

Messung von C-14 und H-3 in Umweltarchiven aus der Umgebung der Schachtanlage Asse II

Bachelorarbeit

Kim Richert

Mat.-Nr.10014703

16. April 2023

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	4
1.1	Geschichte der Schachtanlage Asse II	4
1.2	TRANSENS	5
1.3	Radioaktivität	5
1.4	H-3 in der Umwelt	6
1.4.1	Messung von Tritium mittels Flüssigszintillationsspektroskopie	7
1.5	C-14 in der Umwelt	8
1.5.1	Messungen von C-14 mittels Beschleuniger-Massenspektrometrie	11
2	Praktische Arbeiten	13
2.1	Probenahme	13
2.2	Probenvorbereitung	15
2.2.1	H-3	15
2.2.2	C-14	17
2.3	Messung	21
2.3.1	H-3	21
3	Ergebnisse	23
3.1	H-3	23
3.2	C-14	28
4	Diskussion	32
4.1	H-3	32
4.1.1	Vergleich mit Gauß-Fahnen-Modell	34
4.2	C-14	38
4.2.1	Vergleich mit Gauß-Fahnen-Modell	40
5	Nachmessung ausgewählter Jahresringe (C-14)	54
6	Ausblick	57

Eigenständigkeiterklärung

Hiermit versichere ich, dass ich diese Arbeit selbstständig verfasst habe.

Ich versichere, dass ich keine anderen als die angegebenen Quellen genutzt habe.

An allen Stellen der Arbeit, die wörtlich oder sinngemäß aus anderen Quellen übernommen wurden, versichere ich, dass diese als solche kenntlich gemacht sind.

Ich versichere auch, dass die Arbeit in gleicher oder ähnlicher Form noch keiner Prüfungsbehörde vorgelegen hat.

Hannover, den 16. April 2023

Kim Rebecca Richert

Danksagung

In erster Linie möchte ich mich bei dem besten Betreuer der Welt, Wolfgang, bedanken, ohne deine Expertise würde diese Arbeit nicht in der jetzigen Form vorliegen. Darüber hinaus gilt mein Dank Stefan, für die Unterstützung bei der Probenahme an den Gewässern (und bei jeglichen anderen Anliegen), es hat, trotz des sehr einprägsamen Geruch, sehr viel Spaß gemacht und ich hoffe das siehst du ebenso. Natürlich möchte ich mich auch bei meinem Prüfer Clemens für die Möglichkeit dieser Arbeit bedanken.

Des weiteren möchte ich mich bei Nils, Sergiy, Paul und Jan für die Hilfestellungen bezüglich der kleineren oder größeren Schwierigkeiten bedanken, ihr konntet meiner Verzweiflung ziemlich schnell ein Ende setzten. Ein Großes Danke geht auch an das Team der Werkstatt für die Unterstützung bei der Probenahme aus den Baumscheiben, das waren sehr lustige Tage.

Nicht zu vergessen ist außerdem das Team von Sönke an der Universität Bern: Danke für die schönen Ergebnisse und die nette Aufnahme vor Ort, Bern ist eine wirklich tolle Stadt und ich weiß dank euch jetzt so einiges mehr über Beschleuniger-Massenspektrometrie.

Abschließend möchte ich mich noch bei allen anderen des Instituts bedanken. Die Zeit, in der ich diese Arbeit verfasst habe, wäre ohne die freundliche Aufnahme und das gemeinsame Kaf-fetrinken (danke Tobias) nicht annähernd so schön gewesen.

1 Einleitung

Im südlichen Niedersachsen befindet sich der Gebirgszug Asse, in welchem in den siebziger Jahren schwach- und mittelradioaktiver Abfall eingelagert wurde. Dies ist von einer langen Protestkultur begleitet und es gab immer wieder Vorderungen nach Messungen von Kohlenstoff-14 (kurz C-14) und Tritium (kurz H-3). Im Rahmen dieser Arbeit soll ein möglicher Einfluss der Emission der Schachtanlage Asse II auf die Umwelt in der Vergangenheit und Gegenwart untersucht werden.

Die Schachtanlage gibt Emissionen über einen 11 m hohen Diffusor [1] ab, die sich aus den jährlichen Emissionsberichten der Umweltüberwachung [2] entnehmen lassen.

1.1 Geschichte der Schachtanlage Asse II

Der folgende Absatz gibt einen kurzen Überblick über die Geschichte der Schachtanlage Asse II wie er in der Zeittafel [3] zu finden ist.

Die Schachtanlage Asse II findet ihren Anfang im 19. Jahrhundert, als mit dem Abbau von Kali- und Steinsalz begonnen worden ist.

1965 kaufte die Gesellschaft für Strahlenforschung (GfS) die Anlage auf. Im selben Jahr wurde auch das Institut für Tieflagerung gegründet.

Im Zuge von Forschungsarbeiten wurde ab 1967 schwach- und mittelradioaktiver Abfall in der Schachtanlage eingelagert. Von da an galt die Asse II als Forschungsbergwerk zur Prüfung der Eignung von Salz als Wirtsgestein für Endlagerung radioaktiver Abfälle, jedoch endete dies mit der Auflösung des Instituts für Tieflagerung 1995 und eine Stilllegung seitens der GfS war mit Verbleib der radioaktiven Abfälle im Bergwerk geplant.

In den frühen 2000ern wurde im Zuge der Verfüllung des Tiefenaufschlusses radioaktiv kontaminierte Kalisalzlösung ohne strahlenschutzrechtliche Umgangsgenehmigung [3] aus dem Sumpf vor Kammer 12 auf die 975-m-Sohle gepumpt, sodass die Asse ab 2008 unter dem Atomrecht steht.

Damit wechselte die Verantwortung zum Bundesamt für Strahlenschutz (BfS) und eine Umrüstung der Asse nach Atomrecht mit anschließender Stilllegung war vorgesehen.

Die Frage was mit dem radioaktiven Abfall passiert, wurde als Optionenvergleich in drei Richtungen (Verbleib, Rückholung, Umlagerung)[3] mit dem Ergebnis diskutiert, dass nur eine Rückholung die Langzeitsicherheit garantieren könne, da die Schachtanlage unter anderem durch den Zufluss von Wasser gefährdet ist. Die Rückholung des radioaktiven Abfalls ist seit 2013 durch das Gesetz zur Beschleunigung der Rückholung radioaktiver Abfälle und Stilllegung

der Schachtanlage Asse II geregelt [4].

1.2 TRANSENS

Das Projekt TRANSENS beschäftigt sich mit transdisziplinärer Forschung zur Standortauswahl für ein Endlager für radioaktive Abfälle in Deutschland. Die Transdisziplinarität zeichnet sich dabei in der Kooperation und Co-Produktion von Wissen zwischen wissenschaftlicher Forschung und der Bevölkerung ab.

Start des Projektes war der 1. Oktober 2019, voraussichtliches Ende wird der 30. September 2024 sein.

Im Rahmen dieses Projektes wird eine Bürgermessstelle in Remmlingen-Semmenstedt betrieben, in welcher Bürger Proben auf Radioaktivität mittels eines Gamma-Detektors untersuchen lassen können.

Dieser Gamma-Detektor ist für die β -Strahler H-3 und C-14 jedoch nicht geeignet, weswegen im Zuge dieser Arbeit auf andere Messmethoden zurückgegriffen wird.

1.3 Radioaktivität

Zerfällt ein Atomkern unter Aussendung von ionisierender Strahlung, wird er als radioaktiv bezeichnet. Es lassen sich drei Arten von radioaktivem Zerfall (α , β , γ) unterscheiden, wobei der β^- -Zerfall hier im Vordergrund steht, da H-3 und C-14 diesem zuzuordnen sind.

Wie in Abbildung 1 zu erkennen ist, wandelt sich im Kern ein Neutron, unter Aussendung eines Elektrons und eines Elektron-Antineutrinos, in ein Proton um. Die auch als β^- -Teilchen bezeichneten Elektronen haben in der Luft eine Reichweite von einigen Zentimetern (z.B. H-3, C-14) bis einigen Metern (z.B. I-131).

Ein radioaktives Nuklid lässt sich, neben der Massenzahl, durch die spezifische Aktivität, angegeben in Becquerel ($1 \text{ Bq/g} = 1 \text{ Zerfall pro Sekunde pro Gramm}$), und die Halbwertszeit charakterisieren. Letztere ist ein Maß dafür, wann die anfängliche Anzahl der Mutterkerne, und somit auch die Aktivität, auf die Hälfte gesunken ist.

Die Energieverteilung von β -Strahlung zeichnet sich durch ein kontinuierliches Spektrum aus und enthält die für das Nuklid charakteristische mittlere Energie und β -Endpunktsenergie, wobei letztere die Maximalenergie bezeichnet. Das β -Spektrum besitzt ein Maximum bei etwas über der Hälfte der β -Endpunktsenergie.

Radioaktive Quellen können sowohl natürlich als auch anthropogen sein. In den natürlich vorkommenden Hintergrund gehen zum einen die Produkte der Zerfallsreihen der primordialen

Radionuklide (U-238 → Pb-206, U-235 → Pb-207 und Th-232 → Pb-208), K-40, und im geringen Maße weitere, ein, zum anderen aber auch die ständige Neubildung weiterer Nuklide durch Wechselwirkungsprozesse von kosmischer Strahlung mit der Atmosphäre, wie es bei H-3 und C-14 der Fall ist.

Beispiele für anthropogene Quellen sind kerntechnische Anlagen, Kernwaffen und der medizinische Bereich.

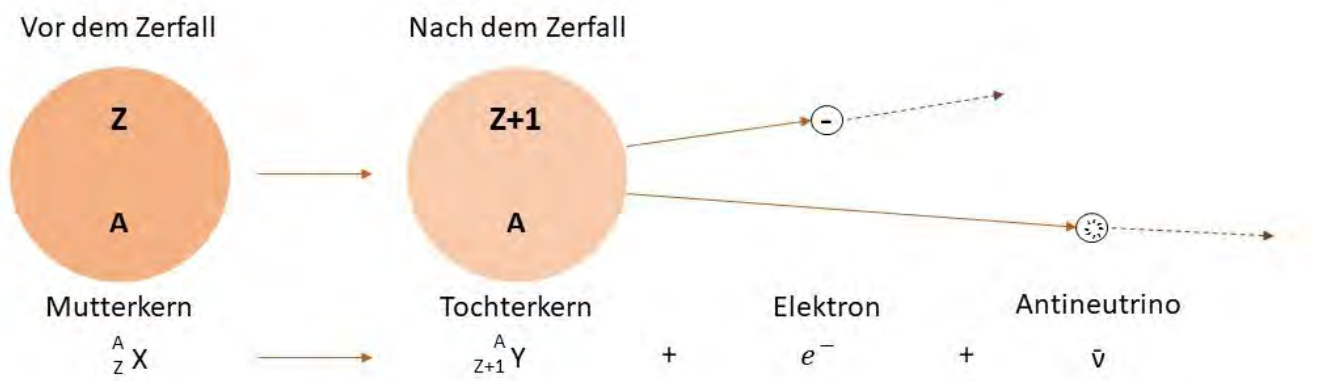
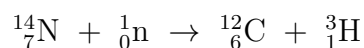


Abbildung 1: Schematische Darstellung des β^- -Zerfalls (nach Atkins, K.R. (1974))

1.4 H-3 in der Umwelt

Wasserstoff besteht zu 99,99 % aus Protium (H-1) und zu 0,01 % aus Deuterium (H-2).

Das Isotop Tritium (H-3) entsteht durch Wechselwirkungsprozesse in der Atmosphäre. Die in der kosmischen Strahlung enthaltenen Protonen und He-4 Kerne bilden Neutronen, welche durch Stöße thermisch werden und so weitere Kernreaktionen hervorrufen. Wechselwirkt ein solches Neutron mit dem ebenfalls in der Atmosphäre enthaltenden N-14, entsteht das Wasserstoffisotop H-3 (siehe Abb. 2):



Neben dieser Bildung fließt H-3 auch als Nebenprodukt bei Kernspaltungen in den natürlichen Hintergrund mit ein. Die natürliche Konzentration wird entweder in Bq/L oder in Tritiumeinheiten (TU) angegeben, wobei eine TU 0.118 Bq/L entspricht [5]. Ebenfalls zu erwähnen ist,

dass die natürlich vorkommende Tritiumkonzentration mit den Schwankungen der Sonnenaktivität korreliert.

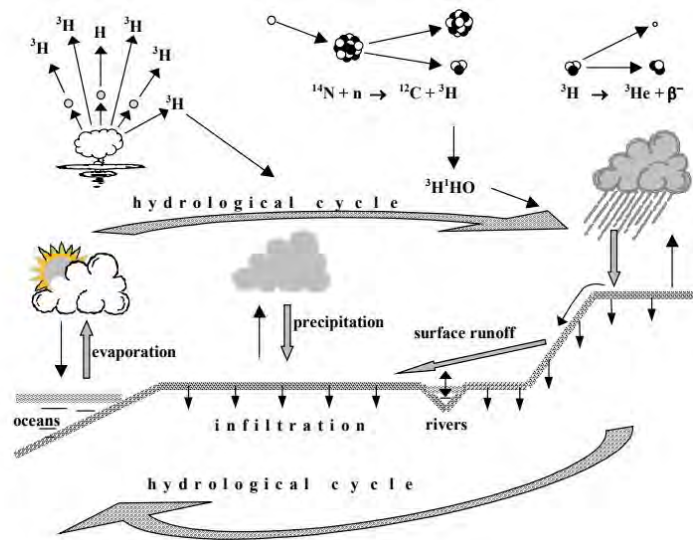


Abbildung 2: Bildung von H-3 in der Umwelt [5]

H-3 besitzt eine β -Endpunktenergie von 18,592 keV und zerfällt mit einer Halbwertszeit von 12,32 Jahren zu dem stabilen Isotop He-3.

1.4.1 Messung von Tritium mittels Flüssigszintillationsspektroskopie

Flüssigszintillationsspektroskopie ist ein gängiges Verfahren zur Messung von Radioaktivität und wird häufig bei niederenergetischer Strahlung, wie es bei H-3 der Fall ist, angewendet.

Die Probe wird zuerst mit einem Szintillationscocktail vermischt und anschließend gemessen. Das Messverfahren basiert auf der Umwandlung von Licht zu elektrischen Pulsen.

Die in der Probe freigesetzte β -Strahlung überträgt ihre kinetische Energie erst auf das Lösungsmittel und dann auf die Szintillationsmoleküle (bspw. 1-phenyl-4-phenyloxazole), wodurch diese in einen angeregten Zustand übergehen. Mit ihrer Relaxation werden Photonen freigesetzt, wobei für jedes eingehende keV rund 5-7 Photonen entstehen.

Für H-3, dessen β -Endpunktenergie 18,6 keV beträgt, entstehen durchschnittlich 100 Photonen pro β -Teilchen. Diese werden dann in einem Photomultiplier (engl. Photomultiplier tube, PMT) detektiert. Die in der PMT sitzende Photokathode setzt durch die eintreffenden Photonen Elektronen frei, welche dann durch ein anliegendes elektrisches Feld mit einem bestimmten Faktor vervielfacht werden. Die Stärke dieses elektrischen Pulses ist dabei proportional zu der Eingangsenergie der β -Teilchen.

Der schematische Aufbau ist in Abbildung 3 dargestellt:

Um den Hintergrund zu unterdrücken, besitzt ein Flüssigszintillationszähler zwei PMT, die in

einer Koinzidenz-Schaltung stehen. Ein Ereignis wird nur dann gewertet, wenn es in beiden PMT gleichzeitig auftritt. Ist dies der Fall, werden die Signale addiert, nochmals verstärkt und in einer ADC-Einheit in ein digitales Signal umgewandelt. Dieses so erhaltene Signal wird je nach Stärke in einen der 1024 Channel eingeordnet, womit letztendlich ein Energiespektrum entnommen werden kann [6]

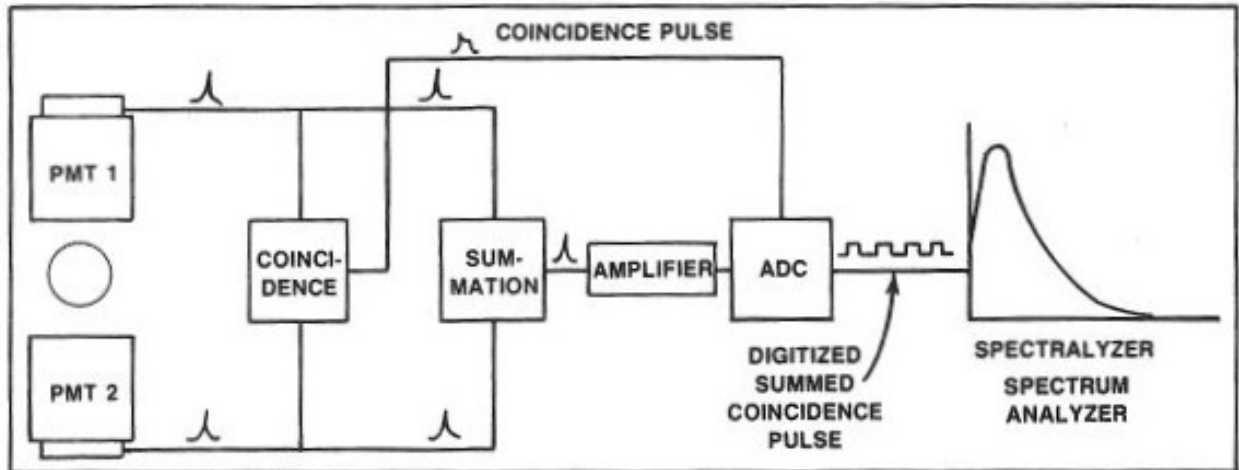
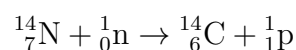


Abbildung 3: Schematischer Aufbau der Flüssigszintillationsspektrometrie (Kessler, M.J. (ed.) (1989))

1.5 C-14 in der Umwelt

Das Element Kohlenstoff besteht zu 98,94% aus den stabilen Isotopen C-12 und zu 1,06% aus C-13. Das aus radioökologischer Sicht interessanteste Isotop ist das C-14, das mit einer Halbwertszeit von 5730 Jahren relativ langlebig ist. C-14 besitzt eine β -Endpunktenergie von 156,476 keV und zerfällt unter dem β^- -Zerfall zu N-14.

In der Natur wird es ähnlich wie H-3 auch durch Wechselwirkungsprozesse von kosmischer Strahlung mit der Atmosphäre ständig nachgebildet:



Wie in Abbildung 4 zu sehen ist, treffen die Neutronen der kosmischen Strahlung auf das in der Atmosphäre enthaltene N-14. C-14 wird dann durch Neutroneneinfang und anschließendem

Protonenausstoß seitens des N-15 gebildet.

C-14 bindet anschließend an Sauerstoff und geht als Radio-Kohlenstoffdioxid in den natürlichen Stoffwechselkreislauf der Umwelt ein. Die Konzentrationen in der Atmosphäre und die in der Umwelt (und somit auch in den Organismen) stehen im ständigen Austausch miteinander und haben über den Zeitraum einer geologischen Periode ein Fließgleichgewicht erreicht [5].

Zusätzliches C-14 wurde in der Vergangenheit durch diverse Kernwaffentests freigesetzt, wodurch sich das Verhältnis von C-14 zu C-12 zeitweise stark verändert hat. Dies ist als sogenannter Bombenpeak in der Abbildung 5) zu beobachten.

Die Abbildung 5 zeigt die Jahre auf der X-Achse und den pMC (=percent Modern Carbon) Wert in Prozent, wobei sich das modern auf 1950 bezieht. Liegt der gemessene Wert bei über 100%, so ist er der Zeit des Bombenpeaks zuzuordnen. Definiert ist pMC durch die normalisierte, spezifische Aktivität der Probe A_{SN} und der spezifischen Aktivität des auf das Jahr 1950 bezogenen Standards A_{abs} [7]:

$$pMC = \frac{A_{SN}}{A_{abs}} \cdot 100\% \quad (1)$$

Das natürlich vorkommende Verhältnis von C-14 zu stabilem Kohlenstoff liegt bei 1,2 auf 10^{12} Atomen, bzw. 0,2 Bq pro Gramm Kohlenstoff.

Dieses Verhältnis kann zur Datierung auf Zeitskalen bis zu 50.000 Jahren (ca. 10 Halbwertszeiten) genutzt werden [6].

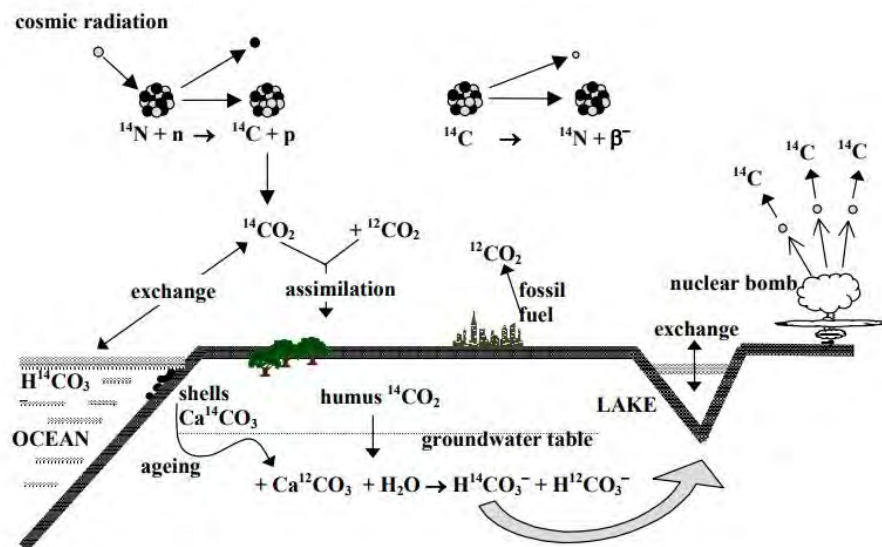


Abbildung 4: Bildung von C-14 in der Umwelt[5]

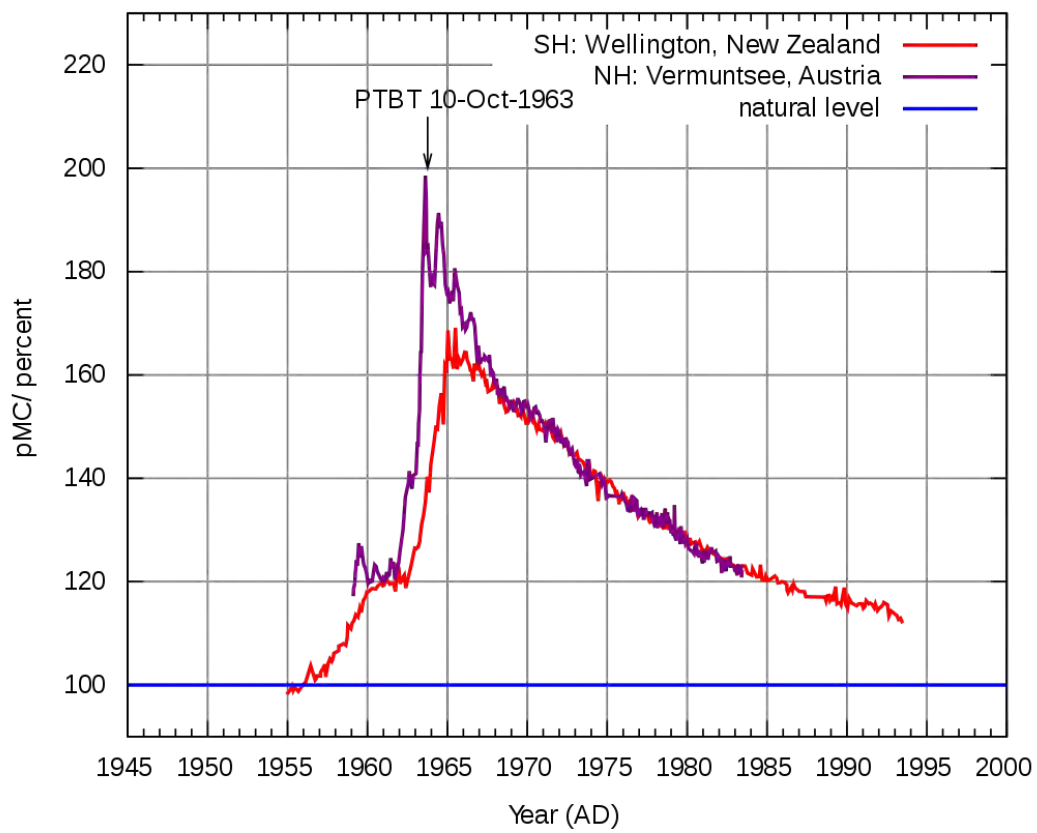


Abbildung 5: Der Verlauf von Radiokohlenstoff mit dem sogenannten Bombenpeak um 1963 angegeben in pMC [8]

1.5.1 Messungen von C-14 mittels Beschleuniger-Massenspektrometrie

C-14 hätte ebenfalls wie H-3 mittels Flüssigszintillationsspektroskopie gemessen werden können, jedoch liefert diese Methode für C-14 deutlich schlechtere Nachweisgrenzen, als die Beschleuniger-Massenspektrometrie.

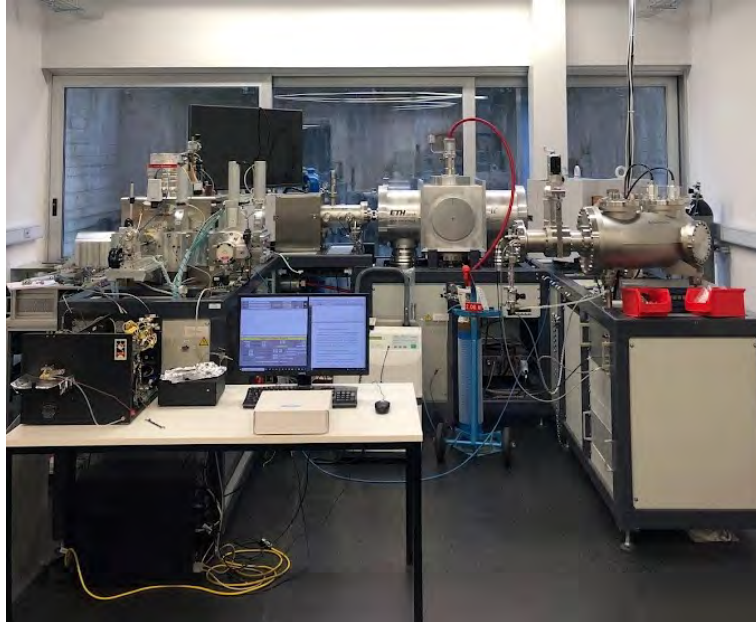
Die Massenspektrometrie ist ein weit verbreitetes Messverfahren zur Massenanalyse von Atomen. Das Besondere an Beschleuniger-Massenspektrometrie ist, dass es ein Trennen von dicht benachbarten Massen, und vor allem von sehr unterschiedlichen Isotopenhäufigkeiten, ermöglicht, wie zum Beispiel bei der Trennung des C-14 von C-12 und C-13.

Bei dem für diese Messungen verwendeten Gerät handelt es sich um das MICADAS, welches für Mini radioCARbon DAting System steht. Es besteht aus einer Ionenquelle, in welcher die als Graphit auf Eisenpulver vorliegende Probe mit Cäsium-Atomen beschossen wird, sodass sich einfach-negativ geladene Kohlenstoff-Ionen (fünf Valenzelektronen) bilden.

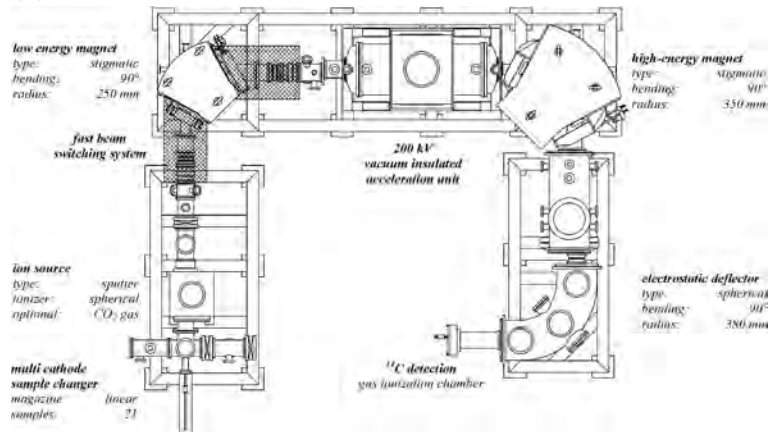
Diese werden zuerst durch einen Magneten auf der Niederenergeseite geführt, sodass eventuelle Molekülverbindungen aufgebrochen werden können. Anschließend werden sie zu einem Tandembeschleuniger geleitet, an welchem eine Kollisionszelle angebracht ist. Hier findet das sogenannte Stripping statt, bei dem den Kohlenstoff-Ionen unter Stößen mit Heliumatomen zwei Valenzelektronen genommen werden, sodass sie nun einfach-positiv geladen vorliegen.

Durch das am Tandembeschleuniger angelegte, ebenfalls positive, Potential werden die Kohlenstoff-Ionen mit ca. 400keV beschleunigt und durch den Magneten auf der Hochenergeseite geleitet. Hier findet nun das Aufspalten der Massen statt, wobei C-12 und C-13 in Faraday-Cups aufgefangen werden und das C-14 weiter zu einem Detektor, einer Gas-Ionisations-Kammer, geleitet wird.

In Abbildung 6a ist das System zu sehen, wie es zur Zeit der Messungen aufgebaut war und in 6b ist ein schematischer Aufbau mit den relevanten Parametern abgebildet.



(a) MICADAS wie es zur Zeit der Messungen aufgebaut war



(b) Schematischer Aufbau des MICADAS mit den für die Messung relevanten Parametern [9]

Abbildung 6: Abbildungen des MICADAS

2 Praktische Arbeiten

2.1 Probenahme

Für die Messungen von Radioaktivität in der Umwelt wurden zwei verschiedene Umweltarchive an insgesamt fünf Standorten in der Umgebung der Asse beprobt (siehe Abb. 7 und Tabelle 1). Die Probenahme für die Tritiumanalytik fand an drei Stillgewässern vor Ort statt, welche hier mit OT (=Oberer Teich), UT (=Unterer Teich) und Skoda-Teich bezeichnet werden. Dabei wurden jeweils 1 L Oberflächenwasser und 1 L Wasser aus einer Tiefe von ca. 80 cm entnommen und in Gefäßen aus Kunststoff Luftdicht verschlossen, sodass ein sicherer Transport gewährleistet war (siehe Abb. 8).

Die Proben für die Messung von C-14 wurden aus zwei Bäumen (Schwarzkiefer und Rotbuche) gewonnen, die dem Institut seit 2022 als Baumscheiben vorlagen. Das Fälldatum der Bäume ist nicht exakt bekannt und wird mit Ende 2015, Anfang 2016 angenommen.

Dieser Abschnitt wird ausführlich unter dem Kapitel Probenvorbereitung diskutiert.



Abbildung 7: Übersicht der Standorte der Probenahme, 1 und 2 beschreiben die Standorte der Bäume, 3 bis 5 die Orte, an denen sich die Stillgewässer befinden.

Tabelle 1: Koordinatenübersicht der Probenstandorte

Standort	Breitengrad	Längengrad	Entfernung zum Diffusor [m]	Richtung
1: Schwarzkiefer	52.136507	10.666715	803	Nord (160°)
2: Rotbuche	52.133854	10.693773	1660	Ost (253°)
3: OT	52.128612	10.684482	954	Ost (278°)
4: UT	52.128946	10.685955	1050	Ost (278°)
5: Skoda Teich	52.136812	10.663394	925,96	Nord-West (135°)



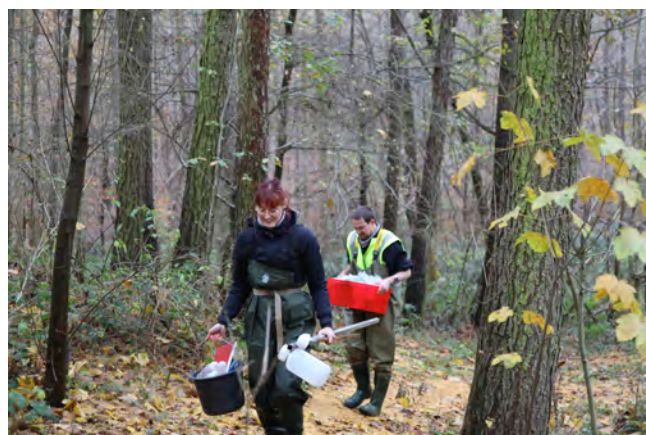
(a) Probenahme an UT: Umfüllen des entnommenen Wassers in das entsprechende Transportgefäß



(b) Der Probenahmeort OT, wie bei UT entstammt das entnommene Wasser aus dem mittigen Bereich.



(c) Eine Abbildung des Skoda-Teiches



(d) Transport der Ausrüstung zur Probenahme

Abbildung 8: Probenahme an dem Umweltarchiv Stillgewässer für die Tritiumanalytik am 23. November 2022

2.2 Probenvorbereitung

2.2.1 H-3

Nach der Probenahme verlief die Probenvorbereitung gemäß dem Verfahren zur Bestimmung der Tritiumkonzentration in Oberflächenwasser [10].

Um eine Trennung von anderen in der Probe enthaltenen Stoffen zu erzielen und somit eine reine Probe zu erhalten, wird das entnommene Wasser destilliert. Vor der Destillation wurden rund 100 mg Natriumhydroxid (NaOH) und 50 mg Kaliumpermanganat (KMnO_4) in einen 100 ml Rundkolben vorgelegt und anschließend mit 50 ml Probenwasser versetzt. Der Aufbau des Destilliervorgangs ist in Abbildung 9 zu sehen.

Die Hinzugabe von KMnO_4 musste bei den Proben aus UT und dem Skoda-Teich von 50 mg auf ca. 85 mg erhöht werden, da nicht sichergestellt werden konnte, dass die gesamte Organik aufgeschlossen war. Zu erkennen war dies daran, dass sich die Probe nicht wie erwartet violett, sondern braun verfärbt hatte. Die Übersicht der Einwaage ist im Anhang in Tabelle 10 dargestellt.



Abbildung 9: Aufbau der Destillation der Gewässerproben



(a) Zugabe von Natriumhydroxid und Kaliumpermanganat



(b) Durch das Kaliumpermanganat tritt eine violette Verfärbung auf

Abbildung 10: Probenvorbereitung von H-3

2.2.2 C-14

Werkstattarbeit Die Vorbereitung der Proben für die C-14-Analytik wurde am Institut durchgeführt:

Die für die Untersuchung relevanten Jahre beschränken sich vor allem auf den Zeitraum der Asse-Einlagerungsphase bis heute. Es wurden auch drei Proben aus dem pränuklearen Zeitalter genommen.

1. Pränukleare Proben

- 1900, 1925, 1950

2. Nukleares Zeitalter

- 1955, 1960, 1963, 1965

3. Asse Einlagerungsphase (1967-1978)

- 1967, 1969, 1971, 1973, 1975, 1977

4. Restliche Jahre bis heute

- 1980, 1983, 1987, 1994, 2001, 2008, 2015

Aus der Baumscheibe wurde zuerst ein entsprechend großes Stück herausgeschnitten, das den relevanten Zeitraum abdeckt (siehe Abb.11a, b). Da das Holz mittlerweile sehr trocken war, und das Hineinbohren zu Spaltungen und Brüchen führen würde, wurde das entnommene Stück mithilfe einiger Schraubzwingen eingespannt (Abb. 11c).

Anschließend konnte mit einem Zuwachsbohrer, einem aus dem forstwirtschaftlichen Bereich stammenden, hohlen Bohrer, in das eingespannte Stück gebohrt werden (Abb. 11d) und ein Bohrkern entnommen werden.

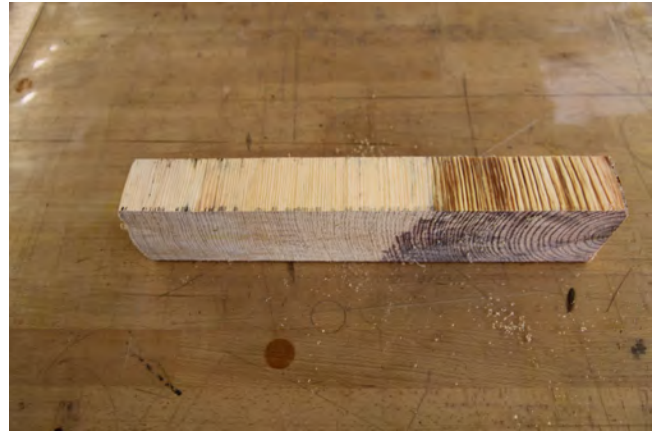
Dann konnten die Jahresringe beginnend mit dem letzten Ring (2015) rückwärts gezählt werden. Die Ringe der Rotbuche ließen sich sehr gut erkennen und es bedurfte nur einer Lupe (Abb. 12a).

Bei der Schwarzkiefer hingegen ließen sich die Jahresringe deutlich schlechter identifizieren. Um trotzdem eine erfolgreiche Probenahme garantieren zu können, wurde das zuvor eingespannte Stück Holz glatt geschliffen und anhand der nun gut sichtbaren Ringe eine Skala erstellt. An diese Skala wurde dann der Bohrkern angelegt (Abb. 12b).

Das Abtrennen der Jahresringe erfolgte mit einem Spatel und Hammer. Die so gewonnenen Proben wurden anschließend in Alufolie verpackt und beschriftet, sodass ein Transport zur weiteren Vorbereitung und Messung möglich war.



(a) Zuschnitt der Baumscheibe



(b) Zugeschnittenes Teilstück der Buche



(c) Einspannen des Teilstücks



(d) Die Entnahme der Bohrkern

Abbildung 11: Vorbereitung der Baumscheibe zur Probenahme

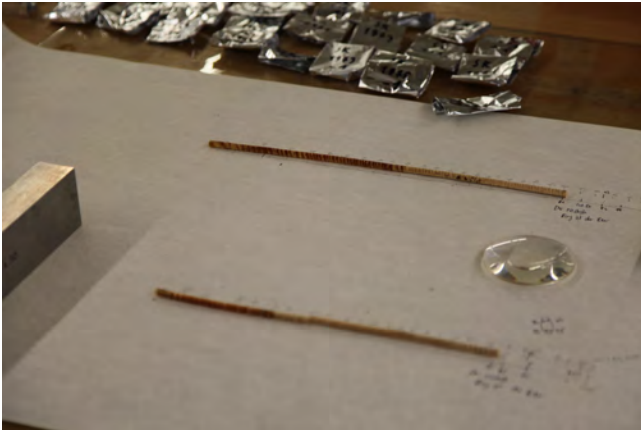
Extrahierung der Zellulose Die weitere Vorbereitung der Holzproben erfolgte am Department für Chemie, Biochemie und Pharmazie an der Universität Bern.

Um letztendlich C-14-Analytik betreiben zu können, müssen die noch als Holzstücke vorliegenden Proben chemisch aufbereitet werden. Die Extrahierung der Zellulose wird als Reinigungsvorgang gesehen. Im ersten Schritt wurde das Holz in 5 ml Natronlauge (4%) über Nacht bei 70°C eingelegt. Anschließend wurde die Probe mit destilliertem Wasser gespült, bis sich der pH-Wert neutralisiert hat (Abb. 13a). Der Probe wurden dann 5 ml Salzsäure (4%) hinzugefügt und sie ist für eine Stunde lang bei 70°C und leichtem Schütteln eingelegt worden.

Anschließend wurde der Spülvorgang mit destilliertem Wasser wiederholt und ein erneutes Einlegen in Natronlauge fand statt.

Zuletzt wurde die Probe noch mit Magnesiumperchlorat gebleicht, wobei die Menge des Bleichmittels und die Dauer des Bleichens stets der Probenmenge anzupassen ist.

Am Ende der Aufbereitung sahen die Holzproben heller aus und sie sind bereit für den nächsten Schritt, die Graphitisierung.



(a) Bohrkerne Buche



(b) Bohrkerne Kiefer

Abbildung 12: Probenahme an Baumscheiben



(a) Spülung der Probe mit destilliertem Wasser



(b) Probe eingelegt in Salzsäure

Abbildung 13: Die chemische Aufbereitung von zwei Holzproben

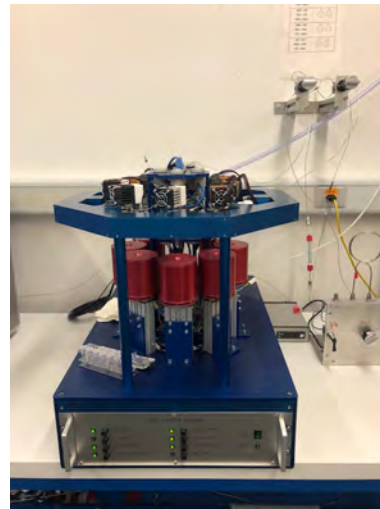
Graphitisierung Die Graphitisierung der Proben ermöglicht eine bessere Genauigkeit bei der Messung. Nach der chemischen Aufbereitung und dem Erhalt der reinen Zellulose wurde ein Teil dieser Probe verascht. Hierzu können unterschiedliche Geräte genutzt werden, in Abb. 14a ist der sogenannte Elementar Analyzer vario elcube der Firma Elementar zu sehen, welches das für diese Zwecke verwendete Gerät ist.

Das bei der Veraschung entstandene CO_2 wurde mithilfe eines Trägergases, zum Beispiel Helium, zum sogenannten AGE-Control-System (AGE=Automatische Graphitisierungseinheit) der Firma Ionplus überführt (siehe Abb. 14b). Hier wurde das CO_2 bei Raumtemperatur in einer Gasfalle gefangen und das Helium ist über einen Ausgang in die Raumluft entwichen. Die anschließende Erhitzung der Gasfalle auf über 300°C transportierte das CO_2 in die Volumenkammern. In diese Kammern gelangen ca. 90 % des anfänglichen CO_2 , was für die Graphitisierung immer noch ausreichend ist.

Beim erneuten Erhitzen wurde dem CO_2 Wasserstoff hinzugegeben, um eine Reduktion zu Graphit zu bewirken. Das dabei entstandene Wasser wurde als Kondensat abgefangen und entweder mit einem Kühlelement, oder, bei kleineren Proben, mit Magnesiumperchlorat gebunden. Das Graphit setzte sich dann in Röhrchen ab, welche eine kleine Menge (ca. 5 mg) Eisenpulver enthalten. Das Eisenpulver hat eine höhere Wärmekapazität und eine bessere Leitfähigkeit als Graphit, die für die AMS gebraucht werden, wenn die Proben in der Ionenquelle mit Cäsium-Ionen beschossen werden.



(a) Im Elementar Analyzer wird die Zellulose verascht



(b) Im AGE Control System findet die eigentliche Graphitisierung statt

Abbildung 14: Schritte der Graphitisierung der Proben

2.3 Messung

2.3.1 H-3

Für die Flüssigszintillationsspektroskopie wurde das Gerät Quantulus GCT der Firma PerkinElmer und ein Flüssigszintillationscocktail Ultima GoldTM AB der Firma Perkin Elmer verwendet. Wie schon eingangs erwähnt, werden die Signale (Counts) bei der Messung in die entsprechenden Kanäle von 1-1024 einsortiert.

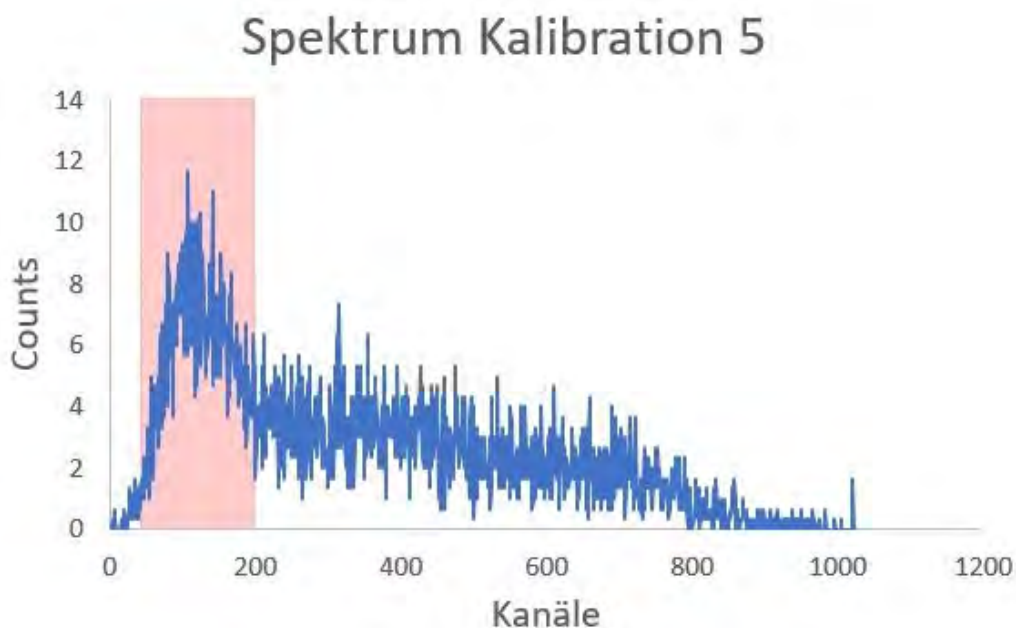


Abbildung 15: Nicht hintergrundkorrigiertes Spektrum der Kalibration 5 mit einem Tritiumsignal im farblich gekennzeichneten Bereich

Die Messzeit einer Probe betrug drei Mal 8 Stunden, die erhaltenen Werte wurden gemittelt. Für die Auswertung wurden die hintergrundkorrigierten Zählereignisse in den Kanälen 50-200 aufsummiert, sodass ein Vergleich der erhaltenen Daten stattfinden konnte.

Dabei wurde mit jeder Probenmessung auch der Hintergrund gemessen, sodass eventuell auftretende Schwankungen berücksichtigt werden konnten.

Kalibration Um die erhaltenen Daten sinnvoll einordnen und interpretieren zu können, wurde eine Kalibrationsgerade mit bekannten Aktivitäten erstellt. Die Messzeit betrug drei Mal 8 Stunden, die erhaltenen Werte wurden abzüglich des Hintergrundes (Blank) korrigiert und

gemittelt.

Zur Erstellung dieser Kalibrationsgeraden wurden die Tritiumstandards xH3-31 (Kenn-Nr: 2013-1286, spez. Aktivität: 3,2 Bq/g Stand 23.02.2015) und xH3-31.1 (0,03 Bq/mL Stand 24.02.2015) der PTB verwendet.

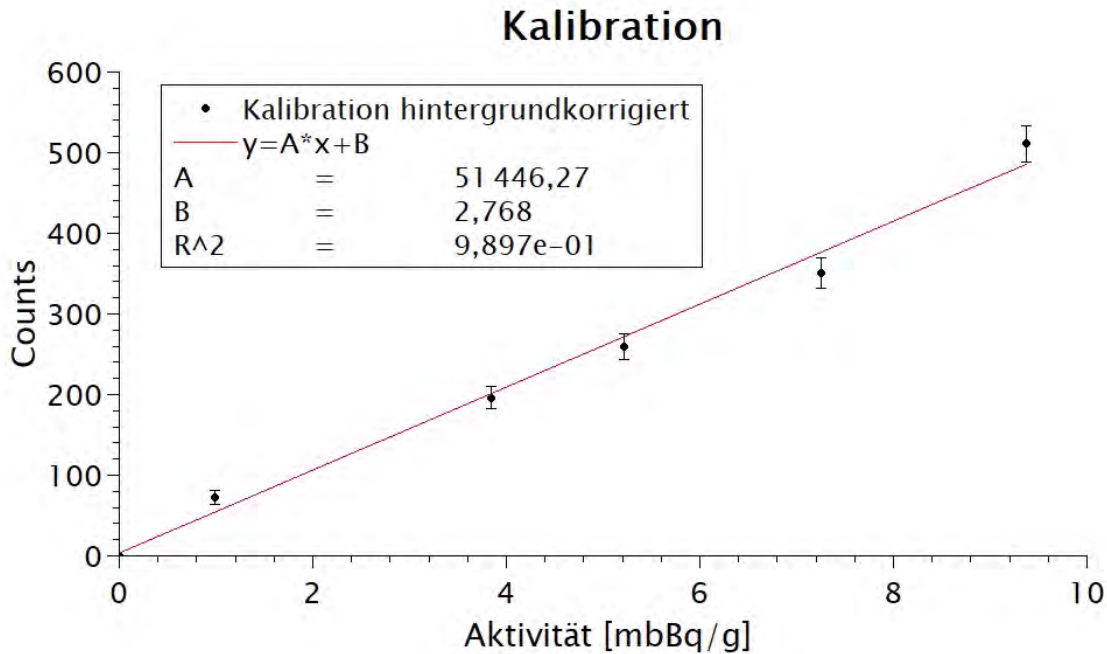


Abbildung 16: Kalibrationsgerade

Tabelle 2: Einwaage der Tritiumgehalte für die Kalibrationsgerade mit zwei unterschiedlich verdünnten Tritiumstandards

Bezeichnung	Einwaage H-3 [mBq/g]	Counts hintergrundkorrigiert
Blank	0	0
Kalibration 1	0,992	72
Kalibration 2	3,844	196,33
Kalibration 3	5,216	259
Kalibration 4	7,247	350,67
Kalibration 5	9,377	511

Nachweis- und Erkennungsgrenzen Für jede einzelne Messung ließen sich die Erkennungsgrenze y^* und die Nachweisgrenze $y^\#$ gemäß DIN-ISO 11929 [11] bestimmen.

Dabei gilt für die Erkennungsgrenze y^* :

$$y^* = k_{1-\alpha} \tilde{u}(0) \tag{2}$$

mit Einsetzen von $\tilde{u}(0)$ ergibt sich:

$$y^* = k_{1-\alpha} \cdot \sqrt{\omega^2 \left(\frac{n_0}{t_g t_0} + \frac{n_0}{t_0^2} \right)} \quad (3)$$

Dabei beschreibt ω den Kalibrierfaktor, der sich aus der Aktivität des Kalibrierpräparates und der Nettozählrate des kalibrierpräparates zusammensetzt. n_0 ist die Anzahl der Impulse des Präparates, t_0 ist die Messdauer und T_g beschreibt die Bruttomessdauer. Für die Fehler 1. und 2. Art (α , β) wird üblicherweise ein Wert von 5% angenommen, womit sich für das Quantil $\kappa_{1-\alpha} = \kappa_{1-\beta} = 1,645$ der standardisierten Normalverteilung ergibt.

Für die Nachweisgrenze $y^\#$ gilt:

$$y^\# = y^* + \kappa_{1-\beta} \tilde{u}(y^\#) \quad (4)$$

Nach Einsetzen:

$$y^\# = y^* + \kappa_{1-\beta} \sqrt{y^{\#2} u_{rel}^2(\omega) + \omega^2 \left(\frac{y^\#}{t_g \omega} + \frac{n_0}{t_g t_0} + \frac{n_0}{t_0^2} \right)} \quad (5)$$

Mit der dieser Arbeit zugrunde liegenden Kalibration (siehe Abb. 16) errechnete sich eine mittlere Erkennungsgrenze y^* von 0,78 Bq/L und eine mittlere Nachweisgrenze $y^\#$ von 1,6 Bq/L. Diese befindet sich deutlich unterhalb der geforderten Nachweisgrenze von 10 Bq/L [10].

3 Ergebnisse

3.1 H-3

Nachfolgend sind die unkorrigierten Spektren der Gewässerproben von OT (Abb. 17), UT (Abb. 18) und Skoda (Abb. 19) dargestellt.

Die Form der Spektren entspricht weitestgehend den Erwartungen.

Auffällig ist jedoch, dass sich die Spektren der Oberfläche gegen die aus der Tiefe durch eine höhere Anzahl an Zählereignissen (Counts) in den Kanälen 50-200 unterscheiden.

Weiterhin zeigen die Spektren der Oberfläche eine Erhöhung um den Kanal 300 herum, die sich

nicht bei den Spektren aus der Tiefe wiederfinden lassen.

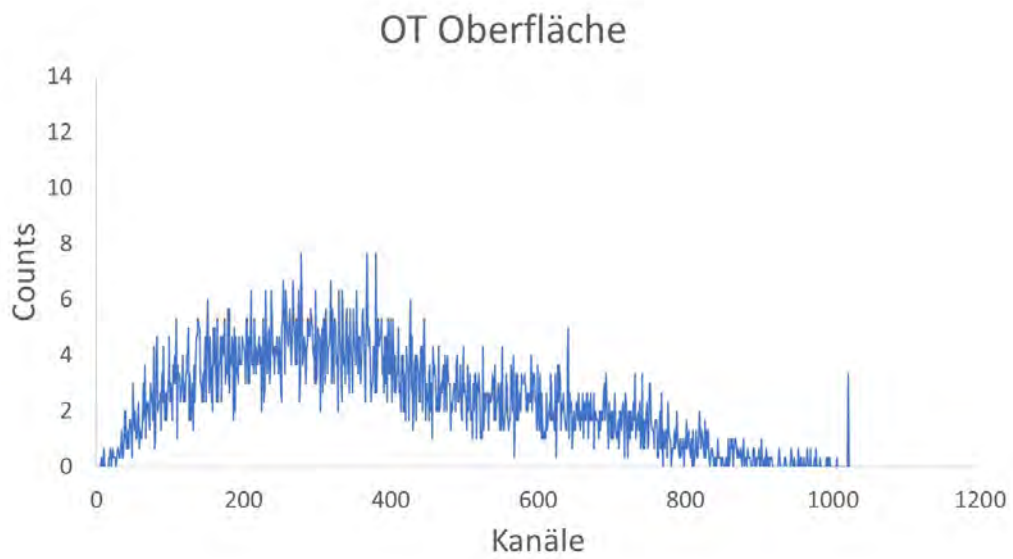
Bei jedem Messdurchlauf einer Probe wurde immer ebenfalls der Hintergrund (Blank) gemessen. Dieser konnte dann von der jeweiligen Probe abgezogen werden, womit ein hintergrundkorrigierter Wert der Counts gewonnen wurde. Um auf die Aktivität in der jeweiligen Probe zu schließen, wurde der hintergrundkorrigierte Wert auf der Kalibration eingeordnet.

In Tabelle 3 finden sich die Ergebnisse. Die mittlere Nachweisgrenze für diese Messungen liegt bei 1,6 Bq/L, die Proben, die unterhalb diesem Wert lagen, sind mit UNWG = Unterhalb der Nachweisgrenze gekennzeichnet.

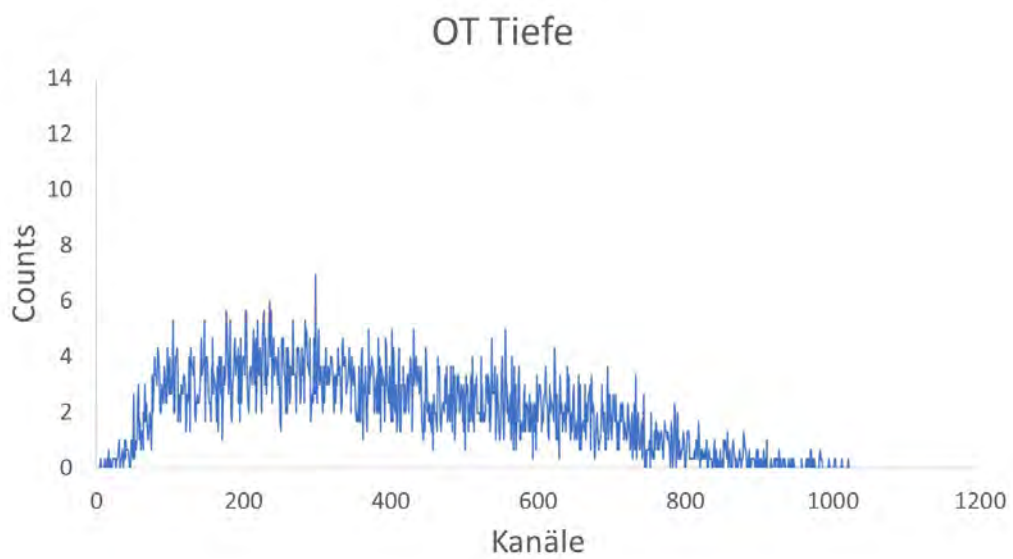
Die Proben, die mit einem Sternchen versehen sind, zeigen ein zusätzliches, signifikantes Signal oberhalb von Kanal 200, welches möglicherweise durch eine nicht vollständig abgetrennte Nuklidinterferenz verursacht wurde, dazu mehr im Abschnitt Diskussion.

Tabelle 3: Messergebnisse der Gewässerproben (mittlere Nachweisgrenze 1,6 Bq/L),
*: zusätzliches Signal oberhalb von Kanal 200, daher vermutlich fehlerbehaftet (siehe Diskussion)

Probe	Counts	Counts hintergrundkorrigiert	[Bq/L]
OT _O	469,33	95,67	1,8*
OT _T	431,67	38,67	UNWG
UT _O	449,67	54	UNWG*
UT _T	405	11	UNWG
Skoda _O	482	109,67	2,1*
Skoda _T	443,67	48,67	UNWG

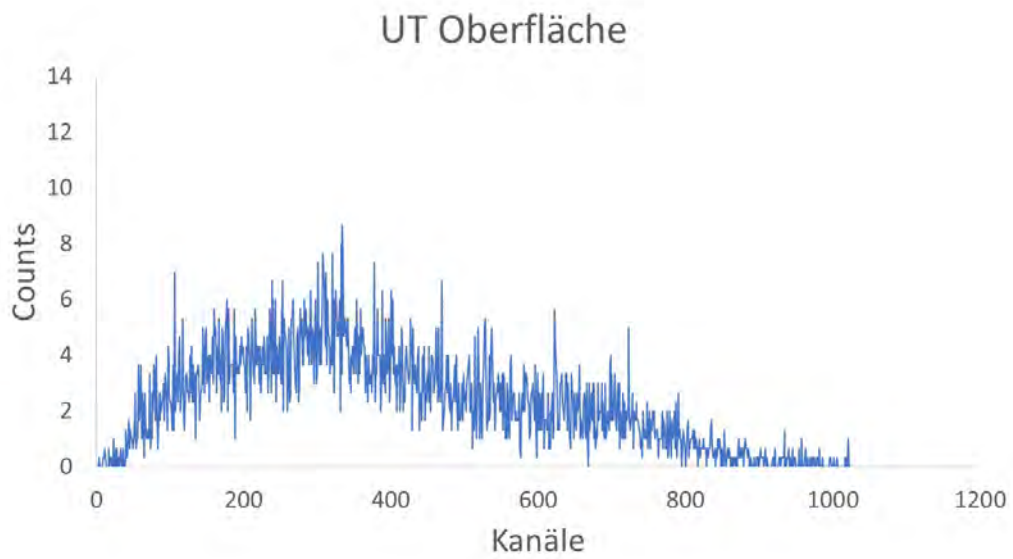


(a) Spektrum des Oberflächenwassers

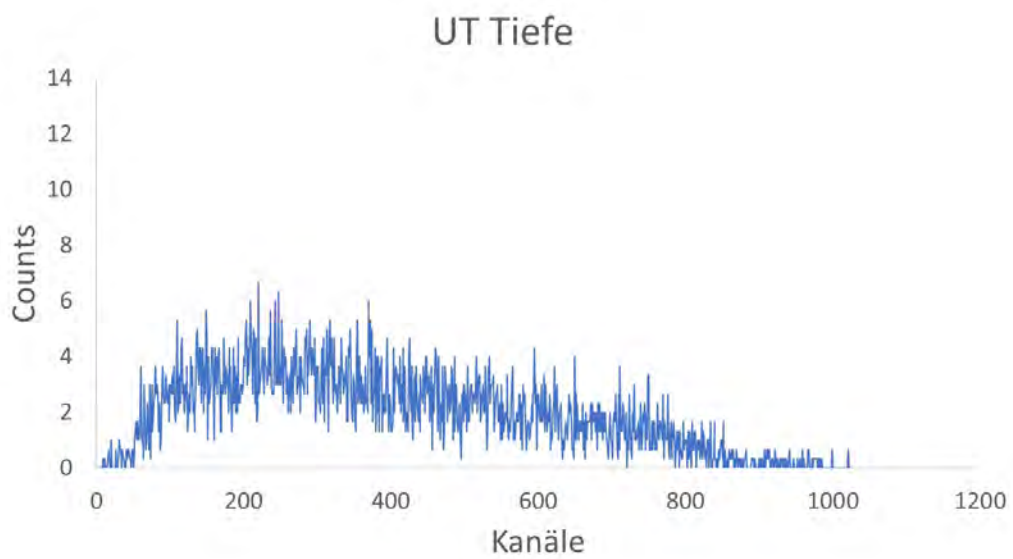


(b) Spektrum des Wassers aus der Tiefe

Abbildung 17: Beta-Spektren von OT (Brutto)

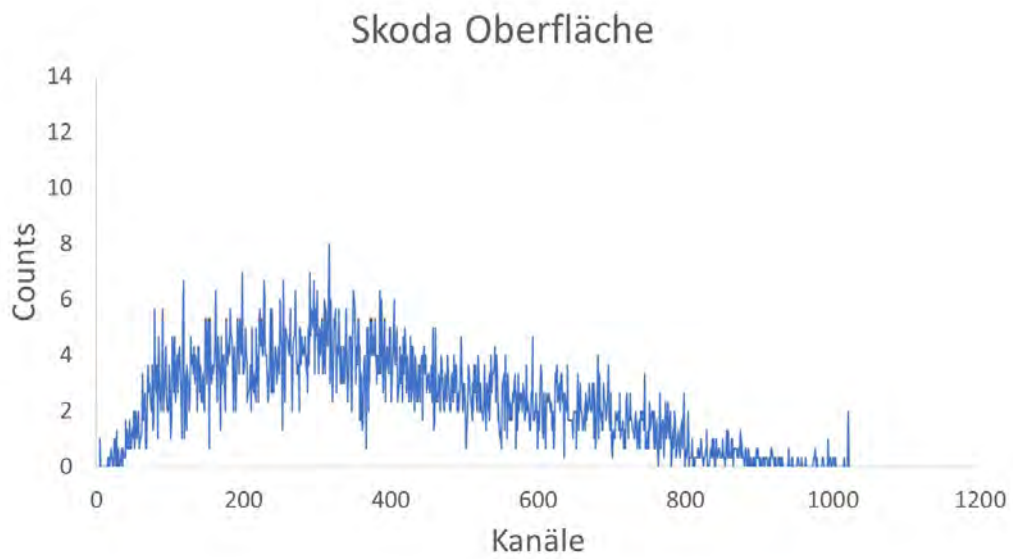


(a) Spektrum des Oberflächenwassers

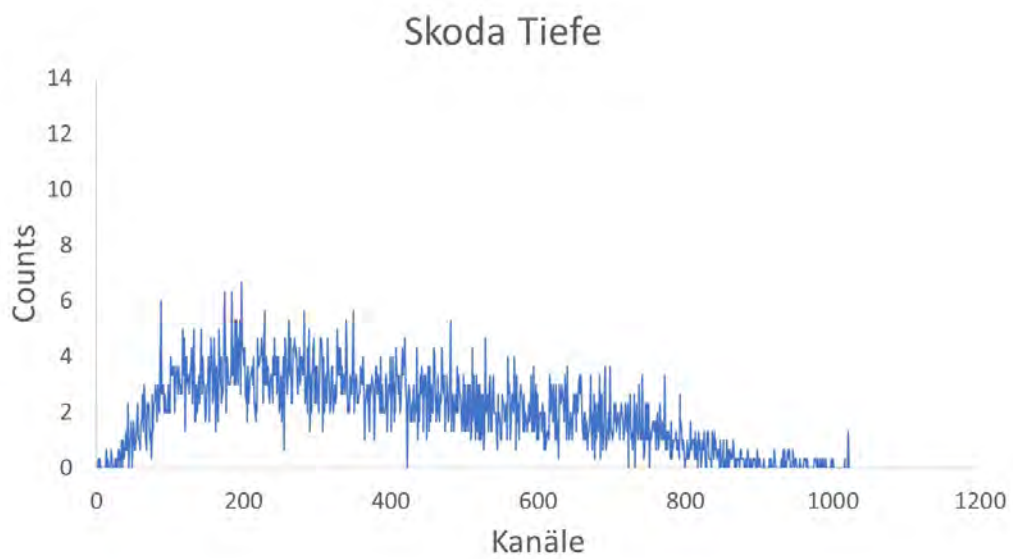


(b) Spektrum des Wassers aus der Tiefe

Abbildung 18: Beta-Spektren von UT (Brutto)



(a) Spektrum des Oberflächenwassers



(b) Spektrum des Wassers aus der Tiefe

Abbildung 19: Beta-Spektren des Skoda-Teiches (Brutto)

3.2 C-14

Die Ergebnisse der C-14-Analyse sind für die Schwarzkiefer in Abbildung 20 zu sehen. In blau sind die Referenzdaten [12] [13] der nördlichen Hemisphäre dargestellt und in orange die Ergebnisse der Messung.

Die Referenzdaten sind im sogenannten prä-nuklearen Zeitraum mit dem Wert 1 normiert. Mit dem Beginn der Kernwaffentests in den 1950er Jahren steigt die C-14 Konzentration relativ zu C-12 rasant an und erreicht 1963 ihren Höhepunkt, auch bekannt als Bombenpeak. Die Ergebnisse sind als $F^{14}\text{C}$ (=Fraction Modern) dargestellt, was sich aus der normalisierten spezifischen Aktivität der Probe A_{SN} und der normalisierten Aktivität der Probe A_{ON} wie folgt zusammensetzt [7]:

$$F^{14}\text{C} = \frac{A_{SN}}{A_{ON}} \quad (6)$$

Das Verhältnis von C-14 zu C-12 hat sich hier fast verdoppelt und der gemessene C-14 Wert liegt bei knapp unter 2.

Mit der Festlegung des partiellen Verbotes von Kernwaffentests in der Atmosphäre, unter Wasser und im Weltraum, fällt das Verhältnis von C-14 zu C-12 jedoch wieder ab. Der Ausgangswert von 1 ist jedoch noch nicht wieder erreicht.

Wie in Abbildung 20a zu erkennen ist, liegen die Ergebnisse aus 1900, 1925, 1950, 1955 und 1960 in einem nicht nennenswert abweichenden Bereich im Vergleich zu den Referenzdaten.

Ab dem Jahr 1963 sind jedoch deutliche Abweichungen zu erkennen, die sich sowohl unterhalb (1963, 1965, 1969) als auch überhalb (1971) der Referenzdaten befinden (siehe dazu Abb.20b). Das Jahr 1967 liegt wieder in einem zu den Referenzdaten passenden Bereich. Ab 1971 gibt es Datenpunkte, welche den Referenzdaten ähneln (1973, 1977) und Daten, welche im Vergleich leicht erhöht scheinen (1975, 1980, 1983). Ab dem Jahr 1987 stimmen die restlichen Messergebnisse (1987, 1994, 2001, 2008, 2015) mit den Referenzdaten überein.

Auffällig ist, dass sowohl die Ergebnisse aus den anfänglichen Jahren als auch aus den jüngsten Jahren sehr gut zu den Referenzdaten passen, es jedoch sehr große Schwankungen im Bereich des Bombenpeaks gibt.

Die Ergebnisse der Rotbuche (Abb.21a) folgen den Referenzdaten deutlich genauer. Wie auch bei der Schwarzkiefer, liegen die prä-nuklearen Jahre 1900, 1925 und 1950 im gleichen Bereich wie die Referenzdaten. Aber auch die Ergebnisse der Jahre 1955, 1960, 1963 und 1965 folgen den Referenzdaten und zeichnen den Bombenpeak ebenfalls deutlich ab.

Einige Unterschiede lassen sich in Abbildung 21b identifizieren: Das Messergebnis der Rotbuche aus dem Jahr 1967 liegt etwas höher als die Referenzdaten aus dem gleichen Jahr. Eine weitere Ausnahme bildet eventuell das Jahr 1973, das ebenfalls einen höheren Wert als die Referenzdaten hat. Die Ergebnisse der übrigen Jahre (1975, 1977, 1980, 1983, 1987, 1994, 2001, 2008 und 2015) weichen nicht nennenswert von den Referenzdaten ab. Um sicherzustellen, dass es sich bei den gefundenen Unterschieden um reproduzierbare und belastbare Abweichungen handelt, wurden anschließend an die erste Auswertung weitere Messungen für den Zeitraum der Einlagerungsphase angeschlossen. Die vollständigen Ergebnisse inklusive Nachmessungen finden sich in Kapitel 5.

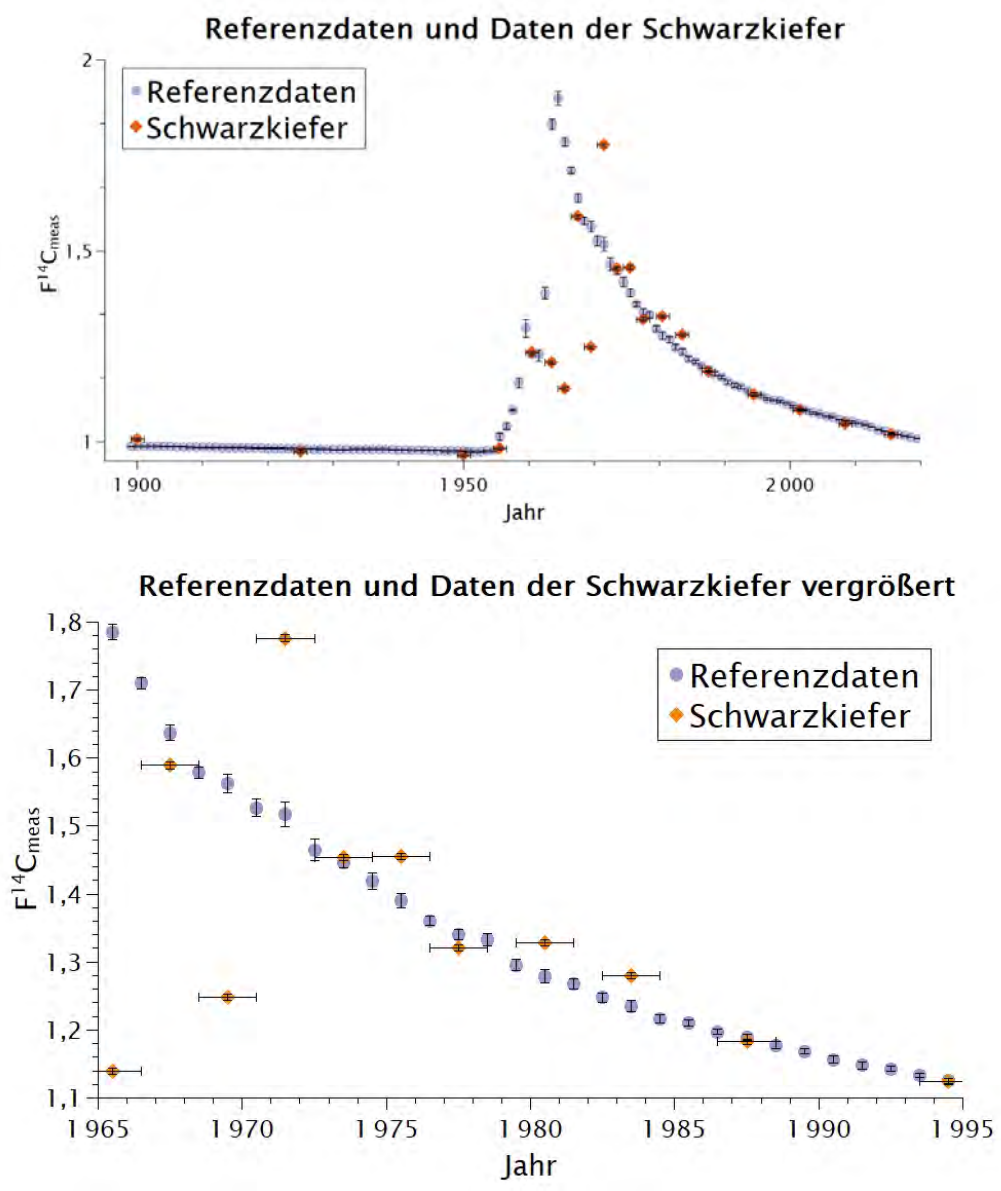


Abbildung 20: Messdaten der Schwarzkiefer in rot mit den Referenzdaten der nördlichen Hemisphäre in blau: oben ist der gesamte, betrachtete Zeitraum zu sehen, unten ist der Ausschnitt der Einlagerungsphase abgebildet

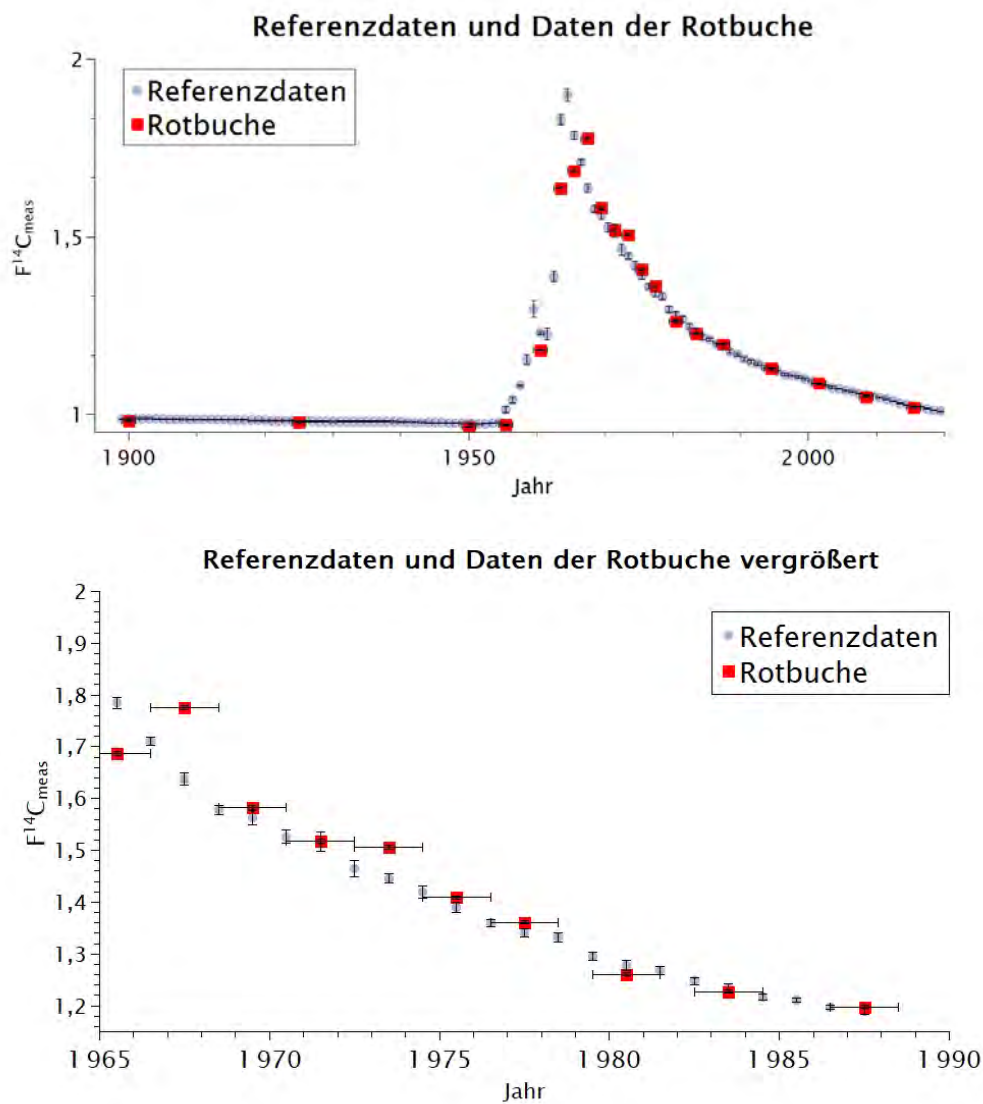


Abbildung 21: Messdaten der Rotbuche in rot mit den Referenzdaten der nördlichen Hemisphäre in blau: oben ist der gesamte betrachtete Zeitraum zu sehen, unten ist der Ausschnitt der Einlagerungsphase abgebildet. Um die Ergebnisse abzusichern wurde der Einlagerungszeitraum im Anschluss an die erste Auswertung noch ein weiteres mal beprobt und gemessen. Abschließende Ergebnisse die diese Nachmessungen beinhalten befinden sich in Kapitel 5.

4 Diskussion

4.1 H-3

Zuerst sollte der Unterschied zwischen den Proben der Oberfläche und den Proben der Tiefe in der Form der Spektren um den Kanal 300 herum genannt werden. Nur die Proben von der Oberfläche weisen eine Erhöhung an dieser Stelle auf. Wie in dem Abschnitt Ergebnisse schon erwähnt, ist ein mögliches Auftreten einer bei der Destillation nicht vollständig abgetrennten Nuklidinterferenz, nicht auszuschließen. Dieses Signal, welches zwar ein Maximum um den Kanal 300 herum hat, hat aber definitiv auch einen Einfluss auf die Zählereignisse in den davor liegenden Kanälen, sodass das als reines H-3 interpretierte Signal einen zusätzlichen Einfluss eines unbekanntes Nuklids besitzt. Dies hätte dann eine Überschätzung des Tritiumgehaltes zur Folge haben.

Vier von den insgesamt sechs Gewässerproben liegen unterhalb der Nachweisgrenze, in zwei Proben lag das primäre Messsignal oberhalb der mittleren Nachweisgrenze von 1,6 Bq/L: In OT Oberfläche wurden 1,8 Bq/L gemessen und in Skoda Oberfläche sind 2,1 Bq/L gemessen worden. Dieses Ergebnis spiegelt die in der Umwelt natürlich vorkommenden Tritiumgehalte [14] wieder und erscheint demnach nicht unrealistisch. Wie eingangs beschrieben, wird H-3 ständig neu gebildet und es wäre demnach ein Eintrag (durch z.B. Niederschlag) möglich, welcher sich aber noch nicht mit dem Gesamtvolumen equilibriert hat.

Das Resultat, dass die detektierten Zählereignisse der Proben der Oberfläche allesamt höher sind, als es bei den Proben aus der Tiefe der Fall ist, ist vermutlich, zumindest in Teilen, auf eine unvollständige Abtrennung des H-3 von weiteren Nukliden zurückzuführen, könnte jedoch auch auf eine unvollständige Verteilung des atmosphärisch eingetragenen H-3 hindeuten. Wie eingangs in der Abbildung 2 dargestellt ist, wird H-3 ständig durch Prozesse in der Atmosphäre nachgebildet und gelangt anschließend in den hydrologischen Kreislauf. Das Wasser an der Oberfläche hat dabei einen vorrangigen Kontakt zum Austausch mit der Umwelt, im Gegensatz zu dem Wasser aus den tieferen Schichten, was einer der Gründe sein könnte, warum gerade die beiden Proben der Oberfläche Tritiumgehalte aufweisen.

Andererseits erscheint es verwunderlich, dass in einem relativ klein gefassten Bereich nur die Oberflächenprobe von OT oberhalb der mittleren Nachweisgrenze liegt, sich die Oberflächenprobe von UT in knapp 50 m Entfernung jedoch unterhalb der mittleren Nachweisgrenze befindet.

Obwohl die Ergebnisse der H-3 Messung unter Berücksichtigung der oben genannten Faktoren zu sehen sind, sollten sie dennoch eingeordnet werden: Durch die relativ geringe Energie von 18 keV, welche die β -Teilchen beim Zerfall mit sich führen, beläuft sich der Grenzwert von H-3 in Trinkwasser laut Anlage 3a der Trinkwasserverordnung auf 100 Bq/L. Das ist rund das 50-fache der Menge, die in den beiden Proben gemessen worden ist. Ebenfalls sollte noch einmal auf die geforderte Nachweisgrenze für H-3 Messungen eingegangen werden, welche sich auf 10 Bq/L beläuft [10]. Die gemessenen Signale befinden sich auch deutlich unter diesem Wert.

Verglichen mit Daten über das Vorkommen von H-3 in Niederschlag sowie mit Oberflächenwasser in Deutschland [14], liegen die Ergebnisse der Oberflächenproben von OT und Skoda in einem nicht unnatürlichen Bereich. Wie in Abbildung 22 zu sehen ist, schwankt die Tritiumkonzentration zwischen 10 TU (=1,18 Bq/L) und 200 TU (=23,6 Bq/L) je nach Gewässer und Jahr. Dabei ist noch anzumerken, dass die Mosel unter dem Einfluss des französischen Kernkraftwerks in Cattenom steht.

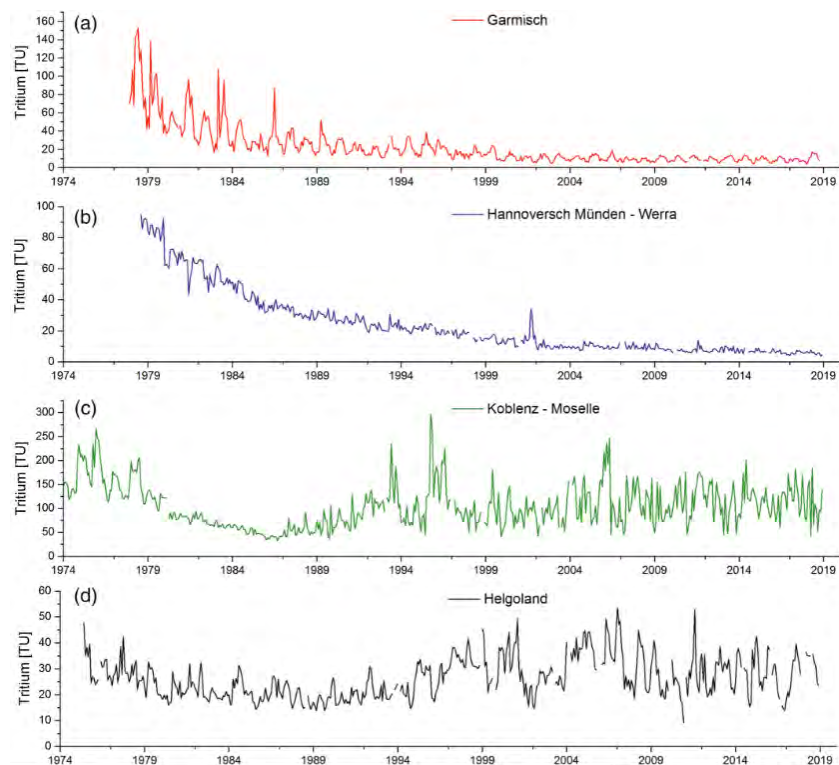


Abbildung 22: Überblick von Tritiumkonzentrationen angegeben in TU (1 TU = 0,118 Bq/L) in verschiedenen Gewässern [14]

4.1.1 Vergleich mit Gauß-Fahnen-Modell

Um einen möglichen Eintrag aus der Asse auf die drei beprobten Stillgewässer untersuchen zu können, wurde das Gauß-Fahnen-Modell angewendet. Als Programm wurde HotSpot des National Atmospheric Release Advisory Centers (NARAC) und des Lawrence Livermore National Laboratory (LLNL) (V3.1.2) genutzt. Diese Modellierung macht sich im Vorfeld fest definierte Parameter, wie zum Beispiel den Quellterm, zu Nutze, um dann einen möglichen Eintrag auf ein Gebiet zu simulieren.

Als Quellterm dient der aktuellste Wert des Jahres 2020 ($4,6 \text{ Bq/m}^3$ bei einer Fortluftmenge von $2,7 \cdot 10^9 \text{ m}^3$).

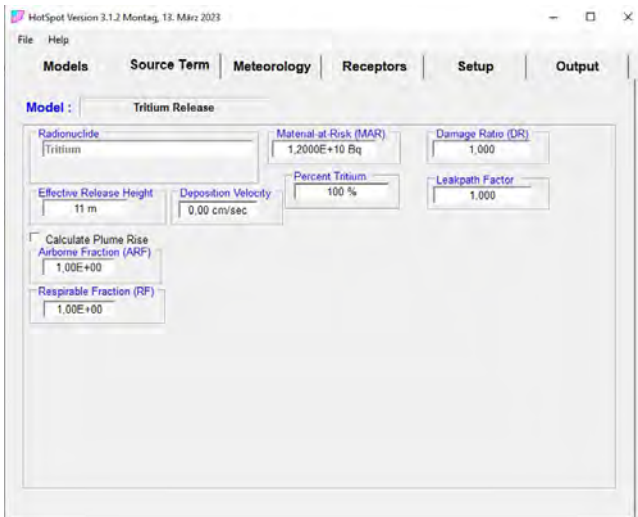
Die Parameter finden sich in Tabelle 4:

Tabelle 4: Parameter zur Simulation der Ausbreitung der Abluffahne aus der Schachtanlage Asse II, vgl. Abbildung 23

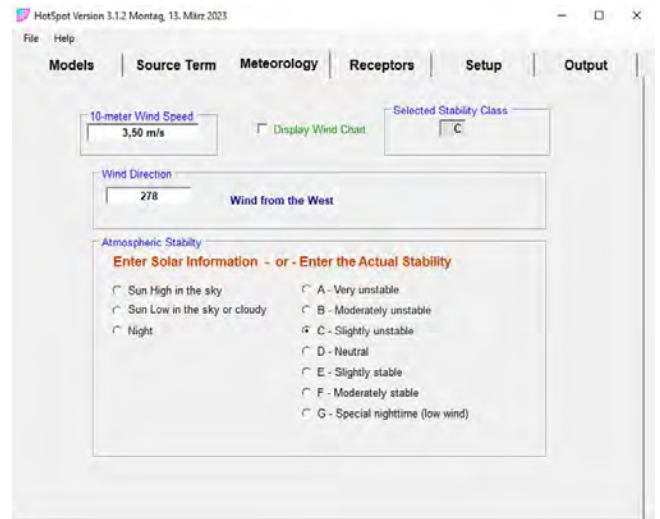
Parameter	Wert
Quellterm	$1,215 \cdot 10^{10} \text{ Bq}$ [2]
Effective release height	11 m [1]
10 meter windspeed	gestaffelt, nach Abb. 28; Quelle [15]
Receptor height	1,5 m
Wind direction OT, UT	278°
Wind direction Skoda Teich	135°
Rainout Coefficient	$2\text{E-}05 \text{ 1/s}$

Die erste Simulation wurde mit der Annahme durchgeführt, dass der Wind an 365 Tagen mit einer konstanten Geschwindigkeit auf das jeweilige Stillgewässer gerichtet ist. Dies ist jedoch eine sehr konservative Abschätzung und anhand der Wetterdaten, lässt sich die genaue Anzahl der Tage mit relevanter Windrichtung bestimmen. Letztendlich war der Wind an 49 Tagen auf OT und UT gerichtet (278° , Westwind) und nur 15 Tage auf den Skoda-Teich gerichtet (135° , Südostwind).

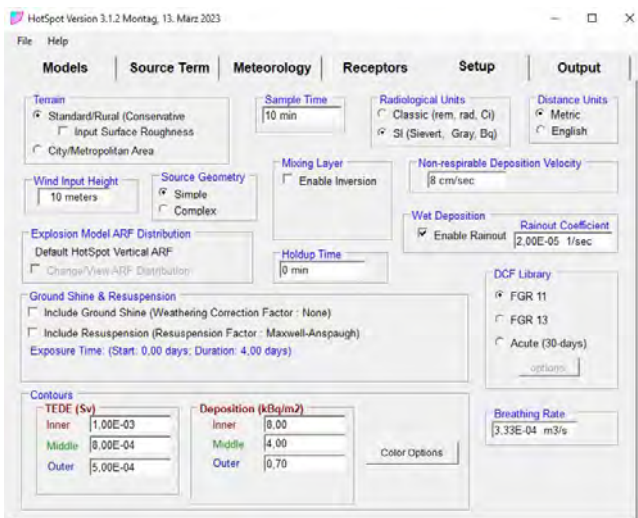
Der Rainout-Coefficient wird von der Simulation anhand der Niederschlagsrate gewählt. Durch einen geeigneten Plot kann für die bekannte Niederschlagsrate ein passender Rainout-Coefficient eingesetzt werden.



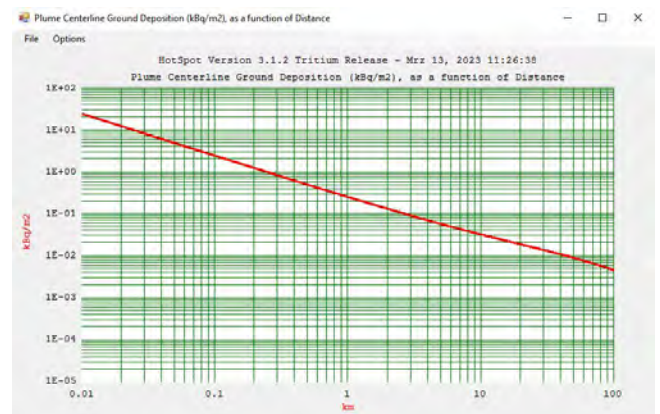
(a) Einstellung des sogenannten Source Terms, also des Quellterms



(b) Festlegung der meteorologischen Daten für die Simulation, hier exemplarisch für eine Windgeschwindigkeit von 3,5 m/s

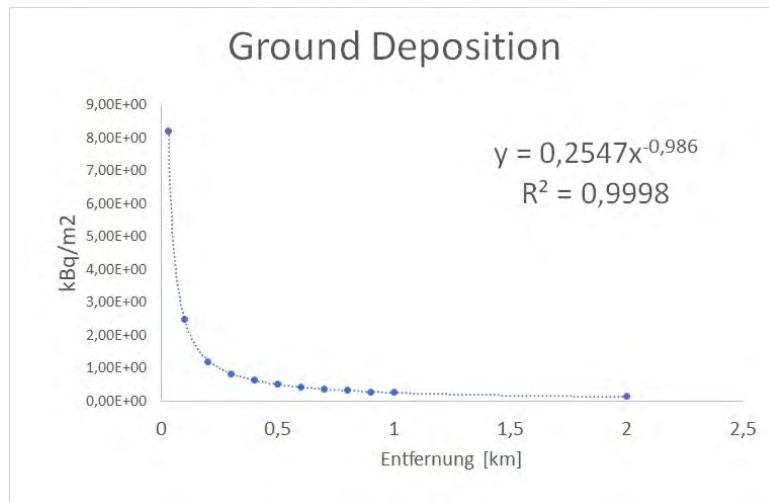


(c) Im Setup kann unter anderem grafische Darstellung angepasst werden



(d) Der durch HotSpot ermittelte Graph der sogenannten Ground Deposition

Abbildung 23: Benutzeroberfläche von HotSpot mit Übersicht der verwendeten Eingangsparameter beispielhaft für OT und UT



- (a) Grafische Darstellung der Ground Deposition zur Bestimmung der Aktivität pro m² bei einer bestimmten Entfernung und Windgeschwindigkeit (hier 3,5 m/s) mit einem exponentiellen Fit



- (b) Grafische Darstellung der Ground Deposition bei westlichem Wind (3,5 m/s), OT und UT sind als gelbe Kreise gekennzeichnet



- (c) Grafische Darstellung der Ground Deposition bei südöstlichem Wind (3,5 m/s), der Skoda-Teich ist ebenfalls als gelber Kreis gekennzeichnet

Abbildung 24: Grafische Darstellung der durch HotSpot ermittelten Ground Deposition als Graph mit exponentiellem Fit (a), sowie visuell in Google Earth (b), (c). Die blaue Fläche beschreibt 0,1 kBq/m², die grüne Fläche 0,5 kBq/m² und die rote Fläche 1 kBq/m².

Rechnungen Unter der Annahme, dass die Teiche im Mittel eine Tiefe von 1 m besitzen, ergeben sich durch Multiplikation mit den aus HotSpot für verschiedene Windgeschwindigkeiten errechneten Bodeneinträgen in Bq/m² (Grounddeposition) die in Tabelle 5 zusammengefassten Werte der jährlichen Einträge in Bq/L.

Tabelle 5: Die zu erwartende Ground Deposition an den verschiedenen Teichen, jeweils unter der Annahme gerechnet, dass der Wind 365 Tage mit dem gegebenen Geschwindigkeitsprofil in Richtung des Teiches weht (konservativ) und einmal unter der Annahme gerechnet, dass die Windtage aus der Windrose (Quelle [15]) pro Jahr gelten.

Windgeschwindigkeit [m/s]	Tage Wind pro Jahr	Oberer Teich [Bq/L]	Unterer Teich [Bq/L]	Tage Wind pro Jahr	Skoda Teich [Bq/L]
0,6	2	1,56	1,42	1	0,88
2,2	9	0,43	0,39	7	0,24
4,2	13	0,22	0,2	5	0,12
6,4	14	0,15	0,13	2	0,08
8,9	7	0,11	0,1	0	0,06
11,9	3	0,08	0,07	0	0,05
15,3	1	0,02	0,02	0	0,01
Gew. Summe pro Jahr (realistisch)		0,036	0,032		0,009
Gew. Summe pro Jahr (konservativ)		0,265	0,239		0,221

Interpretation Der unter diesen Annahmen modellierte Eintrag der Asse auf die Stillgewässer liegt im Bereich von mBq. Gegenüber den schon oben diskutierten, natürlich vorkommenden Werten von H-3 liegt der modellierte Eintrag in einem Bereich, der mit der für diese Arbeit gewählten Messmethode nicht nachweisbar sein sollte.

4.2 C-14

Die Ergebnisse der C-14 Analyse der Schwarzkiefer und der der Rotbuche fallen in den Bäumen interessanterweise unterschiedlich aus.

Bei der Schwarzkiefer stimmen die Anfangsdaten (1900-1960) und die Daten zum Ende hin (1987-2015) sehr genau mit den Referenzdaten überein, wodurch eine fehlerhafte Probenahme bezüglich der gesampelten Jahre eher unwahrscheinlich scheint. Jedoch gibt es sehr deutliche Unterschiede der erhaltenden Daten im Bereich des Bombenpeaks. Kleinere Ungenauigkeiten bezüglich der Jahres-Unsicherheit lassen sich durch den Fakt erklären, dass es sich bei den gesampelten Jahren um Mischproben von zwei bis drei Jahren handelt. Bei der chemischen Aufbereitung wurde aus der vorliegenden Probemasse dann nur soviel Masse verwendet, wie zur Messung benötigt. Das letztendlich erhaltende Messergebnis bildet dabei keinen wahren Mittelwert aus den gesampelten 2-3 Jahren, der Datenpunkt könnte in Wahrheit deutlich weiter links oder rechts auf der X-Achse (Jahreszahl) liegen.

Des weiteren ist in Betracht zu ziehen, dass Bäume lebende Organismen sind, deren Aufnahme von Kohlenstoff nicht unbedingt gleichmäßig erfolgen muss. Außerdem könnten verschiedene Faktoren, wie die Bodenbeschaffenheit, die Wasserversorgung, die Höhe des Baumes und das Alter einen Einfluss auf die Kohlenstoffaufnahme haben. An dieser Stelle kann auch einmal auf die Isotopenfraktionierung eingegangen werden: Isotope des gleichen Nuklids zeigen aufgrund ihrer unterschiedlichen Massen ein verändertes Verhalten; zum Beispiel bezüglich der Aufnahme von Kohlenstoff aus der Luft in die Blätter von Bäumen. Dadurch, dass C-12 leichter als C-13 ist, wird vorrangig ersteres aufgenommen, sodass eine Anreicherung des C-12 von ca. 2% im Holz des Baumes zu beobachten ist. C-13 ist wiederum leichter als C-14, sodass C-13 wieder vorrangig aufgenommen wird. In diesem Fall wird auch von einer kinetischen Fraktionierung gesprochen, da die schwereren Isotope den Prozess der Photosynthese langsamer durchlaufen. [7].

Ob dieser Effekt bei der Interpretation zu berücksichtigen ist, kann hier allerdings nicht mit Sicherheit gesagt werden, da die Messergebnisse keinem erkennbaren Trend folgen. Warum letztendlich ein solches Ergebnis erhalten worden ist, lässt sich innerhalb dieser Arbeit also nicht endgültig beantworten.

Anders sieht es bei der Rotbuche aus. Die Ergebnisse der C-14 Messung spiegeln die Werte der Referenzdaten weitestgehend wieder. Auf dieser Grundlage lassen sich einzelne Datenpunkte sinnvoller diskutieren als das es bei der Schwarzkiefer der Fall gewesen ist. Auch hier gilt, wieder wie oben schon erwähnt, dass kleinere Unsicherheiten durch die Tatsache erklärt werden können, dass die Daten der gesampelten Jahre keinen wahren Mittelwert bilden und die Datenpunkte bezüglich der Jahreszahl leicht nach links oder rechts verschoben sein könnten.

Zwei Datenpunkte scheinen dennoch auf den ersten Blick überraschend: Sowohl das Jahr 1967 als auch das Jahr 1973 sind gegenüber den Referenzdaten leicht erhöht. Spannend dabei ist, dass die Ergebnisse der Schwarzkiefer der gleichen Jahre, keine solche Erhöhung zeigen, im Gegensatz dazu, sind dies einige der Jahre, die genau im Bereich der Referenzdaten liegen. Wie schon oben angedeutet, könnten viele Faktoren bei der Aufnahme und Speicherung von Kohlenstoff eine Rolle spielen, sodass keine genauere Aussage über die Gründe der Erhöhung der Datenpunkte getroffen werden kann.

Eine erneute Nachmessung der betreffenden Jahre ist durchgeführt worden und findet sich unten.

Die Arbeit befasst sich mit der Fragestellung, einen möglichen Einfluss der Emissionen der Asse auf die Umwelt in Vergangenheit und Gegenwart zu untersuchen. Hinsichtlich der C-14 Emissionen in der Gegenwart (2000-2015), lässt sich dies anhand der Ergebnisse der Schwarzkiefer und der Rotbuche nicht vermuten. Bezogen auf die Vergangenheit, gerade in dem Zeitraum der Einlagerungsphase (1967-1987) zeigen die Daten der beiden Bäume widersprüchliche Ergebnisse, sodass dort, ohne eine weitere Untersuchung, keine Aussage getroffen werden kann.

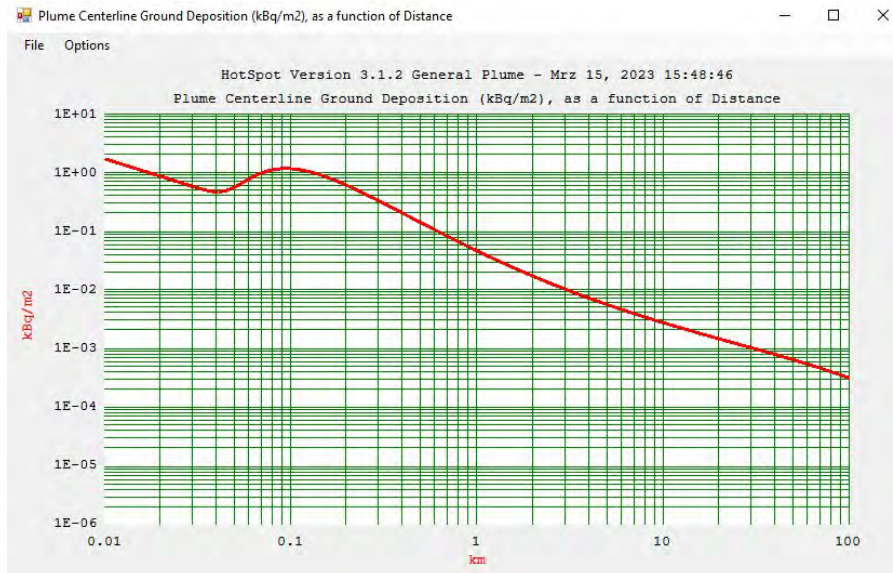
4.2.1 Vergleich mit Gauß-Fahnen-Modell

Um die erhaltenen Daten in einen Kontext einordnen zu können, wurde, wie auch für die Tritiumemissionen, ein Szenario mit dem Programm HotSpot simuliert. Die Annahmen für dieses Szenario wurden hinsichtlich des Quellterms und der Windrichtung angepasst. Zum Einen wurde für die Simulation aus Gründen der Vereinfachung eine durchschnittliche Geschwindigkeit von 3,5 m/s (anstatt einer Geschwindigkeitsverteilung entsprechend Kapitel 4) zu Grunde gelegt, zum Anderen wurde der einbezogene Windrichtungsvektor auf die tatsächliche Ausbreitung der Abluftfahne am Standort der Bäume $\pm 6^\circ$ angepasst. Der Wind wehte in diesem relevanten Korridor noch an 4 Tagen in Richtung des Standortes der Schwarzkiefer und an 26 Tagen in Richtung des Standortes der Rotbuche.

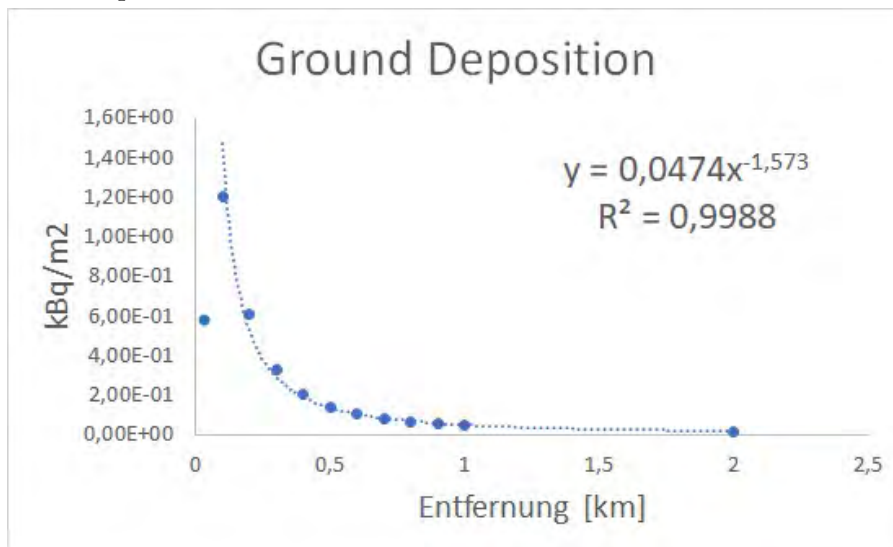
Da das Programm die Deposition auf den Boden berechnet, wird für die Verteilung der sogenannte Rainout Coefficient berücksichtigt, welcher ein Maß für die Verteilung von Radionukliden auf den Boden über den Niederschlag ist.

Tabelle 6: Parameter zur Simulation der Ausbreitung der Abluftfahne aus der Schachtanlage Asse II

Paramter	Wert
Quellterm	$8,46 \cdot 10^8$ Bq [2]
Effective release height	11 m [1]
10 meter windspeed	3,5 m/s
Receptor height	1,5 m
Wind direction Schwarzkiefer	160°
Wind direction Rotbuche	253°
Rainout Coefficient	2E-05 1/s



(a) Grafische Darstellung der Ground Deposition aus der Simulation in HotSpot



(b) Grafische Darstellung der Ground Deposition zur Bestimmung der Aktivität pro m^2 bei einer bestimmten Entfernung mit einem exponentiellen Fit beginnend ab dem zweiten Datenpunkt, da ersterer für die Berechnung nicht relevant ist.

Abbildung 25: Grafische Darstellung der Ground Deposition aus Hotspot (a) und mit exponentiellem Fit (b)



(a) Darstellung der Ground Deposition bei südöstlichem Wind, wobei der Standort der Schwarzkiefer rötlich markiert ist



(b) Darstellung der Ground Deposition bei südwestlichem Wind mit Markierung des Standortes der Rotbuche in hellblau

Abbildung 26: Darstellung der durch HotSpot ermittelten Ground Deposition in Google Earth. Die blaue Fläche beschreibt $0,02 \text{ kBq/m}^2$, die grüne Fläche $0,1 \text{ kBq/m}^2$ und die rote Fläche $0,2 \text{ kBq/m}^2$.

Rechnungen Zur Berechnungen der Ground Deposition für die Schwarzkiefer wurden die Parameter des Fits aus der Abbildung 25 (b) genutzt:

$$\begin{aligned}
 y &= 0,0474 \frac{\text{kBq}}{\text{km} \cdot \text{m}^2} \cdot x \text{ km}^{-1,573} & (7) \\
 y &= 0,0474 \frac{\text{kBq}}{\text{km} \cdot \text{m}^2} \cdot 0,803 \text{ km}^{-1,573} \\
 y &= 0,0669 \frac{\text{kBq}}{\text{m}^2}
 \end{aligned}$$

Mit 4 Tagen Wind in relevanter Richtung (154°-166°):

$$\frac{0,0669 \frac{\text{kBq}}{\text{m}^2}}{365 \text{ d}} \cdot 4 \text{ d} = 0,000734 \frac{\text{kBq}}{\text{m}^2} = 0,734 \frac{\text{Bq}}{\text{m}^2} \quad (8)$$

Die Berechnungen der Ground Deposition für die Rotbuche:

$$\begin{aligned}
 y &= 0,0474 \frac{\text{kBq}}{\text{km} \cdot \text{m}^2} \cdot x \text{ km}^{-1,573} & (9) \\
 y &= 0,0474 \frac{\text{kBq}}{\text{km} \cdot \text{m}^2} \cdot 1,66 \text{ km}^{-1,573} \\
 y &= 0,0214 \frac{\text{kBq}}{\text{m}^2}
 \end{aligned}$$

Mit 26 Tagen Wind in relevanter Richtung (247°-259°):

$$\frac{0,0669 \frac{\text{kBq}}{\text{m}^2}}{365 \text{ d}} \cdot 26 \text{ d} = 0,001521 \frac{\text{kBq}}{\text{m}^2} = 1,521 \frac{\text{Bq}}{\text{m}^2} \quad (10)$$

Tabelle 7: Die zu erwartende Ground Deposition an den Standorten der Bäume

Baum	Entfernung [km]	G.D. 365 Tage Wind [Bq/m ²]	G. D. angepasste Windverhältnisse [Bq/m ²]
Schwarzkiefer	0,803 (160°)	66,9	0,734
Rotbuche	1,660 (253°)	21,4	1,521

Interpretation Für die Schwarzkiefer hat sich eine Ground Deposition von 0,7 Bq/m² ergeben. Durch die höhere Anzahl an Tagen für die relevante Windrichtung, ergibt sich für die Rotbuche ein Wert von 1,5 Bq/m².

Um eine geeignete Interpretation für die erhaltenen Daten geben zu können, wird im Folgenden überlegt, wieviel C-14 aus der Asse jährlich emittiert werden müsste, sodass der Grund für die Erhöhung der Daten der Rotbuche in den Jahren 1967 und 1973 mit den Emissionen aus der Asse in Verbindung gebracht werden könnten.

Es muss erst der Anteil an C-14 in Bq/m³ in der Atmosphäre in den entsprechenden Jahren in Erfahrung gebracht werden, um damit die nötige prozentuale Erhöhung der Emissionen zu berechnen, die für die Erhöhung der zwei Datenpunkte notwendig wäre.

Der erste Schritt hierfür beinhaltet den CO₂-Gehalt in der Atmosphäre in den betreffenden Jahren in Erfahrung zu bringen. Für das Jahr 1967 liegt der Wert bei 322 ppm (=parts per million) und für das Jahr 1973 liegt der Wert bei 330 ppm [16].

Nach [17] entsprechen 1000 ppm ca. 1,839 g/m³. Für das Jahr 1967 ergibt sich damit ein Wert von 0,59 g/m³ CO₂ und für das Jahr 1973 ein Wert von 0,6 g/m³ CO₂ in der Atmosphäre. Da die Werte sehr nah beieinander liegen, wird letzterer für die weiteren Berechnungen verwendet.

Der nächste Schritt ist die Ermittlung des C-14 Wertes in g/m³ in der Atmosphäre. Dazu wird der F¹⁴C_{meas}-Wert aus den Messergebnissen herangezogen und mit dem natürlichen Verhältnis [6] multipliziert. Das liefert das Verhältnis von C-14 zu C-12 in den entsprechenden Jahren.

$$\frac{C - 14}{C - 12} = F^{14}C_{meas} \cdot 1,2 \cdot 10^{12} \quad (11)$$

Für 1967 ergibt sich:

$$\begin{aligned}\frac{C-14}{C-12} &= 1,64 \cdot 1,2 \cdot 10^{-12} \\ &= 1,96 \cdot 10^{-12}\end{aligned}\tag{12}$$

Für 1973 ergibt sich:

$$\begin{aligned}\frac{C-14}{C-12} &= 1,47 \cdot 1,2 \cdot 10^{-12} \\ &= 1,74 \cdot 10^{-12}\end{aligned}\tag{13}$$

Dieses Verhältnis kann nun genutzt werden um auf den C-14 Wert in g/m^3 zu schließen. Dafür wird das Verhältnis mit dem Gehalt an Kohlenstoff Gehalt_C multipliziert, welcher sich aus dem oben genannten Wert für den Anteil an CO_2 in der Atmosphäre, geteilt durch den Massenanteil des Sauerstoffs (44) und multipliziert mit dem Massenanteil des Kohlenstoffs (12) berechnet:

$$\text{Gehalt}_C \frac{\text{g}}{\text{m}^3} = \frac{\text{CO}_2 \frac{\text{g}}{\text{m}^3}}{44} \cdot 12\tag{14}$$

Mit dem oben genannten CO_2 -Wert von $0,6 \text{ g}/\text{m}^3$ ergibt sich ein Gehalt_C -Wert von $0,1647 \text{ g}/\text{m}^3$.

Mit den schon ausgerechneten C-14 zu C-12 Verhältnissen und dem Gehalt_C -Wert lässt sich nun auf den C-14-Wert in g/m^3 in der Atmosphäre in den Jahren 1967 und 1973 schließen:

$$C-14 \frac{\text{g}}{\text{m}^3} = \frac{C-14}{C-12} \cdot \text{Gehalt}_C\tag{15}$$

Für 1967:

$$\begin{aligned}C-14 \frac{\text{g}}{\text{m}^3} &= 1,96 \cdot 10^{-12} \cdot 0,1647 \frac{\text{g}}{\text{m}^3} \\ &= 3,24 \cdot 10^{-13} \frac{\text{g}}{\text{m}^3}\end{aligned}\tag{16}$$

Für 1973:

$$\begin{aligned}
 C - 14 \frac{\text{g}}{\text{m}^3} &= 1,74 \cdot 10^{-12} \cdot 0,1647 \frac{\text{g}}{\text{m}^3} \\
 &= 2,86 \cdot 10^{-13} \frac{\text{g}}{\text{m}^3}
 \end{aligned}
 \tag{17}$$

Aus dem C-14 in g/m^3 kann nun mithilfe der spezifischen Aktivität der C-14-Wert in Bq/g , also die Aktivitätskonzentration in der Luft, ausgerechnet werden. Die spezifische Aktivität von C-14 lässt sich dem Isotope Browser der IAEA entnehmen. Sie beträgt ca. $1,6 \cdot 10^{11} \text{ Bq}/\text{g}$. Damit lässt sich nun die Freigesetzte Menge an C-14 in Bq/m^3 berechnen:

$$C - 14 \frac{\text{Bq}}{\text{m}^3} = C - 14 \frac{\text{g}}{\text{m}^3} \cdot A_{\text{spez}} \frac{\text{Bq}}{\text{g}}
 \tag{18}$$

Für 1967 ergibt sich ein Wert von:

$$\begin{aligned}
 C - 14 \frac{\text{Bq}}{\text{m}^3} &= 3,24 \cdot 10^{-13} \frac{\text{g}}{\text{m}^3} \cdot 1,6 \cdot 10^{11} \frac{\text{Bq}}{\text{g}} \\
 &= 5,18 \cdot 10^{-2} \frac{\text{Bq}}{\text{m}^3}
 \end{aligned}
 \tag{19}$$

Und für 1973:

$$\begin{aligned}
 C - 14 \frac{\text{Bq}}{\text{m}^3} &= 2,86 \cdot 10^{-13} \frac{\text{g}}{\text{m}^3} \cdot 1,6 \cdot 10^{11} \frac{\text{Bq}}{\text{g}} \\
 &= 4,57 \cdot 10^{-2} \frac{\text{Bq}}{\text{m}^3}
 \end{aligned}
 \tag{20}$$

Für 1967 ergibt sich somit ein Wert von

$$5,18 \cdot 10^{-2} \frac{\text{Bq}}{\text{m}^3}$$

und für 1973 sind es

$$4,57 \cdot 10^{-2} \frac{\text{Bq}}{\text{m}^3}$$

Das ist die Menge an C-14, die sich in den angegebenen Jahren in der Luft befunden hat. Der Datenpunkt von 1967 zeigt gegenüber den Referenzdaten eine Erhöhung um 8 % und der Datenpunkt aus 1973 zeigt eine Erhöhung um 4 %.

Im nächsten Schritt werden diese prozentualen Anteile ausgerechnet:

Für 1967:

$$0,08 \cdot 5,18 \cdot 10^{-2} \frac{\text{Bq}}{\text{m}^3} = 4,14 \cdot 10^{-3} \frac{\text{Bq}}{\text{m}^3} \quad (21)$$

Für 1973:

$$0,04 \cdot 4,57 \cdot 10^{-2} \frac{\text{Bq}}{\text{m}^3} = 1,38 \cdot 10^{-3} \frac{\text{Bq}}{\text{m}^3} \quad (22)$$

um diese Konzentrationen müsste die Luft um die Rotbuche gegenüber dem natürlichen Hintergrund erhöht gewesen sein, um zu entsprechenden Messwert-Erhöhungen in den entstehenden Baumringen zu führen.

Um jetzt die hierzu korrespondierenden Emissionen (C-14_{nötig}) aus der Asse zu berechnen, müssen einige Annahmen getroffen werden.

Angenommen, der Wind hat sich über die Jahre nicht stark verändert und besitzt immer noch eine durchschnittliche Geschwindigkeit von 4,5 m/s. Das Jahr hat ca. $3 \cdot 10^7$ Sekunden. Die Fläche des Baumes wird mit 1000 m^2 abgeschätzt. An dem Standort der Rotbuche in 1,6 km Entfernung besitzt die Gauß-fahne einen Durchmesser von 160 m. Dies lässt sich der Modellierung in Google Earth (Abbildung 26) mittels dem Werkzeug für das Messen von Entfernungen entnehmen. Unter der Annahme eines Kreises ergibt das eine Fläche von $80,425 \text{ m}^2$. Die Fläche des Baumes ist damit ca. 80 mal kleiner als die Gaußfahne. Auch müssen nur die Tage mit der relevanten Windrichtung in die Rechnung miteinebezogen werden: Für die Rotbuche waren das 26 Tage (0,071). Für das Jahr 1967 wird der prozentuale Anteil von 8 % (also $4,14 \cdot 10^{-3} \text{ Bq/m}^3$) mit eingerechnet und für 1973 die 4 % (also $1,38 \cdot 10^{-3} \text{ Bq/m}^3$).

Für 1967 ergibt sich dann folgende Rechnung:

$$\begin{aligned} C - 14_{\text{nötig}} &= 4,14 \cdot 10^{-3} \frac{\text{Bq}}{\text{m}^3} \cdot 0,071 \cdot 4,5 \frac{\text{m}}{\text{s}} \cdot 3 \cdot 10^7 \text{s} \cdot 80,425 \text{m}^2 \cdot 80,425 \\ &= 2,58 \cdot 10^{11} \text{Bq} \end{aligned} \quad (23)$$

Für 1973:

$$\begin{aligned}
C - 14_{\text{nötig}} &= 1,38 \cdot 10^{-3} \frac{\text{Bq}}{\text{m}^3} \cdot 0,071 \cdot 4,5 \frac{\text{m}}{\text{s}} \cdot 3 \cdot 10^7 \text{s} \cdot 80425 \text{m}^2 \cdot 80,425 & (24) \\
&= 8,58 \cdot 10^{10} \text{Bq}
\end{aligned}$$

Die Asse hätte also im Jahr 1967 258 GBq und im Jahr 1973 85 GBq emittieren müssen, sodass diese Erhöhung mit den Emissionen in Verbindung gebracht werden könnte.

Dies ist um einiges höher, als das es der Jahresbericht von 2020 [2] hergibt. Jahresberichte über die Emissionen in den Jahren 1967 sowie 1973 stehen leider nicht zur Verfügung, da es nach [15] eine Lücke in der Emissionsüberwachung zu Zeiten der Einlagerungsphase gegeben hat. Es muss auch angemerkt werden, dass die bis jetzt bekannte, höchste Emission aus dem Jahr 1982 rund $15 \cdot 10^9$ Bq betragen hat, und die so berechneten Emissionswerte diesen Wert um eine, bzw. zwei Zehnerpotenzen übertreffen und es daher unwahrscheinlich erscheint, dass die Asse dies an Emissionen emittiert hat. Wie schon angesprochen, könnte die Erhöhungen auch auf Messunsicherheiten oder andere Effekte zurückzuführen sein.

Bei der obigen Rechnung handelt es sich in erster Linie um eine grobe Abschätzung, unter der sehr konservativ getroffenen Annahme, dass der Baum eine Fläche von 1000m^2 besitzt. Eine detailliertere Berechnung, die ohne diese Annahmen auskommt, findet sich im folgenden Abschnitt.

Berechnungen gemäß der allgemeinen Verwaltungsvorschrift zu §47 Strahlenschutzverordnung [18] Ein alternativer Weg der Interpretation lässt sich im Hinweispapier der AGO (Arbeitsgruppe Optionen-Rückholung) mit dem Titel "Retrospektive Ermittlung von Ableitungen aus der Schachanlage Asse II" [15] finden, welche auf der Verwaltungsvorschrift zu §47 Strahlenschutzverordnung (AVV) [18] beruht.

Das dort verwendete Verfahren zur Berechnung der Aktivitätskonzentration für den Referenzfall 1982 wird im Folgenden exemplarisch auf den Standort der Rotbuche angewendet, um eine alternative Berechnungsgrundlage zur Interpretation der Messergebnisse darlegen zu können. Die Aktivitätskonzentration in der Luft $C_i(x)$ (in Bq/m^3) ist eine Größe der Quelledistanz x (in m) und berechnet sich wie folgt:

$$C_i(x) = \chi_i(x)' \cdot A \quad (25)$$

wobei $\chi_i(x)'$ den Langzeitausbreitungsfaktor multipliziert mit der Häufigkeit der Windrichtung beschreibt, welcher abhängig von der Quelledistanz und der Emissionshöhe für einen 30° Sektor

bei einer Windrichtungshäufigkeit von 100 % ist.

A beschreibt die Quellstärke (in Bq/s), welche die Stärke der Emissionen in Bq geteilt durch die Anzahl der Sekunden eines Jahres ($3,15 \cdot 10^7$ s) ist.

Der Langzeitausbreitungsfaktor (in s/m^3) lässt sich der Abbildung 27 entnehmen und beträgt für die Entfernung der Rotbuche

$$\chi_i(1600 \text{ m}) = 3 \cdot 10^{-6} \frac{\text{s}}{\text{m}^3} \quad (26)$$

wobei aufgrund der Datenlage der AVV eine Emissionshöhe von 20 m angenommen wurde.

An diesen Langzeitausbreitungsfaktor wird noch die Häufigkeit der Windrichtung p_i multipliziert. Dazu wurde die Umgebung der Schachanlage Asse II in insgesamt 16 Sektoren zu je $22,5^\circ$ unterteilt, welche in Abbildung 28 zu finden sind.

Da allerdings ein Sektor von 30° für die Berechnung notwendig ist, werden auch noch die angrenzenden Nebensektoren mit einem Faktor von 0,125 in die Rechnung einbezogen.

Die Rotbuche steht nordöstlich der Schachanlage. Da die Windrichtung beschreibt, aus welcher Richtung der Wind kommt, wird der Süd-West-Sektor als Hauptsektor angenommen. West-Süd-West (WSW) und Süd-Süd-West (SSW) sind demnach die Nebensektoren.

Im Hauptsektor (SW) beträgt die Anzahl der Stunden an Wind aus dieser Richtung 1050 h, Im Nebensektor WSW sind es 1200 h und SSW wird mit 750 h konservativ abgeschätzt. Insgesamt verrechnet sich dies zu 1239,75 h, was einem jährlichen prozentualen Anteil von 14,77 % entspricht.

$$\begin{aligned} p_i &= 1050 \text{ h} + 0,125 \cdot (1200 \text{ h} + 750 \text{ h}) \\ &= 1239,75 \text{ h} \end{aligned} \quad (27)$$

Die Größe $\chi_i(x)'$ ergibt sich dann wie folgt:

$$\begin{aligned} \chi_i(x)' &= 0,1477 \cdot 3 \cdot 10^{-6} \frac{\text{s}}{\text{m}^3} \\ &= 4,43 \cdot 10^{-7} \frac{\text{s}}{\text{m}^3} \end{aligned} \quad (28)$$

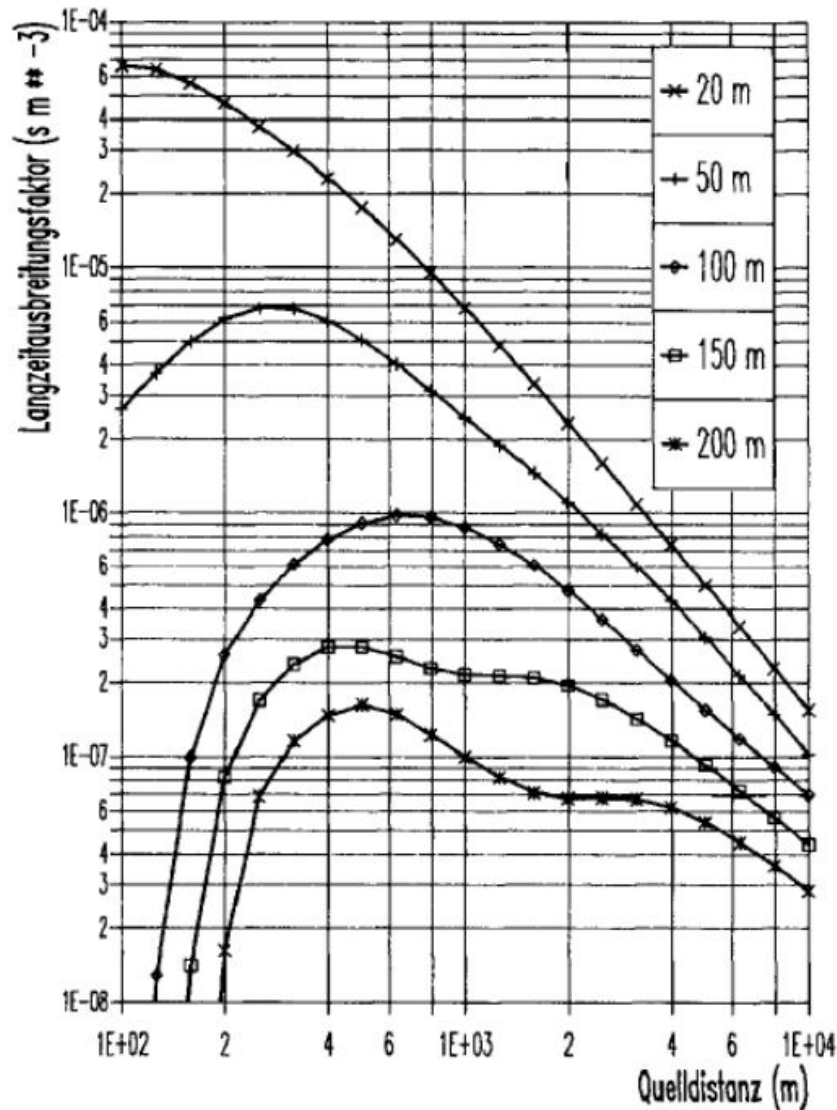


Abbildung 27: Langzeitausbreitungsfaktor für verschiedene Emissionshöhen für die Jahre 1969 bis 1986 bei einer Windrichtungshäufigkeit für einen 30° Sektor von 100 % nach [15]

Als letztes muss noch die Quellstärke A angegeben werden. Wie schon vorher erwähnt, liegen keine Daten über die C-14 Emission in den Jahren 1967 und 1973 vor. Das Jahr 1967 ließe sich sowieso nur unter der Annahme diskutieren, dass sich die Grafik für den Langzeitausbreitungskoeffizienten für die Jahre 1969 bis 1986 auch auf das Jahr 1967 übertragen lässt. Anhand der vorliegenden Daten, kann jedoch mit Sicherheit eine Aussage für das Jahr 1973 getätigt werden. Dazu werden zunächst Annahmen bezüglich der Stärke der Emission aufgrund von vorhandenen Daten getroffen, um letztendlich iterativ die für die Erhöhung des gemessenen $F^{14}C_{meas}$ -Wertes nötige Emission aus der Schachanlage Asse II berechnen zu können.

Die Emissionsstärke von $15 \cdot 10^9$ Bq aus dem Jahr 1982 ist die größte gemessene Emission in

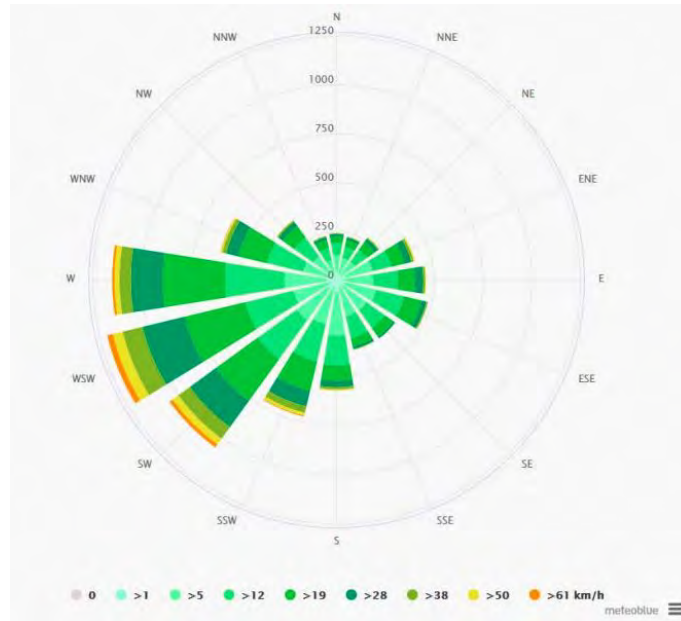


Abbildung 28: Abbildung eines Wettermodells für eine Fläche von 30 km x 30 km für den Standort der Schachanlage Asse II über 30 Jahre nach [15]

Tabelle 8: Die zu erwartende Aktivitätskonzentration $C_i(x)$ in der Luft am Standort der Rotbuche bei verschiedenen C-14 Emissionsstärken ES

ES C-14 [Bq]	A [Bq/s]	$C_i(x)$ [Bq/m ³]
$15 \cdot 10^9$	$4,76 \cdot 10^2$	$2,11 \cdot 10^{-4}$
$1 \cdot 10^{12}$	$3,17 \cdot 10^4$	$1,4 \cdot 10^{-2}$

dem vorhandenen Datensatz. Die Aktivitätskonzentration in der Luft am Standort der Rotbuche würde für diese Quellstärke unter Verwendung von Gl. (31) dann $2,11 \cdot 10^{-4}$ Bq/m³ betragen, was 0,211 mBq/m³ entspricht.

Selbst unter der Annahme von einer Emission von $1 \cdot 10^{12}$ Bq, was immerhin 1 TBq entspricht, und nach den vorhandenen Daten eine sehr konservative Annahme darstellt, würde die Aktivitätskonzentration am Standort der Rotbuche nur $1,4 \cdot 10^{-2}$ Bq/m³ bzw. 14 mBq/m³ betragen.

Um jetzt aber abschließend auf die aus der Asse benötigte Emission schließen zu können, die zu einer Erhöhung des Messwertes um 4% gegenüber dem Hintergrund führen würde, muss die in Gl. (31) berechnete Aktivitätskonzentration (in Bq/m³) mit dem entsprechendem $F^{14}C_{meas}$ der Referenzdaten für 1973 (nachfolgend F_{Ref}) verrechnet werden.

Der erste Schritt hierfür ist F_{Ref} in eine Aktivitätskonzentration $C_{iRef}(x)$ in Bq/m³ zu überführen:

$$\begin{aligned}
C_{iRef}(x) \frac{\text{Bq}}{\text{m}^3} &= F_{Ref} \cdot V_{\text{nat}} \cdot \text{Gehalt}_C \frac{\text{g}}{\text{m}^3} \cdot A_{\text{spez}} \frac{\text{Bq}}{\text{g}} \\
&= 4,57 \cdot 10^{-2} \frac{\text{Bq}}{\text{m}^3}
\end{aligned}
\tag{29}$$

Mit den entsprechenden aus Tabelle 9 ergibt sich eine Aktivitätskonzentration des natürlichen Hintergrundes von $4,57 \cdot 10^{-2} \text{ Bq/m}^3$:

Tabelle 9: Werte zur Berechnung von $C_{iRef}(x)$ in Bq/m^3

Name	Wert
F_{ref}	1,45 (siehe Anhang)
Natürliches Verhältnis C14/C12 V_{nat}	$1,2 \cdot 10^{-12}$ [6]
Gehalt Kohlenstoff in Atmosphäre Gehalt_C	$0,1647 \text{ g/m}^3$ (Gl.17)
Spezifische Aktivität A_{spez}	$1,6 \cdot 10^{11} \text{ Bq/g}$

Um einen kurzen Zwischenvergleich zu geben: Die Aktivitätskonzentration des Hintergrundes im Jahr 1973 ist um zwei Größenordnungen höher, als die aus Gl. (31) berechnete Aktivitätskonzentration für den Standort der Rotbuche für eine Emission von 15 GBq. Für die sehr konservative Annahme einer Emission von 1 TBq liegt die Aktivitätskonzentration des Hintergrundes in der selben Größenordnung, ist jedoch immer noch um einen Faktor vier höher.

Um jetzt noch zu bestimmen, welche Aktivität in Bq aus der Asse im Jahr 1973 emittiert hätten werden müssen um eine Erhöhung des $F^{14}\text{C}_{meas}$ um 4% gegenüber den Referenzdaten zu erhalten wird der Wert C_{iRef} zu dem Wert $C_{iAsse}(x)$ addiert und die so erhaltene Aktivitätskonzentration $C_{iRef+Asse}(x)$ mit Umstellen der Gl. (35) in einen F-Wert ($F_{Ref+Asse}$) berechnet.

$$\begin{aligned}
F_{Ref+Asse} &= \frac{C_{iRef+Asse}(x) \frac{\text{Bq}}{\text{m}^3}}{V_{\text{nat}} \cdot \text{Gehalt}_C \frac{\text{g}}{\text{m}^3} \cdot A_{\text{spez}} \frac{\text{Bq}}{\text{g}}} \\
&= 1,453
\end{aligned}
\tag{30}$$

Wobei für $C_{iAsse}(x)$ die Emission des Jahres 1982 von 15GBq eingesetzt wurde. Der so erhaltene $F_{Ref+Asse}$ Wert kann nun mit dem Hintergrundwert F_{Ref} verrechnet werden, um eine prozentuale Erhöhung zu erhalten:

$$\begin{aligned}
F_{Verhältnis} &= 100 \cdot \frac{F_{Ref+Asse}}{F_{Ref}} & (31) \\
&= 100,461
\end{aligned}$$

Dies entspricht einer Erhöhung um 0,4 %.

Diese Methode kann nun iterativ angewendet werden um auf die Emission zu schließen, die nach diesem Verfahren für eine Erhöhung um 4 % nötig wäre.

Letztendlich wird eine Emission von 130 GBq angenommen, mit der sich nach Gl. (31) eine Aktivitätskonzentration $C_i(x)$ von $1,83 \cdot 10^{-3} \text{Bq/m}^3$ berechnet.

Diese wird dann mit dem Hintergrundwert $C_{iRef}(x)$ verrechnet und nach Gl. (36) in einen F-Wert ($F'_{Ref+Asse}$) übertragen, welcher 1,504 für eine Emission von 130 GBq beträgt. Anschließend wird das Verhältnis wie in Gl. (37) berechnet, um auf die prozentuale Erhöhung zu schließen:

$$\begin{aligned}
F'_{Verhältnis} &= 100 \cdot \frac{F'_{Ref+Asse}}{F'_{Ref}} & (32) \\
&= 103,99
\end{aligned}$$

Um also eine Erhöhung der Messwerte gegenüber dem Hintergrund im Jahr 1973 anhand dieser Berechnung erklären zu können, hätte die Asse in diesem Jahr rund 130 GBq emittieren müssen. Dies liegt deutlich über dem höchsten bekannten Wert von 15 GBq.

5 Nachmessung ausgewählter Jahresringe (C-14)

Für eine Nachuntersuchung der Messergebnisse wurde der Bereich um das Jahr 1973 noch einmal beprobt und vermessen. Es wurde der Bereich um die Probe von 1973 ausgewählt, da es sich am ehesten bei der hier festgestellten C-14-Erhöhung des ersten Messdurchlaufs um ein signifikantes Ergebnis handelte, welches mit hoher Konfidenz einer Emission der Schachtanlage Asse II zuzuordnen wäre.

Die Probe aus dem Jahr 1967 befand sich hingegen noch mitten in der abfallenden Spitze des Bombenpeaks, wo, wie sich auch in den Untersuchungen der Schwarzkiefer zeigte, starke Schwankungen innerhalb der Jahresringe zu beobachten sind, die sich definitiv nicht mit der Asse-Einlagerung korrelieren lassen.

Um ein genaueres Messergebnis zu erzielen, hat sich die Probenahme dahingehend geändert, dass die einzelnen Jahresringe getrennt voneinander untersucht wurden und dieses Mal keine Mischproben hergestellt worden sind. Jedem Jahr wird jetzt ein Messwert zugeordnet, womit sich die Unsicherheit bezüglich der X-Achse verringert und letztendlich eine genauere Aussage getroffen werden kann.

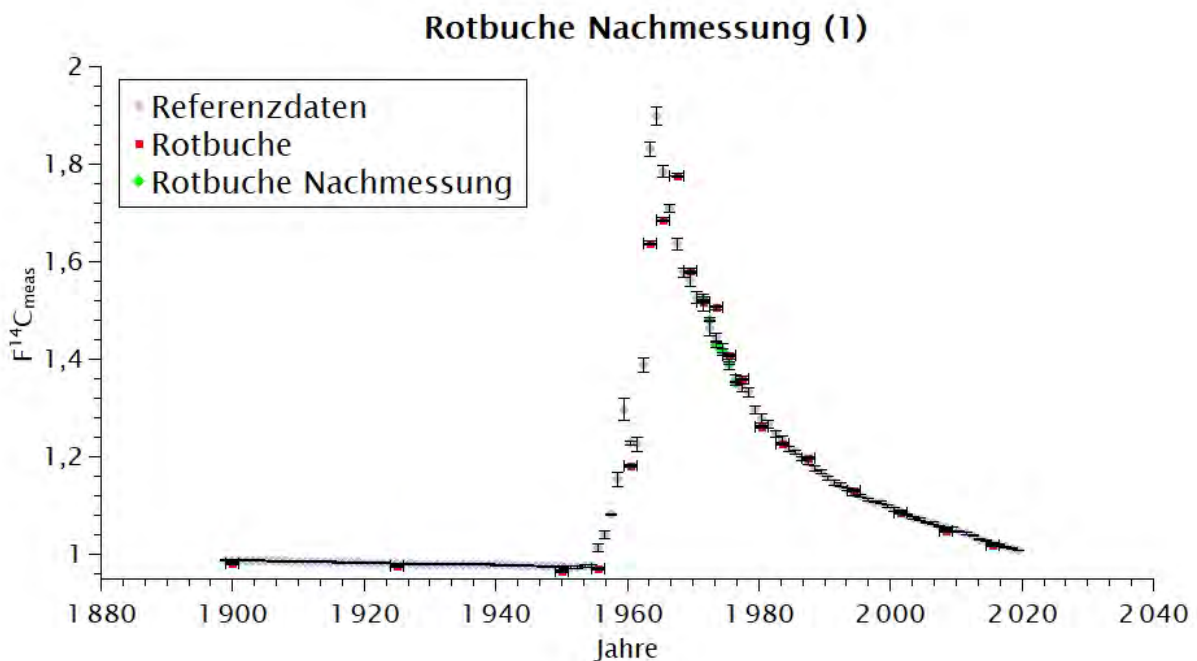


Abbildung 29: Messergebnisse mit den Daten der Nachmessung in grün dargestellt

Die Ergebnisse der Nachmessungen 1 und 2 sind in den Abbildungen 29,30,31 und 32 dargestellt. Die Messergebnisse entsprechen den zu erwarteten Werten, sodass keine Auffälligkeiten festgestellt werden können.

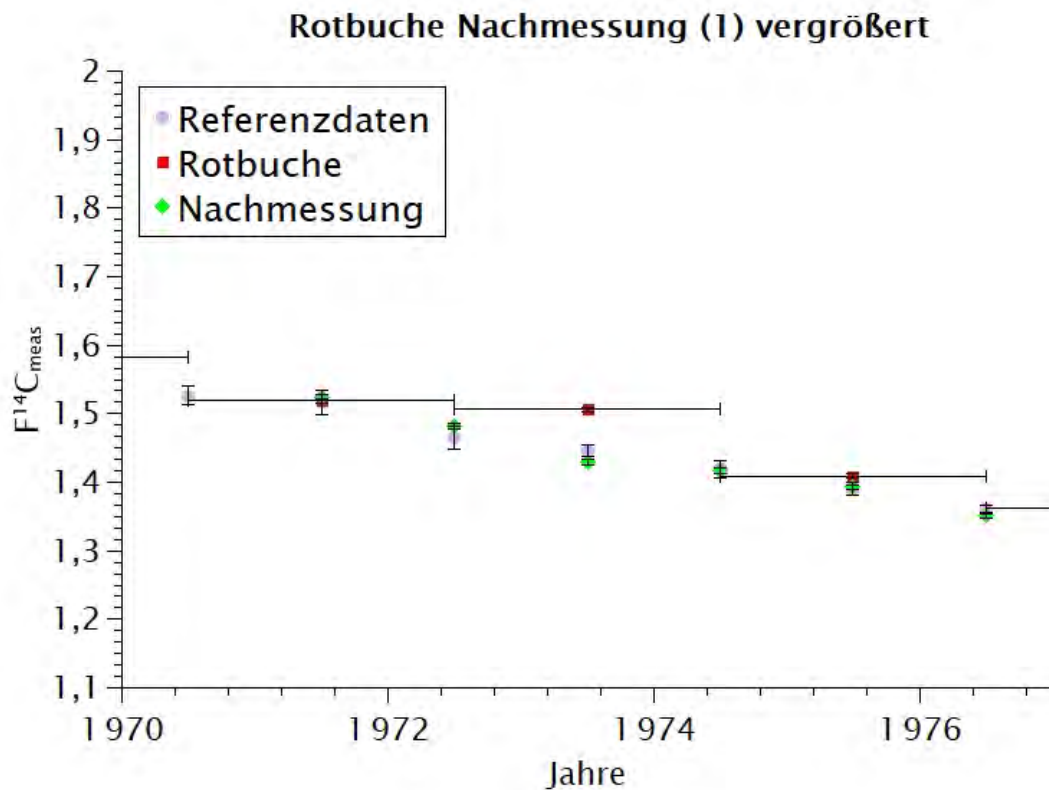


Abbildung 30: Ausschnitt der Messergebnisse für die Jahre 1971 bis 1976

Bei der jahres-genauen Untersuchung zeigt sich im Datenpunkt des Jahres 1973 keine signifikante Erhöhung mehr, sie reihte sich viel mehr in den zu erwarteten, Verlauf der monotonen Abnahme ein. Hieraus kann geschlossen werden, dass es sich bei der ursprünglichen Erhöhung des Messwertes aus dem Jahr 1973 aller Wahrscheinlichkeit nach um einen Messfehler, bzw. einem Effekt der Mischprobenbildung, handelt.

Dies würde die Diskussion des Messwertes im Kapitel "Vergleich mit Gauß-Fahnen-Modell, Berechnungen gemäß der allgemeinen Verwaltungsvorschrift zu §47 Strahlenschutzverordnung [18]" noch einmal unterstützen. Dort wurde festgehalten, dass die Aktivitätskonzentration der Luft am Standort der Rotbuche mit der bis jetzt bekannten, höchsten Emission aus der Schachtanlage von 15 GBq, bei 0,2 mBq/m³ liegen würde. Mit dieser Quellstärke wäre keine starke Erhöhung des F¹⁴C_{meas}-Wertes zu erwarten.

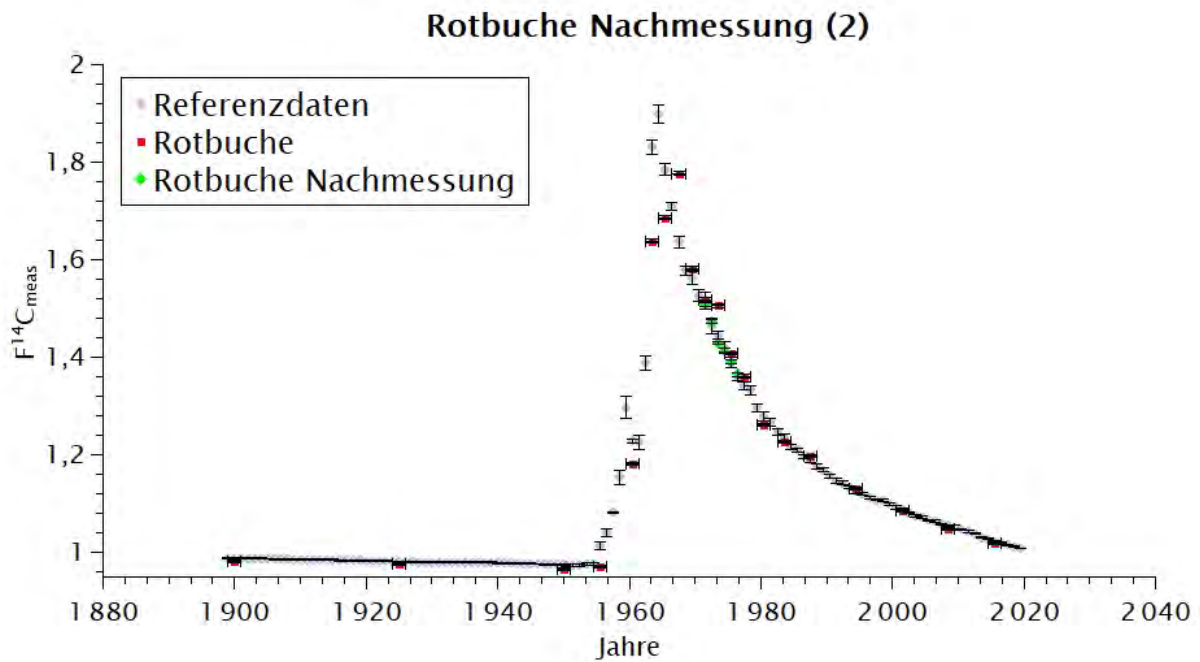


Abbildung 31: Messergebnisse mit den Daten der Nachmessung in grün dargestellt

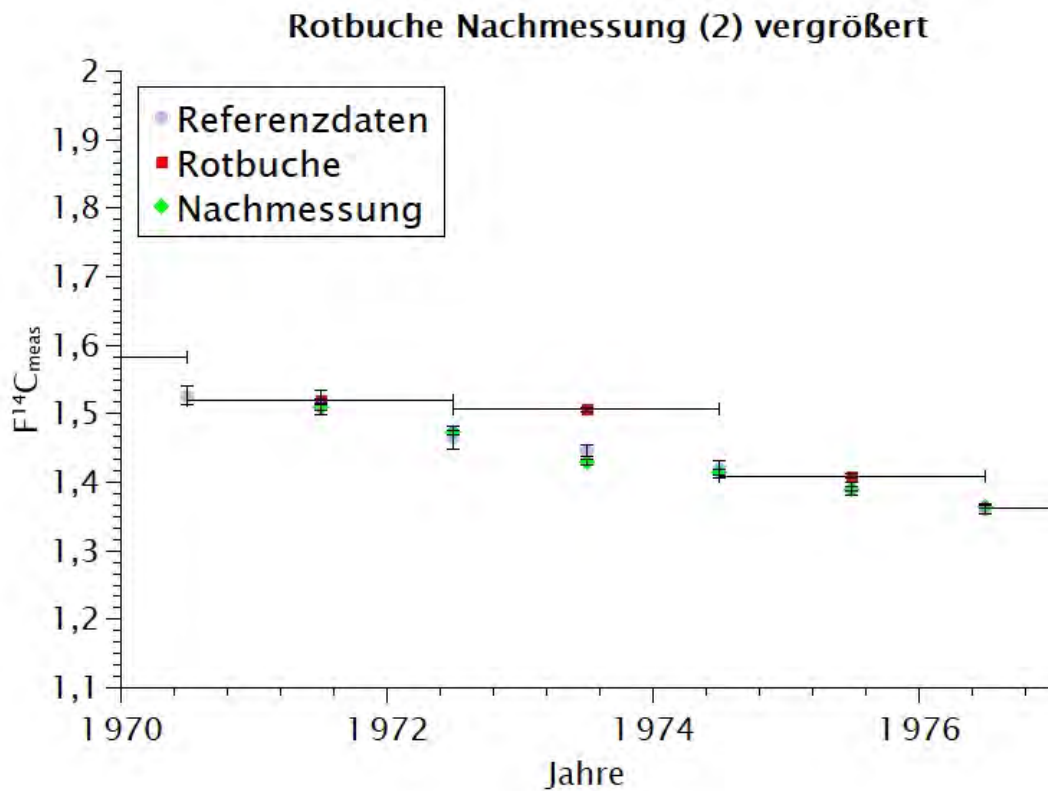


Abbildung 32: Ausschnitt der Messergebnisse für die Jahre 1971 bis 1976

6 Ausblick

Die Ergebnisse der H-3 Messung haben gezeigt, dass keine über den natürlich vorkommenden Tritiumgehalten erhöhten Werte gemessen wurden. Ein gegenwärtiger Einfluss der Emissionen der Schachanlage Asse II hinsichtlich H-3 auf die untersuchten Gewässer ist demnach nicht festzustellen. H-3 besitzt eine Halbwertszeit von rund 12 Jahren, weswegen auch ein Einfluss in der kürzeren Vergangenheit weniger wahrscheinlich ist. Aussagen über die Einlagerungsphase von 1967-1978 können anhand der Ergebnisse nicht getroffen werden. Zukünftig könnten die erhobenen Daten als Messungen des gegenwärtigen Zeitraums dienen, um eine eventuelle Umweltüberwachung zu dokumentieren.

Die Ergebnisse der C-14 Analyse lassen hingegen Aussagen über die Vergangenheit zu, wenngleich sie unter der Berücksichtigung der schon angesprochenen Faktoren zu sehen sind. Da die Ergebnisse der Schwarzkiefer im Bereich des Bombenpeaks mit hohen systematischen Unsicherheiten behaftet sind, befassen sich die folgenden Aussagen vorrangig mit den Daten der Rotbuche, welche über weite Teile dem Verlauf der Referenzdaten der nördlichen Hemisphäre folgen.

Bis auf die Jahre 1967 und 1973 konnten innerhalb des Zeitraums der Einlagerungsphase keine nennenswerten Abweichungen von den Referenzdaten festgestellt werden, weswegen ein möglicher Einfluss der Emissionen der Schachanlage Asse II auf die Standorte der Bäume unwahrscheinlich scheint.

Gerade die Ergebnisse aus der jüngeren Vergangenheit zeigen, dass die C-14 Gehalte nicht über den natürlich vorkommenden Gehalten liegen, und ein zusätzlicher Einfluss zu dem natürlichen Hintergrund in diesen Jahren weniger wahrscheinlich ist.

Eine erste Nachmessung der C-14 Gehalte bestätigt die Ergebnisse, sodass ein Einfluss der Emissionen der Schachanlage Asse II auf den Standort der Rotbuche unwahrscheinlich erscheint, und es sich zumindest bei dem ersten Messdurchlauf des Jahres 1973 um einen Messfehler handelt.

Für zukünftige Messungen ist festzuhalten, dass eine Beprobung einzelner Jahre (zumindest im Einlagerungszeitraum der Asse) der Mischprobenbildung vorzuziehen ist. Idealerweise würde sich wieder eine Rotbuche eignen, um die Vergleichbarkeit mit dieser Arbeit zu gewährleisten. Die Auswahl sollte weiterhin auf einen Baum in der Hauptwindrichtung West-Süd-West fallen, also einem Standort in Richtung Ost-Nord-Ost ausgehend von dem Diffusor der Schachanlage Asse II. Bei der Entfernung wäre zu beachten, dass sie so gering wie möglich gehalten wird. Um den Effekt der C-14 Verdünnung zu vermeiden, sollte ein Standort ohne Straßennähe gewählt werden.

Literatur

- [1] Bundesamt für Strahlenschutz. “Systembeschreibung Bewetterung der Schachtanlage ASSE II”. In: (2009).
- [2] Bundesgesellschaft für Endlagerung. *Strahlenschutz und Umgebungsüberwachung im Bereich der Schachtanlage ASSE II, Jahresbericht 2020*. 2022.
- [3] Bundesamt für Strahlenschutz. *Zeittafel Asse*. 2013.
- [4] Bundesrepublik Deutschland. *Gesetz zur Beschleunigung der Rückholung radioaktiver Abfälle und der Stilllegung der Schachtanlage Asse II*. 2013. URL: www.bundesanzeiger-verlag.de.
- [5] IAEA. *Environmental Isotopes in the hydrological cycle, principles and application vol. 1*. 2000.
- [6] Jukka Lehto und Xiaolin Hou. *Chemistry and Analysis of Radionuclides*. WILEY-VCH Verlag Co. KGaA, 2011. ISBN: 9783527303175.
- [7] Kristina Eriksson Stenström u. a. *A guide to radiocarbon units and calculations*. 2011.
- [8] *Radiocarbonmethode*. URL: <https://de.wikipedia.org/wiki/Radiokarbonmethode>.
- [9] Hans-Arno Synal, Martin Stocker und Martin Suter. “MICADAS: A new compact radiocarbon AMS system”. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms* 259.1 (2007). Accelerator Mass Spectrometry, S. 7–13. ISSN: 0168-583X. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.nimb.2007.01.138>. URL: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0168583X07001942>.
- [10] Bundesministerium für Umwelt. *Verfahren zur Bestimmung der Tritiumkonzentration in Oberflächenwasser*. 1993.
- [11] Deutsches Institut für Normung e. V. *DIN ISO 11929*. 2014.
- [12] Quan Hua u. a. “ATMOSPHERIC RADIOCARBON FOR THE PERIOD 1950-2019”. In: *Radiocarbon* 64 (4 Aug. 2022), S. 723–745. ISSN: 00338222. DOI: 10.1017/RDC.2021.95.
- [13] Paula J. Reimer u. a. “The IntCal20 Northern Hemisphere Radiocarbon Age Calibration Curve (0-55 cal kBP)”. In: *Radiocarbon* 62 (4 Aug. 2020), S. 725–757. ISSN: 00338222. DOI: 10.1017/RDC.2020.41.
- [14] Axel Schmidt u. a. “Overview of tritium records from precipitation and surface waters in Germany”. In: *Hydrological Processes* 34 (6 März 2020), S. 1489–1493. ISSN: 10991085. DOI: 10.1002/hyp.13691.
- [15] Projektträger Karlsruhe u. a. *Arbeitsgruppe Optionen-Rückholung (AGO)*.
- [16] National Oceanic und Atmospheric Administration. “*statistic_d1091926_global-atmospheric-carbon-dioxide-concentration-1959-2022*”. In: ()

- [17] Umweltbundesamt. “Gesundheitliche Bewertung von Kohlendioxid in der Innenraumluft”. In: *Bundesgesundheitsblatt - Gesundheitsforschung - Gesundheitsschutz* 51 (11 Nov. 2008), S. 1358–1369. ISSN: 14369990. DOI: 10.1007/s00103-008-0707-2.
- [18] Bundesregierung. “Allgemeine Verwaltungsvorschrift zu § 47 Strahlenschutzverordnung”. In: ().

Anhang

Tabelle 10: Einwage der benötigten Chemikalien bei einer Probenmenge von 50 ml

Probe	Einwage NaOH[mg]	Einwage KMnO4[mg]
1:OT _O	141,70	53,42
2:OT _T	127,20	56,44
3:UT _O	119,50	85,86
4:UT _T	108,52	81,97
5:Skoda _O	103,21	87,13
6:Skoda _T	119,46	85,43

Tabelle 11: Daten zu Abbildung 16

Probe	[Bq/g]	Counts CH 50-200	Unsicherheit
Blank	0	372,3333333	19,29594085
Kalibration 1	0,40754	444,3333333	21,07921567
Kalibration 2	0,01482	568,6666667	23,84673283
Kalibration 3	0,02011	631,3333333	25,12634739
Kalibration 4	0,02794	723	26,88865932
Kalibration 5	0,03615	883,3333333	29,72092417

Tabelle 12: C-14 Referenzdaten, Quelle: [12]

Jahr	$F^{14}C_{exp}$	Jahr	$F^{14}C_{exp}$	Jahr	$F^{14}C_{exp}$
1899	0,987986169	1940	0,979114918	1980,5	1,278708935
1900	0,988105686	1941	0,978634014	1981,5	1,267821627
1901	0,988225218	1942	0,97815298	1982,5	1,247896215
1902	0,988245342	1943	0,977671816	1983,5	1,234994387
1903	0,988066591	1944	0,977290447	1984,5	1,21706851
1904	0,987788337	1945	0,976908973	1985,5	1,210185615
1905	0,987410545	1946	0,976627343	1986,5	1,197274488
1906	0,986933177	1947	0,976345631	1987,5	1,189382951
1907	0,986455679	1948	0,975963861	1988,5	1,177470815
1908	0,986077545	1949	0,975781959	1989,5	1,168570149
1909	0,985699304	1950	0,9755	1990,5	1,156652579
1910	0,985519992	1950,5	0,974058911	1991,5	1,147747206
1911	0,985340623	1951,5	0,974176743	1992,5	1,142860279
1912	0,985260737	1952,5	0,974294589	1993,5	1,133951049
1913	0,985180817	1953,5	0,976413297	1994,5	1,125039647
1914	0,985001298	1954,5	0,977531958	1995,5	1,120148148
1915	0,984821721	1955,5	1,013674169	1996,5	1,112238528
1916	0,984442908	1956,5	1,040818031	1997,5	1,108350026
1917	0,984163589	1957,5	1,081981151	1998,5	1,106472336
1918	0,983784576	1958,5	1,154186106	1999,5	1,099564147
1919	0,983405456	1959,5	1,297490151	2000,5	1,09265427
1920	0,983026229	1960,5	1,229560686	2001,5	1,087755203
1921	0,982746547	1961,5	1,22670525	2002,5	1,081848565
1922	0,982566444	1962,5	1,38909878	2003,5	1,075940481
1923	0,98228661	1963,5	1,83098756	2004,5	1,072044181
1924	0,982006693	1964,5	1,899328429	2005,5	1,06613345
1925	0,981626997	1965,5	1,785344249	2006,5	1,064248705
1926	0,981147484	1966,5	1,710410382	2007,5	1,05833557
1927	0,980767562	1967,5	1,637462597	2008,5	1,055442292
1928	0,980287801	1968,5	1,578528502	2009,5	1,0525483
1929	0,980007401	1969,5	1,562681672	2010,5	1,047638901
1930	0,979826677	1970,5	1,526781328	2011,5	1,043735766
1931	0,979845437	1971,5	1,516939983	2012,5	1,038824083
1932	0,979864186	1972,5	1,464981768	2013,5	1,030888064
1933	0,979982721	1973,5	1,4461049	2014,5	1,027989273
1934	0,980201076	1974,5	1,4191997	2015,5	1,023073856
1935	0,980319651	1975,5	1,390281791	2016,5	1,020173388
1936	0,98033841	1976,5	1,360353654	2017,5	1,016264005
1937	0,980157473	1977,5	1,340451576	2018,5	1,012353661
1938	0,979976478	1978,5	1,332586103	2019,5	1,008442356
1939	0,979595691	1979,5	1,295615039		

Tabelle 13: C-14 Messdaten, RB=Rotbuche, SK=Schwarzkiefer

Jahr	RB $F^{14}C_{meas}$	RB Unsicherheit	SK $F^{14}C_{meas}$	SK Unsicherheit
1900±1	0,9810	0,0026	1,0064	0,0041
1925±1	0,9765	0,0025	0,9746	0,0041
1950±1	0,9654	0,0025	0,9642	0,0041
1955±1	0,9715	0,0025	0,9823	0,0041
1960±1	1,1810	0,0029	1,2330	0,0044
1963-1	1,6382	0,0038	1,2076	0,0043
1965-1	1,6866	0,0039	1,1396	0,0043
1967-1	1,7766	0,0040	1,5892	0,0048
1969-1	1,5823	0,0037	1,2480	0,0044
1971-1	1,5185	0,0036	1,7763	0,0050
1973-1	1,5062	0,0035	1,4538	0,0046
1975-1	1,4088	0,0034	1,4556	0,0046
1977±1	1,3612	0,0033	1,3208	0,0045
1980±1	1,2611	0,0031	1,3285	0,0045
1983±1	1,2269	0,0030	1,2798	0,0044
1987±1	1,1973	0,0030	1,1826	0,0043
1994±1	1,1301	0,0029	1,1238	0,0042
2001±1	1,0870	0,0028	1,0826	0,0042
2008±1	1,0496	0,0027	1,0469	0,0041
2015-1	1,0197	0,0027	1,0176	0,0041

Tabelle 14: C-14 Messdaten Nachmessung, RB=Rotbuche

Jahr	RB (1) $F^{14}C_{meas}$	Unsicherheit	RB (2) $F^{14}C_{meas}$	Unsicherheit
1971	1,5232	0,0040	1,5090	0,0044
1972	1,4814	0,0037	1,4726	0,0038
1973	1,4301	0,0045	1,4297	0,0038
1974	1,4170	0,0039	1,4148	0,0038
1975	1,3928	0,0034	1,3904	0,0037
1976	1,3521	0,0037	1,3651	0,0037