



Institut für Radioökologie und Strahlenschutz  
Leibniz Universität Hannover

Bachelorarbeit

## **Messung natürlicher Radioaktivität in der Umwelt**

### **Measurement of naturally occurring radioactive materials in the environment**

**von**

**Peter Christian Peest**

Erstprüfer: Prof. Dr. rer. nat. R. Michel

Zweitprüfer: Prof. Dr. Gunnar Friege

Betreuung: Dr. J.-W. Vahlbruch

Hannover, im November 2011

## Kurzfassung

In dieser Bachelorarbeit werden die Aktivitäten von verschiedenen Umweltproben bestimmt. Dazu werden zuerst die Grundlagen des Kernzerfalls theoretisch dargelegt. Anschließend folgen eine Erläuterung der Gammaskpektrometrie und deren Besonderheiten.

Der eigentliche Hauptteil der Arbeit besteht aus der Probenaufbereitung und zuverlässigen Bestimmung von Aktivitäten einzelner Nuklide. Dazu werden Proben unter anderem aus den Bereichen der Erdölförderung, des Reaktorunglücks von Tschernobyl, der Schmuckindustrie und aus einer ehemaligen Uranbergbaustadt vermessen. Aufgrund der unterschiedlichen Ursprünge und Geometrien der Proben wird besonderer Wert auf die Messanordnungen gelegt, um die quantitative Bestimmung der Aktivitäten möglichst exakt durchführen zu können.

Dabei überspannen die gefundenen Aktivitäten einen Bereich von einigen Zerfällen pro Sekunde und Kilogramm der Probe ( $10^0 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ ) bis hin zu mehreren Tausend Zerfällen pro Sekunde und Gramm der Probe ( $10^6 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ ).



**Bachelorarbeit von  
Herrn Peter Christian Peest  
Matr.-Nr.: 2668830**

Messung natürlicher Radioaktivität in der Umwelt

Nach § 4 PO 2006 beträgt die Bearbeitungszeit 5 Monate.

Ausgabe der Aufgabenstellung am: 04. Juli 2011

Erstprüfer: Prof. Dr. rer. nat. R. Michel

Zweitprüfer: Prof. Dr. Gunnar Friege

Betreuer: Dr. J.-W. Vahlbruch

Eigenständigkeitserklärung

Hiermit erkläre ich, dass ich die vorliegende Bachelorarbeit selbständig verfasst und keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel verwendet habe. Alle Stellen der Arbeit, die wörtlich oder sinngemäß aus anderen Quellen übernommen wurden, sind als solche gekennzeichnet. Ich habe die Arbeit in gleicher oder ähnlicher Form bei keiner anderen Prüfungsbehörde vorgelegt.

Hannover, den 21. November. 2011

.....  
(Christian Peest)

## Inhaltsverzeichnis

Kurzfassung .....	I
Eigenständigkeitserklärung .....	III
Inhaltsverzeichnis .....	IV
1 Einleitung .....	1
2 Grundlagen der Radioaktivität.....	2
2.1 Kernaufbau und -zerfall .....	2
2.1.1 Wirkung von ionisierender Strahlung auf den Menschen .....	3
2.2 Radioaktive Gleich- und Ungleichgewichte.....	4
2.2.1 Säkulares Gleichgewicht .....	5
2.2.2 Transientes Gleichgewicht.....	6
2.2.3 Kein Gleichgewicht .....	7
2.2.4 Störungen radioaktiver Gleichgewichte .....	7
2.3 Für diese Arbeit relevante Zerfallsreihen und Nuklide .....	10
2.3.1 Uran-Radium Reihe .....	10
2.3.2 Uran-Actinium Reihe .....	11
2.3.3 Thorium Reihe .....	11
2.3.4 Uran.....	12
2.3.5 Kalium.....	12
2.3.6 Cäsium .....	13
2.3.7 Blei .....	14
2.3.8 Promethium .....	14
3 Gammaskopiermetrische Grundlagen für Germaniumdetektoren.....	15
3.1 Wechselwirkung von Gammastrahlung mit Materie.....	15
3.1.1 Photoeffekt .....	15
3.1.2 Compton-Effekt.....	15
3.1.3 Paarbildung und Paarvernichtung .....	16
3.2 Detektoraufbau .....	16
3.2.1 Halbleiterdioden.....	16
3.2.2 Realisierung eines Detektors .....	18
3.3 Kalibrierung .....	21
3.3.1 Folienmethode.....	22
3.3.2 Nuklidstandards.....	24
3.3.3 Kalibration der Energie .....	25
3.3.4 Kalibration der Halbwertsbreite.....	25
3.3.5 Jäckel-Westmeier-Funktion .....	25

---

3.3.6	Summationskorrektur.....	26
3.4	Auswertung und Statistik .....	27
3.4.1	Unsicherheiten.....	28
3.4.2	Erkennungs- und Nachweisgrenzen.....	29
3.4.3	Verwendete Linien .....	29
3.4.4	Gestörte Linien .....	30
3.5	Qualitätssicherung.....	30
3.5.1	IAEA Proficiency Test IAEA-CU-2010-03 .....	30
3.5.2	Ringversuch von Herrn Prof. Philipsborn.....	31
3.5.3	Gasdichtigkeit.....	32
4	Messung und Auswertung der Proben .....	34
4.1	Proben der Erdöl und Erdgas fördernden Industrie .....	34
4.2	Rückstellprobenvergleichsmessung .....	38
4.3	Lochpappenmessungen .....	42
4.4	Glaszylinder.....	48
4.5	Sonstige Proben .....	52
5	Zusammenfassung und Ausblick .....	57
6	Literaturverzeichnis.....	58
7	Abbildungsverzeichnis .....	61
8	Tabellenverzeichnis .....	63
9	Anhang.....	68

# 1 Einleitung

In der öffentlichen Diskussion über Radioaktivität herrscht ein großes Maß an Unwissenheit über die Wirkungsweise und die Geschichte der Verwendung radioaktiver Materialien. Dies zeigt sich bereits am Begriff Radioaktivität. Radioaktivität bezeichnet in seiner ursprünglichen Bedeutung nur die Eigenschaft von Atomkernen, sich umzuwandeln und dabei Energie abzugeben. Die Wirkung auf den Menschen geht von der abgegebenen Energie aus, diese wird in der Fachsprache als ionisierende Strahlung bezeichnet, in den Medien wird häufig der Begriff der radioaktiven Strahlung verwendet, der irreführend ist. Auch wird teilweise angenommen, durch ionisierende Strahlung könnten die bestrahlten Objekte radioaktiv werden. Dies ist nur in Ausnahmefällen (Neutronen oder Teilchenbeschleunigerpartikel) möglich.

Radioaktive Teilchen lassen sich mit Messgeräten sehr gut messen. Bereits mit einfachen Geräten lässt sich die natürliche Umgebungsstrahlung nachweisen, der alle Menschen seit ihrer Geburt ausgesetzt sind. Mit geeigneten Messmethoden lassen sich sehr präzise auch kleinste Mengen radioaktiver Substanzen nachweisen, so ließ sich zwei Wochen nach dem Reaktorunfall in Fukushima in der Luft in Deutschland erstmals radioaktives Iod nachweisen, welches mit größter Sicherheit aus dem Reaktor stammt. Etwa ein Iod-Atom zerfiel pro Sekunde in einem Volumen von  $16.000 \text{ m}^3$  (ein Würfel von über 25 m Kantenlänge;  $60 \text{ } \mu\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ ). In Medienberichten wurde teilweise spekuliert, dass der Unfall somit auch in Deutschland ein Gesundheitsrisiko darstellt.

Die Angst vor Radioaktivität ist verständlich, die Wirkung von ionisierender Strahlung auf den Menschen ist nachweisbar und es können negative Folgen auftreten, die bis zum Tod reichen. Jedoch muss dabei berücksichtigt werden, dass in  $16.000 \text{ m}^3$  normaler Raumluft pro Sekunde etwa eine Million Atomkerne natürlichen Radons zerfallen ( $58 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ ). Das gemessene Iod war somit ein Beweis der außerordentlichen Präzision der Messgeräte und kein Hinweis auf ein Gesundheitsrisiko in Deutschland.

Mitte der zwanziger Jahre waren die Gesundheitsrisiken noch nicht bekannt und der Umgang mit radioaktiven Elementen völlig anders. Gerüchte von Wunderheilungen konnten damals leicht ein großes Publikum erreichen. Schmuck, Cremes und sogar Getränke wurden mit Radium, einem radioaktiven Element, versetzt. In den verschiedenen Präparaten zerfallen noch heute jeweils bis zu einige hunderttausend Atome pro Sekunde.

Für die Bewertung von Gefahren ist es daher von großer Wichtigkeit, den Zahlenwert und den Exponenten der Aktivität einer radioaktiven Probe zu kennen. Der Exponent unterscheidet eine Gefahr für den Menschen von einer bemerkenswerten Messleistung.

Daher wird in der vorliegenden Bachelorarbeit bei verschiedenen Proben aus dem natürlichen Umfeld des Menschen nach Atomsorte aufgeschlüsselt aufgelistet, wie viele Zerfälle pro Sekunde jeweils in der Probe stattfinden.

Zum Verständnis werden zunächst die Grundlagen der Radioaktivität und der verwendeten Messgeräte erläutert, danach folgt die Besprechung der Proben und deren Messergebnisse. Ein Teil der Proben stammt von der Erdöl und Erdgas fördernden Industrie, bei denen große Materialmengen aus tiefen Gesteinsschichten gefördert werden.

## 2 Grundlagen der Radioaktivität

Zum Verständnis der Bachelorarbeit ist es notwendig, die grundlegenden Prinzipien der Radioaktivität zu kennen. Diese werden in diesem Kapitel kurz zusammengefasst, für tieferes Verständnis sei auf [LIE91] verwiesen.

### 2.1 Kernaufbau und -zerfall

Atomkerne bestehen, im hier angenommenen vereinfachten Schalenmodell, aus Protonen und Neutronen. Die Anzahl der Protonen bestimmt die Anzahl der Hüllenelektronen. Diese legen fest, um welches Element es sich handelt und welche chemischen Eigenschaften es hat. Die Neutronen sind elektrisch neutral und ihre Anzahl plus die der Protonen ergibt die Massenzahl und das Isotop [SIE96]. In der vorliegenden Arbeit wird meist der Elementname mit angehängter Massenzahl genannt (z.B. Uran-238: 92 Protonen und 146 Neutronen).

Viele Isotope einzelner Elemente sind instabil und zerfallen. Das Ursprungsnuklid wird i.a. Mutternuklid und das Nuklid, welches nach dem Zerfall vorliegt, Tochternuklid genannt.

Die Mutternuklide strahlen ionisierende Teilchen und elektromagnetische Wellen ab. Die wichtigsten Zerfälle sind der Alpha-, der Beta- und der Gamma-Zerfall:

#### $\alpha$ -Zerfall

Das Mutternuklid sendet einen Heliumkern aus, der aus zwei Protonen und zwei Neutronen besteht. Der Heliumkern gibt seine Energie durch zufällige Stöße weiter an andere Atomkerne. Dabei kann bei einem Stoß aufgrund der Impulserhaltung nicht die gesamte Energie übertragen werden, sondern nur ein Teil davon, da die Elemente der Luft i.A. viel schwerer sind als der Heliumkern. Da pro Stoß einige Prozent der Energie übertragen werden können, ist die Reichweite von alpha-Strahlung selbst in der Luft sehr begrenzt. Als Näherung ist sie etwa 1cm pro MeV Anfangsenergie. In Flüssigkeiten oder Festkörpern ist die Reichweite nochmals geringer, so reicht z.B. bereits ein Blatt Papier, um  $\alpha$ -Strahlung abzuschirmen.

#### $\beta$ -Zerfall

Bei diesem Zerfall sind zwei Arten zu unterscheiden: Der  $\beta^+$ -Zerfall und der  $\beta^-$ -Zerfall.

Beim  $\beta^-$ -Zerfall wandelt sich ein Neutron in ein Proton um und sendet dabei ein Elektron aus.

Beim  $\beta^+$ -Zerfall wandelt sich ein Proton in ein Neutron um und sendet dabei ein Positron aus.

Beide Teilchen werden als  $\beta$ -Strahlung bezeichnet. Die Reichweite in Luft beträgt mehrere Meter, da Stöße mit Luftmolekülen seltener sind (das  $\beta$ -Teilchen ist kleiner als das  $\alpha$ -Teilchen) und aufgrund ihrer kleinen Masse auch weniger Energie pro Stoß übertragen werden kann. Zum vollständigen Abschirmen werden einige Zentimeter Aluminium benötigt.

#### $\gamma$ -Zerfall

Beim  $\gamma$ -Zerfall werden keine Teilchen abgestrahlt, sondern hochenergetische elektromagnetische Strahlung (mehr als 50keV pro Photon [SIE96]). Daher ändert sich das Nuklid nicht in seiner Massen- oder Ordnungszahl. Bei den meisten Zerfällen werden auch  $\gamma$ -Strahlen produziert. Die Reichweite in Luft ist nahezu unbegrenzt, zum Abschirmen werden mehrere Meter Blei oder Wasser benötigt.

### 2.1.1 Wirkung von ionisierender Strahlung auf den Menschen

Wenn die Zerfalls-Strahlung ihre Energie abgibt, so wird das Atom, das sie aufnimmt, i.Allg. ionisiert, es verliert ein oder mehrere Elektronen. Daher wird diese Strahlung „ionisierende Strahlung“ genannt.

In Molekülen werden durch ionisierende Strahlung Bindungen gelöst und das Molekül kann zerbrechen. Die Schädigung durch ionisierende Strahlung ist umso höher, je näher die Ionisationen beieinander liegen, bei  $\alpha$ -Strahlung sind diese sehr nah zusammen, bei  $\gamma$ -Strahlung sehr weit voneinander entfernt. Zur einheitlichen Bewertung von Gefahren ionisierender Strahlung gibt es die „Äquivalentdosis“, welche in Sievert (Sv) angegeben wird. Bei der Berechnung werden die Art der Strahlung, die Dichte des Absorbermaterials und die Ionisierungsdichte berücksichtigt [FEL86].

Wenn ionisierende Strahlung in eine Zelle gelangt, kann dies zu direkten und indirekten Schädigungen führen. Direkt, wenn Zellmoleküle beschädigt werden (z.B. die DNA oder Mitochondrien) und indirekt, wenn im Zellplasma Radikale oder Peroxide gebildet werden und diese dann Zellmoleküle beschädigen.

Die meisten dieser Schädigungen können von den Zellen repariert werden, wenn jedoch mehrere Schädigungen gleichzeitig auftreten oder sie zu gravierend sind, stirbt die Zelle.

Dabei unterteilen sich die Schäden in somatische und genetische. Somatische Schädigungen betreffen das bestrahlte Individuum. Genetische Schäden bezeichnen Schäden, die bei den Nachkommen auftreten, und zum Beispiel Missbildungen verursachen.

Die Schäden werden weiter unterteilt in deterministische und stochastische Schäden. Deterministische Schäden treten wenige Stunden nach der Bestrahlung auf und sind eindeutig durch die Strahlenbelastung zurückzuführen. Sie beginnen bei leichter Veränderung des Blutbildes (ab etwa 0,3 Sv). Bei stärkerer Belastung kommt es zu Müdigkeit, Übelkeit und Durchfall (ab 1 Sv) und bei sehr starker Belastung kann ionisierende Strahlung zum Tod führen (ab etwa 4 Sv). Es gibt untere Grenzen für die verschiedenen Schädigungen, unter denen eine Schädigung sehr unwahrscheinlich ist. Ausgenommen sind davon jedoch Personen mit einem speziellen Gendefekt, bei denen schon sehr geringe Dosen Probleme verursachen können [FEL86].

Stochastische Schäden bezeichnen Schädigungen, die erst Wochen, Monate oder Jahre später auftreten. Bei stochastischen Schäden kann nachgewiesen werden, dass das Risiko steigt, an einer Krankheit (z.B. Krebs) zu erkranken je höher die erhaltene Dosis ist. Allerdings kann nicht definitiv entschieden werden, ob die Schädigung ohne Exposition nicht aufgetreten wäre. Es gibt für stochastische Schäden keine untere Schwelle und jede erhaltene Dosis wird lebenslang aufsummiert. Für Tumore steigt das Risiko um etwa 5% pro Sv Lebenszeitdosis [ICRP07].

Trotz der hier aufgelisteten durch ionisierende Strahlung entstehenden Schäden ist eine vollständige „Vermeidung von Radioaktivität“ nicht möglich, da alle Menschen der natürlichen Radioaktivität ausgesetzt sind. In Deutschland sind dies etwa 4 mSv pro Jahr. Sie besteht unter anderem aus kosmischer und terrestrischer Strahlung und aus Exposition durch das Einatmen von Radon, was verdünnt fast überall vorkommt. Dazu kommen das körpereigene Kalium (siehe auch 2.3.5) und die bildgebende Medizin, bei der einzelne Körperteile mit Röntgenstrahlung bestrahlt werden und somit einer Strahlenexposition ausgesetzt sind.

Auch auf einem zehnstündigen Langstreckenflug erhalten alle Reisende etwa 0,05 mSv, da durch die Flughöhe von 10 km die kosmische Strahlung weniger abgeschirmt wird.

Trotz dieser natürlichen Quellen ist die Strahlenbelastung grundsätzlich möglichst gering zu halten, um die oben genannten Schädigungen zu vermeiden. In Deutschland ist dies mit dem Atomgesetz, was auch die Strahlenschutzverordnung (StrlSchV) enthält, geregelt.

## 2.2 Radioaktive Gleich- und Ungleichgewichte

Der Zeitpunkt, an dem ein Atomkern zerfällt, ist völlig zufällig. Es gibt weder eine maximale Lebensdauer, nach der alle Nuklide zerfallen sind, noch eine minimale, zu der noch kein Nuklid zerfallen ist.

Die Anzahl der Atomkerne, die in einem Zeitintervall zerfallen, hängt nur von zwei Faktoren ab. Zum einen von der Menge der Atomkerne, die betrachtet wird und zum anderen von der Zerfallskonstante  $\lambda$ . Die Zerfallskonstante ist für alle Kerne eines Nuklids gleich und ist ein Maß für die Zerfallsgeschwindigkeit [SIE96].

$$\frac{dM}{dt} = -\lambda \cdot M \quad (1)$$

Diese Differentialgleichung wird vom Zerfallsgesetz gelöst

$$M(t) = M_0 \cdot e^{-\lambda \cdot t} \quad (2)$$

Über die Zerfallskonstante kann man auch die Halbwertszeit berechnen, das ist die Zeit, in der von einer beliebigen Menge radioaktiver Mutternuklide die Hälfte zerfallen ist.

$$T_{1/2} = \frac{\ln 2}{\lambda} \quad (3)$$

Sie ist konstant und reicht bei den natürlich vorkommenden Radionukliden von einigen Nanosekunden (z.B. Polonium-212) bis hin zu 14 Milliarden Jahren (Thorium-232). Auch ist das Tochternuklid nicht zwangsweise stabil, sodass können sich sog. Zerfallsreihen bilden können. Bei diesen zerfällt ein Mutternuklid über viele Zwischenstationen zu einem Endnuklid (meist ein Blei-Isotop).

Zwischen Mutter- und Tochternuklid können sich Gleichgewichte ausbilden. Zur Veranschaulichung wird folgende Zerfallsreihe betrachtet:



Hierbei zerfallen die Mutteratome M mit einer Zerfallskonstante  $\lambda_M$  zu den Tochteratomen T, welche mit der Zerfallskonstante  $\lambda_T$  in ein Endprodukt X zerfallen. X kann auch für eine weitere Zerfallskette stehen. Für die Mutter gilt das Zerfallsgesetz wie in Formel (2). Bei der Tochter muss in der Differentialgleichung berücksichtigt werden, dass sie durch das Zerfallen der Mutter nachproduziert wird [SOL10].

$$\frac{dT}{dt} = -\frac{dM}{dt} - \lambda_T \cdot T \quad (5)$$

In [LIE91] und [SOL10] wird mit den Formeln (1) und (5) das Aktivitätsverhältnis von Tochter zur Mutter hergeleitet. Dies gilt für den Fall, dass zum Zeitpunkt  $t = 0$  keine Tochteratome in der Probe enthalten sind.

$$\frac{A_T(t)}{A_M(t)} = \frac{\lambda_T}{\lambda_T - \lambda_M} \cdot (1 - e^{-(\lambda_T - \lambda_M) \cdot t}) \quad (6)$$

Das Aktivitätsverhältnis hängt somit nur von den Zerfallskonstanten von Mutter und Tochter ab.

Für unterschiedliche Kombinationen der Zerfallskonstanten ergeben sich verschiedene Verläufe des Aktivitätsverhältnisses, i.Allg. werden drei Verläufe unterschieden

- $\lambda_T \gg \lambda_M$  säkulares Gleichgewicht
- $\lambda_T > \lambda_M$  transientes Gleichgewicht
- $\lambda_T < \lambda_M$  kein Gleichgewicht

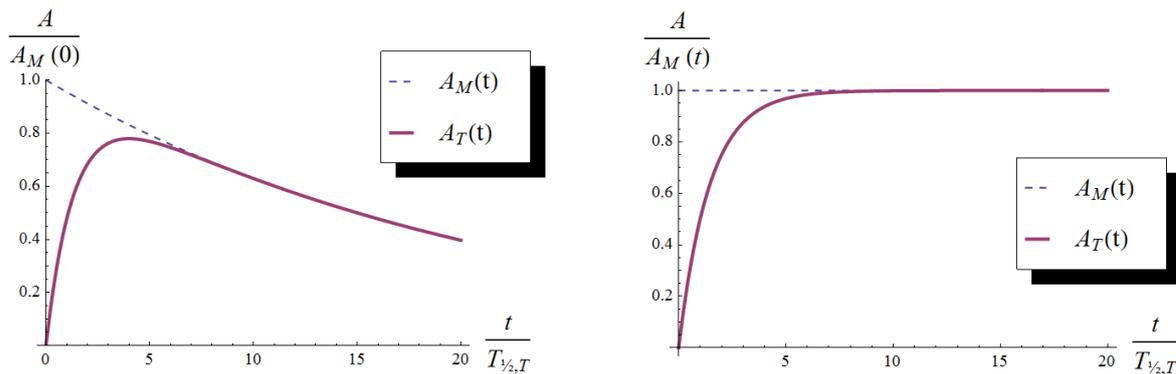
### 2.2.1 Säkulares Gleichgewicht

Wenn die Zerfallskonstante der Tochter sehr viel größer als die der Mutter ist, so ist dies gleichbedeutend damit, dass die Halbwertszeit der Tochter im Vergleich zur Mutter sehr klein ist. Auch kann als Näherung angenommen werden, dass  $\lambda_T - \lambda_M \approx \lambda_T$ .

Die Formel (6) kann somit vereinfacht werden

$$\frac{A_T(t)}{A_M(t)} \approx 1 - e^{-\lambda_T \cdot t} = 1 - e^{-\ln 2 \cdot \frac{t}{T_{1/2,T}}} \quad (7)$$

Der Verlauf der Aktivitäten ist in **Abb. 2.1** mit der Näherung für  $T_{1/2,M} = 15 \cdot T_{1/2,T}$  graphisch dargestellt. Die Aktivität der Tochter ist nach sieben Halbwertszeiten auf 99,2% der Aktivität der Mutter angestiegen und nähert sich dieser weiter an.



**Abb. 2.1** Verlauf der Aktivitäten von Mutter und Tochter in einem säkularen Gleichgewicht mit  $T_{1/2,M} = 15 \cdot T_{1/2,T}$ , Zeitachse auf Halbwertszeiten der Tochter normiert.  
 Links: Aktivität auf Anfangsaktivität der Mutter normiert.  
 Rechts: Aktivität auf zeitlichen Verlauf der Aktivität der Mutter normiert.

Ein wichtiges Beispiel für das säkulare Gleichgewicht ist der Zerfall vom Radium-226 in das Radon-222. Radium-226 ist Teil der Uran-Radium-Zerfallsreihe (siehe 2.3.1), hat eine Halbwertszeit von 1600 Jahren und ist in vielen Proben dieser Arbeit enthalten. Radon ist bei Raumtemperatur gasförmig und hat eine Halbwertszeit von 3,8 Tagen. Daher entweicht es bei der Probenaufbereitung aus der Probe. Damit das Radon-222 mit gleicher Aktivität vorliegt wie das Radium-226, ist es notwendig etwa einen Monat (sieben Tochterhalbwertszeiten) zu warten, bevor Messungen durchgeführt werden sollten (siehe auch 2.2.4).

Zusätzlich gibt es in den natürlichen Zerfallsreihen (2.3.1 - 2.3.3) häufig kurzlebige Töchter, die von langlebigen Müttern abstammen. Wenn die Probe im Vergleich zur Halbwertszeit der Tochter lange verschlossen ist, so nähert sich die Tochteraktivität säkular der Mutteraktivität an. Die (radioaktiven) Produkte der Tochter werden dann von der Tochter wie von der langlebigen Mutter nachproduziert und können so auch ein säkulares Gleichgewicht einge-

hen. Dies ist auch dann möglich, wenn ihre Halbwertszeit länger ist als die der Tochter und sich nach 2.2.3 kein Gleichgewicht einstellen sollte.

### 2.2.2 Transientes Gleichgewicht

Das transiente Gleichgewicht ist ein allgemeiner Fall des säkularen Gleichgewichts. Die Halbwertszeit der Tochter ist kürzer als die der Mutter, jedoch kann die Näherung  $\lambda_T - \lambda_M \approx \lambda_T$  nicht verwendet werden.

Der Gleichgewichtsfall wird erreicht, wenn sich das Aktivitätsverhältnis nicht mehr ändert. Dies ist der Fall, wenn der Klammerterm in (6) gegen 1 konvergiert. Wie beim säkularen Gleichgewicht müssen dazu etwa sieben „Angleichungs-Halbwertszeiten“ überschritten werden:

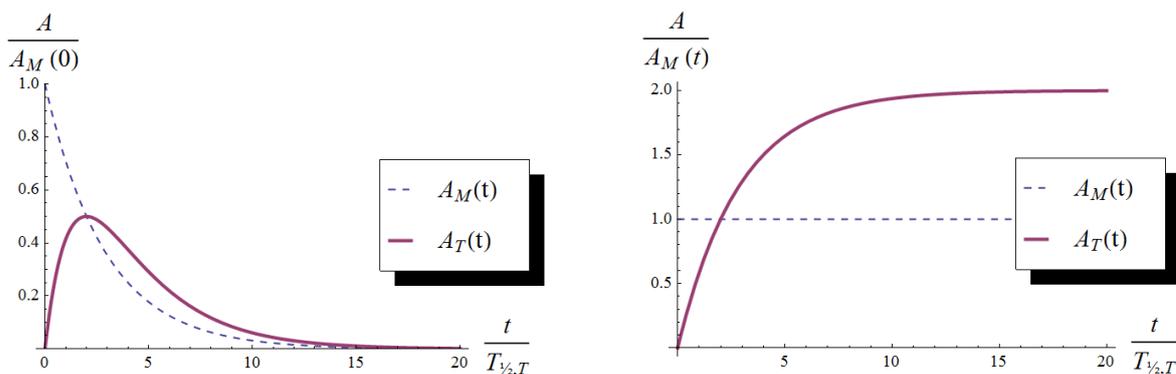
$$t \geq 7 \cdot T_{1/2} = 7 \cdot \frac{\ln 2}{\lambda_T - \lambda_M} \tag{8}$$

Je ähnlicher die Zerfallskonstanten sind, desto länger dauert es, bis sich das Gleichgewicht eingestellt hat. Wenn  $\lambda_T = 8 \cdot \lambda_M$  ist, ergibt sich  $t \geq T_{1/2,M}$ , das Gleichgewicht wird nach einer Halbwertszeit der Mutter erreicht. Wenn  $\lambda_T = 2 \cdot \lambda_M$  ist, gilt  $t \geq 7 \cdot T_{1/2,M}$  und das Gleichgewicht wird erst nach sieben Halbwertszeiten der Mutter erreicht.

Im Gleichgewichtszustand ist die Aktivität der Tochter nach (6) größer als die Aktivität der Mutter:

$$A_T(t) = \frac{T_{1/2,M}}{T_{1/2,M} - T_{1/2,T}} \cdot A_M(t) \quad ; \quad T_{1/2,T} < T_{1/2,M} \tag{9}$$

Somit gilt, je ähnlicher die Zerfallskonstanten sind, desto größer ist im Gleichgewicht die Aktivität der Tochter im Verhältnis zur Mutteraktivität. In **Abb. 2.2** ist der Verlauf der Aktivitäten von Tochter und Mutter für den Fall eines transienten Gleichgewichts mit  $T_{1/2,M} = 2 \cdot T_{1/2,T}$  dargestellt.



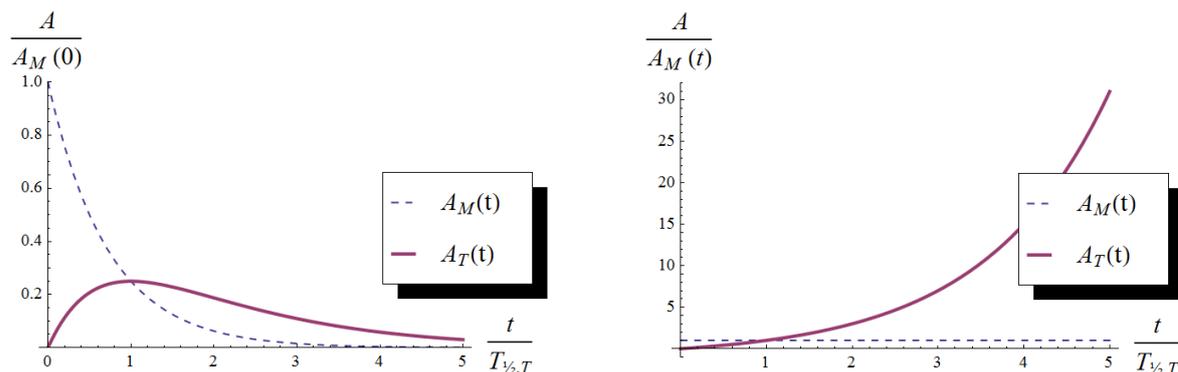
**Abb. 2.2** Verlauf der Aktivitäten von Mutter und Tochter in einem transienten Gleichgewicht mit  $T_{1/2,M} = 2 \cdot T_{1/2,T}$ , Zeitachse auf Halbwertszeiten der Tochter normiert.  
 Links: Aktivität auf Anfangsaktivität der Mutter normiert.  
 Rechts: Aktivität auf zeitlichen Verlauf der Aktivität der Mutter normiert.

Es ist erkennbar, dass die Aktivität der Tochter im Gleichgewicht doppelt so hoch ist wie die der Mutter, was auch nach (9) erwartet wird.

### 2.2.3 Kein Gleichgewicht

Wenn die Halbwertszeit der Tochter größer ist als die der Mutter ( $\lambda_T < \lambda_M$ ), wird die Tochter nicht während des Zerfalls nachproduziert wie bei den beiden Gleichgewichten oben, sondern wird erst in einem für die Tochter kurzen Zeitraum gebildet und zerfällt vor allem, nachdem die Aktivität der Mutter größtenteils abgeklungen ist.

Dies ist auch aus (6) ersichtlich, da dort der Klammerterm nicht gegen eins konvergiert, sondern immer weiter ins Negative fällt. Da der Vorfaktor ebenfalls negativ ist, steigt das Verhältnis mit der Zeit an. In **Abb. 2.3** ist der Verlauf der Aktivitäten während eines solchen Zerfalls gezeigt.



**Abb. 2.3** Verlauf der Aktivitäten von Mutter und Tochter, wenn sich kein Gleichgewicht einstellt,  $T_{1/2,M} = \frac{1}{2} \cdot T_{1/2,T}$ ; Zeitachse auf Halbwertszeiten der Tochter normiert.  
 Links: Aktivität auf Anfangsaktivität der Mutter normiert.  
 Rechts: Aktivität auf zeitlichen Verlauf der Aktivität der Mutter normiert.

In der Abbildung hat die Tochter die höchste Aktivität bei  $t = 1 \cdot T_{1/2,T}$ , was an der Wahl der Halbwertszeiten liegt und im Allgemeinen nicht der Fall ist. Immer gültig jedoch ist, dass die Tochter die höchste Aktivität hat, wenn sie die gleiche Aktivität wie die Mutter hat. Dies ist auch anschaulich zu erklären, da vorher die Tochter stärker nachgebildet wird, als sie zerfällt, die Anzahl der Tochteratome also steigt. Wenn die Aktivität der Tochter die der Mutter übersteigt, zerfallen mehr Tochteratome als nachgebildet werden, die Anzahl sinkt und die Aktivität ebenso.

### 2.2.4 Störungen radioaktiver Gleichgewichte

Würden die Atomkerne nie bewegt, stellten sich immer die obigen drei Gleichgewichte ein. Wie jedoch beim säkularen Gleichgewicht erwähnt, gibt es Prozesse, die ein radioaktives Gleichgewicht stören können, indem sie z.B. die Tochter aus einer Probe entfernen. Natürliche Prozesse können ausschließlich nach Elementen trennen, indem z.B. eine Pflanze einen radioaktiven Nährstoff, aber nicht seine Tochter, aus dem Boden aufnimmt.

Anthropogene, also menschengemachte Störungen können auch nach Isotopen trennen, zum Beispiel durch Zentrifugieren.

Im Folgenden sind die für diese Arbeit wichtigen Störungen aufgelistet.

### Abgereichertes Uran

Naturlassenes Uran besteht (siehe auch 2.3.4) zu 99,27% aus U-238 und zu 0,72% aus U-235. Für konventionelle Kernreaktoren wird Uran mit 4% U-235 benötigt, weswegen das U-235 „angereichert“ werden muss. Dazu werden Zentrifugen mit Uranhexafluoridgas (UF<sub>6</sub>) gefüllt. Da U-238 schwerer ist als U-235, ist es dichter und lagert sich eher außen in der Zentrifuge an, während das U-235 eher in der Mitte der Zentrifuge vorhanden ist. In der Mitte kann dann UF<sub>6</sub> mit etwas höherer Konzentration an U-235 entnommen werden. Über mehrere Zentrifugenstufen kann die Konzentration vom U-235 im Gas weiter erhöht werden. Die überschüssigen Mengen an U-238 werden als „abgereichertes Uran“ bezeichnet und werden gelagert oder verkauft und nur noch etwa 0,3% U-235 [STR01]. So werden momentan 500.000 Tonnen abgereichertes Uran in den USA gelagert [ANL11].

U-235 und U-238 können gammaspektrometrisch getrennt nachgewiesen werden. Aufgrund der unterschiedlichen Halbwertszeiten (U-235: 704 Mio. Jahre, U-238: 4,47 Mrd. Jahre) ist das Aktivitätsverhältnis von U-238 zu U-235 in Natururan nicht  $\frac{99,27\%}{0,72\%} \approx 138$ , sondern

$$\frac{99,27\% \cdot (4,5 \cdot 10^9 \text{a})^{-1}}{0,72\% \cdot (7 \cdot 10^8 \text{a})^{-1}} = 21,7.$$

Wenn es sich um abgereichertes Uran handelt, ist der U-235-Anteil

niedriger, es ergibt sich größeres Aktivitätsverhältnis, nämlich 51,6. Wenn es also gelingt, ein Aktivitätsverhältnis nachzuweisen, das deutlich größer ist als 22, so ist die Probe nach 1940 entstanden, da vorher noch keine Urananreicherung vorgenommen wurde.

### Selektiver Transport in Lagerstättenwasser

Da die natürlichen Zerfallsreihen überall in der Erdkruste existieren (siehe 2.3), kommen sie auch im Gestein von Erdöl- und Erdgasfeldern vor. Diese Lagerstätten enthalten auch immer Wasser, das bei der Förderung mit an die Erdoberfläche transportiert wird. Wasser löst die Mitglieder der Zerfallsreihen unterschiedlich gut (alle Halbwertszeiten der nächsten Absätze aus [KNK06]):

Von der Uran-Radium-Reihe werden die Elemente bis zum Thorium-230 nicht aus dem Gestein gewaschen, da sie wasserunlöslich sind. Radium-226 hingegen kann in chlorhaltigem Wasser die gut wasserlösliche Verbindung Radiumdichlorid (RaCl<sub>2</sub>) bilden und ausgewaschen werden [PTB17]. Mit einer Halbwertszeit von 1622 Jahren wird das Radium an die Oberfläche transportiert ohne vorher zu zerfallen.

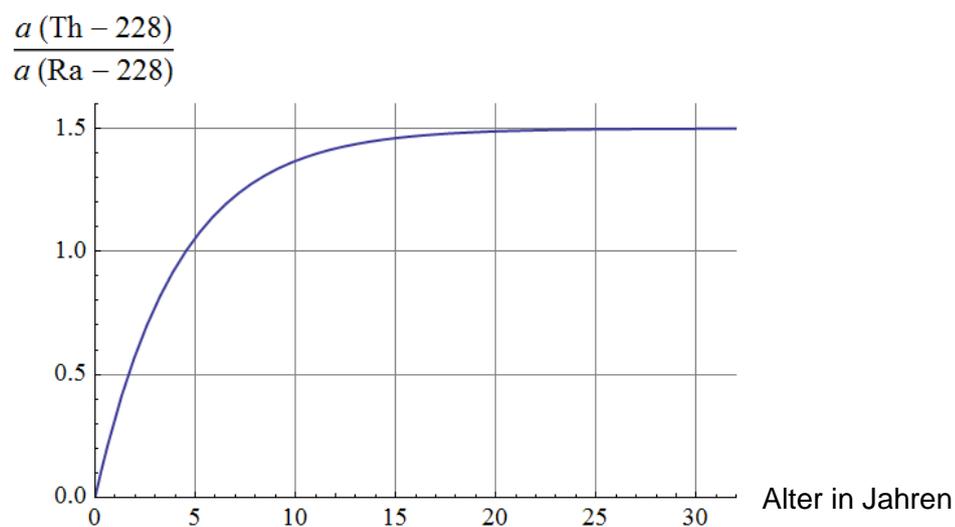
Das Radon-222 steigt, da es gasförmig ist, zusammen mit dem Lagerstättenwasser und dem Fördergut auf [STE10] und bildet, mit einer Halbwertszeit von 4 Tagen, das Blei-210 nach, wodurch dieses weiter angelagert wird.

Zusätzlich kann Blei in Form von Bleichlorid im Wasser gelöst werden, wodurch es sich zusätzlich anreichern kann [STE10]. In der Uran-Radium-Reihe kommen Blei-214 und Blei-210 vor (sowie Pb-206, was das stabile Endprodukt ist und somit radiologisch unbedeutend), wobei Pb-214 eine Halbwertszeit von 27 Minuten hat und somit kaum aus dem Gestein gewaschen werden kann, bevor es zerfällt. Blei-210 hingegen hat eine Halbwertszeit von 22 Jahren und kann an die Oberfläche gelangen.

Für die Thorium-Reihe verhält es sich ähnlich, das Mutternuklid Thorium-232 ist wasserunlöslich, die Töchter Radium-228 und später Radium-224 sind als RaCl<sub>2</sub> wasserlöslich und werden mit Halbwertszeiten von 6 Jahren bzw. 4 Tagen an die Oberfläche transportiert. Das

instabile Blei-212 wäre zwar wieder als Bleichlorid löslich, hat jedoch nur eine Halbwertszeit von 11 Stunden und ist somit nicht lange nachweisbar. Auch das Radon-220 hat nur eine Halbwertszeit von einer Minute und wird somit nicht zu Tage gefördert.

Nach Beginn der Anlagerung von Radium-228 wird Thorium-228 gebildet. Es kann somit ein transientes Gleichgewicht zwischen Radium-228 und Thorium-228 entstehen [STE10]. Über das Verhältnis der beiden Aktivitäten kann dann bestimmt werden, wann die Deposition stattgefunden hat, vorausgesetzt sie geschah gleichmäßig über einen kurzen Zeitraum. Wenn die Deposition über mehrere Jahre stattfindet, ergibt das mit **Abb. 2.4** bestimmte Alter einen zu niedrigen Wert. Somit kann, auch wenn die Efficiency (siehe 3.3.1) für einzelne Bereiche der Energieskala größere Ungenauigkeiten aufweist, diese Methode verwandt werden, da Radium-228 und Thorium-228 beide von 200 bis 1.000 keV Linien aufweisen und systematische Fehler somit gleichermaßen auf die gemessenen Aktivitäten beider Nuklide wirken.



**Abb. 2.4** Altersbestimmung durch säkulares Gleichgewicht, nach [STE10]. Das bestimmte Alter markiert etwa die Mitte der Anlagerung, je länger die Anlagerung dauerte, desto stärker sinkt somit das gemessene Alter im Vergleich zum Beginn der Deposition.

Die Uran-Aktinium-Reihe ist radiologisch von untergeordneter Rolle, da die löslichen Nuklide nur relativ kurze Halbwertszeiten haben, die längste hat das Radium-223 (12 Tage). Das langlebigste Tochterprodukt ist das Blei-211, mit 36 Minuten Halbwertszeit. Da die Proben der Erdölindustrie mindestens einige Monate alt sind, ist somit in ihnen kein Mitglied der Uran-Aktinium-Reihe nachweisbar.

#### Radon-222 Emanation

Viele Proben enthalten Nuklide aus der Uran-Radium-Reihe. Ein wichtiges Nuklid ist das Radium-226, welches mit 1600 Jahren Halbwertszeit zerfällt. Da Radium-226 gammaspektrometrisch zwar nachweisbar ist, sich jedoch die charakteristische Energie von 186 keV pro Photon mit einer Gamma-Emission vom U-235 teilt, ist muss die Aktivität des U-235 aus der Aktivität vom Radium herausgerechnet werden (siehe auch 3.4.4: Gestörte Linien). Wenn in der Probe Uran-235 nachgewiesen werden kann, die Aktivität jedoch zu gering für eine Aktivitätsbestimmung ist, kann die Radiumlinie nicht mehr direkt verwendet werden..

Die Tochter vom Radium-226, das Radon-222 mit vier Tagen Halbwertszeit, ist selbst gammaspektrometrisch nicht auswertbar, allerdings sind die Folgeprodukte bis zum Blei sehr kurzlebig (einige Sekunden bis Minuten Halbwertszeit). Daher bildet sich zwischen ihnen und dem Radon-222 nach 2.2.1 ein säkulares Gleichgewicht aus.

Da das Radon bei Normalbedingungen gasförmig ist, entweicht es bei der Aufbereitung, bei der die Probe zerkleinert wird. Auch sind die Petrischalen, in die die meisten Proben verpackt werden, nicht gasdicht, sodass die gemessenen Aktivitäten der Radontöchter i.Allg. geringer ausfallen als die vom Radium.

Im Gegenzug kann, wenn die Aktivität des Uran-235 ausreichend genau bestimmt werden kann oder im Vergleich zur Radium-226 vernachlässigbar ist, bestimmt werden, ob und wieviel Radon aus der Probe emaniert (siehe dazu auch „3.5.3 Gasdichtigkeit“).

## 2.3 Für diese Arbeit relevante Zerfallsreihen und Nuklide

Es gibt etwa 80 verschiedene natürliche und über 1500 künstlich erzeugte Radionuklide [SIE96]. Die natürlichen existieren entweder seit Entstehung der Erde auf ihr oder werden ständig nachgebildet. Entsprechend werden sie primordiale oder primäre Radionuklide und sekundäre oder kosmogene Radionuklide genannt.

Primordiale Radionuklide zeichnen sich durch besonders lange Halbwertszeiten aus und zerfallen nach und nach in ihre Töchter ohne nachproduziert zu werden. Hierzu gehören zum Beispiel Kalium-40, sowie die drei natürlichen Zerfallsreihen.

Kosmogene Radionuklide werden in der oberen Atmosphäre durch hochenergetische Teilchen ständig nachgebildet und haben geringere Halbwertszeiten. Zu ihnen gehört der Kohlenstoff-14, da dieser „nur“ eine Halbwertszeit von 6000 Jahren hat, wäre er mittlerweile komplett zerfallen.

Die künstlich erzeugten und für diese Arbeit relevanten Nuklide stammen meist aus kern-technischen Anlagen und haben Halbwertszeiten von bis zu einigen hundert Jahren.

Die drei natürlichen Zerfallsreihen beginnen bei den Mutternukliden Uran-238, Uran-235 und Thorium-232. Diese zerfallen jeweils über mehrere  $\alpha$ - und  $\beta$ -Zerfälle zu verschiedenen Bleinukliden. Da sich bei einem Alpha-Zerfall die Massenzahl um 4 verringert und bei einem Beta-Zerfall nicht, gibt es noch eine weitere Reihe, die sich von den drei anderen unterscheidet. Sie beginnt bei Neptunium-237, welches jedoch durch die geologisch betrachtete kurze Halbwertszeit von 2,2 Millionen Jahren bereits komplett zerfallen ist.

### 2.3.1 Uran-Radium Reihe

Beginnend mit dem Element Uran-238 werden alle Töchter des Nuklids der Uran-Radium-Reihe zugeordnet, die Massenzahlen sind  $4n + 2$ . Zu beachten ist das Bleinuklid Pb-210, da es mit einer Halbwertszeit von 22 Jahren in den Proben teilweise weit höher angelagert vorkommt als die Mutternuklide (vgl. auch 2.2.4: Selektiver Transport in Lagerstättenwasser). Auch das Radium-226 ist von großer Bedeutung, da es mit einer (aus menschlicher Sicht) langen Halbwertszeit von 1600 Jahren Anforderungen an langfristige Lagermöglichkeiten stellt.

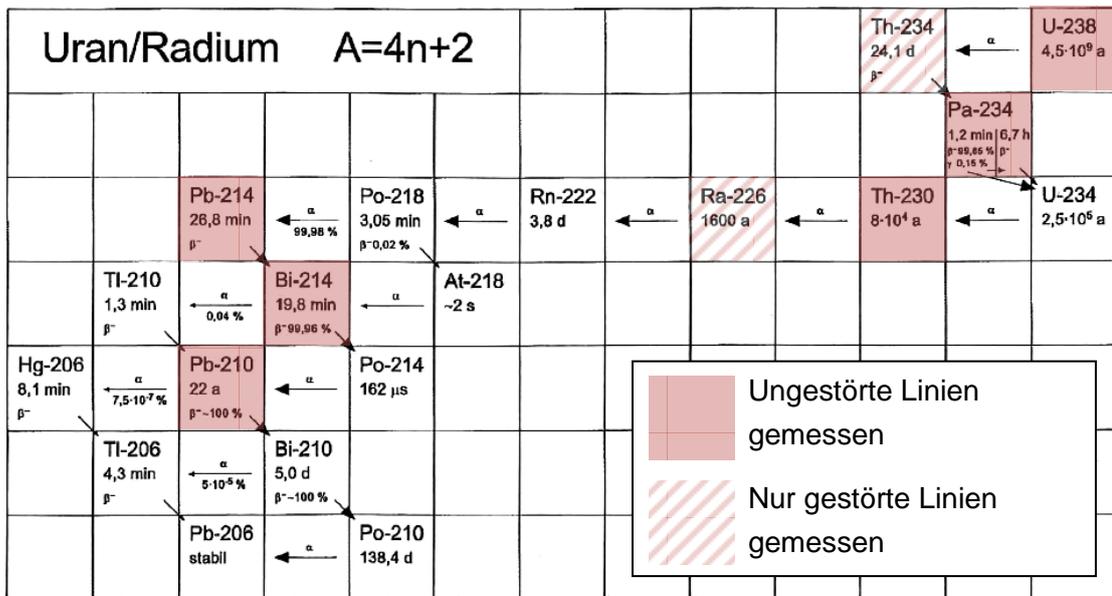


Abb. 2.5 Uran-Radium Reihe, entnommen aus [DEB92], eingefärbt nach 3.4.3

### 2.3.2 Uran-Actinium Reihe

In dieser Reihe sind die Elemente mit  $A = 4n+3$  zusammengefasst. Die Halbwertszeiten sind ab dem Actinium-227 auf einige Tage begrenzt, wodurch ab dem Thorium-227 die Reihe in den gemessenen Proben im säkularen Gleichgewicht ist. Das Radon in dieser Reihe hat nur eine Halbwertszeit von 4 Sekunden, verursacht bei verklebten Petrischalen also kein Problem bezüglich der Gasdichtigkeit.

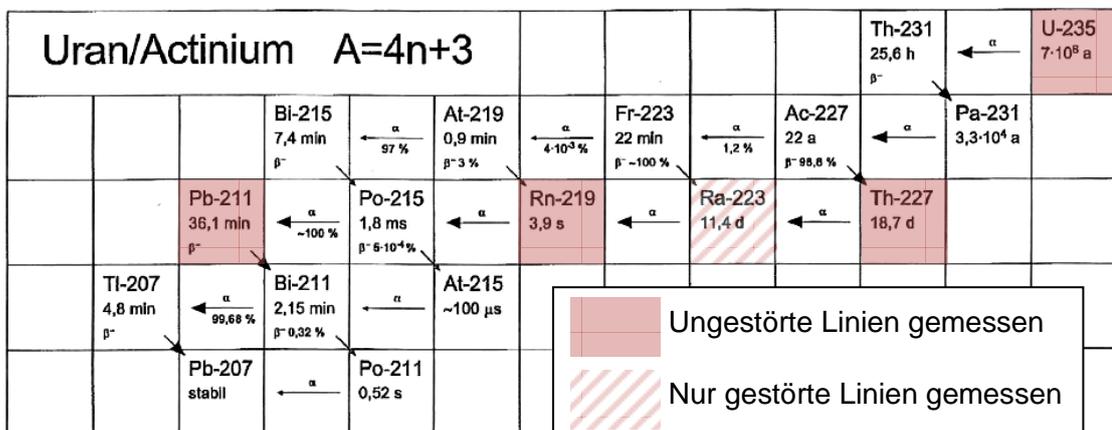


Abb. 2.6 Uran-Actinium Reihe, entnommen aus [DEB92], eingefärbt nach 3.4.3

### 2.3.3 Thorium Reihe

In dieser Reihe befinden sich die Elemente, deren Massenzahl ein ganzzahliges Vielfaches von vier ist. Längerfristig stabil sind vor allem das Radium-228 und das Thorium-228. Auch in dieser Reihe gibt es ein Radon-Isotop, was jedoch mit einer Halbwertszeit von etwa einer Minute nicht aus den Proben entweicht, bevor es zerfällt.

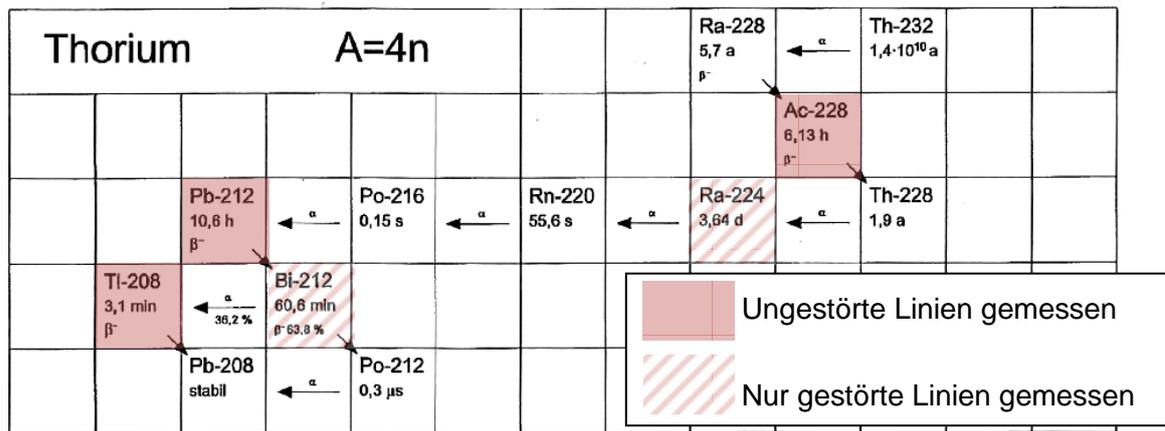


Abb. 2.7 Thorium Reihe, entnommen aus [DEB92], eingefärbt nach 3.4.3

### 2.3.4 Uran

Uran hat die Ordnungszahl 92 und ist ein primordiales Radionuklid. Natürliches Uran besteht zu 99,27% aus U-238, zu 0,72% aus U-235 und zu 0,005% aus U-234, welches als Tochter vom U-238 ständig nachgebildet wird [KNK06].

In der Natur vorkommendes Uran ist meist in sogenannter Pechblende enthalten. Der wissenschaftliche Name ist Uranit und dies ist ein schwarzes Mineral, welches vor allem aus Urandioxid (UO<sub>2</sub>) besteht [ÖRT07].

Chemische Verbindungen mit Uran können verschiedenste Farben hervorrufen.

Es gibt Gläser, Lacke und Glasuren mit Urananteilen, die in Ultraviolettem Licht gelb bis grün fluoreszieren. Uranverbindungen können auch Grau und Schwarztöne verursachen.

Besonders in Glasuren wurden mit Uranverbindungen Rot-Orange-Töne realisiert, weshalb im 19. und bis Mitte des 20. Jahrhunderts Uranglasuren Verwendung fanden [STR01].

Wie bereits unter 2.2.4 erwähnt, ist das Aktivitätsverhältnis von U-238 zu U-235 in naturbelassenem Uran 21,7, wenn es sich um abgereichertes Uran handelt, steigt das Verhältnis.

Das Aktivitätsverhältnis steigt in geologischen Zeiträumen an. Da die Halbwertszeit des U-235 kürzer ist als die des U-238, sinkt der Massenanteil im Uran langsam. So enthielt Natururan vor 2 Milliarden Jahren etwa 3% U-235. Damals hatte Natururan somit ein Aktivitätenverhältnis von 5, auf einen U-235-Zerfall kamen fünf U-238-Zerfälle.

### 2.3.5 Kalium

Als essentielles Spurenelement ist Kalium an vielen Prozessen innerhalb aller Zellen beteiligt und notwendig. Daher wird Kalium auch als Düngemittelzusatz benutzt. Insgesamt enthält ein Mensch mit 70 kg Körpergewicht 140 bis 240 g Kalium [CHA07]. Dieses besteht zu 99,88% aus den stabilen Isotopen K-39 und K-41. Zu 0,012% besteht es allerdings aus dem kosmogenen Radionuklid Kalium-40. Dieses hat eine Halbwertszeit von 1,25 Milliarden Jahren und zerfällt über einen beta-Zerfall. Zu gut 89% ist dies ein β<sup>+</sup>-Zerfall zu Calcium-40, in den restlichen knapp 11% ein β<sup>-</sup>-Zerfall zu Argon-40.

Um die Aktivität von 1g reinem Kalium zu berechnen, kann (1) genutzt werden:

$$A = - \frac{dN}{dt} = \lambda \cdot N = \frac{\log 2}{T_{1/2}} \cdot N \quad (10)$$

Die Anzahl „N“ an K-40 Atomen in 1g Kalium sind

$$N = 0,012\% \cdot 1 \text{ g} \cdot \frac{1 \text{ mol}}{39,09 \text{ g}} = 3,07 \cdot 10^{-6} \text{ mol} \quad (11)$$

Somit ergibt sich die Aktivität zu

$$A = \frac{\log 2}{3,94 \cdot 10^{16} \text{ s}} \cdot 3,07 \cdot 10^{-6} \cdot 6,022 \cdot 10^{23} \approx 32 \text{ Bq} \quad (12)$$

In einem Gramm reinem Kalium befinden sich also 32 Bq K-40, im gesamten menschlichen Körper somit 4.350 bis 7.450 Bq. Über das Jahr ergibt sich allein hierdurch eine Strahlenbelastung von 0,2 mSv [STR91].

### 2.3.6 Cäsium

Es gibt nur ein stabiles Cäsium-Isotop: Cäsium-133. Die Halbwertszeiten der anderen Isotope liegen zumeist im Bereich von bis zu einigen Tagen. Die drei Ausnahmen sind das Cäsium-134 mit 2 Jahren, das Cäsium-137 mit 30 Jahren und das Cäsium-135 mit 2,3 Millionen Jahren Halbwertszeit. Alle drei Isotope werden bei der Spaltung von Uran entweder direkt produziert oder sind die Töchter von Spaltfragmenten.

Das Cäsium-135 wird in Kernreaktoren kaum produziert, da die Mutter, das Xenon-135, sehr gut Neutronen absorbiert (ein sog. „Neutronengift“) und dann zum stabilen Xenon-136 wird.

Bei oberirdischen Kernwaffenversuchen und beim Tschernobyl-Unfall wurden große Mengen an Cäsium frei. Da das Cäsium-134 in sechs Jahren zu knapp 90% zerfällt, ist dies für die langfristige Strahlenbelastung nicht relevant. Das Cäsium-135 wurde bei den Kernwaffenversuchen auch frei, da das Xenon-135 nicht komplett umgewandelt wird. Allerdings emittiert Cäsium-135 keine Gammastrahlung, kann deswegen von dem benutzten Detektor nicht nachgewiesen werden.

Das Cäsium-137 zerfällt über einen beta-Zerfall zu Barium-137 bzw. Barium-137m, einem angeregten Zustand vom Barium. Wenn das Barium-137m in den Grundzustand übergeht, emittiert es einen Gammaquant mit einer Energie von 661,66 keV.

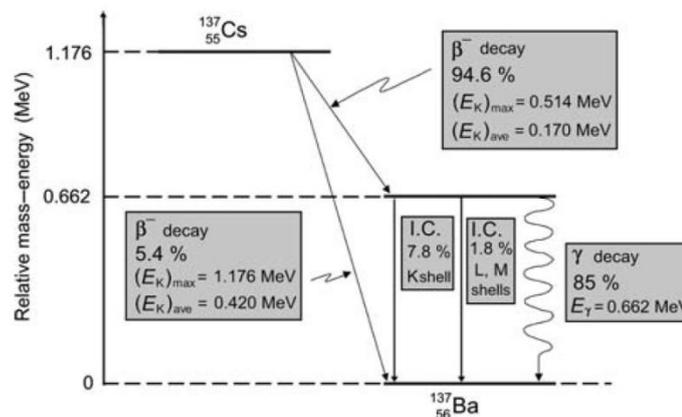


Abb. 2.8 Cäsium-137 Zerfallsschema, aus [POD10]

Da diese Energie genau bekannt ist, die Halbwertszeit mit 30 Jahren relativ lang ist und es sich um einen ein-Photonen-Übergang handelt (siehe 3.3.6 Summationskorrektur), wird

Cäsium-137 auch bei der Kalibration der Halbleiterdetektoren verwendet (siehe 3.3.2 Nuklidstandards).

### 2.3.7 Blei

Die drei natürlichen Zerfallsreihen enden alle in jeweils einem Bleiisotop. Blei ist mit 82 Protonen besonders stabil, dies kann quantenmechanisch erklärt werden, da im Schalenmodell das 82. Proton einen Schalenabschluss darstellt [LIE91]. Es existieren jedoch auch instabile Bleiisotope, hervorzuheben ist das Blei-210, welches ein Teil der Uran-Radium-Reihe ist. Es hat eine Halbwertszeit von 22 Jahren und zerfällt über einen Beta-Zerfall zu Bismut-210. Dabei wird Gammastrahlung mit einer Energie von 46,5 keV pro Photon frei. Dies ist eine besonders niedrige Energie und kann daher abgeschirmt werden. Das bedeutet jedoch auch, dass die Bestimmung der Aktivität des Blei-210 schwierig wird, wenn die Probe bereits selbst einen großen Teil der Gammastrahlung absorbiert, da es keine anderen Linien gibt, die von Elementen gleicher Aktivität stammen. Durch die relativ lange Halbwertszeit dauert es hunderte Jahre, bis sich ein radioaktives Gleichgewicht zu den Mutternukliden hergestellt hat und durch Radonemanation und selektiven Transport (siehe 2.2.4) kann das Gleichgewicht gestört werden.

Zusätzlich ist Blei als Schwermetall giftig, wenn es als Staub aus der Luft oder als gelöste Verbindung aufgenommen wird. Besonders problematisch ist hierbei, dass Blei erst in hohen Konzentrationen giftig wirkt und kaum aus dem Körper ausgeschieden wird, da es sich z.B. an den Knochen anlagert. Dadurch wird eine Vergiftung oft erst bemerkt, wenn die Knochen bereits eine gefährliche Bleikonzentration enthalten [STR91].

Dennoch wird Blei im Bereich des Strahlenschutzes verwendet, da es sich durch die hohe Dichte ( $11,34 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ ) dazu eignet, ionisierende Strahlung abzuschirmen. Das im Blei in Spuren vorhandene Blei-210 sorgt dabei am Detektor für einen Untergrund an Impulsen. So war die Blei-Untergrund-Rate an dem in der Bachelorarbeit verwendeten Detektor 0,0033 Impulse pro Sekunde.

### 2.3.8 Promethium

Promethium ist ein Nuklid, welches in der Natur nur in Spuren vorkommt. Es hat keine stabilen Nuklide, das langlebigste instabile ist das Promethium-145, mit einer Halbwertszeit von 17,7 Jahren [KNK07].

Die Quelle für das Promethium ist das Uran. Beim spontanen Zerfall oder der induzierten Spaltung von Uran kann Lanthan-147 entstehen, welches über verschiedene Nuklide zum Promethium-147 zerfällt. Ein anderer, aber unbedeutender Zerfallsweg ist der Alpha-Zerfall von Europium-151, welches jedoch eine Halbwertszeit von über  $10^{18}$  Jahren hat (vgl. Alter des Universums:  $1,3\cdot 10^{10}$  Jahre) [BEL07].

Promethium wird vor allem aus abgebrannten Brennstäben eines Kernreaktors gewonnen.

## 3 Gammaspektrometrische Grundlagen für Germaniumdetektoren

Da das Thema dieser Bachelorarbeit die Bestimmung der Aktivität von verschiedenen Umweltproben ist, wurde besonderer Wert auf die korrekte gammaspektrometrische Auswertung der Proben gelegt.

In diesem Kapitel werden die für die Detektierung relevanten Wechselwirkungsmechanismen von Gammastrahlung mit Materie dargelegt und der Detektoraufbau erläutert.

Anschließend wird die Auswertung der Messergebnisse weiter beleuchtet und Grenzen der verwendeten Verfahren aufgezeigt.

### 3.1 Wechselwirkung von Gammastrahlung mit Materie

Um Gammastrahlung zu detektieren, muss diese mit dem Detektor wechselwirken. Bei den Versuchen für diese Bachelorarbeit wird ein Germanium-Detektor verwendet. In diesem sind nicht alle Wechselwirkungsmechanismen von Gammastrahlung mit Materie relevant, sondern nur der Photoeffekt, der Compton-Effekt und die Paarbildung.

#### 3.1.1 Photoeffekt

Beim Photoeffekt wechselwirkt der Gammaquant mit einem Elektron, das an ein Atom gebunden ist. Dabei wird das Photon komplett absorbiert. Es können nur Elektronen aus niedrigen Schalen der Atomhülle wechselwirken. Dies liegt daran, dass Energie- und Impulssatz nur gleichzeitig erfüllt werden können, wenn der Atomkern einen Teil des Impulses aufnimmt [DEM10]. Das Elektron wird durch die Energie komplett ionisiert und ist nicht mehr an das Atom gebunden. Der frei gewordene Platz in der Atomhülle wird von einem Elektron einer höheren Schale aufgefüllt, dabei entsteht charakteristische Röntgenstrahlung mit einer Energie von 1 keV bis 100 keV.

Die Röntgenstrahlung kann weitere Elektronen zum Photoeffekt anregen, sodass im Idealfall die gesamte Energie des einfallenden Photons auf Elektronen übertragen wird.

Auch diese können weitere Elektronen von Atomen lösen, wenn ihre Energie größer als die Bindungsenergie der Elektronen ist.

Die Anzahl freier Elektronen kann als proportional zur Energie des einfallenden Photons angenommen werden, wenn keine Energie aus dem Absorber entweicht (durch zum Beispiel Röntgenphotonen, die den Absorber verlassen):  $\Delta n_{e^-} \propto E_\gamma$

Dieser Effekt überwiegt bei Germanium bis etwa 160 keV [SOL10].

#### 3.1.2 Compton-Effekt

Bei höheren Energien überwiegt der Compton-Effekt. Beim Compton-Effekt streut das Photon inelastisch an einem Elektron. Dieses muss nicht an ein Atom gebunden sein. Das Photon wird nicht komplett absorbiert, sondern fliegt mit verminderter Energie weiter. Ein Teil der Energie wird auf das Elektron übertragen und es kann wie beim Photoeffekt weitere Elektronen anregen. Da das Photon nicht komplett absorbiert wird, muss es mehrfach mit

Elektronen wechselwirken, bis die Energie unter 160 keV gefallen ist. Dann kann es über den Photoeffekt komplett absorbiert werden.

Bei zunehmender Photonenenergie kann auch ein größerer Anteil der Energie übertragen werden. Während ein Photon mit 50 keV höchstens 7,5 keV (15%) pro Streuung abgeben kann, erhöht sich dies bei einer Photonenenergie von 500 keV auf etwa 330 keV (über 65%) [SOL10]. Allerdings sinkt mit steigender Energie der Wechselwirkungsquerschnitt, also die Wahrscheinlichkeit, mit der das Photon streut.

Der Compton-Effekt überwiegt die Wechselwirkung mit Germanium von 160 keV Photonenenergie bis etwa 8.600 keV [SOL10].

### 3.1.3 Paarbildung und Paarvernichtung

Ab einer Energie von 1.022 keV kann das Photon in starken elektrischen Feldern ein Elektron-Positron-Paar erzeugen. Dies geschieht meist in der Nähe des Atomkerns. Ein Positron ist das Antiteilchen eines Elektrons. Diese Wechselwirkung wird Paarerzeugung genannt. Die Schwelle für die Wechselwirkung ist damit zu begründen, dass für die Erstellung eines Elektrons oder Positrons mindestens die Ruheenergie der Teilchen aufgebracht werden muss. Die Ruheenergie hängt mit der Masse über Einsteins Formel  $E = m \cdot c^2$  zusammen. Für Teilchen und Antiteilchen ist die Ruheenergie jeweils gleich, ein Elektron enthält in Ruhe 511 keV Massenäquivalent.

Wenn ein Positron mit einem Elektron kollidiert, vernichten sich beide Partner wieder und es entstehen zwei oder mehr Photonen. Diese enthalten in Summe die kinetische Energie der Elektronen plus zweimal die Ruheenergie eines Elektrons. Diese Wechselwirkung wird als Paarvernichtung bezeichnet. Wenn zwei Photonen bei der Paarvernichtung von nahezu stationären Elektronen und Positronen entstehen, so müssen Impuls- und Energieerhaltung gelten. Da Elektron und Positron vorher praktisch stationär waren, muss der Gesamtimpuls null sein, die Photonen fliegen in entgegengesetzte Richtungen.

Der Querschnitt für diese Wechselwirkung ist für Photonen knapp über 1.022 keV praktisch Null, erst bei hohen Gammaenergien besteht die Chance, dass Paarerzeugung stattfindet.

## 3.2 Detektoraufbau

In diesem Unterkapitel wird die theoretische Grundlage eines Germaniumdetektors dargestellt und anschließend die Realisierung eines Detektors inklusive des Erstellens eines Kanal-Impulszahl-Spektrums beschrieben.

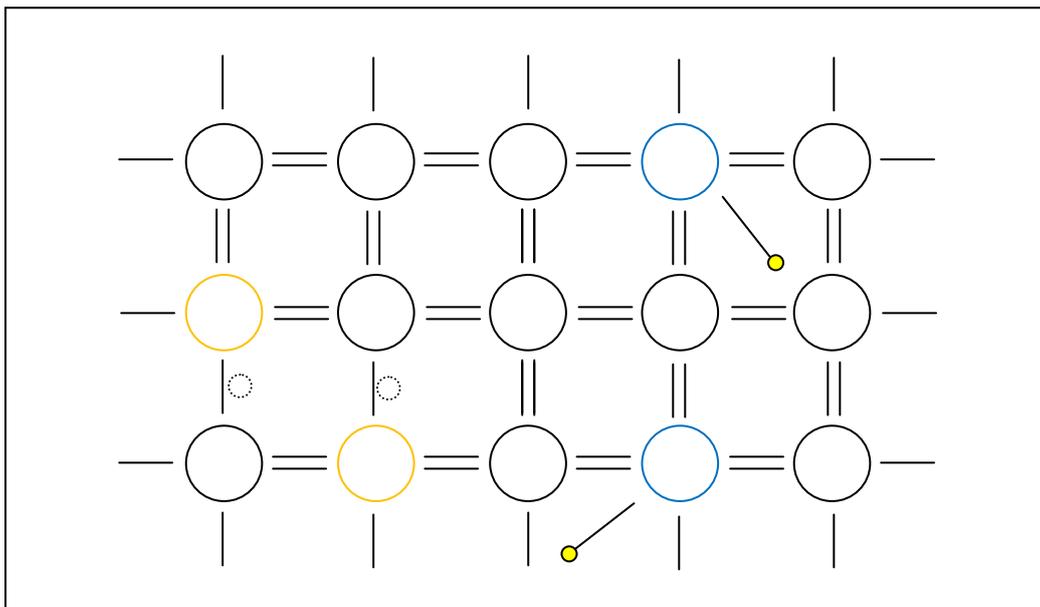
### 3.2.1 Halbleiterdioden

Das wichtigste Bauteil eines Germaniumdetektors ist vereinfacht eine Diode eines Germaniumkristalls. Dieser Kristall besteht aus vierwertigen Germaniumatomen. In idealer Anordnung verbindet sich im Gitter jedes Atom jeweils mit 4 anderen Atomen. Industriell können über verschiedene Verfahren Kristalle mit sehr hoher Reinheit erreicht werden (bis zu 1 Fremdatom auf  $10^{13}$  Germaniumatome) [KOP89].

Das Kristallgitter wird gezielt mit Fremdatomen verunreinigt, dies nennt sich dotieren. Bei der n-dotierung wird dem Kristall eine fünfwertige Atomsorte hinzugefügt. Diese ersetzt an einigen Gitterplätzen die Germaniumatome. Da nur acht Elektronen in der äußersten Schale

für die Edelgaskonfiguration benötigt werden, aber 9 Bindungen entstehen, ist ein Elektron „übrig“. Es befindet sich in einer höheren Schale als die restlichen und hat einen höheren mittleren Abstand zum Atomkern. Dieser Abstand wird weiter vergrößert durch die anderen Atomkerne, die das elektrische Feld des Donatoratomkerns schwächen. Das Elektron ist somit nur wenig gebunden und kann leicht aus der Atomhülle entfernt werden. Dies geschieht bei Raumtemperatur und auch noch bei Temperaturen von - 200°C zuverlässig durch die thermische Energie des Kristalls. Zurück bleibt ein positiv geladenes Donatorion (Die Edelgaskonfiguration ist erreicht, aber das Atom hat eine positive Ladung mehr) [WÜR00].

Bei der Dotierung mit Akzeptoren werden dem Kristall Atome hinzugefügt, die nur drei Elektronen in der äußersten Schale haben. Sie erreichen mit den 4 Elektronen des umgebenden Kristalls noch nicht die Edelgaskonfiguration (und ein Germanium-Atom auch nicht). Daher ist es für ein Elektron wahrscheinlich, dass es sich an der freien Stelle des Gitters aufhält, auch wenn dadurch der Akzeptor zu einem negativ geladenen Ion wird [WÜR00]. Da der Kristall weiterhin neutral geladen bleiben muss, bedeutet das Besetzen eines Akzeptoratom-Gitterplatzes, dass irgendwo anders im Kristall ein Gitterplatz frei geworden ist, aus dem das Elektron stammt. Somit sind im p-Typ-Halbleiter „Löcher“ beweglich und transportieren Ladung.

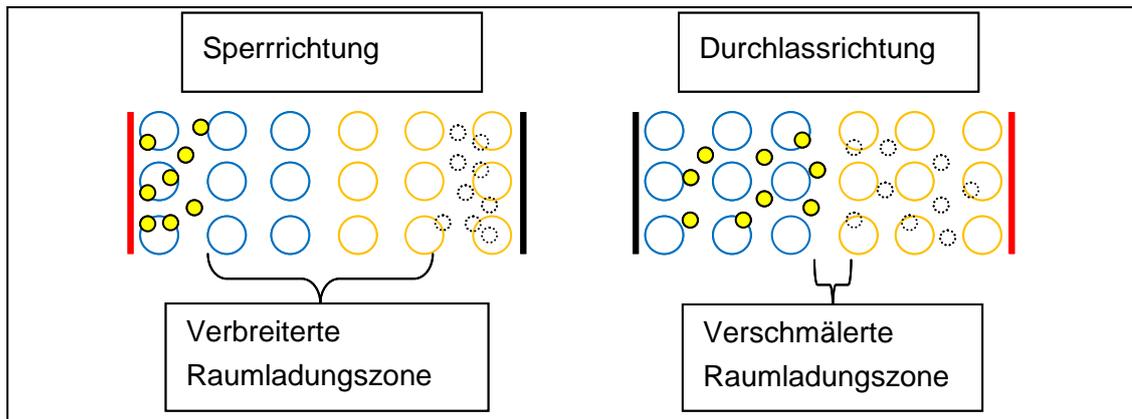


**Abb. 3.1** Schematischer Aufbau eines dotierten Germanium-Kristalls.  
 schwarze Kreise: Germaniumatome; schwarze Linien: Bindungselektronen;  
 orangene Kreise: Akzeptoratome; blaue Kreise: Donoratome;  
 Gestrichelte Kreise: Freie Gitterplätze; Gelbe Punkte: (freie) Elektronen;

Zusätzlich können sich Elektronen aus Germanium-Germanium-Verbindungen lösen und durch den Kristall fliegen, sodass alle eingebrachten Akzeptoratome negative Ionen und alle eingebrachten Donoratome positive Ionen sind.

Eine Germanium-Diode kann nun realisiert werden, indem eine Hälfte des Kristalls n-dotiert und die andere p-dotiert wird. In der Grenzschicht wandern die Elektronen der Donatoren zu den „Löchern“ der Akzeptoren. In dieser sog. Raumladungszone sind somit kaum freie Ladungsträger. Dadurch sinkt die Leitfähigkeit und der Widerstand steigt.

Wenn an die p-dotierte Hälfte ein Minuspol und an die n-dotierte Hälfte ein Pluspol kontaktiert wird, so sorgt die Spannung für einen Drift der Elektronen im n-Typ zum Pluspol und der Löcher im p-Typ zum Minuspol. Die Raumladungszone verbreitert sich und ein Stromfluss der Elektronen vom Minus- zum Pluspol wird verhindert. Diese Kontaktierung nennt sich Sperrrichtung. Je höher die Spannung ist, desto breiter wird die Raumladungszone, bis fast der gesamte Kristall von der Raumladungszone eingenommen wird. Wird die Spannung weiter erhöht, können Elektronen aus den Bindungen gelöst und der Kristall zerstört werden. Wenn allerdings die Polung umgetauscht wird und an den n-Typ ein Minuspol und an den p-Typ ein Pluspol gehängt wird, driften die Elektronen im n-Typ und die Löcher im p-Typ weiter in die Raumladungszone. Diese wird kleiner und ein Stromfluss möglich. Diese Kontaktierung nennt sich Durchlassrichtung [WÜR00].



**Abb. 3.2** Schematischer Aufbau einer Diode in Sperr- (Links) und Durchlassrichtung (Rechts). Auf Darstellung der Germaniumatome und besetzten Bindungsniveaus wurde verzichtet. Blaue Kreise: Donatoratome; Gelbe Punkte: (freie) Elektronen; orangene Kreise: Akzeptoratome; gestrichelte Kreise: (freie) Löcher; Roter Strich: Pluspol; Schwarzer Strich: Minuspol

### 3.2.2 Realisierung eines Detektors

Bei einem Germaniumdetektor ist eine Halbleiterdiode in Sperrrichtung geschaltet. Wenn ionisierende Strahlung in der Raumladungszone Elektronen von Atomen trennt, erzeugt sie dabei Elektron-Loch-Paare (via 3.1.1 bis 3.1.3). Die Anzahl der Elektron-Loch-Paare ist somit annähernd proportional zu der Energie des eingefallenen Photons. Durch die angelegte Spannung werden die Ladungsträger getrennt und fließen als Signal über die Kontakte ab. Ein Vorverstärker verstärkt das Signal.

Über einen Impulshöhenverstärker wird das Signal weiter verstärkt und die Pulsform verändert. Dies geschieht, damit der hintergeschaltete Analog-Digital-Wandler (ADW) einen möglichst optimalen Puls als Signal erhält. Der Wandler macht aus einem analogen Signal (maximale Stromstärke im Puls) ein digitales Signal (z.B. 150 Impulse) und benötigt je nach Ausführung eine bestimmte Pulsform.

Mit dem digitalen Signal wird danach in einem Speicher der Wert im entsprechenden Kanal um eins erhöht (im obigen Beispiel Kanal 150).

Das nächste Photon hat eine andere Energie und erhöht in einem anderen Kanal die Zahl. Über eine ausreichend lange Messzeit ergibt sich somit ein Spektrum aus Kanalnummer in x-Richtung und Anzahl gemessener Impulse in y-Richtung.

Bei der technischen Umsetzung müssen verschiedene Fehlerquellen berücksichtigt und minimiert werden.

### Fehlstellen im Gitter

An Gitterfehlstellen des Germaniumkristalls können Elektronen „festgehalten“ werden und dann mit Löchern rekombinieren. Analog können auch Löcher festgehalten werden und mit Elektronen rekombinieren. Um diese Effekte zu minimieren, werden hochreine Kristalle benötigt.

### Benötigte Energie zum Erzeugen eines Elektron-Loch-Paares

Die Anzahl der erzeugten Elektron-Loch-Paare hängt direkt mit der benötigten Energie zusammen. Diese Energie entspricht der Bandlücke im Bändermodell. Je geringer die Bandlücke ist, desto mehr Elektronen werden pro Photon erzeugt und desto geringer sind die Störeffekte, beispielsweise durch Fehlstellen.

Ebenfalls wird die theoretisch erreichbare maximale Auflösung erhöht, da nur ganze Elektron-Loch-Paare entstehen können. Allerdings werden beim Speichern meist nur einige Tausend (beim verwendeten Detektor 4.096) Kanäle benutzt für ein Spektrum von 2 MeV. Jeder Kanal hat somit eine Breite von etwa 500 eV.

Je geringer die Bandlücke ist, desto größer sind sog. Dunkelströme, Elektronen-Loch-Paare die durch thermische Energie aus dem Kristallgitter gelöst werden und zu den Kontakten fließen. Um die Dunkelströme gering zu halten, müssen Germaniumdetektoren während des Betriebes gekühlt werden.

In einem Bereich um den Detektor ist Vakuum, um konvektive Erwärmung zu vermeiden. Da bei Raumtemperatur einige benutzte Materialien ausgasen, muss die Kühlung sogar durchgängig sichergestellt werden.

### Hochspannung

Wenn die Hochspannung am Kristall zu niedrig ist, ist die Raumladungszone klein und Photonen, die nicht in der Raumladungszone Elektron-Loch-Paare erzeugen, werden mit einer geringeren Energie detektiert. Dies liegt daran, dass außerhalb der Raumladungszone mehr Rekombination stattfindet und mehr Elektron-Loch-Paare vernichtet werden, ehe sie an den Kontakten abfließen. Auch fließen die Ladungen mit einer höheren Spannung schneller ab und die Totzeit wird verringert. Die Totzeit ist die Zeit, die der Detektor benötigt, um zwei Photonen zeitlich getrennt aufzulösen. Wenn die Totzeit unterschritten wird, werden die Photonen als ein Photon mit höherer Energie detektiert (siehe hierzu 3.3.6).

Allerdings werden mit einer höheren Spannung die Dunkelströme erhöht und der Kristall erwärmt sich stärker.

### Bauart des Kristalls

Die Art der Dotierung hat auch einen Einfluss auf die Detektorleistung. Es ist herstellungstechnisch einfacher, den Kristall überall leicht p oder n zu dotieren und anschließend

hochdotierte Randbereiche herzustellen. Daher gibt es p- und n-Typ Detektoren, da das Detektorvolumen entweder p- oder n-dotiert ist. Es hat sich als einfacher herausgestellt, den hochdotierten p-Typ-Bereich dünn herzustellen, deswegen wird diese Seite des Kristalls meist den einfallenden Photonen zugewandt wird.

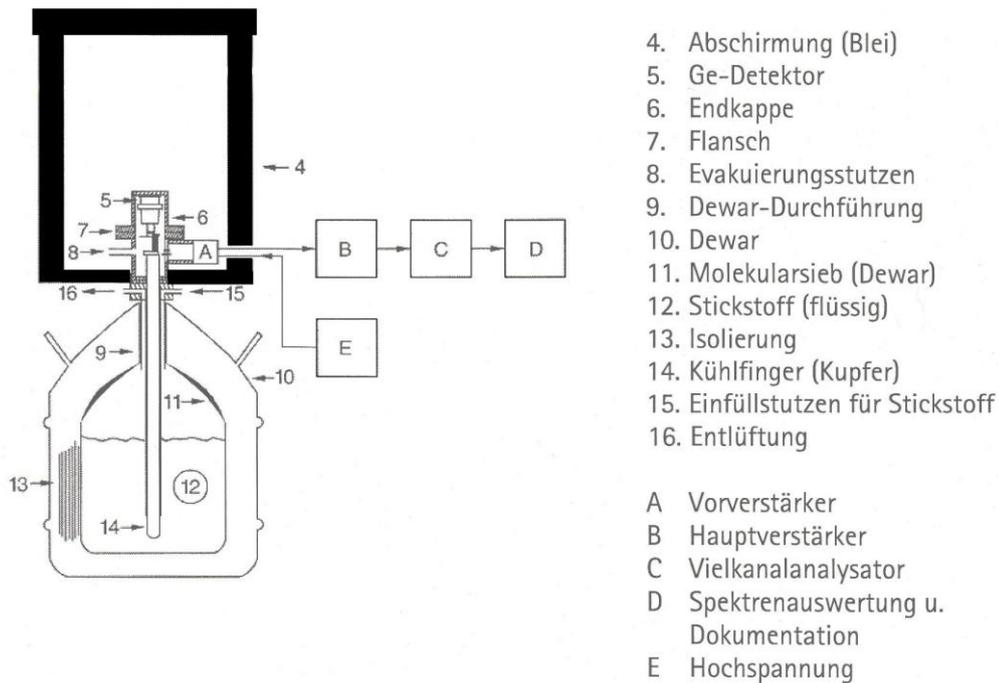
Damit Fehlstellen möglichst geringe Einflüsse haben, sollte der Weg der Elektron-Loch-Paare zu den Kontakten möglichst kurz sein. Dies spricht für einen dünnen Detektor, da dies jedoch die Wechselwirkungswahrscheinlichkeit der Photonen verringern würde, wird der Detektor als hohler Zylinder realisiert, dessen Innenseite den einen und dessen Außenseite den anderen Kontakt bildet.

Zeitgeber

Um aus einem analogen Signal verlässlich ein präzises digitales Signal zu erstellen, muss der ADW eine sehr exakte Taktfrequenz bekommen. Dafür wird ein hohes Maß an Genauigkeit vom internen Zeitgeber benötigt.

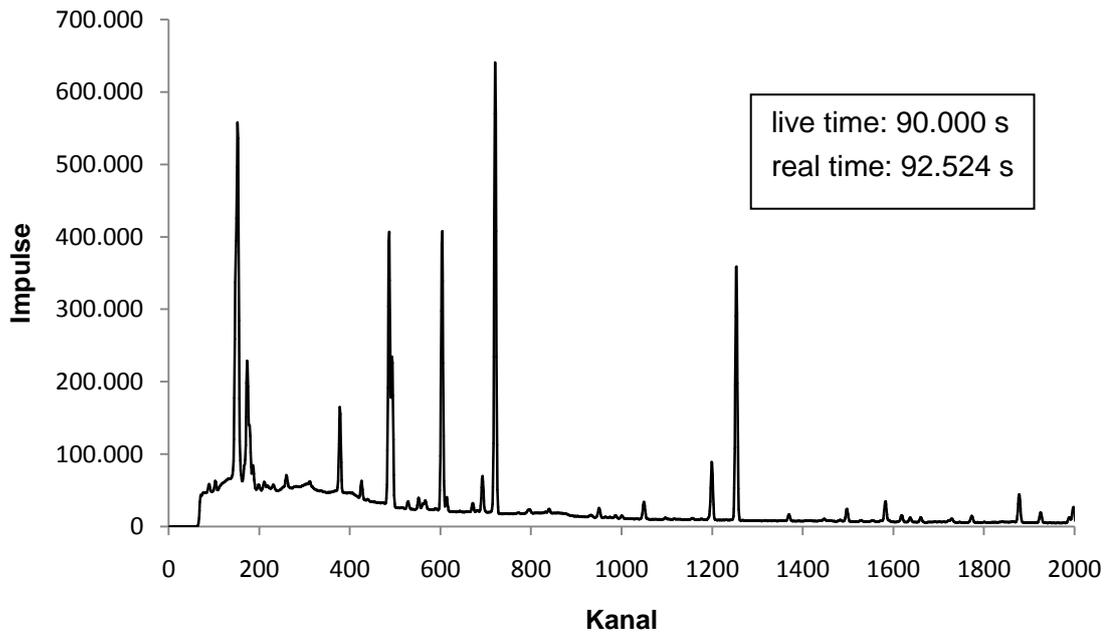
Der Zeitgeber wird auch dafür verwendet, die Messzeit zu bestimmen. Bei dem verwendeten Detektor wurde zusätzlich zur Messzeit („real time“) auch die um die Totzeit reduzierte wirkliche Messzeit, die „live time“, ausgegeben. Auch dafür ist ein präziser Zeitgeber notwendig.

Insgesamt ergibt sich für den Detektor dann etwa der folgende Aufbau.



**Abb. 3.3** Schematischer Aufbau eines Gamma-Spektrometrie-Messplatzes aus [DEB92]

Nach der Messung können dem Speicher dann die live time, die real time und Anzahl Impulse pro Kanal entnommen werden.



**Abb. 3.4** Spektrum der Messung „Steigrohr“ (Ergebnisse **Tabelle 4.6** jeweils erste Zeile)

Dem Spektrum wird zusätzlich noch eine Kanal-Energie-Zuweisung zugefügt, welche jedoch in den Messungen dieser Bachelorarbeit nicht verwendet wird, da sie in einigen Bereichen um bis zu 1,3 keV von der wirklichen Energie abweicht.

### 3.3 Kalibrierung

In diesem Unterkapitel wird dargestellt, wie aus einer Probenmessung die Aktivitäten der einzelnen Linien bestimmt werden können. Dazu wird die Folienmethode zur Aktivitätsbestimmung erläutert, auf die benutzten Standards weiter eingegangen, andere nötige Kalibrationen beleuchtet und auf zu berücksichtigende Korrekturfaktoren hingewiesen.

Es ist leicht verständlich, dass es für jede Messung von entscheidender Bedeutung ist zu wissen, mit welcher Wahrscheinlichkeit ein Photon aus der Probe auch vom Detektor mit der vollen Energie detektiert wird. Dieser Wert wird Efficiency genannt (abgekürzt mit „ $\epsilon$ “).

Dies hängt nicht nur vom Detektor ab, sondern auch vom Abstand des Erzeugungsortes des Photons zum Detektor, also der Geometrie der Probe. Auch ist die Dichte und Zusammensetzung der Probe wichtig: je dichter ein Material, desto höher ist im Allgemeinen auch seine Selbstabsorption (die Absorption von in der Probe generierten Photonen bereits in der Probe). Nicht zuletzt ist auch die Energie des Photons ein wichtiger Faktor. Je größer die Energie ist, desto geringer sind Absorptionseffekte (siehe Kapitel 153.1). Allerdings sinkt damit auch die Wahrscheinlichkeit des Photons mit voller Energie im Detektor gemessen zu werden.

Da diese Faktoren besonders bei Proben unbekannter Zusammensetzung nicht vorab bekannt sind, wurden verschiedene Methoden entwickelt, um möglichst präzise Ergebnisse zu erhalten. Fast alle Methoden haben gemeinsam, dass über eine Referenz bekannter Aktivität für verschiedene Energien jeweils die Efficiency bestimmt wird und anschließend die Zwischenwerte der Energie interpoliert werden können.

Eine der Methoden ist die probenspezifische Kalibrierung, bei der die Probe in doppelter Ausführung erstellt wird. Eine der Ausführungen wird mit einem ein Nuklidgemisch, der sogenannten Tracerlösung (siehe 3.3.2 Nuklidstandards), versetzt. Von der Tracerlösung sind die Aktivitäten sehr genau bekannt, über den Vergleich der Spektren kann dann bestimmt werden, mit welcher Efficiency die verschiedenen Photonenenergien der Tracerlösung im Detektor gemessen werden. Die Efficiency-Zwischenwerte können dann über die Jäckel-Westmeier-Funktion errechnet werden (siehe 3.3.5)

Werden viele Proben gemessen, die sich nur in ihrer Dichte, nicht aber in ihrer chemischen Zusammensetzung unterscheiden, kann es sinnvoll sein, die Dichtekalibrierung zu verwenden. Dabei werden für Proben verschiedener Dichte die Efficiency-Werte bestimmt und bei den danach zu messenden Proben muss jeweils nur die Dichte bestimmt werden und daraus kann dann der Efficiency-Verlauf errechnet werden.

Da in dieser Arbeit viele höchst unterschiedliche Proben vermessen werden, wird fast ausschließlich die Folienmethode verwendet, die im Folgenden vorgestellt wird.

### 3.3.1 Folienmethode

Bei der Folienmethode wird die Efficiency bestimmt, ohne dass die Probe mit Tracerlösung versetzt wird. Es wird in getrennten Messungen bestimmt, wie wahrscheinlich die Detektion eines Photons, welches von der Ober- oder Unterseite der Probe stammt, ist.

Dazu wird auf ein Filterpapier auf die Probengröße zugeschnitten. Etwas Tracerlösung wird auf das Filterpapier gegeben, welches anschließend getrocknet und laminiert wird. Vom so entstandenen Flächenstandard lässt sich über das Zerfallsgesetz berechnen, wie groß die Aktivität eines Nuklids während der Messung ist.

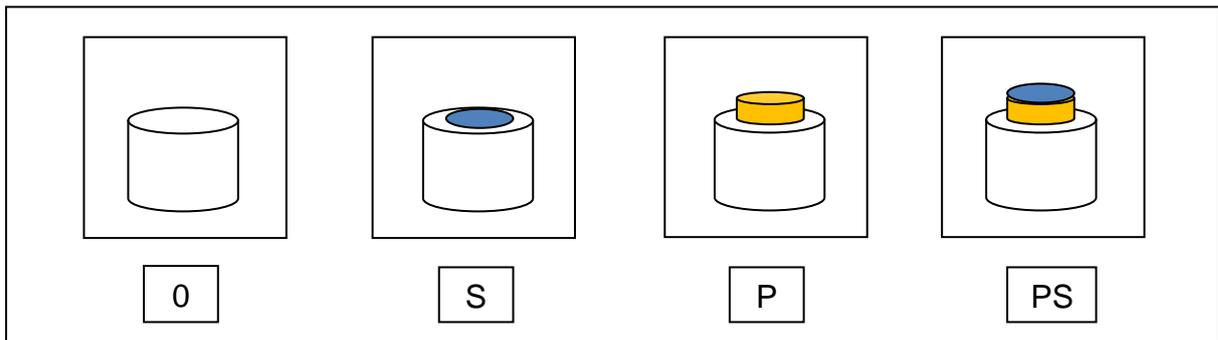
Wenn der Flächenstandard auf der Probe liegt, kann die Detektionswahrscheinlichkeit für ein Photon, welches nahe der Oberseite entsteht, bestimmt werden. Wenn der Flächenstandard direkt auf dem Detektor liegt, kann die Efficiency für ein Photon von nahe der Unterseite bestimmt werden. Damit die Messung möglichst wenig Störung durch den Nulleffekt aufweist, muss dieser berücksichtigt werden, daher sind vier Messungen notwendig.

Messung 0, bei der nur der Nulleffekt bestimmt wird. Diese Messung kann auf mehrere Tage ausgedehnt werden und muss nur einmal durchgeführt werden, da sie für alle Proben gleich ist.

Messung S, bei der der Folienstandard direkt auf dem Detektor liegt. Auch diese Messung muss nur einmal durchgeführt werden. Die life time braucht einige Stunden nicht zu überschreiten.

Messung P, bei der die Probe auf dem Detektor liegt. Diese Messung muss mit jeder Probe durchgeführt werden und sollte je nach Aktivität knapp einen Tag lang sein.

Messung PS, bei der der Flächenstandard über der Probe auf dem Detektor liegt. Diese Messung muss mit jeder Probe durchgeführt werden und sollte eine Messdauer von drei Stunden nicht unterschreiten.



**Abb. 3.5** Schematische Darstellung der für die Folienmethode nötige Messungen.  
 Weißer Zylinder: Detektor  
 Gelber Zylinder: Probe  
 Blaue Scheibe: Folienstandard

Um die Messungen miteinander verrechnen zu können, wird die Impulsrate der Linie bestimmt. Dazu wird die Anzahl Impulse durch die live time geteilt.

$$\text{Impulsrate } R = \frac{\text{Impulse}}{\text{live time}} \quad (13)$$

Anmerkung: In diesem Kapitel wird nicht dargelegt, wie die Berechnung der Energie eines Kanals geschieht, hierzu siehe 3.3.3. Auch wird nicht klargelegt, wie aus einem Spektrum die Impulse in einer Linie bestimmt werden können, dazu siehe 3.3.4.

Die Zählraten für die Messung des Folienstandards auf und unter der Probe berechnen sich dann als Differenz der Raten zum Nulleffekt und zur Probe

$$\begin{aligned} R_{SU} &= R_S - R_0 \\ R_{SO} &= R_{PS} - R_P \end{aligned} \quad (14)$$

$R_0$ ,  $R_S$ ,  $R_P$ , und  $R_{PS}$  bezeichnen hierbei die Impulsraten der entsprechenden Messungen. Die Efficiency kann aus den Impulsraten berechnet werden, indem die gemessene Impulsrate mit der theoretisch berechneten Emissionsrate der Tracerlösung verglichen wird (siehe 3.3.2).

$$\epsilon = \frac{R_{\text{Messung}}}{R_{\text{Real}}} \quad (15)$$

Da die Photonen nicht nur an der Ober oder der Unterseite entstehen, wird ein Mittelwert der Efficiency bestimmt. Die Strahlungsabsorption ist nach dem Lambert Beer'schen Gesetz nicht linear sondern exponentiell.

$$I(d) = I_0 \cdot e^{-\alpha \cdot d} \quad (16)$$

Hier bezeichnet „I“ die Intensität der Strahlung nach Abschwächung,  $I_0$  die Intensität vor Abschwächung,  $\alpha$  ist ein materialspezifischer Wert für die Abschirmwirkung des Absorbers und  $d$  ist die Dicke des Absorbers.

Daher wird nicht der arithmetische Mittelwert aus dem oberen und dem unteren Messwert genommen, sondern der logarithmische Mittelwert.

$$\bar{\epsilon} = \frac{\epsilon_{SO} - \epsilon_{SU}}{\ln(\epsilon_{SO}) - \ln(\epsilon_{SU})} \quad (17)$$

Dieser Wert wird für verschiedene Energien bestimmt und beschreibt die Wahrscheinlichkeit, mit der ein Photon vom Detektor mit der vollen Energie detektiert wird.

### 3.3.2 Nuklidstandards

Zur Kalibrierung der Probenlinien werden die Standardlösungen QCY-48 und Blei-210 der PTB verwendet. QCY ist ein Nuklidgemisch, welches über einen Energiebereich von 60 keV bis 1.836 keV Linien aufweist. Zur besseren Kalibration wird zusätzlich das Blei-210 verwendet, da dies eine Linie bei 46,5 keV besitzt. Von den Linien sind für jedes Nuklidgemisch die Aktivitäten zu einem Referenzzeitpunkt angegeben.

Nuklid	E [keV]	p[%]	u(p)	T <sub>½</sub> [d]	u(T <sub>½</sub> )	A[Bq·g <sup>-1</sup> ]	U(A)
<b>Pb-210</b>	46,54	4,24	0,05	8.145	80	3.032	47
<b>Am-241</b>	59,54	35,9	0,4	157.850	240	3.153	43
<b>Cd-109</b>	88,03	3,626	0,02	462,1	1,4	18.090	530
<b>Co-57</b>	122,06	85,60	0,17	271,8	0,1	728	6
<b>Ce-139</b>	165,86	79,90	0,04	137,7	0,1	893	7
<b>Hg-203</b>	279,2	81,46	0,13	46,60	0,02	2.545	17
<b>Sn-113</b>	391,69	64,89	0,13	115,1	0,1	3.376	68
<b>Sr-85</b>	514,01	98,4	0,4	64,85	0,01	4.172	34
<b>Cs-137</b>	661,66	85	0,2	11.000	90	3.060	26
<b>Yt-88</b>	898,04	94,0	0,3	106,6	0,1	7.070	58
<b>Co-60</b>	1.173,23	99,85	0,03	1.925,3	0,4	3.473	26
<b>Co-60</b>	1.332,49	99,98	<0,01	1.925,3	0,4	3.482	26
<b>Yt-88</b>	1.836,06	99,33	0,03	106,6	0,1	7.070	50

**Tabelle 3.1** Die verschiedenen Linien in den Standardlösungen Blei-210 (erste Zeile) und QCY-48 (restliche Zeilen) der PTB Braunschweig laut Kalibrierschein  
 erste Spalte: Nuklid; zweite Spalte: Emissionsenergie eines Photons;  
 dritte und vierte Spalte: Emissionswahrscheinlichkeit und Unsicherheit in Prozent;  
 fünfte und sechste Spalte: Halbwertszeit und Unsicherheit in Tagen;  
 siebte und achte Spalte: Aktivität zum Referenzzeitpunkt und Unsicherheit in Becquerel pro Gramm

Die Spalte p beschreibt dabei die Emissionswahrscheinlichkeit. Das ist die Wahrscheinlichkeit, mit der bei einem Zerfall ein Photon mit der angegebenen Energie frei wird.

Die in Folienmethode verwendete Emissionsrate kann berechnet werden, indem die Aktivität um den Zerfall korrigiert und mit der Masse der Tracerlösung auf dem Filter und der Emissionswahrscheinlichkeit der Linie multipliziert wird.

$$R_{Real} = A \cdot m_{Filter} \cdot p \cdot e^{-\ln 2 \cdot \frac{Ref - Mes}{T_{1/2}}} \quad (18)$$

Das Referenzdatum wird hier mit „Ref“ und das Messdatum mit „Mes“ bezeichnet. Für die benutzten Standards sind die Referenzdaten der 1. November 2008 (Blei-210) und der 1. Februar 2010 (QCY-48).

Bedingt durch die kurze Halbwertszeit konnte in keiner Messung das Quecksilber-203 nachgewiesen werden und stand somit nicht zur Kalibrierung zur Verfügung. Ebenso ließ sich das Strontium-85 mit 514 keV zwar in den Messungen der Folie nachweisen, mit Probenmaterial wurde die Linie jedoch vielfach von der Paarvernichtungsstrahlung bei 511 keV so stark überlagert, dass eine Bestimmung der Impulsrate unmöglich war.

Bei einigen Proben sind zusätzlich auch die Linien des Zinn-113 und des Cerium-139 nicht zu erkennen, sodass für den Bereich zwischen 120 keV und 650 keV keine Daten der Efficiency vorliegen. In diesen Fällen wurde die Efficiency-Kalibrierung besonders ungenau, in den jeweiligen Probenbesprechungen wird darauf extra eingegangen.

### 3.3.3 Kalibration der Energie

Wie in 3.2.2 erwähnt, ist die Anzahl der im Kristall erzeugten Elektron-Loch-Paare annähernd proportional zur Energie des einfallenden Photons. Daher ergibt sich auch ein lineares Verhältnis zwischen der Kanalnummer und der zugehörigen Energie. Sicherer gegen Messfehler ist es jedoch, mehrere Kanäle und Energien zu benutzen. Die Energien der Standardlösungsemissionen sind sehr genau bekannt und die Linien in den Spektren auch gut zu finden. Daher bietet es sich an, die Messung IV, die für jede Probe durchgeführt wird, zu benutzen, um die Energie-Kanal-Zuweisung zu kalibrieren. Das zur Kalibration und Auswertung der Spektren verwendete Programm *FitzPeaks* ist dazu in der Lage.

### 3.3.4 Kalibration der Halbwertsbreite

Die Energie des Photons verwischt von einem diskreten Wert immer weiter zu einem Energiebereich, während das Signal die verschiedenen Prozesse bis zur Speicherung durchläuft. Bei einer Photonenenergie von 1.330 keV ist dieser Energiebereich knapp 2 keV. Mit steigender Energie steigt auch die Halbwertsbreite. Die Form ist dabei in guter Näherung ein Gauss-Peak [DEB92].

Die Halbwertsbreite der Peaks wird für jede Messung mit den Peaks der Nuklidstandards kalibriert. Dazu wird eine programminterne Funktion des Programms *FitzPeaks* verwendet. Dabei werden die Peaks des Nuklidstandards auf ihre Halbwertsbreite untersucht. Aus diesen Messwerten lässt sich ein quadratischer Fit berechnen, mit dem die Halbwertsbreite einer beliebigen Energie bestimmt werden kann.

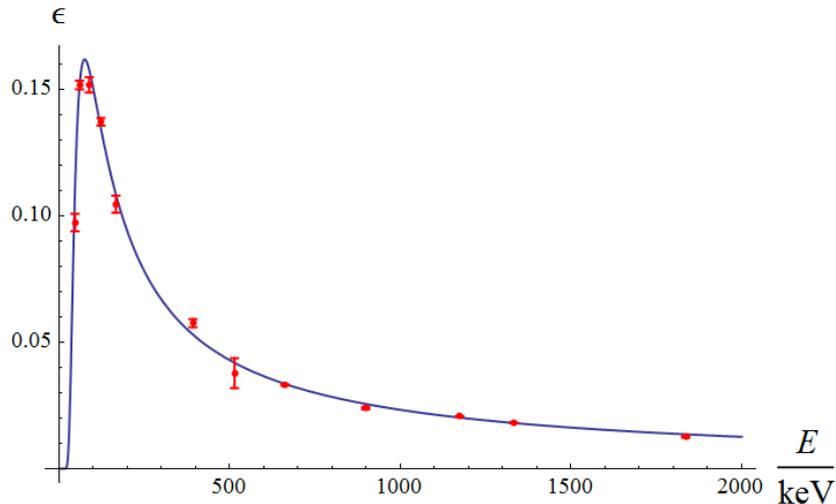
Mit dieser Kalibrierung kann dann die Fläche in einem Peak berechnet werden. Dazu wird ein Gauss-Peak an einen Bereich im Spektrum gefittet, in dem ein Peak vermutet wird. Da ein Gauss-Peak über Halbwertsbreite, Lage und Höhe vollständig definiert ist, muss das Programm nur die Lage und Höhe variieren, bis ein Fit gefunden ist. *FitzPeaks* gibt automatisch die Fläche über dem Untergrund raus und die Unsicherheit der Linie an.

### 3.3.5 Jäckel-Westmeier-Funktion

Die in 3.3.1 erwähnte Interpolation zwischen den einzelnen gemessenen Efficiency-Werten ist nicht trivial. Die Efficiency sinkt für sehr kleine Energien auf Null ab, da die Photonen noch in der Probe absorbiert werden. Für sehr große Energien sinkt der Wechselwirkungsquerschnitt und die Wahrscheinlichkeit, dass die gesamte Energie im Kristall abgegeben wird, geht auch gegen null. Daher gibt es ein Maximum der Efficiency. Jäckel, Westmeier und Patzelt von der Phillips-Universität in Marburg haben 1987 eine Funktion vorgeschlagen, die über mehrere Parameter  $a_i$  in ihrer Form an die Messwerte der Efficiency angepasst werden kann [JÄC87].

$$\epsilon(E) = e^{\frac{2}{\pi}(a_1 + a_2 \ln(E) + a_3 \ln(E)^2)} \cdot \arctan \left( e^{a_4 + a_5 \ln(E) + a_6 \ln(E)^3} \right) - 25 \quad (19)$$

Diese Funktion wird im Folgenden als Jäckel-Westmeier-Funktion bezeichnet. Zum Bestimmen der Parameter wurde ein von Johnny Birkhan an der Leibniz Universität Hannover entworfener Algorithmus für den Solver von Microsoft Excel verwendet [BIR09].



**Abb. 3.6** Benutzter Efficiency-Fit für die Messung der Probe „Flasche“ (Messergebnisse in Tabelle 4.1)  
 In Blau: Jäckel-Westmeier-Funktion  
 In Rot: Mittelwerte der Efficiency

### 3.3.6 Summationskorrektur

Im Kapitel 3.2.2 wurde erwähnt, dass zwei Photonen nur als zwei unterschiedliche Ereignisse detektiert werden, wenn das zweite Photon nicht innerhalb der Totzeit des ersten Photons mit dem Detektor wechselwirkt. Wenn der Effekt auftritt, wird die Summe der Photonenenergien als Energie eines einzelnen Ereignisses ausgegeben. Dadurch sinkt die gemessene Impulsrate im Peak des Nuklids. Für die gleichzeitige Detektion von Photonen aus unterschiedlichen Atomen ist die nötige Korrektur ungefähr in der Größenordnung des Anteils der Totzeit an der gesamten Messzeit. Daher wird bei der Messung darauf geachtet, dass die Totzeit nach Möglichkeit unter 1% bleibt.

Falls jedoch ein Nuklid bei einem einzelnen Zerfall zwei Photonen aussendet, ist diese Vorsichtsmaßnahme nicht mehr ausreichend. In diesem Fall trifft das zweite Photon mit großer Wahrscheinlichkeit während der Totzeit des ersten Photons ein. Dann kommt es auf die Efficiency an, je größer sie ist, desto eher wird das zweite detektiert. Dadurch werden die Summationskorrekturen größer, wenn der Detektor besonders sensitiv ist. Bei besonderen Detektorgeometrien können die Faktoren sogar in den Bereich von über 2 steigen [PTB24].

Für komplizierte Zerfälle ist es schwierig, analytische Formeln für die Korrektur anzugeben, daher gibt es Literaturwerte, mit denen gearbeitet werden kann.

Zwar ist die Summationskorrektur für jede Detektor-Proben-Kombination anders, jedoch kann sie, wenn sie gering ist, als linear angenommen werden. Um die Literaturwerte zu verwenden, muss dazu jedoch mindestens ein Summationskorrekturfaktor bestimmt werden. Dazu wird meist ein Cobalt-60-Präparat vermessen, dessen zwei Linien bei 1.173 keV und 1.332 keV einen Summenpeak bei 2.505 keV verursachen. Über die Impulszahlen der drei so erhaltenen Linien lässt sich dann abschätzen, wie groß der Korrekturfaktor ist. Das Verhältnis von gemessenem Korrekturfaktor zum Literaturwert muss dann jeweils auf die

anderen Literaturwerte multipliziert werden, um Korrekturfaktoren mit einer Ungenauigkeit von einigen wenigen Prozent zu erhalten [PTB24].

Der verwendete Detektor ist jedoch nicht in der Lage, die Summenlinie zu messen, daher scheidet diese Möglichkeit der Bestimmung der Korrekturfaktoren aus.

Besonders problematisch ist die Tatsache, dass die Linien vom Yttrium-88 und Cobalt-60 im verwendeten Multinuklidstandard summationskorrigiert werden müssen. Da die gemessenen Impulsraten durch die Summationsfehler erniedrigt werden, wird dadurch die Efficiency unterschätzt. Dies führt zu einer Überschätzung der Aktivitäten für Linien mit einer Energie von über 1.000 keV. Besonders ist hierbei das Kalium-40 zu nennen, da dessen einzige Linie bei 1.461 keV liegt. Die gemessene Aktivität hängt direkt von den Summationskorrekturfaktoren der Standardnuklide ab.

Eine erste Abschätzung kann für die Summationskorrekturfaktoren angegeben werden, indem Kaliumsalzpräparate ausgewertet werden. Die Masse der Proben ist jeweils hinreichend genau messbar und über die Summenformeln der Salze lässt sich errechnen, welche Aktivität erwartet wird. Ohne Berücksichtigung der Summationskorrektur lagen die gemessenen Werte etwa 20% über den erwarteten, daher wurden die Korrekturfaktoren zuerst auf 1,2 festgelegt.

Eine weitere Testmöglichkeit sind die Blei-214- und Bismut-214-Linien. Durch die kurzen Halbwertszeiten sind die Aktivitäten als gleich anzunehmen.

Da bei den meisten vermessenen Proben fünf bis sechs Linien in den Spektren eindeutig zu erkennen sind, konnten über diese die Summationskorrekturfaktoren sehr genau abgeschätzt werden.

### 3.4 Auswertung und Statistik

Insgesamt ergibt sich die Aktivität einer einzelnen Linie nach [DEB92] zu

$$A = \frac{k_S}{\epsilon \cdot p \cdot m} \cdot \left( \frac{I_P}{t_P} - \frac{I_0}{t_0} \right) \quad (20)$$

Bei dieser Formel ist  $k_S$  der Summationskorrekturfaktor,  $\epsilon$  die Efficiency,  $p$  die Emissionswahrscheinlichkeit der betrachteten Linie,  $m$  die Masse der Probe,  $I_P$  und  $I_0$  die Impulse der Linie aus den Messungen der Probe und des Nulleffekts, sowie  $t_P$  und  $t_0$  die Messzeiten. Dieses Ergebnis hat jedoch noch keine Angabe über die Unsicherheit und ist somit aus wissenschaftlicher Sicht nicht wertvoll. Daher wird in diesem Unterkapitel die Berechnung der Unsicherheiten dargelegt und auf die Grenzen des sicheren Bestimmens von Aktivitäten weiter eingegangen.

### 3.4.1 Unsicherheiten

Jede Messung liefert einen Schätzwert des wahren Wertes. Für eine Auswertung muss allerdings bekannt sein, in welchem Bereich um den Messwert der wahre Wert mit großer Sicherheit enthalten ist.

Um ein Maß für die Unsicherheit des Messwertes zu erhalten, wird die Gauß'sche Fehlerfortpflanzung genutzt

$$u^2(A) = \sum \left( \frac{\partial A}{\partial x_i} \cdot u(x_i) \right)^2 \quad (21)$$

Die verschiedenen  $x_i$  sind hierbei die einzelnen Parameter, von denen die bestimmte Aktivität abhängt. Hierbei wird davon ausgegangen, dass sich die Änderung eines Parameters ungefähr linear auf das Endergebnis auswirkt.

Die Unsicherheit der Messzeit und der Masse sind im Rahmen dieser Bachelorarbeit vernachlässigbar gegenüber der Unsicherheit der Efficiency und der bestimmten Peak-Fläche. Somit ergibt sich als Unsicherheit zu

$$u^2(A) = A^2 \left( \left( \frac{u(k_S)}{k_S} \right)^2 + \left( \frac{u(\epsilon)}{\epsilon} \right)^2 + \left( \frac{u(p)}{p} \right)^2 + \left( \frac{u(R_P) + u(R_0)}{R_P - R_0} \right)^2 \right) \quad (22)$$

Die Unsicherheit der Summationskorrekturfaktoren wird für  $k_S \neq 1$  pauschal zu 10% der Abweichung angenommen.

Für die Unsicherheit der Efficiency wird angenommen, dass die Efficiency bei hohen Energien sehr exakt dem wirklichen Messverhalten entspricht und zu niedrigen Energien immer stärker fehlerbehaftet ist. Daher wird ein dreistufiges System gewählt: Für  $E < 100$  keV ist  $u(\epsilon) = 0,1 \cdot \epsilon$ , zwischen 100 keV und 200 keV wird  $u(\epsilon) = 0,07 \cdot \epsilon$  gewählt, für Energien größer als 200 keV wird  $u(\epsilon) = 0,05 \cdot \epsilon$  gesetzt.

Die Unsicherheiten der Emissionswahrscheinlichkeiten werden [DEB92] entnommen.

In dieser Arbeit werden häufig Aktivitäten eines Nuklids als Mittelung aus mehreren Linien bestimmt. Da die Unsicherheiten der Aktivitäten sehr stark schwanken, wird zur Mittelung der mit den Quadraten der Unsicherheit gewichtete Mittelwert genommen.

$$A = \frac{\sum \frac{A_i}{u^2(A_i)}}{\sum \frac{1}{u^2(A_i)}} \quad (23)$$

Hier sind  $A_i$  die einzelnen gemessenen Linienaktivitäten und  $u(A_i)$  die zugehörigen Unsicherheiten.

$$u^2(A) = \frac{1}{\sum \frac{1}{u^2(A_i)}} \quad (24)$$

Durch diese Art der Mittelung werden Messwerte mit geringen Unsicherheiten besonders stark gewichtet.

Zur Bestimmung der Unsicherheit von gestörten Linien siehe 3.4.4.

### 3.4.2 Erkennungs- und Nachweisgrenzen

Entscheidend für eine Messung ist, unter welcher gemessenen Aktivität der Messwert mit großer Wahrscheinlichkeit von einer Schwankung des Rauschens stammt. Dieser Wert wird die Erkennungsgrenze  $a^*$  genannt und über dieser Aktivität kann sicher angenommen werden, dass die Probe die Linie abstrahlt.

Weiter ist für die Messung wichtig, ab welcher gemessenen Aktivität zuverlässig davon ausgegangen werden kann, dass die gemessene Aktivität im Rahmen der Messunsicherheit dem wahren Wert entspricht. Dieser Wert heißt Nachweisgrenze  $a^\#$  und bei Aktivitäten oberhalb der Nachweisgrenze kann davon ausgegangen werden, dass sie zuverlässig mit dem Detektionsverfahren nachgewiesen werden können.

In die Berechnung von  $a^*$  und  $a^\#$  fließen Annahmen über die Verteilungsfunktion des Messwertes [SOL10]. Da viele unabhängige zufällige Fehler und Ungenauigkeiten in die Messung eingehen, wird für die Verteilung eine Normalverteilung gewählt. Die Erkennungsgrenze errechnet sich dann als

$$a^* = k_{1-\alpha} \cdot \tilde{u}(0) \tag{25}$$

Wenn wie in der Bachelorarbeit 95% Konfidenz gewünscht ist, dass ein über der Erkennungsgrenze gemessener Wert nicht durch eine Schwankung des Nulleffekts verursacht wird, muss  $k_{1-\alpha} = 1,65$  gewählt werden.

Die Unsicherheit eines realen Wertes null kann direkt errechnet werden [LÜL09]:

$$a^* = 1,65 \cdot \frac{k_S}{\epsilon \cdot p \cdot m} \sqrt{\frac{u^2(I_P)}{t_P^2} + \frac{u^2(I_0)}{t_0^2}} \tag{26}$$

Die Nachweisgrenze ist analog definiert

$$a^\# = a^* + k_{1-\beta} \cdot \tilde{u}(a^\#)$$

Unter verschiedenen Annahmen, die in [SOL10] dargestellt werden, kann aus dieser impliziten Gleichung die folgende Gleichung hergeleitet werden.

$$a^\# = \frac{2 \cdot a^*}{1 - \left( k \cdot \frac{u\left(\frac{k_S}{\epsilon \cdot p \cdot m}\right)}{\frac{k_S}{\epsilon \cdot p \cdot m}} \right)^2} \tag{27}$$

Dabei ist unter anderem  $k = k_{1-\beta} = k_{1-\alpha}$  gewählt worden. Diese Werte werden für jede Linie jedes Nuklids bestimmt und geben Auskunft über die Verwendbarkeit der Messwerte. Für Aktivitäten unterhalb der Erkennungsgrenze kann davon ausgegangen werden, dass die Aktivität aus der Schwankung des Untergrunds stammt. Aktivitäten oberhalb der Nachweisgrenze können verwendet werden. Wenn bei einer Messung die Aktivität eines Nuklids nur über der Erkennungsgrenze, nicht aber über der Nachweisgrenze liegt, ist dies in den Tabellen gesondert vermerkt. In dem Fall kann keine verlässliche quantitative Angabe über die Aktivität gemacht werden.

### 3.4.3 Verwendete Linien

Bei den verwendeten Linien zur Aktivitätsbestimmung wird sich meist an der Empfehlung der *Messanleitung Umweltradioaktivität* [DEB92] orientiert. Zusätzlich wird eine Linie vom Bismut-214 bei 768 keV verwendet. Die Liste aller verwendeten Linien findet sich im Anhang, **Tabelle 9.1**.

### 3.4.4 Gestörte Linien

Wie in **Tabelle 9.1** ersichtlich, konnten nicht alle Linien direkt verwendet werden. In einigen Fällen unterscheiden sich die Linien verschiedener Nuklide nur um einige hundert Elektronenvolt. Meist kann die Aktivität eines der beiden Nuklide aus anderen Linien berechnet werden. Dann muss der Anteil der gemessenen Peak-Fläche bestimmt werden, der von dieser Linie stammt. Die Aktivität der anderen Linie kann dann über die Differenz bestimmt werden.

$$A_2 = \frac{k_{S,2}}{\epsilon_2 \cdot p_2 \cdot m} \cdot \left( \frac{I_P}{t_P} - \frac{I_0}{t_0} \right) - \frac{k_{S,2}}{\epsilon_2 \cdot p_2} \cdot \frac{\epsilon_1 \cdot p_1}{k_{S,1}} \cdot A_1 \quad (28)$$

Auch die Unsicherheit der gestörten Linie erhöht sich, da nun zusätzlich die Unsicherheit der Aktivität der störenden Linie berücksichtigt werden muss.

$$u_{\text{gestört}}^2(A_2) = u_{\text{ungestört}}^2 + A_1^2 \cdot \frac{k_{S,2}}{\epsilon_2 \cdot p_2} \cdot \frac{\epsilon_1 \cdot p_1}{k_{S,1}} \cdot u^2(v) \quad (29)$$

Dabei vereint  $u^2(v)$  die Unsicherheiten der beiden Vorfaktoren:

$$u^2(v) = \left( \frac{u(k_{S,2})}{k_{S,2}} \right)^2 + \left( \frac{u(\epsilon_2)}{\epsilon_2} \right)^2 + \left( \frac{u(p_2)}{p_2} \right)^2 + \left( \frac{u(k_{S,1})}{k_{S,1}} \right)^2 + \left( \frac{u(\epsilon_1)}{\epsilon_1} \right)^2 + \left( \frac{u(p_1)}{p_1} \right)^2 + \left( \frac{u(A_1)}{A_1} \right)^2 \quad (30)$$

Durch die Fehlerfortpflanzung steigen auch jeweils die Erkennungs- und Nachweisgrenze. Dies hat dazu geführt, dass bei der Messung „Braunkohle“ (**Tabelle 4.21**) die Nachweisgrenze für Radium-226 bei 120.000 Bq·kg<sup>-1</sup> liegt.

## 3.5 Qualitätssicherung

Die Unsicherheiten wurden bisher nur theoretisch betrachtet. Dabei wurde von Annahmen ausgehend eine erwartete Unsicherheit der Messwerte bestimmt. Die Messung kann jedoch auch systematische Fehler beinhalten, die die Ergebnisse beeinflussen. So können Wackelkontakte einen Teil der gemessenen Impulse vernichten oder die benutzte Software falsch verwendet werden. Um derartige Fehlerquellen auszuschließen und die allgemeine Qualität der Messwerte zu überprüfen, wurde im Rahmen dieser Bachelorarbeit an zwei Ringversuchen teilgenommen. Zusätzlich wird in diesem Unterkapitel anhand der vorhandenen Messwerte verglichen, wie gut die Umhüllung der Proben das Radon-222-Gas in den Proben gehalten hat.

### 3.5.1 IAEA Proficiency Test IAEA-CU-2010-03

Von der “International Atomic Energy Agency” (IAEA) werden jährlich Ringversuche gestartet, an denen weltweit Labore teilnehmen. Dazu bekommt jedes Labor Proben verschiedener Geometrie und mit für die Labore unbekannter Aktivität. Die Aufgabe ist die Aktivität bestimmter Radionuklide möglichst exakt zu bestimmen.

Die Messergebnisse werden zusammen mit den Standardabweichungen eingesandt und durch ein vorher festgelegtes Schema mit den Messergebnissen der IAEA verglichen.

In dieser Bachelorarbeit wird eine Probe von einem Ringversuch aus dem Jahr 2010 vermessen. Bei der Probe handelt es sich um Staub von einem Erdölfeld, der mit Lagerstät-

tenwasser kontaminiert wurde. Daher enthält der Staub Radium-226, dessen Aktivität bestimmt werden sollte.

Dazu werden 19,3 g in eine Petrischale verpackt und mit der Folienmethode ausgewertet.

Da Radium-226 gemessen werden soll, muss auf die Aktivität des Uran-235 geachtet werden, da Uran-235 eine Emissionslinie bei 185,7 keV besitzt.

Der Messwert muss zum Vergleich mit den Werten der IAEA zusätzlich zurückgerechnet werden auf ein Referenzdatum, den 15. November 2009.

18 – IAEA	a[Bq·kg <sup>-1</sup> ]	u(a)	u <sub>rel</sub> (a)	Notizen
Ra-226	22.020	1.390	6,3%	Eigene Messung
Ra-226	19.050	260	1,4%	Messung der IAEA

**Tabelle 3.2** Messwert für die Radium-226-Aktivität in der IAEA-Proficiency-Test-Probe. Erste Zeile: selbst gemessene Aktivität, zurückgerechnet auf das Referenzdatum 15. November 2009

Zur Bewertung des Ergebnisses wird zunächst die „relative Bias“ ausgerechnet, der relative Fehler

$$relative\ Bias\ (\%) = \frac{Value_{Analyst} - Value_{IAEA}}{Value_{IAEA}} \cdot 100 = 15,57 \quad (31)$$

Als nächstes wird der sogenannte z-Score berechnet.

$$z - Score = \frac{Value_{Analyst} - Value_{IAEA}}{0,1 \cdot Value_{IAEA}} = 1,557 \quad (32)$$

Da der z-Score < 2 ist, wird die performance als „satisfactory“ bewertet.

Nun wird das Ergebnis auf Richtigkeit und Genauigkeit überprüft.

Zum Bestimmen, ob das Ergebnis dem Richtigkeits-Kriterium entspricht, muss folgende Gleichung erfüllt sein:

$$|Value_{IAEA} - Value_{Analyst}| \leq 2,58 \cdot \sqrt{unc_{IAEA}^2 + unc_{Analyst}^2} \quad (33)$$

$$2966,7 \leq 3644,2 \quad (34)$$

Somit wird die Richtigkeit mit „acceptable“ bewertet.

Um die Genauigkeit zu überprüfen wird nun ein weiterer Wert berechnet.

$$P(\%) = \sqrt{\left(\frac{unc_{IAEA}}{Value_{IAEA}}\right)^2 + \left(\frac{unc_{Analyst}}{Value_{Analyst}}\right)^2} \cdot 100 = 6,452 \quad (35)$$

Da P < als 20 ist, wurde auch die Genauigkeitsprüfung bestanden, das Endresultat ist „acceptable“.

### 3.5.2 Ringversuch von Herrn Prof. Philipsborn

Es wurde an einem weiteren Ringversuch wurde teilgenommen, dieser war ein inoffizieller von Herrn Professor Philipsborn der Universität Regensburg. Herr Philipsborn hat auch einige der in dieser Arbeit vermessenen Proben zur Verfügung gestellt.

Bei der zu vermessenden Probe handelt es sich um Gras, was nach dem Tschernobyl-Unfall 1986 in Deutschland mit Cäsium-137 kontaminiert wurde. Eine größere Menge Gras wurde kleingemahlen, homogenisiert und in Gießharz in Plastikdosen geklebt.

Diese Proben werden unter Labors und Privatpersonen ausgeliehen, mit der Aufgabe, die Aktivität in der jeweiligen Probe möglichst exakt zu bestimmen.

Für die verwendete Folienmethode war die Probengeometrie nicht optimal, da das Graspulver nur bis etwa 1 cm unter die obere Kante der Dose reicht. Daher musste bei der Messung „Standard & Probe“ die Probe ersetzt werden. Da die Probe mit leeren Petrischalen ersetzt wurde, wird die Efficiency überschätzt, da Selbstabsorptionseffekte der Probe nicht berücksichtigt werden. Daher wurde bei anderen Proben nachgesehen, wie sehr die Cäsium-Linie des Standards in der Probe absorbiert wird. Darüber konnte die Efficiency etwas heruntergesetzt werden. Allerdings ist die Ungenauigkeit dieses Verfahrens groß.

GP – RingV	a[Bq]	u(a)	u <sub>rel</sub> (a)	Benutzte Linie
Cs-137	119,8	6,0	5,0%	661,66 keV

**Tabelle 3.3** Messwert für die Cäsium-137 Aktivität in der Probe.

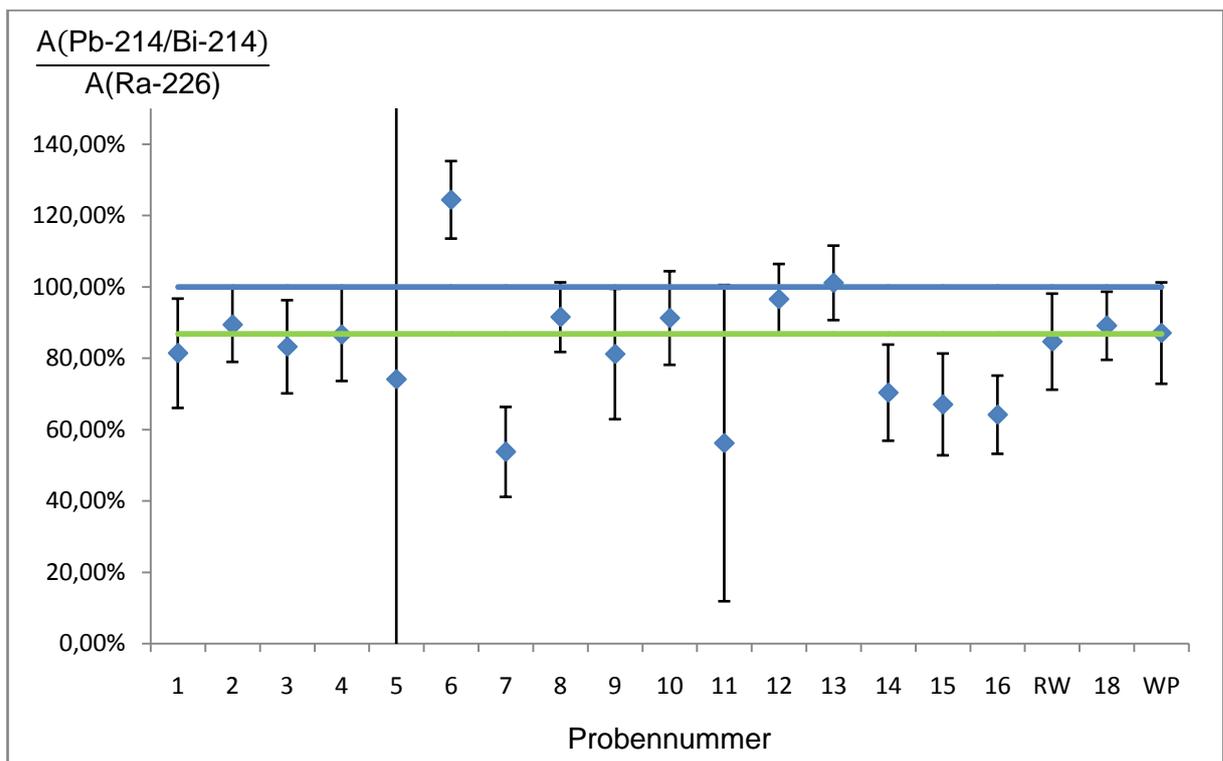
Da der Ringversuch noch nicht abgeschlossen ist, kann nicht gesagt werden, ob die gemessene Aktivität korrekt ist.

### 3.5.3 Gasdichtigkeit

In Kapitel 2.2.4 wurde bereits darauf hingewiesen, dass in der Uran-Radium-Zerfallsreihe ein relativ langlebiges Radon-Nuklid vorkommt, was nach Möglichkeit in der Probe gehalten werden soll. Über die Aktivität der Tochterprodukte kann auch die Aktivität vom Radium-226 bestimmt werden. Wenn jedoch Radon-222 aus der Probe entweicht, ehe es weiter zerfällt, sinken die Aktivitäten der Töchter. Um möglichst viel Radon in der Probe zu halten wurden die Petrischalen jeweils in eine Plastikfolie eingeschweißt.

Im Umkehrschluss kann getestet werden, ob die Umhüllung der Probe ausreicht, um zu verhindern, dass das Gas austritt. Um dies zu testen, sind im unten stehenden Diagramm alle Proben, die in Petrischalen vermessen wurden und Radium-226 enthalten, aufgelistet.

Dabei ist die Aktivität der Folgeprodukte jeweils auf die gemessene Aktivität des Radium-226 normiert. Die Unsicherheiten sind die summierten Unsicherheiten von Radium-226 und den Folgeprodukten.



**Abb. 3.7** Diagramm zur Veranschaulichung der Gasdichtigkeit der Petrischalen  
 Blaue Linie: Aktivität des Radium-226  
 Grüne Linie: mit quadratischen Unsicherheiten gemittelte durchschnittliche Aktivität der Radium-226-Folgeprodukte (86,8%)

Es ist offensichtlich, dass die Umhüllung das Radon nur in Einzelfällen zurückhalten kann. Der einzige Ausreißer, bei dem die Aktivität des Radium niedriger ist als die Aktivität der Töchter ist Probe 6. Diese Probe hatte jedoch Probleme mit der Efficiency-Kalibrierung, weswegen die wirkliche Radium-226-Aktivität höher liegen kann. Insgesamt werden zwischen 80% und 90% des Radongases durch die Petrischale und die Plastikhülle aufgehalten.

## 4 Messung und Auswertung der Proben

Insgesamt wurden in dieser Bachelorarbeit etwa 50 verschiedene Proben vermessen. Dabei ergaben sich vielfältige Probleme bezüglich der Efficiency, Geometrie und Aktivität der Proben. Daher werden nur einige repräsentative Proben mit ihren Problemen dargestellt. Die gemessenen Werte der hier nicht aufgelisteten Proben finden sich im Anhang.

Um die Übersicht zu erleichtern, wird jede Probe einzeln besprochen. Dabei werden zunächst die Probennahme und der thematische Hintergrund der Probe beleuchtet. Nach den Messwerten folgt jeweils eine Interpretation der Ergebnisse.

### 4.1 Proben der Erdöl und Erdgas fördernden Industrie

Ein großer Teil der Proben stammt aus der erdölfördernden Industrie. Dr. rer. nat. Ernst-Michael Steffan von der Firma ExxonMobil hat mehrere Proben zur Verfügung gestellt. Zusätzlich waren von einer Diplomarbeit aus dem Jahr 2001 noch einige Rückstellproben vorhanden, die ebenso vermessen wurden. Bis auf wenige Ausnahmen konnten alle Proben kleingemahlen und in 5 cm Petrischalen gefüllt werden, die anschließend in Plastikfolie verschweißt wurden.

#### Rückstände aus Gasspeicher bei Dötlingen

ExxonMobil betreibt bei Dötlingen einen Erdgasspeicher. Er gehört mit 1,6 Milliarden Kubikmetern zu den größten in Deutschland, wird momentan jedoch aufgrund von Unwirtschaftlichkeit aufgegeben. Aus schlammig bis sandigen Rückständen wurden 29,2g verpackt und vermessen.

5 - SpDö	a[Bq·kg <sup>-1</sup> ]	u(a)	u <sub>rel</sub> (a)	verwendete Linien
<b>Ra-226</b>	19 <sup>*)</sup>	24	126,0%	186,1 keV
<b>Pb-214/Bi-214</b>	14	2	14,9%	295; 351; 609; 1.120; 1.764 keV
<b>Pb-210</b>	2.990	300	10,2%	46,54 keV
<b>Ra-228</b>	9,2	4,4	48,2%	911; 968 keV
<b>Th-228</b>	9,5	1,8	18,7%	238; 583 keV
<b>K-40</b>	381	19	5,0%	1.460,83 keV

**Tabelle 4.1** Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide in der Probe aus dem Gasspeicher bei Dötlingen. Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: Uran-Actinium-Reihe, U-238 bis Th-230

<sup>\*)</sup> Aktivität des Ra-226 unter Erkennungsgrenze (40 Bq·kg<sup>-1</sup>), da jedoch die Töchter vorhanden sind, muss auch das Ra-226 selbst in der Probe vorhanden sein

Erkennbar ist, dass von der Thorium und Uran-Radium Reihe keine Elemente vor dem ersten Radium-Isotop nachweisbar sind (vgl. 2.2.4). Das Radium-226 selbst ist mit der Aktivität zwar unter der Erkennungsgrenze, allerdings sind die kurzlebigen Töchter in der Probe vorhanden und jeweils über der Nachweisgrenze. Somit muss das Radium-226 vorhanden sein. Die Unsicherheit dieses Messwerts ist größer als der Messwert selbst. Dies verdeutlicht, dass die Aktivität zu gering ist, um sie zu genau bestimmen. Nach dem Aktivitätsverhältnis vom Thorium-228 zum Radium-228 ( $1,03 \pm 0,53$ ), ist die Probe etwa 5 Jahre

alt. Aufgrund der hohen Unsicherheit besonders der Radium-Aktivität kann die Probe jedoch auch nur 1,5 oder bis zu 15 Jahre alt sein.

Das Blei-210 hat sich besonders stark angelagert und dominiert die Aktivitäten der anderen Radionuklide. Es steht somit zu erwarten, dass die Aktivität der Probe mit dem Blei-210 abklingen wird, bis sie nach etwa 80 Jahren in den Bereich der Kalium-Aktivität gesunken ist.

#### Rückstände aus einem Erdöl-Lagerfass

Wenn Erdöl über längere Zeiträume gelagert werden soll, so kann dies beispielsweise recht einfach in Fässern geschehen. Wenn das Erdöl nicht rein ist, lagern sich mit der Zeit Schwebstoffe am Grund des Fasses ab, von denen Herr Dr. Steffan eine Probe bereitgestellt hat. Die vermessene Petrischale enthält 32,1g dieser Rückstände.

7 - Fass	a[Bq·kg <sup>-1</sup> ]	u(a)	u <sub>rel</sub> (a)	verwendete Linien
<b>Ra-226</b>	484	50	10,3%	186,1 keV
<b>Pb-214/Bi-214</b>	261	11	4,2%	295; 351; 609; 768; 1.120; 1.764 keV
<b>Pb-210</b>	118	53	44,6%	46,54 keV
<b>Ra-228</b>	256	16	6,1%	209; 338; 409; 911; 968 keV
<b>Th-228</b>	189	9	4,7%	238; 727; 583; 860 keV

**Tabelle 4.2** Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide in der Probe aus dem Lagerfass.  
Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: Uran-Actinium-Reihe, U-238 bis Th-230, sowie Kalium-40

Bei dieser Probe ist auffällig, dass die Aktivität vom Radium sehr viel höher ist als die Aktivität der Töchter. Etwa 45% des Radons emanieren aus der Probe. Eine spätere Untersuchung der Umhüllung hat allerdings keine offensichtlichen Mängel gezeigt. Das Verhältnis vom Thorium-228 zum Radium-228 ist mit  $0,74 \pm 0,06$  niedrig und spricht nach 2.2.4 „Selektiver Transport in Lagerstättenwasser“ für ein Alter der Probe von knapp drei Jahren (untere Grenze 2,5 Jahre; obere Grenze 3,2 Jahre).

#### Gatsch-Probe

Bei der Erdölförderung fällt im laufenden Betrieb Schlamm (sog. Gatsch) an, der entweder wieder ins Bohrloch gepresst oder oberirdisch in Gruben gelagert wird. Aus einer solchen oberirdischen Grube hat Herr Dr. Steffan etwa einen Liter öligen Schlamm entnommen.

Zum Trocknen wurde die Probe etwa zehn Tage in einem heißen Wasserbad gelagert. Anschließend wurde der grobkörnige Sand gemahlen und 19,0 g in eine Petrischale verpackt.

16 - Gatsch	a[Bq·kg <sup>-1</sup> ]	u(a)	urel(a)	verwendete Linien
<b>Ra-226</b>	1.310	117	9,0%	186,1 keV
<b>Pb-214/Bi-214</b>	840	26	3,1%	295; 351; 609; 768; 1.120; 1.764 keV
<b>Pb-210</b>	5.570	572	10,3%	46,54 keV
<b>Ra-228</b>	618	37	6,1%	209; 338; 409; 911; 968 keV
<b>Th-228</b>	583	26	4,5%	238; 727; 583; 860 keV

**Tabelle 4.3** Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide in der Gatsch-Probe. Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: Uran-Actinium-Reihe, U-238 bis Th-230 sowie Kalium-40

Auch bei dieser Probe ist die Aktivität des Radiums-226 deutlich höher als die Aktivität der Radon-Töchter, obwohl die Umhüllung keine offensichtlichen Mängel aufweist.

Über das Thorium/Radium-Verhältnis ( $0,94 \pm 0,07$ ) ist die Probe gut vier Jahre alt (3,5 bis 5 Jahre).

#### Bailer-Probe

Bei einer Erdgasbohrung der Firma ExxonMobil wurde mit einem sog. Bailer, einer Art Löffel, eine kleine Probe aus großer Tiefe entnommen. Da nur sehr wenig Material an die Oberfläche gefördert wurde, konnte keine Petrischale aufgefüllt werden, stattdessen wurde eine Lochpappe mit 4,4 g Staub der intensiv grünen Probe befüllt. Da die Pappe nur mit Klebefolie verklebt wurde, war davon auszugehen, dass ein großer Teil des Radons entweicht und die Aktivität der kurzlebigen Nuklide Bismut-214 und Blei-214 gering ausfällt.

17 - Bailer	a[Bq·kg <sup>-1</sup> ]	u(a)	u <sub>rel</sub> (a)	verwendete Linien
<b>Ra-226</b>	55.400	4.120	7,4%	186,1 keV
<b>Pb-214/Bi-214</b>	50.400	1.660	3,3%	295; 351; 609; 768; 1.120; 1.764 keV
<b>Pb-210</b>	14.000	2.590	18,5%	46,54 keV
<b>Ra-228</b>	12.600	700	5,6%	209; 338; 409; 911; 968 keV
<b>Th-228</b>	15.200	640	4,2%	238; 727; 583; 860 keV

**Tabelle 4.4** Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide in der Bailer-Probe. Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: Uran-Actinium-Reihe, U-238 bis Th-230 sowie Kalium-40

Bemerkenswert ist an dieser Probe, dass kaum Radon zu emanieren scheint und dass die Zusammensetzung für einen selektiven Transport spricht, obwohl die Entnahme direkt vom Gestein am Grund der Bohrung stattfand. Auch ist die Aktivität vergleichsweise hoch, die Gesamtaktivität liegt zumeist noch über der Gesamtaktivität der bis zu zehnmal schwereren Proben, die in Petrischalen gefüllt wurden. Über das Thorium/Radium-Verhältnis ( $1,20 \pm 0,08$ ) ergibt sich ein Alter von 6 bis 7 Jahren.

#### Rückstände mechanischer Abreinigung eines Süßgassteigrohres

Durch Ablagerungen werden die Steigrohre langsam zugesetzt und verengen sich. Um dies zu verhindern, werden die Rohre regelmäßig gereinigt. Dabei fallen meist Stäube an, von denen eine Probe erstellt wurde. Hervorzuheben ist, dass die Dichte der Probe sehr hoch ist, das Gewicht des in die Petrischale gefüllten Materials war mit 66 g 50% höher als das der

zweitschwersten Probe. Insgesamt hat die Probe eine Dichte von  $2,45 \text{ g/cm}^3$ , reines, metallisches Blei hat eine Dichte von  $11,3 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ .

6 - Abreinigung	a[Bq·kg <sup>-1</sup> ]	u(a)	u <sub>rel</sub> (a)	verwendete Linien
<b>Ra-226</b>	12.100*)	880	7,3%	186,1 keV
<b>Pb-214/Bi-214</b>	15.100	430	2,9%	295; 351; 609; 768; 1.120; 1.764 keV
<b>Pb-210</b>	130.000*)	14.000	10,8%	46,54 keV
<b>Ra-228</b>	11.600	600	5,1%	209; 338; 409; 911; 968 keV
<b>Th-228</b>	12.500	500	4,1%	238; 727; 583; 860 keV

**Tabelle 4.5** Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide in der Abreinigungs-Probe. Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: Uran-Actinium-Reihe, U-238 bis Th-230 sowie Kalium-40

\*) Die Efficiency-Kalibrierung bei Energien  $<250 \text{ keV}$  ist sehr ungenau, die wirklichen Aktivitäten können weit höher liegen

Ein großes Problem für die Folienmethode ist bei dieser Probe, dass von auf der Probe liegendem Blei faktisch keine Gammastrahlung am Detektor ankommt. Das bedeutet für die Probe, dass Blei-210-Nuklide, die von nahe dem Deckel zerfallen, nicht detektiert werden können. Daher sank die angenommene Gesamt-Efficiency für Blei-210 auf 0,19%, sonst liegt die Efficiency bei etwa 5-10%. Bei einer so geringen Efficiency ist es möglich, dass die reale Efficiency nur halb so groß und die wirklichen Aktivitäten durchaus auch doppelt so hoch sein können. Die Alter der Probe wird über das Th/Ra-Verhältnis ( $1,07 \pm 0,07$ ) auf 5 Jahre geschätzt (4,5 bis 5,5 Jahre).

### Steigrohr-Scales

Wenn die Ablagerungen vorsichtiger entfernt werden, können Krusten (sog. Scales) gewonnen werden, die ähnlich wie Rost aussehen. Auch von dieser Rückstandsart hat Herr Dr. Steffan eine Probe bereitgestellt, zusätzlich ist im Institut eine kleine Flasche mit Anschauungsmaterial vorhanden. Da die Aktivitäten sehr hoch sind, musste der Abstand zwischen Probe und Detektor künstlich erhöht werden, um die Totzeit gering zu halten. Dadurch wurde die Gesamtefficiency jedoch so klein, dass es schwer wurde, die Peaks des Standards zu erkennen und auszuwerten. Besonders im niederenergetischen Bereich der Energieskala werden die Peaks zusätzlich noch von verschiedensten Emissionen aus dem Probenspektrum überlagert, sodass für beide Proben die Efficiency für Energien kleiner als  $150 \text{ keV}$  besonders ungenau zu bestimmen war. Außerdem befindet sich die Vorführprobe in einer kleinen Plastikflasche, mit der die Folienmethode nicht möglich war. Daher musste die Efficiency mit einer ähnlichen Probe ermittelt werden, was zusätzlich die Unsicherheiten erhöhte.

8, 23 - Scales	a[Bq·kg <sup>-1</sup> ]	u(a)	u <sub>rel</sub> (a)	verwendete Linien
<b>Ra-226</b>	193.000	13.900	7,2%	186,1 keV
	154.000	11.300	7,3%	186,1 keV
<b>Pb-214/Bi-214</b>	176.000	4.850	2,7%	295; 351; 609; 768; 1.120; 1.764 keV
	158.000	4.570	2,9%	295; 351; 609; 768; 1.120; 1.764 keV
<b>Pb-210</b>	57.300*)	6.940	12,1%	46,54 keV
	21.300*)	10.100	47,5%	46,54 keV
<b>Ra-228</b>	43.100	2.240	5,2%	209; 338; 409; 911; 968 keV
	129.000	6.610	5,1%	209; 338; 409; 911; 968 keV
<b>Th-228</b>	57.600	2.340	4,1%	238; 727; 583; 860 keV
	128.000	5.270	4,1%	238; 727; 583; 860 keV

**Tabelle 4.6** Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide in den Scale-Proben.

Jeweils erste Zeile: Scale von Herrn Dr. Steffan

Jeweils zweite Zeile: Vorführ-Scale des Instituts

Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: Uran-Actinium-Reihe, U-238 bis Th-230 sowie Kalium-40

\*) Die Efficiency-Kalibrierung bei Energien <150 keV ist sehr ungenau, die wirklichen Aktivitäten können weit höher liegen

Die Gegenüberstellung der Proben verdeutlicht, dass die Aktivität der Scales zwar allgemein hoch ist, in der Zusammensetzung jedoch schwanken kann: während in der Probe von Herrn Dr. Steffan die Uran-Radium-Reihe weit stärker vertreten ist als die Thorium-Reihe, ist in der Vorführ-Probe die Aktivität der Thorium-Reihe fast gleich der der Radium-Reihe. Auch ist zu erkennen, dass die angenommene Efficiency für das Blei in beiden Fällen anscheinend zu hoch war, die Aktivität also unterschätzt wurde. Es ist davon auszugehen, dass die Aktivität des Blei-210 in beiden Fällen 100.000 Bq·kg<sup>-1</sup> überschreitet, da es von Pb-214 und Bi-214 ständig nachgebildet wird.

In der Scale Probe von Herrn Dr. Steffan ist das Thorium-Radium-Verhältnis bereits  $1,34 \pm 0,09$ , das geschätzte Alter liegt somit bei 10 Jahren (7 bis 15). Bei der Anschauungsprobe ist das Verhältnis nur  $0,99 \pm 0,07$ , das Alter wird auf 4,5 (4 bis 5) Jahre geschätzt. Eine Nachfrage beim zuständigen Mitarbeiter des Instituts ergab, dass die Probe etwa seit einem Jahr im Besitz des Instituts ist. Daher kann das errechnete Alter stimmen.

## 4.2 Rückstellprobenvergleichsmessung

Am Institut sind von einer Diplomarbeit von 2002 noch Rückstellproben aus der Erdölindustrie vorhanden, deren Aktivität nachgemessen werden kann. Dazu wurden die vorhandenen Petrischalen in eine Plastikhülle verpackt, um die Radonemanation zu verringern.

Die Proben stammen von Sakon, einer unter anderem auf Rohre der Erdöl- und Erdgas-Förderung spezialisierten Reinigungsfirma. Der exakte Ursprung war jedoch nicht herauszufinden. Bei dem Vergleich der Aktivitäten ist zu beachten, dass zwischen den Messungen etwa 9 Jahre vergangen sind. Während dies für Uran-238, Radium-226 und Kalium-40 eine unbedeutende Zeitspanne ist, ist dies für das Blei-210 eine halbe Halbwertszeit (in der auch durch Nachproduktion durch Radium-226 die Aktivität steigen kann) und für Radium-228 sind es 1,5 Halbwertszeiten, die zu erwartenden Aktivitäten sind also nur noch ein Drittel der

Ausgangsaktivitäten. Das Thorium-228 wird währenddessen vom Radium-228 nachgebildet, da es sich aber meist noch nicht im transienten Gleichgewicht zum Radium befindet, können konstante Faktoren nicht angegeben werden, hierzu sei auf **Abb. 2.4**, also die Thorium-Radium-Datierung verwiesen, über die eine erwartete Aktivität errechnet werden kann.

11-„K64173“	a[Bq·kg <sup>-1</sup> ]	u(a)	u <sub>rel</sub> (a)	verwendete Linien
<b>U-238</b>	Aktivität unterhalb der Nachweisgrenze			
	57	12	21,0%	
<b>Ra-226</b>	148	59	40,1%	186,1 keV
	48	6	12,5%	
<b>Pb-214/Bi-214</b>	82,9	6,2	7,4%	295; 351; 609; 1.120; 1.764 keV
	Nuklid nicht angegeben			
<b>Pb-210</b>	105	46	43,9%	46,54 keV
	58	12	20,7%	
<b>Ra-228</b>	30,6	12	39,3%	209; 338; 409; 911; 968 keV
	30	7	23,3%	
<b>Th-228</b>	31,0	4,7	15,1%	238; 727; 583; 860 keV
	32	2	6,3%	
<b>K-40</b>	197	49	25,1%	1460 keV
	180	20	11,1%	

**Tabelle 4.7** Nicht zerfallskorrigierte Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide in der Probe „K64173“. Jeweils erste Zeile: eigene Messung  
Jeweils zweite Zeile: Messung von Mohamed Al-Hada, aus [HAD02]  
Uran-Actinium-Reihe nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze

Bei dieser Probe decken sich die Ergebnisse anscheinend größtenteils. Nur die Aktivität vom Radium-226 wurde in der Diplomarbeit deutlich anders gemessen. Allerdings muss, wie oben beschrieben, berücksichtigt werden, dass zwischen den Messungen 9 Jahre liegen. Die zerfallskorrigierte Aktivität des Blei-210 ist noch weiter vom Wert der Diplomarbeit entfernt, sodass sich die Fehlerbereiche nicht mehr überschneiden. Zusätzlich müsste die Aktivität vom Radium-228 bereits auf ein gut ein Drittel abgefallen sein, also 10 Bq·kg<sup>-1</sup>. Über das Thorium/Radium-Verhältnis ergäbe sich somit eine Aktivität von ungefähr 15 Bq·kg<sup>-1</sup> Th-228.

Bei so geringen Aktivitäten ist es schwierig, das Alter über die Thorium-Radium-Datierung zu bestimmen, das Verhältnis ergibt  $1,01 \pm 0,43$ , also ist die Probe mindestens 2 bis etwa 17 Jahre alt, mit einem erwarteten Alter von 5 Jahren. Da sie bereits 2002 vermessen wurde, muss sie jedoch mindestens 9 Jahre alt sein. Das Verhältnis für die Messung 2002 ergibt bereits  $1,07 \pm 0,26$ , also auch etwa 5 Jahre, mit einer Schwankungsbreite von 3 bis 9 Jahren. Eine Kombination der beiden Altersbereiche ergibt somit eine Deposition, die zwischen 1993 und 1999 stattgefunden haben müsste.

Es ist verwunderlich, dass in der Diplomarbeit in der Probe Uran-238 gemessen wurde, da nach „2.2.4: Selektiver Transport in Lagerstättenwasser“ eigentlich kein Element vor den Radium-Isotopen nachweisbar sein sollte.

14 – „WH R23“	a[Bq·kg <sup>-1</sup> ]	u(a)	u <sub>rel</sub> (a)	verwendete Linien
<b>U-238</b>	Aktivität unterhalb der Nachweisgrenze			
	42	21	50%	
<b>Ra-226</b>	549	58,3	10,6%	186,1 keV
	352	14	4,0%	
<b>Pb-214/Bi-214</b>	386	15,7	4,1%	295; 351; 609; 768; 1.120; 1.764 keV
	Nuklid nicht angegeben			
<b>Pb-210</b>	26.600	2.680	10,1%	46,54 keV
	52.400	1.759	3,4%	
<b>Ra-228</b>	22,3	7,0	31,3%	338; 911; 968 keV
	68	6	8,8%	
<b>Th-228</b>	32,2	3,2	9,9%	238; 583 keV
	60	3	5%	
<b>K-40</b>	Aktivität unterhalb der Nachweisgrenze			
	44	12	27,3%	

**Tabelle 4.8** Nicht zerfallskorrigierte Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide in der Probe „Wintershall R23, Flasche I 2nd Time“. Jeweils erste Zeile: eigene Messung  
Jeweils zweite Zeile: Messung von M. Al-Hada, aus [HAD02]  
Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: Uran-Actinium-Reihe

Bei diesem Vergleich passen die Aktivitäten besser zueinander. Zwar unterscheiden sich die gemessenen Aktivitäten vom Radium-226 deutlich, diese Differenz kann jedoch rechnerisch verringert werden. Wenn in der Diplomarbeit die Blei-214 und Bismut-214 Linien (die durch Radonemanation eine geringere Aktivität haben) mit der Radium-226-Linie verrechnet wurden, um die Aktivität vom Radium-226 zu bestimmen, erklärt dies einen Teil der Differenz. Zerfallskorrigiert passen die Aktivitäten vom Radium-228 sehr gut übereinander, 68 Bq·kg<sup>-1</sup> im Jahre 2002 entsprechen etwa 24 Bq·kg<sup>-1</sup> im Jahre 2011. Auch ergibt das Thorium/Radium-Verhältnis von 2002 ein Alter von 4 Jahren (3 bis 4,5), 2011 ergibt sich ein Alter von 14 Jahren (mindestens 4 Jahre, kein maximales Alter).

Zusätzlich konnte in dieser Probe der Multinuklidstandard nachgewiesen werden, in der Diplomarbeit wurde nicht die Folienmethode benutzt, sondern probenspezifisch kalibriert. Die kurzlebigen Nuklide der Tracerlösung sind mittlerweile zerfallen, die langlebigen Nuklide sind jedoch noch klar zu erkennen.

14 – „WH R23“	a[Bq·kg <sup>-1</sup> ]	u(a)	u <sub>rel</sub> (a)	verwendete Linien
<b>Am-241</b>	1.960	198	10,1%	59,54 keV
<b>Cs-137</b>	1.440	73	5,1%	661,7 keV
<b>Co-60</b>	594	47	8,0%	1173

**Tabelle 4.9** Nicht zerfallskorrigierte Messwerte für die Aktivität der QCY-Nuklide in der Probe „Wintershall R23, Flasche I 2nd Time“.  
Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: Cd-109, Co-57, Ce-139, Hg-203, Sn-113, Sr-85, Y-88

Bei der folgenden Probe sind die Differenzen jedoch nicht erklärbar. Es wurde mehrfach getestet, ob die beiden Ergebnisse von den gleichen Proben stammen, aber die Bezeichnung und die Masse stimmen überein. Auch wurde keine andere Probe identifiziert, die den Messwerten ähnliche Aktivitäten zeigt, daher ist davon auszugehen, dass die gleiche Probe vermessen wurde.

13 – „63479E1”	a[Bq·kg <sup>-1</sup> ]	u(a)	u <sub>rel</sub> (a)	verwendete Linien
<b>U-238</b>	Aktivität unterhalb der Nachweisgrenze			
	2.590	118	4,5%	
<b>Ra-226</b>	87.100	6.290	7,2%	186,1 keV
	7.780	252	3,2%	
<b>Pb-214/Bi-214</b>	87.900	2.800	3,2%	295; 351; 609; 768; 1.120; 1.764 keV
	Nuklid nicht angegeben			
<b>Pb-210</b>	28.400	3.090	10,9%	46,54 keV
	"nd: No data – Data couldn't be measured"			
<b>Ra-228</b>	264	50,0	19,0%	338; 911; 968 keV
	48	12	25,0%	
<b>Th-228</b>	417	33,6	7,5%	238; 583 keV
	" — "			
<b>K-40</b>	Aktivität unterhalb der Nachweisgrenze			
	148	34	23,0%	

**Tabelle 4.10** Nicht zerfallskorrigierte Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide in der Probe „63479 Eimer 1“.  
 Jeweils erste Zeile: eigene Messung  
 Jeweils zweite Zeile: Messung von Mohamed Al-Hada, aus [HAD02]  
 Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: Uran-Actinium-Reihe

Bei diesem Vergleich passt kein Wertepaar zueinander, die Werte der eigenen Messung sind um den Faktor 5 – 10 höher. Auch ist der Nachweis des Uran-238 fragwürdig: wenn in der Probe 2.500 Bq · kg<sup>-1</sup> U-238 enthalten sind, müssten mehr als 100 Bq · kg<sup>-1</sup> U-235 enthalten sein. Jedoch wurde entweder nicht auf U-235 untersucht, obwohl eine U-235-Emission bei 185,9 keV die Ra-226 Linie bei 186,1 keV stark stört, oder U-235 konnte nicht identifiziert werden, weil die Aktivität zu gering war, was unwahrscheinlich ist, da Radium-228 auf 25% genau bestimmt werden konnte bei einer Aktivität von 50 Bq · kg<sup>-1</sup> (die Emissionswahrscheinlichkeiten und Efficiency sind ähnlich).

Eine Altersabschätzung war über das Thorium/Radium-Verhältnis leider nicht mehr möglich, da sich die Aktivitäten im säkularen Gleichgewicht befinden, lediglich die untere Grenze des Alters, 10 Jahre, war bestimmbar, wobei ein Alter von mindestens 15 Jahren vermutet wird.

Das die Blei-210 Aktivität nur etwa 1/3 der Aktivität des Radium-226 ist, kann einer Überschätzung der Blei-Efficiency geschuldet sein, allerdings ist auch möglich, dass bei der Probennahme kaum Blei-210 in der Probe war (und aus dem Grund „nd“ an der Aktivität steht) und das vor der Plastikummüllung die Radonemanation die Nachbildung des Blei-210 durch das Radium-226 verlangsamte.

Als weitere Vergleichsmessung bot sich die am stärksten kontaminierte Probe an, da bei dieser eindeutig war, welcher Probe sie von 2002 entsprach. Allerdings unterscheiden sich auch hier die gemessenen Aktivitäten deutlich. Aufgrund der hohen Aktivität musste der Abstand zum Detektor so weit erhöht werden, dass die Efficiency auf etwa 5% der Efficiency anderer Proben fiel. Somit ist die Blei-Kalibration wieder sehr ungenau.

12-63479 E2 T2	a[Bq·kg <sup>-1</sup> ]	u(a)	u <sub>rel</sub> (a)	verwendete Linien
<b>Ra-226</b>	285.000	20.600	7,2%	186,1 keV
	20.200	650	3,2%	
<b>Pb-214/Bi-214</b>	276.000	7.570	2,7%	295; 351; 609; 768; 1.120; 1.764 keV
	Nuklid nicht angegeben			
<b>Pb-210</b>	55.200*)	6.320	11,5%	46,54 keV
	"nd: No data – Data couldn't be measured"			
<b>Ra-228</b>	28.900	1.350	4,7%	209; 338; 409; 911; 968 keV
	8.110	264	3,3%	
<b>Th-228</b>	46.100	1.870	4,1%	238; 727; 583; 860 keV
	7.200	231	3,2%	
<b>K-40</b>	Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze			
	107	50	46,7%	

**Tabelle 4.11** Nicht zerfallskorrigierte Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide in der Probe „63479 Eimer 2 Teil 2“. Jeweils erste Zeile: eigene Messung  
Jeweils zweite Zeile: Messung von Mohamed Al-Hada, aus [HAD02]  
Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: U-238, U-Ac-Reihe.  
\*) Da die Efficiency für Blei-210 nahe Null liegt, kann die reale Aktivität weit höher liegen.

Zerfallskorrigiert sind die 2011 gemessenen Aktivitäten jeweils um den Faktor 10 bis 14 größer als die 2002 gemessenen. Da aus der Diplomarbeit nicht ersichtlich ist, wie die Probe exakt gemessen wurde, ist eine Reproduktion des Messverfahrens zwecks Fehlersuche nicht möglich. Abgesehen davon sollte die Blei-210-Aktivität bei über 200.000 Bq·kg<sup>-1</sup> liegen, da es vom Radium-226 nachproduziert wird.

Die Thoriumdatierung ergibt ein Verhältnis, das eigentlich nicht erreicht werden kann,  $1,60 \pm 0,1$ . Im radioaktiven Gleichgewicht sollte dieser Wert auf 1,5 steigen, allerdings nicht höher. Daher wird davon ausgegangen, dass das Gleichgewicht erreicht wurde, die Probe also mindestens 15 bis 20 Jahre alt ist. Mit den Ergebnissen von 2002 kann das Alter relativ genau auf 4 Jahre berechnet werden, was einem heutigen Alter von 13 Jahren entspricht. Dieses Alter ist mit den Messwerten von 2011 zwar unwahrscheinlich, aber nicht unmöglich.

### 4.3 Lochpappenmessungen

In den vergangenen Jahren hat das Institut viele Umweltproben selbst genommen und weitere aus externen Quellen erhalten. Einige von den Proben wurden wie die Bailerprobe in Pappschablonen verpackt. Dies hat den Vorteil, dass die Pappen in Praktikumsversuchen vermessen werden können. Auch zum Vorführen eignen sich diese Schablonen besser als Petrischalen, in denen die Probe kleingemahlen verklebt wird. Da die Dicke der Proben bis auf wenige Ausnahmen somit nicht größer als 2-3mm war, konnte die Efficiency direkt von

der Standard-unters Kalibrierung übernommen werden. Insbesondere die Blei-210-Efficiency ist deswegen vergleichsweise hoch und das Blei kann bereits mit geringen Aktivitäten nachgewiesen werden.

Zu beachten ist weiter, dass die Aktivitäten nicht in Becquerels pro Kilogramm ( $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ ) angegeben werden, sondern in Becquerel (Bq). Dies wurde getan, da bei den Proben die Massen-Bestimmung nicht direkt möglich ist.

### Schwermineralkonzentrat

Die erste Pappe stammt vom Goldwaschen in der Oberpfalz. Beim Goldwaschen wird Flusssediment (oder anderes Bodenmaterial) mit verschiedenen Methoden nach der Dichte sortiert. Häufig wird das Sediment aus der Innenseite von Flussbiegungen (auch von ausgetrockneten Flüssen) gewonnen, da sich dort strömungsbedingt Sediment hoher Dichte ablagert [ANG80].

Eine einfache Methode ist das Goldwaschen mit dem sog. Sichertrog, dabei wird etwas Material zusammen mit Wasser in eine Art Pfanne gefüllt. Diese wird vorsichtig gedreht und die obersten Anteile dekantiert. Je höher die Dichte der einzelnen Partikel, desto stärker sammeln sich diese am Boden an. Durch häufiges Wiederholen der Methode können die Partikel hoher Dichte somit angereichert werden. Darunter ist Gold mit der besonders hohen Dichte von  $19,32\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$  [STR91], allerdings auch andere schwere Minerale (daher der Name der Probe, „Schwermineralkonzentrat“), wahrscheinlich Granat, Ilmenit, Magnetit, Rutil, Zirkon und Monazit.

Die Probe enthält mit großer Sicherheit kein Gold. Allerdings wäre dies gammaspektrometrisch auch nicht nachweisbar, da Gold nur ein stabiles Isotop (Gold-197) besitzt und das langlebigste instabile Isotop (Gold-195) eine Halbwertszeit von 130 Tagen hat und somit in der Natur nicht vorkommt [KNK06].

Jedoch kann Zirkon Uran und Monazit Thorium enthalten, somit wird erwartet, dass die natürlichen Zerfallsreihen nachweisbar sind.

P1 - SMK	a[Bq]	u(a)	$u_{\text{rel}}(\text{a})$	verwendete Linien
Th-234	0,98 <sup>*1)</sup>	0,39	40,0%	63,28 keV
Ra-226	3,17	0,59	18,8%	186,1 keV
Pb-214/Bi-214	1,41	0,08	6,0%	295; 351; 609; 768; 1.120; 1.764 keV
Pb-210	1,31 <sup>*2)</sup>	0,52	39,5%	46,54 keV
Ra-228	1,82	0,15	8,4%	209; 338; 911; 968 keV
Th-228	2,11	0,11	5,1%	238; 727; 583; 860 keV

**Tabelle 4.12** Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide in der Lochpappe

„Schwermineralkonzentrat“, mit 1,1 g.

Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: U-238, Pa-234m und Th-230, Kalium-40, Uran-Actinium-Reihe.

\*<sup>1)</sup> Aktivität unterhalb der Nachweisgrenze von 1,20 Bq.

\*<sup>2)</sup> Aktivität unterhalb der Nachweisgrenze von 1,70 Bq.

Diese Probe zeigt eine ähnliche Aktivitätenverteilung wie die Proben der Erdölindustrie. So ist die Uran-Actinium-Reihe in der Probe nicht nachweisbar. Auch die Aktivitäten der Nuklide der Uran-Radium-Reihe bis zum Radium-226 sind nicht über der Nachweisgrenze. Jedoch

sind Radium-226 und dessen Tochterprodukte nachweisbar. Diese Anzeichen sprechen für eine Anreicherung ähnlich des selektiven Transports in Lagerstättenwasser.

Allerdings ist die Aktivität der Thorium-234-Linie über der Erkennungsgrenze von 0,52 Bq, nach 3.4.2 „Erkennungs- und Nachweisgrenzen“ muss also angenommen werden, dass Thorium-234 in der Probe enthalten ist.

Auch wurde eine Linie vom Protactinium-234m mit 2,6 Bq gemessen, allerdings ist die Unsicherheit mit 3,2 Bq größer als der Messwert und die Erkennungsgrenze liegt bei 5,9 Bq. Es kann sich bei diesem Messwert also auch um eine statistische Schwankung des Nulleffekts handeln.

Daher wird davon ausgegangen, dass Uran-238 in der Probe enthalten ist, aufgrund der geringen Aktivität jedoch nur Radium-226 und Folgeprodukte nachweisbar sind.

Dass in der Probe keine Nuklide der Uran-Actinium-Reihe nachgewiesen werden konnten, liegt somit wahrscheinlich ebenso an der geringen Aktivität. Wenn die Probe Natururan enthält, so ist die Aktivität der Actinium-Reihe nach 2.2.4 etwa 0,07 Bq. Um diese Aktivität messen zu können, müsste die Messzeit von 23,5 Stunden auf mehrere Tage ausgedehnt werden.

### Glühstrumpf

Die zweite Lochpappe enthält einen Glühstrumpf. Dieser wird in Gaslampen dazu benutzt, die Verbrennungsenergie der Flamme aufzunehmen und hell zu leuchten. Daher muss der Glühstrumpf feuerfest sein. Dies wird erreicht, indem ein Baumwollnetz, was mit Salzen getränkt wurde, verbrannt wird. Zurück bleibt ein dünnes Gerüst der Salze, welches durch thermische Anregung durch die Gasflamme leuchtet. Bis vor einigen Jahren waren die Salze so gewählt, dass das Gerüst zu etwa einem Prozent aus Cer-Oxid ( $\text{CeO}_2$ ) und zu 99% aus Thoriumdioxid ( $\text{ThO}_2$ ) besteht [SHA07]. Da Thorium keine stabilen Isotope besitzt, sind die Glühstrümpfe radioaktiv. Daher wird mittlerweile statt Thorium Yttrium benutzt.

P2 - Glstr	a[Bq]	u(a)	u <sub>rel</sub> (a)	verwendete Linien
Th-230	70,4 <sup>*1)</sup>	26,2	37,2%	67,7 keV
Ra-226	7,5 <sup>*2)</sup>	2,5	34,3%	186,1 keV
Pb-214	1,6	0,4	22,2%	351,9 keV
Th-232	395	56	14,2%	63,8 keV
Ra-228	427	22	5,1%	209; 338; 409; 911; 968 keV
Th-228	428	16	3,7%	238; 240; 727; 583; 860 keV

**Tabelle 4.13** Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide in der Lochpappe „Glühstrumpf“. Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: U-238 bis Pa-234m, Pb-214 (abgesehen von der angegebenen Linie) bis Pb-210, Uran-Actinium-Reihe, K-40  
<sup>\*1)</sup> Aktivität unterhalb der Nachweisgrenze von 84,5 Bq.  
<sup>\*2)</sup> Aktivität unterhalb der Nachweisgrenze von 8,37 Bq.

Bei dieser Probe ist die Aktivität aus der Thorium-Reihe vorrangig.

Das Radium-228 bildet ein säkulares Gleichgewicht zum Thorium-232 aus. Dies benötigt nach 2.2.1 mindestens sieben Halbwertszeiten der Tochter, also etwa 40 Jahre. Dieses Gleichgewicht hat sich eingestellt.

Das für den Glühstrumpf benutzte Thorium besteht nicht ausschließlich aus Thorium-232, sondern auch aus Thorium-230. Denn obwohl die Thorium-230-, als auch die Radium-226-Linie Aktivitäten unterhalb der Nachweisgrenzen zeigen, sind die Aktivitäten oberhalb der Erkennungsgrenzen. Von den Tochterprodukten des Radium-226 ließ sich nur das Blei-214 nachweisen, da die Emissionswahrscheinlichkeit hoch ist und die Linie im Bereich der maximalen Efficiency liegt. Somit ist die Uran-Radium-Reihe in der Probe vertreten. Da die Halbwertszeit von Radium-226 mit 1600 Jahren größer ist als die des Radium-228, dauert es auch länger, bis sich ein säkulares Gleichgewicht einstellt. Daher ist die Aktivität des Radium-228 nur gut ein Zehntel der Aktivität des Thorium-232.

Wenn der Messwert der Thorium-230-Aktivität etwa stimmt, ist die Aktivität vom Thorium-232 um den Faktor 5 bis 6 größer. Da die Halbwertszeit von Thorium-232 bei 14 Milliarden Jahren liegt und die vom Thorium-230 nur 80.000 Jahre beträgt, besteht das Thorium aus der Probe nur zu etwa 0,0001% aus Thorium-230 (Berechnung analog zu 2.2.4: Abgereichertes Uran).

#### Erde aus Hundsbühl

In einer anderen Lochpappe ist ein Gramm Erde von einem Waldstück bei Girnitz, 100 km östlich von Nürnberg. Dort wurde 1977 eine Uranprospektion durchgeführt, da einzelne Erzbrocken mit bis zu 30% Urangehalt gefunden wurden [GEI99].

<b>P3 – Erde HB</b>	<b>a[Bq·kg<sup>-1</sup>]</b>	<b>u(a)</b>	<b>u<sub>rel</sub>(a)</b>	<b>verwendete Linien</b>
<b>U-238</b>	40,2	5,2	13,0%	63; 766; 1.001 keV
<b>Th-230</b>	51,7	11,6	22,4%	67,7 keV
<b>Ra-226</b>	63,8	7,2	11,3%	186,1 keV
<b>Pb-214/Bi-214</b>	38,3	1,4	3,7%	295; 351; 609; 768; 1.120; 1.764 keV
<b>Pb-210</b>	36,3	3,9	10,8%	46,54 keV
<b>U-235</b>	2,0	0,3	15,3%	143; 163; 185; 205 keV
<b>Ac-227</b>	2,2	0,2	7,8%	235; 154; 269; 271; 401; 404 keV

**Tabelle 4.14** Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide in der Lochpappe „1 g Erde aus Hundsbühl“.

Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: Thorium-Reihe, Kalium.

Das Aktivitätsverhältnis des Urans in dieser Probe ist  $20 \pm 4$ . Somit ist das Uran vermutlich natürlichen Ursprungs.

Die Aktivität der Uran-Radium-Reihe in der Probe ist, da die Masse nur 1 g beträgt, etwa  $40.000 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ . Dies ist verglichen mit den Aktivitäten anderer in dieser Arbeit vermessener Proben hoch. Dies liegt vermutlich an der selektiven Auswahl, die zur Probennahme geführt hat.

#### Graspellets Südbayern

Diese Probe wurde 1986 in Südbayern genommen. Am 26. April 1986 war der Block 4 des Kernreaktors in Tschernobyl explodiert und hat in der folgenden Zeit große Mengen radioaktiver Isotope in die Umwelt freigesetzt.

Der genaue Zeitpunkt der Probennahme ist unbekannt, auch ist nichts über die Umgebung um den Herkunftsort.

P4 - Gras	a[Bq]	u(a)	u <sub>rel</sub> (a)	verwendete Linien
<b>Cs-137</b>	7,01	0,36	5,1%	662 keV
<b>K-40</b>	1,5	0,4	28%	1.460 keV

**Tabelle 4.15** Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide in der Lochpappe „Graspellets aus Südbayern“.  
Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: Uran-Radium-Reihe, Uran-Actinium-Reihe, Thorium-Reihe.

Da die Probe 25 Jahre alt ist, sind alle kurzlebigen Radionuklide zerfallen. Allerdings ist das Cäsium-137 mit 30 Jahren Halbwertszeit noch eindeutig nachweisbar. Die Aktivität lässt sich auch auf den Tag der Probennahme zurückrechnen, damals waren  $12,5 \pm 0,65$  Bq in der Probe enthalten. Da die Masse der Probe 1 g ist, entspricht dies  $12,5 \pm 0,65$  Bq·kg<sup>-1</sup>. Der Nachweis von Kalium-40 in der Probe kann auf eine Kaliumdüngung (siehe 2.3.5 Kalium) während der Wachstumsperiode hinweisen oder natürlichen Ursprungs sein.

#### Rohphosphatdünger

In einer der Lochpappen sind 5 g eines Rohphosphatdüngers verpackt. Phosphatdünger werden zumeist bergbaulich gewonnen und enthalten daher Uran.

P6 – RPD	a[Bq]	u(a)	u <sub>rel</sub> (a)	verwendete Linien
<b>U-238</b>	8,2	1,7	20,7%	63 keV
<b>Ra-226</b>	12,9	2,0	15,2%	186,1 keV
<b>Pb-214/Bi-214</b>	9,1	0,4	4,0%	295; 351; 609; 768; 1.120; 1.764 keV
<b>Pb-210</b>	11,1	1,3	11,7%	46,54 keV
<b>U-235</b>	0,37 <sup>*1)</sup>	0,18	47,6%	143; 185 keV
<b>Ac-227</b>	0,48 <sup>*2)</sup>	0,10	20,2%	235; 154; 269; 271 keV

**Tabelle 4.16** Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide in der Lochpappe „Rohphosphatdünger“.  
Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: Thorium-230, Kalium-40, Thorium-Reihe.  
<sup>\*1)</sup> Die 143 keV-Linie ist unter der Nachweisgrenze von 0,61 Bq  
<sup>\*2)</sup> Die Aktivitäten liegen alle unter den Nachweisgrenzen von 0,6 bis 1,0 Bq, aber über den jeweiligen Erkennungsgrenzen

Aus der Messung geht hervor, dass der Rohphosphatdünger kein Kalium enthält, dafür jedoch Uran. Das Aktivitätsverhältnis der Uran-Isotope deutet auf natürliches Uran hin ( $23 \pm 11$ ), jedoch ist die Unsicherheit sehr groß.

#### Urankeramiken

Wie unter „2.3.4 Uran“ erwähnt, wurden vor Entdeckung der schädigenden Eigenschaften ionisierender Strahlung verschiedene Uranverbindungen zum Färben von Keramiken und Gläsern verwendet. Das Institut hat im Laufe der Jahre diverse Gläser, Schmuckstücke und glasierte Keramiken gesammelt, die jeweils Uran enthalten.

Unter anderem sind einige Bruchstücke einer orangenen Fliese (eingepackt in eine Lochpappe) und eine intakte Keramik mit schwarzer Bemalung vorhanden.

Die Aktivitäten beider Fliesen wurden gemessen und zum besseren Vergleich jeweils auf die Fliesenoberfläche bezogen.

30,P5 – Keramiken	a[Bq·cm <sup>-2</sup> ]	u(a)	u <sub>rel</sub> (a)	verwendete Linien
U-238	73,5	5,2	7,0%	63; 766; 1.001 keV
	15,38	1,06	6,9%	63; 766; 1.001 keV
Th-230	Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze von unter 1 Bq·cm <sup>-2</sup>			
	20,96	3,35	16,0%	67,7 keV
Ra-226	Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze von unter 1 Bq·cm <sup>-2</sup>			
	21,42	2,33	10,9%	186,1 keV
Pb-214/Bi-214	0,18	0,06	31,6%	351 keV
	17,74	0,65	3,6%	295; 351; 609; 768; 1.120; 1.764 keV
Pb-210	Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze von unter 1 Bq·cm <sup>-2</sup>			
	21,98	2,21	10,1%	46,54 keV
U-235	3,90	0,20	5,3%	143; 163; 185; 205 keV
	0,68	0,07	9,3%	143; 163; 185; 205 keV
Ac-227	Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze von unter 1 Bq·cm <sup>-2</sup>			
	0,87	0,05	5,0%	235; 154; 269; 271; 401; 404 keV
K-40	1,46	0,32	21,8%	1.460 keV
	0,37	0,08	21,5%	1.460 keV

**Tabelle 4.17** Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide in mit uranhaltiger Farbe bemalten Fliesen. Jeweils erste Zeile: Lochpappe „Uranfliesenbruchstücke (orange-rot)“ mit 11,5cm<sup>2</sup> Gesamtfläche. Jeweils zweite Zeile: vollständige Uranfliese aus dem Schlaggenwald (schwarze Bemalung) mit 38,4 cm<sup>2</sup> Gesamtfläche. Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: Thorium-Reihe (bei beiden Messungen).

Während bei den Bruchstücken eine höhere Aktivität der Uran-Isotope vorliegt, ist bei der intakten Keramik zwar die Aktivität der Uran-Isotope geringer, die Summe der Aktivitäten pro Fläche ist jedoch wieder ungefähr gleich. Der Unterschied der beiden Fliesen ist, dass die Uranfliesenbruchstücke fast ausschließlich Uranisotope enthalten. Nur in Spuren enthalten sind die Tochternuklide der Uran-Reihen. Dies ist vermutlich damit zu begründen, dass zum Gewinnen der Farbe für die Fliese chemisch Uran von seinen Tochterprodukten getrennt wurde und da in der Uran-Radium-Reihe das Thorium-230 mit 80.000 Jahren sehr lange braucht, bis es ein säkulares Gleichgewicht zum Uran-238 bzw. Uran-234 erreicht, ist die Aktivität noch sehr gering. Analog gilt dies für die Uran-Actinium Reihe, da hier das Protactinium-231 mit 33.000 Jahren Halbwertszeit die Gleichgewichtsbildung verzögert und die Aktivität minimiert.

Das Aktivitätsverhältnis in den Bruchstücken ist  $18,9 \pm 1,7$ , somit ist das Uran nicht angereichert, sondern natürlichen Ursprungs.

Die zweite Fliese enthält zusätzlich zu den Uran-Isotopen auch sämtliche Folgeprodukte der Zerfallsreihen. Bei dieser Probe ist das Aktivitätsverhältnis  $22,3 \pm 2,6$ , auch hier wurde Uran natürlicher Zusammensetzung verwendet. Wäre angereichertes Uran zur Herstellung der Farbe verwendet worden, hätte die Fliese wahrscheinlich auch weniger Folgeprodukte der Uran-Reihen enthalten. Denn da Uran erst seit weniger als 100 Jahren angereichert wird, konnte sich noch kein säkulares Gleichgewicht zu den Tochterprodukten einstellen.

Zusätzlich ist die Farbe der Bemalung schwarz. Daher ist davon auszugehen, dass für die Farbe natürlich vorkommende Pechblende benutzt wurde, welche schwarz ist.

#### Thoriumhaltige Schweißnadel

Beim Schweißen wird zum Zünden des Lichtbogens eine besonders hohe Spannung benötigt. Zum Aufrechterhalten wird dann nur eine geringe Spannung, aber ein hoher Stromfluss benötigt. Durch die hohe Zündspannung wird die Elektrode, an der der Lichtbogen startet, beschädigt und langsam verbraucht. Je geringer die Zündspannung ist, desto länger kann eine Elektrode verwendet werden. Daher wird bis zu 4% Thorium den Elektroden hinzugefügt, um die Zündspannung zu erniedrigen [SHA07].

<b>P7 – SchwN</b>	<b>a[Bq]</b>	<b>u(a)</b>	<b>u<sub>rel</sub>(a)</b>	<b>verwendete Linien</b>
<b>Th-230</b>	800	120	14,6%	67,7 keV
<b>Ra-226</b>	14,6	1,9	13,0%	186,1 keV
<b>Pb-214/Bi-214</b>	24,0	0,9	3,9%	295; 351; 609; 768; 1.120; 1.764 keV
<b>Pb-210</b>	2,9	1,5	52,6%	46,54 keV
<b>Ra-228</b>	92,2	5,0	5,4%	209; 338; 409; 911; 968 keV
<b>Th-228</b>	85,0	3,6	4,3%	238; 727; 583; 860 keV

**Tabelle 4.18** Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide in der Lochpappe „Schweißnadel (Thoriumlegiert)“. Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: Kalium-40, Uran-Actinium Reihe. Die Linien unter 300 keV können in Ihrer Aktivität unterschätzt worden sein, dazu siehe Text.

Die Linien eines Nuklids, die unter etwa 300 keV liegen, weisen im Allgemeinen niedrigere Aktivitäten auf, als die Linien, die darüber liegen. Dies könnte an Selbstabsorptionseffekten der Probe liegen, da die Probe zwar sehr klein ist, aber aus festem Metall besteht. Daher könnte die für alle Lochpappen angenommene Efficiency in diesem Fall hoch im Bereich kleiner Energien sein.

Die geringe Größe der Schweißnadel hat noch einen weiteren Effekt: Die spezifische Aktivität kann im Bereich von über  $100.000 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$  liegen. Allerdings ist nur in Ausnahmefällen davon auszugehen, dass viele Schweißnadeln gleichzeitig eine Person einer erhöhten Strahlenbelastung aussetzen. Dennoch sollten, besonders im Großhandel derartige Möglichkeiten in Betracht gezogen werden.

Über das Abbrennverhalten von Schweißnadeln liegen keine exakten Informationen vor, daher kann keine Einschätzung zur Belastung des arbeitenden Personals abgegeben werden.

## 4.4 Glaszylinder

Zu den Vorführproben des Instituts gehören auch mehrere verschlossene Glaszylinder, in denen sich Proben befinden. Da die Proben aus verschiedenen Gründen nicht aus den Zylindern genommen werden können, ergeben sich Probleme bezüglich der Auswertung. Zum einen werden niederenergetische Gammaquanten von dem Glas des Zylinders

aufgehalten. Zum anderen kann die Folienmethode nicht direkt angewendet werden, da die Glaszylinder keine ebenen Flächen haben.

Zur Kalibrierung wurde deswegen eine Petrischale mit Perlen aus Uranglas vermessen, da einer der Glaszylinder die gleichen Uranglasperlen enthält.

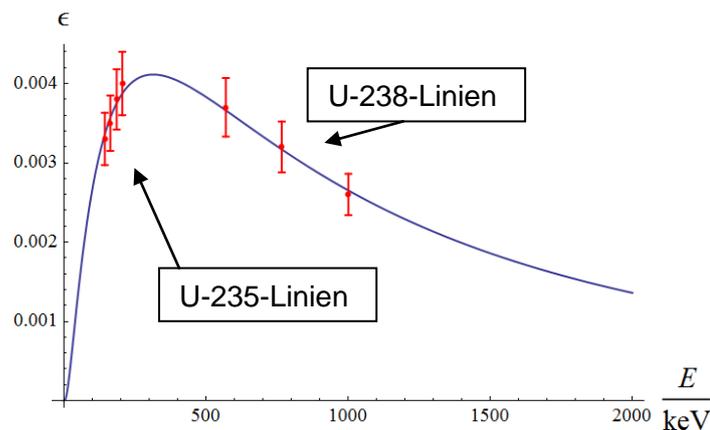
UP	$a[\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}]$	$u(a)$	$u_{\text{rel}}(a)$	verwendete Linien
U-238	115.000	4.600	3,9%	63; 569; 766; 1.001 keV
U-235	1.470	79	5,3%	143; 163; 185; 205 keV

**Tabelle 4.19** Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide in der Probe „Uranglasperlen“. Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: Th-230 bis Pb-210, Ac-227, Thorium-Reihe, Kalium-40.

Die Probe enthält offensichtlich ausschließlich Uran-Isotope. Bemerkenswert ist das Aktivitätsverhältnis von  $78,3 \pm 5,2$ , welches auf abgereichertes Uran schließen lässt.

Mit den gemessenen Linien lässt sich die Efficiency der Glaszylinder kalibrieren: Zunächst wird der Glaszylinder mit den Uranglasperlen vermessen. Mit einer beliebigen Efficiency wird die Messung ausgewertet.

Anschließend wird die Efficiency der einzelnen Linien so verändert, dass jeweils die berechnete Aktivität der gemessenen Aktivität der Petrischale entspricht. Als Unsicherheit der Efficiency wird pauschal 10% der bestimmten Efficiency angenommen. Aus diesen Messpunkten der Efficiency lassen sich danach die Jäckel-Westmeier-Koeffizienten bestimmen.



**Abb. 4.1** Rot: bestimmte Efficiency-Werte für den Uranglasperlen-Glaszylinder  
Blau: benutzter Fit

Da die Dichte der anderen zu messenden Proben in etwa der der Uranglasperlen entspricht, wird diese Efficiency-Kalibrierung verwendet. Allerdings ist die Efficiency für niedrige Energien ( $E_{\text{ph}} \leq 100$  keV) wahrscheinlich überschätzt. Dies liegt darin zu begründen, dass die Selbstabsorption der Probe und die Glaswände des Zylinders die Photonen nahezu komplett abschirmen. Da die Jäckel-Westmeier-Funktion jedoch keine Schwelle realisieren kann, unter der die Efficiency null ist (3.3.5), wird die Efficiency bei kleinen Energien überschätzt.

### Erdölablagerungen Hell & Dunkel

Im Rahmen der oben genannten Diplomarbeit wurden zwei Glaszylinder mit Ablagerungen aus der Erdölindustrie gefüllt. Äußerlich unterscheiden sie sich besonders darin, dass der

eine Zylinder helle, sandig steinige Rückstände enthält, während der andere eher dunkle Rückstände enthält. Es wird davon ausgegangen, dass die dunklen Rückstände mehr Blei enthalten, allerdings lässt sich die Blei-210-Linie wahrscheinlich nicht auflösen, da die Energie mit 46 keV größtenteils von der Glaswand absorbiert wird.

21,22 – Ablgrng	a[Bq·kg <sup>-1</sup> ]	u(a)	u <sub>rel</sub> (a)	verwendete Linien
<b>Ra-226</b>	493.000	101.000	20,3%	186,1 keV
	231.000	47.000	20,5%	186,1 keV
<b>Pb-214/Bi-214</b>	531.000	45.000	8,4%	295; 351; 609; 768; 1.120; 1.764 keV
	198.000	19.000	9,2%	295; 351; 609; 768; 1.120; 1.764 keV
<b>Pb-210</b>	13.900*)	3.500	25,1%	46,54 keV
	11.100*)	2.500	22,9%	46,54 keV
<b>Ra-228</b>	54.300	5.600	10,2%	209; 338; 409; 911; 968 keV
	700	130	18,3%	209; 338; 409; 911; 968 keV
<b>Th-228</b>	79.700	8.900	11,1%	238; 727; 583; 860 keV
	1.140	170	14,9%	238; 727; 583; 860 keV

**Tabelle 4.20** Jeweils erste Zeile: Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide im Glaszylinder „Erdölablagerungen Hell“.  
 Jeweils zweite Zeile: Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide im Glaszylinder „Erdölablagerungen Dunkel“.  
 Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: U-238 bis Th-230, Kalium-40, Uran-Actinium-Reihe.  
 \*) Aufgrund der Glaswand und des Efficiency-Fits werden diese Aktivitäten sehr stark unterschätzt. Die realen Werte müssen mindestens 150.000 Bq·kg<sup>-1</sup> (helle Ablagerungen) beziehungsweise 65.000 Bq·kg<sup>-1</sup> (dunkle Ablagerungen) betragen.

Wie erwartet ist die gemessene Aktivität für das Blei-210 unrealistisch klein. Da die Glaszylinder seit etwa 10 Jahren verschlossen sind, bildet sich ein säkulares Gleichgewicht zwischen Blei-210 und Radium-226 aus. Nach 2.2.1 muss die Aktivität nach einer halben Halbwertszeit vom Blei-210 auf mindestens 30% der Aktivität des Radium-226 ansteigen. Zusätzlich war vorher wahrscheinlich bereits Blei-210 in der Probe vorhanden, womit die Aktivität noch höher ist.

Bemerkenswert ist auch, dass die Aktivität der Thorium-Reihe in der dunklen Probe vergleichsweise wenig repräsentiert ist, sie hat nicht einmal 1% der Aktivität der Uran-Radium Reihe, bei den anderen Proben der Erdölindustrie liegt der Anteil jeweils bei mindestens 10%. Die einzige Ausnahme in dieser Arbeit ist die Probe „63479 E1“ (Seite 41), einer ebenfalls dunklen Probe. Die Aktivitäten sind jedoch jeweils mindestens um den Faktor 3 niedriger.

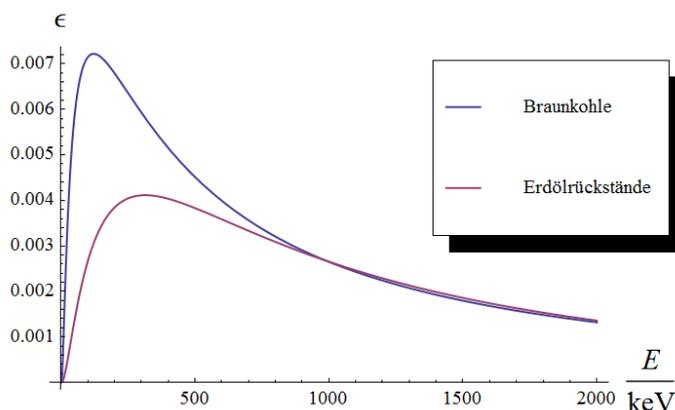
Die Thoriumdatierung ergibt für beide Glaszylinder, dass die Ablagerungen wahrscheinlich über 15 Jahre alt sind, die Unsicherheit begrenzt das Alter jeweils auf mindestens 7 Jahre (dunkel: 1,63 ± 0,38; hell: 1,47 ± 0,22).

#### Braunkohle aus Tagebau bei Wackersdorf

Der dritte Glaszylinder mit nicht anderweitig zu bestimmender Aktivität enthält Rückstände von einem Braunkohletagebau bei Wackersdorf. Da bei dieser Probe der Glaszylinder nicht ganz gefüllt ist und das Material eine etwas geringere Dichte hat, ist die Efficiency für

niedrigere Energien besser als bei den anderen Glaszylinderproben. Um abschätzen zu können, wie groß dieser Effekt ist, wurden die Aktivitäten der Linien von Blei und Bismuth-214 verglichen. Da der Abschirmungseffekt bei steigender Energie kleiner wird, sind die Linien bei 768, 1.120 und 1.764 keV ungestörter von der Abschirmungen. Die Efficiency-Kalibrierung stimmt dort also eher als bei den Energien 295 und 351 keV.

Daher wurde die Efficiency-Kurve so angepasst, dass die bestimmten Aktivitäten ähnlich waren. Dazu musste die Efficiency für Energien um 200 keV verdoppelt werden, ab 600 keV waren keine Korrekturen mehr notwendig.



**Abb. 4.2** Verschiedene benutzte Efficiency-Kurven der Glaszylinder  
Blau: benutzter Efficiency-Fit für den Glaszylinder mit Braunkohle  
Lila: benutzter Efficiency-Fit für die Erdölrückstands-Zylinder

19 – Braunkohle	$a[\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}]$	$u(a)$	$u_{\text{rel}}(a)$	verwendete Linien
<b>U-238</b>	68.900	10.300	14,9%	63; 766; 1.001 keV
<b>Th-230</b>	174.000	44.600	25,6%	67,7 keV
<b>Ra-226</b>	108.000 <sup>*1)</sup>	41.500	34,0%	186,1 keV
<b>Pb-214/Bi-214</b>	75.000	7.000	9,3%	295; 351; 609; 768; 1.120; 1.764 keV
<b>Pb-210</b>	101.000	22.000	21,9%	46,54 keV
<b>U-235</b>	4.170	740	17,7%	143; 163; 205 keV
<b>Ac-227</b>	4.090	400	9,7%	235; 154; 269; 271; 401; 404 keV
<b>K-40</b>	400 <sup>*2)</sup>	150	37,9%	1.460 keV

**Tabelle 4.21** Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide im Glaszylinder „Braunkohletagebau“. Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: Thorium-Reihe. Eventuell ist die Aktivität von Linien unter 400 keV fehlerhaft, dazu siehe Text.  
\*<sup>1)</sup> Aktivität unterhalb der Nachweisgrenze von 128.000 Bq·kg<sup>-1</sup>.  
\*<sup>2)</sup> Aktivität unterhalb der Nachweisgrenze von 470 Bq·kg<sup>-1</sup>.

In dieser Probe ist offensichtlich natürliches Uran enthalten, da das Aktivitätsverhältnis mit  $16,5 \pm 3,8$  jedoch unrealistisch niedrig ist, scheint die Berechnung der Efficiency fehlerhaft zu sein.

Die Energien der verwendeten Uran-235-Linien liegen bei etwa 170 keV und die Energie der Uran-238-Linien liegen bei über 700 keV (die 63 keV Linie wird durch ihre hohe Unsicherheit kaum berücksichtigt und liegt bei  $136.000 \pm 40.000 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$ ). Wahrscheinlich wird die Efficiency bei Energien unter 400 keV trotz der Korrektur unterschätzt und die Aktivitäten

dadurch zu hoch errechnet. Dafür spricht auch die erstaunlich hohe Aktivität der Thorium-230-Linie im Vergleich zu den Aktivitäten der anderen Isotope der Uran-Radium-Reihe.

Die Aktivität vom Blei-210 liegt auf dem Niveau der anderen Aktivitäten der Uran-Radium-Reihe. Dies trotz der angenommenen Selbstabsorption durch die Probe und den Glaszylinder. Also hat sich anscheinend die Selbstabsorptionsschwelle für eine Detektion unter die 46 keV der Blei-Emission verschoben, dies zeigt sich auch in der höheren Efficiency für Photoenergien unter 400 keV.

## 4.5 Sonstige Proben

Einige Proben ließen sich nicht in die obigen Unterkapitel einordnen, sie werden daher hier gesondert aufgelistet

### Uhren

Zum Beleuchten von Ziffernblättern in Armbanduhren wird im seltenen Fällen eine radioaktive Quelle benutzt, die eine fluoreszierende Farbe zum Leuchten anregt. Dadurch können die Ziffernblätter im Dunkeln auch abgelesen werden, ohne dass eine elektrische Beleuchtung benötigt wird. Die Quelle bestand im größten Teil des 20. Jahrhundert aus Radium-226, mittlerweile wird jedoch eher Tritium oder Promethium-147 benutzt [SHA07].

Am Institut sind zwei Uhren mit Leuchtziffernblättern vorhanden, nach der Beschriftung kam bei der einen Uhr Radium-226 und bei der anderen Promethium-147 zum Einsatz. Da Promethium-147 eine Halbwertszeit von nur 2,6 Jahren hat und die Uhr bedeutend älter ist, wird nicht davon ausgegangen, Promethium direkt nachweisen zu können.

Die Uhren wurden jeweils einmal mit und einmal ohne Uhrenglas (aus Plastik) vermessen, um eine eventuelle Abschirmung beobachten zu können. Die Aktivitäten sind jeweils in Gesamtbecquerel des Ziffernblattes angegeben.

U1 – Herodia	a[Bq]	u(a)	u <sub>rei</sub> (a)	verwendete Linien
Ra-226	1.470	106	7,2%	186,1 keV
	1.420	103	7,2%	186,1 keV
Pb-214/Bi-214	475	14	2,8%	295; 351; 609; 768; 1.120; 1.764 keV
	494	14	2,8%	295; 351; 609; 768; 1.120; 1.764 keV
Pb-210	464	47	10,1%	46,54 keV
	403	41	10,1%	46,54 keV

**Tabelle 4.22** Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide in der Uhr „Herodia Fondagier“. Jeweils erste Zeile: ohne Uhrenglas. Jeweils zweite Zeile: mit Uhrenglas. Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: Uran-Actinium-Reihe, Thorium-Reihe, Kalium-40.

Die gemessenen Aktivitäten unterscheiden sich nur sehr wenig, während die Radium-Aktivitäten jeweils in der Ungenauigkeit der anderen Linie liegt, weisen die Töchter vom Radium-226 bei der Messung mit Deckel eine leicht höhere Aktivität auf. Die Blei-210-Linie der Messung mit Deckel ist etwas weniger ausgeprägt als bei der Messung ohne Deckel.

Die Unterschiede in der gemessenen Aktivität des Blei-210-Isotops könnten daher stammen, dass einige niederenergetische Gammaquanten bereits durch das Plastik des Uhrenglases absorbiert werden.

U2 – Ruhla	a[Bq]	u(a)	u <sub>rel</sub> (a)	verwendete Linien
Ra-226	1,560 <sup>*1)</sup>	0,720	46,0%	186,1 keV
	1,510 <sup>*2)</sup>	0,650	42,8%	186,1 keV
Pb-214/Bi-214	0,375	0,071	19,0%	351; 609 keV
	0,405	0,061	15,1%	351; 609 keV
Cs-137	0,136 <sup>*3)</sup>	0,043	31,8%	661,7 keV
	0,117 <sup>*4)</sup>	0,036	30,5%	661,7 keV

**Tabelle 4.23** Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide Uhr „Ruhla antimagnetic stainless steel, made in GDR“. Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: Uran-Actinium-Reihe, Thorium-Reihe, Kalium-40, Uran-238 bis Thorium-230 und Blei-210, Promethium-147.  
<sup>\*1)</sup> Aktivität unter der Nachweisgrenze von 2,374 Bq.  
<sup>\*2)</sup> Aktivität unter der Nachweisgrenze von 2,140 Bq.  
<sup>\*3)</sup> Aktivität unter der Nachweisgrenze von 0,144 Bq.  
<sup>\*4)</sup> Aktivität unter der Nachweisgrenze von 0,118 Bq.

Bei dieser Messung konnte wie erwartet kein Promethium nachgewiesen werden. Die Aktivität des Cäsium-137 ist etwas geringer als die Nachweisgrenze, jedoch deutlich über der Erkennungsgrenze von jeweils unter 0,8 Bq. Somit ist das Cäsium-137 ein sicherer Indikator dafür, dass das Probenmaterial aus einem Kernreaktor stammt. Da Cäsium-137 in der Natur nicht vorkommt, aber in Kernreaktoren normal ist, wurde vermutlich abgebrannter Kernbrennstoff verwendet, um das Promethium für das Ziffernblatt zu gewinnen. Dabei ist offensichtlich nicht das gesamte Cäsium-137 herausgefiltert worden, etwa 40 femtogramm (hochgerechnet aus 0,12 Bq) sind noch heute auf dem Ziffernblatt der Uhr.

### Labortisch

Zwei noch sehr neue Vorführproben sind Teile einer Tischplatte für einen Labortisch. Durch Zufall wurde entdeckt, dass ein Labortisch leicht radioaktiv kontaminiert war, obwohl eine Kontamination im Labor ausgeschlossen werden konnte. Zusätzlich wurden bei der Untersuchung des Labortisches mit einem tragbaren Kontaminationsmonitor unterschiedliche Aktivitäten der Ober- und Unterseite festgestellt. Da nur die Oberseite des Labortisches eine Glasierung aufweist, fiel der erste Verdacht auf eine Kontamination der Glasierung.

Daher wurde bei der Herstellerfirma nach Probestücken gefragt, um diese zu vermessen. Es wurden eine Labortischprobe ohne Glasierung und eine mit Glasierung untersucht. Mit einem mobilen Strahlungsdetektor kann reproduzierbar eine unterschiedliche Aktivität der Proben Ober- und Unterseiten gemessen werden.

Zur Messung auf dem Germaniumdetektor wurden beide Labortischstücke mit der Oberseite auf den Detektor gelegt. Dadurch wird sichergestellt, dass eine stärkere Kontamination der Glasur bei der Messung einen möglichst großen Einfluss hat. Zur Efficiency-Kalibrierung wurde die Folienmethode verwendet. Dies ist nicht optimal, da die Stücke ungefähr quadratisch mit 12cm Kantenlänge sind. Für eine präzisere Messung müssten deshalb die Stücke zersägt werden, eventuell auch die Glasur abgetrennt und extra gemessen. Aus Rücksicht auf spätere Messungen und damit die anschaulichen Stücke nicht zerstört werden, wurde für diese Messung darauf verzichtet.

LG,LO – LabTisch	a[Bq·kg <sup>-1</sup> ]	u(a)	u <sub>rel</sub> (a)	verwendete Linien
U-238	47	10	21,8%	63; 1.001 keV
	46	14	28,9%	63; 1.001 keV
Th-230	47 <sup>*1)</sup>	28	57,9%	67,7 keV
	43 <sup>*2)</sup>	23	52,1%	67,7 keV
Ra-226	58 <sup>*3)</sup>	9,7	16,7%	186,1 keV
	69 <sup>*4)</sup>	12	16,6%	186,1 keV
Pb-214/Bi-214	51	2	3,3%	295; 351; 609; 768; 1.120; 1.764 keV
	65	2	3,2%	295; 351; 609; 768; 1.120; 1.764 keV
Pb-210	31	7	21,9%	46,54 keV
	36 <sup>*5)</sup>	14	37,6%	46,54 keV
U-235	2,6	0,9	35,7%	185 keV
	3,7	1,1	29,6%	185 keV
Ac-227	Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze von etwa 2,5 Bq·kg <sup>-1</sup>			
	5,4 <sup>*6)</sup>	1,5	28,2%	269; 271 keV
Ra-228	51	4	6,1%	209; 338; 409; 911; 968 keV
	55	4	6,1%	209; 338; 409; 911; 968 keV
Th-228	53	3	4,3%	238; 727; 583; 860 keV
	57	3	4,4%	238; 727; 583; 860 keV
K-40	405	11	2,6%	1.460 keV
	399	12	2,8%	1.460 keV

**Tabelle 4.24** Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide in den Labortischproben. Jeweils erste Zeile: Labortisch ohne Glasierung. Jeweils zweite Zeile: Labortisch mit Glasierung.

\*<sup>1)</sup> Aktivität unter der Nachweisgrenze von 93 Bq·kg<sup>-1</sup>.

\*<sup>2)</sup> Aktivität unter der Nachweisgrenze von 76 Bq·kg<sup>-1</sup>.

\*<sup>3)</sup> Aktivität unter der Nachweisgrenze von 65 Bq·kg<sup>-1</sup>.

\*<sup>4)</sup> Aktivität unter der Nachweisgrenze von 78 Bq·kg<sup>-1</sup>.

\*<sup>5)</sup> Aktivität unter der Nachweisgrenze von 44 Bq·kg<sup>-1</sup>.

\*<sup>6)</sup> Aktivitäten unter den Nachweisgrenzen von 8,5 bzw. 12 Bq·kg<sup>-1</sup>.

Das Uran-Aktivitätsverhältnis ist in beiden Fällen deutlich unter 20, da aber die Aktivitäten so klein und die Unsicherheiten so groß sind, ist der Wert 21,7 in beiden Unsicherheiten vorhanden. Die Aktivität von Thorium-228 und Radium-228 sind in etwa gleich groß, da keine Anlagerung wie bei den Erdölproben stattgefunden hat, sondern die Nuklide im säkularen Gleichgewicht zum Thorium-232 stehen. Somit kann mit dieser Messung bestätigt werden, dass der Labortisch bereits radioaktiv ist, ohne dass er kontaminiert wurde.

Aus der gammaspektrometrischen Untersuchung ist jedoch nicht ersichtlich, dass die mit dem tragbaren Messgerät gemessene Aktivität der Labortischprobe mit Glasur deutlich höher sein könnte als von der Probe ohne Glasierung.

Eine mögliche Erklärung wäre, dass die mit dem tragbaren Detektor gemessene höhere Aktivität aus Beta-Strahlung resultiert, da der Germanium-Detektor für diese nicht sensitiv ist. Um dies zu prüfen wurden die beiden Proben mit einem tragbaren Dosisleistungsmessgerät vermessen, das nur für Gamma-Strahlung sensitiv ist.

Der Messbereich des Geräts ist auf dem Gehäuse mit  $500 \text{ nSv}\cdot\text{h}^{-1}$  bis  $10 \text{ mSv}\cdot\text{h}^{-1}$  angegeben und der gemessene Nulleffekt liegt bei etwa  $82 \text{ nSv}\cdot\text{h}^{-1}$  ( $\pm 38 \text{ nSv}\cdot\text{h}^{-1}$ ).

Die beiden Proben wurden jeweils direkt mit dem Messgerät gemessen, als auch abgeschirmt mit einer Plexiglasplatte, um die Beta-Strahlung zu absorbieren. Dabei wurden im Abstand von jeweils 5 Minuten 10 Momentanwerte der Dosisleistung genommen.

Alle vier Messungen ergaben Mittelwerte zwischen  $80 \text{ nSv}\cdot\text{h}^{-1}$  und  $90 \text{ nSv}\cdot\text{h}^{-1}$  mit Standardabweichungen von  $20 \text{ nSv}\cdot\text{h}^{-1}$  bis  $30 \text{ nSv}\cdot\text{h}^{-1}$ .

Da die Mittelwerte jeweils innerhalb der Unsicherheit der anderen Mittelwerte liegen und zusätzlich deutlich unter dem Gerätemessbereich, kann somit keine abschließende Aussage über die Herkunft der unterschiedlichen Kontaminationsmonitor-Messwerte getroffen werden. Eine rein hypothetische Möglichkeit der Anreicherung unter der Glasur könnte sein, dass das Feuern des Tisches zum Aufbringen der Glasur einen Einfluss hat. Dabei könnte die Glasur einige der radioaktiven Atome anziehen, dies ist ein in der Halbleitertechnologie als „Gettern“ bezeichneter Prozess. Dadurch könnte eine höhere Aktivität an Oberseite erreicht werden, und eine geringere Selbstabsorption der Probe.

### Proben aus Jáchymov

Auf einer Exkursion nach Jáchymov, einer Stadt in Tschechien am Erzgebirge, wurde von einem Wohnhaus etwas Wandputz gelöst und ins Institut gebracht.

In Jáchymov wurde seit dem 16. Jahrhundert Bergbau betrieben. Da das Erzgebirge im Gebiet um Jáchymov große Mengen Uranerz enthält und es vor dem 19. Jahrhundert fast keine Verwendung für das Uranit gab, wurde dies zunächst als Abraum auf Halden gebracht. Material dieser Halden wurde auch dazu verwendet, Putz für den Häuserbau herzustellen. Daher wird erwartet, dass der Wandputz Elemente aus den natürlichen Zerfallsreihen enthält.

Wp – Wandputz	a[Bq·kg <sup>-1</sup> ]	u(a)	u <sub>rel</sub> (a)	verwendete Linien
U-238	166.000	8.000	4,4%	63; 766; 1.001 keV
Th-230	179.000	28.000	15,5%	67,7 keV
Ra-226	207.000	25.000	11,8%	186,1 keV
Pb-214/Bi-214	180.000	5.000	2,8%	295; 351; 609; 768; 1.120; 1.764 keV
Pb-210	167.000	17.000	10,1%	46,54 keV
U-235	7.980	640	7,9%	143; 163; 185; 205 keV
Ac-227	9.080	320	3,5%	235; 154; 269; 271; 401; 404 keV
K-40	444	9	1,8%	1.460 keV

**Tabelle 4.25** Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide in der Wandputzprobe aus Jáchymov. Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: Kalium-40, Thorium-Reihe.

Die Gesamtaktivität dieser Probe ist sehr hoch und eine Belastung der Bewohner des Hauses durch Ausgasung von Radon-222 in die Raumluft kann nicht ausgeschlossen werden. Es ist davon auszugehen, dass das Wohnhaus weit über hundert Jahren bewohnt wurde und weiterhin bewohnt wird. Allerdings stammt der Putz von der Außenwand des Hauses, die Innenräume sind eventuell ein wenig geschützt. Dennoch sollte überlegt

werden, eine Dosisleistungsmessung im Haus durchzuführen und das Haus im Falle einer unzulässig hohen Belastung der Bewohner zu sanieren. Das Aktivitätsverhältnis des Urans ist  $20,8 \pm 1,9$  und zeigt damit, dass das Uran natürlichen Ursprungs ist.

### Radonwasserrohr

In Jáchymov wurde 1906 das erste sogenannte Radonheilbad der Welt eröffnet. Dabei handelt es sich um ein Schwimmbad, das mit radonhaltigem Wasser aus einem Uran-Bergwerkstollen versorgt wird. Der ionisierenden Strahlung wird von den Betreiber-gesellschaften entgegen aller wissenschaftlichen Erkenntnisse (siehe 2.1.1 Wirkung von ionisierender Strahlung auf den Menschen) positive Effekte bei einer ganzen Fülle von chronischen Erkrankungen zugesprochen [GHS11].

Das Wasser der Radonbäder strömt im Bergwerk durch die umliegenden uranhaltigen Gesteinsschichten und löst dabei Radon und teilweise auch Radium (siehe 2.2.4 selektiver Transport). In Jáchymov wurde anfangs das Wasser noch von Wasserträgern in Eimern zum Bad befördert, später wurden zu diesem Zweck Rohre verlegt. Da diese Rohre jahrzehntelang benutzt wurden, konnten sich in ihnen viele Rückstände ablagern.

Bei einer Bergwerksbesichtigung wurden einige frühere Rohre untersucht und aus der Innenseite eines der Rohre wurden etwa 70g von braunen, schwammartigen Rückständen genommen. Diese Rückstände bestehen vermutlich zum Teil aus Radium (siehe 2.2.4: Lagerstättenwasser).

Im Institut wurden die Rückstände unter größter Vorsicht zerkleinert und verpackt. Aufgrund der extrem hohen Aktivität musste der Abstand zwischen Probe und Detektor erhöht werden, damit die Totzeit gering blieb. Daher waren die Linien des Standards kaum zu erkennen.

RW	a[Bq·kg <sup>-1</sup> ]	u(a)	u <sub>rel</sub> (a)	verwendete Linien
<b>Ra-226</b>	5.600.000	569.000	10,2%	186,1 keV
<b>Pb-214/Bi-214</b>	4.740.000	186.000	3,9%	295; 351; 609; 768; 1.120; 1.764 keV
<b>Pb-210</b>	701.000	106.000	15,1%	46,54 keV

**Tabelle 4.26** Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide in der Probe aus einem Radonwasser führenden Rohr aus einem Bergwerk nahe Jáchymov.  
Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: Uran-Actinium-Reihe, Thorium-Reihe, Uran-238 bis Thorium-230, Kalium-40.

Die Aktivität pro Masse in dieser Probe übersteigt selbst die Aktivität der Erdölrückstände im Glaszylinder um den Faktor zehn. Der in der Strahlenschutzverordnung als Freigrenze festgelegte Wert für Radium-226 und Folgeprodukte ist  $10 \text{ kBq}\cdot\text{kg}^{-1}$  und die Gesamtaktivität darf  $10 \text{ kBq}$  nicht überschreiten [SSV11]. Die Gesamtaktivität der entnommenen Probe entspricht etwa  $400 \text{ kBq}$  Radium-226 plus Folgeprodukte. Damit wird die Freigabegrenze um den Faktor 40 überschritten und „Tätigkeiten mit diesen radioaktiven Stoffen [unterliegen] der Überwachung nach [der Strahlenschutzverordnung]“ [SSV11].

Da diese hohen spezifischen Aktivitäten in einem ehemaligen Rohr und nicht dem Wasser selbst nachgewiesen worden sind, kann keine definitive Aussage über die Belastung des Wassers gemacht werden. Dennoch ist davon auszugehen, dass die Dosis, die Patienten erhalten haben, weit über der natürlichen Strahlenbelastung liegt und für Spätschäden verantwortlich sein kann.

## 5 Zusammenfassung und Ausblick

Mit den Ergebnissen dieser Arbeit lässt sich sagen, dass sich in der Umgebung der Menschen zusätzlich zu der natürlichen Strahlenbelastung noch einige weitere Quellen ionisierender Strahlung befinden. Besonders in älteren Gegenständen, zum Beispiel alten Uhren, historischem Schmuck und antiken Gläsern lassen sich Radionuklide nachweisen. Auch in der Erdöl und Erdgas produzierenden Industrie fällt radioaktiver Müll an, der teilweise endgelagert werden muss.

Besonders hohe Aktivitäten konnten in Proben aus Jáchymov nachgewiesen werden, daher ist davon auszugehen, dass besondere Umsicht im Bezug auf Radioaktivität in Gebieten geboten ist, in denen Uranbergbau betrieben wurde. In Deutschland ist dies vor allem das Erzgebirge, aber auch im Schwarzwald und im Fichtelgebirge wurde Uran abgebaut. Den teilweise noch heute existierenden Radonheilstätten sollte große Skepsis entgegengebracht werden, denn die Strahlenbelastung kann beachtlich sein.

Die gefundenen Probenaktivitäten sind sehr unterschiedlich und können abhängig von der Elementzusammensetzung innerhalb von Jahren beträchtlich absinken oder auch nahezu konstant bleiben. Vor allem das Leuchtziffernblatt der Uhr, welches Promethium-147 enthielt, beinhaltet heute kaum noch radioaktive Elemente. Das Leuchtziffernblatt der anderen Uhr hingegen enthält Radium-226 und wird noch Jahrhunderte nahezu unverändert strahlen.

Da die meisten Proben der Erdöl-Industrie Radium-226 enthalten, werden sich auch hier die Aktivitäten kaum ändern. Durch den langsamen Aufbau von Blei-210 können die Aktivitäten sogar noch steigen.

In dieser Arbeit wurden ausschließlich die Aktivitäten der Nuklide in den Proben bestimmt. Eine Bestimmung der Dosisleistungen und die Bewertung der eventuell von den Proben ausgehenden Gefahren für Personen in der näheren und weiteren Umgebung wurde nicht vorgenommen. Dies könnte im Rahmen einer weiteren Arbeit untersucht werden.

## 6 Literaturverzeichnis

- [ANG80] ANGLER, B.  
„*Looking for Gold: The Modern Prospector's Handbook*“, Stackpole Books, Mechanicsburg, 1980
- [ANL11] Argonne National Laboratory for The U.S. Department of Energy  
„*Depleted UF<sub>6</sub> Storage*“, Website, letzter Aufruf: September 2011  
<http://web.ead.anl.gov/uranium/mgmtuses/storage/index.cfm>
- [BEL07] BELLIA P., BERNABEIA R., CAPPELLAB F., CERULLIC R., DAID C.J., DANEVICHE F.A., D'ANGELOB A., INCICCHITTIB A., KOBYSHEVE V.V., NAGORNYE S.S., NISIC S., NOZZOLIA F., PROSPERIB D., TRETYAKE V.I., YURCHENKOE S.S.  
„*Search for  $\alpha$  decay of natural Europium*“, Elsevier B.V., Amsterdam, 2007
- [BIR09] BIRKHAN, J. H.  
„ *$\gamma$ -Spektrometrie an Bodenproben von als Grünland genutzten Auenflächen der Zwickauer und Vereinigten Mulde*“, Diplomarbeit, Zentrum für Strahlenschutz und Radioökologie, Universität Hannover, 2010.
- [CHA07] CHANG, R.  
„*Chemistry*“, neunte Auflage, Verlag McGraw-Hill, New York, 2007.
- [DEB92] DEBERTIN, K.  
„*Grundlagen der Gammaskpektrometrie mit Halbleiterdetektoren*“, in „*Messanleitung für die Überwachung der Radioaktivität in der Umwelt und zur Erfassung radioaktiver Emissionen aus kerntechnischen Anlagen*, Kapitel IV.1.1. Der Bundesminister für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit, 1992.
- [DEM10] DEMTRÖDER, W.  
„*Experimentalphysik 4*“, 3. Auflage, Springer-Verlag Berlin Heidelberg New York, 2010
- [FEL86] FELLMANN, S.  
„*Radioaktivität – Entstehung, Messung und Wirkung*“, Elektronik-Literatur-Verlag GmbH, Leer, 1986.
- [GEI99] GEIPEL, R.  
„*Uranvererzungen in Aufschlüssen des Nabburger Flussspatreviers*“, Kleiner Führer zur Exkursion, 1999
- [GHS11] „*Einsatz der Radontherapie für medizinische Zwecke*“, Gasteiner Kur-, Reha- und Heilstollen Betriebsges.m.b.H., Böckstein, Website,  
<http://www.gasteiner-heilstollen.com/einsatz-der-radontherapie-fuer-medizinische-zwecke.html> letzter Aufruf: November 2011
- [HAD02] AL-HADA, M.  
„*Radioactivity in the Environment and the Radiation Exposure of Man*“, Diplomarbeit, Zentrum für Strahlenschutz und Radioökologie, Hannover, 2002.

- [ICRP07] „ICRP 103 – Die Empfehlungen der Internationalen Strahlenschutzkommission (ICRP) von 2007“, Internationale Strahlenschutzkommission, deutsche Übersetzung vom Bundesamt für Strahlenschutz, 2007
- [JÄC87] JÄCKEL, B., WESTMEIER, W., PATZELT, P.  
“On the Photopeak Efficiency of Germanium Gamma-Ray Detectors.” *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, Bd. 261, 1987.
- [KNK06] MAGILL J., PFENNIG G., GALY J.  
„Karlsruher Nuklidkarte“, 7. Auflage, Marktdienst Haberbeck GmbH, Lage, 2006.
- [KOP89] KOPITZKI, K.  
„Einführung in die Festkörperphysik“, Teubner Studienbücher Physik, 1989
- [LIE91] LIESER, K. H.  
„Einführung in die Kernchemie“, Wiley-VCH, 1991.
- [LÜL09] LÜLLAU, T.  
„Gammaskpektrometrische Untersuchungen von anthropogen beeinflussten Umweltproben“, Diplomarbeit, Leibniz Universität Hannover, 2009
- [MIC99] MICHEL, R., KIRCHHOFF, K.  
„Nachweis-, Erkennungs- und Vertrauensgrenzen bei Kernstrahlungsmessungen“, Zentrum für Strahlenschutz und Radioökologie, Universität Hannover, Fachverband für Strahlenschutz e.V., TÜV-Verlag, Köln, 1999
- [ÖRT07] ÖRTEL, S.  
„Uran in der Keramik Geschichte – Technik – Hersteller“, Stefan Örtel (HRSG.), Schweiz, 2007
- [POD10] PODGORŠAK, E.B.  
„Radiation Physics for Medical Physicists“, 2. erweiterte Auflage, Verlag Springer Berlin Heidelberg, 2010.
- [PTB17] KOLB, W., WOJCIK M.  
„Strahlenschutzprobleme bei der Gewinnung und Nutzung von Erdöl und Erdgas in der Bundesrepublik Deutschland“, PTB-Ra-17, Verlag für neue Wissenschaft GmbH, 1985.
- [PTB24] DEBERTIN, K., SCHÖTZING U.  
„Bedeutung von Summationskorrekturen bei der Gammastrahlenspektrometrie mit Germaniumdetektoren“, PTB-Ra-24, Verlag für neue Wissenschaft GmbH, 1990
- [SHA07] SHAW, J., DUNDERDALE, J., PAYNTER, R. A.  
„A Review of Consumer Products Containing Radioactive Substances in the European Union“, Radiation Protection 146, European Commission, 2007
- [SHI00] SHIEH C.C., COGHLAN M., SULLIVAN J.P., GOPALAKRISHNAN M.  
„Potassium channels: molecular defects, diseases, and therapeutic opportunities.“ *Pharmacol Rev.* 2000 Dec;52(4):557-94. Review., PMID: 11121510 [PubMed - indexed for MEDLINE].

- [SIE96] SIEHL, A.  
„Umweltradioaktivität“, Ernst & Sohn Verlag für Architektur und technische Wissenschaften GmbH, Berlin, 1996.
- [SOL10] SOLLE, A.  
„ $\gamma$ -Spektrometrie an Bodenproben von als Ackerland genutzten Auenflächen der Vereinigten Mulde“, Diplomarbeit, Zentrum für Strahlenschutz und Radioökologie, Universität Hannover, 2010.
- [SSV11] „Strahlenschutzverordnung vom 20. Juli 2001 (BGBl. I S. 1714; 2002 I S. 1459), die zuletzt durch Artikel 1 der Verordnung vom 4. Oktober 2011 (BGBl. I S. 2000) geändert worden ist“ Stand: 4.10.2011
- [STE10] STEFFAN, E. M.  
„Scale-Forming-Processes and Scale Detection“, ExxonMobil, 2010.
- [STR01] STRAHAM, D.  
„Uranium in Glass, Glazes and Enamels: History, Identification and Handling“, Studies in Conservation, International Institute for Conservation of Historic and Artistic Works, London, 2001
- [STR91] STREIT, B.  
“Lexikon Ökotoxikologie“, 1. Auflage, Verlag Wiley-VCH, 1991.
- [WÜR00] WÜRFEL, P.  
„Physik der Solarzellen“, 2. Auflage Spektrum Akademischer Verlag GmbH, Heidelberg-Berlin, 2000

## 7 Abbildungsverzeichnis

<b>Abb. 2.1</b>	Verlauf der Aktivitäten von Mutter und Tochter in einem säkularen Gleichgewicht mit $T_{1/2,M} = 15 \cdot T_{1/2,T}$ , Zeitachse auf Halbwertszeiten der Tochter normiert. Links: Aktivität auf Anfangsaktivität der Mutter normiert. Rechts: Aktivität auf zeitlichen Verlauf der Aktivität der Mutter normiert. .... 5
<b>Abb. 2.2</b>	Verlauf der Aktivitäten von Mutter und Tochter in einem transienten Gleichgewicht mit $T_{1/2,M} = 2 \cdot T_{1/2,T}$ , Zeitachse auf Halbwertszeiten der Tochter normiert. Links: Aktivität auf Anfangsaktivität der Mutter normiert. Rechts: Aktivität auf zeitlichen Verlauf der Aktivität der Mutter normiert. .... 6
<b>Abb. 2.3</b>	Verlauf der Aktivitäten von Mutter und Tochter, wenn sich kein Gleichgewicht einstellt, $T_{1/2,M} = \frac{1}{2} \cdot T_{1/2,T}$ ; Zeitachse auf Halbwertszeiten der Tochter normiert. Links: Aktivität auf Anfangsaktivität der Mutter normiert. Rechts: Aktivität auf zeitlichen Verlauf der Aktivität der Mutter normiert. .... 7
<b>Abb. 2.4</b>	Altersbestimmung durch säkulares Gleichgewicht, nach [STE10]. Das bestimmte Alter markiert etwa die Mitte der Anlagerung, je länger die Anlagerung dauerte, desto stärker sinkt somit das gemessene Alter im Vergleich zum Beginn der Deposition. .... 9
<b>Abb. 2.5</b>	Uran-Radium Reihe, entnommen aus [DEB92], eingefärbt nach 3.4.3..... 11
<b>Abb. 2.6</b>	Uran-Actinium Reihe, entnommen aus [DEB92], eingefärbt nach 3.4.3 ..... 11
<b>Abb. 2.7</b>	Thorium Reihe, entnommen aus [DEB92], eingefärbt nach 3.4.3..... 12
<b>Abb. 2.8</b>	Cäsium-137 Zerfallsschema, aus [POD10] ..... 13
<b>Abb. 3.1</b>	Schematischer Aufbau eines dotierten Germanium-Kristalls. schwarze Kreise: Germaniumatome; schwarze Linien: Bindungselektronen; orangene Kreise: Akzeptoratome; blaue Kreise: Donatoratome; Gestrichelte Kreise: Freie Gitterplätze; Gelbe Punkte: (freie) Elektronen; ..... 17
<b>Abb. 3.2</b>	Schematischer Aufbau einer Diode in Sperr- (Links) und Durchlassrichtung (Rechts). Auf Darstellung der Germaniumatome und besetzten Bindungsniveaus wurde verzichtet. Blaue Kreise: Donatoratome; Gelbe Punkte: (freie) Elektronen; orangene Kreise: Akzeptoratome; gestrichelte Kreise: (freie) Löcher; Roter Strich: Pluspol; Schwarzer Strich: Minuspol .... 18
<b>Abb. 3.3</b>	Schematischer Aufbau eines Gamma-Spektrometrie-Messplatzes aus [DEB92] ..... 20
<b>Abb. 3.4</b>	Spektrum der Messung „Steigrohr“ (Ergebnisse <b>Tabelle 4.6</b> jeweils erste Zeile) ..... 21
<b>Abb. 3.5</b>	Schematische Darstellung der für die Folienmethode nötige Messungen. Weißer Zylinder: Detektor Gelber Zylinder: Probe Blaue Scheibe: Folienstandard..... 23
<b>Abb. 3.6</b>	Benutzer Efficiency-Fit für die Messung der Probe „Flasche“ (Messergebnisse in Tabelle 4.1) In Blau: Jäckel-Westmeier-Funktion In Rot: Mittelwerte der Efficiency ..... 26
<b>Abb. 3.7</b>	Diagramm zur Veranschaulichung der Gasdichtigkeit der Petrischalen Blaue Linie: Aktivität des Radium-226 Grüne Linie: mit quadratischen Unsicherheiten gemittelte durchschnittliche Aktivität der Radium-226-Folgeprodukte (86,8%) ..... 33
<b>Abb. 4.1</b>	Rot: bestimmte Efficiency-Werte für den Uranglasperlen-Glaszylinder Blau: benutzter Fit..... 49

---

<b>Abb. 4.2</b>	Verschiedene benutzte Efficiency-Kurven der Glaszylinder Blau: benutzter Efficiency-Fit für den Glaszylinder mit Braunkohle Lila: benutzter Efficiency-Fit für die Erdölrückstands-Zylinder .....	51
-----------------	---	----

## 8 Tabellenverzeichnis

<b>Tabelle 3.1</b>	Die verschiedenen Linien in den Standardlösungen Blei-210 (erste Zeile) und QCY-48 (restliche Zeilen) der PTB Braunschweig laut Kalibrierschein erste Spalte: Nuklid; zweite Spalte: Emissionsenergie eines Photons; dritte und vierte Spalte: Emissionswahrscheinlichkeit und Unsicherheit in Prozent; fünfte und sechste Spalte: Halbwertszeit und Unsicherheit in Tagen; siebte und achte Spalte: Aktivität zum Referenzzeitpunkt und Unsicherheit in Becquerel pro Gramm .....	24
<b>Tabelle 3.2</b>	Messwert für die Radium-226-Aktivität in der IAEA-Proficiency-Test-Probe. Erste Zeile: selbst gemessene Aktivität, zurückgerechnet auf das Referenzdatum 15. November 2009 .....	31
<b>Tabelle 3.3</b>	Messwert für die Cäsium-137 Aktivität in der Probe.....	32
<b>Tabelle 4.1</b>	Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide in der Probe aus dem Gasspeicher bei Dötlingen. Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: Uran-Actinium-Reihe, U-238 bis Th-230 *) Aktivität des Ra-226 unter Erkennungsgrenze ( $40 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ ), da jedoch die Töchter vorhanden sind, muss auch das Ra-226 selbst in der Probe vorhanden sein	34
<b>Tabelle 4.2</b>	Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide in der Probe aus dem Lagerfass. Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: Uran-Actinium-Reihe, U-238 bis Th-230, sowie Kalium-40 .....	35
<b>Tabelle 4.3</b>	Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide in der Gatsch-Probe. Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: Uran-Actinium-Reihe, U-238 bis Th-230 sowie Kalium-40 .....	36
<b>Tabelle 4.4</b>	Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide in der Bailer-Probe. Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: Uran-Actinium-Reihe, U-238 bis Th-230 sowie Kalium-40 .....	36
<b>Tabelle 4.5</b>	Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide in der Abreinigungs-Probe. Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: Uran-Actinium-Reihe, U-238 bis Th-230 sowie Kalium-40 *) Die Efficiency-Kalibrierung bei Energien $<250 \text{ keV}$ ist sehr ungenau, die wirklichen Aktivitäten können weit höher liegen.....	37
<b>Tabelle 4.6</b>	Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide in den Scale-Proben. Jeweils erste Zeile: Scale von Herrn Dr. Steffan Jeweils zweite Zeile: Vorführ-Scale des Instituts Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: Uran-Actinium-Reihe, U-238 bis Th-230 sowie Kalium-40 *) Die Efficiency-Kalibrierung bei Energien $<150 \text{ keV}$ ist sehr ungenau, die wirklichen Aktivitäten können weit höher liegen .....	38
<b>Tabelle 4.7</b>	Nicht zerfallskorrigierte Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide in der Probe „K64173“. Jeweils erste Zeile: eigene Messung Jeweils zweite Zeile: Messung von Mohamed Al-Hada, aus [HAD02] Uran-Actinium-Reihe nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze.....	39

<b>Tabelle 4.8</b>	Nicht zerfallskorrigierte Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide in der Probe „Wintershall R23, Flasche I 2nd Time“. Jeweils erste Zeile: eigene Messung Jeweils zweite Zeile: Messung von M. Al-Hada, aus [HAD02] Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: Uran-Actinium-Reihe .....	40
<b>Tabelle 4.9</b>	Nicht zerfallskorrigierte Messwerte für die Aktivität der QCY-Nuklide in der Probe „Wintershall R23, Flasche I 2nd Time“. Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: Cd-109, Co-57, Ce-139, Hg-203, Sn-113, Sr-85, Y-88 .....	40
<b>Tabelle 4.10</b>	Nicht zerfallskorrigierte Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide in der Probe „63479 Eimer 1“. Jeweils erste Zeile: eigene Messung Jeweils zweite Zeile: Messung von Mohamed Al-Hada, aus [HAD02] Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: Uran-Actinium-Reihe .....	41
<b>Tabelle 4.11</b>	Nicht zerfallskorrigierte Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide in der Probe „63479 Eimer 2 Teil 2“. Jeweils erste Zeile: eigene Messung Jeweils zweite Zeile: Messung von Mohamed Al-Hada, aus [HAD02] Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: U-238, U-Ac-Reihe. *) Da die Efficiency für Blei-210 nahe Null liegt, kann die reale Aktivität weit höher liegen.....	42
<b>Tabelle 4.12</b>	Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide in der Lochpappe „Schwermineralkonzentrat“, mit 1,1 g. Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: U-238, Pa-234m und Th-230, Kalium-40, Uran-Actinium-Reihe. * <sup>1</sup> ) Aktivität unterhalb der Nachweisgrenze von 1,20 Bq. * <sup>2</sup> ) Aktivität unterhalb der Nachweisgrenze von 1,70 Bq. ....	43
<b>Tabelle 4.13</b>	Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide in der Lochpappe „Glühstrumpf“. Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: U-238 bis Pa-234m, Pb-214 (abgesehen von der angegebenen Linie) bis Pb-210, Uran-Actinium-Reihe, K-40 * <sup>1</sup> ) Aktivität unterhalb der Nachweisgrenze von 84,5 Bq. * <sup>2</sup> ) Aktivität unterhalb der Nachweisgrenze von 8,37 Bq. ....	44
<b>Tabelle 4.14</b>	Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide in der Lochpappe „1 g Erde aus Hundsbühl“. Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: Thorium-Reihe, Kalium.....	45
<b>Tabelle 4.15</b>	Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide in der Lochpappe „Graspellets aus Südbayern“. Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: Uran-Radium-Reihe, Uran-Actinium-Reihe, Thorium-Reihe.....	46
<b>Tabelle 4.16</b>	Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide in der Lochpappe „Rohphosphatdünger“. Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: Thorium-230, Kalium-40, Thorium-Reihe. * <sup>1</sup> ) Die 143 keV-Linie ist unter der Nachweisgrenze von 0,61 Bq * <sup>2</sup> ) Die Aktivitäten liegen alle unter den Nachweisgrenzen von 0,6 bis 1,0 Bq, aber über den jeweiligen Erkennungsgrenzen.....	46

<b>Tabelle 4.17</b>	Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide in mit uranhaltiger Farbe bemalten Fliesen. Jeweils erste Zeile: Lochpappe „Uranfliesenbruchstücke (orange-rot)“ mit 11,5cm <sup>2</sup> Gesamtfläche. Jeweils zweite Zeile: vollständige Uranfliese aus dem Schlaggenwald (schwarze Bemalung) mit 38,4 cm <sup>2</sup> Gesamtfläche. Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: Thorium-Reihe (bei beiden Messungen). ....	47
<b>Tabelle 4.18</b>	Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide in der Lochpappe „Schweißnadel (Thoriumlegiert)“. Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: Kalium-40, Uran-Actinium Reihe. Die Linien unter 300 keV können in Ihrer Aktivität unterschätzt worden sein, dazu siehe Text. ....	48
<b>Tabelle 4.19</b>	Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide in der Probe „Uranglasperlen“. Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: Th-230 bis Pb-210, Ac-227, Thorium-Reihe, Kalium-40.	49
<b>Tabelle 4.20</b>	Jeweils erste Zeile: Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide im Glaszylinder „Erdölablagerungen Hell“. Jeweils erste Zeile: Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide im Glaszylinder „Erdölablagerungen Dunkel“. Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: U-238 bis Th-230, Kalium-40, Uran-Actinium-Reihe. *) Aufgrund der Glaswand und des Efficiency-Fits werden diese Aktivitäten sehr stark unterschätzt. Die realen Werte müssen mindestens 150.000 Bq·kg <sup>-1</sup> (helle Ablagerungen) beziehungsweise 65.000 Bq·kg <sup>-1</sup> (dunkle Ablagerungen) betragen.....	50
<b>Tabelle 4.21</b>	Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide im Glaszylinder „Braunkohletagebau“. Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: Thorium-Reihe. Eventuell ist die Aktivität von Linien unter 400 keV fehlerhaft, dazu siehe Text. * <sup>1</sup> ) Aktivität unterhalb der Nachweisgrenze von 128.000 Bq·kg <sup>-1</sup> . * <sup>2</sup> ) Aktivität unterhalb der Nachweisgrenze von 470 Bq·kg <sup>-1</sup> .....	51
<b>Tabelle 4.22</b>	Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide in der Uhr „Herodia Fondagier“. Jeweils erste Zeile: ohne Uhrenglas. Jeweils zweite Zeile: mit Uhrenglas. Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: Uran-Actinium-Reihe, Thorium-Reihe, Kalium-40. ....	52
<b>Tabelle 4.23</b>	Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide Uhr „Ruhla antimagnetic stainless steel, made in GDR“. Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: Uran-Actinium-Reihe, Thorium-Reihe, Kalium-40, Uran-238 bis Thorium-230 und Blei-210, Promethium-147. * <sup>1</sup> ) Aktivität unter der Nachweisgrenze von 2,374 Bq. * <sup>2</sup> ) Aktivität unter der Nachweisgrenze von 2,140 Bq. * <sup>3</sup> ) Aktivität unter der Nachweisgrenze von 0,144 Bq. * <sup>4</sup> ) Aktivität unter der Nachweisgrenze von 0,118 Bq. ....	53
<b>Tabelle 4.24</b>	Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide in den Labortischproben. Jeweils erste Zeile: Labortisch ohne Glasierung. Jeweils zweite Zeile: Labortisch mit Glasierung. * <sup>1</sup> ) Aktivität unter der Nachweisgrenze von 93 Bq·kg <sup>-1</sup> . * <sup>2</sup> ) Aktivität unter der Nachweisgrenze von 76 Bq·kg <sup>-1</sup> . * <sup>3</sup> ) Aktivität unter der Nachweisgrenze von 65 Bq·kg <sup>-1</sup> . * <sup>4</sup> ) Aktivität unter der Nachweisgrenze von 78 Bq·kg <sup>-1</sup> . * <sup>5</sup> ) Aktivität unter der Nachweisgrenze von 44 Bq·kg <sup>-1</sup> . * <sup>6</sup> ) Aktivitäten unter den Nachweisgrenzen von 8,5 bzw. 12 Bq·kg <sup>-1</sup> .....	54

<b>Tabelle 4.25</b>	Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide in der Wandputzprobe aus Jáchymov. Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: Kalium-40, Thorium-Reihe. ....	55
<b>Tabelle 4.26</b>	Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide in der Probe aus einem Radonwasser führenden Rohr aus einem Bergwerk nahe Jáchymov. Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: Uran-Actinium-Reihe, Thorium-Reihe, Uran-238 bis Thorium-230, Kalium-40.....	56
<b>Tabelle 9.1</b>	benutzte Nuklid-Linien, Emissionswahrscheinlichkeiten aus [DEB92] entnommen, $k_S$ -Faktoren: selbst berechnet für die Probe „Lagerfass“, ausgehend von [PTB24] .....	69
<b>Tabelle 9.2</b>	Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide in der Probe „BEB 615“. Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: Uran-Actinium-Reihe, Uran-238 bis Thorium-230. *) Unter der Nachweisgrenze von $153 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ .....	69
<b>Tabelle 9.3</b>	Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide in der Probe „BEB 615 2“. Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: Uran-Actinium-Reihe, Uran-238 bis Thorium-230. *) Unter der Nachweisgrenze von $250 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ .....	69
<b>Tabelle 9.4</b>	Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide in der Probe „K64173“. Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: Uran-Actinium-Reihe, Uran-238 bis Thorium-230. *) Unter der Nachweisgrenze von $179 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ .....	70
<b>Tabelle 9.5</b>	Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide in der Probe „R23“. Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: Uran-Actinium-Reihe, Uran-238 bis Thorium-230, Kalium-40.....	70
<b>Tabelle 9.6</b>	Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide in der Probe „PROBE“. Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: Uran-Actinium-Reihe, Uran-238 bis Thorium-230. *) Unter der Nachweisgrenze von $150 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ .....	70
<b>Tabelle 9.7</b>	Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide in der Probe „Probe D58615 Eimer 1“. Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: Uran-Actinium-Reihe, Uran-238 bis Thorium-230. ....	71
<b>Tabelle 9.8</b>	Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide in der Probe „Wintershall“. Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: Uran-Actinium-Reihe, Uran-238 bis Thorium-230, Kalium-40. ....	71
<b>Tabelle 9.9</b>	Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide in der Lochpappe „Schwarzschiefer“. Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: Thorium-230, Uran-235, Thorium-Reihe. *) Unter der Nachweisgrenze von 2,8 keV.....	71
<b>Tabelle 9.10</b>	Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide in der Uranerzprobe (klein). Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: Thorium-Reihe, K-40.....	72
<b>Tabelle 9.11</b>	Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide in der Uranerzprobe (groß). Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: Thorium-Reihe, K-40.....	72

---

<b>Tabelle 9.12</b>	Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide im Monazitsanddöschen. Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: Th-230, K-40. ....	72
<b>Tabelle 9.13</b>	Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide im Leuchtpunkt des Schaltknopfes mit einem Leuchtpunkt. Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: Uran-Actinium-Reihe, Uran-238 bis Thorium-230, Thorium-Reihe, Kalium-40. ....	73
<b>Tabelle 9.14</b>	Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide in den Leuchtpunkten des Schaltknopfes mit zwei Leuchtpunkten. Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: Uran-Actinium-Reihe, Uran-238 bis Thorium-230, Thorium-Reihe, Kalium-40. ....	73

## 9 Anhang

### Benutzte Linien

	Nuklid	Energie	p[%]	u(p)	k <sub>s</sub>	Störendes Nuklid
Uran-Radium-Reihe	U-238	49,55	0,062	0,006	1,00	
	Th-234	63,28	4,1	0,7	1,00	Th-232: 63,81 keV
	Pa-234m	766,37	0,316	0,006	1,00	Pb-211: 766,51 keV
		1.001,03	0,839	0,012	1,00	
	Th-230	67,67	0,38	0,04	1,00	
	Ra-226	186,1	3,51	0,06	1,00	U-235 : 185,72 keV
	Pb-214	295,22	18,15	0,22	1,01	
		351,93	35,1	0,4	1,02	Bi-211: 351,06 keV
	Bi-214	609,31	44,6	0,5	1,31	
		768,36	4,76	0,2	1,31	
		1.120,29	14,7	0,2	1,32	
		1.764,49	15,1	0,3	0,98	
	Pb-210	46,54	4,25	0,04	1,00	
Uran-Actinium-Reihe	U-235	143,76	10,96	0,08	1,06	Ra-223: 144,23 keV
		163,33	5,08	0,04	1,06	
		185,72	57,2	0,5	1,00	Ra-226: 186,1 keV
		205,31	5,01	0,05	0,98	
	Ac-227					
	Th-227	235,97	12,3	1,6	1,00	
	Ra-223	154,21	5,62	0,16	1,00	Ac-228: 153,98 keV
		269,46	13,7	0,4	1,00	Ac-228: 270,25 keV
	Rn-219	271,23	10,8	0,7	1,00	Ac-228: 270,25keV
		401,81	6,4	0,5	1,00	
Pb-211	404,85	3,78	0,07	1,00		
Thorium-Reihe	Ra-228					
	Ac-228	209,25	3,89	0,07	1,20	
		338,32	11,27	0,19	1,03	Ra-223: 338,28 keV
		409,46	1,94	0,04	1,44	
		911,20	25,8	0,4	1,06	
		968,97	15,8	0,3	1,06	
	Th-228					
	Ra-224	240,99	4,1	0,05	1,00	Pb-214: 241,98 keV
	Pb-212	238,63	43,3	0,4	1,00	
	Bi-212	727,33	6,58	0,06	1,08	Ac-228: 726,86 keV
Tl-208	583,19	30,4	0,3	1,32	Ac-228: 583,41 keV	

		860,56	4,47	0,04	1,12	
Sonstige	Th-232	63,81	0,263	0,013	1,00	Th-234: 63,28 keV
	Am-241	59,54	35,9	0,4	1,00	
	Cs-137	661,66	85	0,2	1,00	
	Co-60	1.173,24	99,85	0,03	1,29	
		1.332,50	99,98	0,0006	1,28	
	K-40	1.460,83	10,67	0,13	1,00	Ac-228, 1.459.14 keV

**Tabelle 9.1** benutzte Nuklid-Linien, Emissionswahrscheinlichkeiten aus [DEB92] entnommen,  $k_S$ -Faktoren: selbst berechnet für die Probe „Lagerfass“, ausgehend von [PTB24]

#### Probe BEB 615

1	a[Bq·kg <sup>-1</sup> ]	u(a)	u <sub>rel</sub> (a)	verwendete Linien
Ra-226	600	75	12,5%	186,1 keV
Pb-214/Bi-214	488	17	3,5%	295; 351; 609; 768; 1.120; 1.764 keV
Pb-210	244	64	26,1%	46,54 keV
Ra-228	46	11	22,4%	338; 911; 968 keV
Th-228	63	6	8,6%	238; 583 keV
K-40	85*)	50	58,7%	1.460 keV

**Tabelle 9.2** Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide in der Probe „BEB 615“. Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: Uran-Actinium-Reihe, Uran-238 bis Thorium-230.  
\*) Unter der Nachweisgrenze von 153 Bq·kg<sup>-1</sup>.

#### Probe BEB 615 2

2	a[Bq·kg <sup>-1</sup> ]	u(a)	u <sub>rel</sub> (a)	verwendete Linien
Ra-226	5.020	390	7,8%	186,1 keV
Pb-214/Bi-214	4.490	130	2,9%	295; 351; 609; 768; 1.120; 1.764 keV
Pb-210	2.020	260	12,7%	46,54 keV
Ra-228	241	25	10,4%	209; 338; 911; 968 keV
Th-228	398	21	5,2%	238; 727; 583; 860 keV
K-40	140*)	110	80,8%	1.460 keV

**Tabelle 9.3** Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide in der Probe „BEB 615 2“. Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: Uran-Actinium-Reihe, Uran-238 bis Thorium-230.  
\*) Unter der Nachweisgrenze von 250 Bq·kg<sup>-1</sup>.

Probe K64173

3	a[Bq·kg <sup>-1</sup> ]	u(a)	u <sub>rel</sub> (a)	verwendete Linien
Ra-226	1.240	130	9,8%	186,1 keV
Pb-214/Bi-214	1.040	50	4,0%	295; 351; 609; 768; 1.120; 1.764 keV
Pb-210	740	100	13,4%	46,54 keV
Ra-228	68	13	18,3%	338; 911; 968 keV
Th-228	89	7	7,4%	238; 583 keV
K-40	132*)	61	46,2%	1.460 keV

**Tabelle 9.4** Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide in der Probe „K64173“. Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: Uran-Actinium-Reihe, Uran-238 bis Thorium-230.  
\*) Unter der Nachweisgrenze von 179 Bq·kg<sup>-1</sup>.

Probe R23

4	a[Bq·kg <sup>-1</sup> ]	u(a)	u <sub>rel</sub> (a)	verwendete Linien
Ra-226	514	49,7	9,7%	186,1 keV
Pb-214/Bi-214	445	17,1	3,8%	295; 351; 609; 768; 1.120; 1.764 keV
Pb-210	29.700	3.000	10,1%	46,54 keV
Ra-228	24	5	17,6%	338; 911; 968 keV
Th-228	35	3	7,6%	238; 727; 583 keV

**Tabelle 9.5** Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide in der Probe „R23“. Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: Uran-Actinium-Reihe, Uran-238 bis Thorium-230, Kalium-40.

Probe D58615 Eimer 2 von Al Hada

9	a[Bq·kg <sup>-1</sup> ]	u(a)	u <sub>rel</sub> (a)	verwendete Linien
Ra-226	456	67	14,5%	186,1 keV
Pb-214/Bi-214	370	18	4,6%	295; 351; 609; 768; 1.120; 1.764 keV
Pb-210	275	74	26,5%	46,54 keV
Ra-228	30	10	31,1%	338; 911; 968 keV
Th-228	46	5	10,1%	238; 583keV
K-40	137*)	50	34,8%	1.460 keV

**Tabelle 9.6** Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide in der Probe „PROBE“. Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: Uran-Actinium-Reihe, Uran-238 bis Thorium-230.  
\*) Unter der Nachweisgrenze von 150 Bq·kg<sup>-1</sup>.

Probe D58615 Eimer 1 von Al Hada

10	a[Bq·kg <sup>-1</sup> ]	u(a)	u <sub>rel</sub> (a)	verwendete Linien
Ra-226	4.100	380	9,1%	186,1 keV
Pb-214/Bi-214	3.750	170	4,5%	295; 351; 609; 768; 1.120; 1.764 keV
Pb-210	2.270	300	13,0%	46,54 keV
Ra-228	236	23	9,5%	338; 911; 968 keV
Th-228	360	22	6,1%	238; 727; 583; 860 keV
K-40	174	101	57,8%	1.460 keV

**Tabelle 9.7** Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide in der Probe „Probe D58615 Eimer 1“. Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: Uran-Actinium-Reihe, Uran-238 bis Thorium-230.

Probe Wintershall von Al Hada

15	a[Bq·kg <sup>-1</sup> ]	u(a)	u <sub>rel</sub> (a)	verwendete Linien
Ra-226	528	61	11,4%	186,1 keV
Pb-214/Bi-214	354	15	4,2%	295; 351; 609; 768; 1.120; 1.764 keV
Pb-210	28.800	2.900	10,1%	46,54 keV
Ra-228	22	11	48,5%	911 keV
Th-228	30	4	11,5%	238; 583 keV

**Tabelle 9.8** Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide in der Probe „Wintershall“. Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: Uran-Actinium-Reihe, Uran-238 bis Thorium-230, Kalium-40.

Lochpappe mit Schwarzschiefer

P9	a[Bq·kg <sup>-1</sup> ]	u(a)	u <sub>rel</sub> (a)	verwendete Linien
U-238	2,0*)	0,9	42,4%	63 keV
Ra-226	19,1	2,0	10,4%	186,1 keV
Pb-214/Bi-214	17,6	0,7	3,8%	295; 351; 609; 768; 1.120; 1.764 keV
Pb-210	21,6	2,4	11,2%	46,54 keV
Ac-227	1,10	0,14	12,8%	269; 271 keV
K-40	5,8	0,7	12,4%	1.460 keV

**Tabelle 9.9** Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide in der Lochpappe „Schwarzschiefer“. Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: Thorium-230, Uran-235, Thorium-Reihe.

\*) Unter der Nachweisgrenze von 2,8 keV.

Uranerz in Gießharz (klein)

24	a[Bq·kg <sup>-1</sup> ]	u(a)	u <sub>rel</sub> (a)	verwendete Linien
<b>U-238</b>	11.900	540	4,5%	63; 766; 1.001 keV
<b>Th-230</b>	4.700	890	18,9%	67,7 keV
<b>Ra-226</b>	9.150	960	10,5%	186,1 keV
<b>Pb-214/Bi-214</b>	10.000	300	2,9%	295; 351; 609; 768; 1.120; 1.764 keV
<b>Pb-210</b>	4.700	500	10,2%	46,54 keV
<b>U-235</b>	254	37	14,5%	143; 163; 185; 205 keV
<b>Ac-227</b>	414	15	3,5%	235; 154; 269; 271; 401; 404 keV

**Tabelle 9.10** Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide in der Uranerzprobe (klein).  
Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: Thorium-Reihe, K-40.

Uranerz in Gießharz (groß)

25	a[Bq·kg <sup>-1</sup> ]	u(a)	u <sub>rel</sub> (a)	verwendete Linien
<b>U-238</b>	49.400	1.200	2,3%	63; 766; 1.001 keV
<b>Th-230</b>	8.700	3.000	35,1%	67,7 keV
<b>Ra-226</b>	29.900	2.700	8,9%	186,1 keV
<b>Pb-214/Bi-214</b>	45.500	1.400	2,9%	295; 351; 609; 768; 1.120; 1.764 keV
<b>Pb-210</b>	4.400	500	11,1%	46,54 keV
<b>U-235</b>	178	76	42,6%	143; 163; 185; 205 keV
<b>Ac-227</b>	1.900	100	4,5%	235; 154; 269; 271; 401; 404 keV

**Tabelle 9.11** Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide in der Uranerzprobe (groß).  
Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: Thorium-Reihe, K-40.

Kleines Döschen mit Monazitsand (46.2g)

26	a[Bq·kg <sup>-1</sup> ]	u(a)	u <sub>rel</sub> (a)	verwendete Linien
<b>U-238</b>	25.700	3400	13,2%	63; 766; 1.001 keV
<b>Ra-226</b>	25.800	5.400	20,9%	186,1 keV
<b>Pb-214/Bi-214</b>	26.900	800	2,85%	295; 351; 609; 768; 1.120; 1.764 keV
<b>Pb-210</b>	3.600	1.800	48,1%	46,54 keV
<b>U-235</b>	4.800	1.500	31,2%	143; 163; 185; 205 keV
<b>Ac-227</b>	2.500	540	21,4%	235; 154; 269; 271; 401; 404 keV
<b>Ra-228</b>	250.000	14.000	5,7%	338; 409; 911; 968 keV
<b>Th-228</b>	248.000	17.000	6,7%	238; 727; 583; 860 keV

**Tabelle 9.12** Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide im Monazitsanddöschen.  
Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: Th-230, K-40.

Schaltknopf mit einem Leuchtpunkt

29	a[Bq·kg <sup>-1</sup> ]	u(a)	u <sub>rel</sub> (a)	verwendete Linien
<b>Ra-226</b>	5.680	410	7,2%	186,1 keV
<b>Pb-214/Bi-214</b>	4.640	130	2,8%	295; 351; 609; 768; 1.120; 1.764 keV
<b>Pb-210</b>	3.460	350	10,1%	46,54 keV

**Tabelle 9.13** Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide im Leuchtpunkt des Schaltknopfes mit einem Leuchtpunkt.

Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: Uran-Actinium-Reihe, Uran-238 bis Thorium-230, Thorium-Reihe, Kalium-40.

Schaltknopf mit zwei Leuchtpunkten

28	a[Bq·kg <sup>-1</sup> ]	u(a)	u <sub>rel</sub> (a)	verwendete Linien
<b>Ra-226</b>	4.000	290	7,2%	186,1 keV
<b>Pb-214/Bi-214</b>	2.060	60	2,8%	295; 351; 609; 768; 1.120; 1.764 keV
<b>Pb-210</b>	1.760	180	10,0%	46,54 keV

**Tabelle 9.14** Messwerte für die Aktivität verschiedener Nuklide in den Leuchtpunkten des Schaltknopfes mit zwei Leuchtpunkten.

Nicht angegeben, da Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze: Uran-Actinium-Reihe, Uran-238 bis Thorium-230, Thorium-Reihe, Kalium-40.