	20	0,97552	0,86419	Normalverteilung kann nicht zurückgewiesen werden.
Ac-227	12	0,9258	0,33772	Normalverteilung kann nicht zurückgewiesen werden.
Ra-228	20	0,96961	0,74659	Normalverteilung kann nicht zurückgewiesen werden.
Th-228	20	0,96678	0,68594	Normalverteilung kann nicht zurückgewiesen werden.
Cs-137	20	0,95457	0,44182	Normalverteilung kann nicht zurückgewiesen werden.
K-40	20	0,97875	0,91699	Normalverteilung kann nicht zurückgewiesen werden.

Tabelle C.5.: Test auf logarithmische Normalverteilung

Überprüfung der Messwerte der Zwickauer Mulde auf Normalverteilung mittels Shapiro-Wilk-Test. W beschreibt die Prüfgröße, n ist der Stichprobenumfang. α ist das Signifikanzniveau (es wurde $\alpha = 0,05$ gewählt). Für $P < \alpha$ kann die Annahme einer Normalverteilung abgelehnt werden.

Nuklid	n	W	P	log.-normal
U-238	12	0,92911	0,3708	Normalverteilung kann nicht zurückgewiesen werden.
Ra-226	12	0,92832	0,36268	Normalverteilung kann nicht zurückgewiesen werden.
Pb-210	12	0,8968	0,14421	Normalverteilung kann nicht zurückgewiesen werden.
U-235	12	0,93717	0,46228	Normalverteilung kann nicht zurückgewiesen werden.
Ac-227	10	0,88904	0,16542	Normalverteilung kann nicht zurückgewiesen werden.
Ra-228	12	0,96001	0,78399	Normalverteilung kann nicht zurückgewiesen werden.
Th-228	12	0,95909	0,7708	Normalverteilung kann nicht zurückgewiesen werden.
Cs-137	12	0,87632	0,07864	Normalverteilung kann nicht zurückgewiesen werden.
K-40	12	0,96227	0,81568	Normalverteilung kann nicht zurückgewiesen werden.

Tabelle C.6.: Test auf logarithmische Normalverteilung

Überprüfung der Messwerte der Vereinigten Mulde auf Normalverteilung mittels Shapiro-Wilk-Test. W beschreibt die Prüfgröße, n ist der Stichprobenumfang. α ist das Signifikanzniveau (es wurde $\alpha = 0,05$ gewählt). Für $P < \alpha$ kann die Annahme einer Normalverteilung abgelehnt werden.

Nuklid	n	W	P	log.-normal
U-238	8	0,79541	0,02556	Normalverteilung zurückweisen
Ra-226	8	0,90307	0,30784	Normalverteilung kann nicht zurückgewiesen werden.
Pb-210	8	0,85403	0,10463	Normalverteilung kann nicht zurückgewiesen werden.
U-235	8	0,79702	0,0266	Normalverteilung zurückweisen
Ra-228	8	0,91642	0,4015	Normalverteilung kann nicht zurückgewiesen werden.
Th-228	8	0,95148	0,72615	Normalverteilung kann nicht zurückgewiesen werden.
Cs-137	8	0,95902	0,80069	Normalverteilung kann nicht zurückgewiesen werden.
K-40	8	0,90648	0,32996	Normalverteilung kann nicht zurückgewiesen werden.

Probenahme Sedimente und Wasser

Sedimente und Wasser wurden während zwei Probenahmefahrten im November 2013 beprobt:

Mulde II-4 Do, 14.11. – So, 17.11.2013

Mulde II-5 Di, 19.11. – Sa, 23.11.2013

Die Probenahmen erfolgten in enger Anlehnung an die letzten Probenahmen 2008 und orientierten sich an den Messanleitungen des BMU (Stand 2006):

- Meßanleitungen für die Überwachung der Radioaktivität in Oberflächenwasser
- Messanleitungen für die Überwachung der bergbaubedingten Radioaktivität in Oberflächenwasser
- Meßanleitungen für die Überwachung der Radioaktivität in Sediment
- Messanleitungen für die Überwachung der bergbaubedingten Radioaktivität in Sediment

Wasser

Zur Probenahme des Flusswassers wurde eine 2 L –Kautexflasche, die an einem 2,20 m langen Aluminiumhohlstab befestigt war, genutzt. Die Probenahme erfolgte stets im strömenden Wasser. Soweit möglich wurde in der Mitte der Strömung in mittlerer Tiefe beprobt. So Gelände, Wasserstand und / oder Strömung dies nicht zuließen, wurde soweit im Strom wie möglich und danach so tief wie möglich die Wasserprobe genommen. Beim Überführen in die Probenflaschen wurde versucht möglichst wenig Luft einzubringen. Es wurden je Probenahmestelle zwei 1 L –Kautexflaschen gefüllt. Eine der Proben diente als Rückstellprobe für spätere Analysen insbesondere im Hinblick auf Ionengehalte, die zweite den sofortigen Messungen der Feldanalytik. Alle (drei) Flaschen wurden zuvor mit Flusswasser ausgespült.

Sediment

Es wurde das frische (rezente) Oberflächensediment, welches mit dem strömenden Wasser in Wechselwirkung steht, beprobt. Zur Probenahme diente ein Schöpflöffel (Suppenkelle), der an einem 1,40 m langen Holzstab (Besenstiel) befestigt war. Hierbei wurden die oberen 3 cm bis maximal 5 cm Sediment beprobt. Es wurde stets versucht ein für die Probenahmestelle repräsentatives Sediment zu beproben. Daher wurde an verschiedenen Stellen im Bereich der Probenahmestelle und über die gesamte begehbbare Flussbreite, so weit wie Strömung und Wassertiefe es zuließen, Sediment genommen. Der Großteil des Sediments stammt in der Regel von den Uferbereichen, da hier die meisten erreichbaren Sedimentablagerungen vorzufinden waren. In flacheren Flussabschnitten, die eine Probenahme bis in die Flussmitte erlaubten, waren in der Regel die Strömungsgeschwindigkeiten in der Flussmitte zu hoch für größere Sedimentablagerungen. Dieses war zumeist auch sehr grob. Flussabschnitte mit geringer Strömungsgeschwindigkeit, die größere Sedimentablagerungen im Bereich der Flussmitte erwarten lassen würden, waren durchweg sehr tief, so dass aufgrund des Wasserstandes eine Probenahme nur in Ufernähe möglich war. Insbesondere in Bereichen hoher Strömungsgeschwindigkeit wurden natürliche Sedimentfallen bei der Probenahme genutzt. Auch aufgrund der Zugänglichkeit zum Fluss waren dem Ufer vorgelagerte Halbinseln

bevorzugte Probenahmestelle, so dass Sediment oft im Umfeld solcher Halbinseln, meist aus Kies, genommen wurden. Generell wurden Bereiche mit Ufervegetation so weit wie möglich gemieden, um einen Eintrag von Boden und nicht repräsentative Mengen organischer Stoffe zu vermeiden. Einige Stellen wiesen jedoch große Bereiche von mit organischem Material bedeckten Sedimenten auf, in der Regel Blätter vom letzten Herbst. An solchen Stellen wurden, gemäß des Zieles einer repräsentativen Probe, auch diese Bereiche beprobt.

Das beprobte Sediment wurde vor Ort gesiebt um groben Sand und Kies abzutrennen. Hierzu wurde ein Sieb von 1 mm Maschenweite genutzt (Haushaltssieb / Haarsieb). Das Sieben des nassen Sediments ist nur unter Verwendung von Wasser möglich. Um das Auswaschen der feinen Bestandteile, welche in der Regel die höchste Bindungsfähigkeit für Radionuklide haben, zu minimieren, wurde die Siebung in einem mit Flusswasser gefüllten Eimer durchgeführt. Dabei wurde das Wasser mit zunehmender Sedimenthöhe im Eimer in einen anderen Eimer abgegossen und später erneut verwendet. Nach der Siebung wurde das Wasser eine Weile stehen gelassen, damit sich die Sedimente absetzen konnten. Nach Dekantieren des Wassers wurde der verbliebene Sedimentschlamm mit der restlichen Sedimentprobe vereinigt. Die Absetzdauer richtete sich dabei nach der Situation vor Ort. Sie lag in der Regel bei etwa 10 min, aber mindestens 5 min bis etwa 25 min.

Bei der Probenahme 2008 wurde das Sediment im Sieb mit frischem Flusswasser übergossen und dann gesiebt. Das im Eimer befindliche Wasser lief über und zurück in den Fluss. Dieses Vorgehen wird zu einer deutlich höheren Auswaschung an feinen Bestandteilen geführt haben und stellt somit eine wichtige Änderung des Probenahmeverfahrens bei der gegenwärtigen Probenahme dar. Dieser Unterschied sollte bei der Interpretation der Ergebnisse berücksichtigt werden.

Die gesamte Sedimentprobe wurde in einem großen Eimer vereint und durch Rühren mit der Hand homogenisiert. Um das Befüllen zu erleichtern wurde eine fließfähige, aber möglichst hochviskose Konsistenz angestrebt. So der Sedimentschlamm noch nicht zur angestrebten Konsistenz gereicht hat, wurde weiteres Wasser aus der Siebung zugegeben. Die Sedimentproben wurden mittels eines großen Trichters in 1 L –Kautexflaschen abgefüllt. Es wurde eine Flasche für die radiometrischen Untersuchungen und eine Flasche als Rückstellprobe für spätere Analysen insbesondere im Hinblick auf Ionengehalte abgefüllt. In Ausnahmefällen wurden auch drei Flaschen gefüllt; z.B. bei sehr hohem Wassergehalt oder wenn noch sehr viel Sediment übrig war.

Das Probenmaterial wurde nach der Probenahme kühl gelagert. Dies konnte ohne weitere Maßnahmen durch die jahreszeitlich bedingt kühle Witterung sichergestellt werden.

Bei Sediment und Wasser wurde im Umfeld eines bestimmten Ortspunktes beprobt, im Gegensatz zu den Bodenproben, bei denen Flächen im Mittelpunkt der Betrachtung standen. Daher wird bei Sediment- und Wasserproben die Begrifflichkeit **Probenahmestelle** verwendet. Zur Kennzeichnung der Probenahmestelle wurden die Gauß-Krüger-Koordinaten (Potsdam-Datum) bestimmt; hierzu wurde das Gerät „GPS 12“ von Garmin genutzt.

Es wurde eine möglichst hohe Übereinstimmung mit den Probenahmestellen von 2008 angestrebt. Diese Möglichkeit wurde teilweise durch die Geländesituation, wie Zugänglichkeit zur Mulde und Identifikation der damaligen Stellen eingeschränkt. Die 2008 aufgenommenen Koordinaten stellten aus nachfolgenden Gründen nur ein sehr grobes Hilfsmittel dar.

Die Koordinaten von 2008 zeigen erhebliche Diskrepanzen. Angegebene Probenahmestellen für Wasser und Sediment liegen in deutlicher Entfernung zur Mulde und Probenahmeflächen (Auenböden) können nicht mit entsprechenden Landmarken in Einklang gebracht werden. Diese Diskrepanzen sind im Feld wie auch auf den Top50-Karten festzustellen. Die Rechtswerte scheinen eine recht gute Übereinstimmung zu zeigen, während die Hochwerte um rund 500 m abzuweichen scheinen. Wie es hierzu kommen kann ist völlig unklar, jedoch können die Koordinaten von 2008 nur als sehr grobes Hilfsmittel betrachtet werden.

Die Bezeichnung der Probenahmestelle leitet sich von den Bezeichnungen der analogen Proben von 2008 ab. Der Abkürzung der jeweiligen Mulde wurde die Testflächenbezeichnung bzw. –nummer der nächstgelegenen Testfläche oder die ersten drei Buchstaben einer nahegelegenen Ortschaft angehängt; z.B.: VM_T51 an der Vereinigten Mulde bei Testfläche 51 oder ZM_Roc an der Zwickauer Mulde bei Rochlitz.

Die Mulde führte eher Niedrigwasser. Bei der Probenahme Auenböden haben Anwohner berichtet, das es normalerweise vor Wintereinbruch zu einem deutlichen Wasseranstieg kommt, der noch erwartet wird und von uns auch bei der Probenahme Sediment und Wasser noch nicht festgestellt werden konnte.

Besonderheiten:

Auffällig waren insbesondere die Probenahmestellen ZM_T08 und VM_T37, eingeschränkt auch VM_T54. Es handelt sich um Flussstellen mit geringen Fließgeschwindigkeiten und sehr steil abfallendem Flussbett. An ZM_T08 konnte nur knapp 0,5 m ins Wasser gegangen werden, bei VM_T37 konnte sogar nur vom Ufer aus beprobt werden. An einer Stelle bei VM_T37 wurde ein praktisch senkrechter Abfall von über 2 m festgestellt. An beiden Probenahmestellen war das Sediment außergewöhnlich fein. Dies führte zu Problemen beim Sieben und der Redoxwertbestimmung. Beim Sieben bildete das Sediment einen viskosen, wässrigen Schlamm mit geringer Neigung zum Absinken, der das Sieb verstopfte. Es war ein erhebliches Maß an Geduld und Zeitaufwand erforderlich um das Material zu sieben und somit größere Bestandteile, hauptsächlich organisches Material abzutrennen. Zum Redoxwert siehe unten (Feldanalytik). Bei VM_T54 wurde von einer vorgelagerten Halbinsel beprobt. Auch hier fiel das Flussbett steil ab, so dass nur wenig ins Wasser gegangen werden konnte. Hier wurde sowohl sehr feines wie auch sandigeres Sediment beprobt, so dass die oben genannte Probleme weniger ausgeprägt waren.

Feldanalytik Wasser und Sediment

Das notwendige Probenmaterial an Sediment für die Feldanalytik wurde von einem Teil der Hauptprobe abgenommen oder, soweit zeitlich sinnvoll möglich, von der homogenisierten Gesamtprobe. Details hierzu sind in den Messprotokollen vermerkt. Das Probenmaterial wurde zunächst durch Auspressen in Küchenpapier weitgehend getrocknet und in einer Tüte homogenisiert.

Wasser wurde wie oben beschrieben beprobt. Die Messungen erfolgten in einer 250 mL-Kautexflasche, die mit Wasser aus der entsprechenden 1 L-Kautexflasche gefüllt wurde. Auch hierbei wurde versucht den Luftpfeintrag zu minimieren.

Die Feldanalytik umfasst:

- Lufttemperatur
- Wassertemperatur

Sediment:

- Redoxpotential
- pH-Wert
- Leitfähigkeit
- Nitrat (teilweise, nur ZM)

Wasser:

- Redoxpotential
- pH-Wert
- Leitfähigkeit
- Nitrat
- Phosphat
- Carbonat
- Sulfat

Vor Ort wurden Luft- und Wassertemperatur sowie beide Redoxpotentiale gemessen. Die übrigen Messungen wurden am Ende des Probenahmetages im Hotel gemessen. Gründe hierfür waren die kurze Zeit mit Tageslicht und die niedrigen Temperaturen, welche sich negativ auf die Messungen auswirken (z.B. sollten Messstäbchen bei 15 bis 25 bzw. 30 °C genutzt werden). In begründeten Ausnahmen wurde bei sofortiger Fahrt zum Hotel auch das Redoxpotential erst dort gemessen; entsprechende Fälle sind im Messprotokoll vermerkt. Im engeren Kontakt zur Probenahme, aber am Institut, wurde auch der Restwassergehalt des Sediments bestimmt. Nähere Angaben hierzu sind den Aufzeichnungen zur Probennachbereitung zu entnehmen.

Detaillierte Angaben zur Durchführung der Feldanalytik können den Dokumenten

- Analytikplan_Mulde II-1 Sed und
 - Bericht Wiebke Probenahme und Feldanalytik, Sediment und Wasser
- entnommen werden. Im Folgenden sind hierzu ergänzende Anmerkungen aufgeführt.

Abbildung C.4.: Probenahmebericht Seite 4

Luft- und Wassertemperatur

Die Bestimmung der Temperatur erfolgte mittels Haushaltsthermometer mit 1 °C-Skalierung. Zur Bestimmung der Wassertemperatur wurde eines mittels 10 L-Eimers eine Probe aus dem Fluss genommen und das Plastikthermometer für mindestens 20 min darin schwimmen gelassen.

Redoxpotential

Die Bestimmung des Redoxpotentials erfolgte für Wasser und Sediment gemäß den Messanleitungen von 2008. Von welchen Messanleitungen sich diese ableiten ist zurzeit nicht bekannt. Zur Messung wurde das Multimeter „Multi 197i“ von WTW mit der Elektrode „Electrode SenTix ORP“ von WTW genutzt. Die Elektrode wurde für die Probenahme neu angeschafft. Die Elektrode wurde an jeder Testfläche für mindestens 10 min mit Redoxkalibrierlösung RH28 von WTW aktiviert. Weiterhin wurde zur Datenerfassung der Drucker „DPU-414 Thermal Printer“ von Seiko Instruments verwendet. Es wurde ein Messwert pro Minute aufgezeichnet. Als Redoxpotential gilt der erste Messwert, der über eine Minute stabil ist, d.h. zweimal hintereinander aufgezeichnet wurde. In begründeten Ausnahmen wurde hiervon abgewichen. Die hieraus resultierenden Abweichungen liegen jedoch mit maximal 2 mV deutlich unter der Messunsicherheit. Da die Bestimmung des Redoxpotentials sehr stöempfindlich ist, z.B. durch Sauerstoffeintrag, sind die Messungen nur als grober Richtwert zu betrachten und mit einer hohen Messunsicherheit behaftet, die für Wasser auf etwa 30 mV und für Sediment auf etwa 50 mV geschätzt wird.

Die neue Elektrode lieferte insbesondere bei den Sedimenten deutlich stabilere Werte als die 2008 genutzte.

Die Bestimmung des Redoxpotentials erwies sich für die drei Proben mit sehr feinem Sediment (ZM_T08, VM_T37 und VM_T54) als ausgesprochen schwer. Die Messwerte wären gegenüber den anderen Sedimenten sehr instabil und veränderten sich stetig (sinken ab), auch am Abend vorgenommene Wiederholungsmessungen (für alle drei Sedimentproben) zeigten dieselbe Problematik. Das Redoxpotential scheint gestört zu sein, so dass sich die Sonde nicht bzw. nur schwer auf das sich stetig ändernde Potential einstellen kann. So könnte der beim Sieben und Trocknen eingebrachte Sauerstoff mikrobiologisch abgebaut werden, sodass das Redoxpotential ständig abfällt.

pH-Wert und Leitfähigkeit

Die Bestimmung von pH-Wert und Leitfähigkeit erfolgte für Wasser und Sediment gemäß den Messanleitungen von 2008. Von welchen Messanleitungen sich diese ableiten ist zurzeit nicht bekannt. Zur Messung wurde das Multimeter „Multi 197i“ von WTW mit den Elektroden „pH-Electrode SenTix 41-3“ von WTW und „TetraCon® 325“ von WTW genutzt. Es wurden dieselben Elektroden wie 2008 eingesetzt. Weiterhin wurde zur Datenerfassung der Drucker „DPU-414 Thermal Printer“ von Seiko Instruments verwendet. Die Messungen (pH-Wert und Leitfähigkeit) erfolgten unter Nutzung der „AutoRead-Funktion“. Die pH-Elektrode wurde einmal am Tag vor den Messungen kalibriert. Bei schlechter Kalibration wurde diese mehrfach wiederholt; dieses Vorgehen war am 21.11. erforderlich.

Die Messunsicherheiten werden aufgrund der ungünstigeren Bedingungen beim Feldeinsatz über dem für Laborbedingungen angegebenen Wert liegen. Die Messunsicherheit der pH-Wert-Bestimmung wird für Wasser und Sediment auf etwa 0,05 geschätzt. Die Messunsicherheit der Leitfähigkeit wird für Wasser auf etwa 6 $\mu\text{S}/\text{cm}$ und für Sediment auf etwa 10 $\mu\text{S}/\text{cm}$ geschätzt.

Nitrat- und Phosphatgehalt

Die Bestimmung der Ionengehalte Nitrat und Orthophosphat erfolgte reflektrometrisch mittels des Systems Reflectoquant® von Merck. Es wurde das Reflektometer RQflex® 10 genutzt in Verbindung mit den Teststreifen:

Nitrat	Art. 116971 Reflectoquant® Nitrat-Test	5 – 225 mg/L NO_3^-
	Art. 116995 Reflectoquant® Nitrat-Test	3 – 90 mg/L NO_3^-
Phosphat	Art. 116978 Reflectoquant® Phosphat-Test	5 – 120 mg/L PO_4^{3-}

Die Durchführung erfolgte gemäß der Merck- Applikationen:

- Nitrat in Bodenproben Stand: 2012-07-06
- Nitrat in Abwasser Stand: 2012-07-06
- Phosphat in Nährlösung zur Pflanzenzüchtung Stand: 2012-07-12

Der Nitratgehalt der Sedimente wurde analog dem Boden gemessen. Zur Einwaage des Sedimentes wurde die Küchenwaage KS22 von Beurer verwendet.

Der Nitratgehalt wurde fast ausschließlich mittels der Teststäbchen mit 5 – 225 mg/L NO_3^- sowohl bei Wasser wie auch beim Sediment bestimmt. Die Teststäbchen mit 3 – 90 mg/L NO_3^- sind bei den Messungen der Auenböden ausgegangen. Die Nachbestellung ist erst während der letzten Probenahmefahrt eingetroffen. Der Nitratgehalt der Sedimente wurde nur entlang der Zwickauer Mulde gemessen, jedoch nicht mehr entlang der Vereinigten Mulde, da die erforderlichen Teststreifen ausgingen. Dieser Mangel führte dazu, dass der Nitratgehalt der letzten drei Wasserproben (der letzten Probenahmefahrt) (VM_Zsc, VM_T51 und VM_T54) nicht mehr vor Ort, sondern erst einen Tag später nach Rückkehr ans Institut mit den neuen Teststreifen (3 – 90 mg/L NO_3^-) gemessen werden konnte.

Auch die Teststreifen für die Phosphat-Bestimmung sind mit Abschluss der Probenahmefahrt 4 ausgegangen. Für die Probenahmefahrt 5 (ab ZM_Roc) wurde die colorimetrische Messung mittels Merckoquant® Phosphat-Test (Art. 110428; 10 – 500 mg/L PO_4^{3-}) mit der Messeinteilung 0 – 10 – 25 – 50 – 100 – 250 – 500 mg/L PO_4^{3-} von Merck durchgeführt. Die Teststreifen sind bereits 2008 zum Einsatz gekommen. Es ist anzumerken, dass das Mindesthaltbarkeitsdatum April 2009 überschritten wurde. Die Teststreifen wurden vor der Nutzung qualitativ geprüft, jedoch nicht quantitativ. Alle Probenmessungen ergaben einen Wert von < 10 mg/L PO_4^{3-} , dieser Wert kann als sicher angenommen werden.

Die Messungen wurden erst durchgeführt, nachdem die Wasserprobe bzw. die Sediment-suspension eine Temperatur von mindestens 15 °C erreicht hatte. Dies ist für die notwendige Reaktivität der Teststäbchen erforderlich. In der Regel wurde dies durch die Bestimmung von pH-Wert und Leitfähigkeit mit Temperaturfühler sichergestellt.

Carbonat- und Sulfatgehalt

Der Carbonat- und Sulfatgehalt wurde mittels colorimetrischer Messung mit Merckoquant® Teststreifen bestimmt. Wie beim Phosphat kamen Restbestände der Feldanalytik von 2008 zum Einsatz. Die Teststreifen wurden vor der Nutzung qualitativ, jedoch nicht quantitativ geprüft, da das Mindesthaltbarkeitsdatum für beide Teststreifen weit überschritten wurde:

Carbonat	Feb. 2010
Sulfat	Mai 2012

Für die Carbonatbestimmung wurden die Teststreifen Merckoquant® Carbonathärte-Test (Art. 110648; 0 – 24 °dH) mit der Messeinteilung 0 – 4 – 8 – 12 – 16 – 24 °dH von Merck genutzt. Die Messungen sind als grobe Richtwerte mit erhöhter Unsicherheit anzunehmen, wobei die relativen Verhältnisse wahrscheinlich stimmig sind.

Für die Sulfatbestimmung wurden die Teststreifen Merckoquant® Sulfat-Test (Art. 110019; < 200 –> 1600) mit der Messeinteilung < 200 –> 400 –> 800 –> 1200 –> 1600 mg/L SO₄²⁻ von Merck verwendet. Alle Probenmessungen ergaben einen Wert von < 200 mg/L SO₄²⁻, dieser Wert kann als sicher angenommen werden.

Die Messungen wurden erst durchgeführt, nachdem die Wasserprobe eine Temperatur von mindestens 15 °C erreicht hatte. Dies ist für die notwendige Reaktivität der Teststäbchen erforderlich. In der Regel wurde dies durch die Bestimmung von pH-Wert und Leitfähigkeit mit Temperaturfühler sichergestellt.

Bundesamt für Strahlenschutz
Fachgebiet SW 1.5
 Köpenicker Allee 120 - 130, 10318 Berlin
 Telefon: 030/18333-4320, E-Mail: leitstelle-h@bfs.de

RINGVERSUCH 1/2016

Name des Teilnehmers: *Prof. Dr. Clemens Walther*
 Institution: *IRS, Leibniz Universität Hannover*

Nuklid	γ-Strahler Bezugsdatum: 1. Oktober 2016	
	Messung 1	Messung 2
Datum/Messdauer	<i>20.10.2016/75,8h</i>	<i>18.12.2016/24,3h</i>
Na-22	/	/
K-40	/	/
Cr-51	/	/
Mn-54	<i>10,87 ± 0,56</i>	<i>10,86 ± 0,57</i>
Fe-59	/	/
Co-57	/	/
Co-58	/	/
Co-60	<i>9,23 ± 0,73</i>	<i>9,20 ± 0,74</i>
Zn-65	<i>13,44 ± 0,69</i>	<i>13,53 ± 0,73</i>
Sr-85	/	/
Y-88	/	/
Ru-106	/	/
Cd-109	/	/
Sb-125	/	/
I-131	/	/
Cs-134	<i>27,74 ± 1,21</i>	<i>27,74 ± 1,21</i>
Cs-137	<i>16,39 ± 0,84</i>	<i>16,36 ± 0,86</i>
Ba-133	/	/
Ce-139	/	/
La-140	/	/
Eu-152	/	/
Hg-203	/	/
Am-241	<i>4,23 ± 0,44</i>	<i>4,39 ± 0,48</i>

Messgeometrie: *Marinelli - Becken*
 Probenbehandlung: *keine*

Institut für Radioökologie
 und Strahlenschutz (IRS)
 Leibniz Universität Hannover
 Herrenhäuser Str. 2
 30419 Hannover

* Kombinierte Standardmessunsicherheit unter Berücksichtigung von Typ A- und Typ B Messunsicherheit

[Handwritten Signature]

Bundesamt für Strahlenschutz Fachgebiet SW 1.5 Köpenicker Allee 120 - 130, 10318 Berlin Telefon: 030/18333-4320, E-Mail: leitstelle-h@bfs.de		
RINGVERSUCH 1/2016		
Name des Teilnehmers: <i>Prof. Dr. Clemens Walther</i> Institution: <i>IRS, Leibniz Universität Hannover</i>		
Probe 2/2016 (Reales Wasser)	γ-Strahler und Tritium Bezugsdatum: 1. Oktober 2016	
Nuklid	Aktivitätskonzentration ± Messunsicherheit* in Bq/l	
	Messung 1	Messung 2
Datum/Messdauer		
H-3	/	/
Datum/Messdauer	<i>07.11.2016 / 67,3 h</i>	<i>14.11.2016 / 89,1 h</i>
Na-22	/	/
Cr-51	/	/
Mn-54	/	/
Fe-59	/	/
Co-57	<i>1,24 ± 0,08</i>	<i>1,26 ± 0,08</i>
Co-58	/	/
Co-60	<i>8,23 ± 0,65</i>	<i>8,11 ± 0,64</i>
Zn-65	/	/
Sr-85	/	/
Y-88	/	/
Ru-106	/	/
Cd-109	/	/
Sb-125	/	/
I-131	/	/
Cs-134	<i>2,37 ± 0,14</i>	<i>2,32 ± 0,13</i>
Cs-137	<i>7,74 ± 0,40</i>	<i>7,68 ± 0,40</i>
Ba-133	/	/
Ce-139	/	/
La-140	/	/
Eu-152	<i>0,79 ± 0,08</i>	<i>0,75 ± 0,07</i>
Hg-203	/	/
Am-241	<i>4,34 ± 0,45</i>	<i>4,29 ± 0,44</i>
Messgeometrie:	<i>Marinelli - Becher</i>	
Probenbehandlung:	<i>keine</i>	

**Institut für Radioökologie
 und Strahlenschutz (IRS)**
 Leibniz Universität Hannover
 Herrenhäuser Str. 2
 30419 Hannover

* Kombinierte Standardmessunsicherheit unter Berücksichtigung der Typ A- und Typ B Messunsicherheiten



Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich bei Herrn Prof. Dr. Clemens Walther für die Möglichkeit des Schreibens dieser Arbeit am Institut für Radioökologie und Strahlenschutz bedanken. Besonders möchte ich mich für die sehr gute und umfangreiche Betreuung sowie die Ansprechbarkeit bei Fragen und Problemen zu jeder Zeit bei Dr. Stefan Bister bedanken. Außerdem danke ich ihm für die zahlreichen Anmerkungen, Hilfestellungen und intensiven Gespräche bei der Korrektur der Arbeit.

Ein weiterer Dank gilt Herrn Daniel Heine für die Einführung in die Gammaskopie und dessen Auswertung sowie Herrn Karl-Heinz Iwanek für die Erstellung der Gewässerkarte dieser Arbeit.

Ich möchte allen Mitarbeitern des IRS für die Hilfsbereitschaft und Unterstützung in allen Belangen und der angenehmen Arbeitsatmosphäre danken.

Abschließend möchte ich mich bei meiner Familie bedanken, die mir jederzeit zur Seite stand und mich beim Verfassen dieser Arbeit unterstützt hat.