



# LEIBNIZ UNIVERSITÄT HANNOVER

Bachelorarbeit

Hannah Keßler

10019547

# RADIOLOGISCHE UNTERSUCHUNG VON BODENPROBEN AUS MAYAK MIT FOKUS AUF ANTHROPOGENE RADIONUKLIDE

Institut für Radioökologie und Strahlenschutz

Prüfer Prof. Dr. Clemens Walther Betreuerin M.Sc Laura Leifermann

# Inhaltsverzeichnis

1 Einleitung					
2	Hist	Historie von Mayak			
	2.1	Abwassersystem	:		
	2.2	Kyshtym Unfall (29. September 1957)	4		
	2.3	Verdunstung des Karatschai-Sees (10. April bis 15. Mai 1967)	Ę		
	2.4	Kritische Unfälle im Zusammenhang mit der Mayak Production Association .	Ę		
3	Die	Proben	7		
4	Met	choden	g		
	4.1	Gamma-Spektroskopie	Ć		
	4.2	Flotation	12		
	4.3	Rasterelektronenmikroskop	14		
	4.4	Alpha-Tracks	15		
	4.5	Sr-90 Messung mittels Liquid Scintillation Counting	17		
	4.7	Alpha-Spektrometrie	22		
	4.8	Induktiv gekoppelte Plasma Massenspektrometrie	23		
5	Erge	ebnisse	25		
	5.1	Gamma-Spektroskopie	25		
	5.2	Flotation	27		
	5.3	Alpha-Tracks	29		
	5.4	Strontium-90	30		
	5.5	Untersuchung auf Uran, Plutonium und Thorium	31		
6	Disk	kussion und Fazit	35		
	6.1	Klassifizierung der Radionuklide in anthropogen und nicht anthropogen	35		
	6.2	Inhomogenitäten	38		
	6.3	Ursprung der Proben	36		
	6.4	Epidemiologie	43		
7	Anh	ang	46		

# 1 Einleitung

Das Gelände der engl: "Mayak Production Association" (Mayak PA) liegt in der Stadt Osjorsk, welche zur Oblast Tscheljabinsk 1439 km östlich der Hauptstadt Moskau gehört.

Im März 1946 beginnt der Bau der Anlage und im Jahr 1948 geht der erste Uran-Graphit Reaktor in Betrieb. Bis zum Ende der ehemaligen Sowjetunion handelt es sich um eine von insgesamt drei Einrichtungen, in denen mit waffenfähigen, spaltbaren Materialien gearbeitet wird. Seit Bestehen der Mayak PA werden verschiedene Projekte auf dem Gelände durchgeführt. Zu diesen Projekten zählen Plutonium generierende Reaktoren, chemische Trennungen, Isotopenproduktionsanlagen, aber auch die Herstellung von Reaktor-Brennelementen und die Verarbeitung und Lagerung von radioaktiven Abfällen. Bis heute ist die Anlage in Betrieb und wird zur chemischen Separation und Aufbereitung von Brennstäben verwendet. Dabei ist es insbesondere zu Beginn des Betriebs der Anlage zu erheblichen Kontaminationen des Geländes und der umliegenden Regionen gekommen, da kein sicheres und langfristiges Abfallmanagement vorhanden ist. [1]

Ziel der Arbeit ist eine Untersuchung der aus der Umgebung der Anlage der Mayak PA stammenden Oberflächen- und Bodenproben auf verschiedene Radionuklide. Anschließend sollen diese Radionuklide hinsichtlich ihre Herkunft als anthropogen und nicht anthropogen klassifiziert werden. Weitere Ziele der Arbeit sind der Versuch einer weiteren Eingrenzung der Herkunft der Proben und des Ereignisses, das zur Freisetzung der Radionuklide führte. Zudem werden mögliche gesundheitliche Konsequenzen der Kontamination betrachtet.

# 2 Historie von Mayak

Das Gelände der engl: "Mayak Production Association" (Mayak PA) und seine Umgebung sind von radiologischem Interesse, da seit der Inbetriebnahme der Anlage verschiedene Projekte mit radioaktiven Stoffen durchgeführt wurden. Dabei ist es zu verschiedenen Zeitpunkten zu diversen Unfällen gekommen, bei denen unterschiedliche Kombinationen und Mengen an Radionukliden freigesetzt wurden. Hierbei gilt es zu beachten, dass bereits seit Bau der Anlage kaum Information über die dortigen Vorgänge bekannt sind. Die durchgeführten Projekte und in diesem Kontext entstandenen Freisetzungen von Radionukliden wurden zum Teil über Jahrzehnte gegenüber dem Westen und gegenüber der eigenen Bevölkerung geheim gehalten [1]. Auch heute gibt es nur wenige Informationen über die Aktivitäten der Mayak PA und über aktuelle Freisetzungen. Dies hat zur Folge, dass sich in dieser Arbeit lediglich auf bekannte Ereignisse bezogen wird, ohne ausschließen zu können, dass die untersuchten Proben durch weitere Zwischenfälle beeinflusst wurden. Im Folgenden wird ein kurzer Überblick über die größten, bekannten Unfälle gegeben.

Weitere Details zu der Mayak PA und den vorgestellten Ereignissen können Jim Thomsons Artikel [1] entnommen werden.

#### 2.1 Abwassersystem

Ab 1949 wurde der Techa genutzt, um radioaktiven Abfall zu entsorgen, darunter auch hochradioaktiver Abfall (engl: "High-Level-Waste" (HLW)). Die Ableitung von HLW in den Fluss Techa wurde 1951 gestoppt, jedoch wurde die Entsorgung anderer radioaktiver Abfälle bis ins Jahr 1956 fortgesetzt. In dieser Zeit wurden ca. 100 PBq radioaktiven Abfalls im Fluss beseitigt, welcher zu ca. 25% aus Cs-137 und Sr-90 bestand.

Zur Lagerung und Entsorgung von hochradioaktiven Abfällen nach 1951 wurde zunächst der Karachai-See verwendet. Zudem begann im gleichen Jahr der Aufbau von vier künstlichen Seen R3, R4, R10 und R11 durch Aufstauen des Techa. Diese Wasserreservoirs sind in der Abbildung 1 verortet.

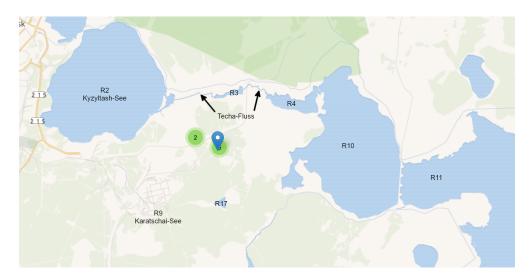


Abbildung 1: **Abwässer auf und um das Mayak-Gelände** In der Abbildung sind die Standorte der verschiedenen Abwasserstätten (d.h. Flüsse, Seen und Stauseen) gekennzeichnet. [2]

# 2.2 Kyshtym Unfall (29. September 1957)

In Mayak befand sich unter anderem zunächst eine Wiederaufbereitungsanlage für Plutonium, in der abgebrannte Brennelemente für die Kernwaffenproduktion weiterverarbeitet wurden. Dabei wurden unter anderem hoch radioaktive Abfälle als auch Natriumnitrat und Natriumacetat hergestellt und beides zusammen gelagert. Die zur Lagerung verwendeten Tanks mussten extern gekühlt werden, da sonst die hohe Aktivität und die damit verbundene Hitzeentwicklung zu einer exothermen chemischen Reaktionen geführt hätte. Im Herbst 1957 gab es einen Fehler im Kühlungsprozess, der eine chemischen Explosion eines dieser Tanks zur Folge hatte. In dem Tank kam es zur exothermen Zersetzung von Natriumnitrat und Natriumacetat, sodass eine Energie von ca. 630 kJ freigesetzt wurde [3]. Die Aktivität der bei der Explosion in der Umgebung verteilten Nuklide betrug 740 PBq. Ca. 90% der dabei freigesetzten Radionuklide setzten sich in der unmittelbaren Umgebung der Explosionsstelle ab. Die verbleibenden 74 PBq gelangten in die Atmosphäre und wurden dort durch Winde in nordöstliche Richtung zerstreut. Dieses Ausbreitungsband, dass als engl: "East Urals Radioactive Trace" (EURT) bezeichnet wird, hatte eine Ausdehnung von ca. 30 bis 50 km in der Breite und ca. 300 km in der Länge. Tabelle 1 zeigt die Zusammensetzung der bei der Explosion freigesetzten Radionuklide. Dabei gilt es zu beachten, dass in der Tabelle 10% der gesamten Freisetzung betrachtet wird, was dem Anteil der Freisetzung entspricht, der sich nicht in der unmittelbaren Umgebung der Explosion abgesetzt hat, sondern in der EURT-Zone verteilt wurde.

Tabelle 1: Radioaktive Freisetzungen beim "Kyshtym Accident", Die Tabelle zeigt die prozentualen und absoluten Anteile der freigesetzten Nuklide. Dabei werden die absoluten Aktivitäten aus den prozentualen Angaben berechnet. [4]

Isotope	Freigesetzte Aktivität [PBq]	Anteil an der gesamten Aktivität (%)
Sr-90 + Y-90	4,0	5,4
Zr-95 + Nb-95	18,4	24,8
Ru-106 + Rh-106	2,7	3,7
Ce-144 + Pr-144	48,8	65,8
Cs-137	0,03	0,35
Pu-239	Spuren	0,002

Es lässt sich erkennen, dass mit 0,03 PBq im Vergleich zu den anderen Isotopen wenig Cs-137, mit "Spuren" im Vergleich kaum Plutonium und kein Uran freigesetzt wurden. Das hat den Grund, dass sowohl Plutonium als auch Uran im vorherigen Schritt bereits zusammen mit dem Cs-137 aus den Brennelementen entfernt und entweder entsorgt wurden oder im Falle des Urans und Plutoniums weiter verwendet wurden.

# 2.3 Verdunstung des Karatschai-Sees (10. April bis 15. Mai 1967)

Im November 1951 wurde das Ablassen von hochradioaktiven Flüssigabfällen in den Techa-Fluss beendet. Stattdessen wurden Sr-90 und Cs-137 Abfälle in den Karatschai-See auf dem Mayak Gelände abgeleitet. Zu dem Zeitpunkt der Freisetzung hatte der See somit ein Inventar von ca. 4370 PBq. Im Jahr 1967 folgte auf einen trockenen Winter ein warmer Sommer, sodass der See austrocknete. Ein Wirbelsturm Anfang April 1967 führte dazu, dass kontaminiertes Sediment aus dem Karatschai-See aufgewirbelt und in der Umgebung verteilt wurde. Diese Freisetzung erfolgte bis zum 15. Mai, wodurch die Fläche im Umkreis von ca. 50 bis 75 km mit ca. 22 PBq kontaminiert wurde. Dabei wurden zu 75% Cs-137 und zu 25% Sr-90 freigesetzt [1].

#### 2.4 Kritische Unfälle im Zusammenhang mit der Mayak Production Association

In Tabelle 2 sind Kritikalitätsunfälle aufgeführt, die im Zusammenhang mit der engl: "Mayak  $Production \ Association"$  stehen.

Tabelle 2: Störfälle in Mayak, [5] und [6]

Cocomto Projectauna			
Datum	Gesamte Freisetzung $(1 \cdot 10^{17} \text{ Zerfälle})$	Beschreibung	
!	(1 · 10 Zerranc)	Plutonium: Beim Transfer von Plutoniumnitrat	
!			
15.03.1953	2,0	kam es zur Freisetzung. Dies war bedingt durch	
!		Verfahrensverstöße, mangelhafte Ausbildung und	
		unzureichende Aufzeichnungen.	
!		Uran: Der Unfall ereignete sich während der	
!		Arbeit mit hochangereichertem Uran (HEU) in Form von	
21.04.1957	2,0	Oxalatschlamm. Problem waren unzureichende Kritikalitäts-	
!		bewertungen und -kontrollen sowie Fehlen	
		eines Kritikalitätsalarms.	
		Uran: Verfahrensverstöße in Form von manueller	
02.01.1958	2,0	Handhabung führten in einem Behälter, der für Kritikalitäts-	
!	,	experimente mit HEU-Nitratlösungen genutzt wurde, zu dem Unfall.	
	2,5	Plutonium: Der Unfall ereignete sich in den	
		Handschuhboxen, in denen Abfallverwertungs-	
05.12.1960		tätigkeiten mit Plutoniumkarbonatlösung durchgeführt	
!		wurden. Dabei wurden Grenzwerte für die kritische	
		Masse überschritten.	
		Plutonium: Während der Rückgewinnung von Trocken-	
07.09.1962	2,0	rückständen in dem Prozess, um Plutonium in Metall	
		umzuwandeln, kam es zu Kritikalitätsimpulsen.	
		Uran: Bei der Rückgewinnung von HEU-Rückständen	
	'	wurde eine Charge mit 2,2 kg HEU in den Auflösungs-	
16.12.1965	5,5	behälter geladen, sodass es kurzzeitig zur Kritikalität	
		kam.	
	-	Plutonium: Der Unfall ereignete sich bei Arbeiten	
10.12.1968	1,3	zur Dekantierung plutoniumhaltiger organischer	
10.12.1300		Lösungen.	
	<u></u>	Losungen.	

#### 3 Die Proben

Alle zu den beiden Proben vorliegenden Informationen sind entweder der Beschriftung der Probenröhrchen oder dem Beizettel zu den Proben entnommen. Dabei sind sowohl die Beschriftung, als auch der Beizettel auf russisch verfasst, es liegt eine Übersetzung ins Englische und ins Deutsche vor:

- 1. Wurf, Achse des EURT, 10 km vom Epizentrum entfernt. Waldstreu, dunkelgrau, leicht feucht, Mischung aus Pflanzenresten unterschiedlichen Zersetzungsgrades.
- 2. Boden, EURT-Achse, 10 km vom Epizentrum entfernt. Dunkelgraue, feuchte, steinige Struktur, Lehm, Vegetationsreste (hauptsächlich Wurzeln), Art grauer Waldboden



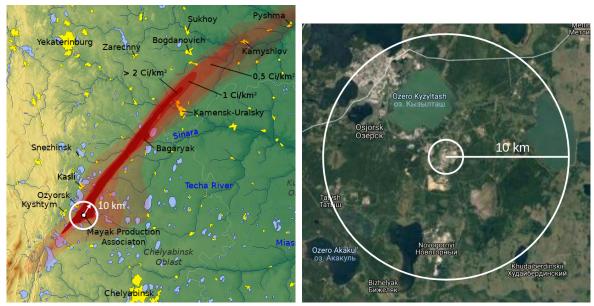
Abbildung 2: Probenröhrchen

Bilder der Probenröhrchen mit den jeweiligen in ihnen enthaltenen Proben aus Mayak. Beide weisen eine Beschriftung auf, die zum einen die Tiefe des Bodens angibt, aus der die Proben genommen wurden. Zum anderen ist eine Entfernung von 10 km von "Epizentrum" darauf vermerkt. Jedoch wird das "Epizentrum" nicht weiter angegeben.

Nach Angabe des Beizettels wurden die Proben in 10 km Entfernung vom "Epizentrum" genommen. Dabei ist das "Epizentrum" nicht genauer spezifiziert. Da jedoch zusätzlich die Angabe gemacht wurde, dass die Probe aus der EURT-Achse stammt, besteht die Vermutung, dass es sich bei dem "Epizentrum" um den Ort der Explosion von der Freisetzung des Kyshtym Unfalls handelt. Ist dies der Fall, liegt das "Epizentrum" auf der Anlage von Mayak und Abbildung 3 zeigt den möglichen Radius, aus dem die Proben stammen könnten und zusätzlich die Schnittfläche des Radius mit der nordwestlichen Achse des EURT.

Weitere Möglichkeiten zur Lage des "Epizentrums" sind die anderen Standorte der in Kapitel

2 vorgestellten Unfälle und Vorkommnisse. Somit könnten auch der Karatschai See (siehe Abschnitt 2.3) und der Techa-Fluss (siehe Abschnitt 2.1) als mögliche Epizentren betrachtet werden.



10 km Radius mit EURT [7]

 $10\,\mathrm{km}$  Geländeansicht

Abbildung 3: Proben Herkunft

Gemäß den zu den Proben erhaltenen Angaben, dass sie aus einem Umkreis von 10 km vom "Epizentrum" entfernt genommen wurden, ist auf den Karten der mögliche Radius dargestellt, aus dem die Probe stammen könnten.

Die erste Probe stammt von der Oberfläche und beinhaltet eine Kombination aus verschiedenen Gräsern. Ihre Farbgebung wird als dunkel-grau beschrieben und es liegen 25,56 g zur Analyse vor. Diese Probe wird im Folgenden als Oberflächenprobe oder kurz Mayak 0 cm bezeichnet. Bei der zweiten Probe handelt es sich um grauen Waldboden aus einer Tiefe von 5 bis 7 cm. In dieser Probe sind zudem Vegetationsreste enthalten und sie hat ein Gewicht von 27,00 g. Im Folgenden trägt diese Probe die Bezeichnung Bodenprobe oder kurz Mayak 5 bis 7 cm. Ebenfalls unbekannt sind die Modalitäten der Probenahme, das heißt es ist nicht klar, ob die Proben ein Bodenprofil widerspiegeln, oder ob die Proben an zwei verschiedenen Standorten genommen wurden.

#### 4 Methoden

In diesem Abschnitt geht es um die verschiedenen Methoden, mit denen die Proben untersucht werden. Dabei erfolgen zunächst Untersuchungen mit Hilfe von Gamma-Spektrometrie, um die Probe auf  $\gamma$ -Strahlung zu untersuchen. Anschließend werden spezielle Methoden zur Partikelsuche wie die Alpha-Track-Analyse angewendet. Dies hat den Vorteil, dass zunächst zerstörungsfrei Erkenntnisse gewonnen werden können, welche weiteren Untersuchungen sinnvoll sind. Aufgrund dieser ersten Ergebnisse werden anschließend die Proben spezifischer mit Hilfe von Flüssigszintillationszähler (engl: "Liquid Scintillation Counting" (LSC)), Alpha-Spektrometrie und "Induktiv gekoppelter Plasma Massenspektrometrie" (ICP-MS) auf Sr-90, Uran, Plutonium und Thorium analysiert.

Dabei werden alle durchgeführten Methoden nur skizziert und nicht im vollständigen Detail vorgestellt, da dies den Rahmen der Arbeit überschreiten würde. Detaillierte Informationen zu den Verfahrensweisen sind in den jeweils angegebenen Quellen zu finden.

#### 4.1 Gamma-Spektroskopie

Zur gammaspektrometrischen Untersuchung der Proben wird ein Germanium-Halbleiter-Detektor verwendet. Eine detaillierte Beschreibung der Funktionsweise und des Aufbaus geben Jens-Volker Kratz und Karl Heinrich Lieser [8].

Der Aufbau eines Halbleiter-Detektors ist in Abbildung 4 dargestellt.

Bei einem Halbleiter-Detektor handelt es sich um eine in Sperrrichtung betriebene Diode. Trifft ein  $\gamma$ -Quant auf die Kristalle in dem Halbleiter, werden diese ionisiert und es entstehen freie Elektronen und dazu gehörige Löcher in den Atomen des Halbleiters. Durch die hohe Energie der  $\gamma$ -Strahlung im Vergleich zu der Energielücke des Halbleiters gelangen die freien Elektronen aus dem Valenzband in das Leitungsband. Dabei werden die Löcher im Valenzband zurückgelassen, die sich als Quasi-Teilchen frei im Halbleiter bewegen können. Die so entstehenden freien Ladungsträger werden durch das elektrische Feld zur Elektrode hin beschleunigt und dort als Strompuls detektiert. Dieser ist proportional zu der Anzahl der freigesetzten Elektronen und damit auch zu der Energie der einfallenden Gammastrahlung.

Im MCA des Detektors werden die Messwerte jedoch in der Zuordnung Impulse zu Kanalnummer gespeichert, was dazu führt, dass zunächst eine Energie-Kalibrierung vorgenommen werden muss, um die  $\gamma$ -Energien den entsprechenden Kanalnummern zuzuordnen.

Die Auflösungskalibrierung wird verwendet, um die Auflösung des Messystems in Abhängigkeit von der Energie zu bestimmen.

Die letzte durchzuführende Kalibrierung ist die Effizienz-Kalibrierung, da so eine Verbindung

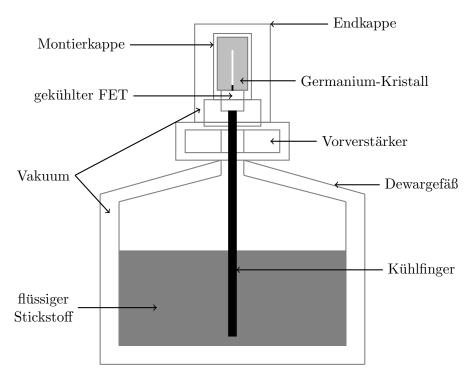


Abbildung 4: Aufbau des Gamma-Detektors

Die Darstellung zeigt den Aufbau eines Germanium-Halbleiter Detektors. In Anlehnung an Walther, 2020, [9]

zwischen den Impulsen und der Aktivität der Probe hergestellt werden kann. Dieses Verfahren wird ausführliche im Buch von Knoll [10] beschrieben. Dafür wird Formel (1) verwendet.

$$\epsilon(E) = \frac{\text{Impulse}}{A \cdot p(E) \cdot t} \tag{1}$$

Welche die folgenden Parameter enthält:

 $\epsilon(E) = \text{Wirkungsgrad bei der Energie E, absolut}$ 

A = Aktivität des Kalibrationsnuklids zum Messzeitpunkt

t = Messzeit in Sekunden

p(E) = Emissionswahrscheinlichkeit des Kalibrationsnuklids bei der Energie E.

Zur Effizienz-Kalibrierung und anschließenden Auswertung der mit dem Gamma-Detektor durchgeführten Messungen wird die Top-Down-Methode verwendet, welche der Dissertation von Jan Vahlbruch [11] entnommen wird. Dazu wird ein Teil der Probe in eine Petrischale gefüllt und mit dem Detektor analysiert. Anschließend wird ein Standard gemessen. Anstatt jedoch nur eine Messung mit dem Standard durchzuführen, werden, um die Selbstabsorbtion der Probe zu berücksichtigen, zwei Messungen durchgeführt. Dazu wird der Standard einmal auf (Top) und einmal unter (Down) der Petrischale platziert. Dabei basiert die Methode auf der Annahme, dass die gemessene Probe homogen in der Petrischale verteilt ist. Dementsprechend wird die Formel für die Effizienz-Kalibrierung des Detektors angepasst.

$$\epsilon_{\text{Probe}} = \frac{\epsilon_{\text{top}} - \epsilon_{\text{bottom}}}{\ln(\epsilon_{\text{top}}) - \ln(\epsilon_{\text{bottom}})}$$
(2)

Diese kann genutzt werden, um mit Hilfe von Formel (1) die Aktivität der Proben zu bestimmen. Es folgt:

$$A = \frac{\text{Impulse}}{\epsilon_{\text{Probe}} \cdot p(E) \cdot t} \tag{3}$$

Wie in der Abbildung 4 zu erkennen, wird der Detektor mittels flüssigem Stickstoff gekühlt. Dies dient der Vermeidung von thermischem Rauschen, das entstehen kann, wenn die Elektronen die Energielücke durch thermische Anregung überwinden, was zu einem zusätzlichen Untergrund in den Messungen führen kann. Zudem wird für die Detektoren sogenanntes engl. high pure, also hoch reines, Germanium verwendet. Bei diesem kommen auf ein Fehlatom 10<sup>11</sup> Ge-Atome.

#### 4.2 Flotation

Die Flotation ist ein physikalisches Verfahren zur Trennung von Feststoffen, bei dem die Probe in einer wässrigen Lösung mit hoher Dichte aufgeschlossen und durch Zentrifugieren in zwei Fraktionen unterschiedlicher Masse getrennt wird. Mithilfe dieser Methode wird vorrangig nach Kernbrennstoffpartikeln gesucht, die aufgrund ihrer hohen Dichte in der schweren Fraktion erwartet werden. Die Durchführung der Flotation wird im Folgenden anhand von Abbildung 5 erklärt.

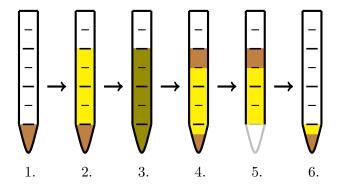


Abbildung 5: Flotation schematisch

Diese Abbildung zeigt schrittweise den schematischen Ablauf der Flotation. Dabei wird die Probe (braun) mit Poly-Wolframatlösung (gelb) vermischt und anschließend zentrifugiert, um die Probe in zwei Fraktionen zu trennen. Durch einfrieren (weiß) der unteren Fraktion, lassen sich die Fraktionen voneinander separieren.

- 1. Im ersten Schritt wird ca. 1 bis 2 g der Probe abgewogen und in ein Zentrifugenröhrchen mit 15 mL Volumen gefüllt. Bei der im Zusammenhang mit dieser Arbeit durchgeführten Flotationen wurden 1,644 g für die 0 cm und 1,193 g für die 5 bis 7 cm Probe verwendet.
- 2. Die Röhrchen werden auf ca. 6 mL mit einer Poly-Wolframatlösung aufgefüllt, die eine Dichte von etwa  $3\,\mathrm{g/cm^3}$  besitzt.
- 3. Damit sich die Proben mit der Poly-Wolframatlösung vermischen, werden die Röhrchen gut durchgeschüttelt. Sollte dies nicht für eine optimale Durchmischung von Probe und Lösung ausreichen, kann das Probenröhrchen in ein Ultraschallbad gehalten und die Probe weiter aufgeschlemmt werden.
- 4. Im nächsten Schritt werden die Probenröhrchen solange zentrifugiert, bis sich die leichte und die schwere Fraktion klar voneinander getrennt haben. Dabei wird die Drehzahl und die Dauer der einzelnen Zentrifugationsschritte nach Bedarf variiert.
- 5. Anschließend wird die schwere Fraktion mit flüssigem Stickstoff eingefroren. Dies ermöglicht es, die leichte Fraktion verlustfrei zu dekantieren.

6. Nachdem die leichte Fraktion abgetrennt wurde, kann die schwere Fraktion auftauen und ebenfalls verlustfrei dekantiert werden.

Im Anschluss werden beide Proben filtriert und für weitere Untersuchungen im Gammaspektrometer und im Rasterelektronenmikroskop aufgehoben.

# 4.3 Rasterelektronenmikroskop

Bei dem "Rasterelektronenmikroskop" (REM) wird die Wechselwirkung von Elektronen mit Materie zur Mikroskopie von Materialoberflächen verwendet. Im Rahmen dieser Arbeit wurden die Messungen mit dem "XL30 Esem" durchgeführt. Eine detaillierte Beschreibung der Funktionsweise und des Aufbaus liefert die Abschlussarbeit von Paul Hanemann [12].

Im REM werden von einer Kathode ausgesendete Elektronen mit einer Spannung von 9 bis 30 keV beschleunigt, und der so entstehende Elektronenstrahl wird mit Hilfe von magnetischen bzw. elektrischen Feldern fokussiert. Das Abtasten der Probe mit dem Elektronenstrahl ist durch die Lenkung des Strahls über diese magnetischen bzw. elektrischen Felder möglich. Die letztendliche Detektion erfolgt über die Erfassung der in der Probe auftretenden Wechselwirkungen zwischen den Atomen des Materials und den Elektronen. Es besteht die Möglichkeit, mit dem verwendeten REM drei verschiedene Methoden der Untersuchung anzuwenden. Da ein besonderer Fokus dieser Arbeit auf dem Auffinden von Kernbrennstoffpartikeln liegt, sind der EDX-Detektor (engl: "energy dispersive X-ray spectroscopy") und der BSE-Detektor (engl: "backscattered electrons") relevant. Dabei wird der EDX-Modus verwendet, um die Zusammensetzung der Probe zu bestimmen. Im BSE-Modus werden die Rückstreuelektronen detektiert. Die Elektronen werden durch die Wechselwirkung mit der Materie zurück gestreut. Dabei hängt die Stärke dieser Rückstreuung mit der Ordnungszahl des untersuchten Materials zusammen. Das heißt, dass mit steigender Ordnungszahl auch die Anzahl der rückgestreuten Elektronen steigt, sodass die Helligkeit der einzelnen Partikel einen Rückschluss über die Zusammensetzung des untersuchten Materials zulässt. Da Uran eine hohe Ordnungszahl besitzt, erscheint es bei der Untersuchung in diesem Modus deutlich heller als z.B. Silikatpartikel.

# 4.4 Alpha-Tracks

Als weitere Methode zur Untersuchung der Proben wird die Analyse von Alpha-Tracks durchgeführt. Diese wird verwendet, um mögliche Partikel zu finden, welche sich durch ein verdichtetes Auftreten von alpha-Strahlung äußern. Das Verfahren beruht darauf, dass alpha-Strahlung beim Eindringen in Materie durch ihre vergleichsweise hohen Ionendichte und geringe Eindringtiefe, und damit hohe Ionisationsdichte, Spurenschäden in dem bestrahlen Material verursacht. Abbildung 6 stellt diesen Prozess schematisch dar.

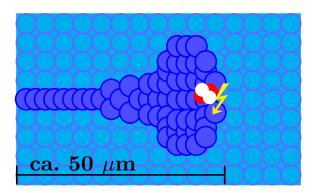


Abbildung 6: alpha-Strahlung in Materie

Schematische Darstellung von alpha-Strahlung in Materie. Dabei soll die Abbildung veranschaulichen, dass alpha-Strahlung ca.  $50\,\mu\mathrm{m}$  in Materie eindringt. Zudem erzeugt sie durch ihre Größe einen punktuell großen Schaden. [13]

Für die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Alpha-Track Analysen werden CR-39 Polycarbonat-Detektoren verwendet. Pro Probe werden zwei Detektoren entsprechend Bild 8 vorbereitet. Die Vorbereitungen der Messung sind in Bild 7 zu sehen. Insgesamt werden die Detektoren 18 Tage lang bestrahlt. Da die Schädigungen der Molekularstruktur des Detektors durch die Strahlung selber zu klein sind, um mit bloßem Auge erkannt werden zu können, werden die Detektoren drei Stunden in 6 molarer NaOH (Natronlauge) bei 80 °C geätzt. Während des Prozesses werden die Detektoren gleichmäßig geätzt, sodass die durch die alpha-Strahlung verursachten Löcher vergrößert und dadurch sichtbar gemacht werden. Dabei wurde die Alpha-Track-Analyse analog zur Methode in dem Paper von Vlasova et al. [14] durchgeführt.

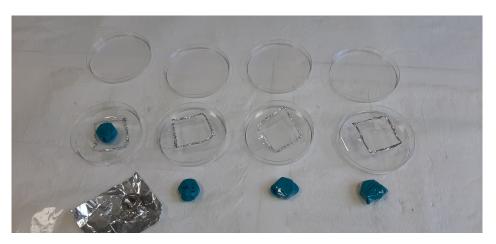


Abbildung 7: Alpha-Track Aufbau

Diese Bild zeigt den fertigen Aufbau der Alpha-Track Messung. Dieser erfolgt gemäß der Beschreibung von Abb. 8.

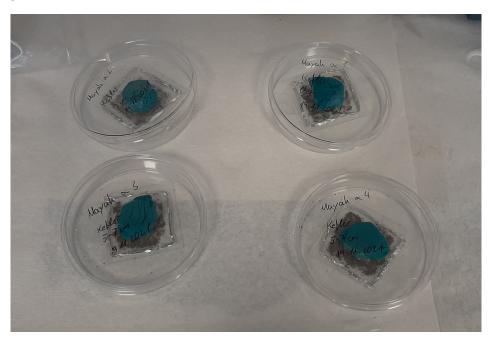


Abbildung 8: Proben Vorbereitung

Vorbereitung der Proben für die Messung mit Alpha-Track. Damit die Polycarbonat-Detektoren nicht durch direktes Aufliegen auf der Probe kontaminiert werden, wird mit Alufolie ein Umrandung geformt, die mit Klebeband befestigt wird. Anschließend wird der Detektor mit einer in einen Gummihandschuh eingepackten Schraubenmutter beschwert, damit der Abstand zur Probe minimal (ohne Kontamination) wird.

# 4.5 Sr-90 Messung mittels Liquid Scintillation Counting

Dieser Abschnitt behandelt die spezifische Untersuchung des Probenmaterials auf Sr-90. Dabei wird zunächst ein auf einer kommerziell erwerbbaren Säule beruhendes Trennverfahren durchgeführt (Aufbau siehe Abbildung 9), sodass anschließend eine Messung mittels Flüssigszintillationszähler (engl: "Liquid Scintillation Counting" LSC) möglich ist. Eine detaillierte Beschreibung des Trennverfahrens sind in der Abschlussarbeit von Malte Böhsl zu finden [15].

#### 4.5.1 Sr-90 Trennung

Zunächst wird eine Sr-90 Trennung durchgeführt, um die bei der anschließenden LSC-Messung zusätzlichen störenden  $\beta$ -Strahler, wie Cs-137, zu entfernen. Zu Beginn der Probenvorbereitung wird eine Lösung für einen Mikrowellenaufschluss zum Überführen der Probe in eine wässrige Lösung angesetzt. Für diese Lösung wird Sr-85 als Tracer für die Bestimmung der Ausbeute der chemischen Trennung benötigt. Sr-85 eignet sich gut, da es kein natürlicher Bestandteil von Umweltproben und mit einer Gamma-Energie von 514 keV gammaspektrometrisch messbar ist.

Unter Zugabe von 50 Bq des Tracers in 8 mol/L HNO<sub>3</sub> wird die Probe vorbereitet.

Vor und nach der Trennung wird ein Aliquot genommen, damit bei Auftreten von Fehlern die Messung nicht wiederholt werden muss.

Die eigentliche Sr-90 Trennung erfolgt in den fünf Schritten Konditionierung, Load, Rinse 1 & 2 und Elute.

- Konditionierung: 5x 1 mL 8 mol/L HNO<sub>3</sub>
- Load: Probe
- Rinse 1: Gefäß waschen mit 5x 1 mL 8 mol/L HNO<sub>3</sub>
- Rinse 2 : 5x 1 mL 2 mol/L HNO<sub>3</sub>+Oxalsäure
- Elute: 10x 1 mL 0,025 mol/L HNO<sub>3</sub>

Vor und nach der Sr-Trennung werden mit den Proben Gamma-Messungen durchgeführt, welche es ermöglichen, mithilfe des Tracers Sr-85 die Wiederfindungsrate zu bestimmen. Dabei wird die Annahme getroffen, dass während der Trennung die gleiche Menge Sr-85 wie Sr-90 verloren geht, da von einem gleichen chemischen Verhalten der Isotope ausgegangen wird. Die so präparierten Proben müssen nun noch für die Messung mittels LSC vorbereitet werden. Dazu wird das Volumen der Proben durch zehnfache Wiederholung der Evaporation, also der abwechselnden Hinzugabe und Verdunstung von Wasser, auf 0,5 mL eingeengt und anschließend

mit 3x 0,5 mL Wasser ergänzt, welches zur Reinigung des Gefäßes verwendet wurde. Dieses Verfahren dient dazu, den Säuregehalt der Probe zu verringern, wodurch die Kompatibilität mit dem Szintillationscocktail erhöht und der Quench verringert wird. Nun wird drei Wochen abgewartet, damit sich ein säkulares Gleichgewicht zwischen Sr-90 und seiner Tochter Y-90 einstellen kann. Dies ermöglicht eine Messung mit geringeren Unsicherheiten, da durch das Y-90 die Zählrate doppelt so groß ist, als wenn nur das Sr-90 gemessen werden würde.

Nach diesen drei Wochen werden die 2 mL Probenmaterial mit 18 ml Szintillationscocktail "Ultima Gold AB" vermengt und gemessen.



Abbildung 9: Aufbau Sr-Trennung

Aufbau zum Ausspülen der Sr-90 aus dem Probenmaterial. Dabei werden die angegeben Flüssigkeiten mittels der Spritze durch das Resin geleitet und anschließend in dem Probenröhrchen aufgefangen.

#### 4.5.2 LSC-Messung

Die LSC nutzt den Energieübertrag der ionisierenden Strahlung auf Szintillationsmoleküle, die durch diese Anregung Photoquanten abgeben. Details zum Aufbau und der Funktionsweise der LSC gibt Malte Böhsl in seiner Abschlussarbeit [15].

Die LSC misst die Energie der Strahlung in einem Cocktail aus Messprobe und Szintillator. Dabei wird die Energie der Radionuklide in Photonen konvertiert. Im Fall von ionisierender Strahlung wird der Energieübertrag über Streuprozesse an die Szintillatormoleküle weitergegeben. Die Moleküle emittieren daraufhin Photonen mit der Wellenlänge, die der molekülspezifischen Anregungsenergie entsprechen. Dabei wird Energie freigesetzt, welche in Form von Fluoreszenz sichtbar wird und so vom Photomultiplier registriert werden kann. Die Energie des ursprünglichen  $\beta$ -Teilchens ist proportional zu der Anzahl der freigesetzten Photonen. Während der Detektion kann es durch verschiedene Prozesse zu Energieverlust

kommen. Dies wird als Quench bezeichnet und kann in vier verschiedene Kategorien eingeteilt werden.

- Konzentrationsquench: Tritt auf, wenn ein falsches Verhältnis zwischen Probe und Szintillator vorliegt.
- Chemischer Quench: Ist der am häufigsten auftretende Energieverlust und kommt zum Tragen, wenn die Probe durch den Szintillationscocktail verändert wird. Dabei führt Energieabsorbtion durch chemische Substanzen im Cocktail dazu, dass Szintillationsmoleküle nicht angeregt werden können.
- Physikalischer Quench: Wenn es bereits vor der Übertragung der Energie auf das Szintillator-Molekül zu einem Energieverlust kommt.
- Optischer Quench: Als optischer Quench wird alles bezeichnet, was zu Energieverlust durch die Lösung selber führt.
  - Farbquench: Ist ein spezifischer optischer Quench, bei dem es durch Verunreinigung und/ oder Trübung der Lösung passieren kann, dass Photonen bei der falschen Energie erfasst werden.

# 4.6 Untersuchung auf Uran, Plutonium und Thorium

Weiterhin werden in dieser Arbeit die Proben mittels alpha-Spektrometrie und "Induktiv gekoppelter Plasma Massenspektrometrie" auf Uran, Plutonium und Thorium untersucht. Dazu werden auch hier zunächst Trennungen vorgenommen, um die anschließenden Messungen durchführen zu können.

#### 4.6.1 Aufschluss

Um die Proben nach Plutonium, Uran und Thorium auftrennen zu können, muss zunächst ein Mikrowellenaufschluss des Probenmaterials durchgeführt werden. Dazu werden analog zum Aufschluss in Kapitel 4.5.1 die Proben zusammen mit dem Tracer Pu-242, 15 mL Salpetersäure und zusätzlich 2,5 mL Flussäure, in die Mikrowelle gegeben.

#### 4.6.2 Plutoniumtrennung

Das eigentliche Ziel ist die Plutonium-Trennung, bei der Uran und Thorium als Zwischenschritte abgetrennt werden. Dies führt dazu, dass bei der Auswertung das Plutonium Spektrum am reinsten ist, während in den Uran und Thorium Spektren weitere Nuklide enthalten sind. Die Plutoniumtrennung erfolgt durch eine Festphasenextraktion, die im Anhang in Tabelle 8 stichpunktartig erklärt wird.

Die Probe nach Schritt 11a wird unter der Heizlampe bis zur Trockne eingeengt. Anschließend wird der Rückstand in 10 mL Elektrodepositionslösung aufgenommen und für 10 bis 15 min auf der Heizplatte mit Heizlampe belassen. Dieses Verfahren führt dazu, dass der Rückstand sich besser lösen lässt.

Um diese Proben alphaspektrometrisch untersuchen zu können, wird im nächsten Schritt eine Elektrodeposition durchgeführt. Die Depositionszelle wird mit der Edelstahlscheibe aufgebaut. Der Aufbau wird auf seine Dichtheit geprüft, indem er für 5 min mit destilliertem Wasser gefüllt und stehen gelassen wird. Ist der Aufbau dicht, kann die Probelösung in die Elektrodepositionszelle eingefüllt werden. Das Becherglas wird erneut zwei Mal ausgespült, in diesem Fall mit jeweils 1 mL Elektrodepositionslösung. Nun wird die Apparatur mit einem Deckel verschlossen. Die Platin-Elektrode ist so zu platzieren, dass sie nur wenige mm über dem Edelstahlplättchen endet. Für die Elektrolyse wird der Aufbau an eine Stromquelle angeschlossen, die auf eine Stromstärke von 950 mA und eine Spannung von  $\sim$ 7,5 V eingestellt ist. Die Lösung wird für zwei Stunden elektrolysiert. Ungefähr 1 min vor Abschluss der Elektrodeposition wird zu der Probe 1 mL 25% konzentrierte Ammoniaklösung hinzugefügt, um eine Auflösung der Hydroxide an der Kathode zu verhindern. Das Edelstahlplättchen, auf dem sich nun das abgetrennte Plutonium befindet, wird in der angegebenen Reihenfolge mit

5%-iger Amoniaklösung, Ethanol und Aceton abgespült und für 30 min auf der Heizplatte bei 300°C ausgeheizt. Dies führt dazu, dass Hydroxide in Oxide umgewandelt werden.

#### 4.6.3 Uran- und Thoriumtrennung

Auch bei der Uran- und Thoriumtrennung wird zunächst eine chemische Trennung durchgeführt. Dabei ist der Aufbau der Teva-Säule analog zu dem Aufbau bei der Strontiumund Plutoniumtrennung: siehe Kapitel 4.5.1, 4.6.2 und Abbildung 9. Der genaue Ablauf der chemischen Trennung ist im Anhang in Tabelle 9 beschrieben.

Auch für das Uran- (nach Schritt 18b) und das Thoriumpräparat (nach Schritt 16b) wird eine Elektrodeposition durchgeführt, die in den Schritten 19b bis 23b nur für Uran beschrieben wird, da der Prozess für das Thoriumpräparat analog ist.

Die Vorbereitung der Edelstahlscheibe für die Elektrodeposition erfolgt analog zu den Vorbereitungen bei der Plutoniumdeposition. Der Aufbau der Depositionszelle inklusive der Edelstahlscheibe und die Überprüfung der Dichtheit erfolgt analog zu der Deposition des Plutoniums. Die Probe wird in die Zelle gefüllt und das Probengefäß insgesamt drei Mal mit jeweils 1 mL destilliertem Wasser ausgespült. Zudem wird der Lösung 1 mL Ammoniumoxalat ((NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>C<sub>2</sub>O<sub>4</sub>) zugegeben. Die Zelle wird mit einem Deckel verschlossen und die Platin-Elektrode so platziert, dass sie wenige mm über dem Edelstahlplättchen endet. Die Elektrolyse wird bei 500 mA für 5 min gestartet und bei 750 mA für 2 Stunden fortgesetzt. Ohne die Elektrolyse zu unterbrechen, wird 1 min vor Ende der Deposition 2 mL 25%-iges Kaliumhydroxid (KOH) hinzugegeben. Nach Ende der Elektrolyse wird das Edelstahlplättchen in der angegebenen Reihenfolge mit 5%-iger Ammoniaklösung, destilliertem Wasser und Ethanol abgespült und anschließend an der Luft getrocknet. Um die noch vorhandenen Hydroxide in Oxide zu überführen, wird die Edelstahlscheibe für 30 min bei 300 °C auf die Heizplatte gelegt. Dies führt dazu, dass Uran und Thorium sowohl chemisch, als auch mechanisch stabiler vorliegen und die Probe selber unempfindlicher ist.

Die so präparierten Plutonium, Uran und Thorium Proben werden auf dem alpha-Spektrometer gemessen.

#### 4.7 Alpha-Spektrometrie

Anschließend erfolgt eine alpha-spektrometrische Untersuchung der Proben mittels eines Halbleiter Detektionsverfahrens. Dafür wird ein Oberflächen Sperrschicht Detektor, in diesem Fall der engl: "Passivated Implanted Planar Silicon" (PIPS) Detektor, verwendet. Bei diesem handelt es sich um eine in Sperrrichtung betriebene Diode, welche in Abbildung 10 rechts dargestellt ist. Durch das Auftreffen der alpha-Strahlung auf den Halbleiter werden in diesem Elektronen-Loch-Paare erzeugt. Diese werden durch das elektrische Feld in der Raumladungszone voneinander getrennt, wobei \*1 in Abb. 10 rechts die Bewegung der Löcher und \*2 die Bewegung der Elektronen im elektrischen Feld veranschaulicht. Dies führt zu einer Umwandlung des Ladungsimpulses in einen Spannungsimpuls am Arbeitswiderstand. Die Höhe dieses Spannungsimpulses ist proportional zu der Menge der Ladung und damit auch zu der Energie der Teilchen.

Die Funktionsweise der Alpha-Spektrometrie stellt Peter Thomson in seiner Diplomarbeit [16] vor.

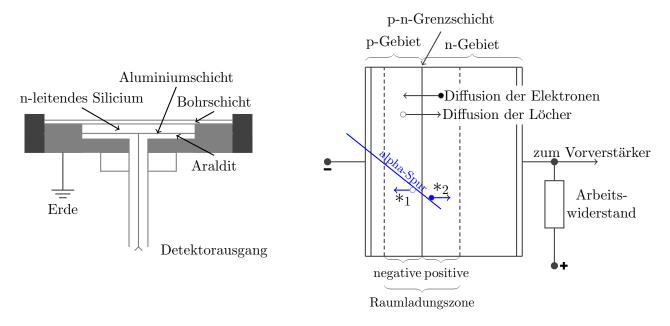


Abbildung 10: Aufbau Oberflächen Sperrschicht Detektor

Die linke Abbildung zeigt den äußeren Aufbau des alpha-Detektors, während in der rechten Graphik die Funktionsweise und der Aufbau des Halbleiters veranschaulicht wird. In Anlehnung an Walther, 2020, [9]

Die zu untersuchenden Isotope und ihre jeweiligen Alphaenergien sind in Tabelle 3 aufgeführt. Dies ermöglicht es, in den durch die Messung entstehenden alpha-Spektren die Isotope zu identifizieren.

Tabelle 3: Alphaenergien relevanter Isotope, [17]

Emiggiong			
AT 1111	Alphaenergien	Emissions-	
Nuklid	[keV]	wahrscheinlichkeit	
	[HO V]	[%]	
Pu-238	5456	29	
1 u-238	5499	71	
	5105	12	
Pu-239	5144	17	
	5156	71	
Pu-240	5123	27	
P u-240	5168	73	
11.004	4722	29	
U-234	4774	71	
	4215	7	
U-235	4364	19	
0-255	4395	58	
	4597	5	
11 020	4150	22	
U-238	4198	78	
Th 920	4621	23	
Th-230	4687	77	
TI- 020	3954	23	
Th-232	4013	77	

#### 4.8 Induktiv gekoppelte Plasma Massenspektrometrie

In Tabelle 3 lässt sich erkennen, dass die Alphaenergien für die Isotope Pu-239 und Pu-240 sehr ähnlich sind und sich zum Teil sogar überlagern, daher lassen sich diese beiden Isotope nicht alphaspektrometrisch voneinander unterscheiden. Dies führt dazu, dass mit der Massenspektrometrie ein weiteres Messverfahren angewendet werden muss, um den Atomanteil des jeweiligen Isotops bestimmen zu können.

Bei der Massenspektrometrie werden die Isotope nach ihrem Masse-zu-Ladungsverhältnis getrennt. In diesem Fall wird eine "Induktiv gekoppelter Plasma Massenspektrometrie" (ICP-MS) durchgeführt.

Dazu wird die wässrige Probe zunächst durch den Probengeber angesaugt. Über die Pumpe wird die Lösung in den Zerstäuber weitergeleitet, wo sie mittels eines Argongases in die Sprühkammer zerstäubt wird. Nur die feinsten Tröpfehen dieser Zerstäubung werden zur Plasmafackel weitergeleitet. Durch das Plasma findet anschließend die Atomisierung und Ionisierung der Probe statt. Die nicht geladenen Teilchen werden durch eine Ablenkung der Atome und Ionen um 90° heraus gefiltert, während die geladenen Teilchen im nächsten Schritt zum Masseanalysator weitergeleitet werden, bei dem es sich in diesem Fall um einen Quadrupol handelt. Änderung der an dem Quadrupol anliegenden Spannung und Frequenz können Teilchen

mit dem gesuchten Masse-zu-Ladungs-Verhältnis auf eine stabile Bahn zwischen den Stäben des Quadrupols bringen und damit zur Detektion mittels eines Sekundärionenvervielfachers weitergeleitet werden. Alle anderen Teilchen, die nicht dem eingestellten Masse-zu-Ladungs-Verhältnis entsprechen, werden gegen die Quadrupolstäbe abgelenkt und dort neutralisiert. Ein detailliertere Beschreibung des Aufbaus und der Funktionsweise der ICP-MS befindet sich in dem Buch "Mass Spectrometry" von Jürgen H. Gross [18].

Für die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführte ICP-MS werden die Plutonium und Thorium Proben der zuvor durchgeführten Alpha-Spektrometrie wiederverwendet. Die Thorium Proben können ebenfalls zur Analyse des Pu-240 zu Pu-239 Verhältnisses benutzt werden, da diese Präparate, wie in Abbildung 18 zu sehen, einen ausreichenden Anteil an Plutonium enthalten. Zur Wiederverwendung der Proben werden die Präparate von den Elektrodepositionsplättchen durch zweistündiges Laugen in HNO $_3$  mit einer Konzentration von  $3 \, \text{mol/L}$  bei  $70 \, ^{\circ}\text{C}$  abgelöst. Diese Verfahren ermöglicht eine Wiederfindungsrate von 95%.

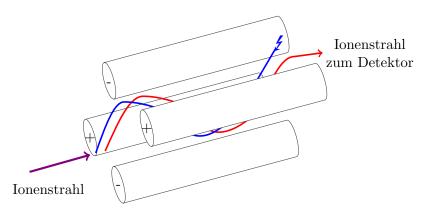


Abbildung 11: **Quadrupol** Schematische Darstellung des Quadrupols in der ICP-MS.

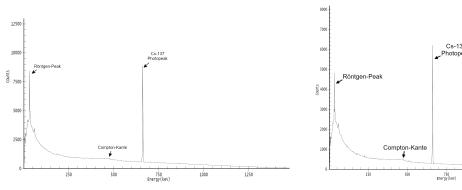
# 5 Ergebnisse

#### 5.1 Gamma-Spektroskopie

Im Rahmen der Gamma-Spektrometrie konnte Cs-137 in beiden Proben nachgewiesen werden, jedoch keine gegen dem Untergrund auffallenden Eu-154 oder Am-241 Peaks. Die Ergebnisse der Messung sind in Tabelle 4 aufgeführt.

Tabelle 4: Ergebnisse der Gammaspektrometrie

Im Folgenden wird das Vorgehen bei der Auswertung der Messungen beschrieben.



(a) Gammaspektrum der Probe 0 cm.

(b) Gammaspektrum der Probe 5-7cm

Abbildung 12: Gamma-Spektren für die Proben

In der linken Graphik ist das Spektrum für die Oberflächenprobe dargestellt, in der rechten das Spektrum für die Bodenprobe. In beiden Spektren lässt sich der Cs-137 Peak bei 662 keV erkennen. Ebenfalls in den Graphen ablesbar ist die Compton-Kante bei 458 keV und ein Röntgen-Peak von einem unbekannten Material.

In der Abbildung 12 sind die Gamma-Spektren für beide Proben dargestellt. Anhand der Peaks kann abgelesen werden, welche Radionuklide in den Proben vorhanden sind. In beiden Proben gibt es einen großen Peak bei ca. 662 keV. Dies entspricht der Gamma-Energie von Cs-137. Unter Verwendung von (2) aus Kapitel 4.1 konnte die Effizienz des Detektors für Cs-137 berechnet werden. Diese beträgt:

$$\epsilon_{\text{Probe}} = 2.82\%$$

Damit folgt aus Formel (3) eine Aktivität von  $2.9\,\mathrm{Bq} \pm 0.2\,\mathrm{Bq}$  (Oberflächenprobe) und  $0.7\,\mathrm{Bq} \pm 0.2\,\mathrm{Bq}$  (Bodenprobe). Da in beiden Fällen jeweils  $1\,\mathrm{g}$  Probe genommen wurde, ergeben sich spezifische Aktivitäten von  $2.9\,\mathrm{kBq/kg} \pm 400\,\mathrm{Bq/kg}$  und  $700\,\mathrm{Bq/kg} \pm 108\,\mathrm{Bq/kg}$ . Es lässt sich erkennen, dass die spezifische Aktivität in der Oberflächenprobe viermal so groß ist, wie in der darunter gelegenen Bodenschicht, unter Voraussetzung, dass es sich bei den Proben um ein Profil handelt. Die angegebenen Unsicherheiten wurden mittels Gaußscher Fehlerfortpflanzung berechnet.

Ebenfalls in den Gamma-Spektren erkennbar ist die Compton-Kante, die in diesem Fall bei 458 keV zu finden ist, sowie der Röntgen-Peak links in den jeweiligen Diagrammen.

Auch Eu-154 und Am-241 wären für die Auswertung der Proben von Interesse. Eu-154 hat seine Gamma-Peaks bei den Energien von 123 keV und 1274 keV und Am-241 bei 60 keV. Jedoch lässt sich in den Graphen ablesen, dass bei diesen Energien kein signifikanter Peak erkennbar ist. Somit liegt die jeweilige Aktivität von Eu-154 und Am-241 in den Proben unterhalb der Erkennungsgrenze.

#### 5.2 Flotation

Bei der an die Flotation anschließenden gammaspektrometrischen Untersuchung der Fraktionen konnte Cs-137 nachgewiesen werden, jedoch ist erneut kein Am-241 Peak erkennbar.

Zunächst ist die Flotation ein Prozess zur Probenvorbereitung, sodass die eigentliche Auswertung anschließend mittels Gamma-Spektrometrie erfolgt.

Wie in Abbildung 13 zu sehen ist, sind die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Proben mit Hilfe der Flotation in eine schwere und eine leichten Fraktion getrennt worden.



Vorbereitung der Flotation



Flotationsprobe nach der Zentrifugation



Flotationsprobe mit gefrorener Spitze

#### Abbildung 13: Flotation

Die drei obigen Fotos zeigen schrittweise die Durchführung der Flotation. Im ersten Schritt wird die Probenmenge abgewogen. Anschließend wird eine Wolframatlösung hinzugefügt und alles gut vermischt. Das zweite Bild zeigt die Probenröhrchen nach der Zentrifugation. Um dann die schwere und leichte Fraktion voneinander trennen zu können, wird die schwere Fraktion, die sich unten abgelagert hat, eingefroren. Dies ist auf dem dritten Bild dargestellt.

Abbildung 24 zeigt die vier Gamma-Spektren der vier verschiedenen Fraktionen. 24a und 24b sind jeweils die leichten Fraktionen der Oberflächen- und der Bodenprobe. Hier lässt sich jeweils bei 662 keV der Cs-137 Peak erkennen. Mögliche andere Nuklide gehen im Rauschen des Spektrums unter. Die Graphen 24c und 24d zeigen jeweils die Gamma-Spektren der schweren Fraktionen. Sollten Partikel in der Probe vorhanden sein, würde in den Spektren ein Am-241 Peak bei 60 keV erwartet werden, was jedoch nicht der Fall ist. Dafür ist in diesen Spektren ein Peak bei 511 keV erkennbar. Bei diesem handelt es sich um den Annihilations-Peak, dieser entsteht, wenn ein Elektron mit einem Positron kollidiert.

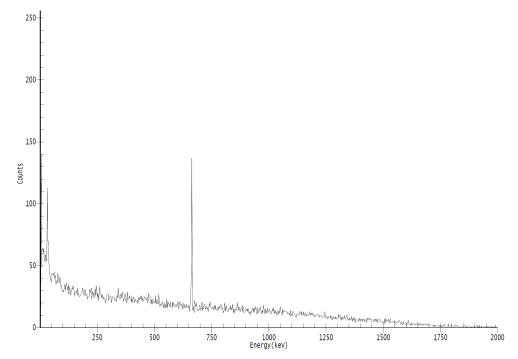


Abbildung 14: Gammaspektrum der leichten Fraktion der Oberflächenprobe Gammaspektrum der leichten Fraktion der Probe 0 cm. Besonders der Cs-137 Peak bei  $662\,\mathrm{keV}$  fällt auf.

Aufgrund der Ähnlichkeit der Gamma-Spektren der vier Fraktionen ist hier das Spektrum für die leichte Fraktion der Oberflächenprobe als Beispiel aufgeführt. Die anderen Graphen befinden sich im Anhang.

#### 5.3 Alpha-Tracks

Bei der Untersuchung der Proben mittels Alpha-Track konnten keine Alpha-Hotspots und auch insgesamt keine gegenüber dem Hintergrund signifikant erhöhte Alpha-Strahlung der Proben nachgewiesen werden. Somit wird das Auffinden von Partikeln in einer der Proben als unwahrscheinlich eingestuft.

Die Auswertung der Alpha-Tracks erfolgt durch Analyse der Detektoren mit bloßem Auge, und unter dem Mikroskop. In den Abbildungen 15 und 16 wird deutlich, dass mit bloßem Auge keine Beschädigungen der Detektoren erkennbar sind. Bei einer Untersuchung unter dem Mikroskop werden kleine Beschädigungen des Detektormaterials sichtbar, jedoch handelt es sich bei dieser detektierten Strahlung um Hintergrundstrahlung.

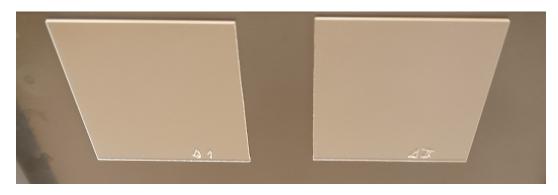


Abbildung 15: Ergebnisse der Alpha-Track Messung 0cm

Es lassen sich mit bloßem Auge keine Beschädigungen der Polycarbonat-Detektoren erkennen. Auch bei einer Untersuchung unter dem Mikroskop sind keine Hotspots aufgefallen.

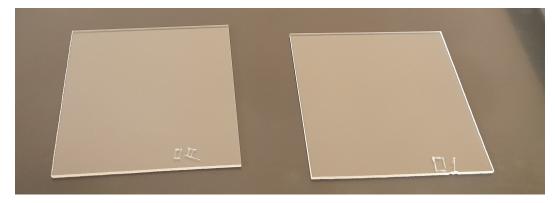


Abbildung 16: Ergebnisse der Alpha-Track Messung 5-7cm

Hier sind ebenfalls keine Hotspots mit bloßen Auge erkennbar. Dies ändert sich nicht bei der Betrachtung durch ein Mikroskop.

#### 5.4 Strontium-90

Im Rahmen der Strontium Analyse konnte Sr-90 nachgewiesen werden.

Tabelle 5: Ergebnisse der LSC

Nuklid	A [Bq/kg] 0cm	A [Bq/kg] 5-7cm	
Sr-90	$102000 \pm 4000$	$41000 \pm 1000$	

Im Folgenden wird der Prozess der Auswertung vorgestellt und die so ermittelten Aktivitäten und spezifischen Aktivitäten präsentiert. Dabei ist im Laufe des Prozesses ist keine Zerfallskorrektur notwendig, da die Trennung innerhalb eines Tages durchgeführt wurde und eine Gamma-Messung sowohl vor, als auch nach der Trennung vorgenommen wurde.

Die Auswertung der Messwerte der LSC-Messung wurde entsprechend der Norm DIN 38402 durchgeführt und die Rechnungen werden im Anhang aufgeführt.

Durch die Kalibration im Anschnitt 7.3.1 können die Aktivitäten der Proben bestimmt werden. Die Probe von der Bodenoberfläche hat eine Aktivität von 53 Bq, die Probe aus dem Boden eine Aktivität von 30 Bq. Bei diesen Aktivitäten wurde jedoch noch nicht die Trennausbeute berücksichtigt. Wird diese in die Auswertung einbezogen, ergeben sich Aktivitäten von 54 Bq  $\pm$  2 Bq für die 0 cm Probe und 33 Bq  $\pm$  1 Bq für die 5 bis 7 cm Probe. Zudem ergeben sich spezifische Aktivitäten von  $102\,\mathrm{kBq/kg} \pm 4\,\mathrm{kBq/kg}$  und  $41\,\mathrm{kBq/kg} \pm 1\,\mathrm{kBq/kg}$ .

Einsetzen in Gleichung (4) aus Kapitel 7.3.2 liefert für die Oberflächenprobe eine Nachweisgrenze von 0,121 Bq und 0,137 Bq für die Bodenprobe. Einsetzten der Werte für die Nachweisgrenzen in (6) aus dem Abschnitt 7.3.2 liefert für die Erfassungsgrenzen 0,241 Bq für die Oberflächen Probe und 0,275 Bq für die Bodenprobe. Da die Messwerte der Aktivität in beiden Fällen weit über der Nachweis- und Erfassungsgrenze liegen, wurde mit den durchgeführten Messungen in beiden Proben Sr-90 nachgewiesen.

# 5.5 Untersuchung auf Uran, Plutonium und Thorium

In Kapitel 4.6 wurden zunächst die Methoden zur Probenaufbereitung beschrieben. Die eigentliche Messung der Proben erfolgte über Alpha-Spektrometrie. Die so ermittelten spezifischen Aktivitäten sind in Tabelle 6 aufgelistet. Es gilt zu beachten, dass in der ersten Zeile die spezifischen Aktivitäten für die Isotope Pu-239 und Pu-240 zusammen angegeben ist. Dies liegt daran, dass sich Pu-239 und Pu-240 aufgrund ihrer ähnlichen Alpha-Energien alpha-spektrometrisch nicht voneinandern trennen lassen (siehe Kapitel 4.7). Als Folge sind die Peaks im Alpha-Spektrum nicht voneinander unterscheidbar. Zudem sind die Messwerte für die 0 cm aus zwei verschiedenen Proben gewonnen. Da es bei dem Separationsprozess zu einer Kreuzkontamination gekommen ist, konnte die Probe nicht mehr für Plutonium Messungen verwendet werden. Jedoch waren die Uran und Thorium Fraktionen bereits abgetrennt und das Thorium-Spektrum weist Verunreinigungen durch Plutonium auf, sodass diese Pu-Peaks verwendet werden können, um zu ermitteln, wie viel Plutonium in der Probe erwartbar gewesen wäre. Die Messwerte sind in Tabelle 6 mit einem \* markiert. Das heißt die spezifischen Aktivitäten für das Plutonium stammen aus einer anderen Probe, als die Messwerte für das Uran und das Thorium.

Tabelle 6: Messwerte der U-, Pu- und Th-Messung für die Proben inklusive ihrer Abweichungen. \*Berechnungen aus dem Thorium-Spektrum (siehe Abb. 18)

Nuklid	A [Bq/kg] 0 cm	A $[Bq/kg]$ 5 bis 7 cm
Pu-239/240	$2174 \pm 66^{3}$	$1100 \pm 140^{-2}$
Pu-238	$82 \pm 4^{3}$	$20 \pm 4$ $^2$
Pu-239/240*	$1200 \pm 165^{-1}$	$1100 \pm 155^{\ 2}$
Pu-238*	$14 \pm 3$ $^{1}$	$9 \pm 2^{2}$
U-238	$37 \pm 4^{1}$	$38 \pm 4^{\ 2}$
U-234	$38 \pm 4^{1}$	$39 \pm 4$ <sup>2</sup>
U-235	$1.9 \pm 0.3^{-1}$	$1.7\pm0.2^{2}$
Th-232	$13 \pm 1  ^{1}$	$20\pm2$ $^{2}$
Th-230	$15\pm1$ $^{1}$	$20 \pm 2$ $^2$

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup>Probe 1: erste Oberflächenprobe, Pu-Fraktion kontaminiert (nicht gemessen); U- und Th-Fraktion nicht kontaminiert

<sup>&</sup>lt;sup>2</sup>Probe 2: erste Bodenprobe, nicht kontaminiert

<sup>&</sup>lt;sup>3</sup>Probe 3: zweite Oberflächenprobe, nicht kontaminiert

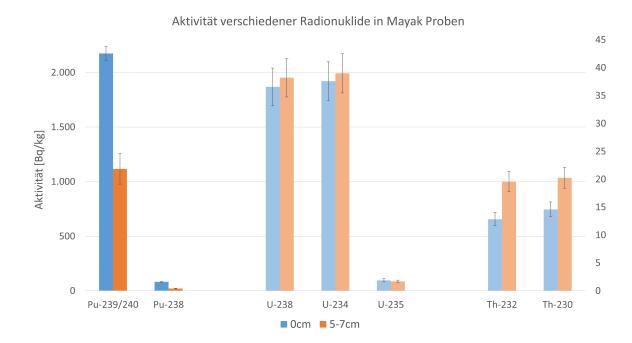


Abbildung 17: Ergebnisse der Alpha-Spektrometrie

Diagramm zur anschaulichen Darstellung der Messergebnisse der U-, Pu- und Th-Messungen. Die spezifischen Aktivitäten für das Plutonium sind mittels der linken Skala dargestellt, während die spezifischen Aktivitäten für das Uran und das Thorium zu der rechten y-Achse in Bezug stehen. Dargestellt sind nur die tatsächlich gemessenen Proben, also Probe 3 $^3$  für das Plutonium der Oberflächenprobe, Probe 2 $^2$  für alle Messungen der Bodenprobe und Probe 1 $^1$  für die Uran und Thorium Messungen der Oberflächenprobe.

Es lässt sich erkennen, dass die Proben bei den spezifischen Aktivitäten für das Plutonium inhomogen sind. Die Messung für die Bodenprobe und die Schätzungen aus dem Thoriumspektrum für das Plutonium liefern Werte von 1100 bis  $1200\,\mathrm{Bq/kg}$ . Die dritte Messung, bei der für eine neue Oberflächenprobe das Pu-Spektrum gemessen wurde, erreicht jedoch eine spezifische Aktivität von  $2174\,\mathrm{Bq/kg}$ . Diese ist damit ca. doppelt so hoch, wie man aufgrund der anderen Messwerte erwarten würde.

In Abbildung 17 werden die Messwerte anschaulich dargestellt. Es lässt sich erkennen, dass eine spezifische Aktivität zwischen 2200 Bq/kg und 1100 Bq/kg an Pu-239/240 in den Proben vorhanden ist. Auch der Unterschied zwischen den Bodenschichten ist erheblich. Die spezifische Aktivität von Pu-238 ist in beiden Bodenschichten deutlich geringer. Dennoch ist auch hier die spezifische Aktivität des Pu-238 in der Oberflächenprobe ca. viermal so groß wie in der Bodenprobe.

Diese Schichtdifferenzen lassen sich bei dem Uran hingegen nicht erkennen. Hier sind innerhalb der Unsicherheiten die spezifischen Aktivitäten vom U-238 und U-234 in beiden Proben gleich groß. Gleiches gilt für das U-235, bei dem die spezifische Aktivität jedoch wesentlich kleiner ist, als bei den Isotopen U-238 und U-234.

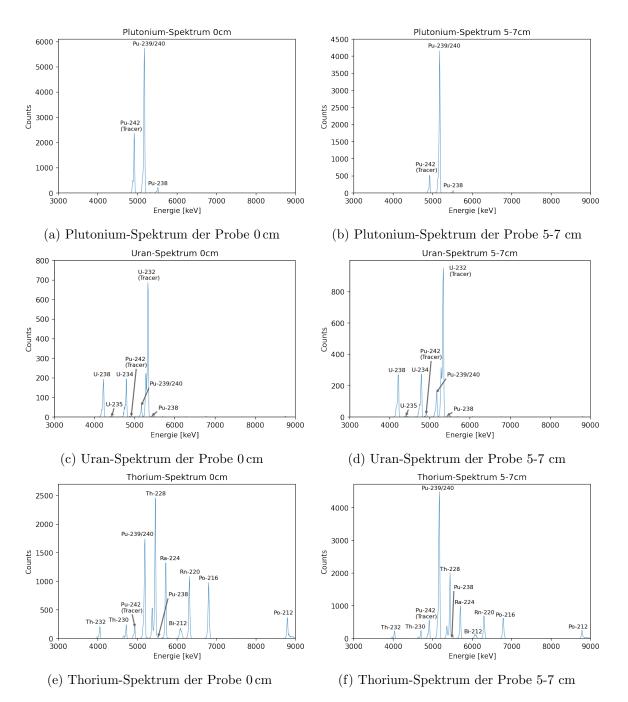


Abbildung 18: Alpha-Spektren

Die sechs Graphen zeigen die Spektren der verschiedenen Radionuklide Plutonium, Uran und Thorium. Dabei sind die Peaks der einzelnen Isotope markiert.

Auch die in Kapitel 4.8 vorgestellte Methode der ICP-MS wird verwendet, um mehr Informationen über das Plutonium zu erhalten. Durch die Methode der Trennung der Isotope nach ihrem Masse-zu-Ladungs-Verhältnis ist es möglich, das Verhältnis der Aktivität der Isotope Pu-239 und Pu-240 aus dem Pu-239+240 Peak zu bestimmen.

Tabelle 7: Counts und Atomverhältnisse für Pu-239 und Pu-240

Probe	Nuklid	CPS	Atomverhältnis Pu-240/239
Du 0 am	Pu-239	$26500 \pm 899$	$0.022 \pm 0.002$
Pu 0 cm	Pu-240	$840 \pm 57$	$0.032 \pm 0.003$
Du 5 7am	Pu-239	$14500 \pm 306$	$0.029 \pm 0.002$
Pu 5-7cm	Pu-240	$430 \pm 21$	$0.029 \pm 0.002$
Th 0 cm	Pu-239	$2600 \pm 95$	$0.027 \pm 0.004$
	Pu-240	$70 \pm 11$	$0.027 \pm 0.004$
The F 7 area	Pu-239	$9400 \pm 157$	0.020   0.002
Th 5-7cm	Pu-240	$280 \pm 21$	$0,029 \pm 0,002$

#### 6 Diskussion und Fazit

#### 6.1 Klassifizierung der Radionuklide in anthropogen und nicht anthropogen

Ein Ziel der Arbeit ist es, die gefundenen Radionuklide in anthropogen und nicht anthropogen zu klassifizieren.

Sr-90 und Cs-137 sind beides Radionuklide, die nicht natürlich vorkommen und deshalb als anthropogen eingeordnet werden können. Für die Isotope des Uran und Thorium ist diese Einordnung nicht so eindeutig, da verschiedene Isotope der Radionuklide sowohl natürlich in der Umwelt vorkommen, als auch durch den Menschen freigesetzt werden können. Plutonium ist ein anthropogenes Radionuklid, dennoch ist eine Klassifizierung hinsichtlich des ursprünglichen Verwendungszwecks vor der Freisetzung interessant.

#### 6.1.1 Uran

Bei dem in den Proben gefundenen Uran handelt es sich um Natururan, was sich mit Hilfe der Verhältnisse der gefundenen Uran Isotope zueinander verifizieren lässt. In der Tabelle 6 und in der Abbildung 17 lässt sich erkennen, dass das Aktivitätsverhältnis U-238 zu U-234 in beiden Proben innerhalb der Messunsicherheiten eins ist. Dies spricht für Natururan, da es darauf hinweist, dass das U-238 und U-234 vollständig zu der Uran-Radium-Zerfallsreihe gehören. Dies ist eine primordiale Zerfallsreihe mit dem Startnuklid U-238. Dieses hat ca. die Halbwertszeit des Erdalters  $(4,54\cdot 10^9 \text{ Jahre})$  und somit eine wesentlich größere Halbwertszeit, als das U-234 mit  $2,46 \cdot 10^5$  Jahren. Somit stellt sich zwischen diesen Nukliden mit der Zeit ein radioaktives Gleichgewicht ein. Da es sich um eine Mutter mit einer wesentlich größeren Halbwertszeit als die der Tochter handelt, wird ein säkulares Gleichgewicht erwartet, welches in dieser Arbeit auch gemessen wurde. Ebenfalls innerhalb der Messunsicherheiten ist das Verhältnis U-238 zu U-235 1:21. Das U-235 gehört nicht zu der Uran-Radium-Reihe sondern ist das Startnuklid der Uran-Actinium-Reihe. Darüberhinaus hat das U-235 mit  $7.04 \cdot 10^8$ Jahren eine kürzere Halbwertszeit, als das U-238, sodass sich das Verhältnis zwischen diesen beiden Isotopen immer ändert. Zurzeit wird bei natürlichen Radionukliden ein Verhältnis von 1:21 erwartet. Damit handelt es sich nach Atwood [19] um natürliches, in der Umwelt vorkommendes Uran.

Durch die Messergebnisse der Alpha-Tracks, der Flotation mit anschließender Gamma-Spektrometrie und der Untersuchung mit dem REM lässt sich zudem das Vorkommen von Uran-Partikeln in den Proben ausschließen. Ebenfalls für eine homogene Verteilung des Uran in den Proben sprechen die Ergebnisse der Alpha-Spektrometrie, da auch hier keine Abweichungen der spezifischen Aktivitäten feststellbar sind.

#### 6.1.2 Thorium

Während der im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Untersuchungen wurden zwei Isotope des Thorium in den Proben bestimmt, das Th-230 und das Th-232.

Bei dem Thorium Th-232 handelt es sich um ein primordiales und somit ein natürliches Radionuklid [19]. Diese These wird durch das Vorhandensein der Zerfallsprodukte des Th-232 (siehe Abb. 17) im Alpha-Spekturm unterstützt. Durch die mit  $1,4\cdot 10^{10}$  Jahren sehr lange Halbwertszeit des Th-232 und durch die mit 5,75 Jahren lange Halbwertszeit seiner Tochter Ra-228 benötigt es eine große Zeitspanne, bis sich die weiteren Isotope der Reihe in nachweisbaren Mengen gebildet haben.

Bei dem Th-230 handelt es sich ebenfalls um ein natürliches Radionuklid [19]. Th-230 ist die Tochter von U-234, welches ebenfalls in den Proben nachgewiesen werden konnte. Da es sich bei dem in den Proben nachgewiesenen U-234 um natürliches Uran aus der Uran-Radium-Reihe handelt (Vgl. 6.1.1), handelt es sich auch bei dem Th-230 um Thorium natürlichen Ursprungs.

#### 6.1.3 Plutonium

Auch bei dem Plutonium können Isotopenverhältnisse genutzt werden, um zu prüfen, aus welcher Quelle das Plutonium stammt. Dazu wird das Aktivitätsverhältnis der Isotope Pu-238 zu Pu-239+240 und das Atomverhältnis Pu-240 zu Pu-239, wie in Abbildung 19 dargestellt, betrachtet. Das Aktivitätsverhältnis Pu-238 zu Pu-239+240 wird aus den Messergebnissen der Alpha-Spektrometrie in Tabelle 6 berechnet. Für das Atomverhältnis Pu-240 zu Pu-239 werden die Ergebnisse der ICP-MS aus Tabelle 7 verwendet. Diese Ergebnisse werden in Abbildung 19 mit einem Schema zur Zuordnung von Plutoniumverhältnissen zu ihrem jeweiligen Verwendungszweck verglichen. Dabei zeigt sich, dass die ermittelten Aktivitäts- und Atomverhältnisse des Plutoniums im Rahmen der Messunsicherheiten für waffenfähiges Plutonium sprechen.

### Plutonium Verhältnisse im Vergleich

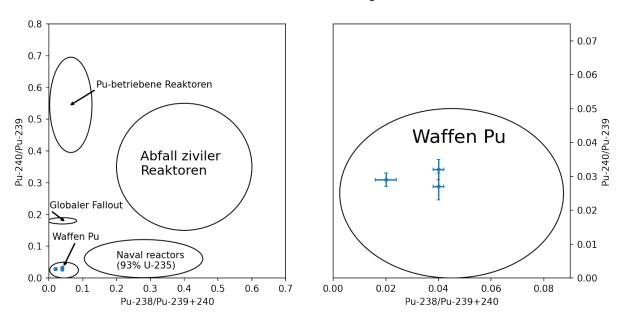


Abbildung 19: Vier Isotopen Plot

Das Diagramm zeigt einen 4 Isotopen-Plot anhand dessen mithilfe der Isotope Pu-238, Pu-239 und Pu-240 die Herkunft des gefundenen Plutoniums ermittelt werden kann. Dabei ist zu beachten, dass auf der x-Achse Aktivitäts- und auf der y-Achse Isotopenverhältnisse dargestellt sind. In Anlehnung an: Cagno, 2014, [20]

## 6.2 Inhomogenitäten

Bei den Ergebnissen lassen sich zwischen den Nukliden, aber auch zwischen den Isotopen der einzelnen Nuklide Inhomogenitäten erkennen.

Bei den Messungen des Cs-137 und Sr-90 sind große Unterschiede in der Kontamination zwischen den beiden Bodenschichten erkennbar. Beim Cs-137 ist die spezifische Aktivität in der Oberflächenprobe um einen Faktor 4 größer, beim Sr-90 ist es ein Faktor 24. Dies spricht dafür, dass der Boden durch Aufschlag kontaminiert wurde.

Inhomogenitäten gibt es auch zwischen den Messungen der Plutoniumisotope. Hier wurden drei unterschiedliche Proben gemessen, davon eine Bodenprobe und zwei Oberflächenproben. Die Bodenprobe und die erste Oberflächenprobe zeigen eine homogene spezifische Aktivität. Von dieser weicht die zweite Oberflächenprobe um einen Faktor zwei ab. Eine Überprüfung dieser Messung mittels der ICP-MS konnte keine Aussagen über die Aktivitäten von Pu-239 und Pu-240 geben. Jedoch ist das Atomverhältnis zwischen dem Tracer Pu-242 und Pu-239+240 in beiden Messungen gleich, sodass ein Messfehler zwar nicht vollständig ausgeschlossen werden kann, die Wahrscheinlichkeit dafür ist jedoch gering. Eine mögliche Erklärung für diese Differenz kann auch das Vorhandensein von Kolloiden Partikeln in der Probe liefern. Diese Möglichkeit wäre auch mit den Ergebnissen der Alpha-Tracks vereinbar, da diese Partikel fein in einer Probe verteilt sein können und in der Größenordnung zwischen 1 nm und 1 µm liegen, sodass entweder in den Proben für die Alpha-Tracks keine solchen Partikel vorhanden waren, oder diese zu klein waren, um vom Untergrund differenziert werden zu können [21].

Zudem liegt eine Störung der primordialen Zerfallsreihe des U-238 vor. Sowohl U-234, als auch Th-230 sind Isotope dieser Zerfallsreihe mit wesentlich kürzerer Halbwertszeit als U-238, sodass es ein säkulares Gleichgewichte zwischen den Isotopen geben sollte. Dieses Gleichgewicht ist auch bei dem U-234 erkennbar, da es innerhalb der Unsicherheiten die gleiche spezifische Aktivität aufweist, wie das U-238. Jedoch ist die gemessene spezifische Aktivität des Th-230 um einen Faktor von ca. zwei kleiner. Dies lässt sich nicht mit der Differenz der Intensitäten der Alpha-Peaks erklären. Ein mögliche Erklärung wäre jedoch das unterschiedliche Verhalten der chemischen Elemente im Boden. Thorium selber ist nicht löslich, kann jedoch mit organischem Material lösliche Komplexe bilden, die im Boden wandern. Beim Uran hängt die Mobilität von der Verbindung des Urans mit organischen und anorganischen Substanzen zusammen, es gilt jedoch eher als nichtmobil im Boden, was die höheren spezifischen Aktivitäten des U-238 und U-234 gegenüber dem Th-230 erklären würde. [19]

## 6.3 Ursprung der Proben

Um die mögliche Herkunft der Proben verifizieren zu können, wurden Vergleichsproben von anderen Probenahmen aus [22] herangozogen. Die Standorte der Probenahmen sind in Abbildung 21 gekennzeichnet. Die Proben wurden im Rahmen einer gemeinsamen norwegischrussischen Feldarbeit in den Jahren 1994 und 1996 genommen und sind ebenfalls mittels Alpha-Spektrometrie und ICP-MS untersucht worden. Diese Werte können als Vergleich herangezogen werden, da nur kleine Verschiebungen der Verhältnisse und somit auch nur geringe Abweichungen, um einen Faktor von ca. 0,3, der Messwerte in den letzten Jahren in x-Richtung aufgrund des Pu-238 zu erwarten sind. Aufgrund der langen Halbwertszeiten des Pu-239 und Pu-240 sind hier keine relevanten Verschiebungen seit 2000 zu erwarten.

In Abbildung 20 sind das Aktivitätsverhältnis Pu-238 zu Pu-239+240 auf der x-Achse und des Atomverhältnis Pu-240 zu Pu-239 auf der y-Achse dargestellt, sodass die Plutoniumverhältnisse der verschiedenen Orte miteinander verglichen werden können.

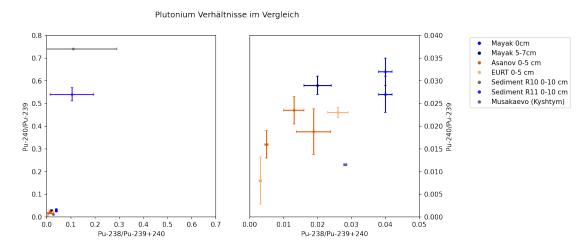


Abbildung 20: Vergleich mit anderen Umweltproben

Die in der Abbildung dargestellten Diagramme zeigen das Aktivitätsverhältnis Pu-238 zu Pu-239+240 und das Atomverhältnis Pu-240 zu Pu-239 von verschiedenen Proben im Vergleich. Dabei sind in dem linken Diagramm Vergleichsproben aus [23] dargestellt. In dem rechten Diagramm sind die Vergleichsproben aufgeführt, bei denen es sich auch um waffenfähiges Plutonium handelt. In Anlehnung an Oughton, 2000, [23]

In der linken Darstellung von Abbildung 20 lässt sich erkennen, dass die Plutoniumverhältnisse, die aus den Sedimenten der Reservoirs 10 und 11 stammen, stark von den Verhältnissen der in dieser Arbeit untersuchten Proben abweichen. Ein Vergleich mit Abbildung 19 zeigt zudem, dass es sich bei dem in den Wasserreservoirs gefundenen Plutonium nicht um waffenfähiges Plutonium, sondern vermutlich um Plutonium aus Pu-Reaktoren handelt. Zu dem gleichen Schluss kommen Skipperud et. al. in ihrem Artikel [22], sodass es unwahrscheinlich ist, dass die Proben dieser Arbeit aus den oberen Sedimentschichten der Reservoirs 10 oder 11 stammen. Bei den in der rechten Abbildung aufgeführten Orten wurde waffenfähiges Plutonium gefunden.

Da die Herkunft der Proben Mayak 0 cm und Mayak 5-7cm über ein nicht konkret definiertes "Epizentrum" und über einen Radius angegeben wird, kann keiner der Standorte, an denen ebenfalls waffenfähiges Plutonium gefunden wurde (siehe Abbildung 21), als Probenahmeort ausgeschlossen werden. Jedoch kommen Oughton et. al. in ihrem Artikel [23] zu dem Schluss, dass die Kontamination in dem Gebiet des Asanov Sumpfes durch die frühen Ableitungen von HLW in den Techa Fluss hervorgerufen wurden, während die Isotopenzusammensetzung der Gebiete des EURT und in der Nähe des Kyshtym Sees maßgeblich durch den Kyshtym Unfall (siehe Kapitel 1) beeinflusst wurden.

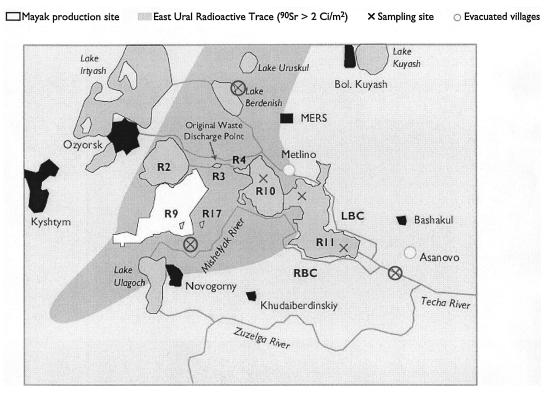


Abbildung 21: Probenahmeorte der Vergleichsproben

In der Abbildung sind die Orte der Probenahmen von 1994 und 1996 aufgeführt. Dabei sind die Standorte durch  $\bigotimes$  gekennzeichnet, die ähnliche Pu-Verhältnisse wie die untersuchten Proben aufweisen. In Anlehnung an: Oughton, 2000, [23]

Um den Ort der Probenahme weiter einzugrenzen, wird das Aktivitätsverhältnis Sr-90 zu Cs-137 mit Probeauswertungen aus [24] verglichen. Die dort analysierten Proben stammen aus der gleichen Probenahme, wie die aus [22] und sind in Abbildung 23 dargestellt.

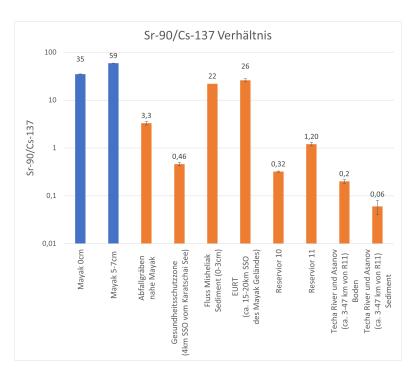


Abbildung 22: Sr-90 zu Cs-137 Verhältnis

Die Abbildung zeigt das Verhältnis von Sr-90 zu Cs-137 von den im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Proben und Vergleichsproben von 1994 und 1996. Für die Probe aus dem Flusssediment des Misheliak werden keine Fehler angegeben. [24]

Die Graphik 22 zeigt die Verhältnisse der verschiedenen Proben, in blau die in dieser Arbeit untersuchten Proben und in orange die Vergleichsproben.

Es lässt sich erkennen, dass es Schwankungen im Bereich von drei Zehnerpotenzen bei den Verhältnisse zwischen den verschiedenen Standorten gibt. Das Verhältnis der Proben 0 cm und 5 bis 7 cm liegt im Bereich von 10<sup>1</sup>, ebenso wie die Proben wie die Proben aus dem Flusssediment des Misheliak und die aus der EURT Zone. Die Werte sind zwar nicht konsistent, auch nicht unter Berücksichtigung der Unsicherheiten, jedoch liegen sie in der gleichen Größenordnung. Das Verhältnis in den Abfallgräben nahe Mayak und im Reservoir 11 sind um eine Zehnerpotenz geringer, während die Verhältnisse aus der Gesundheitsschutzzone von der Freisetzung um den See Karatschai, im Reservoir 10 und entlang des Techa Flusses und des Asanov Sumpfes nochmal um ein bis zwei Größenordnungen kleiner ausfallen. Im Zusammenhang mit den Untersuchungen zu den Plutoniumverhältnissen zeigt sich, dass Reservoir 10 und 11 relativ sicher als Herkunft der untersuchten Proben ausgeschlossen werden können. Durch das um Größenordnungen abweichende Verhältnis zwischen Sr-90 und Cs-137 ist auch die Probenahme am Techa Fluss und Asanov Sumpf unwahrscheinlich. Als wahrscheinlichste Standorte kommen die EURT-Zone, die Umgebung des Mishelyiak, oder die Umgebung von Musakaevo (Kyshtym) in Frage. Jedoch kann nicht ausgeschlossen werden, dass die Proben an einem in dieser Arbeit nicht erwähnten Standort genommen wurden.

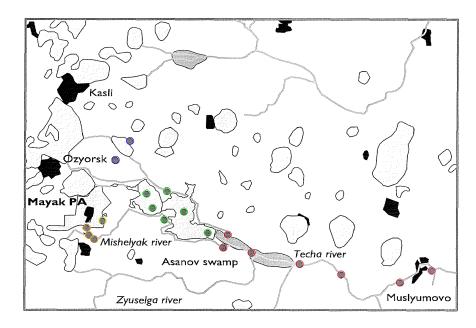


Abbildung 23: Standorte der Probenahmen für Sr-90 und Cs-137 Aktivitäten In der obigen Karte sind die Orte der Probenahme für die auf Sr-90 und Cs-137 untersuchten Proben dargestellt. Diese sind in die Kathegorien: Abfallgräben (gelb), Gesundheitsschutzzone (orange), EURT (blau), Reservior 10 und 11 (grün) und Techa Fluss und Asanov Sumpf (rot) unterteilt. In Anlehnung an [24]

Ein Vergleich der in den Proben gefundenen Radionuklide mit den in Abschnitt 2 beschriebenen Freisetzungen der verschiedenen Ereignisse bestätigt, dass sowohl der sogenannte "Kyshtym Unfall" von 1957, als auch die Ableitung von radioaktiven Abfällen in den Techa Fluss als Quellen der in den Proben gefundenen Radionuklide möglich sind. Eine reine Kontamination der untersuchten Proben durch die Freisetzung von radioaktiven Stoffen im Jahre 1967 kann jedoch ausgeschlossen werden, da bei diesem wie in Abschnitt 2.3 beschrieben nur Cs-137 und Sr-90 freigesetzt wurden. Jedoch ist es nicht möglich auszuschließen, dass auch diese Freisetzung zu der Kontamination der untersuchten Proben beigetragen hat. Insgesamt ist davon auszugehen, dass die Kontamination durch die Überlagerung der Freisetzungen verschiedener Ereignisse hervorgerufen wurde. Zudem können auch bisher unbekannte Ereignisse zu der Kontamination in den untersuchten Proben beigetragen haben, da auch heute nur wenige offizielle Informationen über frühere und aktuelle Vorgänge auf dem Gelände der Mayak PA bekannt sind.

## 6.4 Epidemiologie

Im Jahr 2013 und im Jahr 2015 wurden zwei Studien zu Krebsfällen im Zusammenhang mit Radioaktivität im Techa Fluss veröffentlicht.

Die ersten Studie von Schonfeld et. al. [25] aus dem Jahr 2013 ist eine Kohorten Studie zur Krebssterblichkeit, die Daten von 1950 bis 2007 ausgewertet hat. Im Rahmen der Studie wurden 29.730 Personen untersucht, die vor 1950 geboren wurden und in den Jahren von 1950 bis 1960 in einem der 41 Dörfer entlang des Techa Flusses gelebt haben. Die Exposition der Teilnehmer\*innen der Studie erfolgte extern über  $\gamma$ -Strahlung durch kontaminiertes Flusssediment und Böden in Überschwemmungsgebieten. Bei der internen Exposition spielten insbesondere Sr-90 und Cs-137 ein Rolle, die durch kontaminiertes Wasser, Milch oder Lebensmittel aufgenommen wurden. Die Studie kam zu dem Ergebnis, dass der engl: "Exess Relativ Risk" (ERR) für die Sterblichkeit an einem soliden Krebs bei 0,061 pro 100 mGy liegt. Dabei ist der ERR definiert als RR – 1 mit RR dem "Relatives~Risiko", welches das Verhältnis der Wahrscheinlichkeiten zu erkranken für exponierte und nicht exponierte Personen beschreibt. Hinsichtlich der statistischen Signifikanz der Studie und ihrer Ergebnisse kritisiert UNSCEAR in ihrem Report aus dem Jahr 2017 [26], dass keine formale Dosisberechnung vorgelegt wurde. Dennoch kommt UNSCEAR [26] zu dem Schluss, dass die Genauigkeit ausreichend ist, allgemeine Krebsrisiken zu quantifizieren, ohne eine Aussagekraft über einzelne Krebsarten zu treffen.

In der im Jahr 2015 veröffentlichten Studie haben Davis et. al. den Zusammenhang zwischen Krebsinziden und Exposition untersucht [27]. An der Studie teilgenommen haben 17.435 Personen, die vor 1950 geboren, in einem der Dörfer entlang des Techa in der Region Tscheljabinsk exponiert wurden und von denen nicht bekannt war, dass sie vor 1956 an Krebs erkrankt waren. Die externe Exposition geben die Autor\*innen analog zu der Studie von Schonfeld et. al. [25] mit kontaminiertem Flusssediment und Böden aus Überschwemmungsgebieten an. Bei der internen Exposition sehen die Autor\*innen der Studie den größten Einflussfaktor bei dem individuellen Konsum von mit Cs-137, Sr-90, Sr-85 und weiteren Spaltprodukten des Urans kontaminiertem Wasser, Milch und Lebensmitteln. Das Ergebnis der Studie war ein ERR für die Inzidenz von soliden Tumoren von 0,07 pro 100 mGy und für die Inzidenz bei Leukämie von 0,12 pro 100 mGy. Als Schwäche der Studie beschreibt UNSCEAR in ihrem Bericht von 2017 das Nichtvorhandensein einer formalen Dosisberechnung. Jedoch kommt UNSCEAR zu dem Schluss, dass die Genauigkeit ausreichend ist, um ein Krebsgesamtrisiko zu ermitteln, das mit den Ergebnissen der engl. "Life Span Studie" im Rahmen des Konfidentsintervalls konform ist.

Da im Rahmen der Untersuchungen dieser Arbeit ebenfalls große Kontaminationen des Bodens durch Cs-137 und Sr-90 festgestellt wurden, kann nicht ausgeschlossen werden, dass diese Kontaminationen auch heute noch die Gesundheit der in der Region lebenden Menschen

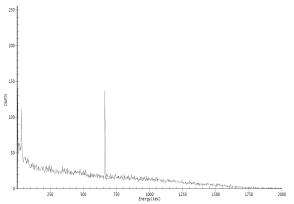
beeinflussen. Der Probenahmeort ist nicht eindeutig bekannt und in dem angegeben Probenahme meortradius befinden sich auch heute noch verschiedene Siedlungen, sodass eine Probenahme in einem dieser Orte nicht ausgeschlossen werden kann. Jedoch geben die Studien ebenfalls an, dass der Beitrag der EURT Kontamination zu der internen und externen Dosis der Probanden gering ist im Vergleich zu dem Beitrag durch den Techa Fluss, sodass es schwierig ist den konkreten Einfluss dieser Kontamination auf den ERR zu bestimmen.

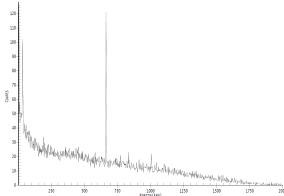
#### 6.5 Fazit

Zusammenfassend lässt sich sagen, dass in den Proben Mayak 0 cm und Mayak 5 bis 7 cm durch verschiedene Analysemethoden Cs-137, Sr-90, Uran, Plutonium und Thorium in den Proben nachgewiesen werden. Da es sich bei dem Cs-137, Sr-90 und dem Plutonium um nicht natürliche Radionuklide handelt, lässt sich in den Proben ein anthropogener Einfluss auf die Umwelt am Probenahmeort erkennen. Ebenfalls nachgewiesen werden konnte, dass es sich bei dem in den Proben gefundenen Plutonium um waffenfähiges Plutonium handelt. Zudem wird verifiziert, dass die Kontamination der Proben mit Messungen anderer Proben aus der EURT-Zone konsistent sind, sodass eine Herkunft der Probe aus diesem Gebiet wahrscheinlich ist. Allerdings stimmen die Zusammensetzung und die Verhältnisse in den untersuchten Proben ebenfalls mit den Proben überein, die der Umgebung des Mishelyiak oder in der Umgebung von Musakaevo (Kyshtym) genommen wurden. Somit können diese Standorte als Probenahmeorte nicht ausgeschlossen werden. Dies trifft auch auf das Kontaminationsereignis zu. Zwar ist der Einfluss des Kyshtym Unfalls aufgrund der Nukildzusammensetzung erkennbar, jedoch können auch andere Ereignisse als Quelle der Nuklide nicht ausgeschlossen werden, sodass eine Überlagerung verschiedener Freisetzungen am wahrscheinlichsten ist. Diese Nukilde können Studien zufolge auch zu gesundheitlichen Problemen, insbesondere einen höheren Wahrscheinlichkeit an Krebs zu erkranken und auch zu versterben, führen. Jedoch wird der Dosisbeitrag der EURT-Freisetzung geringer eingeschätzt, als der Beitrag durch die Kontamination des Techa-Flusses.

# 7 Anhang

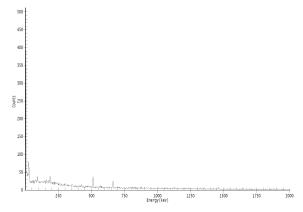
# 7.1 Gamma-Spektren der Flotation

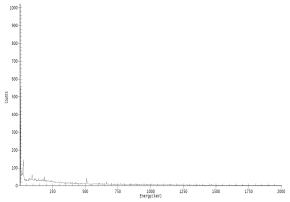




(a) Gammaspektrum der leichten Fraktion der Probe $0\,\mathrm{cm}$ 

(b) Gammaspektrum der leichten Fraktion der Probe 5-7 cm





(c) Gammaspektrum der schweren Fraktion der Probe $0\,\mathrm{cm}$ 

(d) Gammaspektrum der schweren Fraktion der Probe 5-7 cm

Abbildung 24: Gamma-Spektren der Fraktionen

Die vier Graphen zeigen die Gamma-Spektren der verschiedenen Fraktionen nach der Flotation. Besonders in den leichten Fraktionen fällt der Cs-137 Peak bei 662 keV auf.

# 7.2 Plutonium-, Uran- und Thorium-Trennung

Tabelle 8: Plutonium-Trennung, [28]

Schritt	Erläuterung	Lösung	Menge (mL)	Konzentration (mol/L)	Durchfluss- geschwindigkeit (mL/min)			
0	Probelösung vor Beginn	$Al(NO_3)_3+$	1	2	-			
	der Trennung	$\mathrm{HNO}_3$	3	3	-			
1	Plutonium-Ionen auf Pu <sup>III</sup> reduzieren	Eisensulfamat	2	0,6	-			
2	Oxidation des Plutoniums auf Pu <sup>IV</sup>	$\mathrm{NaNO}_2$	0,5	3,5	-			
	Es kann zu einer starken G	_	_	_				
3	Um die verbliebenen Gase a	_						
	90 °C für 20 min in einem Wasserbad erhitzt und anschließend auf Raumtemperatur							
	abgekühlt.							
4	Probenmaterial erhalten	$HNO_3$	2,5	3	_			
	durch Spülen des Gefäß		,					
5	Säule konditionieren	$HNO_3$	5	3	-			
6	Probelösung auf die Säule g	geben		ı				
	Bechergläser ausspülen,			_				
7	um Proberückstände zu	$\mathrm{HNO}_3$	2x 2,5	3	0,5			
	entfernen			-	_			
8		$HNO_3$	15	3	3			
9	Zwischenfraktion für die Ur							
(10a)		$H_2NOH$	5	0,6	0,5			
	Elektrodepositionslösung:							
	$43 \mathrm{g} (\mathrm{NH_4})_2 \mathrm{C}_2 \mathrm{O}_4$							
11a	$53 \mathrm{g} \mathrm{(NH_4)_2SO_4}$	Elektrodepo-	1					
	18 g Hydroxylaminsulfat	sitionslösung	1					
	2 g Diethylentriamin-							
	pentaessigsäure							

Tabelle 9: Ablauf der Uran- und Thorium-Trennung,  $\left[29\right]$ 

Schritt	Erläuterung	Lösung	Menge (mL)	Konzentration mol/L	Durchfluss- geschwindigkeit (Tropfen/s)	
(10b)	Konditionierung und Eluierung der Säule	$\mathrm{HNO}_3$	5	3	1-2	
(11b)	Probe hinzufügen					
(12b)	Ausspülen der Bechergläser	$\mathrm{HNO}_3$	2x 2,5	3	-	
(13b)	Systemwechsel NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> auf Cl <sup>-</sup>	HCl	5	9	-	
(14b)	Abtrennung des Thorium $\Rightarrow$ Becherglaswechsel					
(15b)		HCl	20	5	-	
(16b)		$C_2H_2O_4$		0,05	-	
(17b)	Abtrennung des Uran $\Rightarrow$ 1	Becherglaswechs	sel			
(18b)		HCl	15	0,01	-	
(19b)	Einengen der Proben auf 2	bis 5 mL				
(20b)	Vereinigung der Proben					
(21b)	Bechergläser ausspülen	HCl	3x 1	0,01	-	
(22b)	Volumen der Proben auf weniger als 1 mL reduzieren					
(23b)	Elektrodepositionslösung: 2,5 mL NaHSO <sub>4</sub> 5 mL Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> 2 mL H <sub>2</sub> O	Elektrodepo- sitionslösung	9,5	-	-	

## 7.3 Sr-90 Auswertung

Tabelle 10: Ergebnisse und Unsicherheiten der Gamma-Spektrometrie der 0cm Probe

Vor/Nach	Counts	Unsicherheit	Zeit in s	Counts pro sek.	u(CPS)
Vor	2355	49	472	5,0	0,1
Nach	2949	54	707	4,17	0,08

Tabelle 11: Ergebnisse und Unsicherheiten der Gamma-Spektrometrie der 5-7cm Probe

Vor/Nach	Counts	Unsicherheit	Zeit in s	Counts pro sek.	u(CPS)
Vor	1860	40	1710,93	1,080	0,025
Nach	1320	40	1394,18	0,950	0,026

#### 7.3.1 Kalibration

Die Auswertung der Messwerte der LSC-Messung wurde entsprechend der Norm DIN 38402 durchgeführt. Damit erfolgte eine Analyse der Messung mit einer Kalibrationsgeraden. Beachtet werden bei der Auswertung nur die Messwerte, bei denen alle drei in der LSC verbauten Detektoren angeschlagen haben. Dabei ergeben sich die folgenden Messwerte:

Tabelle 12: Messwerte 0cm Präparat und Standards

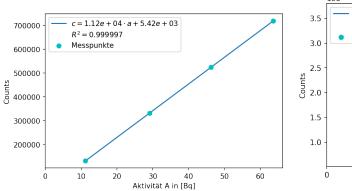
Zoit in h	B01	B02	В03	B04	E04
Zeit in h	[counts]	[counts]	[counts]	[counts]	[counts]
1	$1,31 \cdot 10^{5}$	$3,31 \cdot 10^{5}$	$5,\!24\cdot 10^5$	$7,19 \cdot 10^5$	$3,43 \cdot 10^5$
2	$1,31 \cdot 10^{5}$	$3,32 \cdot 10^{5}$	$5,23 \cdot 10^5$	$7,20 \cdot 10^5$	$3,48 \cdot 10^5$
3	$1,31 \cdot 10^{5}$	$3,32 \cdot 10^{5}$	$5,24 \cdot 10^{5}$	$7,19 \cdot 10^{5}$	$3,44 \cdot 10^{5}$

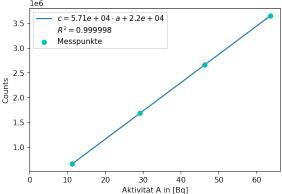
In der Tabelle 13 sind die Messwerte für die vier gemessenen Standards B01-B04 und die Messwerte der Probe E03 aufgelistet. Dabei sind die Messwerte hier in Counts angegeben. Mit Hilfe dieser Messwerte wird zunächst eine Kalibration durchgeführt. Diese ist in Abbildung 25 dargestellt.

Um zu prüfen, ob diese Daten auf das Vorhandensein von Sr-90 hinweisen, werden im Folgenden die Nachweis und die Erfassungsgrenze berechnet. Diese Analysen erfolgen konform mit der DIN Norm 32645.2008-11.

Table 101 Mass were 6 fem 1 Taparat and Standards							
Zeit in h	B01	B02	B03	B04	E03		
Zeit in n	[counts]	[counts]	[counts]	[counts]	[counts]		
1	$65,9 \cdot 10^{4}$	$16.8\cdot10^5$	$26.6\cdot10^5$	$36.5 \cdot 10^5$	$30,2 \cdot 10^5$		
2	$66,1 \cdot 10^4$	$16,9 \cdot 10^{5}$	$26.6\cdot10^5$	$36.6 \cdot 10^{5}$	$30,2 \cdot 10^5$		
3	$66,0 \cdot 10^{4}$	$16.8 \cdot 10^{5}$	$26,7\cdot 10^5$	$36,6 \cdot 10^{5}$	$30,2 \cdot 10^{5}$		

Tabelle 13: Messwerte 5-7cm Präparat und Standards





(a) Kalibration der Sr-Messung für die 0 cm Probe (b) Kalibration der Sr-Messung für die 5-7cm Probe

#### Abbildung 25: Sr-90 Kalibration

Lineare Regression der Werte der Standards zur Kalibrierung der Sr-90 Messung. Diese Regression ermöglicht die Ermittlung der Parameter a und b.

#### 7.3.2 Nachweisgrenze

Zur Bestimmung der Nachweisgrenze wird Formel (4) verwendet.

$$x_{\rm NG} = s_{xo} \cdot t_{f;\alpha} \sqrt{\frac{1}{m} + \frac{1}{n} + \frac{\overline{x}^2}{Q_x}}$$
 (4)

Dabei sind die Parameter der Formel wie folgt definiert:

- $s_{xo} = \frac{s_{x,y}}{b}$  ist die Verfahrensstandardabweichung bei homogener Varianz, darin enthalten:
  - die Reststandardabweichung der Messwerte der Kalibrierung  $s_{x,y} = \sqrt{\sum\limits_{i=1}^n (\hat{y}_i y_i)^2 \over n-2}$  mit  $\hat{y}_i$  dem geschätzten Funktionswert der Kalibrierung und  $y_i$  dem Messwert der Kalibrierprobe
- $t_{f;\alpha}$  entspricht dem 95% Quantil der t-Verteilung bei einseitiger Fragestellung für den Fehler 1. Art. In diesem Fall ist  $t_{f;\alpha}=2,31$

- $\bullet m$  ist die Anzahl der Messungen an der Analysenprobe
- $\bullet$  n ist die Gesamtzahl der Kalibrierungsmessungen
- $\bullet$   $\overline{x}$  ist das arithmetisches Mittel der Gehalte aller Kalibrierproben
- $Q_x = \sum_{i=1}^n (x_i \overline{x})^2$  ist die Summe der Abweichungsquadrate von x bei der Kalibrierung.

#### 7.3.3 Erfassungsgrenze

Die Erfassungsgrenze ermöglicht die Prüfung, ab welchem Gehalt des Sr-90 in der Probe die Wahrscheinlichkeit groß ist, diesen Gehalt auch messen zu können. Zur Berechnung wird die Formel (5) herangezogen.

$$x_{\rm EG} = x_{\rm NG} + s_{xo} \cdot t_{f,\beta} \sqrt{\frac{1}{m} + \frac{1}{n} + \frac{\overline{x}^2}{Q_x}}$$
 (5)

Die meisten Parameter der Gleichung (5) wurden bereits in Abschnitt definiert. Somit sind im Folgenden nur die neuen Parameter der Formel (5) aufgelistet.

- $x_{NG}$  der Nachweisgrenze (s.o)
- $t_{f;\beta}$  dem 95% Quantil der t-Verteilung bei einseitiger Fragestellung für den Fehler 2. Art. In diesem Fall gilt  $t_{f;\beta}=2,31$ .

Dies führt dazu, dass gilt  $t_{f,\beta} = t_{f,\alpha}$  somit vereinfacht sich die Formel (5) zu:

$$x_{\rm EG} = 2 \cdot x_{\rm NG} \tag{6}$$

# Abbildungsverzeichnis

1	Abwässer auf und um das Mayak-Gelände	4
2	Probenröhrchen	7
3	Proben Herkunft	8
4	Aufbau des Gamma-Detektors	10
5	Flotation	12
6	alpha-Strahlung in Materie	15
7	Alpha-Track Aufbau	16
8	Proben Vorbereitung	16
9	Aufbau Sr-Trennung	18
10	Aufbau Oberflächen Sperrschicht Detektor	22
11	Quadrupol	24
12	Gamma-Spektren für die Proben	25
13	Flotation	27
14	Gammaspektrum der leichten Fraktion der Oberflächenprobe	28
15	Ergebnisse der Alpha-Track Messung 0 cm	29
16	Ergebnisse der Alpha-Track Messung 5-7cm	29
17	Ergebnisse der Alpha-Spektrometrie	32
18	Alpha-Spektren	33
19	Vier Isotopen Plots	37
20	Vergleich mit anderen Umweltproben	39
21	Probenahmeorte der Vergleichsproben	40
22	Sr-90 zu Cs-137 Verhältnis	41
23	Standorte der Probenahmen für Sr-90 und Cs-137 Aktivitäten	42
24	Gamma-Spektren der Fraktionen	46
25	Sr-90 Kalibration	50

# **Tabellenverzeichnis**

1	Radioaktive Freisetzungen beim "Kyshtym Accident"	5
2	Störfälle in Mayak	6
3	Alphaenergien relevanter Isotope	23
4	Ergebnisse der Gammaspektrometrie	25
5	Ergebnisse der LSC	30
6	Messwerte der U-, Pu- und Th-Messung	31
7	Counts und Atomverhältnisse für Pu-239 und Pu-240	34
8	Plutonium-Trennung	47
9	Uran- und Thorium-Trennung	48
10	Ergebnisse und Unsicherheiten der Gamma-Spektrometrie der 0cm Probe $$	49
11	Ergebnisse und Unsicherheiten der Gamma-Spektrometrie der 5-7cm Probe $$ .	49
12	Messwerte 0cm Präparat und Standards	49
13	Messwerte 5-7cm Präparat und Standards	50

# Abkürzungsverzeichnis

**BSE** engl: "backscattered electrons".

CPS "Counts pro Sekunde".

**EDX** engl: "energy dispersive X-ray spectroscopy".

**ERR** engl: "Exess Relativ Risk".

**EURT** engl: "East Urals Radioactive Trace".

**HLW** engl: "High-Level-Waste".

ICP-MS "Induktiv gekoppelter Plasma Massenspektrometrie".

**LSC** engl: "Liquid Scintillation Counting".

Mayak PA engl: "Mayak Production Association".

PIPS engl: "Passivated Implanted Planar Silicon".

**REM** "Rasterelektronenmikroskop".

RR "Relatives Risiko".

# Literatur

- [1] Jim Thomson. "The Mayak Plant, Chelyabinsk a brief historical review". In: Nuclear Future 12 (2013), S50-S59. URL: http://www.safetyinengineering.com/FileUploads/Mayak%20NF%20article\_1462201332\_2.pdf.
- [2] William J. F. Standring, Mark Dowdall und Per Strand. "Overview of dose assessment developments and the health of riverside residents close to the "Mayak" PA facilities, Russia". In: *International journal of environmental research and public health* 6.1 (2009), S. 174–199. DOI: 10.3390/ijerph6010174.
- [3] S. A. Kabakchi, A. V. Putilov und Ye. R. Nazin. "Data Analysis and Physicochemical Modeling of the Radiation Accident in the Southern Urals in 1957". In: *Moscow ATOM-NAYA ENERGIYA* 1 (1995), S46-S50. URL: https://www.globalsecurity.org/wmd/library/news/russia/1995/fbust037\_95011.htm.
- [4] B. V. Nikipelov u. a. Report on a radiological accident in the southern Urals on 29 September 1957. International Atomic Energy Agency (IAEA), 1989. URL: http://inis.iaea.org/search/search.aspx?orig\_q=RN:20071898.
- [5] Thomas P McLaughlin u.a. "A Review of Criticality Accidents 2000 Revision". In: (Mai 2000). DOI: 10.2172/758324. URL: https://www.osti.gov/biblio/758324.
- [6] UNSCEAR. Sources and Effects of Ionizing Radiation, United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation (UNSCEAR) 2008 Report, Volume I. UNSCEAR, 2010. URL: https://www.unscear.org/docs/reports/2008/11-80076\_Report\_2008\_Annex\_C.pdf.
- [7] Goran tek-en. Map of the East Urals Radioactive Trace. https://commons.wikimedia.org/wiki/File:Map\_of\_the\_East\_Urals\_Radioactive\_Trace.png. 2019.
- [8] Jens-Volker Kratz und Karl Heinrich Lieser. Nuclear and Radiochemistry. eXamen.press. Berlin, Heidelberg: Wiley-VCH Verlag, 2013. ISBN: 978-3-527-32901-4. DOI: 10.1002/9783527831944.
- [9] Clemens Walther. Kerne, Teilchen (Physik IV Teil A). Vorlesungsfolien. 2020.
- [10] Glenn F. Knoll. Radiation Detection and Measurement. Wiley, 2000. ISBN: 9780471073383. URL: https://books.google.de/books?id=HKBVAAAAMAAJ.
- [11] Jan-Willem Vahlbruch. "Über den Transfer von natürlichen Radionukliden in terrestrischen Ökosystemen und die realistische Modellierung der natürlichen Strahlenexposition in Norddeutschland". In: Dissertation, Fachbereich Physik der Universität Hannover (2004).
- [12] Paul Hanemann. "Extraktion und Analyse uranhaltiger Partikel aus Bodenproben". In: Bachelorarbeit, Leibniz Universität Hannover, IRS (2019).

- [13] Ulrich Abram. Schematischen Vergleich des Ionisierungsvermögens der drei Strahlungsarten. URL: http://www.e-learning.chemie.fu-berlin.de/fragen/radioaktiv/ f02/a02/index.html.
- [14] I.E. Vlasova u. a. "Alpha track analysis and fission track analysis for localizing actinide-bearing micro-particles in the Yenisey River bottom sediments". In: *Radiation Measurements* 43 (2008). Proceedings of the 23rd International Conference on Nuclear Tracks in Solids, S303-S308. ISSN: 1350-4487. DOI: https://doi.org/10.1016/j.radmeas.2008.04.029. URL: https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S1350448708001959.
- [15] Malte Böhsl. Aufnahme des bioverfügbaren Sr-90 Inventars in Pflanzen. Masterarbeit an der Leibniz Universität Hannover, IRS. 2020.
- [16] Peter Thomson. "Bestrahlungseffekte in Oberflächensperrschichtdetektoren und MOS-Strukturen durch Röntgenstrahlung mit mittleren Energien von 14 keV und 90 keV". In: Universität Hamburg Institut für Experimentalphysik (1990).
- [17] Nucleonica GmbH. Nuclide Datasheets, Nucleonica Nuclear Science Portal. Version 3.0.65. 2017. URL: (www.nucleonica.com).
- [18] Jürgen H. Gross. *Mass Spectrometry*. Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg, 2004. ISBN: 978-3-642-07388-5. DOI: 10.1007/3-540-36756-X.
- [19] David A. Atwood. *Radionuclides in the environment*. EIC books. Chichester, West Sussex, U.K und New York: Wiley, 2010. ISBN: 0470714344.
- [20] S. Cagno u. a. "LA-ICP-MS for Pu source identification at Mayak PA, the Urals, Russia". In: Environ. Sci.: Processes Impacts 16 (2 2014), S. 306-312. DOI: 10.1039/C3EM00531C. URL: http://dx.doi.org/10.1039/C3EM00531C.
- [21] Thilo Hofmann. "Die Welt der vernachlässigten Dimensionen: Kolloide". In: Chem. Unserer Zeit 38 (2004), S24-S35. URL: http://bfw.ac.at/050/pdf/Kolloidevorlesung-leitgeb.pdf.
- [22] Lindis Skipperud u. a. "Plutonium contamination in soils and sediments at Mayak PA, Russia". In: *Health physics* 89.3 (2005), S. 255–266. ISSN: 0017-9078. DOI: 10.1097/01. hp.0000165449.06373.b0. URL: https://pubmed.ncbi.nlm.nih.gov/16096501/.
- [23] Deborah H. Oughton u. a. "Plutonium from Mayak: Measurement of Isotope Ratios and Activities Using Accelerator Mass Spectrometry". In: *Environmental Science & Technology* 34.10 (2000), S. 1938–1945. ISSN: 0013-936X. DOI: 10.1021/es990847z.
- [24] Oesteraas Statens Straalevern. Sources contributing to radioactive contamination of the Techa river and areas surrounding the Mayak production association, Urals, Russia. Norway, 1997. URL: http://inis.iaea.org/search/search.aspx?orig\_q=RN: 29032387.

- [25] S. J. Schonfeld u. a. "Solid cancer mortality in the techa river cohort (1950-2007)". In: Radiation research 179.2 (2013), S. 183–189. DOI: 10.1667/RR2932.1.
- [26] Sources, effects and risks of ionizing radiation: United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation: UNSCEAR 2017 report to the General Assembly, with scientific annexes. New York: United Nations, 2018. ISBN: 9211423228.
- [27] F. G. Davis u. a. "Solid Cancer Incidence in the Techa River Incidence Cohort: 1956-2007". In: *Radiation research* 184.1 (2015), S. 56–65. DOI: 10.1667/RR14023.1.
- [28] Stephanie Schneider u. a. "Plutonium release from Fukushima Daiichi fosters the need for more detailed investigations". In: *Scientific reports* 3.1 (2013), S. 2988. DOI: 10. 1038/srep02988. URL: https://www.nature.com/articles/srep02988.
- [29] Stefan Bister. "Radioökologische Untersuchungen landwirtschaftlich genutzter Auen der Mulde zu den Folgen des ehemaligen Uranbergbaus". In: Dissertation, Leibniz Universität Hannover, Naturwissenschaftlichen Fakultät (2012).

# Eigenständigkeitserklärung

Hiermit bestätige ich, dass ich die vorliegende Arbeit selbständig verfasst und keine anderen als die angegebenen Hilfsmittel benutzt habe. Die Stellen der Arbeit, die dem Wortlaut oder dem Sinn nach anderen Werken (dazu zählen auch Internetquellen) entnommen sind, wurden unter Angabe der Quelle kenntlich gemacht. Die Arbeit hat in gleicher oder ähnlicher Form noch keiner Prüfungsbehörde vorgelegen.

Hannover, 27.05.2022

Ort, Datum

Unterschrift