

Einfluss des Hochwassers 2013 auf die Urankontamination entlang der Mulde

Bachelorarbeit

am

Institut für Radioökologie und Strahlenschutz
der Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover,
Fakultät für Mathematik und Physik

von

Wiebke Matteikat

14.10.2013 - 13.03.2014

Prüfer: Prof. Dr. Clemens Walther

Selbstständigkeitserklärung

Hiermit versichere ich, dass ich die vorliegende Arbeit selbstständig verfasst und keine anderen als die zitierten Quellen und Hilfsmittel benutzt habe.

Hannover, den 12.03.2014

Wiebke Matteikat

Inhaltsverzeichnis

Inhaltsverzeichnis	II
1 Einleitung	2
1.1 Beschreibung des Untersuchungsgebietes	4
1.2 Bergbau im Erzgebirge	6
1.2.1 Uranerzbergbau	7
1.2.2 Die Wismut	7
1.3 Sanierungsmaßnahmen	9
1.4 Das Projekt	9
2 Natürliche Radionuklide und säkulares Gleichgewicht	11
2.1 Natürliche Radionuklide	11
2.2 Primordiale Radionuklide	11
2.2.1 Kalium-40	11
2.2.2 Uran	11
2.2.3 Thorium	13
2.3 Radiogene Radionuklide	14
2.3.1 Thorium-230	14
2.3.2 Radium-226	15
2.3.3 Blei-210	15
2.3.4 Actinium-227	15
2.3.5 Radium-228	15
2.3.6 Thorium-228	16
2.4 Kosmogene Radionuklide	16
2.5 Anthropogene Radionuklide	16
2.5.1 Cäsium	16
2.6 Säkulares Gleichgewicht	17
2.7 Störungen radioaktiver Gleichgewichte	19
3 Grundlagen der Gamma-Spektrometrie	21
3.1 Grundlegende Mechanismen der Gamma-Spektrometrie	21
3.2 Beschreibung von Gammaspektren	24
3.3 Aufbau und Funktionsweise eines Gamma-Detektors	25
3.4 Kalibrierung	27
3.5 Auswertung von Messdaten	29
3.5.1 Mehrfachmessungen	29
3.6 Ermittlung der spezifischen Aktivität	32
3.7 Charakteristische Grenzen	35

3.7.1	Erkennungsgrenze	35
3.7.2	Nachweisgrenze	35
3.8	Qualitätssicherung	36
4	Untersuchung von Umweltproben mittels Gamma-Spektrometrie	37
4.1	Die Probenahme	37
4.1.1	Wasser- und Sedimentproben	37
4.1.2	Bodenproben	39
4.2	Aufbereitung der Proben	42
4.3	Auswertung	43
4.3.1	Test auf Normalverteilung und logarithmische Normalverteilung	45
4.3.2	Betrachtung der mittleren Aktivitäten	46
4.3.3	Radiologische Beurteilung	48
4.3.4	Veränderungen auf den Testflächen	50
4.3.5	Bergbaulicher Einfluss	53
4.3.6	Verteilung von U-238 und Ra-228 entlang der Zwickauer Mulde	57
4.3.7	Testfläche T18	60
4.3.8	Kalium und Cäsium	61
5	Fazit	65
	Literatur	66
	Abbildungsverzeichnis	69
	Tabellenverzeichnis	71
A	Anhang	74
A.1	Angaben zum Detektor und zur verwendeten Software	74
A.2	Verwendete Kalibrierstandards	74
A.3	Messdaten	77
A.4	Datenanalyse	83
A.4.1	Mittelwerte	83
A.4.2	Konformitätskriterium	85
A.4.3	Test auf Normalverteilung und logarithmische Normalverteilung	91
B	Probenahmebericht	94
C	Danksagung	97

1 Einleitung

Das Erzgebirge ist ein Mittelgebirge, welches die Grenze zwischen Sachsen in Deutschland und Böhmen in der Tschechischen Republik bildet. Aufgrund der im Namen bereits angedeuteten reichen Erzvorkommen ist diese Region vom Bergbau geprägt. Die unter anderem sehr reichen Uranerzvorkommen haben die Region zu einer der weltweit bedeutendsten Uranbergbauregionen gemacht. Aufgrund der Entwicklung der Kernwaffentechnologie kam diesem in der ehemaligen DDR zur Zeit des Kalten Krieges eine besondere Bedeutung zu. Die Mulde, welche im wesentlichen durch Sachsen fließt und einen linken Nebenfluss der Elbe darstellt, entwässert das Zentrum des Uranbergbaus im Erzgebirge. Dadurch kam es zu einer großflächigen Kontamination des Flusses und den angrenzenden Flussauen mit Radionukliden der Uran-Zerfallsreihen. [Wis14], [Beu99], [SSK91]

Zur Abschätzung der radiologischen Folgen wurden verschiedene Projekte unter Beteiligung des Instituts (Institut für Radioökologie und Strahlenschutz, vormals Zentrums für Strahlenschutz und Radioökologie) durchgeführt. Das erste Projekt fand 1993 zur Schwermetallsituation im Muldesystem statt [Beu99]. Es folgte ein Projekt im Jahr 2003 aufgrund des Hochwassers im August 2002 [Feu04]. 2008 wurde ein weiteres Projekt durchgeführt, bei dem erstmals auch Auenböden näher betrachtet wurden [Bis12], [Rie12].

Anlass des gegenwärtigen Projektes war das Hochwasser im Mai und Juni 2013. Am 28. und 29. Mai gab es eine außergewöhnlich kühle und nasse Witterungsperiode in Mitteleuropa. Dieses Niederschlagsgebiet brachte in Sachsen 30-50 Millimeter, teils über 60 Millimeter Niederschlag in 12 Stunden. Am Morgen des 31. Mai schwellen viele Flüsse, einschließlich der Mulde, an und traten über die Ufer. Zusätzlich wurden von Hainichen Richtung Döbeln und bis nach Zwickau und Chemnitz heftige gewittrige Starkregenfälle beobachtet. Die maximalen Pegelstände entlang der Zwickauer Mulde lagen größtenteils über denen von 2002. Als Beispiel betrug der maximale Hochwasserstand 2002 in Wechselburg 597 Zentimetern und 2013 616 Zentimeter im Vergleich zum Normalwasserstand von 88 Zentimeter. [Fro14]

Abbildung 1 gibt einen Eindruck, wie hoch das Wasser während der Flut stand.



Abbildung 1: Schwemmgut in den Bäumen lässt auf Testfläche T26 erkennen, wie hoch der Wasserstand war. Im Hintergrund ist die Vereinigte Mulde zu sehen.

Ziel des laufenden Projektes ist es die Verlagerungen der durch den Uranbergbau eingetragenen Radionuklide entlang des Muldesystems nach den Flutereignissen zu erfassen. Hierzu werden die Radionuklidgehalte in Flusssedimenten und Auenböden entlang der Mulde untersucht und mit den Ergebnissen aus vorangegangenen Projekten verglichen.

Diese Arbeit befasst sich im Wesentlichen mit der Untersuchung der Auenböden entlang der Zwickauer Mulde. Sie gliedert sich in vier Kapitel. Das erste Kapitel gibt einen Überblick über das Untersuchungsgebiet und die Geschichte des Bergbaus. Im letzten Teil dieses Kapitels erfolgt eine Beschreibung des Gesamtprojekts, in dessen Rahmen diese Bachelorarbeit angefertigt wurde. Kapitel 2 beschreibt die natürlich vorkommenden Radionuklide. Außerdem werden radioaktive Gleichgewichte und

deren Störungen durch beispielsweise uranbergbaulichen Einfluss erläutert. Das Messverfahren der Gamma-Spektrometrie ist in Kapitel 3 dargestellt. Hier wird der Aufbau und die Funktionsweise eines Gamma-Detektors erklärt, sowie die Ermittlung der spezifischen Aktivitäten der einzelnen Radionuklide. Im vierten Kapitel wird zuerst die Probennahme und -aufbereitung beschrieben. Anschließend erfolgt die Auswertung der Messergebnisse und der Vergleich mit den Werten aus 2008.

1.1 Beschreibung des Untersuchungsgebietes

Das Erzgebirge ist ein Höhenzug zwischen Sachsen in Deutschland und Böhmen in der Tschechischen Republik. Der höchste Gipfel des Grenzkamms ist der Keilberg mit 1244 Metern über NN. Dieser liegt auf tschechischer Seite. Auf deutscher Seite ist der Fichtelberg mit 1214 Metern über NN die höchste Erhebung. Die durchschnittliche Höhe des Grenzkamms beträgt 700 Meter über NN. Dabei teilen die Flüsse Schwarzwasser und Flöha das Gebiet in West-, Mittel- und Osterzgebirge. [Bis12], [Sol10]

Die Mulde ist das Hauptabflusssystem des Erzgebirges in Richtung Norden. Sie besteht aus der Freiburger Mulde und der Zwickauer Mulde (ZM), welche bei Sermuth zur Vereinigten Mulde (VM) zusammenfließen. Die Vereinigte Mulde mündet bei Dessau auf einer Höhe von 55 Metern über NN linksseitig in die Elbe. Das Dreieck zwischen den Städten Dessau, Dresden und Zwickau ist etwa das Gebiet, das von den verschiedenen Flüssen des Muldesystems (Zwickauer Mulde, Freiburger Mulde und Vereinigte Mulde) und deren Zuflüssen (Flöha, Zschopau, Schwarzwasser und Chemnitz) durchquert wird. Abbildung 2 gibt eine Übersicht über das Muldesystem.



Abbildung 2: Das Muldesystem

Die Mulde stellt den viertgrößten Nebenfluss der Elbe dar. Ihr durchschnittlicher mittlerer Abfluss beträgt 75 m^3 Wasser pro Sekunde. Allerdings schwankt der Wasserstand stark, auch jahreszeitlich, was auf das Erzgebirge als Einzugsgebiet zurückzuführen ist. Insgesamt entwässert die Mulde eine Fläche von etwa 7600 km^2 . Die meisten ihrer Quellen und Zuflüsse entspringen auf tschechischem Gebiet, so auch die Freiberger Mulde, welche den östlichen Ursprung des Muldesystems bildet. Sie hat ihren Namen daher, dass sie an Freiberg, einer der größten Städte an ihrem Lauf, vorbeifließt. Die Freiberger Mulde hat eine Länge von 124 Kilometern und überwindet etwa 720 Höhenmeter. Ihr größter Zufluss ist die Zschopau. Die Quellbäche der Zwickauer Mulde sind die Rote und die Weiße Mulde, welche beide auf einer Höhe von 770 Metern über NN entspringen. An der Talsperre Muldenberg vereinigen sie sich zur Zwickauer Mulde, die als größte Siedlung ihre namensgebende

Stadt Zwickau passiert. Ihr größter Zufluss ist die Chemnitz. Die Zwickauer Mulde ist für diese Arbeit von großer Bedeutung, da sie das Zentrum des erzgebirgischen Uranbergbaus, welches die Ortschaften Aue, Bad Schlema und Schneeberg umfasst, entwässert. Bei Aue nimmt sie zudem den Fluss Schwarzwasser auf, welcher die kleineren Uranbergbaugebiete bei Johanngeorgenstadt und Pöhla entwässert. Beim Zwickauer Ortsteil Crossen erreicht sie die gleichnamige ehemalige Uranerzaufbereitungsanlage und nimmt mit dem Oberrothenbach unter anderem Ableitungen aus der Absetzanlage Helmsdorf auf. Insgesamt hat die Zwickauer Mulde eine Länge von 162 Kilometern und überwindet knapp 640 Höhenmeter. Die Vereinigte Mulde hat eine Länge von 144 Kilometern.

Von ihrem Ursprung im Erzgebirge bis zum Einfließen in die Elbe überwindet die Mulde einen Höhenunterschied von etwa 1000 Metern. Dadurch erreicht sie so hohe Fließgeschwindigkeiten, dass sie zu einem der am schnellsten fließenden Gewässer Europas gehört. Die jährlichen Niederschlagsmengen liegen im Erzgebirgsvorland auf 320 - 418 Metern über NN bei 700 - 800 Millimetern pro Jahr und auf dem Erzgebirgskamm auf 590 - 717 Metern über NN bei 821 - 1026 Millimetern pro Jahr [Lup14]. Dies ist interessant, weil die Kombination aus der erhöhten Niederschlagsmenge im Erzgebirge und der schnellen Fließgeschwindigkeit ein erhöhtes Hochwasserpotential bewirkt. Bei starken Niederschlägen in den Bergen sammeln sich an den Bergflanken sehr schnell große Wassermengen, die in die Flüsse gelangen und ein Hochwasser verursachen können. Ein anderes Szenario hierfür ist die Schneeschmelze im Frühjahr. Dadurch kommt es im Verlauf der Flüsse zu regelmäßigen Überschwemmungen der Gebiete mit geringem Gefälle (Auen). Auf diesen relativ ebenen Auenflächen verringert sich die Fließgeschwindigkeit des Wassers. So kommt es, dass sich entlang der Mulde Sedimente ablagern, unter anderem auch auf landwirtschaftlich genutzten Flächen. Dieser Effekt hat eine große Bedeutung für die ackerbauliche Nutzung dieser Böden. [Beu99], [Bis12], [Sol10]

1.2 Bergbau im Erzgebirge

Im Erzgebirge findet seit Jahrhunderten ein intensiver Bergbau statt. Die Historie des Bergbaus im Erzgebirge reicht bis in das Jahr 1168 zurück. In diesem Jahr wurden in der Nähe der heutigen Stadt Freiberg erste Silbererzvorkommen entdeckt. Zu Beginn des 14. Jahrhunderts wurden die geförderten Silbermengen immer geringer und auch der Abbau gestaltete sich immer schwieriger. Aufgrund dessen nahm die Bergbautätigkeit nach und nach ab. Die Suche nach weiteren Erzen verlagerte sich mehr in die Kammlagen des Erzgebirges. Hier wurden 1470 neue ergiebige Silbererzvorkommen ausfindig gemacht, vor allem um Schneeberg, Annaberg und St. Joachimsthal. Die Ausbeuten wurden Mitte des 16. Jahrhunderts jedoch auch geringer und zugleich kostspieliger. Der Rückgang des Bergbaus wurde zusätzlich

durch den Dreißigjährigen Krieg, der 1618 begann, beschleunigt. Die Silbererzförderung wurde vor allem nach der Einführung der Goldmark im Jahr 1873 weitgehend bedeutungslos.

Neben Silber wurden im Erzgebirge Zinn, Eisen, Kobalt, Wismut, Arsen, Blei, Zink, Kupfer, Wolfram, Molybdän sowie Kaolin für die Porzellanherstellung in Meißen und Uran sowie Radium gewonnen. [Bis12], [Sol10]

1.2.1 Uranerzbergbau

Nach dem Zweiten Weltkrieg dominierte der Uranbergbau im Erzgebirge. Uranerz war schon seit dem 16. Jahrhundert als „Pechblende“ bekannt. 1789 entdeckte der Chemiker Martin Heinrich Klaproth in der Pechblende ein metallisches Element, welches er Uran nannte. Zu Beginn des 19. Jahrhunderts wurde Uranoxid zur Färbung von Glas und Keramikglasuren verwendet. In St. Joachimsthal und später auch in Johanngeorgenstadt fand kurz darauf eine gezielte Förderung von Uranerzen statt. Die im Erzgebirge geförderten Uranerze spielten eine wichtige Rolle bei der Erforschung der Radioaktivität und wurden unter anderem von Marie und Pierre Curie genutzt. Nach der Entdeckung der Kernspaltung 1938 durch Otto Hahn, Fritz Straßmann sowie Lise Meitner und Otto Frisch rückte Uran auch in das Interesse des Militärs. Die Entwicklung von Kernwaffen führte nach Ende des zweiten Weltkriegs zu einer Hochphase des Uranerzbergbaus im Erzgebirge. [Bis12], [Sol10]

Zur Uranerzaufbereitung wird das geförderte Erz zunächst gebrochen und gemahlen und dann in Armerz als Abraum und Erzkonzentrat getrennt. Anschließend erfolgt mit Hilfe einer sauren oder alkalischen Laugung ein Aufschluss des Konzentrates, um das Uran herauszulösen. Die entstehende Uranlauge wird weiter aufbereitet, während das anfallende Tailingmaterial in Absetzanlagen gesammelt wird. Dieses enthält noch den Großteil der Aktivität, da im Tailingmaterial der größte Teil der Zerfallsprodukte des Urans enthalten ist. Aufgrund dessen kann Radongas aus diesem Material in die Umgebung entweichen. Es besteht auch die Gefahr, dass die Absetzanlage bei starken Niederschlägen überläuft oder ein Damm bricht. Aufgrund von starken Niederschlägen brach beispielsweise 1954 der Damm der Absetzanlage Lengenfeld, was zu einer großen Kontamination des Lenkteiches und des Plöhnbachs führte [Feu04]. Trockengefallenes Tailingmaterial birgt die Gefahr, vom Wind weggetragen zu werden. [Bis314], [Feu04], [Bel92]

1.2.2 Die Wismut

Die DDR war der viertgrößte Uranproduzent weltweit und der bedeutendste Uranlieferant der damaligen UdSSR [Wis14]. Die „Wismut“ war das (einzige) Uranbergbau-Unternehmen in der damaligen DDR und bis 1990 der größte uranproduzierende

Betrieb der Welt. Das Ursprungsunternehmen, die „Sowjetische Staatliche Aktiengesellschaft der Buntmetallindustrie Wismut“ (SAG Wismut), wurde 1947 von der Sowjetunion gegründet. Die in diesem Zuge in sowjetischen Besitz gekommenen sächsischen Bergwerke dienten als Reparationszahlungen. Bis 1954 hatte die „SAG Wismut“ insgesamt 10.000 Tonnen Uran gefördert. Die Produktion der „Wismut“ war auf eine Maximierung der Uranförderung ausgerichtet, weshalb insbesondere in der als „Wilde Jahre der Wismut“ bezeichneten Anfangszeit Strahlenschutz, Arbeitsschutz sowie Natur- und Umweltschutz eine stark untergeordnete Rolle spielten. Aus der „SAG Wismut“ entstand am 1. Januar 1954 die „Sowjetisch-Deutsche Aktiengesellschaft Wismut“ (SDAG), an der die DDR und die Sowjetunion gleiche Anteile besaßen. Im Rahmen dieser Umstrukturierung wurde auch zunehmend die Produktionseffektivität sowie Strahlenschutz, Arbeitsschutz und Umweltschutz berücksichtigt. Von 1946 bis 1990 wurden von der Wismut etwa 231.000 Tonnen Uran gefördert.

Das Uran wurde in die UdSSR transportiert und dort zum Aufbau des 1943 eingeleiteten sowjetischen Kerntechnik-Programms für die Entwicklung von Nuklearwaffen verwendet. Politisch standen sich in dieser Zeit der „Westen“ und der „Osten“ gegenüber, was zum sogenannten „Kalten Krieg“ führte. Aufgrund der strategischen Bedeutung der Uranförderung unterlag die „Wismut“ einer strengen Geheimhaltung, was sich zum Beispiel im Namen widerspiegelt. Auch sprach man nicht vom Uran oder von der Pechblende, das abgebaut wurde, sondern verschleiern nur vom „Erz“. Von der Bevölkerung wurde die „Wismut“ als „Staat im Staate“ wahrgenommen, aufgrund ihres besonderen Status.

Mit dem Zusammenbruch der Sowjetunion verlor die „Wismut“ ihren Uran-Abnehmer, was zu ernsthaften finanziellen Schwierigkeiten führte. Am 3. Oktober 1990 ging im Zuge der Wiedervereinigung der DDR-Anteil der „SDAG Wismut“ auf die Bundesrepublik Deutschland über; seit diesem Zeitpunkt liegt die Verantwortung für die Wismut beim Bundesministerium für Wirtschaft. Die Anteile der UdSSR an der „SDAG Wismut“ gingen am 16. Mai 1991 unentgeltlich an die Bundesrepublik über mit der Vereinbarung, dass die Sowjetunion sich finanziell nicht an den Sanierungsmaßnahmen der Wismut beteiligt.

Der Uranbergbau wurde Ende Dezember 1990 eingestellt. Die Ursache hierfür ist in wirtschaftlichen und politischen Gründen zu finden. Am 12. Dezember 1991 wurde die „SDAG Wismut“ in die „Wismut GmbH“ überführt, deren Aufgabe in der Stilllegung und Sanierung der Anlagen besteht. Dabei handelt es sich um eines der größten Sanierungsprojekte, welches weltweit Pioniercharakter hat. Das bei der Sanierung gewonnene Wissen und die hierbei entwickelten Technologien werden von der 2002 gegründeten „Wisutec GmbH“ vermarktet. [Bel92], [Bis12], [Sol10], [Wis14]

1.3 Sanierungsmaßnahmen

Die Wismut GmbH verfolgt das Ziel 5 Bergbaustandorte (Schlema-Alberoda, Pöhla, Ronneburg, Königstein und Freital/Dresden-Gittersee) und 2 Aufbereitungsbetriebe (Crossen und Seelingstädt) mit Abraumhalden, Absetzanlagen und Tagebaulöchern nachhaltig zurückzubauen bzw. zu sanieren. Die Kontamination besteht sowohl aus Radionukliden als auch aus konventionellen chemischen Stoffen, vor allem aus Schwermetallen, Arsen und Laugungschemikalien. Folgende Maßnahmen sollen zur Sanierung der belasteten Anlagen und Flächen durchgeführt werden:

- Rückbau und Dekontamination bestehender Gebäude und Anlagen,
- Flutung und Verfüllung von Gruben und Schächten,
- Abtragung oder vor-Ort-Sanierung von Abraumhalden,
- Abdeckung und Sicherung von Absetzanlagen,
- Reinigung von überlaufenden Flutungswässern, von abgepumpten Wässern und von Haldensickerwässern durch Wasserbehandlungsanlagen.

Bei den Sanierungsmaßnahmen ist zwischen einmaligen Arbeiten und Langzeitaufgaben (z.B. Umweltüberwachung und Wasserbehandlung) zu unterscheiden. Im Laufe der vergangenen 25 Jahre konnten die einmaligen Sanierungsarbeiten weitestgehend abgeschlossen werden [Wis14]. Die sanierten Flächen werden forstwirtschaftlich weitergenutzt, aber auch Projekte zur Naherholung und zur gewerblichen Nutzung werden umgesetzt. Prominente Beispiele hierbei sind die Kuranlagen Bad Schlema und der Landschaftspark „Neue Landschaft Ronneburg“ (Bundesgartenschau 2007). [Bis12], [Sol10], [Wis14]

1.4 Das Projekt

Das aktuelle Projekt befasst sich mit der Verlagerung von Radionukliden entlang der Mulde infolge des Hochwassers im Frühsommer 2013. Hierzu werden die Radionuklidgehalte in Flusssedimenten und Auenböden entlang der Mulde untersucht und mit den Ergebnissen aus vorangegangenen Projekten verglichen. Die vorliegende Bachelor-Arbeit behandelt dabei im Wesentlichen die Auenböden entlang der Zwickauer Mulde. Weiterhin erfolgte die Probenahme von Sediment- und Wasserproben im Rahmen dieser Arbeit.

Der Vergleich mit früheren Untersuchungsergebnissen basiert auf dem Projekt „Transport und Verfügbarkeit von Uran und langlebigen Zerfallsprodukten in Auenböden der Mulde“ [Bis12], [Rie12]. Dabei handelt es sich um ein Arbeitspaket des

vom BMBF (Bundesministerium für Bildung und Forschung) geförderten Verbundprojektes „Radionuklide in der Umwelt, ihr Transport in Nahrungsketten zum und im Menschen“ des Kompetenzverbundes Strahlenforschung. „Im Rahmen dieses Projektes wurde der Einfluss des ehemaligen Uranbergbaus auf die Auen der Mulde sowie die radiologische Bedeutung aufgrund der landwirtschaftlichen Nutzung der Auenböden untersucht [Bis12].“ Hierbei wurden erstmals die Auenböden selbst näher betrachtet.

2 Natürliche Radionuklide und säkulares Gleichgewicht

2.1 Natürliche Radionuklide

In der Natur kommen circa 80 relevante Radionuklide vor [Sti10]. Man kann sie in vier Gruppen einteilen: primordiale, kosmogene, radiogene und anthropogene Radionuklide. Im Folgenden werden diese vier Gruppen kurz vorgestellt und die für die Messungen in dieser Arbeit wichtigen Radionuklide beschrieben.

2.2 Primordiale Radionuklide

Primordiale Radionuklide sind während der stellaren Nukleosynthese entstanden. Da sie sehr lange Halbwertszeiten haben, sind sie heute noch auf der Erde vorhanden. Unter den primordialen Radionukliden befinden sich auch die Mutternuklide der drei natürlichen Zerfallsreihen. [Sti10]

2.2.1 Kalium-40

K-40 gehört zu den primordialen Radionukliden ohne Zerfallsreihen und macht 0,0117 % der natürlichen Kalium-Isotope aus. Es ist ein sehr reaktives Element und kommt in der Natur nur in seinen Verbindungen vor. Kaliumsalze sind in der Regel gut wasserlöslich. K-40 hat eine Halbwertszeit von $t_{1/2} = 1,28 \cdot 10^9$ a. Mit einer Zerfallswahrscheinlichkeit von 89,33 % zerfällt es durch einen β^- -Zerfall zu Ca-40. Es besteht aber auch die Möglichkeit, dass es unter Elektroneneinfang zum angeregten Ar-40* zerfällt, welches anschließend unter Aussendung eines Gammaquants in den Grundzustand des Ar-40 übergeht. Die charakteristische Energie dieser Quants von 1460,83 keV wird bei der Gamma-Spektrometrie zur Identifizierung von K-40 verwendet. Die Emissionswahrscheinlichkeit des Gammaphotons beträgt 10,67 %. Gestört wird diese Linie durch eine Linie des Ac-228, was eine Korrektur in der Auswertung nötig macht. [Taw12]

2.2.2 Uran

In der Erdkruste kommt Uran zu 0,00029 Massenprozent vor [Bir09]. In der Natur ist es als Gemisch aus drei verschiedenen radioaktiven Isotopen vorzufinden. Den Hauptanteil bildet das U-238 mit 99,2745 %. Die beiden anderen Isotope sind U-235

von 63,28 keV ($p = 4,1\%$). Die Halbwertszeit beträgt $t_{1/2} = 24,1$ d. Bei dieser Linie ist eine Korrektur nötig, da sie von einer Linie des Th-232 gestört wird. Die vom Pa-234m verwendete Linie weist eine Energie von 1001,03 keV ($p = 0,839\%$). Ihre Halbwertszeit liegt im Minutenbereich. [Sol10]

Uran-Actinium-Zerfallsreihe

U-235 bildet eine weitere natürliche Zerfallsreihe, die Uran-Actinium-Reihe. Sie ist in Abbildung 4 abgebildet.

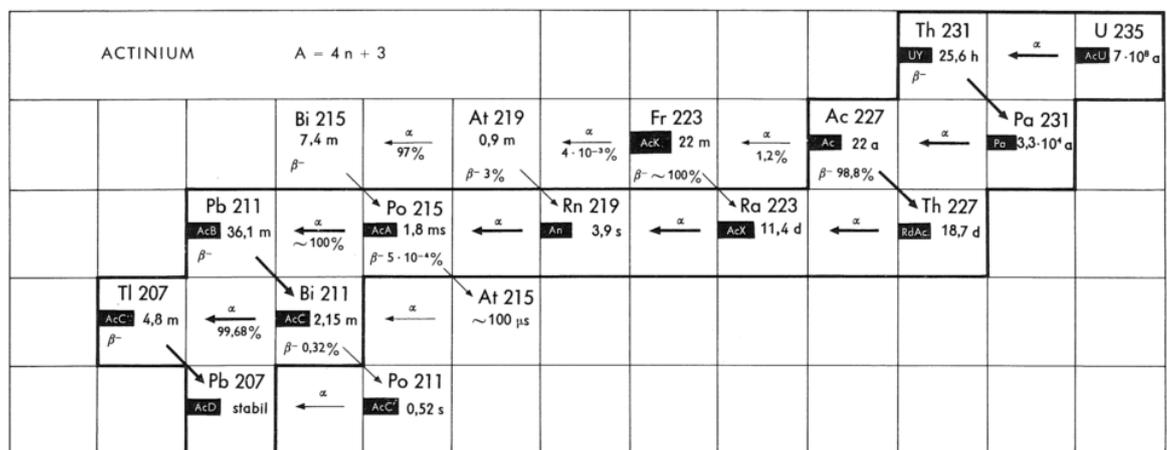


Abbildung 4: Uran-Actinium-Zerfallsreihe [NUK98]

U-235 hat eine Halbwertszeit von $t_{1/2} = 0,7 \cdot 10^8$ a [Taw12]. Dieses U-235 besitzt selbst vier Energielinien, die gammaspektrometrisch messbar sind. In der Auswertung werden jedoch nur drei Linien betrachtet. Sie liegen bei 163,33 keV ($p = 5,08\%$), 205,31 keV ($p = 5,01\%$) und 143,76 keV ($p = 10,96\%$). Dabei ist zu beachten, dass die letzte genannte Energielinie korrigiert werden muss, da sie vom Ra-223 gestört wird. [Sol10]

2.2.3 Thorium

Die dritte heute noch existierende Zerfallsreihe ist die Thorium-Zerfallsreihe und wird vom Th-232 gebildet. Sie ist in Abbildung 5 dargestellt.

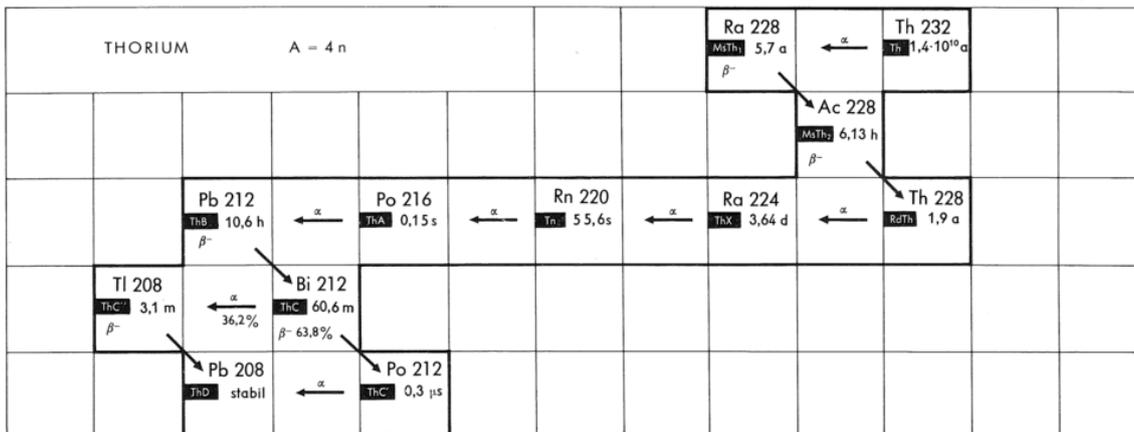


Abbildung 5: Thorium-Zerfallsreihe [NUK98]

Es hat eine Halbwertszeit von $t_{1/2} = 1,405 \cdot 10^{10} \text{ a}$ [Bir09]. Zu 0,0011 Massenprozent ist es in der Erdkruste enthalten [Bir09]. Im Vergleich mit Uran ist der Anteil von Thorium in der Erdkruste deutlich größer. Aufgrund der extrem geringen Löslichkeit ist die radiologische Bedeutung jedoch erheblich geringer. Thorium wird fast ausschließlich partikulär transportiert. [Bis12]

In dieser Arbeit wird Th-232 nicht bestimmt, sondern nur die aus dieser Zerfallsreihe stammenden radiogenen Nuklide Ra-228 und Th-228. Die Beschreibung dieser beiden Nuklide ist im Abschnitt „radiogenen Radionuklide“ zu finden.

2.3 Radiogene Radionuklide

Als radiogene Radionuklide werden solche bezeichnet, die beim radioaktiven Zerfall entstehen, wie beispielsweise innerhalb der Zerfallsreihen [Taw12]. Für die Gamma-Spektrometrie der in dieser Arbeit untersuchten Bodenproben sind sie von großer Bedeutung, da sie häufig zur Bestimmung der Aktivität der Mutternuklide verwendet wurden.

2.3.1 Thorium-230

Das aus der Zerfallsreihe des U-238 stammende Th-230 besitzt eine ungestörte Energielinie bei 67,67 keV. Die Emissionswahrscheinlichkeit ist mit 0,38 % jedoch gering, weswegen die Aktivitäten teilweise unter der Nachweisgrenze liegen und sehr störanfällig sind. [Sol10]

2.3.2 Radium-226

Aus der Zerfallsreihe des U-238 stammt das Ra-226. Es hat eine Halbwertszeit von $t_{1/2} = 1600$ a [Sol10]. Radium bildet eine Reihe schwerlöslicher Verbindungen, sodass es nur bedingt löslich ist. Insbesondere die häufig vorkommenden Ionen Sulfat und Carbonat setzen die Löslichkeit herab. Dieses Verhalten trifft auch auf das Ra-228 zu. [Bis12]

Ra-226 besitzt eine Gammalinie bei 186,1 keV ($p = 3,51$ %). Problematisch für die Aktivitätsbestimmung ist diese Linie aufgrund der Störung durch eine Energielinie des U-235. Dieser Einfluss wird vor allem dann kritisch, wenn die Aktivität von U-235 unter der Nachweisgrenze liegt. Deshalb wurde die Aktivität des Ra-226 in dieser Arbeit über die Emissionslinien seiner beiden Töchter Pb-214 und Bi-214 ermittelt. Pb-214 hat eine ungestörte Gammalinie bei 295,22 keV ($p = 18,15$ %). Bi-214 besitzt drei ungestörte Linien: bei 609,31 keV ($p = 44,6$ %), bei 1120,29 keV ($p = 14,7$ %) und bei 1764,49 keV ($p = 15,1$ %). [Sol10]

2.3.3 Blei-210

Pb-210 stammt ebenfalls aus der Zerfallsreihe des U-238 und hat eine Halbwertszeit von $t_{1/2} = 22,3$ a [Sol10]. Seine Gammalinie bei 46,54 keV hat eine Emissionswahrscheinlichkeit von 4,25 %. Bei solch niedrigen Energien spielt die Selbstabsorption eine bedeutende Rolle. Deswegen ist bei der Auswertung von Blei die Dichtekalibrierung besonders wichtig. Bleiverbindungen sind in der Regel schwer löslich [Bis12]. [Sol10]

2.3.4 Actinium-227

Ac-227 entsteht in der Zerfallsreihe des U-235. Für die Ermittlung der spezifischen Aktivität wurde die Linie des Th-227 bei 235,97 keV ($p = 12,3$ %), die Linie des Rn-219 bei 401,81 keV ($p = 6,4$ %) und die Linie des Pb-211 bei 404,85 keV ($p = 3,78$ %) verwendet. [Sol10]

2.3.5 Radium-228

Ra-228 entstammt der Thorium-Zerfallsreihe und hat eine Halbwertszeit von $t_{1/2} = 5,75$ a [Sol10]. Da dieses Nuklid keine eigene Gammlinie besitzt, wird die spezifische Aktivität über seine Tochter, das Ac-228, ermittelt. Ac-228 besitzt vier ungestörte Linien: bei 209,25 keV ($p = 3,89$ %), bei 409,46 keV ($p = 1,94$ %), bei 911,20 keV ($p = 25,8$ %) und bei 968,97 keV ($p = 15,8$ %). [Sol10]

2.3.6 Thorium-228

Th-228 kommt aus der Thorium-Zerfallsreihe und besitzt keine eigene Gammalinie. Deshalb wird die Aktivität über die beiden Töchter Tl-208 und Pb-212 bestimmt. Tl-208 erzeugt eine Linie bei 860,56 keV ($p = 4,47\%$). Die zweite zur Auswertung verwendete Gammalinie vom Pb-212 hat eine Energie von 238,63 keV ($p = 43,3\%$). [Sol10]

2.4 Kosmogene Radionuklide

In unserer Erdatmosphäre kommt es ständig zu Wechselwirkungen von primärer und sekundärer kosmischer Strahlung mit Atomen der oberen Atmosphärenschicht. Ein Beispiel für ein kosmisches Radionuklid ist C-14, welches aus N-14 entsteht. C-14 wird unter anderem zur Altersbestimmung bei der Radiocarbonmethode verwendet. Kosmogene Radionuklide spielen bei der Betrachtung der Bodenproben jedoch keine Rolle. [Sol10]

2.5 Anthropogene Radionuklide

Aufgrund der Nutzung von Kernenergie und der Testung von Kernwaffen sind in der Umwelt Radionuklide zu finden, die ohne diese Prozesse nicht oder nur in kaum messbarer Konzentration vorhanden wären. [Taw12]

2.5.1 Cäsium

Die heute in der Umwelt vorkommenden Cs-137-Mengen stammen im Wesentlichen vom Reaktorunfall in Tschernobyl 1986 und von den durchgeführten oberirdischen Kernwaffentests. Die Halbwertszeit von Cs-137 beträgt $t_{1/2} = 30,17\text{ a}$ [Sol10]. Aufgrund dieser hohen Halbwertszeit ist es heute immer noch nachweisbar. Cs-137 zerfällt durch eine β^- -Emission mit einer Emissionswahrscheinlichkeit von 5,6 % zu Ba-137. Für die durchgeführte Gammaskopie ist jedoch der β^- -Zerfall interessant, der mit einer Emissionswahrscheinlichkeit von 94,4 % stattfindet und zum Ba-137m führt. Mit einer Emissionswahrscheinlichkeit von 85,1 % gibt das Ba-137m ein Gammaquant mit einer Energie von 661,65 keV ab und wird zu Ba-137. Dieses charakteristische Gammaquant wird in der Gammaskopie genutzt, um Cs-137 nachzuweisen. Cäsium ähnelt in seinen Eigenschaften, einschließlich seiner Löslichkeit, denen des Kaliums. [Sol10], [Bis12]

Tabelle 1 stellt eine Übersicht dar, welche Energielinien zur Berechnung der spezifischen Aktivität der untersuchten Radionuklide verwendet wurden.

Mutternuklid	Tochternuklid	Energielinien	Emissionswahrscheinlichkeit
U-238	Th-234	63,28 keV	0,041
	Pa-234m	1001,03 keV	0,00839
Th-230		67,67 keV	0,0038
Ra-226	Pb-214	295,22 keV	0,1815
		609,31 keV	0,446
	1120,29 keV	0,147	
	1764,49 keV	0,151	
Pb-210		46,54 keV	0,0425
U-235		143,76 keV	0,1096
		163,33 keV	0,0508
		205,31 keV	0,0501
Ac-227	Th-227	235,97 keV	0,123
		401,81 keV	0,064
	Pb-211	404,85 keV	0,0378
Ra-228	Ac-228	209,25 keV	0,0389
		409,46 keV	0,0194
		911,2 keV	0,258
		968,97 keV	0,158
Th-228	Pb-212	238,63 keV	0,433
	Tl-208	860,56 keV	0,0447
Cs-137		661,66 keV	0,85
K-40		1460,83 keV	0,1067

Tabelle 1: Energielinien, die zur Bestimmung der jeweiligen Radionuklide verwendet wurden

2.6 Säkulares Gleichgewicht

Bei der Betrachtung von natürlichen Radionukliden ist das säkulare Gleichgewicht von Bedeutung. Dieses stellt sich ein, wenn die Halbwertszeit der Tochter sehr viel kleiner als die des Mutternuklids ist ($t_{1/2,T} \ll t_{1/2,M}$). Demzufolge gilt für die Zerfallskonstanten $\lambda_T \gg \lambda_M$. [Sti10]

In Abbildung 6 ist diese Situation graphisch dargestellt.

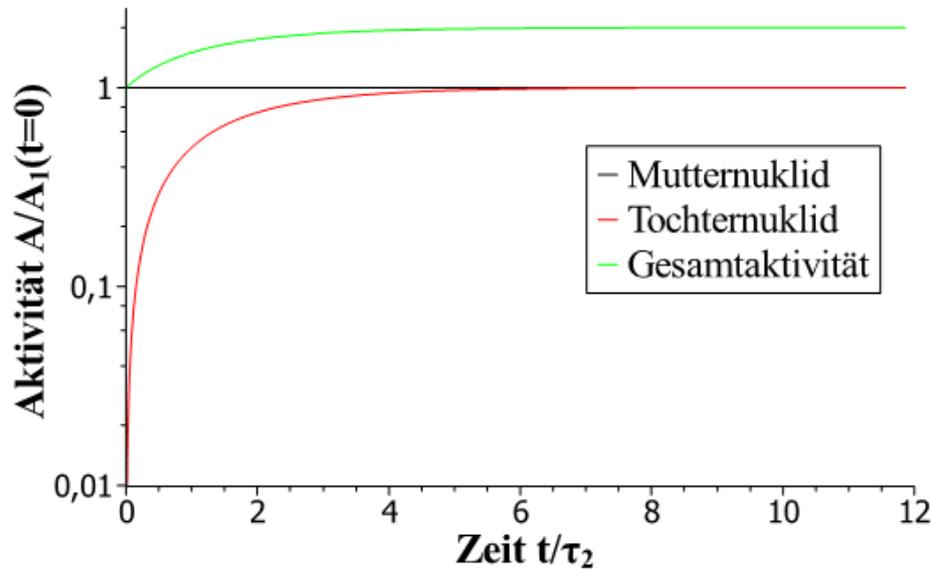


Abbildung 6: Säkulares Gleichgewicht. Dargestellt sind die Aktivitäten des Mutter- und des Tochternuklids sowie die Gesamtaktivität. Die Darstellung wurde auf 1 normiert. Bei der Achsenbeschriftung bezeichnet A_1 die Aktivität des Mutternuklids und τ_2 die Halbwertszeit des Tochternuklids. [Taw12]

Die Gleichung für die Aktivitätsbeziehung von Mutter und Tochter lautet in diesem Fall:

$$A_T(t) = A_M(t) \cdot (1 - \exp(-\lambda_T t)) \quad (2-1)$$

Betrachtet man sehr lange Zeiträume, also lässt t gegen unendlich laufen, ergibt sich für die Exponentialfunktion:

$$\lim_{x \rightarrow \infty} \exp(-\lambda_T t) = 0 \quad (2-2)$$

Unter Berücksichtigung dieses Zusammenhangs, lässt sich Formel 2-1 wie folgt vereinfachen:

$$A_T(t) = A_M(t) \quad (2-3)$$

Somit gilt für das Aktivitätsverhältnis von Mutter- und Tochternuklid im säkularen Gleichgewicht:

$$\frac{A_T(t)}{A_M(t)} = 1 \quad (2-4)$$

[Taw12]

In der natürlichen Uran-Radium-Zerfallsreihe stellt sich ein säkulares Gleichgewicht zwischen Radium-226 und Radon-222 ein. Da Radon-222 jedoch gasförmig ist, kann es im Zeitraum der Probenaufbereitung entweichen. Aus diesem Grund müssen die fertig aufbereiteten und gasdicht verschlossenen Proben in den Marinelligefäßen mindestens drei Wochen ruhen, damit sich vor dem Messen das gestörte Verhältnis wieder ausgleichen kann.

2.7 Störungen radioaktiver Gleichgewichte

Das ursprünglich vorhandene Gestein kann näherungsweise als abgeschlossenes System betrachtet werden. Aus diesem Grund konnten sich hier radiochemische Gleichgewichte der natürlichen Zerfallsreihen einstellen. Im offenen System Boden können diese beispielsweise durch Bodenbildungs- und Verwitterungsprozesse gestört werden. Diese Vorgänge geschehen allerdings über sehr große Zeitspannen. Starke kurzfristige Störungen der Gleichgewichte sind meistens anthropogenen Ursprungs. Ein Beispiel hierfür ist der Uranbergbau. So wurde das nicht verwertbare, uranhaltige Armerz auf oberirdische offene Halden gebracht. Auch das bei der Aufbereitung der Erze angefallene Tailingaterial kommt mit der Umwelt in Kontakt und beeinflusst auf diese Weise die natürlichen radiochemischen Gleichgewichte. Das in Halden, Deponien und Absetzbecken gelangte Wasser, beispielsweise von Niederschlägen, hat einen Teil des belasteten Materials in die Umgebung, vor allem in das entwässernde Muldesystem, getragen. Aufgrund der regelmäßigen Überschwemmungen findet ein Austausch des von der Mulde transportierten Sediments und den Flussauen statt. Hierdurch kann sich radioaktiv belastetes Sediment auf den auch landwirtschaftlich genutzten Auenböden ansammeln.

Störungen der radiochemischen Gleichgewichte und Aktivitätsverhältnisse bestimmter Radionuklide (U-238, Ra-226, Ra-228, Pb-210) erlauben Rückschlüsse auf ihre Ursachen wie beispielsweise Uranbergbau oder Mechanismen des Aktivitätstransports [Bis12], [Mic05], [Rie12]:

- **natürliche geochemische Verhältnisse:**

$$a(\text{U-238}) = a(\text{Ra-226}) = a(\text{Pb-210}) \text{ und } a(\text{Ra-228})/a(\text{U-238}) > 0,5$$

- **Eintrag von uranerzhaltigem Material / partikulärer Transport:**
erhöhte natürliche Radioaktivität
 $a(\text{U-238}) = a(\text{Ra-226}) = a(\text{Pb-210})$ und $a(\text{Ra-228})/a(\text{U-238}) < 0,5$
- **Anreicherung/Ausfällung von gelöst transportiertem Uran:**
erhöhte Uranaktivität
 $a(\text{Ra-226}) = a(\text{Pb-210})$, $a(\text{Ra-226})/a(\text{U-238}) < 1$ und $a(\text{Ra-228})/a(\text{U-238}) < 0,5$
- **Uranmobilisierung / Auswaschung von Uran:**
 $a(\text{Ra-226}) = a(\text{Pb-210})$ und $a(\text{Ra-226})/a(\text{U-238}) > 1$
- **Eintrag von Tailingmaterial (partikulärer Transport) oder Anreicherung/Ausfällung von gelöst transportiertem Radium:**
erhöhte Radiumaktivität
 $a(\text{Pb-210})/a(\text{Ra-226}) < 1$, $a(\text{Ra-226})/a(\text{U-238}) < 1$ und
 $a(\text{Ra-228})/a(\text{Ra-226}) < 0,5$

3 Grundlagen der Gamma-Spektrometrie

Die Bodenproben wurden mittels Gamma-Spektrometrie untersucht. Das hatte den Vorteil, dass keine aufwendige Aufbereitung der Proben erforderlich war. Es war zudem nicht nötig, die einzelnen Radionuklide chemisch zu trennen. Die Probenmatrix kann durch die Gammastrahlung durchdrungen werden. Ihre Energien können differenziert detektiert werden.

Im Folgenden sollen die Grundlagen der Gamma-Spektrometrie erläutert werden. Die Darstellung des Kapitels erfolgt auf Basis der Diplom- und Masterarbeiten von *Stieghorst* [Sti10], *Birkhan* [Bir09], *Solle* [Sol10] und *Tawussi* [Taw12].

3.1 Grundlegende Mechanismen der Gamma-Spektrometrie

Drei verschiedene Effekte der Wechselwirkung zwischen Gammastrahlung und Materie sind bei der Messung von Gammaspektren von Bedeutung. Dies sind der Photoeffekt, die Compton-Streuung und die Paarbildung. Die energieabhängigen Wirkungsquerschnitte dieser Mechanismen sind in Abbildung 7 dargestellt. Addiert man die Wirkungsquerschnitte von Photoeffekt (σ_{Photo}), Comptoneffekt (σ_{Compton}) und Paarbildung (σ_{Paar}) erhält man den effektiven Wirkungsquerschnitt (σ_{eff}),

$$\sigma_{\text{eff}} = \sigma_{\text{Photo}} + \sigma_{\text{Compton}} + \sigma_{\text{Paar}} \quad (3-5)$$

welcher proportional zur Wahrscheinlichkeit der Wechselwirkung zwischen Gammaquant und Atom ist.

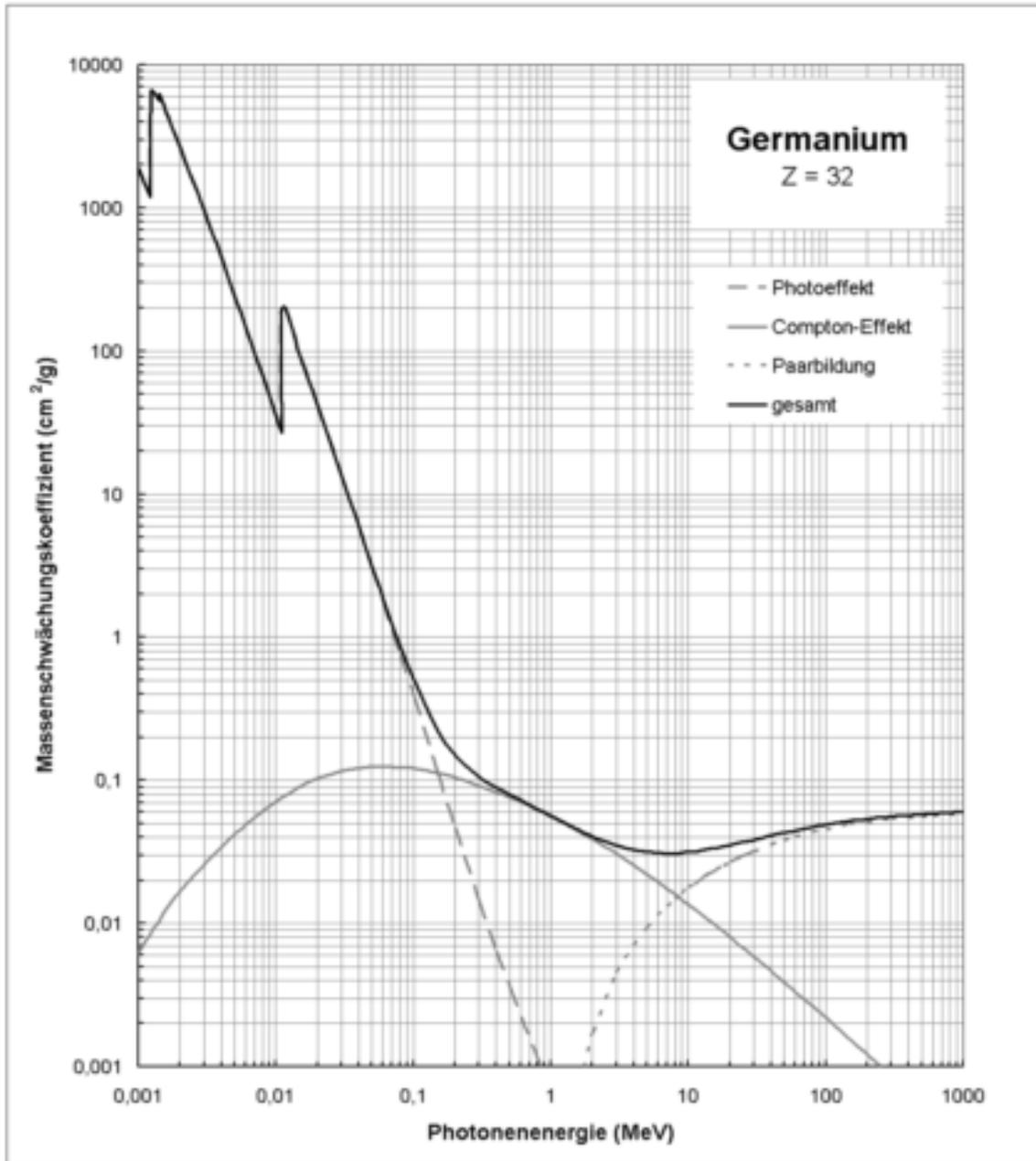


Abbildung 7: Wirkungsquerschnitte von Photoeffekt, Comptoneffekt und Paarbildung sowie Darstellung des effektiven Wirkungsquerschnitts (gesamt) [Sti10]

Allgemein lässt sich der Wirkungsquerschnitt angeben, indem man die Zahl der Wechselwirkungen eines Effektes pro Target und Sekunde durch die einfallende Teilchenstromdichte dividiert.

Der Photoeffekt

Der Photoeffekt ist für Energien bis etwa 150 keV dominant. Hier wird das einfallende Gammaquant (E_γ) vollständig von einem Elektron absorbiert, welches sich in der Hülle eines Atoms befindet. Durch die Absorption des Gammaquants hat dieses Elektron genügend Energie, um die Bindungsenergie (E_{bind}) zu überwinden und die Atomhülle zu verlassen. Die kinetische Energie dieses Photoelektrons ($E_{\text{e,kin}}$) lässt sich wie folgt beschreiben:

$$E_{\text{e,kin}} = E_\gamma - E_{\text{bind}} \quad (3-6)$$

Die zu überwindende Bindungsenergie variiert, je nachdem in welcher Schale sich das Elektron befindet. Das primäre Elektron erzeugt nun beim Durchfliegen des Mediums weitere Sekundärelektronen, indem es mit den Valenzelektronen anderer Atome in Wechselwirkung tritt. Je nachdem wie viel Energie diese Sekundärelektronen besitzen, können sie noch weitere Atome ionisieren. Dabei ist die Anzahl der ausgelösten Sekundärelektronen proportional zur kinetischen Energie des Primärelektrons. Wurde das Elektron aus einer unteren Schale herausgelöst, kann dessen Platz von einem Elektron aus einer höheren Schale übernommen werden. Dabei kommt es zur Aussendung einer charakteristischen Röntgenstrahlung. Die Energie dieser Röntgenstrahlung (ΔE) entspricht der Differenz aus der Energie des herausgelösten Elektrons ($E_{\text{bind},1}$) und der Energie des Elektrons, das seinen Zustand innerhalb des Atoms geändert hat ($E_{\text{bind},2}$):

$$\Delta E = E_{\text{bind},1} - E_{\text{bind},2} \quad (3-7)$$

Der Comptoneffekt

Dieser Effekt ist für einen Energiebereich von 150 keV bis etwa 8,5 MeV dominant. Bei dem Comptoneffekt erfolgt die Wechselwirkung des Gammaquants mit einem freien bzw. quasi-freien Elektron in Form eines elastischen Stoßes. Dies bedeutet, dass sich die kinetische Energie und die Ausbreitungsrichtung sowohl des einfallenden Gammaquants als auch des streuenden Elektrons ändern. Das Rückstoßelektron kann anschließend Sekundärelektronen erzeugen, deren Anzahl wie oben beschrieben proportional zur Energie des Ausgangselektrons ist. Anders als beim Photoeffekt wird das Gammaquant nicht vollständig absorbiert. Es wird so oft gestreut, bis seine Energie im Wirkungsbereich des Photoeffekts liegt. Dann wird es in Folge des Photoeffekts vollständig absorbiert. Allerdings kommt es auch vor, dass ein Teil der Gammaquanten, die an einer Compton-Streuung beteiligt waren, bereits vor Erreichen der Photoeffektenergie aus dem Absorbermaterial entweichen. Gammaquanten, die unter einem Streuwinkel von $\theta = 180$ Grad gestreut

werden und anschließend das Absorbermaterial verlassen, erzeugen die sogenannte Comptonkante, da hier die größtmögliche Energie an das Elektron übertragen wird.

Die Paarbildung

Ab Energien von mehr als 8,5 MeV wird der Effekt der Paarbildung dominant. Hierbei werden aus einem Gammaquant (E_γ) mit mehr als 1022 keV (doppelte Ruheenergie eines Elektrons) ein Elektron ($E_{e^-,kin}$) und ein Positron ($E_{e^+,kin}$) erzeugt, wenn dieses mit dem Coulomb-Feld eines Atomkerns ins Wechselwirkung tritt. Folgende Formel beschreibt die entsprechenden Energie, wobei m_0 die Ruhemasse eines Elektrons beschreibt und c als Lichtgeschwindigkeit definiert ist:

$$E_{e^-,kin} + E_{e^+,kin} = E_\gamma - 2m_0c^2 \quad (3-8)$$

Wie bei den vorherigen beschriebenen Prozessen ionisiert das Primärelektron Atome und erzeugt so Sekundärelektronen. Das Positron wird durch das Medium abgebremst und annihiliert anschließend mit einem Elektron, wobei es zwei Photonen aussendet. Die so entstandenen Photonen könnten mit dem Medium in Form der Compton-Streuung wechselwirken. In einem endlichen Medium kann es jedoch passieren, dass ein oder sogar beide Photonen den Absorber verlassen. Hierdurch werden der Single Escape Peak (SE) bei $E_{SE} = E_\gamma - m_0c^2$ und der Double Escape Peak (DE) bei $E_{DE} = E_\gamma - 2m_0c^2$ erzeugt.

3.2 Beschreibung von Gammaspektren

Durch die drei oben beschriebenen Möglichkeiten kann ein Gammaquant seine gesamte Energie im Absorbermaterial deponieren. Bei mehreren eingestrahlt Gammaquanten kommt es zu einer Überlagerung dieser Prozesse. In Abbildung 8 ist das Gammaspektrum von K-40 zu sehen.

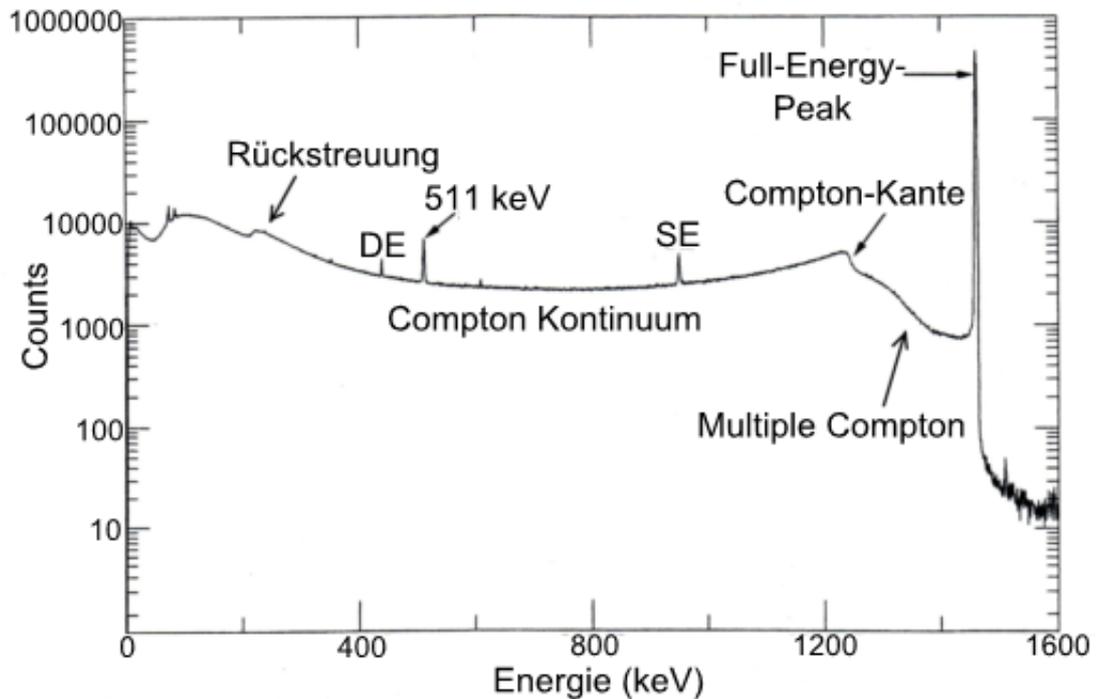


Abbildung 8: Gammaspektrum von K-40. Der charakteristische Full-Energy-Peak liegt bei 1460,8 keV. [Taw12]

Der charakteristische Full-Energy-Peak eines Nuklids entsteht durch alle Gammaquanten, die ihre vollständige Energie im Absorberkristall abgegeben haben. Alle anderen sichtbaren Effekte des Gammaspektrums werden von den Quanten erzeugt, die an einem oder mehreren Wechselwirkungsprozessen teilgenommen haben, aber den Absorber vor Abgabe ihrer gesamten Energie wieder verlassen haben. Hierdurch entsteht beispielsweise das Comptonkontinuum. Ein Rückstreupeak wird von all jenen Quanten erzeugt, die von Elementen in der Umgebung des aktiven Volumens (z.B. die Bleiabschirmung) unter einem Winkel von $\theta = 180$ Grad zurückgestreut werden und im Detektor registriert werden.

3.3 Aufbau und Funktionsweise eines Gamma-Detektors

In Abbildung 9 ist der typische Aufbau eines Gamma-Detektors dargestellt.

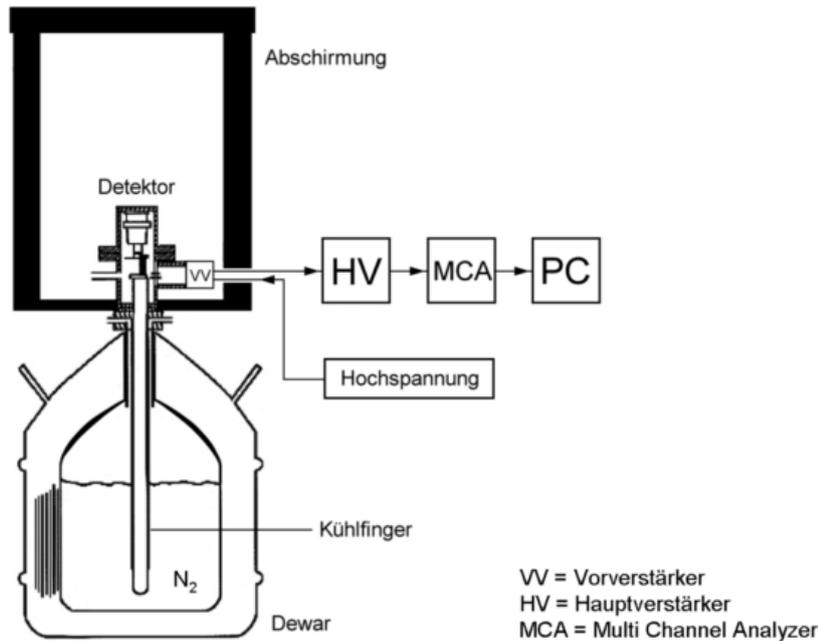


Abbildung 9: Prinzipieller Aufbau eines Gamma-Detektors [Sti10]

Das Kernstück des verwendeten Gamma-Detektors bildet ein Halbleiterkristall aus Reinstgermanium. Dieser weist eine Reinheit von mehr als 99,999 % auf. Allgemein lassen sich zwei verschiedene Dotierungsformen des Detektormaterials unterscheiden. Bei einem p-Typ-Kristall erfolgt eine positive Dotierung wohingegen bei n-Typ-Kristallen eine negative Dotierung des Kristalls erfolgt. Der entsprechende Aufbau ist in Abbildung 10 dargestellt.

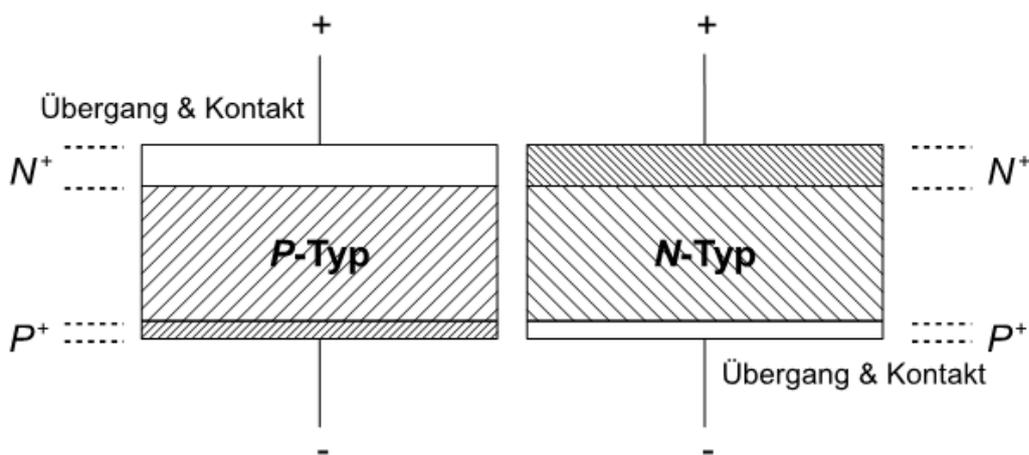


Abbildung 10: Bei einem n-Typ-Kristall erfolgt eine negative Dotierung, wohingegen bei einem p-Typ-Kristall eine positive Dotierung erfolgt. Die Randdotierungen sind bei beiden Kristalltypen gleich. [Bir09]

Am Rand des jeweiligen Detektorkristalls wird eine positive und eine negative Randdotierung erzeugt. Es handelt sich jeweils nur um Randdotierungen, damit das aktive Volumen möglichst groß ist. In dieser Arbeit wurde ein Gamma-Detektor mit einem p-Typ-Kristall verwendet, da die zu messenden Energien zwischen 40 und 1800 keV liegen. Die n-Typ-Kristalle eignen sich hingegen besser zur Messung von geringeren Energien.

Jede unnötige Verunreinigung mit Fremdatomen würde das Hintergrundrauschen erhöhen, da die Fremdatome Einfluss auf die Leitfähigkeit des Detektors haben. Zur Aufnahme von Gammaspektren wird die ionisierende Wirkung von Gammastrahlung ausgenutzt. Schon bei geringen Energien können Elektronen die Bandlücke zwischen Leitungs- und Valenzband überwinden, da die Bandlücke bei Halbleitern relativ gering ist. Das hat jedoch auch zur Folge, dass ein Hintergrundrauschen entsteht, welches das Auflösungsvermögen des Detektors verschlechtert. Bereits die Wärmeenergie der Detektorumgebung reicht aus, um ein deutliches Hintergrundrauschen zu erzeugen. Um diesen Effekt zu minimieren, wird der Detektor mit flüssigem Stickstoff auf 77 Kelvin gekühlt. Außerdem wird der Halbleiterdetektor durch eine Bleiabschirmung von der umgebenden Strahlung abgeschirmt, um die Hintergrundaktivität zu senken.

An den Reinstgermaniumdetektor ist eine elektrische Hochspannung angeschlossen, so dass der Pluspol an der n-dotierten und der Minuspol an der p-dotierten Randschicht anliegt. Somit entspricht der Halbleiterdetektor einer Diode, welche in Sperrrichtung geschaltet ist. In der entstandenen, als aktives Medium dienenden Sperrschicht befinden sich kaum Elektronen im Leitungsband. Durch den Einfluss von Gammastrahlung können Ladungsträger durch die bereits beschriebenen Prozesse in das Leitungsband angehoben werden. Aufgrund der angelegten elektrischen Spannung bewegen sich die erzeugten Elektronen in Richtung Pluspol. Hier werden sie in Form von Stromimpulsen registriert. Dieses Signal wird zuerst von einem empfindlichen Vorverstärker und anschließend von einem weiteren Verstärker erhöht. Anschließend findet ein sogenanntes pulse-shaping statt. Das bedeutet, dass die registrierten Impulse durch einen Impulsformer in eine Gaußform gebracht werden. Ein Vielkanalanalysator (MCA) ordnet dann jedes Signal abhängig von seiner Impulshöhe einem bestimmten Kanal zu. Diese Impulshöhe ist proportional zu der Energie, die vom eingestrahnten Gammaquant im Detektor gespeichert wurde. Eine positive Eigenschaft der Gamma-Spektrometrie ist, dass die Anzahl der erzeugten Ladungsträger proportional zur eingestrahnten Gammaquantenenergie ist.

3.4 Kalibrierung

Für die Auswertung der Spektren und die Ermittlung der spezifischen Aktivität der Nuklide in den untersuchten Proben sind drei verschiedene Kalibrierungen

des Gamma-Detektors nötig, welche in den folgenden Abschnitten beschrieben werden. Zusätzlich zu den Kalibrierungen wurde eine mehrtägige Nullmessung (Livetime: etwa 95 h) mit einem leeren Marinelligefäß durchgeführt. Die hierbei ermittelten Energien werden für die Auswertung der spezifischen Aktivitäten von den gemessenen Spektren subtrahiert.

Energiekalibrierung

Die Energiekalibrierung wurde mit einem Wasserstandard durchgeführt, welcher mit der Multinuklidlösung QCY B41 versetzt worden war. Ziel der Messung dieses hergestellten Wasserstandards war es, den Kanälen, denen mit dem Vielkanalanalysator ein Signal zugeordnet wurde, eine bestimmte Energie zuzuordnen. Dieses ist für die Auswertung relevant, da es nur dann möglich ist, die einzelnen Radionuklide ihren Full-Energy-Peaks zuzuordnen. Hierbei besteht zwischen der Kanalzahl und der zugeordneten Energie ein linearer Zusammenhang.

Halbwertsbreitenkalibrierung

Die FWHM (volle Breite bei halber Höhe) eines aufgezeichneten Peaks wird von der Auflösung des Detektors sowie von der Energie des eingefallenen Gammaquants beeinflusst. Unter Auflösung ist hier zu verstehen, wie dicht nebeneinander zwei benachbarte Peaks liegen können und trotzdem noch als unterschiedlich erkannt werden. Die Auflösung des Detektors hängt unter anderem von den pro Gammaquant erzeugten Ladungsträgern ab. Diese Anzahl unterliegt statistischen Schwankungen. Ein weiterer Einfluss erfolgt daher, wie effektiv die Trennung der erzeugten Ladungsträger ist. Auch das elektronische Rauschen bestimmt die Auflösungsvermögen mit. Das Auflösungsvermögen des verwendeten Detektors liegt nach den Herstellerangaben für eine Energie von 122 keV bei einer FWHM von 0,875 keV und für eine Energie von 1332 keV bei einer FWHM von 1,8 keV.

Efficiencykalibrierung

Die hier gemeinte Efficiency oder auch Nachweis- bzw. Ansprechwahrscheinlichkeit entspricht der Full-Energy-Peak-Efficiency. Sie berücksichtigt nur die Impulse, die in den zu einem Gammaquant gehörenden Full-Energy-Peak einfließen. Formal lässt sich die Efficiency (ϵ) wie folgt beschreiben:

$$\epsilon = \frac{r_{\text{det}}}{r_{\text{emit}}} \quad (3-9)$$

Dabei beschreibt r_{det} die Zählrate der tatsächlich detektierten Gammaquanten und r_{emit} die Zählrate der insgesamt aus der Probe emittierten Gammaquanten. Für die Auswertung der gemessenen Proben werden verschiedene Standards mit

einer Multinuklidlösung versehen. Dabei sollten die Dichte und die Beschaffenheit nach Möglichkeit denen der Messgegenstände entsprechen. Auch die Messgeometrie sollte idealerweise identisch sein. Mithilfe des oben beschriebenen Zusammenhangs kann die Efficiency für die einzelnen Radionuklide des Standards ermittelt werden. Für die Auswertung der Proben ist jedoch eine kontinuierliche Efficiencykurve nötig, welche eine Energieabhängigkeit aufweist. Hierzu wurden die erhaltenen Messwerte mit der Jäckel-Westmeier-Funktion $\varepsilon(E_\gamma)$ interpoliert. Diese lautet wie folgt:

$$\varepsilon(E_\gamma) = \exp\left(\frac{2}{\pi} \cdot (a_0 + a_1 \ln E_\gamma + a_2 \ln E_\gamma^2) \cdot \arctan(\exp(a_3 + a_4 \ln E_\gamma + a_5 \ln E_\gamma^3)) - 25\right) \quad (3-10)$$

Die Parameter a_0 bis a_5 müssen für die jeweils gemessene Kurve bestimmt werden. Zur Bestimmung wurde das Programm „QtiPlot“ verwendet.

Das Maximum der Efficiency liegt ungefähr bei 120 keV. Sowohl im Bereich niedriger als auch hoher Energien nimmt sie jeweils ab. Je höher die Energie eines Gammaquants ist, desto unwahrscheinlicher ist es, dass dieses im Detektor vollständig absorbiert wird. Grund ist der bei höheren Energien abnehmende Wirkungsquerschnitt des Photoeffekts. Bei Radionukliden mit niedrigen Gammaenergien wie beispielsweise Blei-210 (46 keV) ist die Efficiencykalibrierung von großer Bedeutung, da die Selbstabsorption dieser Quanten stark von der Dichte beeinflusst wird.

Bei der Dichtekalibrierung konnte auf die bereits von *Birkhan* ermittelten Werte zurückgegriffen werden. Aufgrund der großen Streuung der einzelnen Messwerte, wurde auf eine lineare Interpolation aller ermittelten Werte verzichtet. Stattdessen wurden die Werte der Dichtekalibrierung verwendet, die der Dichte der gemessenen Probe am nächsten kam. Konkret wurden die Messungen der Dichten von 1,18 g/cm³ und 1,37 g/cm³ verwendet. Da einige Dichten der gemessenen Proben im Bereich um 1,00 g/cm³ lagen, wurde zusätzlich der im Rahmen der Energiekalibrierung gemessene Wasserstandard berücksichtigt.

3.5 Auswertung von Messdaten

3.5.1 Mehrfachmessungen

Direkte Mehrfachmessung

Eine Messung, bei der der gewünschte Wert direkt gemessen wird und die unabhängig von vorherigen Messungen n-mal durchgeführt wird, nennt man direkte Mehrfachmessung. Dabei erhält man n Messwerte x_i , für die der arithmetische Mittelwert \bar{x} die beste Abschätzung für den wahren Wert darstellt, wenn die ent-

sprechenden Zufallsgrößen additiv zusammenspielen.

arithmetischer Mittelwert:

$$\bar{x} = \frac{1}{n} \cdot \sum_{i=1}^n x_i \quad (3-11)$$

Die Unsicherheit des arithmetischen Mittelwerts ist die Standardabweichung s .

Standardabweichung:

$$s = \sqrt{\frac{1}{(n-1)} \sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})^2} \quad (3-12)$$

Wenn die Anzahl n der Werte x_i groß genug ist, kann für die Häufigkeitsverteilung eine Normalverteilung angenommen werden.

Für die Ermittlung der spezifischen Aktivitäten der Mutternuklide über die Aktivitäten mehrerer Tochternuklide wurde der gewichtete Mittelwert verwendet. Der Vorteil des gewichteten Mittelwertes gegenüber des arithmetischen besteht darin, dass Gammalinien mit großen Unsicherheiten im Gegensatz zu Gammalinien mit kleinen Unsicherheiten weniger Einfluss auf das Ergebnis haben. Somit haben zuverlässigere Ergebnisse eine größere Gewichtung. Die Formel hierfür lautet:

$$\bar{x}_{\text{gew}} = \frac{\sum_{i=1}^n \left(\frac{x_i}{u^2(x_i)} \right)}{\sum_{i=1}^n \left(\frac{1}{u^2(x_i)} \right)} \quad (3-13)$$

Die zugehörige Unsicherheit ist gegeben durch:

$$u(\bar{x}_{\text{gew}}) = \frac{1}{\sqrt{\sum_{i=1}^n \frac{1}{u^2(x_i)}}} \quad (3-14)$$

Hängen die beeinflussenden Faktoren der Messgröße jedoch multiplikativ zusammen, stellt der geometrische Mittelwert den besten Schätzwert für den wahren Wert dar. Dieses ist wie folgt definiert.

geometrischer Mittelwert:

$$\bar{x}_{\text{geom}} = \sqrt[n]{\prod_{i=1}^n x_i} \quad (3-15)$$

Die zugehörige Unsicherheit ist die geometrische Standardabweichung.

geometrische Standardabweichung:

$$s_{\text{geom}} = \exp \left(\sqrt{\frac{1}{n-1} \sum_{i=1}^n (\ln(x_i) - \ln(\bar{x}_{\text{geom}}))^2} \right) \quad (3-16)$$

Wenn die Anzahl n der Werte x_i groß genug ist, kann für die Häufigkeitsverteilung eine logarithmische Normalverteilung angenommen werden.

Indirekte Messung einer Messgröße

Es kommt häufig vor, dass eine Messgröße nicht direkt gemessen werden kann, sondern durch eine Zusammenhangsvorschrift von anderen direkt messbaren Größen ermittelt werden muss. Für die mathematische Verknüpfung der Messgröße y mit den Eingangsgrößen x_i gilt folgende Beziehung:

$$y = F(x_1, \dots, x_n) \quad (3-17)$$

Die Messunsicherheit lässt sich nach [Sti10] durch die Gaußsche Varianzfortpflanzung berechnen:

$$u^2(y) = \sum_{i=1}^n \left(\frac{\partial F}{\partial x_i} \right)^2 u^2(x_i) \quad (3-18)$$

Konformitätskriterium

Da in dieser Arbeit zwei verschiedene Werte für eine Probenahme fläche verglichen werden, ist es notwendig ein Kriterium festzulegen, das entscheidet, ob die beiden Messergebnisse unter Berücksichtigung ihrer Unsicherheiten miteinander verträglich sind. Hier wurde das Entscheidungskriterium aus [Wei99] verwendet, welches auf der Bayes-Statistik basiert. Falls die Ungleichung

$$|x_1 - x_2| \leq \beta \cdot \sqrt{u^2(x_1) + u^2(x_2)} \quad (3-19)$$

erfüllt ist, kann davon ausgegangen werden, dass die Messwerte verträglich sind. Um ein genügend scharfes Kriterium zu erhalten wurde $\beta = \sqrt{2}$ gewählt.

Test auf Normalverteilung und logarithmische Normalverteilung

Um zu überprüfen, ob sich mehrere ermittelte Messwerte durch eine Normalverteilung beschreiben lassen, wurde der Shapiro-Wilk-Test verwendet, da dieser bereits bei einem geringen Stichprobenumfang anwendbar ist. Durchgeführt wurde er mit dem Programm OriginPro9.1 (Demoversion), wobei $\alpha = 0,05$ gewählt wurde. Sollte die Annahme einer Normalverteilung nicht zurückgewiesen werden können, lässt das vermuten, dass die Zufallsgrößen additiv zusammenhängen. Wenn man die Messwerte logarithmiert, lässt sich ebenfalls überprüfen, ob eine logarithmische Normalverteilung vorliegt. Kann diese Annahme nicht zurückgewiesen werden, ist zu vermuten, dass die Zufallsgrößen multiplikativ zusammenhängen.

Fehler 1. und 2. Art

Es gibt zwei verschiedene Arten von Fehler. Zum einen kann angenommen werden, dass eine Probe einen Beitrag zur Messung hat, obwohl dem nicht so ist (Fehler 1. Art). Hierbei beträgt die Irrtumswahrscheinlichkeit α . Zum anderen kann angenommen werden, dass eine Probe keinen Beitrag zur Messung hat, obwohl dem doch so ist (Fehler 2. Art). Die Irrtumswahrscheinlichkeit hier beträgt β .

3.6 Ermittlung der spezifischen Aktivität

Da die untersuchten Proben alle unterschiedliche Massen aufweisen und um trotzdem vergleichbare Messwerte zu erhalten, wird die spezifische Aktivität ermittelt. Sie gibt die Aktivität der einzelnen Radionuklide bezogen auf die Masse der aufbereiteten Proben in Bq/kg an. Um die spezifische Aktivität ermitteln zu können, wird mit dem Programm „FitzPeaks“ die Nettofläche und deren Unsicherheit der jeweiligen Energielinien mittels Flächenintegration bestimmt. Verfügt ein Radionuklid über mehrere Gammalinien wird die gesamte spezifische Aktivität über den Mittelwert dieser Linien berechnet. Weist ein Nuklid keine eigene Gammalinie auf oder ist diese nicht zur Auswertung verwertbar, wird die spezifische Aktivität dieses Nuklids über den gewichteten Mittelwert der spezifischen Aktivitäten der Tochternuklide ermittelt. Das war jedoch nur für die Nuklide möglich, zwischen denen ein säkulares Gleichgewicht besteht.

Ungestörte Linien

Zuerst wird die Nettozählrate r_n des jeweiligen Peaks bestimmt. Dabei passt „FitzPeaks“ automatisch eine Gaußkurve an. Die zugehörige Formel lautet:

$$r_n = r_b - r_0 = \frac{n_b}{t_m} - \frac{n_0}{t_0} \quad (3-20)$$

Dabei ist r_b die Bruttozählrate und r_0 die Nullzählrate. n_b beschreibt die Bruttocounts und n_0 die Nullcounts. t_m entspricht der Livetime (Messzeit mit subtrahierter Detektortotzeit) der durchgeführten Messung, wohingegen t_0 der Livetime der Null-effektmessung entspricht. n_b und n_0 entsprechen den zugehörigen Zählraten.

Die Unsicherheit der ermittelten Nettozählraten ergeben sich mit:

$$u(r_n) = \sqrt{\frac{u^2(n_b)}{t_m^2} + \frac{u^2(n_0)}{t_0^2}} \quad (3-21)$$

Dabei beschreibt $u(r_n)$ die Unsicherheit der Nettozählrate, $u(n_b)$ die Unsicherheit der Bruttocounts und $u(n_0)$ die Unsicherheit der Nettocounts.

Da es bei einigen Radionukliden verschiedene Möglichkeiten des Zerfalls gibt, ist die Emissionswahrscheinlichkeit p eine wichtige Größe, welche angibt, mit welcher Wahrscheinlichkeit das entsprechende Gammaquant ausgesendet wird.

Die spezifische Aktivität lässt sich mit folgender Formel bestimmen:

$$a = \frac{k_s}{m \cdot \varepsilon \cdot p} \cdot r_n = w \cdot r_n \quad (3-22)$$

Dabei gibt m die Masse der zu messenden Probe an, ε gibt die Efficiency an, p beschreibt die Emissionswahrscheinlichkeit. Der Summenkorrekturfaktor k_s korrigiert den Fall, dass ein Radionuklid beim Zerfall zwei Gammalinien erzeugt, die gleichzeitig gemessen und aufsummiert werden. Der Faktor w wird wie folgt definiert:

$$w = \frac{k_s}{m \cdot \varepsilon \cdot p} \quad (3-23)$$

Die zugehörige Unsicherheit ergibt sich aus:

$$u(a) = \sqrt{r_n^2 \cdot u^2(w) + w^2 \cdot u^2(r_n)} \quad (3-24)$$

$u(r_n)$ entspricht der Unsicherheit der Nettozählrate und wird vom Programm „FitzPeaks“ mit angegeben. Für $u^2(w)$ gilt:

$$u^2(w) = u^2(k_s) + u^2(m) + u^2(\varepsilon) + u^2(p) \quad (3-25)$$

Die Unsicherheit des Summenkorrekturfaktors $u(k_s)$ wird mit 10% angegeben, sofern dieser ungleich eins ist. Bei eins ist keine Korrektur nötig.

Die Unsicherheit der Masse $u(m)$ ist abhängig von der Unsicherheit der Waage. Zum Wiegen der Proben wurde die Waage KERN EG-2200-2NM verwendet.

Unsicherheitsfaktoren für die Masse sind die Unsicherheit der Waage sowie die Unvollständigkeit des Trocknungsprozesses. Deshalb wird für die Masse eine Unsicherheit von $u(m) = 0,5 \text{ g}$ angenommen.

Für die Unsicherheit der Efficiency $u(\varepsilon)$ wird bei Werten unter 100 keV eine Unsicherheit von 10 % festgelegt, bei Werten zwischen 100 keV und 200 keV von 7 % und bei Werten über 200 keV von 5 %.

Die Unsicherheit der Emissionswahrscheinlichkeiten $u(p)$ entsprechen den Angaben in [SS98].

Gestörte Linien

Eine Linie gilt dann als gestört, wenn sie mit einer anderen Linie so dicht beieinander liegt, dass der Abstand das Auflösungsvermögen des Detektors unterschreitet. Die Berechnung der spezifischen Aktivität von gestörten Linien a_c stellt sich etwas komplizierter dar. Sie kann über die Formel

$$\begin{aligned}
 a_c &= w \cdot \left(\left(\frac{n_b}{t_m} - \frac{n_0}{t_0} \right) - \frac{n_{n'}}{t_m} \right) \\
 &= w \cdot \left(\left(\frac{n_b}{t_m} - \frac{n_0}{t_0} \right) - \frac{a' \cdot t_m}{w'} \right) \\
 &= w \cdot \left(\left(\frac{n_b}{t_m} - \frac{n_0}{t_0} \right) - \frac{w}{w'} \cdot a' \right) \\
 &= a - \frac{w}{w'} \cdot a'
 \end{aligned} \tag{3-26}$$

bestimmt werden. Dabei wird der Einfluss der Störlinie von der Linie, die betrachtet werden soll, abgezogen. a' entspricht der spezifischen Aktivität des Radionuklids mit Einbezug der Störlinie, $n_{n'}$ gibt die Nettoimpulszahl der Störlinie an und w' beschreibt den gleichen Faktor wie in 3-22, allerdings unter Berücksichtigung der Störlinie. Für die zugehörige Unsicherheit $u(a_c)$ gilt:

$$\begin{aligned}
 u(a_c) &= \sqrt{u^2(a) + u^2\left(\frac{w}{w'} \cdot a\right)} \\
 &= \sqrt{r_n^2 \cdot u^2(w) + w^2 \cdot u^2(r_n) + u^2\left(\frac{w}{w'} \cdot a'\right)}
 \end{aligned} \tag{3-27}$$

3.7 Charakteristische Grenzen

3.7.1 Erkennungsgrenze

Unter Berücksichtigung des Fehlers 1. Art kann angenommen werden, dass, wenn die spezifische Aktivität die Erkennungsgrenze überschreitet, das entsprechende Radionuklid in der untersuchten Probe enthalten ist. Die Erkennungsgrenze a^* von ungestörten Gammalinien wird durch folgende Formel beschrieben:

$$a^* = k_{1-\alpha} \cdot u(0) = k_{1-\alpha} \cdot w \cdot u(r_n) = k_{1-\alpha} \cdot w \cdot \sqrt{\frac{u^2(n_b)}{t_b^2} + \frac{u^2(n_0)}{t_0^2}} \quad (3-28)$$

$k_{1-\alpha}$ entspricht den Quantilen der Standardnormalverteilung und wurde hier gleich 1,65 gesetzt, was einem Fehler von 5 % entspricht.

Für gestörte Gammalinien gilt die folgende Formel für die Erkennungsgrenze a_c^* :

$$a_c^* = k \cdot \sqrt{\left(\frac{a'}{w}\right)^2 \cdot u^2(w) + w^2 \cdot u^2(r_n) + u^2\left(\frac{w}{w'} \cdot a'\right)} \quad (3-29)$$

3.7.2 Nachweisgrenze

Unter Berücksichtigung des Fehlers 2. Art kann ein Nuklid als nachgewiesen angesehen werden, wenn dessen ermittelte Aktivität die Nachweisgrenze überschreitet. Für ungestörte Gammalinien lässt sich die Nachweisgrenze $a^\#$ mit folgender Formel ermitteln:

$$\begin{aligned} a^\# &= a^* + k_{1-\beta} \cdot u(a^\#) \\ &= a^* + k_{1-\beta} \cdot \sqrt{\left(\frac{a^\# \cdot u(w)}{w}\right)^2 + w^2 \cdot u^2(r_n)} \\ &= a^* + k_{1-\beta} \cdot \sqrt{\left(\frac{a^\# \cdot u(w)}{w}\right)^2 + \left(\frac{a^*}{k_{1-\alpha}}\right)^2} \end{aligned} \quad (3-30)$$

Hiebei entspricht $k_{1-\beta}$ ebenfalls den Quantilen der Standardnormalverteilung und wurde auch hier gleich 1,65 gesetzt, was auch einem Fehler von 5 % entspricht.

Weiterhin ergibt sich:

$$a^\# = \frac{2 \cdot a^*}{1 - \left(k \cdot \frac{u(w)}{w}\right)^2} \quad (3-31)$$

Für gestörte Gammalinien gilt für die Nachweisgrenze $a_c^\#$:

$$a_c^\# = 2 \cdot \frac{a_c^* + \frac{1}{w \cdot w} \cdot a' \cdot k^2 \cdot u_{\text{rel}}^2(w)}{1 - k^2 \cdot \left(\frac{u(w)}{w}\right)^2} \quad (3-32)$$

Die Berechnung der Messunsicherheiten erfolgte entsprechend der DIN ISO 11929. Die charakteristischen Grenzen wurden gemäß Guide to the Expression of Uncertainty in Measurement (GUM, corrected Version 1995) berechnet.

3.8 Qualitätssicherung

Zur Validierung des Messverfahrens wurde eine unbekannte des Projektes von 2008 gemessen und sollte anhand der erhaltenen Messergebnisse identifiziert werden. Die Testprobe wurde als T02A identifiziert. Alle Werten waren nach Anwendung des Konformitätskriteriums mit den vorher ermittelten verträglich. Folglich kann davon ausgegangen werden, dass das Messverfahren ordnungsgemäß funktioniert.

4 Untersuchung von Umweltproben mittels Gamma-Spektrometrie

4.1 Die Probenahme

4.1.1 Wasser- und Sedimentproben

Teil dieser Bachelorarbeit war die Teilnahme an zwei Probenahmefahrten zur Entnahme von Wasser- und Sedimentproben. Diese fanden vom 14.11.2013 bis zum 17.11.2013 und vom 19.11.2013 bis zum 23.11.2013 statt. Während der ersten Fahrt wurden im Bereich zwischen Waldenburg und Zwickau Proben genommen, bei der zweiten Fahrt lag das untersuchte Gebiet zwischen Grimma und Bad Döben. Bei den Probenahmefahrten stand das Erlernen der Probenahme im Feld einschließlich der Feldanalytik im Vordergrund. Als Teil dieser Bachelorarbeit soll das Vorgehen daher im Folgenden kurz dargestellt werden. Eine detaillierte Darstellung der Probenahmen ist im Anhang im Bericht „Bericht Probenahme und Feldanalytik, Sediment und Wasser“ zu finden. Die hierbei genommenen Wasser- und Sedimentproben sind nicht Bestandteil dieser Auswertung. Die Entnahme der in dieser Arbeit untersuchten Bodenproben erfolgte bereits zu einem früheren Zeitpunkt.

Die Ergebnisse der aktuellen Probenahme sollen den Ergebnissen früherer Probenahmen gegenübergestellt werden. Daher erfolgte die Probenahme in enger Anlehnung an die von 2008. Als Orientierung für die Probenahme dienten die Messanleitungen des BMU. Diese umfassen:

- Meßanleitungen für die Überwachung der Radioaktivität in Oberflächenwasser [BMU106]
- Meßanleitungen für die Überwachung der Radioaktivität in Sediment [BMU206].
- Meßanleitungen für die Überwachung der bergbaubedingten Radioaktivität in Oberflächenwasser [BMU306]
- Meßanleitungen für die Überwachung der bergbaubedingten Radioaktivität in Sediment [BMU406]

Bei der Auswahl der Probenahmestellen wurde eine möglichst hohe Übereinstimmung mit den Stellen von 2008 angestrebt. Dabei mussten Änderungen des Geländes und die Zugänglichkeit der Stellen berücksichtigt werden. Die Probenahmestellen sind in Abbildung 11 dargestellt.

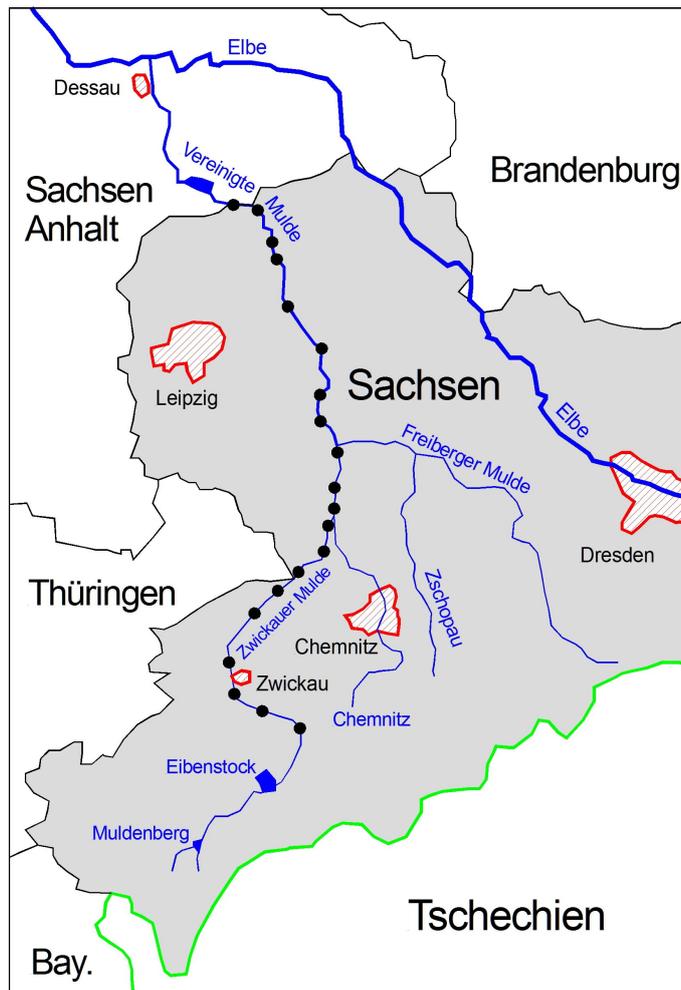


Abbildung 11: Probenahmestellen der Wasser- und Sedimentproben

Wasserproben

Bei der Entnahme der Wasserproben wurde möglichst Wasser aus der Flussmitte in mittlerer Tiefe entnommen. Das Probenahmenvolumen umfasste zwei 1-Liter-Kautexflaschen. Eine Flasche dient als Rückstellprobe für mögliche spätere Messungen, wohingegen ein Teil der anderen Kautexflasche zur sofortigen Feldanalytik verwendet wurde. Dabei umfasst die Feldanalytik folgende Messungen:

- Lufttemperatur
- Wassertemperatur

- Redoxpotential
- pH-Wert
- Leitfähigkeit
- Nitratgehalt
- Phosphatgehalt
- Carbonatgehalt
- Sulfatgehalt.

Sedimentproben

Es wurde das frische Oberflächensediment (obere 5 Zentimeter), welches mit dem fließenden Wasser in Kontakt steht, entnommen. Um eine möglichst repräsentative Sedimentprobe zu erhalten, wurden mit einem Schöpflöffel, der an einem 1,40 Meter langen Holzstab befestigt war, kleine Mengen Sediment von möglichst vielen verschiedenen Stellen des zu beprobenden Flussabschnittes gesammelt. Vor allem bei Flussabschnitten mit starker Strömung musste auf natürliche Sedimentfallen zurückgegriffen werden, da sich im Gegensatz zu den offenen Bereichen die feinen Sedimente hier gesammelt haben. Das Probenahmenvolumen umfasste zwei 1-Liter-Kautexflaschen und zusätzlich etwa zwei große Hände Sediment für die Feldanalytik vor Ort. Die umfasste die Messungen folgender Werte:

- Redoxpotential
- pH-Wert
- Leitfähigkeit
- Nitratgehalt.

4.1.2 Bodenproben

Die Probenahme der in dieser Arbeit untersuchten Böden fand nicht im Rahmen dieser Arbeit statt, soll hier aber ebenfalls vorgestellt werden. Die Probenahmen erfolgten während drei Fahrten im Oktober 2013.

Zum Verständnis ist hier anzumerken, dass zwischen Testfläche und Probenahme-
fläche zu unterscheiden ist. Als Testflächen werden diejenigen bezeichnet, welche im Rahmen des Auenbödenprojekts von 2008 anhand der entsprechenden Kriterien (Fläche größer als ein Hektar, regelmäßig wiederkehrende Überflutungshöhe von

0,5 bis 2,0 Metern) ausgewählt wurden. Als Probenahme­flächen werden die Teil­flächen bezeichnet, auf denen die Proben tatsächlich genommen wurden. Um die Ergebnisse der aktuellen Probenahme den Ergebnissen aus früheren Probenahmen gegenüberstellen zu können, erfolgte die Probenahme in enger Anlehnung an die von 2008. Die Messanleitungen des BMU dienen dabei als Orientierung. Hierzu wurden folgende Anleitungen einbezogen:

- Meßanleitungen für die Überwachung der Radioaktivität in Boden [BMU506]
- Meßanleitungen für die Überwachung der bergbaubedingten Radioaktivität in Boden [BMU606].

Gemäß der BMU-Anleitungen wurde zwischen Grünlandflächen (GL) und Ackerlandflächen (AL) unterschieden.

Auf den Grünlandflächen wurde eine Probenahme­fläche von 45 Metern Breite und 90 Metern Länge aufgespannt, was einer Fläche von 0,405 Hektar entspricht. Mit einem Bohrstock der Wandstärke 2 Millimeter und einem Innendurchmesser von 3,5 Zentimetern wurden 40 Einstiche mit jeweils 10 Zentimetern Tiefe vorgenommen. Die Verteilung dieser Einstiche erfolgte so, dass 4 Reihen mit je 15 Metern Abstand gebildet wurden und pro Reihe 10 Einstiche in 10 Meter Abstand erfolgten. Das Verfahren konnte auf Testfläche T13 jedoch nicht angewendet werden, da sich durch das Hochwasser große Mengen Kies und Steine abgelagert hatten. Diese Situation stellt Abbildung 12 dar. Es war nicht möglich, Einstiche mit dem Bohrer vorzunehmen. Alternativ wurden die Bodenproben mit einer Handschaufel genommen.



Abbildung 12: Ablagerung von Kies und grobem Sediment auf Testfläche T13

Bei den Ackerlandflächen wurde eine Probenahme­fläche von 0,540 Hektar auf­ge­spannt, die 120 Meter lang und 45 Meter breit war. Hier wurden 20 Einstiche mit einer Tiefe von 30 Zentimetern vorgenommen. Der verwendete Bohrstock hatte eine Wandstärke von 2 Millimetern und einen Innendurchmesser von 2,0 Zentimetern. Wie bei den Grünlandflächen wurden ebenfalls 4 Reihen im 15 Meter Abstand gebildet. Hier erfolgten jedoch pro Reihe nur 5 Einstiche im Abstand von 30 Metern. Nach dem die Bodenproben genommen wurden, erfolgte eine Feldanalytik, welche folgende Messungen umfasste:

- Lufttemperatur
- pH-Wert
- Leitfähigkeit
- Nitratgehalt
- Phosphatgehalt.

In Abbildung 13 sind die Probenahmestellen gekennzeichnet, die in dieser Arbeit ausgewertet wurden.

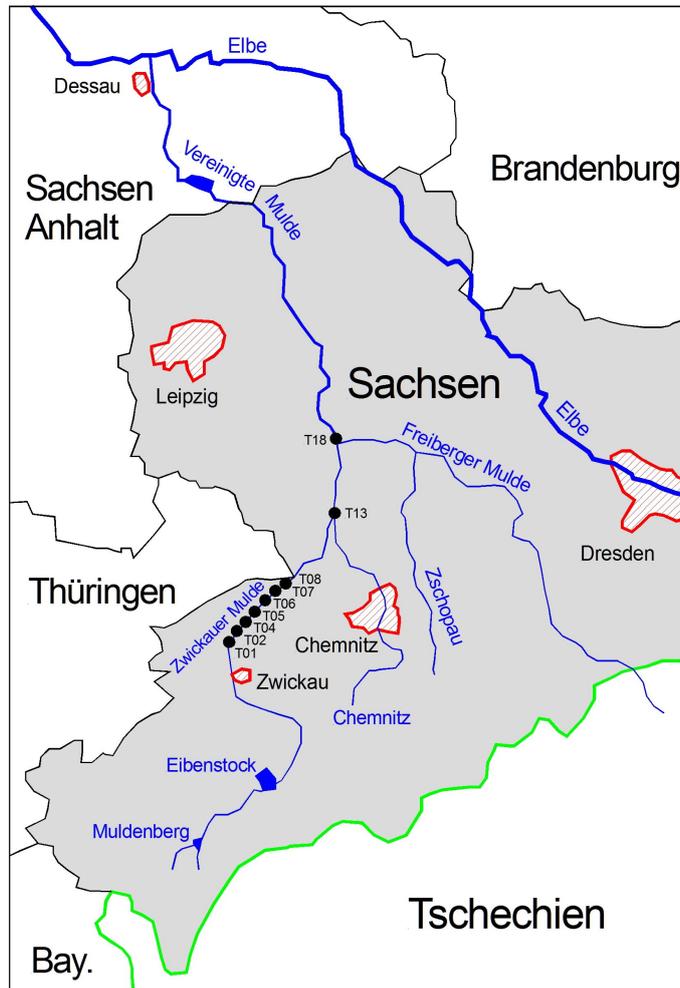


Abbildung 13: Probenahmestellen der untersuchten Bodenproben

4.2 Aufbereitung der Proben

Die Bodenproben wurden in je eine große Aluminiumschale gefüllt. Die einzelnen Bohrkerninhalte wurden mit der Hand zerbröseln. Gleichzeitig wurde ein Teil des Skeletts entfernt. Zum Bodenskelett zählen Steine über 2 mm Durchmesser und organische Bestandteile wie Wurzelreste und nicht vollständig zersetztes Holz. Die Proben wurden homogenisiert, gewogen und bei 105 Grad Celsius in den Trockenschrank gestellt. Die Trocknung erfolgte so lange, bis die Proben massenkonstant waren. Anschließend wurden sie in Plastiktüten gefüllt. Diese wurden zugeknüpft, damit möglichst keine neue Feuchte durch die Luft eingetragen wird. Bei der weiteren Verarbeitung wurden die einzelnen Proben zunächst durch ein Sieb mit 2

Millimetern Maschenweite gesiebt. Der Anteil, welcher nicht durch das Sieb passte, wurde gemörsert und erneut gesiebt. Dieser Vorgang wurde so oft durchgeführt, bis alle Aggregate über 2 Millimetern zerstört und die gesamte Probe gesiebt war. Parallel wurden die Bodenskelettanteile mit einer Pinzette entfernt und in einer Plastiktüte aufbewahrt. Im nächsten Arbeitsschritt wurde analog vorgegangen, allerdings mit einem Sieb von 1 Millimeter Maschenweite. Die Steinchen, die nicht durch das Sieb passten, wurden der Probe jedoch wieder zugeführt und nur der Organikanteil wurde entfernt. Nach dem Sieben wurden Marinellgefäße mit etwa 557 Milliliter Inhalt [Bir09] mit dem Probenmaterial befüllt. Das Einfüllen erfolgte dabei in mehreren Schritten bis zur unteren Kante, wobei immer wieder mit einem Metallstab gegen das Gefäß geklopft wurde, um eine möglichst homogene Schüttdichte zu erreichen. Zur Überprüfung der einheitlichen Füllhöhe der Marinellgefäße wurde ein Metallspatel verwendet. Nach dem Befüllen wurde auf die untere Kante der Marinellgefäße eine extra zugeschnittene Plastikfolie geklebt. Als Kleber diente Montagekleber „Bombenfest (PU-Hybrid-Kleber)“ der Firma Lugato. Das Verkleben der Proben war nötig, um gegen Verkippen zu schützen und eine Anreicherung von Radon im oberen Gefäßraum zu minimieren. 3 Tage später wurden die Deckel der Gefäße mit dem selben Montagekleber aufgeklebt. Die fertigen Proben wurden vor der Messung 3 Wochen stehen gelassen, damit sich ein Gleichgewicht innerhalb der Uran-Radium-Zerfallsreihe einstellen konnte (siehe Abschnitt 2.6).

4.3 Auswertung

Teil dieser Arbeit ist die Untersuchung von neun Bodenproben entlang der Zwickauer Mulde und einer Bodenprobe entlang der Vereinigten Mulde.

Tabelle 2: Angegeben sind die Testflächen mit den entsprechenden Flusskilometern. Zusätzlich erfolgte eine Zuordnung zu den Testflächen aus 2008 sowie eine Angabe der entsprechenden Abweichung.

Testfläche			Flusskilometer	Zuordnung	Abweichung in km
T01	ZM	GL	89	T01B	-0,07
T02	ZM	GL	91	T02A	-0,01
T04	ZM	AL	103	T04B	0,32
T05A	ZM	AL	103	T05A	0,09
T05B	ZM	GL	105	T05B	-0,03
T06	ZM	AL	107	T06A	0,03
T07	ZM	AL	108	T07A	0,24
T08	ZM	AL	110	T08A	-0,1
T13	ZM	GL	141	T13A	-0,04
T18	VM	AL	166	T18A, verschoben	-0,3

In Tabelle 2 sind die wichtigsten Kenndaten der einzelnen Probenahmestellen dargestellt. Eine Übersicht über die Lage gibt Abbildung 13 aus dem vorherigen Abschnitt. Da für das Muldesystem keine offizielle Kilometrierung vorliegt, wurde im Projekt von 2008 [Bis12] eine eigene Kilometrierung erstellt. Nullpunkt dieser Kilometrierung ist die Mitte des Dammes der Talsperre Muldenberg.

In der Auswertung werden verschiedene Radionuklide der drei natürlichen Zerfallsreihen bestimmt und diskutiert. Aus der Uran-Radium-Reihe werden die Nuklide U-238, Ra-226 und Pb-210 betrachtet, aus der Uran-Actinium-Reihe U-235 und Ac-227 sowie Ra-228 und Th-228 aus der Thorium-Zerfallsreihe. Th-230 wird nur teilweise betrachtet, da es nur auf den Testflächen T02 und T05B nachgewiesen werden konnte. Auf den anderen Testflächen wurde Th-230 entweder nicht festgestellt oder der Wert lag unter der Nachweisgrenze. Ac-227 konnte auf den Testflächen T04, T05B, T08 und T18 nicht nachgewiesen werden. Zusätzlich werden die Radionuklide Cs-137 und K-40 separat diskutiert.

Bei der Auswertung der Messergebnisse wurde zwischen Grünland und Ackerland unterschieden, da dieses bei den Vergleichswerten der vorherigen Messungen ebenfalls der Fall war. Eine Besonderheit stellt die Testfläche 18 dar, als einziger Vertreter der Vereinigten Mulde. Sie wurde in die allgemeinen Betrachtungen nicht mit einbezogen, sondern wird separat beschrieben.

Im Anhang ist in Tabelle 15 eine Übersicht über die ermittelten spezifischen Aktivitäten der einzelnen betrachteten Radionuklide zu finden.

4.3.1 Test auf Normalverteilung und logarithmische Normalverteilung

Die Messwerte wurden mit dem Shapiro-Wilk-Test auf Normalverteilung und log-Normalverteilung überprüft. Dieses erfolgte mit dem Programm OriginPro 9.1 (Demoversion). Der Test auf logarithmische Normalverteilung erfolgte gemäß [Sti10] mit zuvor logarithmierten Werten.

Bei dem Test auf Normalverteilung aller Messwerte der Proben entlang Zwickauer Mulde kann eine Normalverteilung nicht abgelehnt werden, außer bei Cs-137. Werden nur die Werte der Grünlandflächen betrachtet, kann eine Normalverteilung ebenfalls nicht abgelehnt werden, ausgenommen K-40. Betrachtet man nur die Ackerlandproben kann für alle betrachteten Radionuklide eine Normalverteilung nicht abgelehnt werden. Somit kann für alle Messwerte bis auf K-40 der arithmetische Mittelwert verwendet werden.

Den spezifischen Aktivitäten aller Proben entlang der Zwickauer Mulde kann für K-40 keine logarithmische Normalverteilung zugrunde gelegt werden. Bei allen anderen Radionukliden kann dieses hingegen nicht abgelehnt werden. Ebenso ergibt sich bei Betrachtung der Grünlandflächen, dass eine logarithmische Normalverteilung nicht abgelehnt werden kann, außer für K-40. Betrachtet man hingegen nur die Ackerlandflächen, kann eine logarithmische Normalverteilung für alle spezifischen Aktivitäten der betrachteten Radionuklide nicht abgelehnt werden.

Die obigen Ergebnisse bedeuten, dass die Einflussfaktoren für die spezifischen Aktivitäten sowohl additiv als auch multiplikativ zusammenhängen. Bei Cs-137 deutet sich an, dass bei Betrachtung aller Messwerte ein multiplikativer Zusammenhang zwischen den Einflussfaktoren herrscht. Umgekehrt deutet es sich an, dass die Einflussfaktoren der gesamten Messwerte von K-40 additiv zusammenspielen. Betrachtet man nur die Werte für die Grünlandflächen, scheinen die Einflussfaktoren für die spezifische Aktivität von K-40 weder in einem additiven noch multiplikativen Zusammenhang zu stehen.

Tabelle 3: Dargestellt sind die arithmetischen Mittelwerte (arith. MW) und geometrischen Mittelwerte (geom. MW) der einzelnen Radionuklide mit ihren Standardabweichungen (SD = Standardabweichung, GSD = geometrische Standardabweichung) entlang der Zwickauer Mulde. Die Werte sind in der Einheit Bq/kg angegeben.

Radionuklid	n	arith. MW	SD	geom. MW	GSD
U-238	9	226,16	120,37	201,46	1,65
Th-230	2	237,61	81,68	230,48	1,42
Ra-226	9	161,15	58,22	152,36	1,42
Pb-210	9	116,58	32,53	112,57	1,33
U-235	9	10,91	4,45	10,20	1,46
Ac-227	6	9,41	2,47	9,16	1,29
Ra-228	9	48,47	6,45	48,11	1,14
Th-228	9	54,90	7,12	54,51	1,13
Cs-137	9	8,04	4,47	7,20	1,60
K-40	9	755,30	74,37	751,73	1,11

Schaut man sich die in Tabelle 3 dargestellten arithmetischen und geometrischen Mittelwerte an, kann man erkennen, dass diese im Rahmen ihrer jeweiligen Unsicherheiten übereinstimmen.

4.3.2 Betrachtung der mittleren Aktivitäten

Um eine Einschätzung zu bekommen, ob die untersuchten Bodenproben belastet sind, ist die Betrachtung von unbelasteten Werten sinnvoll.

Tabelle 4: Mittlere Aktivitäten für die Radionuklide U-238, Ra-226, Pb-210 und Ra-228 für die Zwickauer Mulde sowie verschiedene Referenzwerte für die Hintergrundaktivität. u(a) entspricht der Standardabweichung.

	n	a(U-238) Bq/kg	u(a) Bq/kg	a(Ra-226) Bq/kg	u(a) Bq/kg
Hintergrund					
[Rit08]	60	81	31	80	29
[BGB10]	k.A.	60	k.A.	50	k.A.
Mulde	4	53	10	55	6
Mittelwerte					
ZM	9	208	127	151	64
AL ZM	6	164	54	132	35
AL ZM 08	15	179	53	137	35
GL ZM	3	351	124	219	54
GL ZM 08	5	429	53	231	23

	n	a(Pb-210) Bq/kg	u(a) Bq/kg	a(Ra-228) Bq/kg	u(a) Bq/kg
Hintergrund					
[Rit08]	60	52	18	61	22
[BGB10]	k.A.	50	k.A.	40	k.A.
Mulde	4	63	13	62	19
Mittelwerte					
ZM	9	109	39	48	6
AL ZM	6	99	20	46	4
AL ZM 08	15	113	25	51	4
GL ZM	3	152	19	53	9
GL ZM 08	5	200	41	56	6

Hierzu sind in Tabelle 4 zwei verschiedene Literaturwerte, sowie die im Rahmen der Arbeit von *Bister* ermittelte Hintergrundaktivität für die uranbergbaulich unbelasteten Muldereionen angegeben [Bis12]. Die Literaturwerte beschreiben zum einen die „Werte der spezifischen natürlichen Untergrund-Aktivität“ nach der Berechnungsgrundlage Bergbau [BGB10] sowie den ermittelten Wert „für die kleineren Flußauen des Erzgebirges und Vogtlandes ohne Bergbaueinfluss“ im Rahmen des

Projektes „Radionuklidbelastung von Sedimenten und Auenböden - Datenerfassung, Erstauswertung, Ergebnisdarstellung“ [Rit08].

Zu Erkennen ist, dass die Mittelwerte der spezifischen Aktivitäten der Nuklide der Uran-Radium-Zerfallsreihe im Rahmen der ermittelten Unsicherheiten sowohl über den Literaturwerten, als auch über der Hintergrundaktivität der uranbergbaulich unbelasteten Mulderegion liegen. Die Werte für die Thorium-Reihe, vertreten durch Ra-228, liegen hingegen unter Berücksichtigung der Unsicherheiten im Rahmen des Literaturwertes von Ritzel sowie der für die Region ermittelten Hintergrundaktivität. Es ist zu erkennen, dass die errechneten Werte dicht bei dem Literaturwert BGB liegen. Als uranbergbaulich unbelasteter Aktivitätshintergrund wird im folgenden der des Muldessystems verwendet. [Bis12]

Das Konformitätskriterium auf Grundlage der Bayes-Statistik hat ergeben, dass die Einzelwerte von 2008 und 2013 im Rahmen ihrer Unsicherheiten verträglich sind. Jedoch ist festzustellen, dass alle Mittelwerte von 2013 unter denen von 2008 liegen.

4.3.3 Radiologische Beurteilung

Um eine Einschätzung vornehmen zu können wie die beprobten Böden in Zukunft genutzt werden können, werden die Messergebnisse entsprechend beurteilt. In der Empfehlung „Strahlenschutzgrundsätze für die Nutzung von durch Uranbergbau kontaminierten Flächen zu forst- und landwirtschaftlichen Zwecken sowie als Grünanlage (Parkanlage) und Wohngebiet“ sind von der Strahlenschutzkommission Richtwerte für ebendiese Flächen angegeben [SSK91]. Hierbei wird Ra-226 als Bewertungsgrundlage herangezogen, sofern sich die Uran-Radium-Reihe im säkularen Gleichgewicht befindet. Sollte dieses nicht der Fall sein, wird das Radionuklid mit der höchsten Aktivität zur Beurteilung der radiologischen Belastung verwendet. Es wird folgende Einteilung empfohlen:

1. uneingeschränkte Nutzung der Fläche bei mittleren Aktivitäten unter 200 Bq/kg
2. Nutzung als landwirtschaftliche Grünfläche oder als Forstwirtschaft für mittlere Aktivitäten zwischen 200 und 1000 Bq/kg
3. Prüfung auf Notwendigkeit von Maßnahmen bei mittleren Aktivitäten über 1000 Bq/kg

Die Messwerte haben gezeigt, dass bei den untersuchten Bodenproben kein Gleichgewicht zwischen U-238 und Ra-226 herrscht. Aus diesem Grund erfolgt die Einteilung aufgrund der spezifischen Aktivität von U-238, da diese über den Werten von Ra-226 liegen.

Tabelle 5: Radiologische Beurteilung nach den Kriterien der [SSK91]

Testfl.			a(Ra-226) Bq/kg	u(a) Bq/kg	a(U-238) Bq/kg	u(a) Bq/kg	< 200 Bq/kg	> 200 Bq/kg	> 1000 Bq/kg
ZM	T01	GL	236,65	8,15	454,60	35,69		x	
ZM	T02	GL	252,75	9,03	385,64	33,94		x	
ZM	T13	GL	158,66	5,48	213,00	20,09		x	
ZM	T04	AL	178,04	6,14	242,50	22,60			x
ZM	T05A	AL	106,45	3,74	135,36	16,67	x		
ZM	T05B	AL	135,02	4,62	174,06	13,84	x		
ZM	T06	AL	103,48	3,65	113,00	15,57	x		
ZM	T07	AL	169,29	5,85	208,55	20,52			x
ZM	T08	AL	100,03	3,50	108,72	14,68	x		
VM	T18	AL	55,67	2,04	47,89	9,20	x		

Nach Tabelle 5 fallen alle untersuchten Grünlandflächen in die zweite Kategorie, bei den Ackerlandflächen sind es zwei. Die anderen fünf untersuchten Ackerlandflächen lassen sich der ersten Kategorie zuordnen. Die Nutzung der Ackerlandflächen für den Getreideanbau stellt jedoch eine Besonderheit dar. Aufgrund der Vertriebswege in der heutigen Agrarindustrie ist eine Verdünnung der Radionuklidgehalte anzunehmen. Dadurch verringert sich die mögliche Dosis hin zu einem nicht relevanten Einfluss. Deswegen plant die SSK die Aktivitätsgrenze für den Getreideanbau zu erhöhen. [Bis12] Unter Berücksichtigung dieser möglichen neuen Empfehlung stellen die Ackerlandflächen T04 und T07, welche der zweiten Kategorie zugeordnet wurden, kein Problem dar, da hier fast ausschließlich Getreideanbau betrieben wird. Im Vergleich mit 2008 zeigen sich ähnliche Ergebnisse. Die Einteilung der Testflächen T01, T02, T05, T06, T07, T08 und T18 ist identisch. Die mittlere Aktivität auf der Testfläche T04 hat sich hingegen so stark erhöht, dass sie nicht mehr wie 2008 in die erste sondern in die zweite Kategorie fällt. Auf Testfläche T13 hat sich die mittlere Aktivität hingegen soweit verringert, dass sie nun der zweiten Kategorie zugeordnet werden kann und nicht mehr der dritten Kategorie.

4.3.4 Veränderungen auf den Testflächen

Ein wichtiger Aspekt dieser Arbeit ist der Vergleich der ermittelten spezifischen Radioaktivitäten mit denen aus 2008. Die einzelnen Veränderungen sind in Tabelle 6 dargestellt.

Tabelle 6: Änderung der spezifischen Aktivitäten gegenüber 2008. Dabei bedeutet +, dass eine Erhöhung der spezifischen Aktivität stattgefunden hat. Bei einem - hat sich die spezifische Aktivität des entsprechenden Radionuklids verringert.

Testfläche	U-238	Th-230	Ra-226	Pb-210	U-235	Ac-227
ZM GL						
T01				-		
T02				-		
T13	-		-	-	-	-
ZM AL						
T04			+			
T05A	-		-			
T05B			+			
T06						
T07	-					
T08						
VM AL						
T18	-					

Testfläche	Ra-228	Th-228	Cs-137	K-40
ZM GL				
T01			-	
T02			-	
T13		+	-	-
ZM AL				
T04				
T05A	-	-	-	-
T05B	-	-	-	
T06	-			-
T07			-	-
T08		+		-
VM AL				
T18				-

Nimmt man Th-230 aus der Betrachtung raus, sind etwa 64 % der Messwerte mit denen aus 2008 verträglich. Bei den anderen 36 % liegen überwiegend Verringerungen der spezifischen Aktivitäten der Radionuklide vor. In der Tabelle 6 ist zu erkennen, dass die spezifischen Aktivitäten von Cs-137 und K-40 in den meisten Fällen abgenommen haben. Die Aktivität von Th-228 hat sich auf den Grünlandflächen T01, T13 und auf der Ackerlandfläche T08 erhöht. Auf den Ackerlandflächen T05A und T05B hat die Aktivität abgenommen.

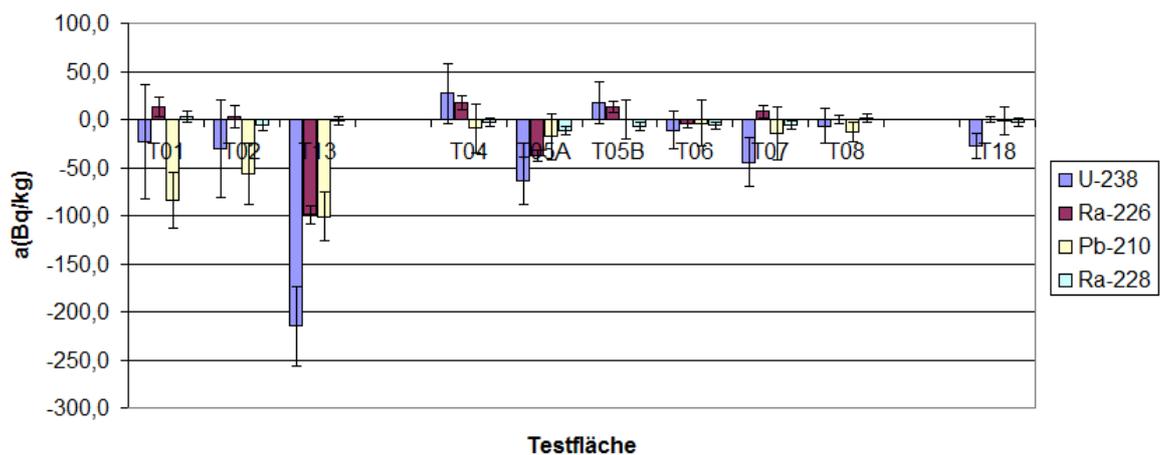


Abbildung 14: Differenz zu 2008 der Verteilung der spezifischen Aktivitäten von U-238, Ra-226, Pb-210 und Ra-228 auf den einzelnen Testflächen

In Abbildung 14 sind die Differenzen der spezifischen Aktivitäten von U-238, Ra-226, Pb-210 und Ra-228 dargestellt. Vor allem auf den Ackerlandflächen weist die spezifische Aktivität von U-238 die größte Veränderung der vier betrachteten Radionuklide auf. Eine Ausnahme stellt Testfläche T08 dar. Hier ist die größte Änderung bei Pb-210 zu finden. Die Aktivität von U-238 hat sich auf allen Flächen bis auf die Testflächen T04 und T05B verringert. Nach Anwendung des Konformitätskriteriums sind nur die U-238-Aktivitäten auf den Testflächen T05A, T07, T13 und T18 nicht mit den Werten aus 2008 verträglich. Die spezifische Aktivität von Ra-226 hat sich auf den Ackerlandflächen T04, T05B und T07 erhöht. Dagegen hat sie sich auf den Grünlandflächen T01 und T13 sowie der Ackerlandfläche T05A verringert. Die Anwendung des Konformitätskriteriums besagt allerdings, dass nur die spezifischen Aktivitäten von den Testflächen T05A, T05B und T06 nicht mit den Messwerten aus 2008 verträglich sind. Die spezifische Aktivität von Pb-210 auf den Grünlandflächen hat überall abgenommen, wohingegen auf den Ackerlandflächen keine Veränderungen erkennbar sind. So besagt auch die Anwendung des Konformitätskriteriums, dass die Werte der Grünlandflächen nicht mit den Ergebnissen aus 2008 verträglich sind. Bei der spezifischen Aktivität von Ra-228 sind in der Abbildung 14 keine deutlichen Abweichungen gegenüber 2008 zu erkennen. Nach der Berechnung mit dem Konformitätskriterium haben sich nur die Ra-228-Aktivitäten auf den Ackerlandflächen T05A, T05B und T06 so verändert, dass sie nicht mehr mit den Werten aus 2008 verträglich sind.

Im Vergleich zu den anderen Testflächen weist die Testfläche T13 eine besonders hohe Abweichung gegenüber den Ergebnissen aus 2008 auf. Die Testfläche zeigte bereits optisch eine deutliche Beeinflussung durch das Hochwasser, was auf Abbildung 12 dargestellt ist. So hatten sich große Mengen Kies und grobes Sediment auf der Fläche abgelagert, was auch eine Änderung der Probennahme erforderlich machte (siehe Abschnitt 4.1.2). Feines Sediment konnte sich nicht ablagern. Radioaktive Stoffe adsorbieren jedoch vorwiegend an feines Sediment. Daher war eine Aktivitätsabnahme zu erwarten, welche auch in den Ergebnissen wieder zu finden ist.

Wie bei der Betrachtung der Mittelwertaktivitäten (siehe Abschnitt 4.3.2) bereits angesprochen, ist für die Mehrzahl der Testflächen eine Aktivitätsabnahme festzustellen. So hat die Aktivität von U-238 und Ra-228 auf 80 % der Testflächen abgenommen. Für Ra-226 ist nur auf 40 % der Testflächen eine Aktivitätsabnahme festzustellen. Hingegen zeigt Pb-210 sogar auf 90 % der Testflächen eine geringere Aktivität.

4.3.5 Bergbaulicher Einfluss

In dieser Arbeit soll zusätzlich zum Einfluss des Hochwassers überprüft werden, ob die untersuchten Flächen noch eine uranbergbauliche Beeinflussung aufweisen. Wie im Abschnitt 2.7 ausführlich dargestellt, lässt sich der Einfluss des Uranbergbaus anhand verschiedener Gleichgewichtssituation untersuchen. Eine Möglichkeit diese darzustellen bieten die im folgenden diskutierten 2-Nuklid-Plots und 3-Nuklid-Plots.

Bei 2-Nuklid-Plots sind die Aktivitäten zweier Radionuklide einer Zerfallsreihe gegeneinander aufgetragen. Dabei spiegelt die Diagonale das radiochemische Gleichgewicht wieder, da im säkularen Gleichgewicht befindliche Nuklide gleiche Aktivitäten aufweisen. Abweichungen von der Diagonalen zeigen somit Störungen des Gleichgewichts an.

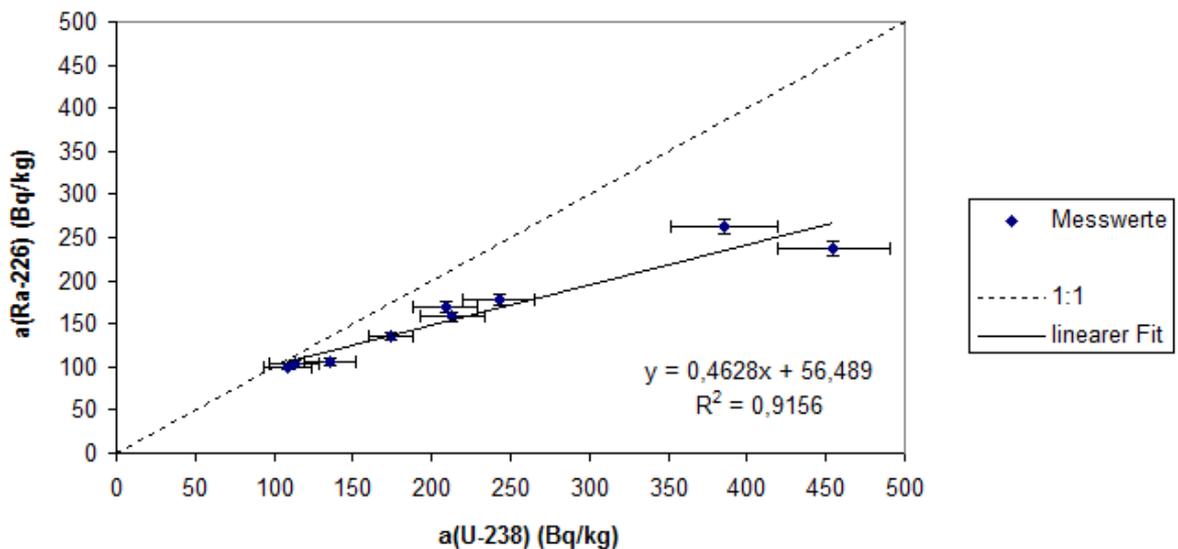


Abbildung 15: 2-Nuklid-Plot der spezifischen Aktivitäten von U-238 und Ra-226

In Abbildung 15 ist die spezifische Aktivität von U-238 gegen die von Ra-226 aufgetragen. Allgemein lässt sich der Trend feststellen, dass die Abweichung vom Gleichgewicht bei höheren Aktivitäten zunimmt. Bei Aktivitäten von 100 Bq/kg bis etwa 150 Bq/kg liegt noch eine recht gute Übereinstimmung mit der Diagonalen vor. Für Werte zwischen 150 Bq/kg und 250 Bq/kg stellt sich ein geringer Uranüberschuss dar. Betrachtet man Aktivitäten zwischen 350 Bq/kg und 450 Bq/kg lässt sich ein deutlicher Uranüberschuss erkennen.

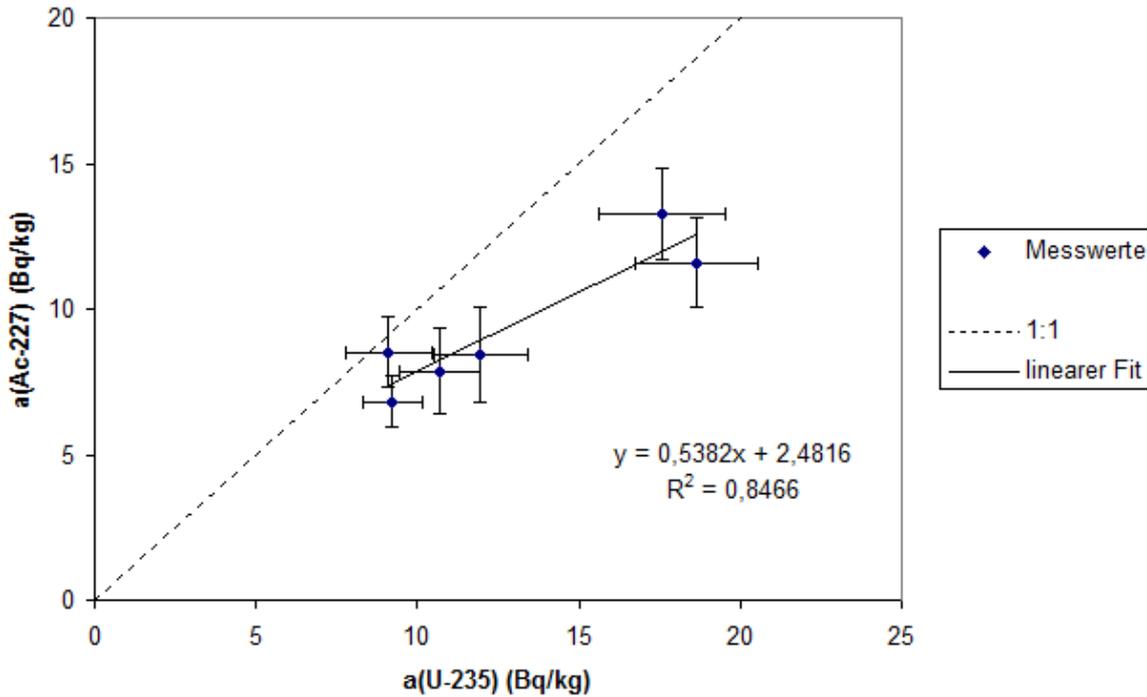


Abbildung 16: 2-Nuklid-Plot der spezifischen Aktivitäten von U-235 und Ac-227

Die Aktivitäten von U-235 und Ac-227 sind in Abbildung 16 dargestellt. Dabei existieren nur Ac-227-Aktivitäten für die Testflächen T01, T02, T04, T05B, T07 und T13. Hier zeigt sich ein ähnliches Bild wie bei dem 2-Nuklid-Plot von U-238 und Ra-226. Beide Diagramme zeigen einen Überschuss des Mutternuklids, der zu höheren Aktivitäten zunimmt. Auch die Steigungen der linearen Fits weisen mit 0,54 und 0,46 ähnliche Werte auf. Auch in den Arbeiten von *Birkhan* [Bir09] und *Stieghorst* [Sti10] wurden für 2008 Ungleichgewichte zugunsten des Urans auf den Testflächen festgestellt. Das analoge Verhalten der Uran-Radium- und Uran-Actinium-Zerfallsreihe ist dahingehend erklärbar, da im Uranerz das natürliche Isotopenverhältnis von U-238, U-235 und U-234 vorherrscht. Das natürliche Aktivitätsverhältnis von U-238 zu U-235 liegt bei 21,7 [Sol10].

Tabelle 7: Aktivitätsverhältnis von U-238 zu U-235

Testfläche	U-238/U-235	Unsicherheit
T01	24,35	3,13
T02	21,92	3,12
T04	20,27	3,09
T05A	18,78	3,72
T05B	18,87	2,41
T06	16,92	3,77
T07	22,89	4,08
T08	15,40	3,47
T13	19,92	2,95
T18	13,89	4,59

In Tabelle 7 sind die Verhältnisse der ermittelten Aktivitäten von U-238 und U-235 der untersuchten Flächen dargestellt. Alle Werte, bis auf die von Testfläche T06, T08 und T18, liegen im Rahmen ihrer Unsicherheit bei 21,7. Insgesamt kann von einer natürlichen Isotopenzusammensetzung ausgegangen werden. Da in Deutschland keine Trennung von U-238 und U-235 erfolgte, entspricht dieses Ergebnis den Erwartungen.

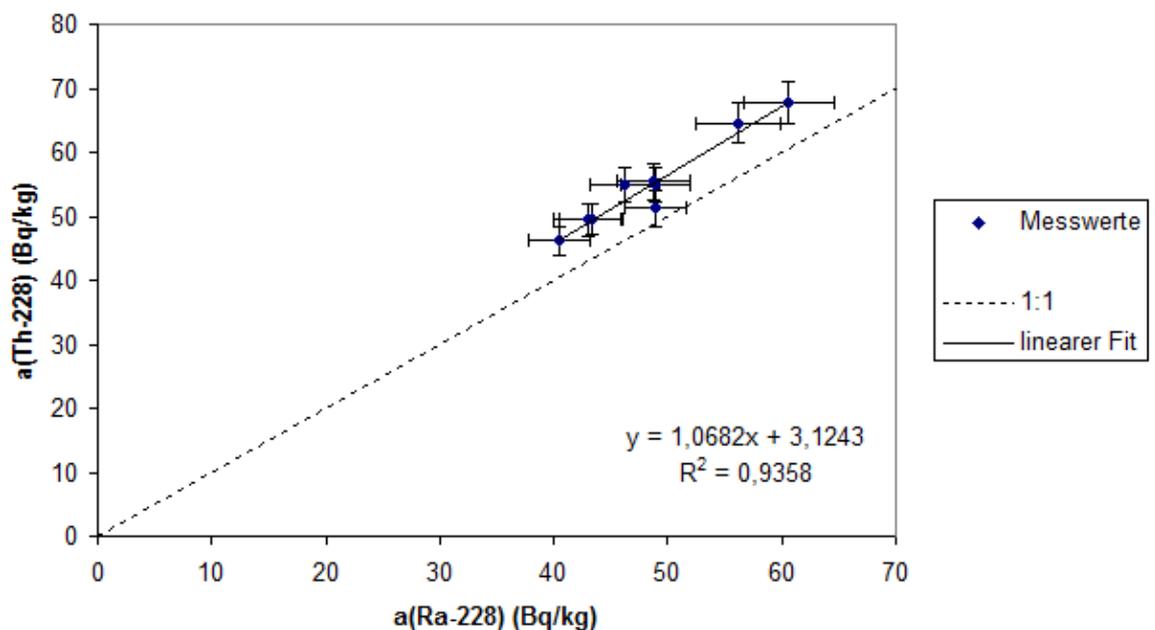


Abbildung 17: 2-Nuklid-Plot der spezifischen Aktivitäten von Ra-228 und Th-228

Das Aktivitätsverhältnis von Ra-228 zu Th-228 ist in Abbildung 17 dargestellt. Die beiden Radionuklide stehen annähernd im Gleichgewicht, wobei ein leichter Th-228-Aktivitätsüberschuss besteht. Der lineare Fit weist eine Steigung von annähernd eins (1,07) auf. Im Vergleich zu den Werten von 2008 zeigt sich, dass sich Ra-228 und Th-228 annähernd in einem radioaktiven Gleichgewicht befanden, wobei ein sehr leichter Überschuss der Th-228-Aktivität festzustellen war. Bei den aktuellen Werten zeigt sich jedoch ein deutlicherer Überschuss der Th-228-Aktivitäten. Ra-228 könnte durch das Hochwasser aufgrund seiner besseren Löslichkeit ausgeschwemmt worden sein, was den höheren Th-228-Überschuss erklären würde.

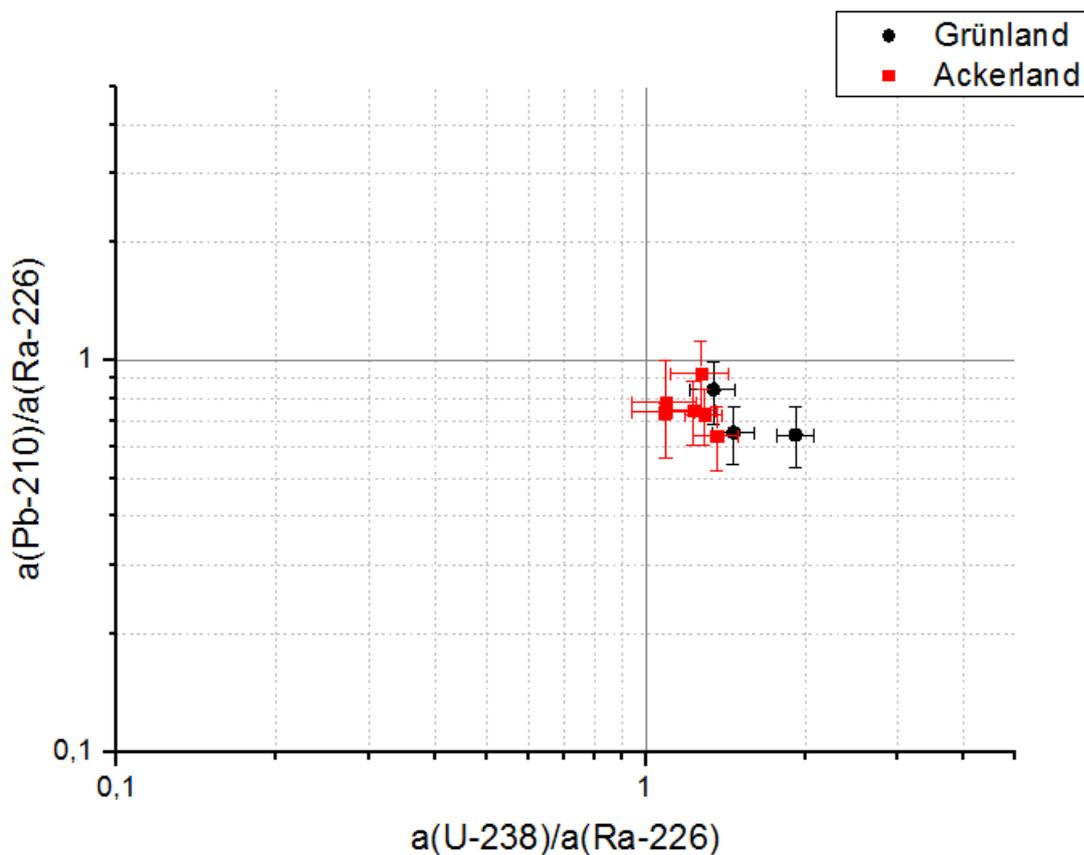


Abbildung 18: 3-Nuklid-Plot der Aktivitätsverhältnisse von U-238, Ra-226 und Pb-210

Der in Abbildung 18 dargestellte 3-Isotopen-Plot von U-238, Ra-226 und Pb-210 zeigt, dass das Aktivitätsverhältnis von U-238 zu Ra-226 größer als eins und das von Pb-210 zu Ra-226 kleiner als eins ist. Das zeigt, dass beide Gleichgewichte gestört sind. Für das Verhältnis von U-238 zu Ra-226 zeigt sich, dass eine etwas größere Störung des Gleichgewichtes auf den Grünlandflächen zu erkennen ist. Gemäß den in Abschnitt 2.7 besprochenen Kriterien deutet dieses daraufhin, dass die untersuchte Region entlang der Zwickauer Mulde noch unter uranbergbaulichem Einfluss steht.

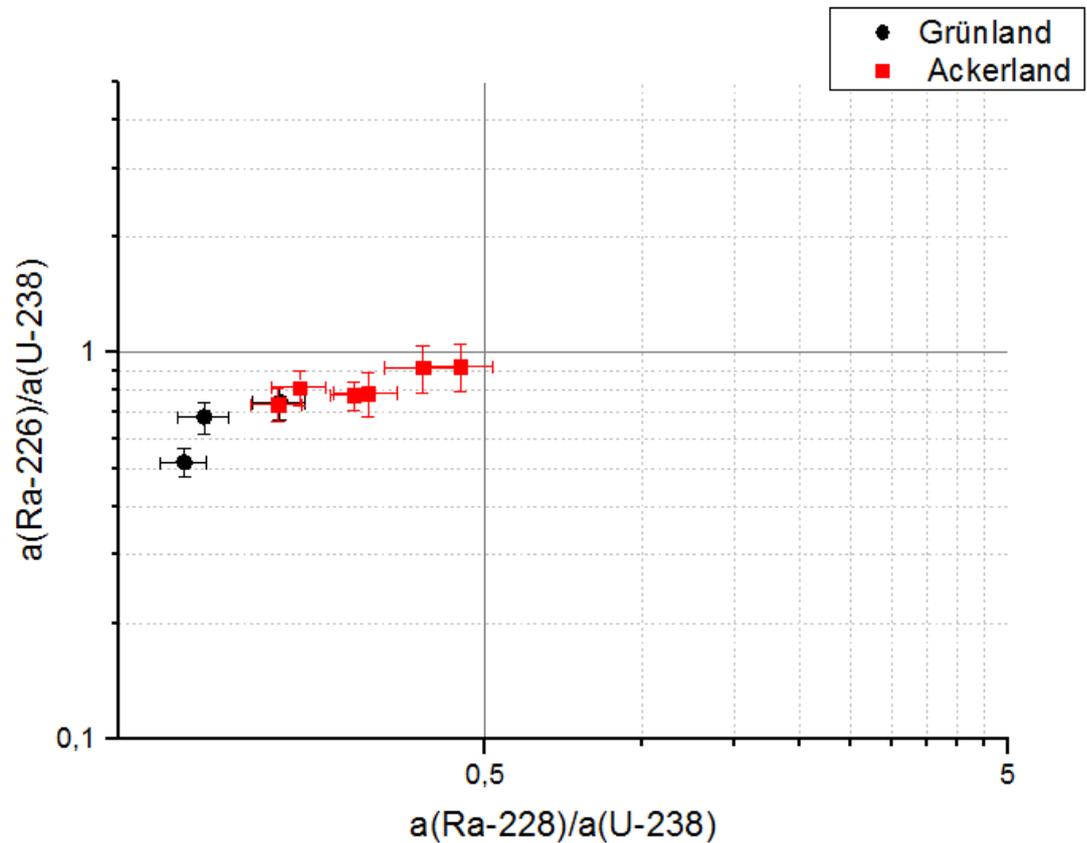


Abbildung 19: 3-Nuklid-Plot der Aktivitätsverhältnisse von U-238, Ra-226 und Ra-228

In Abbildung 19 ist der 3-Isotopen-Plot von U-238, Ra-226 und Ra-228 dargestellt. Man kann sehen, dass die Aktivität von U-238 größer als die von Ra-226 ist und das Aktivitätsverhältnis von Ra-228 zu U-238 kleiner als 0,5 ist. Außerdem deutet sich für beide Aktivitätsverhältnisse eine Unterscheidung von Grün- und Ackerlandflächen an. Die Betrachtung dieser Verhältnisse stützt die Annahme eines uranbergbaulichen Einflusses entlang der Zwickauer Mulde, wobei insbesondere das Aktivitätsverhältnis von Ra-228 zu U-238 kleiner als 0,5 als Nachweis herangezogen werden kann [Mic05].

4.3.6 Verteilung von U-238 und Ra-228 entlang der Zwickauer Mulde

Als nächstes soll die Verteilung der Radionuklide U-238 als Vertreter der Uran-Radium-Zerfallsreihe und Ra-228 als Vertreter der Thorium-Zerfallsreihe entlang des Flusslaufes der Zwickauer Mulde betrachtet werden. Hierzu sind in Abbildung 20 die spezifischen Aktivitäten von U-238 und in Abbildung 21 die Aktivitäten von Ra-228 mit den entsprechenden Flusskilometern der Testflächen dargestellt.

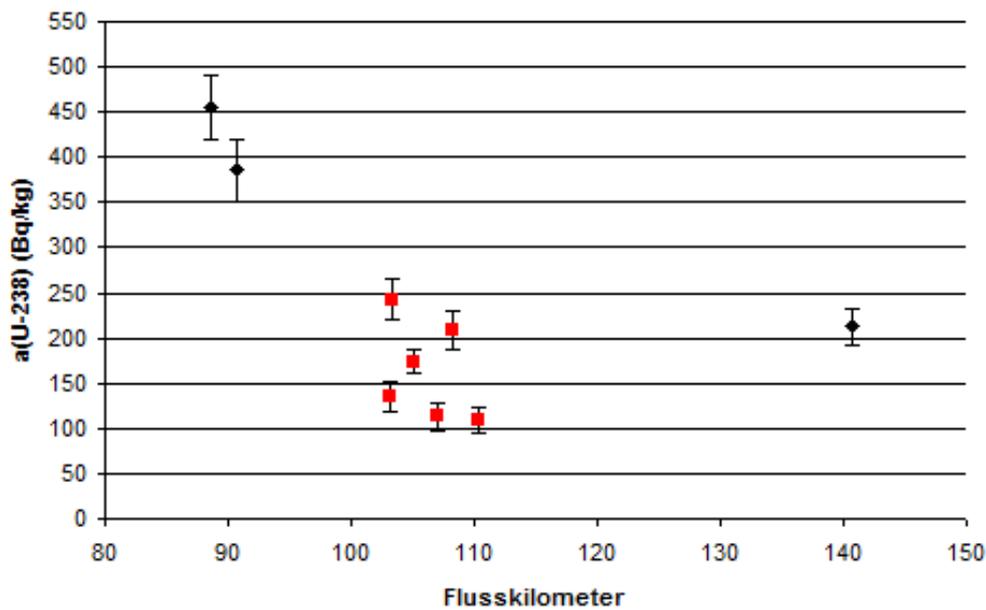


Abbildung 20: Verteilung der Aktivität von U-238 entlang der Zwickauer Mulde. Die U-238-Aktivitäten sind gegen die entsprechenden Flusskilometer aufgetragen.

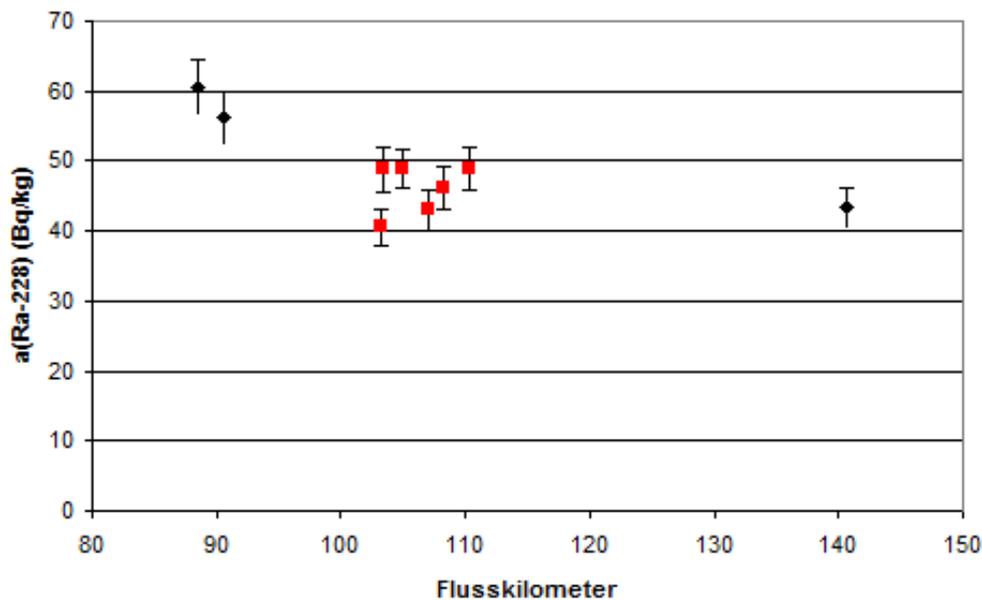


Abbildung 21: Verteilung der Aktivität von Ra-228 entlang der Zwickauer Mulde. Die Ra-228-Aktivitäten sind gegen die entsprechenden Flusskilometer aufgetragen.

Obwohl die drei Messwerte der Grünlandflächen eine Abnahme der spezifischen Aktivitäten von U-238 entlang des Flusslaufes andeuten, kann dieses nicht als all-

gemeiner Trend angenommen werden, da Testfläche T13 (Flusskilometer 140) wie bereits beschrieben eine Besonderheit darstellt. Auf den Ackerlandflächen zeigt sich, dass die U-238-Aktivität auf dicht beieinander liegenden Flächen streut. Diese Streuung kann auf die extreme Variabilität der Auenböden, welche in der Bodengenese begründet ist, zurückgeführt werden. Dieser Effekt ist in dem Abschlussbericht des Projekts von 2008 [Rie12] ausführlich beschrieben.

Die Bandbreite der Aktivitätswerte von Ra-228 variiert deutlich geringer als bei U-238. Da Ra-226 die Thorium-Zerfallsreihe widerspiegelt und damit den natürlichen Hintergrund, war keine deutliche Abweichung zu erwarten. Insgesamt zeigt sich in etwa das Bild von 2008. Bei beiden Darstellungen ergibt sich ein annähernd konstanter Wert der Ra-226-Aktivität um 50 Bq/kg. Die beiden erhöhten Werte um Flusskilometer 90 waren auch bereits 2008 vorhanden.

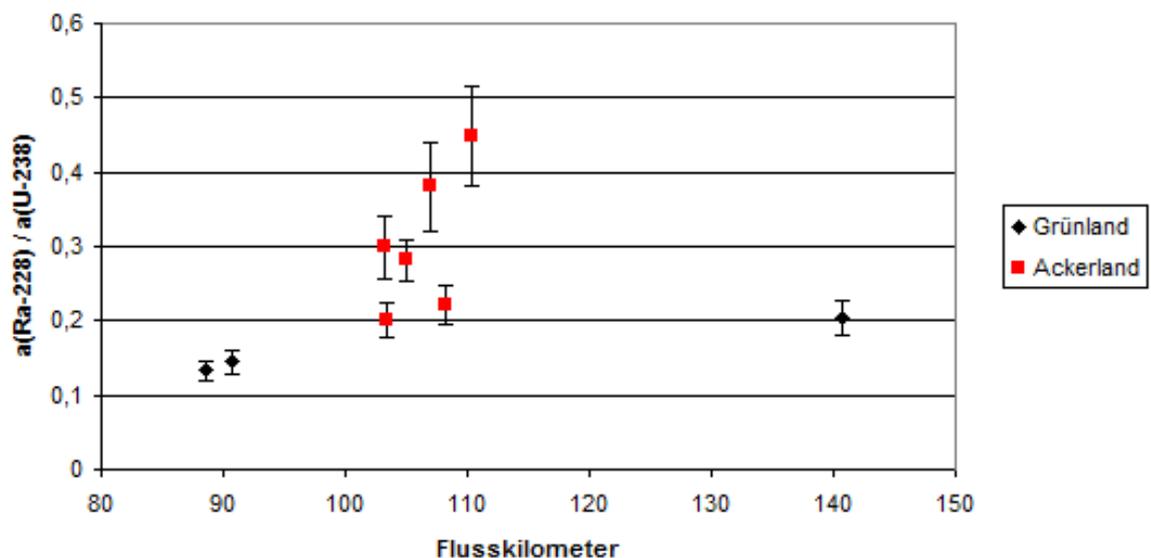


Abbildung 22: Aktivitätsverhältnis von Ra-228 zu U-238 entlang der Zwicker Mulde. Das Aktivitätsverhältnis ist gegen die entsprechenden Flusskilometer aufgetragen.

Das Verhältnis von Ra-228 zu U-238, welches bereits im Rahmen der 3-Nuklid-Plots angesprochen wurde, soll hier nochmals etwas genauer betrachtet werden, da es ein wichtiges Kriterium für die Beurteilung der uranbergbaulichen Belastung darstellt[Mic05]. Werte kleiner als 0,5 können nicht mehr durch natürliche Schwankungen erklärt werden und weisen daher einen uranbergbaulichen Einfluss nach. Insgesamt liegen alle Werte unter dieser Grenze und sind somit nachweislich uranbergbaulich beeinflusst. Allerdings ist zu beachten, dass der Wert bei Flusskilometer 110 im Rahmen seiner Unsicherheit noch mit der Grenze von 0,5 verträglich ist. Außerdem verdeutlicht die Abbildung nochmals, dass Grünlandflächen stärker

beeinflusst sind, als Ackerlandflächen. In diesem Zusammenhang sei nochmal auf die besondere Situation der Testfläche T13 (Flusskilometer 140) hingewiesen.

4.3.7 Testfläche T18

Testfläche T18 wird bei der Auswertung separat betrachtet, da sie die einzige untersuchte Bodenprobe darstellt, die entlang der Vereinigten Mulde genommen wurde. Diese Probenahmefläche der T18 liegt nahe der 2008 beprobten Probenahmefläche T18A, ist gegenüber dieser jedoch etwas verschoben. Es ist daher zu berücksichtigen, dass die Probe T18A von 2008 durch eine geringe uranbergbauliche Belastung auffiel und eine deutliche Abweichung gegenüber der Probenahmefläche T18B aufwies.

Tabelle 8: Vergleich der Aktivitäten auf Testfläche T18 mit den Hintergrundaktivitäten

Hintergrund	n	a(U-238) Bq/kg	u(a) Bq/kg	a(Ra-226) Bq/kg	u(a) Bq/kg g
[Rit08]	60	81	31	80	29
[BGB10]	k.A.	50	k.A.	50	k.A.
Mulde	4	53	10	55	6
Mittelwert VM					
T18	1	47,9	9,2	55,7	2,0
T18A (2008)	1	75,2	9,3	55,9	1,7

Hintergrund	n	a(Pb-210) Bq/kg	u(a) Bq/kg	a(Ra-228) Bq/kg	u(a) Bq/kg
Rit08	60	52	18	61	22
[BGB10]	k.A.	50	k.A.	40	k.A.
Mulde	4	63	13	62	19
Mittelwert VM					
T18	1	42,6	13,7	47,7	2,9
T18A (2008)	1	44,6	5,2	50,8	2,7

Tabelle 8 vergleicht die spezifischen Aktivitäten von U-238, Ra-226, Pb-210 und Ra-228 mit den Literaturwerten [Rit08] und [BGB10] sowie mit der ermittelten Hintergrundaktivität der Mulde. Zusätzlich sind die Ergebnisse aus 2008 dargestellt. Dieser Vergleich zeigt, dass die ermittelten spezifischen Aktivitäten von U-238, Ra-226, Pb-210 und Ra-228 mit den Literaturwerten und der Hintergrundaktivität der Mulde im Rahmen ihrer Unsicherheiten alle übereinstimmen, anders als bei

den Proben entlang der Zwickauer Mulde. Im Vergleich mit den Werten aus 2008 sind außer der ermittelten spezifischen Aktivität für U-238 und K-40 alle Ergebnisse verträglich. Die beiden genannten Werte haben sich verringert.

Insgesamt weisen die Radionuklide der Uran-Radium-Zerfallsreihe eine erkennbar geringere spezifische Aktivität auf, als bei der Zwickauer Mulde. Auch die Aktivität von U-235 liegt unter den Werten dieser Proben. Ac-227 war nicht nachweisbar.

Tabelle 9: Aktivitätsverhältnisse auf Testfläche T18

Nuklide	Verhältnis	Unsicherheit
Ra-226/U-238	1,16	0,22
Pb-210/Ra-226	0,77	0,25
Ra-228/U-238	0,99	0,20

Schaut man sich die in Tabelle 9 dargestellten Aktivitätsverhältnisse von Ra-226 zu U-238 und Pb-210 zu Ra-226 genauer an, sieht man, dass diese unter Beachtung ihrer Unsicherheiten bei eins liegen. Betrachtet man das Verhältnis der spezifischen Aktivitäten von Ra-228 zu U-238 liegt dieser Wert deutlich über 0,5. Nach Michel [Mic05] lässt diese Situation keinen uranbergbaulichen Einfluss erkennen. Das entspricht dem Ergebnis aus 2008.

4.3.8 Kalium und Cäsium

Das in den Bodenproben nachgewiesene Cs-137 ist anthropogenen Ursprungs. Es wurde als Fallout infolge des Reaktorunfalls in Tschernobyl und von oberirdischen Kernwaffentest eingebracht. Seine Aktivität wird durch den Uranbergbau nicht beeinflusst. Auch die Aktivität des primordialen K-40 wird durch den Uranbergbau nicht beeinträchtigt.

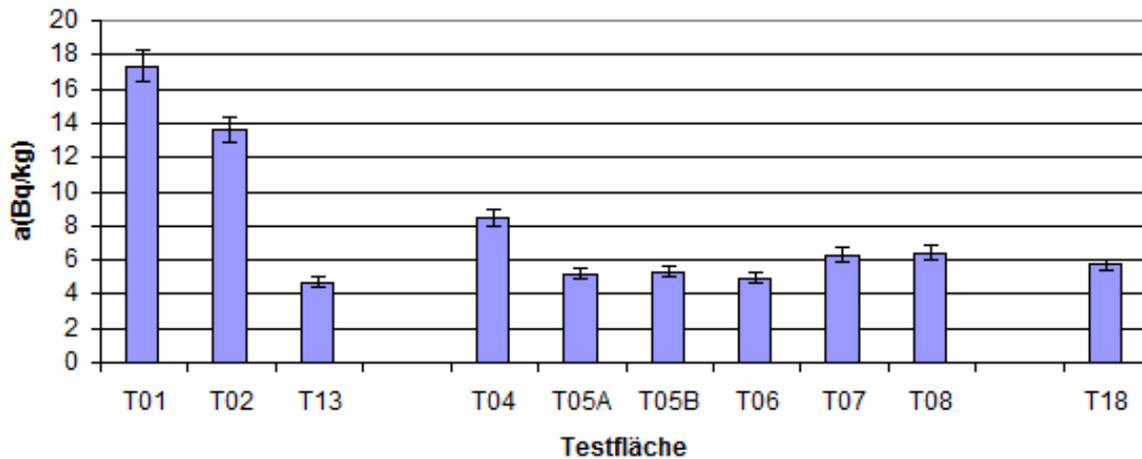


Abbildung 23: Verteilung der spezifischen Aktivität von Cs-137 auf den Testflächen

In Abbildung 23 ist die Verteilung der spezifischen Aktivitäten von Cs-137 entlang der Zwickauer Mulde und auf der Testfläche der Vereinigten Mulde dargestellt. Um einen Vergleich zu haben, in welchem Rahmen sich die Cs-137-Aktivitäten in Sachsen allgemein bewegen, wurden zwei Referenzwerte gewählt. Für die Grünlandflächen (T01, T02 und T13) wurde der Mittelwert für Oberböden aus Sachsen für das Jahr 2003 gewählt. Dieser liegt bei 13 Bq/kg [Bir09]. Für Ackerlandflächen wurde der Mittelwert auf sächsischen Ackerlandflächen aus 2007 verwendet. Er beträgt 9,1 Bq/kg [Sti10].

Vergleicht man die Grünlandflächen mit dem Mittelwert von 13 Bq/kg ist zu erkennen, dass Testfläche T02 im Rahmen der Unsicherheit mit diesem Wert übereinstimmt. Testfläche T01 weist eine etwas höhere spezifische Aktivität für Cs-137 auf, wohingegen Testfläche T13 gemäß ihrer Sonderrolle eine deutlich geringere Aktivität aufweist. Der Vergleich der Ackerlandflächen mit dem Mittelwert auf sächsischen Ackerlandflächen von 9,1 Bq/kg zeigt, dass sich alle Testflächen unter diesem Wert befinden. Die spezifische Aktivität von Cs-137 auf der Ackerlandfläche T04 liegt knapp unter dieser Grenze, während alle anderen deutlich drunter liegen.

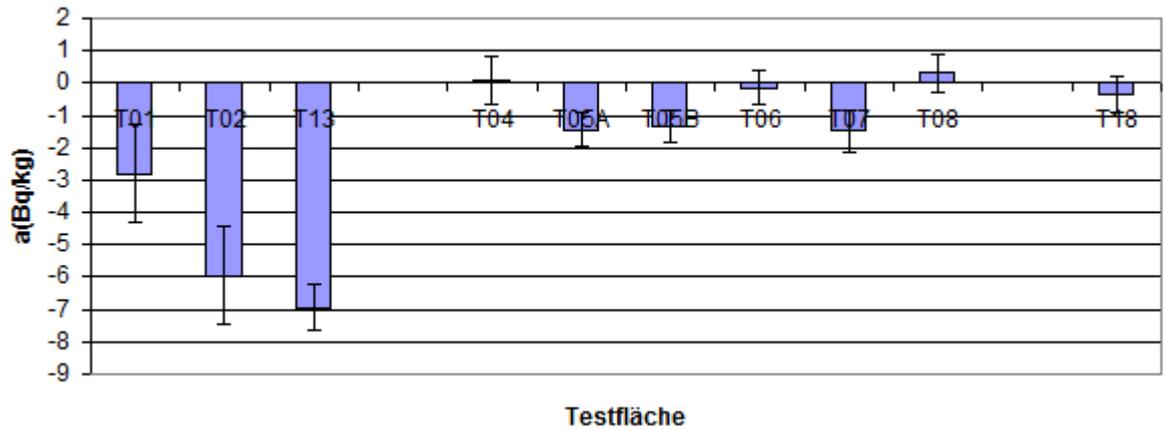


Abbildung 24: Differenz zu 2008 der Verteilung der spezifischen Aktivität von Cs-137 auf den Testflächen

Die Differenz zu den ermittelten Werten aus 2008 ist in Abbildung 24 dargestellt. Nach Anwendung des Konformitätskriteriums zeigt sich, dass nur die spezifischen Aktivitäten von Cs-137 auf den Testflächen T04, T06, T08 und T18 mit denen aus 2008 verträglich sind. Die Aktivitäten auf den anderen Testflächen haben sich verringert. Die größte Verringerung fand auf den Grünlandflächen statt.

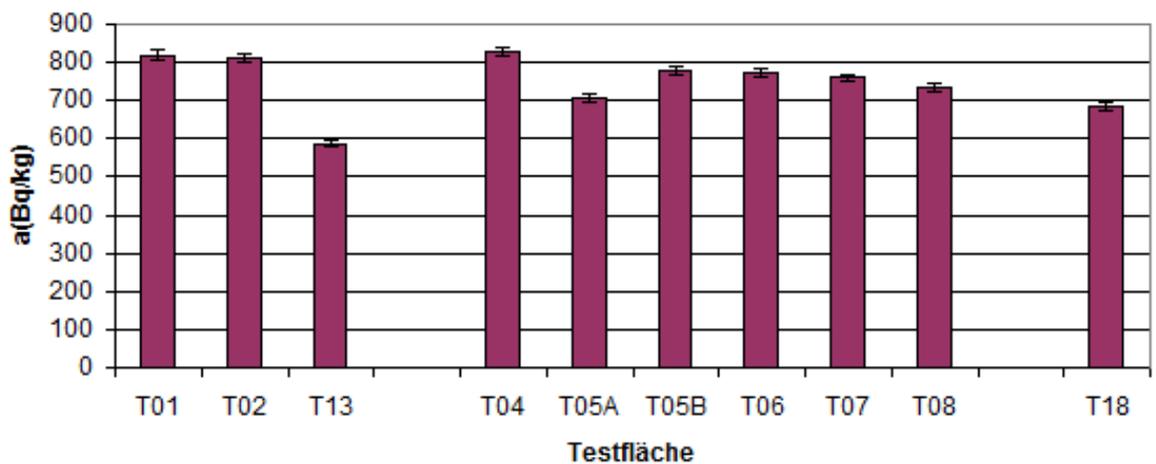


Abbildung 25: Verteilung der spezifischen Aktivität von K-40 auf den Testflächen

Für die Betrachtung der spezifischen Aktivität von K-40 wurde für die Ackerlandflächen als Vergleichsmittelwert die spezifische Aktivität für Böden allgemein von 523 Bq/kg gewählt [Sti10] und für Grünlandflächen der Mittelwert für die Erdkruste von 605 Bq/kg [Bir09]. In Abbildung 25 ist die Verteilung der spezifischen Aktivitäten von K-40 über die Testflächen zu sehen.

Alle Grünlandflächen bis auf Testfläche T13 überschreiten den Mittelwert für die Erdkruste von 605 Bq/kg deutlich. Ein ähnliches Bild zeigt sich bei den Acker-

landflächen, wo alle Testflächen deutlich über dem Vergleichsmittelwert von 523 Bq/kg liegen. Auch 2008 wurden diese Werte deutlich überschritten. Ursache hierfür könnte möglicherweise eine Kaliumdüngung der Flächen sein.

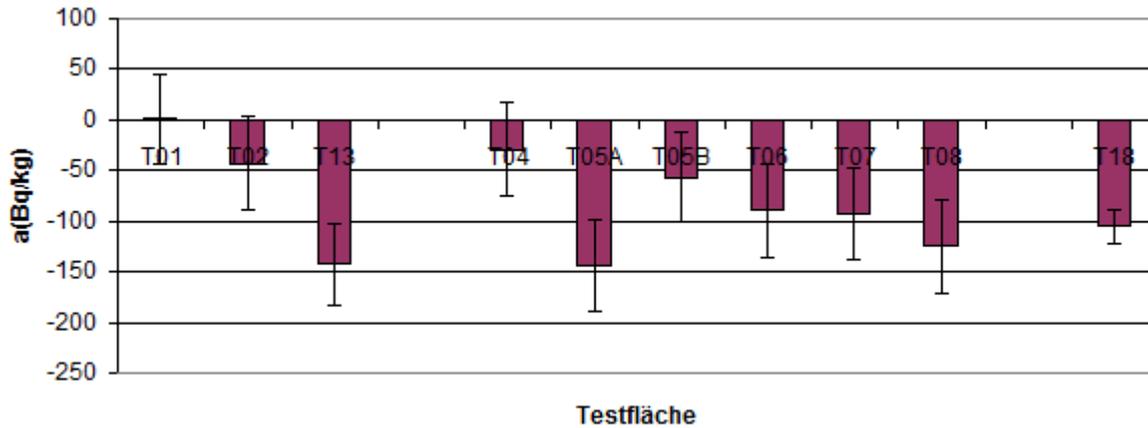


Abbildung 26: Differenz zu 2008 der Verteilung der spezifischen Aktivität von K-40 auf den Testflächen

Abbildung 26 zeigt die Differenz der K-40-Verteilung auf den Testflächen gegenüber 2008. Nach der Berechnung mit dem Konformitätskriterium zeigt sich, dass die Testflächen T01, T02, T04 und T05B mit den Werten aus 2008 verträglich sind. Bei den Grünlandflächen zeigt sich wie bei der Aktivitätsverteilung von Cs-137, dass sich der Wert auf Testfläche T13 am deutlichsten verringert hat und anders als 2008 unterhalb des oben genannten Mittelwertes für die Erdkruste liegt. Auch an dieser Stelle sei auf die Besonderheit der Testfläche T13 verwiesen.

Ein interessanter Punkt ist, dass sich Testfläche T18 bei der Betrachtung der Verteilung der spezifischen Aktivitäten von Cs-137 und K-40, anders als bei den bisher betrachteten Radionukliden der natürlichen Uran-Zerfallsreihen, nicht von den Ackerlandflächen entlang der Zwickauer Mulde unterscheidet. Dies deutet darauf hin, dass sich die Probe T18 nicht durch einen generell anderen Boden abhebt, sondern tatsächlich eine deutliche geringere uranbergbauliche Belastung vorliegt. Zusammenfassend ist eine generelle Abnahme von Cs-137 und K-40 über die gesamten Testflächen festzustellen.

5 Fazit

Allgemein lässt sich sagen, dass wie auch 2008 noch ein uranbergbaulicher Einfluss entlang der Zwickauer Mulde nachweisbar ist. Insgesamt sind nur geringe Änderungen gegenüber den Ergebnissen von 2008 festzustellen. Viele Aspekte die bei der Untersuchung 2008 gefunden wurden, deuten sich auch im Rahmen dieser Arbeit an. So ist die Aktivität der betrachteten Radionuklide auf den Grünlandflächen insgesamt etwas höher als die auf den Ackerlandflächen. Die Proben der Ackerlandflächen zeigen die für Auenböden typische Variabilität. Bei den Grünlandflächen ist diese Variabilität aufgrund des geringen Stichprobenumfangs nicht erkennbar. Auch U-238 weist erneut die höchsten Aktivitäten innerhalb der natürlichen Zerfallsreihen in den untersuchten Proben auf. Für Ra-228 als Vertreter der Thorium-Zerfallsreihe ist praktisch ein analoger Verlauf wie 2008 festzustellen mit leicht ansteigenden Werten um Flusskilometer 90. Die Aktivitäten von K-40 und Cs-137 liegen bei dieser Untersuchung ebenfalls über den Vergleichswerten.

Die überwiegende Mehrheit der Aktivitäten der betrachteten Radionuklide zeigt eine abnehmende Tendenz. Dabei ist jedoch zu beachten, dass viele Aktivitätswerte nach Anwendung des Konformitätskriteriums noch mit denen aus 2008 verträglich sind. Die höchsten Veränderungen sind bei U-238, K-40 und Cs-137 zu finden. Hier kann jedoch nicht sicher gesagt werden, ob dieser Trend eine Folge des Hochwassers ist oder die allgemeine Entwicklung der vergangenen fünf Jahre widerspiegelt. Ein Einfluss des Hochwassers ist hingegen auf Testfläche T13 durch die Ablagerung von Kies und grobem Sediment deutlich zu erkennen und zeigt sich auch in deutlich geringeren Radionuklidaktivitäten.

Auffällig ist, dass die größten Aktivitätsabnahmen bei eher gut löslichen Radionukliden festzustellen sind. In der Uran-Radium-Zerfallsreihe zeigt die Aktivität von U-238 die deutlichste Abnahme. Hier ist jedoch anzumerken, dass U-238 die höchste Aktivität innerhalb dieser Zerfallsreihe stellt und damit auch das größte Absenkungspotential bietet. Weiterhin ist gegenüber 2008 ein größeres Ungleichgewicht in der Thorium-Zerfallsreihe (Ra-228, Th-228) hin zu einem Thoriumüberschuss festzustellen. Auch hier kann eine mögliche Erklärung in der besseren Löslichkeit von Ra-228 gegenüber Th-228 zu finden sein. Bei den gut löslichen Radionukliden K-40 und Cs-137 ist ein genereller Trend der Aktivitätsabnahme erkennbar. All die beschriebenen Aspekte können ein Indiz für eine längere Auslaugung des Bodens darstellen, wie sie bei einer länger andauernden, großflächigen Überflutung vorkommt. Insofern könnten diese Tendenzen als Folge des Hochwassers gewertet werden.

Literatur

- [Bel92] Beleites, M.: Altlast Wismut: Ausnahmezustand, Umweltkatastrophe und das Sanierungsproblem im deutschen Uranbergbau, ISBN 3-86099-104-3, 1. Auflage, Verlag Brandes und Apsel, Frankfurt (1992)
- [Beu99] Beuge, P.; Greif, A.; Hoppe, T.; Klemm, A.; Kluge, A.; Martin, M.; Mosler, U.; Starke, R.; Alfaro, J.; Anders, B.; Behrens, K.; Grunwald, N.; Haurand, M.; Knöchel, A.; Meyer, A.; Potgeter, H.; Staub, S.; Stocker, M.: Die Schwermetallsituation im Muldesystem - Abschlussbericht an das BMBF. Bände I-III, ISBN 3-924330-28-X, Im Eigenverlag der Universität Hamburg, Hamburg (1999)
- [BGB10] Bundesamt für Strahlenschutz: Berechnungsgrundlagen zur Ermittlung der Strahlenexposition infolge bergbaubedingter Umweltradioaktivität (Berechnungsgrundlage - Bergbau), urn:nbn:de:0221-20100329966, BfS-SW-07/10, Salzgitter (2010)
- [Bir09] Birkhan, J. H.: γ -Spektrometrie an Bodenproben von als Grünland genutzten Auenflächen der Zwickauer und Vereinigten Mulde (2009), Diplomarbeit
- [Bis12] Bister, S.: Radioökologische Untersuchungen landwirtschaftlich genutzter Auen der Mulde zu den Folgen des ehemaligen Uranbergbaus (2012), Dissertation
- [Bis114] Bister, S.: Bericht Probenahme Boden (2014)
- [Bis214] Bister, S.: Bericht Probenahme Sediment (2014)
- [Bis314] mündlicher Vortrag Aufbereitung Uranerz
- [BMU106] BMU: Bundesamt für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit: Meßanleitungen für die Überwachung der Radioaktivität in Oberflächenwasser (2006)
- [BMU206] BMU: Bundesamt für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit: Meßanleitungen für die Überwachung der Radioaktivität in Sediment (2006)
- [BMU306] BMU: Bundesamt für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit: Meßanleitungen für die Überwachung der bergbaubedingten Radioaktivität in Oberflächenwasser (2006)
- [BMU406] BMU: Bundesamt für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit: Meßanleitungen für die Überwachung der bergbaubedingten Radioaktivität in Sediment (2006)

- [BMU506] BMU: Bundesamt für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit: Meßanleitungen für die Überwachung der Radioaktivität in Boden (2006)
- [BMU606] BMU: Bundesamt für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit: Meßanleitungen für die Überwachung der bergbaubedingten Radioaktivität in Boden (2006)
- [Feu04] Feuerborn, J.; Knöchel, A.; Miller, F.; Michel, R.; Ritzel, S.; Wanke, C.: Schadstoffuntersuchung nach dem Hochwasser vom August 2002 - Ermittlung der Gefährdungspotentiale an Elbe und Mulde - Abschlussbericht zum Arbeitspaket 3.9 „Verlagerung natürlicher Radionuklide“, Universität Hamburg und Universität Hannover (2004)
- [Fro14] www.frontgewitter.de/Hochwasser2013.html, aufgerufen am 22. Februar 2014
- [Lül09] Lüllau, Torben: Gammaspectrometrische Untersuchungen von anthropogen beeinflussten Umweltproben (2009), Diplomarbeit
- [Lup14] Lupa, K.: Klimatrends in Sachsen - Entwicklung der Niederschlagsverteilung, TU Bergakademie Freiberg, www.goek.tu-freiberg.de/oberseminar/OS_03_04/kristina_lupa.pdf, aufgerufen am 22. Februar 2014
- [Mic05] Michel, R.; Feuerborn, J.; Knöchel, A.; Miller, F.; Ritzel, S.; Treutler, H.-C.; von Tümpling, W.; Wanke, C.: Radionuclides in the Mulde River System after the August-2202 Flood, *Acta hydrochim. hydrobiol.* 33/5, S. 492 - 506 (2005)
- [NUK98] Pfennig, G.; Klewe-Nebenius, H.; Seelmann-Eggebert, W.: Karlsruher Nuklidkarte, korrigierter Nachdruck der 6. Auflage (1998)
- [Rie12] Bister, S. und Riebe, B.: Abschlussbericht zum Projekt Transport und Verfügbarkeit von Uran und langlebigen Zerfallprodukten in Auenböden der Mulde (2012)
- [Rit08] Ritzel, S.: Natürliche Radionuklide in der Umwelt - Vorkommen, anthropogene Einflüsse und radiologische Relevanz in ausgewählten Bergbaugebieten Deutschlands, Dissertation, Leibniz Universität Hannover (2008)
- [Sol10] Solle, A.: γ -Spektrometrie an Bodenproben von als Ackerland genutzten Auenflächen der Vereinigten Mulde (2010), Diplomarbeit

- [SS98] Schötzig, U. und Schrader, H.: Halbwertszeiten und Photonenemissionswahrscheinlichkeiten von häufig verwendeten Radionukliden, PTB-Bericht Ra-16/5, Physikalisch-Technische Bundesanstalt, 5. erweiterte Auflage (1998)
- [SSK91] Strahlenschutzkommission (SSK): Strahlenschutzgrundsätze für die Nutzung von durch Uranbergbau kontaminierten Flächen zu forst- und landwirtschaftlichen Zwecken sowie als Grünanlage (Parkanlage) und Wohngebiet, Empfehlung der Strahlenschutzkommission, Bundesanzeiger Nr. 227 (1991)
- [Sti10] Stieghorst, C.: Gammaskpektrometrische Untersuchung von Uran und seinen langlebigen Zerfallsprodukten an landwirtschaftlich genutzten Auenböden entlang der Zwickauer Mulde und Vereinigten Mulde (2010), Diplomarbeit
- [Taw12] Tawussi, F.: Gammaskpektrometrische Untersuchung von Umweltproben - Von der natürlichen Radioaktivität bis zum Fallout von Fukushima (2012), Masterarbeit
- [Wei99] Weise, K. und Wöger, W.: Messunsicherheiten und Messdatenauswertung, Wiley-VCH, Weinheim (1999)
- [Wis14] Internetauftritt der Wismut GmbH www.wismut.de, aufgerufen im Februar und März 2014

Abbildungsverzeichnis

1	Schwemmgut in den Bäumen lässt auf Testfläche T26 erkennen, wie hoch der Wasserstand war. Im Hintergrund ist die Vereinigte Mulde zu sehen.	3
2	Das Muldesystem	5
3	Uran-Radium-Zerfallsreihe [NUK98]	12
4	Uran-Actinium-Zerfallsreihe [NUK98]	13
5	Thorium-Zerfallsreihe [NUK98]	14
6	Säkulares Gleichgewicht. Dargestellt sind die Aktivitäten des Mutter- und des Tochternuklids sowie die Gesamtaktivität. Die Darstellung wurde auf 1 normiert. Bei der Achsenbeschriftung bezeichnet A_1 die Aktivität des Mutternuklids und τ_2 die Halbwertszeit des Tochternuklids. [Taw12]	18
7	Wirkungsquerschnitte von Photoeffekt, Comptoneffekt und Paarbildung sowie Darstellung des effektiven Wirkungsquerschnitts (gesamt) [Sti10]	22
8	Gammaspektrum von K-40. Der charakteristische Full-Energy-Peak liegt bei 1460,8 keV. [Taw12]	25
9	Prinzipieller Aufbau eines Gamma-Detektors [Sti10]	26
10	Bei einem n-Typ-Kristall erfolgt eine negative Dotierung, wohingegen bei einem p-Typ-Kristall eine positive Dotierung erfolgt. Die Randdotierungen sind bei beiden Kristalltypen gleich. [Bir09]	26
11	Probenahmestellen der Wasser- und Sedimentproben	38
12	Ablagerung von Kies und grobem Sediment auf Testfläche T13	40
13	Probenahmestellen der untersuchten Bodenproben	42
14	Differenz zu 2008 der Verteilung der spezifischen Aktivitäten von U-238, Ra-226, Pb-210 und Ra-228 auf den einzelnen Testflächen	51
15	2-Nuklid-Plot der spezifischen Aktivitäten von U-238 und Ra-226	53
16	2-Nuklid-Plot der spezifischen Aktivitäten von U-235 und Ac-227	54
17	2-Nuklid-Plot der spezifischen Aktivitäten von Ra-228 und Th-228	55
18	3-Nuklid-Plot der Aktivitätsverhältnisse von U-238, Ra-226 und Pb-210	56
19	3-Nuklid-Plot der Aktivitätsverhältnisse von U-238, Ra-226 und Ra-228	57
20	Verteilung der Aktivität von U-238 entlang der Zwickauer Mulde. Die U-238-Aktivitäten sind gegen die entsprechenden Flusskilometer aufgetragen.	58
21	Verteilung der Aktivität von Ra-228 entlang der Zwickauer Mulde. Die Ra-228-Aktivitäten sind gegen die entsprechenden Flusskilometer aufgetragen.	58

22	Aktivitätsverhältnis von Ra-228 zu U-238 entlang der Zwicker Mulde. Das Aktivitätsverhältnis ist gegen die entsprechenden Flusskilometer aufgetragen.	59
23	Verteilung der spezifischen Aktivität von Cs-137 auf den Testflächen	62
24	Differenz zu 2008 der Verteilung der spezifischen Aktivität von Cs-137 auf den Testflächen	63
25	Verteilung der spezifischen Aktivität von K-40 auf den Testflächen .	63
26	Differenz zu 2008 der Verteilung der spezifischen Aktivität von K-40 auf den Testflächen	64

Tabellenverzeichnis

1	Energielinien, die zur Bestimmung der jeweiligen Radionuklide verwendet wurden	17
2	Angegeben sind die Testflächen mit den entsprechenden Flusskilometern. Zusätzlich erfolgte eine Zuordnung zu den Testflächen aus 2008 sowie eine Angabe der entsprechenden Abweichung.	44
3	Dargestellt sind die arithmetischen Mittelwerte (arith. MW) und geometrischen Mittelwerte (geom. MW) der einzelnen Radionuklide mit ihren Standardabweichungen (SD = Standardabweichung, GSD = geometrische Standardabweichung) entlang der Zwickauer Mulde. Die Werte sind in der Einheit Bq/kg angegeben.	46
4	Mittlere Aktivitäten für die Radionuklide U-238, Ra-226, Pb-210 und Ra-228 für die Zwickauer Mulde sowie verschiedene Referenzwerte für die Hintergrundaktivität. u(a) entspricht der Standardabweichung.	47
5	Radiologische Beurteilung nach den Kriterien der [SSK91]	49
6	Änderung der spezifischen Aktivitäten gegenüber 2008. Dabei bedeutet +, dass eine Erhöhung der spezifischen Aktivität stattgefunden hat. Bei einem - hat sich die spezifische Aktivität des entsprechenden Radionuklids verringert.	50
7	Aktivitätsverhältnis von U-238 zu U-235	55
8	Vergleich der Aktivitäten auf Testfläche T18 mit den Hintergrundaktivitäten	60
9	Aktivitätsverhältnisse auf Testfläche T18	61
10	Daten des verwendeten Detektors	74
11	Verwendete Software	74
12	Daten des verwendeten Pb-Standards	77
13	Energielinie des Pb-Standards	77
14	Angaben zu Messdatum, Livetime und Masse der gemessenen Bodenproben	77
15	Ermittelte spezifische Aktivitäten der einzelnen Nuklide in den untersuchten Bodenproben. Zusätzlich sind die entsprechenden Werte von 2008 eingetragen.	78
16	Dargestellt sind die arithmetischen Mittelwerte (arith. MW) und geometrischen Mittelwerte (geom. MW) der einzelnen Radionuklide mit ihren Standardabweichungen (SD = Standardabweichung, GSD = geometrische Standardabweichung) auf den Grünlandflächen	83

17	Dargestellt sind die arithmetischen Mittelwerte (arith. MW) und geometrischen Mittelwerte (geom. MW) der einzelnen Radionuklide mit ihren Standardabweichungen (SD = Standardabweichung, GSD = geometrische Standardabweichung) auf den Ackerlandflächen . . .	84
18	Die Ergebnisse der Messung der Testprobe wurden mittels des Konformitätskriteriums mit den spezifischen Aktivitäten der entsprechenden Probe T02A auf Verträglichkeit überprüft.	85
19	Die ermittelten spezifischen Aktivitäten von U-238 und Th-230 wurden mit denen aus 2008 mittels des Konformitätskriteriums auf Verträglichkeit überprüft. Die Angaben entsprechen Bq/kg.	86
20	Die ermittelten spezifischen Aktivitäten von Ra-226 und Pb-210 wurden mit denen aus 2008 mittels des Konformitätskriteriums auf Verträglichkeit überprüft. Die Angaben entsprechen Bq/kg.	87
21	Die ermittelten spezifischen Aktivitäten von U-235 und Ac-227 wurden mit denen aus 2008 mittels des Konformitätskriteriums auf Verträglichkeit überprüft. Die Angaben entsprechen Bq/kg.	88
22	Die ermittelten spezifischen Aktivitäten von Ra-228 und Th-228 wurden mit denen aus 2008 mittels des Konformitätskriteriums auf Verträglichkeit überprüft. Die Angaben entsprechen Bq/kg.	89
23	Die ermittelten spezifischen Aktivitäten von Cs-137 und K-40 wurden mit denen aus 2008 mittels des Konformitätskriteriums auf Verträglichkeit überprüft. Die Angaben entsprechen Bq/kg.	90
24	Prüfung mittels Shapiro-Wilk-Test auf Normalverteilung des Messwerte entlang der Zwickauer Mulde. Durchgeführt wurde der Test mit dem Programm OriginPro 9.1 (Demoversion). n entspricht dem Stichprobenumfang und W ist die Prüfgröße (Definition siehe [Sti10]). Für das Signifikanzniveau α wurde 0,05 gewählt. Die Annahme einer Normalverteilung wird zurückgewiesen, wenn $P < \alpha$ gilt. Diese Angaben gelten auch für die Überprüfung der Normalverteilung auf den Grün- und Ackerlandflächen.	91
25	Prüfung auf Normalverteilung des Messwerte auf den Grünlandflächen.	91
26	Prüfung auf Normalverteilung des Messwerte auf den Ackerlandflächen	92

27	Prüfung mittels Shapiro-Wilk-Test auf logarithmische Normalverteilung des Messwerte entlang der Zwickauer Mulde. Vor Anwendung des Testverfahrens wurden die Messwerte logarithmiert. Durchgeführt wurde der Test mit dem Programm OriginPro 9.1 (Demoversion). n entspricht dem Stichprobenumfang und W ist die Prüfgröße (Definition siehe [Sti10]). Für das Signifikanzniveau α wurde 0,05 gewählt. Die Annahme einer Normalverteilung wird zurückgewiesen, wenn $P < \alpha$ gilt. Diese Angaben gelten auch für die Überprüfung der logarithmischen Normalverteilung auf den Grün- und Ackerlandflächen.	92
28	Prüfung auf logarithmische Normalverteilung des Messwerte auf den Grünlandflächen	93
29	Prüfung auf logarithmische Normalverteilung des Messwerte auf den Ackerlandflächen	93

A Anhang

A.1 Angaben zum Detektor und zur verwendeten Software

Tabelle 10: Daten des verwendeten Detektors

Detektortyp	P-Typ, koaxial
Hersteller	Canberra
Modellbezeichnung	GX3018
Seriennummer	b 99154
Betriebsspannung	+ 4500 V
Kristalldurchmesser	60 mm
Kristalllänge	53,5 mm
Material des Fensters	Carbon-Epoxy
Abstand Fenster - Kristall	5 mm
Relative Efficiency	35 %
Peak-Compton-Verhältnis	58:1
FWHM (122 keV)	0,875 keV
FWHM (1332 keV)	1,8 keV

Tabelle 11: Verwendete Software

Anwendung	Software
Textverarbeitung	TexnicCenter mit Miktex 2.9
Tabellenkalkulation und Messdatenplot	Microsoft Excel 2003 und 2010 OriginPro 9.1 (Demoversion) QtiPlot 2010
Bildbearbeitung	Microsoft Paint
Auswertung der Gammaskpektren	FitzPeaks32 - Gamma Analysis and Calibration software (3.66) (Jim Fitzgerald)

A.2 Verwendete Kalibrierstandards

Eckert & Ziegler Nuclitec GmbH
 Gieselweg 1
 38110 Braunschweig
 Tel +49 5307 932-0
 Fax +49 5307 932-293



akkreditiert durch die / accredited by the

Deutsche Akkreditierungsstelle GmbH



Deutsche
 Akkreditierungsstelle
 D-K-15203-01-00

als Kalibrierlaboratorium im / as calibration laboratory in the

Deutschen Kalibrierdienst



Kalibrierschein
 Calibration certificate

Kalibrierzeichen
 Calibration mark

025493
D-K- 15203-01-00
2012-11

Strahler Nr. / Source number UP 445

Gegenstand <i>Object</i>	Referenz-Lösung	
Hersteller <i>Manufacturer</i>	Eckert & Ziegler Nuclitec GmbH	
Typ <i>Type</i>	QCYB41	
Strahler-Nr. <i>Source number</i>	UP 445	
Auftraggeber <i>Customer</i>	Leibniz-Universität Hannover	
Auftragsnummer <i>Order No.</i>	30419 Hannover	152967
Anzahl der Seiten des Kalibrierscheines <i>Number of pages of the certificate</i>		2
Datum der Kalibrierung <i>Date of calibration</i>		1. Oktober 2012

Dieser Kalibrierschein dokumentiert die Rückführung auf nationale Normale zur Darstellung der Einheiten in Übereinstimmung mit dem Internationalen Einheitensystem (SI).

Die DAkkS ist Unterzeichner der multilateralen Übereinkommen der European co-operation for Accreditation (EA) und der International Laboratory Accreditation Cooperation (ILAC) zur gegenseitigen Anerkennung der Kalibrierscheine.

Für die Einhaltung einer angemessenen Frist zur Wiederholung der Kalibrierung ist der Benutzer verantwortlich.

This calibration certificate documents the traceability to national standards, which realize the units of measurement according to the International System of Units (SI).

The DAkkS is signatory to the multilateral agreements of the European co-operation for Accreditation (EA) and of the International Laboratory Accreditation Cooperation (ILAC) for the mutual recognition of calibration certificates.

The user is obliged to have the object recalibrated at appropriate intervals.

Dieser Kalibrierschein darf nur vollständig und unverändert weiterverbreitet werden. Auszüge oder Änderungen bedürfen der Genehmigung sowohl der Deutschen Akkreditierungsstelle GmbH als auch des ausstellenden Kalibrierlaboratoriums. Kalibrierscheine ohne Unterschrift haben keine Gültigkeit.

This calibration certificate may not be reproduced other than in full except with the permission of both the Deutsche Akkreditierungsstelle GmbH and the issuing laboratory. Calibration certificates without signature are not valid.

Datum <i>Date</i>	Leiter des Kalibrierlaboratoriums <i>Head of the calibration laboratory</i>	Bearbeiter <i>Person in charge</i>
----------------------	--	---------------------------------------

12. November 2012

Dr. Thieme

A. E. Heid

Schueler

E. Schueler

Referenz-Lösung

Strahler-Nr.	UP 445	
Zeichnung	VZ-1719-002	
Batch	12/4	<i>Verdünnungsfaktor</i>
Masse der Lösung	(2,012 ± 0,001) g	$K = 0,01355686 \pm 0,00000814$
Volumen der Lösung	circa 2 ml	<i>auf 148,41 g ± 0,05 g</i>
Dichte	circa 1,008 g/cm ³	
Chem./phys. Form	Die Nuklide liegen als Chloride in 0,5 M HCl-Lösung vor. Die Lösung ist mit 20 µg/ml pro Element geträgert.	

Nuklid	Photonen-Energie [MeV]	Aktivitäts- konzentration [Bq * g ⁻¹]	Photonen-Emissions- rate pro Masse [s ⁻¹ * g ⁻¹]	Messunsicherheit der Aktivitäts- konzentration [%]
Barium-133	0,081	2,91E03	1,07E03	2
Cobalt-57	0,122	3,00E03	2,57E03	2
Cer-139	0,166	2,98E03	2,38E03	2
Barium-133	0,356	2,91E03	1,81E03	2
Strontium-85	0,514	1,55E04	1,52E04	2
Cäsium-137	0,662	5,42E03	4,61E03	2
Mangan-54	0,835	5,93E03	5,93E03	2
Yttrium-88	0,898	1,53E04	1,44E04	2
Zink-65	1,116	1,49E04	7,52E03	2
Yttrium-88	1,836	1,53E04	1,52E04	2

Referenzdatum	1. Oktober 2012 um 12:00 UTC
Kontaminationsprüfung	Wischtest nach DIN 25426, Teil 3
Wischtest bestanden am	8. November 2012
Messmethode	Die Aktivitätskonzentration der Referenzlösung wurde durch Vergleich mit einer Lösung ermittelt, deren Aktivitätskonzentration von der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt bestimmt wurde.
Messunsicherheit	Angegeben ist die erweiterte Messunsicherheit, die sich aus der Standardmessunsicherheit durch Multiplikation mit dem Erweiterungsfaktor $k = 2$ ergibt. Sie wurde gemäß DAkkS-DKD-3 ermittelt. Der Wert der Messgröße liegt mit einer Wahrscheinlichkeit von 95 % im zugeordneten Werteintervall.
Radioaktive Verunreinigungen	Zum Zeitpunkt der Kalibrierung konnten folgende radioaktiven Verunreinigungen nachgewiesen werden: Rb-84 < 5 Bq/g; Rb-86 < 1 Bq/g; Cs-134 < 4 Bq/g
Qualitätssicherungssystem	Das Qualitätssicherungssystem von Eckert & Ziegler Nuclitec GmbH wurde durch Lloyds's Register Quality Assurance (LRQA) nach der ISO 9001 in der Ausgabe von 2008 zertifiziert.
Bemerkung	---

Tabelle 12: Daten des verwendeten Pb-Standards

Bezeichnung	Pb-210
Vertrieb	QSA Global GmbH
Zertifiziert durch	Physikalisch-Technische Bundesanstalt
Referenzzeit	1. Februar 2008 um 00:00 Uhr MEZ
Masse der Lösung in 1,5M HNO ₃	(2,0921 ± 0,0017) g
Verdünnung	auf (90,710 ± 0,004) g verdünnt
Verdünnungsfaktor	K = 0,023064 ± 0,000025

Tabelle 13: Energielinie des Pb-Standards

Radionuklid	$t_{\frac{1}{2}}$	E_{γ} (keV)	a (Bq/kg)	p
Pb-210	22,3 a	46,45	137,5 ± 2,1	0,0424

A.3 Messdaten

Tabelle 14: Angaben zu Messdatum, Livetime und Masse der gemessenen Bodenproben

Testfläche	Messdatum	Livetime in sec	Masse in g
T01	13.01.2014	88006	602,76
T02	14.01.2014	89076	653,47
T04	15.01.2014	91945	703,74
T05A	16.01.2014	75199	801,09
T05B	17.01.2014	255825	757,86
T06	20.01.2014	66275	751,23
T07	21.01.2014	79335	714,45
T08	22.01.2014	82791	730,05
T13	27.01.2014	88345	786,76
T18	23.01.2014	87102	709,31

Tabelle 15: Ermittelte spezifische Aktivitäten der einzelnen Nuklide in den untersuchten Bodenproben. Zusätzlich sind die entsprechenden Werte von 2008 eingetragen.

Testfläche			a(U-238) Bq/kg	u(a) Bq/kg	a(Th-230) Bq/kg	u(a) Bq/kg
ZM						
T01	GL		454,6	85,7	u.N.	
T01B	GL	2008	477,7	48,2	256,4	51,5
T02	GL		385,6	33,9	295,4	95,3
T02A	GL	2008	416,2	38,1	377,0	50,7
T13	GL		213,0	20,1	u.N.	
T13A	GL	2008	427,9	35,9	326,6	44,0
T04	AL		242,5	22,6	u.N.	
T04B	AL	2008	215,7	21,6	179,4	36,1
T05A	AL		135,4	16,7	u.N.	
T05A	AL	2008	199,1	18,6	218,5	52,0
T05B	AL		174,1	13,8	179,8	50,0
T05B	AL	2008	156,8	17,2	153,9	39,7
T06	AL		113,0	15,6	u.N.	
T06A	AL	2008	124,1	12,1	129,1	36,6
T07	AL		208,5	20,6	u.N.	
T07A	AL	2008	252,8	13,8	303,6	55,5
T08	AL		108,7	14,7	u.N.	
T08A	AL	2008	115,4	10,4	153,0	34,6
VM						
T18	AL		47,9	9,2	u.N.	
T18A	AL	2008	75,2	9,3	78,5	17,8

Testfläche			a(Ra-226) Bq/kg	u(a) Bq/kg	a(Pb-210) Bq/kg	u(a) Bq/kg
ZM						
T01	GL		236,6	8,2	152,5	26,9
T01B	GL	2008	223,7	6,7	236,9	11,2
T02	GL		262,8	9,0	171,5	29,0
T02A	GL	2008	259,9	7,6	228,0	13,0
T13	GL		158,7	5,5	133,5	24,2
T13A	GL	2008	257,6	7,8	234,6	8,1
T04	AL		178,0	6,1	114,3	21,5
T04B	AL	2008	160,4	4,1	123,5	13,8
T05A	AL		106,4	3,7	98,4	20,5
T05A	AL	2008	144,1	3,6	116,3	11,9
T05B	AL		135,0	4,6	98,1	16,1
T05B	AL	2008	122,4	3,1	98,2	11,7
T06	AL		103,5	3,6	80,7	22,6
T06A	AL	2008	107,4	2,7	84,4	9,1
T07	AL		169,3	5,9	126,3	23,5
T07A	AL	2008	161,2	4,0	140,2	14,3
T08	AL		100,0	3,5	73,9	17,8
T08A	AL	2008	99,4	2,6	86,8	9,1
VM						
T18	AL		55,7	2,0	42,6	13,7
T18A	AL	2008	55,9	1,7	44,6	5,2

Testfläche			a(U-235) Bq/kg	u(a) Bq/kg	a(Ac-227) Bq/kg	u(a) Bq/kg
ZM						
T01	GL		18,7	1,9	11,6	1,6
T01B	GL	2008	21,5	2,1	11,4	1,0
T02	GL		17,6	2,0	13,3	1,6
T02A	GL	2008	18,8	1,9	13,0	1,3
T13	GL		10,7	1,2	7,9	1,5
T13A	GL	2008	19,8	1,8	14,5	1,3
T04	AL		12,0	1,4	8,4	1,6
T04B	AL	2008	10,0	0,9	7,7	1,0
T05A	AL		7,2	1,1	u.N.	
T05A	AL	2008	9,1	0,8	7,5	0,8
T05B	AL		9,2	0,9	6,8	0,9
T05B	AL	2008	7,3	1,0	5,6	1,0
T06	AL		6,7	1,2	u.N.	
T06A	AL	2008	5,7	0,8	5,0	0,9
T07	AL		9,1	1,4	8,5	1,2
T07A	AL	2008	11,2	0,9	9,0	1,3
T08	AL		7,1	1,3	u.N.	
T08A	AL	2008	5,3	0,5	4,4	0,7
VM						
T18	AL		3,5	0,9	u.N.	
T18A	AL	2008	3,3	0,4	3,1	0,4

Testfläche			a(Ra-228) Bq/kg	u(a) Bq/kg	a(Th-228) Bq/kg	u(a) Bq/kg
ZM						
T01	GL		60,3	3,9	67,7	3,3
T01B	GL	2008	57,6	4,5	57,9	3,1
T02	GL		56,1	3,7	64,4	3,1
T02A	GL	2008	61,8	4,3	60,6	3,2
T13	GL		43,3	2,8	49,5	2,4
T13A	GL	2008	44,2	3,1	42,6	2,2
T04	AL		48,8	3,2	55,4	2,8
T04B	AL	2008	52,2	3,1	52,5	2,5
T05A	AL		40,5	2,7	46,2	2,3
T05A	AL	2008	52,4	3,2	53,4	2,4
T05B	AL		48,9	2,7	51,3	2,8
T05B	AL	2008	55,9	3,4	57,4	2,6
T06	AL		43,0	2,9	49,4	2,4
T06A	AL	2008	49,4	3,0	49,7	2,4
T07	AL		46,2	3,0	55,0	2,7
T07A	AL	2008	52,3	3,2	54,1	2,3
T08	AL		48,9	3,0	55,1	2,7
T08A	AL	2008	47,0	2,8	48,4	2,0
VM						
T18	AL		47,7	2,9	53,8	2,6
T18A	AL	2008	50,8	2,7	50,1	2,5

Testfläche		a(Cs-137) Bq/kg	u(a) Bq/kg	a(K-40) Bq/kg	u(a) Bq/kg
ZM					
T01	GL	17,3	0,9	818,6	12,7
T01B	GL 2008	20,1	1,2	817,9	42,7
T02	GL	13,6	0,7	812,8	11,8
T02A	GL 2008	19,6	1,3	855,3	44,8
T13	GL	4,7	0,3	587,7	9,1
T13A	GL 2008	11,6	0,6	729,8	39,5
T04	AL	8,5	0,5	827,7	10,0
T04B	AL 2008	8,4	0,6	856,8	44,6
T05A	AL	5,2	0,3	706,9	8,9
T05A	AL 2008	6,6	0,4	850,2	44,8
T05B	AL	5,3	0,3	777,8	9,6
T05B	AL 2008	6,7	0,4	834,4	43,6
T06	AL	4,9	0,3	772,0	9,7
T06A	AL 2008	5,1	0,4	861,5	45,3
T07	AL	6,3	0,4	760,1	9,8
T07A	AL 2008	7,8	0,5	852,8	45,1
T08	AL	6,4	0,4	734,2	10,0
T08A	AL 2008	6,1	0,4	859,2	45,2
VM					
T18	AL	5,7	0,4	683,5	10,2
T18A	AL 2008	6,0	0,4	788,8	12,3

A.4 Datenanalyse

A.4.1 Mittelwerte

Tabelle 16: Dargestellt sind die arithmetischen Mittelwerte (arith. MW) und geometrischen Mittelwerte (geom. MW) der einzelnen Radionuklide mit ihren Standardabweichungen (SD = Standardabweichung, GSD = geometrische Standardabweichung) auf den Grünlandflächen

Nuklid	n	arith. MW Bq/kg	SD Bq/kg	geom. MW Bq/kg	GSD Bq/kg
U-238	3	351,1	124,5	334,2	1,5
Ra-226	3	219,4	54,2	214,5	1,3
Pb-210	3	152,5	19,0	457,4	1,1
U-235	3	15,7	4,3	15,2	1,4
Ac-227	3	10,9	2,8	10,7	1,3
Ra-228	3	53,3	9,0	52,8	1,2
Th-228	3	60,6	9,7	60,0	1,2
Cs-137	3	11,9	6,5	10,4	2,0
K-40	3	739,7	131,7	731,3	1,2

Tabelle 17: Dargestellt sind die arithmetischen Mittelwerte (arith. MW) und geometrischen Mittelwerte (geom. MW) der einzelnen Radionuklide mit ihren Standardabweichungen (SD = Standardabweichung, GSD = geometrische Standardabweichung) auf den Ackerlandflächen

Nuklid	n	arith. MW Bq/kg	SD Bq/kg	geom. MW Bq/kg	GSD Bq/kg
U-238	6	163,7	54,3	156,4	1,4
Ra-226	6	132,1	34,7	128,4	1,3
Pb-210	6	98,6	19,7	97,0	1,2
U-235	6	8,5	2,0	8,4	1,3
Ac-227	3	7,9	1,0	7,9	1,1
Ra-228	6	46,0	3,6	45,9	1,1
Th-228	6	52,1	3,8	52,0	1,1
Cs-137	6	6,1	1,3	6,0	1,2
K-40	6	763,1	41,2	762,2	1,1

A.4.2 Konformitätskriterium

Tabelle 18: Die Ergebnisse der Messung der Testprobe wurden mittels des Konformitätskriteriums mit den spezifischen Aktivitäten der entsprechenden Probe T02A auf Verträglichkeit überprüft.

Radionuklid	Testprobe Bq/kg	T02A Bq/kg	$ x_1 - x_2 $	$\sqrt{2} \cdot \sqrt{u^2(x_1) + u^2(x_2)}$
U-238	371,9	416,2	44,3	70,7
U-238	32,3	38,1		
Th-230	u.N.	377,0	125,5	168,1
Th-230		237,6		
Ra-226	276,1	259,9	16,2	17,2
Ra-226	9,5	7,6		
Pb-210	186,4	228,0	41,6	46,3
Pb-210	30,1	13,0		
U-235	16,2	18,8	2,5	3,8
U-235	1,9	1,9		
Ac-227	14,2	13,0	1,2	3,0
Ac-227	1,7	1,3		
Ra-228	60,4	61,8	1,5	8,3
Ra-228	4,0	4,3		
Th-228	65,9	60,6	5,3	6,4
Th-228	3,2	3,2		
Cs-137	18,4	19,6	1,2	2,3
Cs-137	1,0	1,3		
K-40	822,2	855,3	33,1	65,8
K-40	12,5	44,8		

Tabelle 19: Die ermittelten spezifischen Aktivitäten von U-238 und Th-230 wurden mit denen aus 2008 mittels des Konformitätskriteriums auf Verträglichkeit überprüft. Die Angaben entsprechen Bq/kg.

Testfläche	U-238		Th-230	
	$ x_1 - x_2 $	$\sqrt{2} \cdot \sqrt{u^2(x_1) + u^2(x_2)}$	$ x_1 - x_2 $	$\sqrt{2} \cdot \sqrt{u^2(x_1) + u^2(x_2)}$
ZM				
T01	23,1	139,1	u.N.	
T02	30,6	72,2	81,6	152,7
T04	26,8	44,3	u.N.	
T05A	63,7	35,4	u.N.	
T05B	17,3	31,2	26,0	90,3
T06	11,1	27,9	u.N.	
T07	44,4	35,1	u.N.	
T08	6,7	25,5	u.N.	
T13	214,9	58,2	u.N.	
VM				
T18	27,3	18,5	u.N.	

Tabelle 20: Die ermittelten spezifischen Aktivitäten von Ra-226 und Pb-210 wurden mit denen aus 2008 mittels des Konformitätskriteriums auf Verträglichkeit überprüft. Die Angaben entsprechen Bq/kg.

Testfläche	Ra-226		Pb-210	
	$ x_1 - x_2 $	$\sqrt{2} \cdot \sqrt{u^2(x_1) + u^2(x_2)}$	$ x_1 - x_2 $	$\sqrt{2} \cdot \sqrt{u^2(x_1) + u^2(x_2)}$
ZM				
T01	12,9	14,9	84,4	41,2
T02	2,9	16,7	56,5	44,9
T04	17,6	10,4	9,2	36,1
T05A	37,7	7,3	17,9	33,5
T05B	12,6	7,9	0,1	28,1
T06	3,9	6,4	3,7	34,5
T07	8,1	10,1	13,9	38,9
T08	0,6	6,2	12,9	28,2
T13	98,9	13,6	101,1	36,1
VM				
T18	0,2	3,7	2,0	20,7

Tabelle 21: Die ermittelten spezifischen Aktivitäten von U-235 und Ac-227 wurden mit denen aus 2008 mittels des Konformitätskriteriums auf Verträglichkeit überprüft. Die Angaben entsprechen Bq/kg.

Testfläche	U-235		Ac-227	
	$ x_1 - x_2 $	$\sqrt{2} \cdot \sqrt{u^2(x_1) + u^2(x_2)}$	$ x_1 - x_2 $	$\sqrt{2} \cdot \sqrt{u^2(x_1) + u^2(x_2)}$
ZM				
T01	2,8	4,0	0,2	2,7
T02	1,2	3,9	0,3	2,9
T04	2,0	2,4	0,7	2,7
T05A	1,9	1,9	u.N.	
T05B	1,9	2,0	1,2	1,9
T06	1,0	2,1	u.N.	
T07	2,1	2,3	0,5	2,5
T08	1,8	2,0	u.N.	
T13	9,1	3,0	6,6	2,8
VM				
T18	0,3	1,4	u.N.	

Tabelle 22: Die ermittelten spezifischen Aktivitäten von Ra-228 und Th-228 wurden mit denen aus 2008 mittels des Konformitätskriteriums auf Verträglichkeit überprüft. Die Angaben entsprechen Bq/kg.

Testfläche	Ra-228		Th-228	
	$ x_1 - x_2 $	$\sqrt{2} \cdot \sqrt{u^2(x_1) + u^2(x_2)}$	$ x_1 - x_2 $	$\sqrt{2} \cdot \sqrt{u^2(x_1) + u^2(x_2)}$
ZM				
T01	2,7	8,4	9,8	6,4
T02	5,7	8,1	3,8	6,3
T04	3,4	6,3	2,9	5,3
T05A	11,9	5,9	7,2	4,8
T05B	7,0	6,2	6,1	5,4
T06	6,4	5,9	0,3	4,8
T07	6,1	6,2	0,9	5,0
T08	1,9	5,8	6,7	4,8
T13	0,9	5,9	6,9	4,6
VM				
T18	3,1	5,6	3,7	5,1

Tabelle 23: Die ermittelten spezifischen Aktivitäten von Cs-137 und K-40 wurden mit denen aus 2008 mittels des Konformitätskriteriums auf Verträglichkeit überprüft. Die Angaben entsprechen Bq/kg.

Testfläche	Cs-137		K-40	
	$ x_1 - x_2 $	$\sqrt{2} \cdot \sqrt{u^2(x_1) + u^2(x_2)}$	$ x_1 - x_2 $	$\sqrt{2} \cdot \sqrt{u^2(x_1) + u^2(x_2)}$
ZM				
T01	2,8	2,1	0,7	63,0
T02	6,0	2,1	42,5	65,6
T04	0,1	1,1	29,2	64,6
T05A	1,4	0,7	143,3	64,6
T05B	1,4	0,7	56,6	63,2
T06	0,2	0,7	89,5	65,5
T07	1,5	0,9	92,7	65,2
T08	0,3	0,8	125,0	65,4
T13	7,0	1,0	142,1	57,3
VM				
T18	0,3	0,8	105,3	22,6

A.4.3 Test auf Normalverteilung und logarithmische Normalverteilung

Tabelle 24: Prüfung mittels Shapiro-Wilk-Test auf Normalverteilung des Messwerte entlang der Zwickauer Mulde. Durchgeführt wurde der Test mit dem Programm OriginPro 9.1 (Demoversion). n entspricht dem Stichprobenumfang und W ist die Prüfgröße (Definition siehe [Sti10]). Für das Signifikanzniveau α wurde 0,05 gewählt. Die Annahme einer Normalverteilung wird zurückgewiesen, wenn $P < \alpha$ gilt. Diese Angaben gelten auch für die Überprüfung der Normalverteilung auf den Grün- und Ackerlandflächen.

Nuklid	n	W	P	normal?
U-238	9	0,8666	0,1130	ja
Ra-226	9	0,9023	0,2654	ja
Pb-210	9	0,9647	0,9461	ja
U-235	9	0,8440	0,0639	ja
Ac-227	6	0,8862	0,2989	ja
Ra-228	9	0,9191	0,3850	ja
Th-228	9	0,9003	0,2538	ja
Cs-137	9	0,7596	0,0070	nein
K-40	9	0,8575	0,0900	ja

Tabelle 25: Prüfung auf Normalverteilung des Messwerte auf den Grünlandflächen.

Nuklid	n	W	P	normal?
U-238	3	0,9422	0,5361	ja
Ra-226	3	0,9235	0,4648	ja
Pb-210	3	1,0000	0,9989	ja
U-235	3	0,8492	0,2383	ja
Ac-227	3	0,9547	0,5904	ja
Ra-228	3	0,9289	0,4845	ja
Th-228	3	0,8757	0,3120	ja
Cs-137	3	0,9468	0,5553	ja
K-40	3	0,7691	0,0427	nein

Tabelle 26: Prüfung auf Normalverteilung des Messwerte auf den Ackerlandflächen

Nuklid	n	W	P	normal?
U-238	6	0,9179	0,4901	ja
Ra-226	6	0,8427	0,1373	ja
Pb-210	6	0,9577	0,8020	ja
U-235	6	0,8735	0,2403	ja
Ac-227	3	0,7927	0,0971	ja
Ra-228	6	0,8355	0,1196	ja
Th-228	6	0,8655	0,2089	ja
Cs-137	6	0,8568	0,1784	ja
K-40	6	0,9765	0,9331	ja

Tabelle 27: Prüfung mittels Shapiro-Wilk-Test auf logarithmische Normalverteilung des Messwerte entlang der Zwickauer Mulde. Vor Anwendung des Testverfahrens wurden die Messwerte logarithmiert. Durchgeführt wurde der Test mit dem Programm OriginPro 9.1 (Demoversion). n entspricht dem Stichprobenumfang und W ist die Prüfgröße (Definition siehe [Sti10]). Für das Signifikanzniveau α wurde 0,05 gewählt. Die Annahme einer Normalverteilung wird zurückgewiesen, wenn $P < \alpha$ gilt. Diese Angaben gelten auch für die Überprüfung der logarithmischen Normalverteilung auf den Grün- und Ackerlandflächen.

Nuklid	n	W	P	lognormal?
U-238	9	0,9374	0,5545	ja
Ra-226	9	0,9240	0,4264	ja
Pb-210	9	0,9719	0,9107	ja
U-235	9	0,90047	0,2547	ja
Ac-227	6	0,9170	0,4843	ja
Ra-228	9	0,9396	0,5776	ja
Th-228	9	0,9218	0,4074	ja
Cs-137	9	0,8356	0,0516	ja
K-40	9	0,8231	0,0374	nein

Tabelle 28: Prüfung auf logarithmische Normalverteilung des Messwerte auf den Grünlandflächen

Nuklid	n	W	P	lognormal?
U-238	3	0,9035	0,3968	ja
Ra-226	3	0,8976	0,3778	ja
Pb-210	3	0,9987	0,9301	ja
U-235	3	0,8290	0,1857	ja
Ac-227	3	0,9284	0,4825	ja
Ra-228	3	0,9113	0,4223	ja
Th-228	3	0,8615	0,2718	ja
Cs-137	3	0,8835	0,33459	ja
K-40	3	0,7663	0,0364	nein

Tabelle 29: Prüfung auf logarithmische Normalverteilung des Messwerte auf den Ackerlandflächen

Nuklid	n	W	P	lognormal?
U-238	6	0,9244	0,5376	ja
Ra-226	6	0,8512	0,1609	ja
Pb-210	6	0,9568	0,7950	ja
U-235	6	0,8984	0,3644	ja
Ac-227	3	0,7885	0,0873	ja
Ra-228	6	0,8329	0,1138	ja
Th-228	6	0,8632	0,2005	ja
Cs-137	6	0,8937	0,3383	ja
K-40	6	0,9797	0,9502	ja

B Probenahmebericht

Bericht Probenahme und Feldanalytik, Sediment und Wasser

von Wiebke Matteikat

Projekt Mulde II: Probennahmefahrten
vom 14.11.13 – 17.11.13 und 19.11.13 – 23.11.13

Wasserproben:

Zuerst wurde die Redoxelektrode in die Redoxkalibrierlösung RH28 von WTW gestellt. Da die Elektrode mindestens 10 Minuten in der Kalibrierlösung verbleiben sollte, konnte während dieser Zeit die Wasserprobe genommen werden. Hierzu wurde eine 2 Liter Kautexflasche verwendet, die an einer langen Metallstange befestigt war. Diese Flasche und 2 weitere 1 Liter Kautexflaschen wurden 3 Mal mit Flusswasser ausgespült. Anschließend wurden die beiden 1 Liter Kautexflaschen mit Flusswasser befüllt. Für das Messprotokoll wurde die Zeit notiert, bei der die Wasserprobe genommen wurde. Ein Teil des Flusswassers aus einer der beiden 1 Liter Kautexflaschen wurde in eine 250 Milliliter Kautexflasche umgefüllt, mit welcher anschließend der Redoxwert des Wassers gemessen wurde. Hier war darauf zu achten, dass beim Umfüllen des Wassers möglichst wenig Sauerstoff hinzukam. Zum Messen des Redoxwertes wurde ein Flaschendeckel mit zwei Löchern verwendet, in die die Redoxelektrode und der Temperatursonde hinein kamen. Anschließend wurde 20-30 Minuten lang ein Redoxwert pro Minute mit zugehöriger Temperatur gemessen. Wichtig hierbei war darauf zu achten, dass mindestens ein Redoxwert existiert, welcher über mindestens eine Minute konstant war. Der erste stabile Wert wurde als Redoxwert im Messprotokoll notiert. Am Ende des Probennahmetages wurde mittels pH-Elektrode der pH-Wert bestimmt und mittels Leitfähigkeitselektrode die Leitfähigkeit. Bei diesen beiden Messungen wurde zusätzlich die Temperatur protokolliert. Außerdem wurden die Werte für Phosphat, Nitrat, Carbonat und Sulfat ermittelt. Hier war es wichtig, dass die Probentemperatur mindestens 15 Grad Celsius betrug. Für diese Messungen wurden colorimetrische Teststäbchen der Produktlinie Merckoquant von Merck und reflektrometrische Teststäbchen der Produktlinie Reflectoquant in Verbindung mit dem Reflektometer „RQflex 10“ von Merck für Nitrat und teilweise auch Phosphat verwendet. Die Nachweisgrenzen für Phosphat lagen bei 5mg/L (reflektometrisch) bzw. 10mg/L (colorimetrisch), für Nitrat bei 5mg/L, für Carbonat bei 4 Grad dH und für Sulfat bei 200mg/L. Für das Messprotokoll wurden die Zeiten vermerkt, wann die einzelnen Messungen

durchgeführt wurden.

Sedimentproben:

Für die Sedimentproben wurde versucht kleine Mengen Sediment von möglichst vielen verschiedenen Stellen des zu beprobenden Flussabschnittes zu nehmen. Wichtig war darauf zu achten, dass das Sediment zur weiteren Auswertung geeignet war. Mittels einer Küchenkelle, die an einem langen Holzstab befestigt war, wurden die genommenen kleinen Sedimentproben in einem 5 Liter Plastikeimer gesammelt. Nachdem genügend Sediment vorhanden war, wurde dieses mit einem Sieb von 1mm Gitterabstand in einen 10 Liter Eimer gesiebt. Nach dem Sieben wurde die Gesamtprobe im Eimer homogenisiert. Von diesem homogenisierten Sediment wurden ca. 2 große Hände in einen 5 Liter Eimer gegeben, der mit 2 Papieren Küchenrolle ausgelegt war. Dieser Zeitpunkt wurde als Probenahmezeit für das Sediment im Messprotokoll notiert. Die Teilprobe wurde in mehreren Durchgängen mittels Küchenpapier getrocknet und anschließend in eine Plastiktüte umgefüllt. Von dem getrockneten Sediment aus der Plastiktüte wurde so viel entnommen, dass eine 250 Milliliter Kautexflasche zu 1/3 gefüllt war. Die anderen 2/3 dieser Flasche wurden mit destilliertem Wasser aufgefüllt und die Probe wurde anschließend geschüttelt. Dann musste unter gelegentlichem Schütteln für mindestens 15 min die Gleichgewichtseinstellung abgewartet werden. Anschließend wurde die Redoxmessung analog zum Wasser durchgeführt. Auch hier war es wichtig drauf zu achten, dass mindestens ein Redoxwert existiert, welcher über mindestens eine Minute konstant war. Bei einigen, vor allem sehr feinen Sedimentproben erforderte dieses einen längeren Messzeitraum als 20-30 Minuten. Der Rest des gesiebten und homogenisierten Sediments wurde in zwei 1 Liter Kautexflaschen abgefüllt. Am Ende des Probennahmetages wurden weitere Messungen durchgeführt. Dazu wurde ein großes Schnappdeckelgläschen zu 1/3 mit Sediment gefüllt und anschließend mit Calciumchloridlösung soweit ergänzt, dass die pH-Elektrode noch hinein passte. Nachdem diese Probe unter gelegentlichem Schütteln 30 Minuten Zeit zur Gleichgewichtseinstellung hatte, wurde der pH-Wert mittels pH-Wert Elektrode gemessen. Die Leitfähigkeit wurde im selben Ansatz wie der Redoxwert gemessen. Sowohl bei der pH-Wertmessung als auch bei der Leitfähigkeitsmessung wurden zusätzlich die Temperaturen notiert. Zur Messung des Nitratwertes wurden 100g Sedimentprobe und 100 Milliliter Calciumchloridlösung in einer 250 Milliliter Kautexflasche suspendiert. Diese benötigte unter gelegentlichem Schütteln 30 Minuten zur Gleichgewichtseinstellung und musste eine Temperatur von mindestens 15 Grad Celsius erreichen. Anschließend wurde der Nitratwert mit reflektrometrische Teststäbchen der Produktlinie Reflectoquant in Verbindung mit dem Reflektometer „RQflex 10 “ von Merck gemessen. Der Grenzbereich der Nitratstäbchen lag bei 5mg/L. Der Nitratwert wurde nicht bei allen Sedimentproben gemessen, da

zum Ende der zweiten Fahrt keine Messstäbchen mehr vorhanden waren. Bei allen Sedimentprobenmessungen wurde wieder notiert, wann die einzelnen Teilproben angesetzt und gemessen wurden.

Weitere Messungen:

Zusätzlich zu den oben beschriebenen Messungen wurde in einem 10 Liter Eimer, der mit Flusswasser gefüllt war, die Wassertemperatur ermittelt. Mit einem weiteren Thermometer wurde die Lufttemperatur gemessen. Weiterhin wurden die Probenahmestellen anhand von Fotos dokumentiert. Eine Ermittlung der jeweiligen Wassertiefen wurde auf Fotos mit einer Referenzperson im Wasser festgehalten.

C Danksagung

Zum Schluss möchte ich mich noch bei einigen Menschen bedanken, die maßgeblich zu dieser Arbeit beigetragen haben.

Als erstes möchte ich mich bei Herrn Prof. Dr. Clemens Walther bedanken, für die Möglichkeit meine Bachelor-Arbeit am Instituts für Radioökologie und Strahlenschutz zu schreiben.

Besonders möchte ich mich bei Dr. Stefan Bister und Frank Tawussi für die intensive und engagierte Betreuung bedanken. Dr. Stefan Bister danke ich für die interessanten und lehrreichen Probenahmefahrten. Bei Frank Tawussi möchte ich mich für die kompetente und hilfsbereite Betreuung bei der Gamma-Spektrometrie bedanken.

Ich danke Dr. Beate Riebe für ihren fachlichen Rat bei Fragen und Problemen.

Karl-Heinz Iwannek danke ich für die Bearbeitung der Kartendarstellungen.

Vielen Dank an Kim-Leigh Gabay, der mir bei Latex-Fragen und -Problemen stets hilfsbereit zur Seite stand.

Vielen Dank auch an alle Mitarbeiter des Instituts für Radioökologie und Strahlenschutz für die Unterstützung, die sehr angenehme Arbeitsatmosphäre und die vielen schönen Gespräche.

Als letztes möchte ich meiner Familie danken, die mich in dieser nicht immer ganz einfachen Zeit in jeder Hinsicht unterstützt hat.