

Analytik und Radioökologie des Strontium-90

**Dem Fachbereich Chemie der Universität Hannover
zur Erlangung des Grades**

**Doktor der Naturwissenschaften
Dr. rer. nat.**

vorgelegte Dissertation

von

**Dipl.-Chem. Martin F. Filß
geboren am 10. September 1968 in Braunschweig**

Danksagung

Diese Arbeit wurde in der Zeit von Juli 1995 bis Dezember 1997 am Fachbereich Chemie der Universität Hannover unter Leitung von Herrn Prof. Dr. G. Wunsch in Zusammenarbeit mit Herrn Prof. Dr. R. Michel vom Zentrum für Strahlenschutz und Radioökologie Hannover angefertigt.

Bei Herrn Prof. Dr. G. Wunsch möchte ich mich für die freundliche Betreuung meiner Arbeit bedanken.

Von Herrn Prof. Dr. R. Michel erhielt ich mit der Themenstellung die Möglichkeit, meine fachlichen Kenntnisse zu vertiefen und in einem weiteren Zusammenhang zu betrachten. Für die Freiheit, die mir bei der Durchführung meiner Arbeit gewährt wurde, die ständige Diskussionsbereitschaft und die intensive Durchsicht meines Manuskripts möchte ich ihm herzlich danken.

Herrn Dr. J. Handl danke ich für seine Bemühungen und Tätigkeiten in der Ukraine und in Chile, durch die mir eine große Auswahl an Proben zur Verfügung stand.

Mein Dank gilt ferner Frau Prof. Dr. P. Schuller von der Universidad Austral de Chile für die interessanten Diskussionen und Anregungen insbesondere zur ökologischen Interpretation der chilenischen und antarktischen Proben.

Herrn Dr. D. Jakob danke ich für die kritische Durchsicht des Manuskripts und die jederzeitige Diskussionsbereitschaft. Den Mitarbeiterinnen und Mitarbeitern des Zentrums für Strahlenschutz und Radioökologie, die in vielen praktischen Dingen und durch ein angenehmes Arbeitsklima zu der Durchführung beitrugen, möchte ich herzlich danken.

Für die interessanten Diskussionen und Anregungen zu bodenkundlichen Themen danke ich Herrn Prof. Dr. W. R. Fischer und Herrn Prof. Dr. J. Böttcher vom Institut für Bodenkunde.

Herrn Dr. W. Städe und Herrn Dr. D. Reents vom Niedersächsischen Landesamt für Ökologie danke ich für die experimentelle Unterstützung meiner Arbeit.

Herzlicher Dank gilt den zahlreichen Helferinnen und Helfern, die mir bei der Durchsicht dieses Manuskripts geholfen haben.

Diese Arbeit wurde unterstützt von
dem Instituto Antartico Chileno,
der State Academy of Agriculture and Ecology of Ukraine
und der Volkswagenstiftung.

1 EINFÜHRUNG	2
1.1 Exposition des Menschen	3
1.2 Quellen in der Biosphäre	6
1.2.1 Natürlicher ^{87}Sr -Eintrag in die Biosphäre	6
1.2.2 Anthropogene ^{87}Sr -Quellen in der Biosphäre	7
1.2.3 Einträge durch Kernkraftwerke	7
1.2.4 Eintrag durch Wiederaufarbeitungsanlagen	8
1.2.5 Unfälle in kerntechnischen Anlagen	9
1.2.6 ^{87}Sr -Eintrag in die Atmosphäre durch Kernwaffenexplosionen	11
1.3 Deposition auf der Erdoberfläche	13
1.4 Migration im Boden	15
1.5 Strahlenexposition durch Strontium-90 in der Nahrung	27
2 BISHERIGE METHODEN ZUR ERFASSUNG DER $^{89/90}\text{Sr}$-AKTIVITÄT	31
2.1 Probeaufbereitung und Aufschluß	32
2.2 Radiochemische Trennung	33
2.3 Radio- und massenspektrometrische Detektionstechniken	37
3 AUFGABENSTELLUNG	40
4 EXPERIMENTELLES	41
4.1 Entnahme und Vorbereitung der Proben	41
4.2 Radiochemische Abtrennung und Reinigung des Strontiums	42
4.3 Aktivitätsmessung und -berechnung	45
4.3.1 Berechnung der ^{87}Sr -Aktivität	46
4.3.2 Berechnung der ^{87}Sr -Aktivität	49
4.4 Bestimmung der statistischen Kennwerte des Verfahrens	50
4.4.1 Berechnungsgrundlage für das hochenergetische Fenster	51
4.4.2 Berechnungsgrundlage für das niederenergetische Fenster	54
4.5 Qualitätssicherung	56
4.5.1 Kalibration der Meßgeräte	56
4.5.2 Blank-Messungen	58
4.5.3 Messung von Standard- und Ringanalyse-Proben	62
4.5.4 Wiederholungen von Messungen	66

4.6 Diskussion	67
4.6.1 Optimierung der chemischen Ausbeute	67
4.6.2 Einfluß der Meßbedingungen auf die ^{90}Sr -Kenngrößen	70
4.6.3 Einfluß der Meßbedingungen auf die ^{89}Sr -Kenngrößen	78
4.6.4 Verwendung der indirekten ^{90}Sr -Bestimmung	81
4.6.5 Vergleich mit einer massenspektrometrischen Methode	84
4.6.6 Nachweisgrenzen für frisch kontaminierte und low-level Proben	85
5 ERFASSUNG DER ^{90}Sr-AKTIVITÄT VON BODENPROFILEN	88
5.1 Globale Kontamination durch den Kernwaffen-Fallout	88
5.1.1 Berechnung der Immissionen	88
5.1.2 Spezifische Aktivitäten und Depositionen der einzelnen Regionen	90
5.1.3 Antarktische Proben	92
5.1.4 Westpatagonien	99
5.1.5 Die Seenregion	101
5.1.6 Das Profil Anakena, Osterinsel	104
5.1.7 Vergleichende Betrachtung	105
5.2 Kontamination durch den Unfall von Tschernobyl in der Nordukraine	109
5.2.1 Der Background durch die Kernwaffentests	110
5.2.2 Profile aus der Region Korosten	114
5.3 Zusammenfassende Betrachtung	120
6 ZUSAMMENFASSUNG	122
7 AUSBLICK	125
8 LITERATURVERZEICHNIS	129
9 ANHANG	137
9.1 Verwendete Radiostandards und Chemikalien	137
9.2 Verwendete Geräte	137
9.3 Symbole und Abkürzungen	138
9.4 ^{90}Sr -Aktivität der chilenischen und antarktischen Bodenprofile	140
9.5 ^{90}Sr -Aktivität der ukrainischen Bodenprofile	144
9.6 Energiekalibration und Quenchkurve	148
9.7 Flüssigzintillations-Spektren	150

Kurzfassung

Eine schnelle Methode zur Erfassung der $^{89/90}\text{Sr}$ -Aktivität in Bodenproben wurde entwickelt. Sie stellt eine Kombination aus Fällungsreaktionen zur Abtrennung der Matrix und Extraktionschromatographie zur radiochemischen Reinigung dar. Mittels Flüssigszintillations-Spektrometrie wird Strontium-90 über den Aufbau des Yttrium-90 im hochenergetischen Teil des Spektrums und Strontium-89 in einem niederenergetischen Fenster bestimmt. Die Nachweisgrenze (sinngemäß nach DIN 25 482) für 100 g beträgt $0,2 \text{ Bq kg}^{-1}$. Nach 24 h können bereits $4,2 \text{ Bq kg}^{-1}$ Strontium-90 und abhängig von der ^{90}Sr -Kontamination der Probe 1 bis 10 Bq kg^{-1} Strontium-89 nachgewiesen werden. Die neue Methode wurde exemplarisch zur Untersuchung der ^{90}Sr -Immissionen durch die oberirdischen Kernwaffentests in der Südhemisphäre und der Kontamination der Nordukraine durch den Unfall von Tschernobyl verwendet.

1 Einführung

Mit einem Gewichtsanteil von 0,014 % in den oberen 16 km gehört Strontium zu den weniger häufigen Bestandteilen der Erdkruste. Neben dem Hauptisotop ^{88}Sr (82,58 %) existieren drei weitere stabile Isotope ^{84}Sr (0,56 %), ^{86}Sr (9,86 %), ^{87}Sr (7,00 %). Ferner führt die spontane Spaltung des Uran-238 zur Produktion der β -Strahler Strontium-89 und Strontium-90 mit Spaltausbeuten von 6,8 % [Ru56].



Abb. 1 : Zerfallsschema des Strontium-89 und Strontium-90.

Wie in Abb. 1 dargestellt, zerfällt das aufgrund seiner Halbwertszeit von 50,5 Tagen kürzerlebige Strontium-89 mit einer Maximalenergie von 1490 keV in das stabile Yttrium-89 [Br86, Se81]. Dieser Übergang weist eine, wenn auch geringe, Wahrscheinlichkeit (0,95 %) für die Emission eines γ -Quants auf. Demgegenüber erfolgen alle Zerfälle der Isobaren 90 ab dem Strontium-90 strahlungslos. Die Halbwertszeit für den Zerfall dieses Isotops in das Yttrium-90 beträgt 28,5 Jahre und die Maximalenergie 546 keV. Das instabile Tochternuklid geht mit einer Halbwertszeit von 2,67 Tagen in das stabile Zirkonium-90 über. Mit bis zu 2,28 MeV ist die beim Zerfall abgegebene Energie deutlich höher als die der Strontiumnuklide.

Obwohl keine essentiellen biologischen Funktionen des Elements Strontium für den Menschen bekannt sind, wird es vom Körper aufgenommen. Strontium folgt dem Homologen Calcium in den verschiedenen Stoffwechselprozessen und wird wie dieses in die Knochen eingebaut [UN82]. Dort schädigt radioaktives Strontium durch den Zerfall das angrenzende Gewebe, insbesondere das rote Knochenmark. Seit der Entdeckung der künstlichen Kernspaltung 1939 sind große Mengen der beiden β -Strahler produziert worden. Bei der thermischen Spaltung von Uran-235 entsteht Strontium-90 mit einer Isobarenausbeute von 5,84 %. Wegen der hohen Spaltausbeute und der hohen Radiotoxizität ist anthropogenes Strontium-90 eine gefährliche Folge von Kernwaffenexplosionen und von nuklearen Störfällen.

Um eine Gefährdung der Bevölkerung frühzeitig zu erkennen und mögliche Risiken minimieren zu können, ist sein radioökologisches Verhalten deshalb seit den frühen sechziger Jahren intensiv untersucht worden.

Die für die Erfassung der Radiostrontium-Aktivität in Umweltproben verwendete Analytik ist zeitaufwendig und erfordert die Handhabung aggressiver Chemikalien. Nach dem Unfall von Tschernobyl wurde ein Bedarf für eine schnelle Analytik festgestellt, um im Ereignisfall Entscheidungen zum Schutz der Bevölkerung frühzeitig treffen zu können. Ferner konnte als Folge des Unfalls von Tschernobyl diese großflächige Immission weiter Teile Europas und das ökologische Verhalten des Radiostrontium nach einem kerntechnischen Unfall studiert werden.

1.1 Exposition des Menschen

Quellen ionisierender Strahlung sind sowohl anthropogenen als auch natürlichen Ursprungs und in der Umwelt weit verbreitet. Um den Transfer von Radionukliden von der Quelle zum Menschen darzustellen, werden häufig Kompartiment- oder Boxmodelle verwendet. Ohne den physikalischen oder chemischen Zustand einer Substanz genau zu definieren oder die beteiligten Prozesse zu kennen, wird in diesen lediglich der Übergang zwischen den einzelnen Kompartimenten betrachtet. Die wichtigsten Wege, auf denen Radionuklide zum Menschen gelangen, sind in Abb. 2 dargestellt. Über die unterschiedlichen Pfade führen sie zur externen und internen Exposition des Menschen.

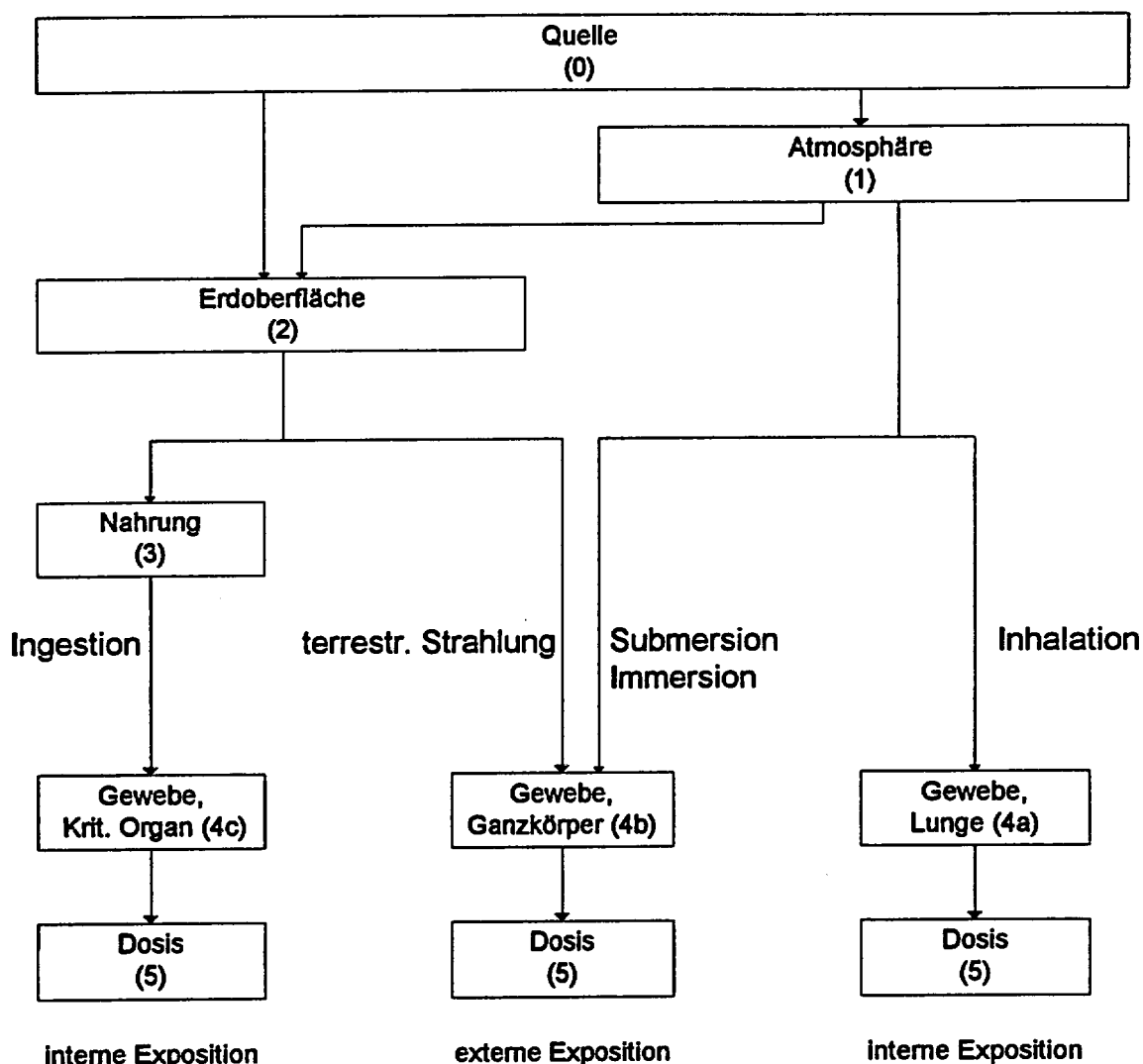


Abb. 2 : Pfade, die zur internen und externen Exposition des Menschen führen.

Zusätzlich zur Inhalation und Ingestion radioaktiver Stoffe tragen die kosmische und terrestrische Strahlung zur natürlichen Exposition des Menschen bei. Darüber hinaus wird die jährliche Dosis durch anthropogene Quellen wie die medizinische Diagnostik signifikant erhöht.

Die natürliche externe Exposition wird zum einen durch die energiereiche kosmische Strahlung verursacht. Die Atmosphäre schirmt diese Quelle kontinuierlicher Teilchen-Strahlung nicht vollständig ab. An Orten, die nur durch eine geringere Luftschicht von der kosmischen Strahlung geschützt werden, wie beispielsweise auf Bergen, ist ihr Einfluß am höchsten. Zum anderen tragen die primordialen Nuklide der Pedosphäre über die terrestrische Strahlung zur natürlichen externen Exposition bei. Die bei ihrem Zerfall emittierten γ -Quanten

führen zu einer weitgehend homogenen Ganzkörperexposition. Die mittlere jährliche Dosis in Deutschland beträgt etwa 0,3 mSv für die kosmische beziehungsweise 0,5 mSv für die terrestrische externe Strahlenexposition (Tab. 1). Gelangen radioaktive Stoffe in die Atmosphäre und werden vom Menschen eingeatmet, so können sie in der Lunge zerfallen. Über die Inhalation wird daher vor allem die Lunge exponiert. Der Zerfall des ubiquitären Radons und seiner Folgeprodukte in der Lunge führt je nach Aufenthaltszeit in Gebäuden zu einer jährlichen Exposition von etwa 1,4 mSv. Von der Erdoberfläche gelangen Radionuklide mit dem Trinkwasser und der Nahrung in den Körper. Über diesen Ingestionspfad exponieren sie nuklidspezifische kritische Organe. Die mittlere jährliche Dosis durch die innere Bestrahlung beträgt in der Bundesrepublik Deutschland etwa 0,5 mSv. Die Summe aller natürlichen Strahlungsquellen führt hierzulande daher zu einer jährlichen Dosis von etwa 2,4 mSv (Tab. 1).

Tab. 1 : Mittlere effektive Dosis der Bevölkerung der Bundesrepublik Deutschland im Jahre 1992 [BI92].

Expositionsquelle	mittlere effektive Dosis (mSv a ⁻¹)
kosmische Strahlung	0,3
terrestrische Strahlung	0,4
Inhalation von Radon	1,4
Ingestion von Radionukliden	0,3
Summe der natürlichen Strahlenexposition	2,4

Nach einer Emission von radioaktiven Aerosolen erreichen größere Partikel durch Sedimentation die Erdoberfläche. Kleinere werden mit der beginnenden Kondensation einer Wolke in Wassertröpfchen eingeschlossen (Rainout) oder von fallenden Tropfen adsorbiert (Washout) und mit diesen auf der Erdoberfläche abgelagert. Aufgrund der gegenüber Wassertropfen gleicher Masse wesentlich höheren Oberfläche von Schneeflocken reinigen diese die Atmosphäre sehr effektiv (Snowout).

Nach einem kerntechnischen Unfall kann der Mensch durch die γ -Emissionen einer über ihn hinwegziehenden Wolke bestrahlt werden (γ -Submersion). Der gesamte Körper wird in diesem Fall exponiert. Befindet er sich unmittelbar innerhalb einer radioaktiv kontaminierten Wolke, so tragen auch die β -Strahler zur Exposition bei (γ - und β -Immersion). Aufgrund der geringeren Reichweite der Elektronen im Gewebe werden durch die β -Zerfälle vor allem die oberen Hautschichten bestrahlt. Auf der Erdoberfläche abgelagerte γ - und hochenergetische β -

Strahler tragen wie die Submersion und Immersion zur externen Strahlenexposition bei. Im kerntechnischen Normalbetrieb ist der anthropogene Anteil an der externen Exposition gering.

Um die in Abb. 2 aufgeführten Expositionspfade quantitativ zu erfassen, wird der Transport entlang dieser durch empirisch ermittelte Koeffizienten beschrieben. Der Transferfaktor [Li87]

$$T_{12} = \frac{\text{Konzentration im Zielkompartiment 2}}{\text{Konzentration im Quellkompartiment 1}} \quad (1)$$

ergibt sich aus dem Verhältnis der Aktivitätskonzentration in einem Zielkompartiment zu der Aktivitätskonzentration in einem Quellkompartiment. Im Gleichgewicht ist dieser Quotient ein Maß für die Akkumulation ($T > 1$) oder die Rückhaltung ($T < 1$) in dem Quellkompartiment. Beispielsweise wird für den Übergang von Strontium aus kontaminiertem Boden in die Pflanze T_{23} die Konzentration des Radionuklides in der Pflanze durch diejenige im Boden dividiert. In der 30 km-Zone um Tschernobyl wurde an drei Standorten für mehrere Pflanzen der Transferfaktor Boden-Pflanze mit 0,2 bestimmt [Lu95].

1.2 Quellen in der Biosphäre

Um die Strahlenexposition durch ein Radionuklid wie beispielsweise Strontium-90 abzuschätzen, ist es insbesondere notwendig die Größe und Art der unterschiedlichen natürlichen und anthropogenen Quellen abzuschätzen.

1.2.1 Natürlicher ^{90}Sr -Eintrag in die Biosphäre

Strontium-90 wird natürlich fast ausschließlich durch die spontane Spallation des Uran-238 ($\lambda_{\text{sf, U-238}} = 2,44 \times 10^{-24} \text{ s}^{-1}$) gebildet. Der Anteil des ubiquitären Urans in der Erdkruste beträgt etwa 3×10^{-6} . Ein kg Boden enthält daher etwa $7,6 \times 10^{18}$ Atome Uran-238. Dies entspricht einer Aktivität für den spontanen Zerfall von $1,9 \times 10^{-5} \text{ Bq}$. Da Strontium-90 bei diesem Zerfall mit einer Isobarenausbeute von $6,8 \pm 0,6 \%$ [Ru56] gebildet wird, ist eine spezifische Umweltaktivität dieses Nuklids von $1,3 \times 10^{-6} \text{ Bq kg}^{-1}$ zu erwarten. Diese spezifische Aktivität kann mit den üblichen radioanalytischen Methoden nicht erfaßt werden. Eine Erzlagerstätte, die mit 1 % einen hohen Urananteil enthält, weist nach den obigen

Überlegungen im radiochemischen Gleichgewicht eine spezifische ^{90}Sr -Aktivität von etwa $4,2 \times 10^{-3} \text{ Bq kg}^{-1}$ auf. Selbst in diesem Ausnahmefall ist es kaum möglich, die Aktivität des Strontium-90 zu detektieren. Im allgemeinen gilt daher, daß keine natürliche Umweltradioaktivität dieses Nuklids nachgewiesen werden kann.

1.2.2 Anthropogene ^{90}Sr -Quellen in der Biosphäre

Demgegenüber sind seit der Entdeckung der künstlichen Kernspaltung im Jahre 1939 weitaus größere Mengen des β -Strahlers in die Umwelt gelangt. Bei der Spaltung des Uran-235 mit thermischen Neutronen wird Strontium-90 beispielsweise zu 5,84 % gebildet. Wie aus Tab. 2 ersichtlich, variiert die Spaltausbeute jedoch zwischen etwa 2,1 und 7,7 % je nach Spaltstoff und -bedingungen.

Tab. 2 : Spaltausbeute an Strontium-90 [UN83].

Spaltstoff	prozentuale Spaltausbeute an Strontium-90 durch	
	thermische Spaltung	schnelle Spaltung
^{235}U	5,84	5,21
^{239}Pu	2,12	2,05
^{238}U	---	3,20
^{232}Th	---	7,66
Mittelwert	3,50	

1.2.3 Einträge durch Kernkraftwerke

Durch Unfälle in kerntechnischen Anlagen, aber auch durch Emissionen im Normalbetrieb von Kraftwerken und Wiederaufarbeitungsanlagen führt die zivile Nutzung der Kernenergie zu regional und zeitlich stark schwankenden ^{90}Sr -Quellen.

In Kernkraftwerken wird Strontium-90 durch die Spaltung des Brennstoffes produziert. Der gebildete Anteil variiert in Abhängigkeit von der Brennstoffzusammensetzung, dem Reaktortyp und dem erreichten Abbrand. In Tab. 2 finden sich die Ausbeuten für die unterschiedlichen Spaltungsprozesse. Bei dem vergleichsweise hohen Abbrand in einem Druckwasserreaktor ist die angenommene ^{90}Sr -Produktion ein PBq (10^{15} Bq) pro t Brennstoff. Dies entspricht energiebezogen $1,08 \times 10^7 \text{ Bq (kWh)}^{-1}$.

Geringe Mengen des Radionuklids gelangen durch Defekte in der Brennstoffhülle in die Kühlflüssigkeit. In der Kühlmittelreinigung oder einem folgenden Kühlmittelverlust kann Strontium-90 über den Kamin oder die Abwasserabgabe die Umwelt erreichen. Der Anteil des Gesamtinventars an Strontium-90, der von Kernkraftwerken an die Umwelt abgegeben wurde, weist je nach Bauart und Rückhaltevorrückrichtungen beträchtliche Unterschiede auf. Die gasförmigen ^{90}Sr -Emissionen der deutschen Kernkraftwerke betrugen im Jahre 1990 4,9 kBq. Demgegenüber wurden 5,6 MBq ^{90}Sr in flüssiger Form an die Umwelt abgegeben. Der überwiegende Anteil des von Kernkraftwerken emittierten Strontium-90 gelangte folglich in flüssiger Form in die Umwelt [Sc96].

1.2.4 Eintrag durch Wiederaufarbeitungsanlagen

In Wiederaufarbeitungsanlagen wird der Brennstoff aufgelöst, um nicht abgebranntes Uran und Plutonium für den erneuten Einsatz zu gewinnen. Das gesamte Radiostrontium und die anderen Spalt- und Aktivierungsprodukte gehen in die Abfallströme über. Die Aktivitäten der einzelnen Nuklide in gasförmigen oder flüssigen Abgaben der Wiederaufarbeitungsanlagen sind dokumentiert [UN82, Sc96]. Für drei europäische Wiederaufarbeitungsanlagen ist die ^{90}Sr -Abgabe in Tab. 3 aufgeführt.

Der Anteil gasförmiger Abgaben bezogen auf das Gesamtinventar an Strontium-90 beläuft sich auf etwa 3×10^{-8} . Die Erfahrungen beim Betrieb der Wiederaufarbeitungsanlagen Windscale und bei den Nuclear Fuel Services plant sind diesbezüglich ähnlich. Strontium gelangt überwiegend in flüssiger Form in die Umwelt. Das auf diese Weise ausgetretene Inventar beträgt etwa 0,2 % des Strontium-90 bei der britischen Anlage in Windscale. In dem nicht mehr in Betrieb befindlichen Nuclear Fuel Services plant in den USA wurde mit 5×10^{-6} ein wesentlich geringerer Anteil Strontium-90 in flüssiger Form an die Umwelt abgegeben.

Mehrere Unfälle an verschiedenen kerntechnischen Anlagen haben zu Radionuklidfreisetzungen geführt, die sich hinsichtlich ihrer absolut freigesetzten Aktivität und der physikalischen Form der Freisetzung stark unterscheiden.

Tab. 3 : Jährlich an die Umwelt abgegebene ^{90}Sr -Aktivität während der Jahre 1975 bis 1979 [UN82] und 1987 bis 1991 [Sc96].

Jahr	Windscale (ehem. Sellafield), UK		La Hague, FR	Marcoule, FR
	gasförmig (GBq)	flüssig (TBq)	flüssig (TBq)	flüssig (TBq)
1975	---	466	75	0,93
1976	---	381	40	0,41
1977	41	427	73	0,37
1978	48	597	140	0,88
1979	9	250	---	---
1987	2,3	15	57	5,3
1988	0,8	10	40	4,9
1989	0,59	9,2	29	4,5
1990	0,48	4,2	16	2,7
1991	0,37	4,1	30	1,9

1.2.5 Unfälle in kerntechnischen Anlagen

So kam es in Windscale, Großbritannien am 10. Oktober 1957 zu einer Überhitzung des Reaktors, in dessen Verlauf 13,5 PBq ^{90}Sr freigesetzt wurden. Der sich entwickelnde Brand des Graphitmoderators führte zu einer Emission von etwa 20 kg Aerosolen von bis zu 700 μm Durchmesser [Ou93].

Der Störfall am 28. März 1979 im Kernkraftwerk in Three Miles Island, USA führte zu hohen Iodemissionen. Durch die Lüftungsanlage des Reaktorhilfsgebäudes gelangten etwa $5,6 \times 10^{11}$ Bq gasförmiges Iod-131 in die Umwelt. Eine Emission von Strontium oder anderen refraktären Elementen wurde nicht nachgewiesen.

Durch einen nicht planmäßig durchgeführten Versuch im Kernkraftwerk Tschernobyl erfolgte am 26. April 1986 im Block 4 eine positive Leistungsexkursion [UN88]. Dies führte zur Explosion des Druckgefäßes und daran anschließend zum Brand des Graphitmoderators. Im Verlauf der folgenden zehn Tage wurde etwa 4% des Gesamtinventars des Brennstoffs an die Atmosphäre abgegeben [Kr96]. Durch die hohe Druckwelle der Explosion wurden Teile des Cores zerstört und bis zu über 100 g schwere Fragmente des Uranoxidbrennstoffs hinausgeschleudert. Diese Partikel fielen auf dem Reaktordach und in der näheren Umgebung des Kraftwerks nieder. Die bei der Leistungsexkursion freigesetzte Energie und der sich

daraufhin entwickelnde Graphitbrand führte zur Verdampfung von Radionukliden. Die einzelnen Atome kondensierten in der Atmosphäre zu Sekundärpartikeln (accumulation mode-particle) [Gr93]. Entsprechend den Trajektorien wurden diese über Distanzen von vielen 100 km verlagert. Die meisten der in Skandinavien, Österreich und anderen Teilen Europas gefundenen Partikel gehören zu dieser Kategorie. Ferner wurden Bereiche des Reaktorcores fragmentiert und die Zirkoniumumhüllung des Brennstoffs zerstört. Handelte es sich bei diesen Teilchen um Fragmente des ehemaligen Brennstoffs, so bestanden sie aus einer Matrix aus Uranoxid. Des weiteren enthielten sie die durch Neutroneneinfang gebildeten Plutonium-Isotope und andere Actiniden, sowie Spaltprodukte wie beispielsweise Zirkonium und Strontium. Durch den Zustand des Abbrandes wurde der Radionuklidanteil an refraktären Elementen weitgehend bestimmt. Aufgrund der hohen Temperaturen während der Leistungsexkursion und dem darauf folgenden Graphitbrand können sie jedoch an leicht flüchtigen Spaltprodukten wie Cäsium und insbesondere Iod verarmt sein. Beide Teilchenarten wurden durch den Kamineffekt in Höhen von 500 bis 1000 m transportiert [Kr96]. Während die größeren dieser Primärpartikel schnell sedimentierten, bildeten diejenigen, die kleiner als etwa 100 µm waren eine stabile Suspension fester Partikel in Luft, ein Aerosol. Teilchen hoher Radioaktivität werden unabhängig von ihrer Genese als hot particles bezeichnet.

Zu Beginn der Katastrophenschutzmaßnahmen wurden Bor, Carbonate und Blei aus Hubschraubern über dem offenen Reaktorgebäude abgeworfen. Dadurch wurde die Emission weiterer Substanzen zunächst reduziert. Durch die enorme Hitzeentwicklung infolge der weitgehenden Versiegelung begann die Emission leicht flüchtiger Nuklide jedoch wieder anzusteigen. Durch diese Katastrophenschutzmaßnahmen und die sich ändernden meteorologischen Bedingungen variierte die Aktivität und das Verhältnis der Radionuklide sowie die Freisetzungshöhe und -richtung der Kontaminationswolke in den nächsten zehn Tagen. Nach der beginnenden Kühlung des zerstörten Reaktorcores ging die Emission auf geringe Werte zurück.

Wie aus Tab. 4 ersichtlich betrug die im Verlauf des Unfalls freigesetzte ^{90}Sr -Aktivität etwa 1×10^{16} Bq. Im zweiten Quartal 1986 wurde in dem betreffenden Abschnitt von zehn Breitengraden auf der Nordhalbkugel eine erhöhte Deposition an Radiostrontium gemessen. Obwohl sich der Fallout über die ganze nördliche Hemisphäre verteilte, erfolgten über 75 % der Deposition des Strontium-90 im Umkreis von 30 km um das Kraftwerk. Die Ablagerung der übrigen Nuklide fand je nach Topographie und Wetterlage sehr unterschiedlich statt

[Ly93]. In Tab. 4 ist der absolute und relative Anteil der vom Reaktorcore emittierten Radionuklide dargestellt.

Tab. 4 : Quellterm des Tschernobyl-Unfalls [Kr96].

Isotop	Halbwertszeit	emittierter Core-Anteil (%)	emit. Aktivität (P Bq)	Sdp. (°C)
¹³³ Xe	5,3 d	100	6500	-107
¹³¹ I	8 d	50	1760	185
¹³⁷ Cs	30,0 a	33	85	705
⁹⁰ Sr	28,5 a	4	10	1385
⁸⁹ Sr	50,5 d	4	80	1385
¹⁴⁰ Ba	12,7 d	5,5	160	1696
²³⁹ Pu	24000 a	3,5	0,03	3200
²⁴¹ Pu	13,2 a	3,5	6	3200

In der Plutoniumfabrik Mayak im südlichen Ural kam es zu drei großen Emissionen von Radionukliden. In der Zeit von 1950 bis 1951 wurde der hochaktive Abfall des Industriekomplexes in den Tеча-Fluß geleitet. Die landwirtschaftliche Nutzung dieses Flusses und der Umgebung wurde daraufhin eingestellt und die Bevölkerung mehrerer Dörfer evakuiert. Die Gesamtemission betrug etwa 100 PBq (10^{17} Bq). Davon entfielen etwa 10 PBq auf das Strontium-90 [Tr93]. Seit September 1951 erfolgte die Ableitung des flüssigen hoch- und mittelaktiven Abfalls in stehende Gewässer. Auf diese Weise wurde eine weitere Emission in den Tеча-Fluß vermieden. Als im Sommer 1967 ein solcher See austrocknete, wurden Radionuklide mit einer Gesamtaktivität von etwa $4,4 \times 10^{18}$ Bq Strontium-90 [Ku93] durch einen Sturm aufgewirbelt und in der Umgebung deponiert. Der exakte Anteil und das radioökologische Verhalten der einzelnen Nuklide ist noch nicht bekannt. Zu einer dritten Emission kam es 1957 nach der Explosion eines Lagerbehälters, der hochaktiven Abfall enthielt. Die gesamte freigesetzte Aktivität belief sich auf etwa 740 PBq (20 Millionen Ci). Der Anteil des Strontium-90 betrug etwa 0,8 PBq [Ku93].

1.2.6 ⁹⁰Sr-Eintrag in die Atmosphäre durch Kernwaffenexplosionen

Eine andere Form der Freisetzung in die Biosphäre stellen die oberirdischen Kernwaffentests dar. Die ersten Bomben wurden bodennah gezündet, doch bald erfolgten die Versuche in der Stratosphäre. Während der Detonation befand sich der größte Teil des Spaltstoffs der Bombe im Plasmazustand. Ein wesentlich höherer Anteil des Urans und Plutoniums wurde durch schnelle Neutronen gespalten als für den kontinuierlichen Betrieb eines moderierten Kernreaktors üblich ist. Ferner bestand das Spaltmaterial aus einer

eines moderierten Kernreaktors üblich ist. Ferner bestand das Spaltmaterial aus einer metallischen Matrix hoch angereicherten starken Brennstoffs und nicht, wie für die am häufigsten verwendeten Leistungsreaktoren typisch, aus keramischen Oxid, das von Kühl- und Moderatorelementen unterteilt ist.

Die erste von britischen und amerikanischen Wissenschaftlern entwickelte Atombombe wurde am 16. Juli 1945 erfolgreich im Alamogordo, New Mexico getestet. Nach den Abwürfen über Hiroshima und Nagasaki im selben Jahr begannen die Sowjetunion, Großbritannien, Frankreich und China mit der Konstruktion und Erprobung von Nuklearwaffen. Wiederum ergeben sich bauartbedingt erhebliche Unterschiede in der Spaltausbeute an Radiostrontium. Dies hängt vor allem damit zusammen, ob Uran-235 oder Plutonium-239 als Spaltstoff eingesetzt wurde (Tab. 2).

Schätzungen der Sprengkraft der in oberirdischen Tests erprobten Atomwaffen wurden ebenfalls veröffentlicht [Ca77]. Der Gesamtwert der Sprengkraft beläuft sich bis zum Inkrafttreten des Nuclear Test Ban Treaties 1962 auf 194 Mt [UN82]. Dies entspricht einer Produktion von etwa $7,4 \times 10^{17}$ Bq Strontium-90. Zusätzliche $0,9 \times 10^{17}$ Bq entstammen atmosphärischen Tests bis zum Ende 1984. Das Gesamtinventar von $8,3 \times 10^{17}$ Bq wurde nicht gleichmäßig über die ganze Erdoberfläche verteilt. Ein geringer Anteil wurde in der Nähe von Testgeländen als lokaler Fallout abgelagert. Die weitaus größten Sprengungen fanden jedoch in der Stratosphäre statt. Berücksichtigt man den radioaktiven Zerfall, so beträgt das durch Kernwaffentests erzeugte kumulative Inventar an Strontium-90 im Jahre 1995 noch $3,6 \times 10^{17}$ Bq. Die beim Unfall von Tschernobyl freigesetzte Aktivität von etwa 8×10^{15} Bq (26. April 1986) entspricht näherungsweise der Emission nach der Zündung einer 2 kt-Bombe. Das entspricht einer Atomwaffe mit 15 bis 20 % der Sprengkraft der Hiroshimabombe. Im Unfalljahr 1986 wurde das Gesamtinventar des Strontium-90 dadurch um etwa 1 % erhöht. Dennoch nimmt seit 1970 das biosphärische Inventar an Strontium-90 kontinuierlich ab.

Zur Berechnung der durch Nuklearwaffen freigesetzten ^{90}Sr -Aktivität sollen die Spaltungen pro kt Sprengkraft und die dadurch erzeugte Produktion an ^{90}Sr -Kernen abgeschätzt werden. Unter der Annahme, daß eine kt Sprengkraft $1,45 \times 10^{23}$ Spaltungen entspricht, werden bei einer mittleren Spaltausbeute von 3,5% etwa $5,1 \times 10^{21}$ ^{90}Sr -Atome

gebildet. Mit der Zerfallskonstante von $7,7 \times 10^{-10} \text{ s}^{-1}$ ($T_{1/2} = 28,5 \text{ a}$) ergibt sich eine Aktivität von $3,9 \times 10^{12} \text{ Bq}$ pro kt Sprengkraft.

1.3 Deposition auf der Erdoberfläche

Global stellen die atmosphärischen Kernwaffenexplosionen, wie oben beschrieben, die Hauptquelle für Strontium-90 in der Biosphäre dar. Insgesamt beläuft sich ihre Zahl bis 1986 auf 423 mit einer Gesamtsprengkraft von 217 Mt [UN82]. Lediglich 10% der dabei anfallenden Produktion von Radionukliden fand nach Inkrafttreten des Nuclear Test Ban Treaties 1963, nur 1% zwischen 1976 und 1980 statt. Nicht berücksichtigt sind unterirdische Versuche, bei denen normalerweise keine Radionuklide an die Biosphäre abgegeben werden. In Abb. 3 ist das durch atmosphärische Nuklearwaffentests deponierte Inventar an Strontium-90 dargestellt. Die meisten Tests wurden kurz vor Inkrafttreten des Nuclear Test Ban Treaties in den Jahren 1958 und 1962 durchgeführt. Danach nimmt die Deposition des nuklearen Fallouts auf der Erdoberfläche stark ab.

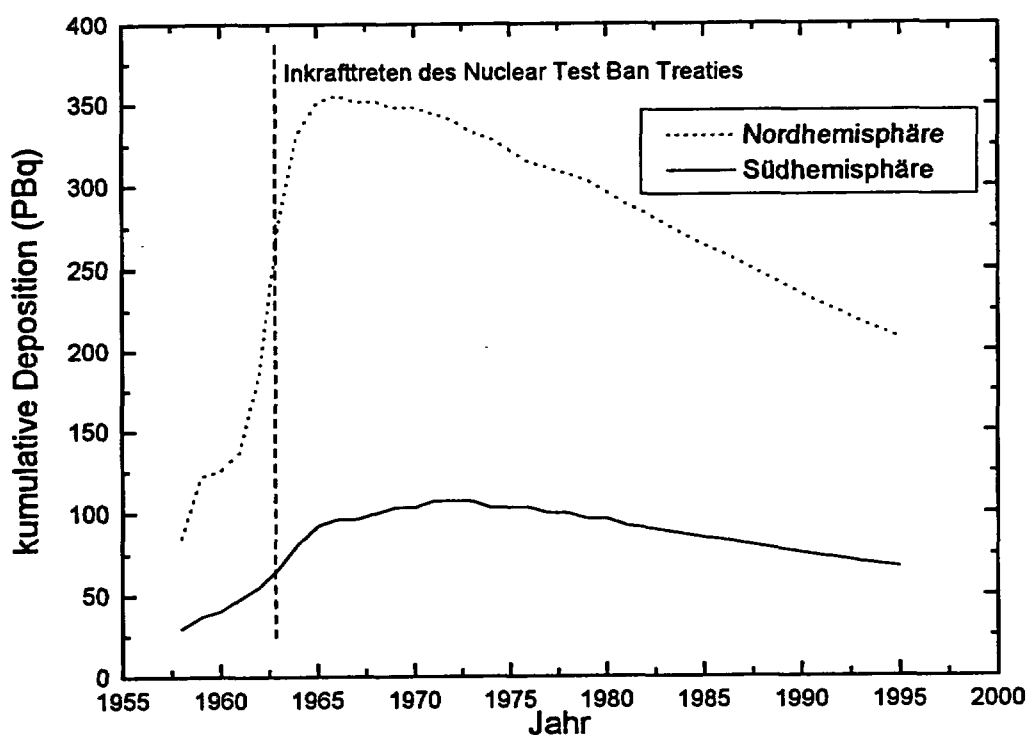


Abb. 3 : Zerfallskorrigiertes Inventar an durch atmosphärische Kernwaffentests deponiertem Strontium-90 in der Nord- und Südhalbkugel [Mo96, Mo91].

In der nördlichen Hemisphäre fanden die Zündungen vor allem in der polaren Stratosphäre statt. Demgegenüber erfolgten die Atombombenversuche auf der Südhalbkugel in der äquatorialen Troposphäre. Großbritannien führte beispielsweise oberirdische Tests in der australischen Wüste, Frankreich auf dem Mururoa-Atoll und die USA auf dem Bikini-Atoll durch [Ca77]. Während der Explosion einer nuklearen Waffe befinden sich die Spaltprodukte zunächst im Plasmazustand. Nach der Abkühlung kondensieren sie entweder zu Aerosolen oder werden nach einiger Zeit an der Oberfläche bestehender Teilchen adsorbiert. Durch die Gravitation sinken sie in die obere Troposphäre ab. Die Aufenthaltsdauer in diesem Bereich der Atmosphäre beträgt einige Monate bis zu zwei Jahren, abhängig von der Jahreszeit und der Entfernung zum Äquator beziehungsweise zu den Polkappen. Von dort gelangen sie durch Eddy-Diffusion in die obere Strato- und untere Troposphäre. Bis dorthin hat eine gleichmäßige Durchmischung entlang der Breitengrade stattgefunden, so daß die Deposition in den einzelnen äquatorparallelen Gürteln weitgehend homogen erfolgt ist. In Abb. 4 ist die absolute sowie die flächenbezogene Deposition an Strontium-90 entlang der geographischen Breite aufgetragen.

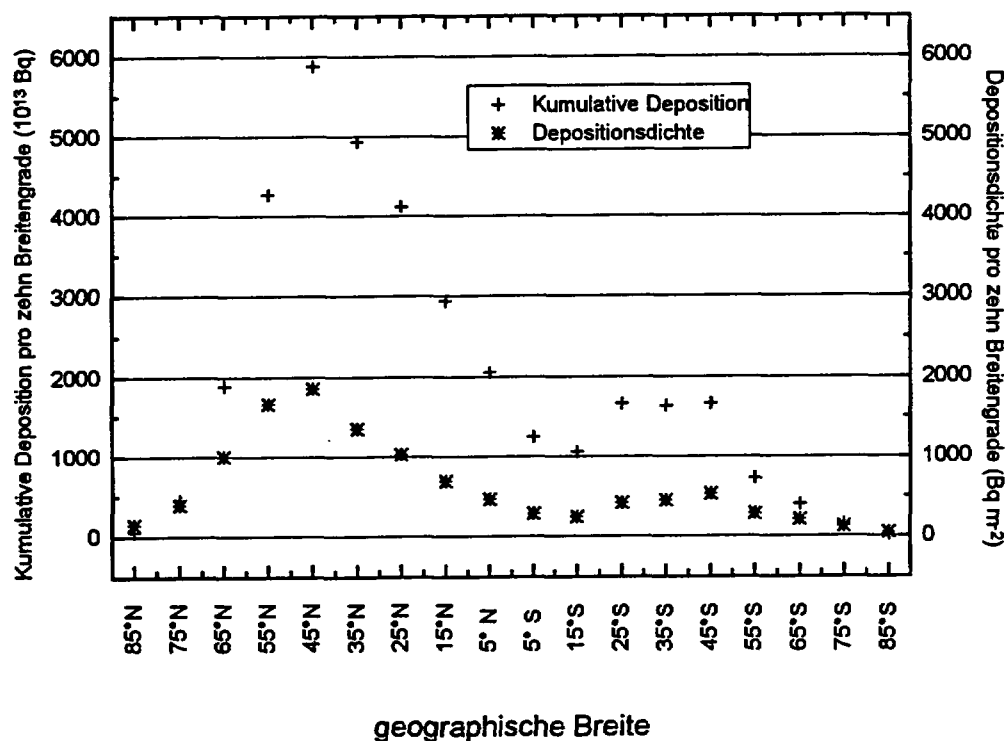


Abb. 4 : Absolute und flächenbezogene zerfallskorrigierte Deposition von Strontium-90 (26. April 1986) in Abhängigkeit von der geographischen Breite.

Die höchste Kontamination erfolgte in den nördlichen gemäßigten Breiten. Sie nimmt zum Äquator hin ab und erreicht in den südlichen gemäßigten Breiten ein weiteres Maximum. Zu beiden Polkappen hin erfolgt nur noch eine geringere Deposition. Während etwa 90 % des

Radiostrontiums in der Nordhemisphäre produziert wurde, erfolgte dort nur etwa 76 % der Deposition. Folglich hat ein erheblicher Anteil der Aktivität die Innertropische Konvergenzzone überschritten, die für den Austausch von Luftschichten eine Barriere darstellt [Gr93]. Während des Transports durch die Atmosphäre zeigen die meisten Radionuklide noch kein unterschiedliches Verhalten. So betrug das Verhältnis von Cäsium-137 zu Strontium-90 im nuklearen Fallout weltweit über einen Beobachtungszeitraum von mehreren Jahrzehnten etwa 1,6 [UN82].

Erreichen die Aerosole die untere Troposphäre, haben lokale meteorologische Gegebenheiten erheblichen Einfluß auf physikochemische Form und Quantität der Deposition. So konnte die Flächenkontamination unterschiedlicher Gebiete der Nordhalbkugel mit der geographischen Höhe und dem Niederschlag korreliert werden [Ba95].

Noch extremeren Einfluß hat die Meteorologie auf die Deposition bei lokalen Freisetzungen wie bodennahen Atomwaffenexplosionen oder nuklearen Unfällen. Die exakte Höhe der Freisetzung, die zu diesem Zeitpunkt vorherrschenden Trajektorien und die Niederschlagsverhältnisse bestimmen Art, Menge und Entfernung der Deposition.

1.4 Migration im Boden

Die vertikale Migration der Radionuklide im Boden ist für mehrere ökologische Fragestellungen von Bedeutung [Ba82, Ou92]. So erhöht eine lange Verweilzeit in den obersten Schichten des Bodens die Wahrscheinlichkeit der Resuspension und der Winderosion. Leichte Teilchen und flüchtige Moleküle wie tritiumhaltiges Wasser (HTO) können nach der Deposition auf diese Weise wieder in die Atmosphäre gelangen. Starke Winde führen vor allem zu einer Erosion der Schlufffraktion des Feinbodens. Ferner werden frisch sedimentierte Aerosolteilchen resuspendiert. Somit können durch sekundäre Deposition zunächst nicht betroffene Gebiete kontaminiert werden.

Ferner ermöglicht die Kenntnis der Verweilzeit der Radionuklide in der Wurzelzone Aussagen über die Bioverfügbarkeit für die Pflanzen. Nach der ersten Erntephase nach erfolgter Deposition ist die Aufnahme über die Wurzel die wichtigste Kontaminationsquelle für Pflanzen. Haben die Radionuklide die Wurzelzone verlassen, so erreichen sie durch weitere Migration das Grundwasser. Mittel- und langlebige Radionuklide können auf diese Weise in

die Biosphäre zurückgelangen. Dort erreichen sie direkt über den Trinkwasser- oder über den Wurzelpfad den Menschen.

Für die Mobilität der Radionuklide ist die physikochemische Form der Deposition entscheidend. Der Fallout des Tschernobyl-Unfalls bestand aus zwei Hauptkomponenten. Hierbei handelt es sich um das Kondensat der bei Temperaturen von bis zu über 1000 °C flüchtigen Elemente und die fragmentierten Brennstoffteilchen. Kruglov und Mitarbeiter [Kr95] zeigten an Bodenproben, die 1986 nach dem Tschernobyl-Unfall entnommen wurden, das unterschiedliche chemische Verhalten. In Gebieten außerhalb der 30 km-Zone um den Reaktor fand hauptsächlich eine Deposition von Kondensaten statt. Innerhalb dieses Gebiets erfolgte der überwiegende Teil der Deposition in Fragmenten des Brennstoffs. Es ist zu vermuten, daß in einer Uranoxidmatrix fixierte Nuklide nicht direkt verstoffwechselt werden. Ihre Aufnahme über die Wurzel erfolgt erst nach der chemischen Zersetzung.

Wie bei der Verlagerung von Tonpartikeln im Boden beobachtet, können kleine Teilchen in Spalten fallen und auf diese Weise in tiefere Zonen des Bodens gelangen. Besonders an tonreichen wechselfeuchten Standorten bilden sich Schrumpfrisse, in die Feinboden eingeweht werden kann. Weiterhin ist es möglich, daß hot particles, sowie andere Bodenbestandteile durch mechanische Durchmischung des Bodens, Turbationsprozesse, in tiefere Horizonte transportiert werden. In mitteleuropäischen Böden tragen Regenwürmer und wühlende Kleintiere erheblich zur Durchmischung der oberen Horizonte bei (Bioturbation). In vielen landwirtschaftlich genutzten Gebieten wird der Fallout unabhängig von seiner physikochemischen Form zunächst bis zur Pflugschartiefe durchmischt.

Nach der Verwitterung von Kondensaten und Uranoxiden liegt Strontium zunächst als bioverfügbares Sr^{2+} -Kation vor. In dieser Form kann es von den Pflanzen und Tieren aufgenommen werden und am Stoffwechsel teilnehmen. Die Migration nicht flüchtiger Substanzen erfolgt in natürlichen Ökosystemen abgesehen von der Turbation vor allem durch den Transport mit dem Grundwasser. In einem humiden Klima ist über das Jahr betrachtet eine nach unten gerichtete Wasserbewegung zu beobachten. Durch hohe Niederschläge und Bewässerung wird die Geschwindigkeit des vertikalen Transportes in dem Bodenwasser erhöht. Sorptionsprozesse an Tonmineralen, Sesquioxiden und Huminsäuren, sowie chemische Reaktionen verlangsamen die Migration [Ba95]. Während Alkali- und Erdalkalitionen in der Regel relativ leicht austauschbar sind, werden die Kationen der Übergangsmetalle und des

Aluminiums häufig als Hydroxid und Silicat irreversibel an die Bodenmatrix gebunden [Zi90]. So kann beispielsweise durch die Ausfällung des Strontiums in alkalischen Böden als Carbonat dieses Nuklid praktisch irreversibel fixiert werden.

Die Sorption von Kationen an Bodenmineralen findet zum einen auf der äußeren Oberfläche statt. Zum anderen verfügen einige Tonminerale über die Möglichkeit des isomorphen Ersatzes von Kationen des Kristallsystems. Diese Austauschplätze werden als innere Oberfläche bezeichnet. Die Summe der potentiell zur Verfügung stehenden Austauschplätze eines Bodens wird als Kationenaustauschkapazität (KAK) bezeichnet. Die Sorption an diesen Plätzen ist meist reversibel. Daher lassen sich die Vorgänge durch das Massenwirkungsgesetz beschreiben. Durch den Überschuß eines inaktiven isotopen Trägers oder chemisch ähnlicher Elemente kann ein Radionuklid somit von der Oberfläche verdrängt werden. Folglich besteht die Möglichkeit, durch Düngung die Migration und den Transfer zur Pflanze zu ändern [Li87].

Es handelt sich bei dem Kationenaustausch um eine schnelle Reaktion, die vor allem durch die Diffusion zur Kristalloberfläche begrenzt wird. Bei der Sorption von Ionen wird stets eine entsprechende Menge von Gegenionen ausgetauscht. Die unterschiedliche Affinität, die für die verschiedenen Kationen erheblich sein kann, wird durch den Gapon-Koeffizienten beschrieben [Sc92]. In Gl. (2) ist der mathematische Zusammenhang beispielhaft für die Konkurrenz eines ein- mit einem zweiwertigen Kation aufgeführt:

$$\frac{a^+}{a^{++}} = k_G \frac{c^+}{\sqrt{c^{++}}} \quad (2)$$

- k_G : Gapon-Koeffizient
 a : sorbierte Menge des ein- bzw. zweiwertigen Kations
 c : gelöste Menge des ein- bzw. zweiwertigen Kations

Der Gapon-Koeffizient stellt eine empirische Beziehung zwischen der Konzentration zweier Ionen in der Bodenlösung und dem sorbierten Anteil dar. Je stärker der Koeffizient von eins abweicht, desto größer sind die Unterschiede in der Selektivität. In dem in Gl. (2) aufgeführten Ansatz würden beispielsweise hohe Werte eine stärkere Bindung des einwertigen als des zweiwertigen Kations an die Mineraloberfläche bedeuten.

Die spezifische äußere Oberfläche ist abhängig von der Korngröße und beträgt für die Feinbodenfraktionen Sand, Schluff und Ton etwa 0,1; 0,1 bis 1 und 5 bis 500 m² g⁻¹ [Sc92]. Bei den Austauschplätzen der Kristalloberfläche handelt es sich um schwache Säuren, wie Si-OH oder Al-OH, die Protonen gegen äquivalente Mengen Kationen austauschen. Der pH-Wert natürlicher Böden reicht vom sauren, beispielsweise in Moorböden mit pH-Werten von etwa 3, bis zu carbonathaltigen Standorten von pH = 7 bis 7,5. Im letzten Fall ist die maximale Menge an Austauschgruppen, die höchste Kationenaustauschkapazität, verfügbar. Sie wird als potentielle Ladung bezeichnet. Bei zunehmender Protonenkonzentration in der Lösung wird die Konkurrenzreaktion der Sorption eines Protons anstatt eines Radionuklid-Kations immer bedeutender. In zunehmend saurem Milieu nimmt daher auch die Kationenaustauschkapazität ab. Diese ist also pH-abhängig und wird als effektive Ladung bezeichnet. Die Sorption an großen Körnern im sauren Boden ist daher vergleichsweise gering. Daher ergibt sich über die Verdrängung mit isotypen Kationen hinaus durch die Änderung des pH-Werts eine weitere Möglichkeit, durch die Düngung Einfluß auf die Migration von Radionukliden zu nehmen.

Der Kationenaustausch der inneren Oberfläche beruht auf einem isomorphen Ersatz von Kristallionen. Diese Kationenaustauschkapazität ist permanent und pH-unabhängig. Sie beruht auf einer speziellen Eigenschaft aufweitbarer Tonminerale wie der Smectite und Vermiculite. In diesen Alumosilicaten wechseln Ebenen tetraedrischer SiO₄- und oktaedrischer AlO₆-Baueinheiten einander ab. Die Sauerstoffatome oder Hydroxidgruppen an den Ecken eines Polyeders bilden gleichzeitig die Basis des Polyeders der nächsten Schicht und verbinden somit die übereinanderliegenden Ebenen. In Dreischichtsilicaten folgt auf eine Tetraeder- eine Oktaeder- und wiederum eine Tetraederschicht. Daher bilden diese Minerale meist blättchenförmige Kristalle von unter 2 µm Durchmesser und 2 bis 50 nm Dicke [Sc92]. Dieser Aufbau setzt sich im idealen Kristall immer weiter fort. Je nach Mineral können Zentralkationen der Polyeder durch gleichgroße, unterschiedlich geladene Ionen isomorph ersetzt sein. Wird ein Siliciumkation beispielsweise durch ein Aluminiumatom ersetzt, so verbleibt eine negative Überschußladung im Kristall. Die Nettoladung der Silicatschicht richtet sich nach Art und Ausmaß des jeweiligen isomorphen Ersatzes. Diese wird durch Kationen, die sich zwischen den Sauerstoffatomen der beiden übereinanderliegenden Tetraederschichten befinden, kompensiert. Solche ein- oder zweiwertigen Zwischenschichtkationen sind austauschbar und bilden die innere Oberfläche eines Kristalls. Diese ist allerdings nicht für alle Ionen gleich gut erreichbar. So wurde beispielsweise für Bentonite, Vermiculite, Illite und Kaolinite eine bis zu 5 % höhere Austauschkapazität für Strontium als für Calcium bestimmt.

Die absolute Menge austauschbarer Kationen nahm für diese Minerale von etwa 1,3 auf 0,05 meq g⁻¹ ab [He60]. Des weiteren ist die Bindungsenergie der Austauschplätze für verschiedene Ionen unterschiedlich. So wird für Cäsium an Montmorillonit und Kaolinit eine höhere Affinität beobachtet als für Strontium [Er88]. Die im Boden vorliegenden Tonminerale sind meist klein und verfügen über eine hohe Anzahl Fehlstellen, wodurch die Kationenaustauschkapazität zusätzlich erhöht wird.

Die Größe der äußeren und inneren Oberfläche bestimmt die spezifische Kationenaustauschkapazität eines Minerals. Sie weist mit Werten zwischen 0,09 und 1,8 meq g⁻¹ für Kaolinite bzw. Vermiculite erhebliche Unterschiede zwischen den einzelnen Bodenbestandteilen auf. Der Anteil der inneren an der Gesamtoberfläche von Dreischichtsilicaten beträgt bis zu 80 bis 90 % [Sc92].

Organische Substanzen, wie Humin- und Fulvosäuren, verfügen über eine große Anzahl funktioneller Gruppen. Von den deprotonierbaren Gruppen sind insbesondere die Carboxylfunktion und in geringerem Maße die phenolischen Gruppen für den Ionenaustausch von Bedeutung. Die Fähigkeit, Kationen aus der Lösung an der organischen Substanz anzureichern, ist daher vom pH-Wert abhängig. Die spezifische Oberfläche des Humus übersteigt diejenige der Tonfraktion um das fünf- bis zehnfache [Li87]. In den oberen Schichten, die über einen hohen Anteil organischer Masse verfügen, liegt die Kationenaustauschkapazität des gesamten Bodens häufig bei 1,8 bis 3 meq g⁻¹ [Sc92]. Es finden viele Sorptionsprozesse an der Oberfläche der Humin- und Fulvosäuren statt, und die Verweilzeit von Kationen in diesen Horizonten ist meist wesentlich höher als in den unteren Schichten. Der pflanzenverfügbare Anteil des Strontiums in humosen Horizonten übersteigt selten 10 % [Li87].

Da die Vielzahl der die Sorption bestimmenden Parameter häufig schwer zu erfassen ist, sind mehrere Experimente entwickelt worden, um die Migration im Boden quantitativ zu bestimmen. Faßt man den Boden als chromatographische Säule auf, so wird die Migrationsgeschwindigkeit eines Nuklids v_N durch Sorptionsprozesse gegenüber der Porenwassergeschwindigkeit v_w verringert. Der Retardationskoeffizient R_d , mit

$$R_d = v_w / v_N \quad (3)$$

ist ein quantitatives Maß für die Sorption. Je größer der R_d -Wert, desto stärker werden die Nuklide zurückgehalten. Tritt keine Sorption auf, so nähert sich der Koeffizient dem Wert eins. Der Retardationskoeffizient wird in unten diskutierten Modellen zur Berechnung der Migrationsgeschwindigkeit benötigt.

Eine häufig verwendete Methode, um mit relativ geringem experimentellem Aufwand den Retardationskoeffizienten zu bestimmen, sind die Batchversuche. Eine Probe des betrachteten Bodens oder Minerals wird in einer synthetischen Bodenlösung geschüttelt, die mit dem zu untersuchendem Radionuklid angereichert wurde. Nachdem sich das Gleichgewicht zwischen der Konzentration des an den Boden sorbierten $[\text{Nuklid}]_{\text{sorbiert}}$ und dem in der Flüssigkeit gelösten $[\text{Nuklid}]_{\text{gelöst}}$ eingestellt hat, wird der Verteilungskoeffizient K_d bestimmt:

$$K_d (\text{cm}^3 \text{ g}^{-1}) = [\text{Nuklid}]_{\text{sorbiert}} / [\text{Nuklid}]_{\text{gelöst}} \quad (4)$$

Bei idealem chromatographischem Verhalten ergibt sich der Retardationskoeffizient zu:

$$R_d = 1 + \rho \cdot K_d / \Theta \quad (5)$$

ρ ist die Lagerungsdichte des trockenen Bodens, Θ der volumetrische Wassergehalt des nassen Bodens. Aus dem K_d -Wert kann also unter idealen Voraussetzungen auf den Retardationskoeffizienten geschlossen werden. Hohe Verteilungskoeffizienten zeigen eine hohe Sorption an und führen zu hoher Retardation. Vorteilhaft an diesem Verfahren zur Bestimmung des R_d -Wertes ist die relativ leichte experimentelle Durchführbarkeit. Viele Eigenschaften der Sorption und des natürlich gewachsenen Bodens werden allerdings nur unzureichend oder gar nicht erfaßt.

So ist aus Batchversuchen häufig nicht erkennbar, ob die Radionuklide reversibel sorbiert wurden oder eine irreversible Fixierung stattgefunden hat. Durch das ständige Schütteln werden alle Aggregate aufgelöst und es stehen auch solche Plätze zur Verfügung, die im gewachsenen Boden nicht erreichbar sind. Die Reibung der Körner untereinander führt darüber hinaus zu Mahleffekten und damit zu einer Vergrößerung der Oberfläche. Huminsäuren können aufgrund des hohen Wasseranteils gelöst vorliegen.

Gewachsener Boden verfügt häufig über eine Vielzahl vertikaler Bypässe, in denen Wasser schnell in tiefere Schichten transportiert wird. Risse, sowie Gänge von wühlenden

Bodentieren, Insekten und Regenwürmern oder Spalten teilweise zersetzter Wurzeln abgestorbener Pflanzen reichen bis zu über einem Meter Tiefe hinab. Läuft kontaminiertes Wasser nach starken Niederschlägen durch solche Bypässe schnell ab, so steht nur ein geringer Prozentsatz der vorhandenen Sorptionsplätze tatsächlich zur Verfügung. Je nach Fließgeschwindigkeit können diese durch Diffusion zur Aggregatoberfläche nicht erreicht werden und ein thermodynamisches Gleichgewicht stellt sich nicht ein. Batchversuche ermöglichen somit die maximal zur Verfügung stehende Kationenaustauschkapazität abzuschätzen. Ferner ermöglichen sie, gezielt die Reaktion auf ausgewählte Parameter zu studieren und die Störung durch unerwünschte Einflüsse zu begrenzen.

Mit einem höheren experimentellen Aufwand sind Versuche an Bodensäulen verbunden, in denen der Transport von Radionukliden mit dem Wasser untersucht wird. Als Füllmaterial für die Säule kann natürlicher Boden entnommen, behandelt, und geschichtet werden. Auf diese Weise ist es möglich, Parameter einzugrenzen, indem beispielsweise sterilisierter Boden oder nur ausgewählte Fraktionen verwendet werden.

Für Lysimeterversuche findet die Entnahme eines natürlich gewachsenen Bodens statt. Dies ermöglicht es, ein Ökosystem sehr naturnah zu simulieren. Um Randeffekte zu minimieren wird dazu eine möglichst breite Röhre in den Boden gepreßt und als ganze entnommen. Die hydrodynamischen Eigenschaften eines solchen Monolithen werden den natürlichen angepaßt, indem die Bodenfläche mit einem Saugdruck versehen wird. Durch die thermische Isolation der Seitenwände wird der direkte Einfluß der Klimaschwankungen auf die tiefen Zonen des Bodens weitgehend unterbunden. Grund hierfür ist, daß die Temperaturänderungen der tiefen Schichten im natürlichen Boden träge sind, da der Wärmeaustausch hauptsächlich über die Oberfläche erfolgt. Daraufhin findet die Beaufschlagung mit den zu untersuchenden Radionukliden statt. Die Versuchsdurchführung im Freien ermöglicht es, den Boden dem natürlichen Klima und Niederschlag auszusetzen. Durch die Beregnung der Oberfläche kann demgegenüber in Klimakammern der Wasserhaushalt simuliert oder erhöht werden. Häufig wird HTO als Tracer eingesetzt, um die Fließgeschwindigkeit zu bestimmen. Wird stärker beregnet als es dem Standortniederschlag entspricht, so muß damit gerechnet werden, daß zu schnelle Migrationsraten bestimmt werden, da nicht immer genügend Zeit zur Diffusion zur Verfügung steht und die konvektive Transportkomponente überwiegt. Auf diese Weise sollen mehrere Jahre auf einen geringeren Zeitraum komprimiert werden, um schneller eine langfristige Aussagen zu ermöglichen. Durch kontinuierliches Scannen des Monolithen mit

einem γ -Detektor kann die Migration der Nuklide online beobachtet werden. Die α - und β -Strahler, insbesondere das Tritium, werden in den ausfließenden Fraktionen bestimmt.

Über Batch- und Säulen- bzw. Monolithversuche hinaus kann die Retardation von Radionukliden durch das Verhalten des nuklearen Fallouts untersucht werden. Die oberirdischen Kernwaffentests begannen in der zweiten Hälfte der Vierziger Jahre und wurden 1962 weitgehend eingestellt. Ort und Zeitpunkt der einzelnen Tests sowie die vermutete Radionuklidproduktion sind dokumentiert [Ca77]. Da die Deposition über mehr als zwei Jahrzehnte erfolgte, spiegelt die heute experimentell bestimmte Verteilung der Radionuklide im Boden eine Überlagerung des Migrationsverhaltens und der zeitlichen Abfolge der Immission wieder.

Ist der Retardationsfaktor mit einer der oben erläuterten Methoden bestimmt worden, gibt es mehrere Ansätze, um die Migrationsrate des betreffenden Radionuklids zu berechnen.

Wie in Abschnitt 1.3 beschrieben, liegen die deponierten Radionuklide nicht immer in physikochemisch homogener Form vor. So bestanden die im Verlauf des Unfalls von Tschernobyl emittierten hot particles aus Kondensaten und Fragmenten des Brennstoffs. Um die unterschiedlichen Migrationseigenschaften zu beschreiben, wurden drei Jahre nach dem Unfall Bodenproben entnommen und das radioökologische Verhalten, insbesondere der Abbau der hot particles mit dem in Abb. 5 dargestellten Kompartimentmodell modelliert [Ko91].

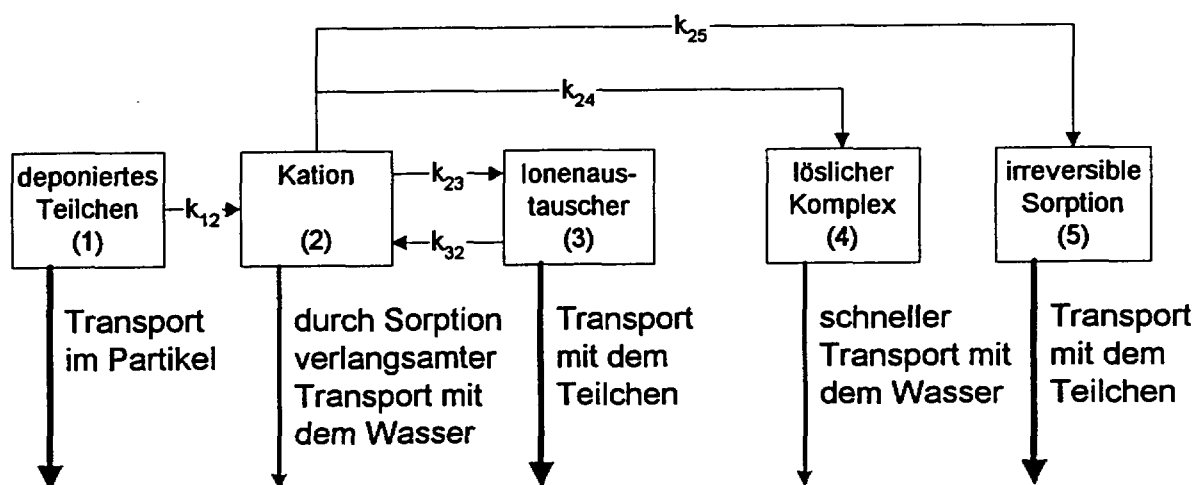


Abb. 5 : Modell zur Beschreibung des Migrationsverhaltens. Die verschiedenen Kompartimente stellen die unterschiedlichen physikochemischen Formen innerhalb einer Zone des Bodens dar. Der Übergang zwischen dem Kompartiment i zu j wird durch die Proportionalitätskonstante k_{ij} (a^{-1}) im Geschwindigkeitsgesetz quantitativ beschrieben.

Die Radionuklide liegen zunächst in einer Matrix, unabhängig ob als Kondensat oder in einer Uranoxid-Matrix, fixiert vor (1). Durch den Abbau werden sie zunächst als Kation freigesetzt. Dieser Übergang wird durch ein Geschwindigkeitsgesetz erster Ordnung dargestellt:

$$dc_2/dt = -k_{12} \cdot c_1 \quad (6)$$

Die Änderung der Konzentration c_i im Kompartiment i wird durch die Proportionalitätskonstante k_{ji} , die den Übergang von j nach i darstellt, quantitativ beschrieben. Für langlebige Radionuklide kann der Zerfall innerhalb eines Jahres vernachlässigt werden. Das nun bioverfügbare stoffwechselaktive Kation stellt ein Gleichgewicht zwischen der Konzentration in der Lösung (2) und den Kationenaustauscherplätzen (3) ein. Des weiteren erfolgt die Einlagerung in lösliche Komplexe wie Fulvosäuren (4). Das Nuklid ist in diesem Zustand immer noch in der wäßrigen Phase gelöst, liegt aber als geladener oder ungeladener Komplex vor. Die irreversible Sorption an Bodenbestandteile führt zu einer langfristigen Fixierung (5). In diesem Zustand ist das Radionuklid nicht mehr für den Stoffwechsel verfügbar. Während das Nuklid als Kation und als löslicher Komplex mit dem Wasser in tiefere Bodenschichten transportiert wird, erfolgt die Verlagerung in den anderen physikochemischen Formen als Teilchen, beispielsweise durch Turbation.

An Böden aus der 30 km-Zone um Tschernobyl zeigte sich, daß für Strontium-90 in den ersten beiden Jahren nach dem Unfall die Migration der nicht metabolischen Form dominiert [Ko91]. Seit 1988 überwiegt aufgrund des zunehmenden Abbaus der Partikel jedoch die bioverfügbare Form der Migration. Die charakteristische Zeit für die Verwitterung der Partikel im Boden beträgt je nach Bodentyp ein Jahr bis mehrere Jahre. Die irreversible Anlagerung des Strontiums an die Bodenmatrix ist von geringerer Bedeutung. Im Gegensatz dazu wird das frei werdende Cäsium-137 schnell wieder im Boden fixiert. An anderen Nadelwaldstandorten wurde beobachtet, daß die Sorption des Cäsiums innerhalb weniger Minuten erfolgt und nicht reversibel ist [Bu91]. Die für den Stoffwechsel verfügbare Cäsium-Konzentration bleibt daher gering und annähernd konstant [Ko91, Sa94].

Da Fragmente des Kernbrennstoffs nur in wenigen Regionen der Erde einen erheblichen Anteil der gesamten anthropogenen Deposition an Radionukliden ausmachen, wird häufig eine homogene physikochemische Form des Fallouts zugrundegelegt. Um ein gesamtes Profil zu

beschreiben, unterteilen viele Modelle den Boden in Schichten, die häufig die Bodenhorizonte darstellen, und unterscheiden nicht zwischen unterschiedlichen physikochemischen Formen (Abb. 6).

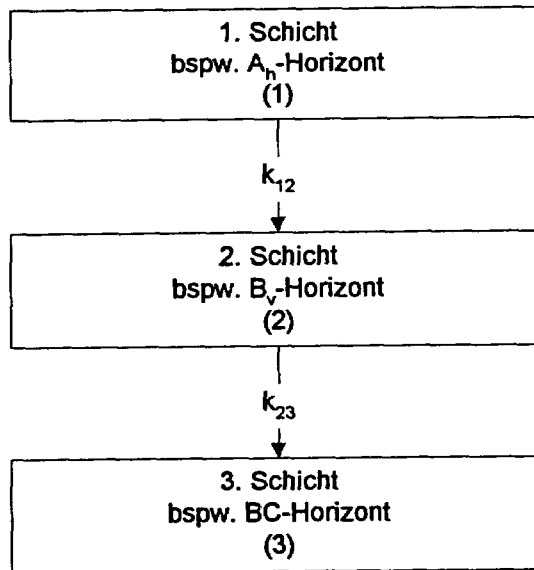


Abb. 6 : Vertikales Migrationsverhalten in unterschiedlichen Tiefenzonen des Bodens oder Horizonten. Die Transferkonstante k_{ij} (a^{-1}) beschreibt den Übergang zwischen dem Kompartiment i zu j .

Die zeitliche Änderung der Aktivitätskonzentration des obersten Horizonts ergibt sich nach einmalig erfolgter Deposition somit aus dem radioaktivem Zerfall und der Verlagerung in das tiefere Kompartiment [KI92]:

$$\frac{dc_1}{dt} = -\lambda \cdot c_1 - \frac{k_{12} \cdot \ln 2}{\Delta x_1} \cdot c_1 \quad (7)$$

Darin ist λ die radioaktive Zerfallskonstante, c_i die Radionuklidkonzentration und Δx_i die Schichtdicke des Kompartiments. Die Transferrate k_{ij} ($cm \ a^{-1}$) von Kompartiment i nach j ist linear und zeitunabhängig. Für das tiefer liegende Kompartiment i muß Gl. (7) um den von oben zugeführten Eintrag ergänzt werden.

$$\frac{dc_i}{dt} = -\lambda \cdot c_i - \frac{k_{i,(i+1)} \cdot \ln 2}{\Delta x_i} \cdot c_i + \frac{k_{(i-1),i} \cdot \ln 2}{\Delta x_{i-1}} \cdot c_{i-1}, \quad i = 2, \dots \quad (8)$$

Die zunächst für alle Übergänge gleich angesetzte Migrationsrate wird in iterierenden Schritten an die observierten Befunde angepaßt. Voraussetzung sind sofortige homogene

Durchmischung und gleiche Migrationsgeschwindigkeit des Radionuklids in einem Kompartiment. Eine Wiederaufnahme durch die Wurzel und ein erneuter Transport nach oben ist in diesem Modell nicht erfaßt. Auch ein lateraler Abfluß, wie er beispielsweise in Gleyen (durch die Wasserbewegung charakterisierten Bodentypen) und bei Staunässe auftreten kann, wird in diesem Modell nicht berücksichtigt. Weiterführende Modelle sind für den atmosphärischen und aquatischen [Bu96, Zh92, Ho81] Transport beschrieben worden [Co88].

Die eindimensionale lineare Transportgleichung stellt eine weitere Methode die Migrationsgeschwindigkeit zu berechnen. Sie ergibt sich für konstante Feuchtigkeit aus der Diffusion, Konvektion, Sorption und dem radioaktiven Zerfall.

$$\frac{\partial c_s}{\partial t} = \frac{D}{R_d} \times \frac{\partial^2 c_s}{\partial x^2} - \frac{v_w}{R_d} \times \frac{\partial c_s}{\partial x} - \lambda \cdot c_s \quad (9)$$

In den ersten Term, der die Dispersion beschreibt, geht das Verhältnis des Dispersionskoeffizienten D bezogen auf den Retardationkoeffizienten R_d ein. Die zweite Ableitung der Konzentration nach der Strecke läßt sich aus dem 2. Fickschen Gesetz ableiten. Das Konvektionsverhalten ergibt sich aus dem Verhältnis der Porenwassergeschwindigkeit v_w zur Sorption R_d und dem Konzentrationsgefälle. Der letzte Term berücksichtigt den radioaktiven Zerfall des Nuklids.

Als Quellterm für die Deposition auf der obersten Schicht wird eine jährliche Folge von Pulseingaben verwendet.

$$c_1 = \sum_{j=1}^n c_{1,j} \delta(t - t_j) \quad (10)$$

Die Aktivitätskonzentration c_1 im Kompartiment eins ergibt sich aus der Summe der einzelnen Depositionen $c_{1,j}$ bis zum Jahr n . Bei infinitem Fluß und linearer Sorptionsisotherme ergibt sich für die Zeit t größer t_n die Lösung [Kr78]:

$$c(x, t) = \sum_j \frac{c_{0j}}{\varepsilon \sqrt{4\pi D \Delta t_j}} \exp \left[-\frac{(x - U \Delta t_j)^2}{4 D^* \Delta t_j} - \lambda \Delta t_j \right] \quad (11)$$

Darin ist ϵ die Porosität, der reduzierte Diffusionskoeffizient $D^* = D/R_d$ das Verhältnis vom Diffusions- zum Retardationskoeffizient, der Quotient $U = v_w/R_d$ das Verhältnis der Geschwindigkeit des Porenwassers zum Retardationskoeffizient und c_{0j} die Aktivitätsdeposition zur Zeit t_j .

Die Migrationsgeschwindigkeit des Strontiums und anderer Radionuklide ist in vielen Kulturböden untersucht worden [Li87, Le93]. In einigen norddeutschen Bodentypen, die auch für Teile der 30 km-Zone um Tschernobyl typisch sind, ergaben sich die in Tab. 5 dargestellten Werte.

Tab. 5 Migrationsgeschwindigkeiten k der Nuklide Strontium-90 und Cäsium-137 für verschiedene Bodentypen und Horizonte (nach deutscher und Food and Agricultural Organisation-Nomenklatur).

Bodentyp	F A O	Horizont	k (cm a ⁻¹) ⁹⁰ Sr	k (cm a ⁻¹) ¹³⁷ Cs	Quelle
Nomenklatur					
---	Eutric Cambisol	A _h	0,83	0,47	[Ki92]
		B _w , C _{α(r)}	0,83	0,95	
---	Ortic Podsol	A _{h1}	0,97	0,4	[Ki92]
		A _{h2} , A _e , B _h , (B _{hs})	0,46	0,69	
---	Eutric Histosol	A _h , H _i , O	1,36	0,3	[Ki92]
Ranker	Cambisol	O	1,0	0,11	[Ba82]
		(E) A _h	4,5	1,9	
		(B) C	24	---	
Podsol	Cambisol	O	0,6	0,7	[Ba82]
		A _h	2,4	2,0	
		E	10	9,6	
		B _{h,fe}	34	---	
		B _{fe}	13	---	
		BC	34	---	
Braunerde	Cambisol	A _h	1,7	1,0	[Ba82]
		B _v	6,9	5,3	
		BC	30	---	

In allen oben aufgeführten Böden wandert Strontium schneller als Cäsium. Die jährliche Migrationsrate beträgt in den an organischem Material reichen Schichten nur einige Millimeter bis wenige Zentimeter pro Jahr (Tab. 5). Dem gegenüber erreicht sie in den C-Horizonten Geschwindigkeiten von bis zu über 20 Zentimeter pro Jahr. Dies gilt jedoch nicht für alle

Bodentypen, denn beispielsweise in basischen Horizonten wird das Erdalkalielelement stärker sorbiert [Ba78].

Für die drei in Tab. 5 zuoberst aufgeführten Böden wurde das Verhalten des nuklearen und des Tschernobyl-Fallouts verglichen. Es ergaben sich jedoch keine signifikanten Unterschiede in dem Migrationsverhalten. Aufgrund der weiten Entfernung vom Produktionsort sind in Norddeutschland durch die reaktornahe Sedimentation der schwereren Teilchen verglichen mit der Ukraine kleinere Partikel (accumulation mode particle, [Gr93]) deponiert worden. Diese können wegen des größeren Verhältnisses von Oberfläche zu Volumen und der physikochemischen Form schneller abgebaut werden. Demgegenüber wurde in der Schweiz ein unterschiedliches ökologisches Verhalten der beiden ^{90}Sr -Fraktionen beobachtet. Das als Folge des Unfalls von Tschernobyl deponierte Radiostrontium verließ die oberen Bodenschichten schneller als das durch die Kernwaffenversuche deponierte [Fr91].

1.5 Strahlenexposition durch Strontium-90 in der Nahrung

Das ökologische Verhalten des Strontiums wird also von einer Vielzahl von Parametern beeinflusst. Um den Schutz des Menschen zu gewährleisten, ist letztlich die absolute Exposition entscheidend. Zur Betrachtung großer Populationen hat es sich als ausreichend erwiesen, mittlere Lebens- und Verzehrsgewohnheiten zur Berechnung zugrunde zu legen. Davon ausgehend wurden vereinfachende Modelle entwickelt, die eine konservative Abschätzung der Strahlenexposition der Bevölkerung ermöglichen. Diese dienen als Grundlage für die Bewertung der durch ionisierende Strahlung hervorgerufenen Risiken.

Um die Exposition kleiner Populationen insbesondere in speziellen Ökosystemen zu beschreiben sind die gemittelten Werte nur eingeschränkt verwendbar. Grund dafür ist, daß bei denselben Übergängen im Kompartimentmodell für die Expositionspfade beispielsweise für Cäsium-137 und Strontium-90 Unterschiede von bis zu über drei Größenordnungen beobachtet wurden [Ko86]. Da die Verstoffwechselung dieser beiden Radionuklide stark mit der ihrer beiden chemischen Analogen Kalium und Calcium korreliert ist, hat es sich als günstig erwiesen, die Transferfaktoren als Verhältnis zu diesen Antagonisten auszudrücken (observed ratio). Untersuchungen dieser Beziehung zeigen, daß die auf diese Weise berechneten Koeffizienten nur noch weniger als eine Größenordnung schwanken.

Um letztlich von einem gegebenen Eintrag, beispielsweise in Form eines Nuklearwaffentests, auf die Dosis zu schließen, werden unterschiedliche Pfade berücksichtigt. Die Exposition durch Strontium-90 wird vor allem durch die verschiedenen, in Abb. 7 dargestellten, Ingestions-Pfade verursacht.

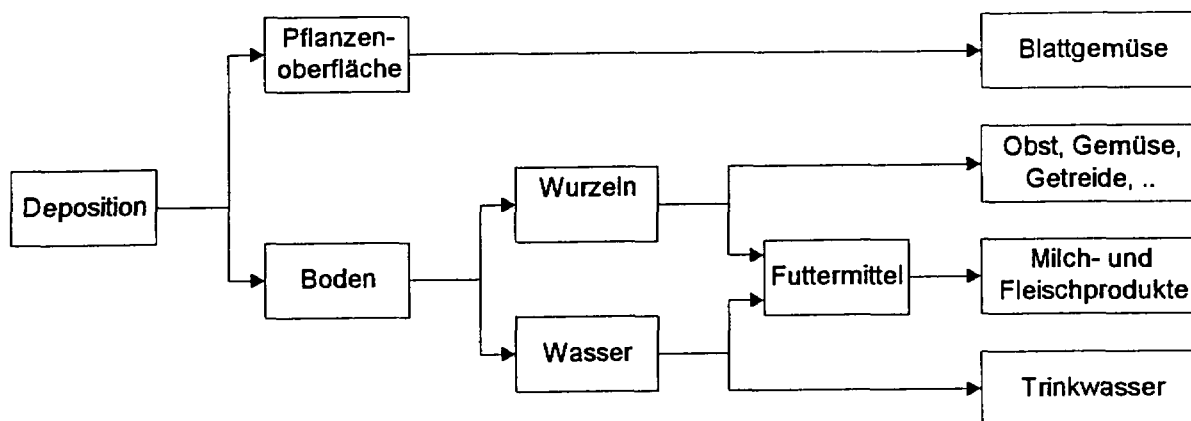


Abb. 7 : Expositionspfade durch die Ingestion von Strontium-90.

Je nach physikochemischer Beschaffenheit des Niederschlags und Zeitpunkt während der Vegetationsperiode variiert das ökologische Verhalten. Die Aufnahme durch die Pflanzen wurde sowohl global [UN82], als auch speziell in den hochkontaminierten Gebieten um Tschernobyl beschrieben [Lu95]. In Abb. 7 sind die wichtigen Pfade aufgeführt, die zu einer Anreicherung des Strontiums in der Nahrung führen.

Unmittelbar nach einer Deposition weisen Nahrungsmittel mit großer spezifischer Oberfläche, wie beispielsweise Blattgemüse, eine hohe Kontamination auf. Diese müssen, insbesondere nach einem kerntechnischen Unfall, überwacht werden. Nach der ersten Ernte ist die Exposition auf diesem Pfad gering. Erreicht Strontium den Boden, so kann es auf zwei Wegen in die Nahrungskette gelangen. Eine Aufnahme durch die Wurzeln führt zur Kontamination von Pflanzen. Dienen diese der Produktion von Nahrungsmitteln, so erfolgt eine direkte Exposition durch ihren Verzehr. Die Kontamination von Futtermitteln verursacht eine Anreicherung im Fleisch und insbesondere in der Milch. Während sich gezeigt hat, daß die Deposition von Milch und Getreide schnell nach der ersten Depositionsperiode abnimmt, erfolgt die Verringerung der Kontamination von Obst und Gemüse langsamer. Daher wird erwartet, daß eine langfristige Änderung der Aufnahme von Strontium-90 durch eine Änderung der Verzehrsgewohnheiten erreicht werden kann [UN82]. Durch die geringere Mobilität und

Pflanzenverfügbarkeit erfolgt ein schnellerer Rückgang der Kontamination von Lebensmitteln mit Cäsium-137 [Si96].

Nach dem Unfall von Tschernobyl wurden die Bewohner der hochkontaminierten Gebiete umgesiedelt und die landwirtschaftliche Produktion eingestellt. Durch den Transport mit dem Grundwasser und dem Fluß Dnjeper gelangen aber weiterhin Radionuklide aus dieser Zone in die Nahrungskette der ukrainischen Bevölkerung. Aufgrund der geringeren Mobilität des Cäsium-137 trägt dieses nur im oberen Lauf des Flusses zur Exposition durch Wasser bei, obwohl in Folge des Unfalls eine höhere Aktivität emittiert wurde (Tab. 4, S. 10). Südlich des Raums Kiew ist Strontium-90 von größerer Bedeutung, wenn auch die Gesamtexposition durch diese beiden Radionuklide verglichen mit der natürlichen gering ist [Vo96].

Ende der siebziger Jahre betrug die mittlere ^{90}Sr -Aktivität in den Knochen Erwachsener in der Bundesrepublik Deutschland $45 \text{ mBq g}^{-1} \text{ Ca}$ [De72]. Typische Werte für die Bevölkerung der gemäßigten Breiten der Nordhalbkugel liegen im Bereich von $40 \text{ mBq g}^{-1} \text{ Ca}$. Dies entspricht einer durchschnittlichen Gesamtaktivität des Skeletts von 40 Bq . Seit dem Beginn der siebziger Jahre nimmt die ^{90}Sr -Konzentration im menschlichen Skelett mit einer effektiven Halbwertszeit von 14 Jahren ab [Vö85].

Die hohe Radiotoxizität des Strontium-90 und des Tochternuklids Yttrium-90 wird durch den Einbau in das Skelett und die darauf folgende Einwirkung der emittierten β -Teilchen auf das blutbildende Knochenmark und das an die Knochen grenzende Gewebe verursacht. Während der Teilung sind die Zellen besonders anfällig für Strahlenschäden. Somatische Frühschäden können ab einer Dosis von 0,2 bis 1 Sievert zu einer Veränderung des Blutbildes führen. Das blutbildende Knochenmark und die an die Knochen angrenzenden Zellen stellen die kritischen Organe nach einer ^{90}Sr -Inkorporation dar. Unter der Voraussetzung gewöhnlicher Lebens- und Verzehrsgewohnheiten kann die Organdosis eines Menschen abgeschätzt werden, der sich von den landwirtschaftlichen Produkten eines kontaminierten Agrarlandes ernährt. Diese beträgt $0,3 \mu\text{Gy} / (\text{Bq m}^{-2})$ für das rote Knochenmark bzw. $0,4 \mu\text{Gy} / (\text{Bq m}^{-2})$ für die angrenzenden Zellen [UN83]. Legt man die Organwichtungsfaktoren der ICRP 1990 von 12 % bzw. 1 % zugrunde, so beträgt die Personendosis $H_{\text{eff},50} 40 \mu\text{Gy} / (\text{Bq m}^{-2})$. Dieser Wert kann jedoch abhängig vom Alter, Geschlecht, Verzehr- und Lebensgewohnheiten des Menschen schwanken. So läßt sich die durch einen atmosphärischen Kernwaffentest verursachte Dosis auf dem Expositionspfad

Atmosphäre-Erdoberfläche-Nahrung-Gewebe abschätzen. Beläuft sich die Gesamtproduktion, wie oben abgeschätzt (Abschnitt 1.2.6, S. 10), auf $8,3 \times 10^{17}$ Bq, so wurde einem erwachsenen Menschen in den gemäßigten Breiten der nördlichen Hemisphäre durch Strontium-90 eine Dosis ($H_{\text{eff},50}$) von etwa 170 μGy zugeführt [UN82]. Aufgrund von Messungen der ^{90}Sr -Konzentration des menschlichen Skeletts wurde die durch Kernwaffen akkumulierte effektive ^{90}Sr -Folgedosis ($H_{\text{eff},50}$) in der Schweiz auf 130 μGy abgeschätzt [Vö85].

2 Bisherige Methoden zur Erfassung der $^{89/90}\text{Sr}$ -Aktivität

Grundlage jeder Aussage über das ökologische Verhalten eines Radionuklids ist die sichere Erfassung der Aktivität in Umweltpoben. Da es sich sowohl beim Strontium-89 als auch bei Strontium-90 um β -Strahler handelt, ist eine zerstörungsfreie Analyse wie bei den γ -Strahlern nicht möglich. Die einzige Ausnahme ist durch die Detektion der beim Durchgang der Elektronen durch die Materie emittierten Bremsstrahlung gegeben [Bu94]. Für die Bestimmung der ^{90}Sr -Aktivität von Umweltproben ist diese Methode jedoch zu unspezifisch und daher nicht geeignet. Aufgrund der großen Wechselwirkung der Elektronen mit der Materie ist eine Matrixtrennung immer erforderlich. Da es sich bei den β -Emissionen um Elektronen einer Energie von 0 MeV bis zu der für das betreffende Nuklid spezifischen Maximalenergie handelt, ist es notwendig, für eine sich anschließende radiometrische Detektion alle β -Strahler abzutrennen.

Nach der Probenahme läßt sich der gesamte analytische Arbeitsgang von der Einlieferung der Probe bis zur Berechnung der Aktivität in drei Hauptschritte unterteilen (Abb. 8): Probevorbereitung, radiochemische Trennung und Detektion. Sind diese Komponenten in den bestehenden Verfahren auch sorgfältig aufeinander abgestimmt, so lassen sich die einzelnen Arbeitsgänge doch häufig untereinander kombinieren.

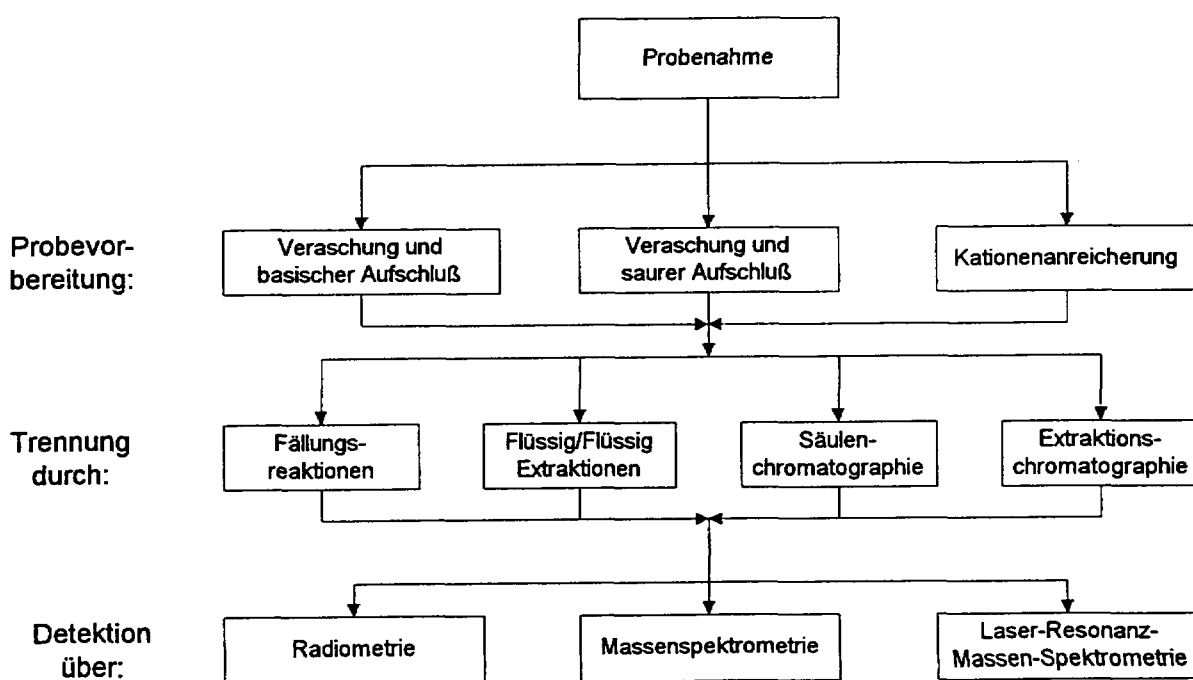


Abb. 8 : Die drei Hauptschritte der ^{90}Sr -Analyse und ihre Kombinationsmöglichkeiten.

2.1 Probeaufbereitung und Aufschluß

Da organische Bestandteile vieler Umweltproben, wie Humin- und Fulvosäuren, Kationen komplexieren, müssen sie vor Beginn der Trennung entfernt werden. Dies erfolgt bei der Analyse fester Proben meist durch eine trockene Veraschung indem mehrere Stunden auf 400 bis 600 °C erhitzt wird. Da Strontium auch bei höheren Temperaturen nicht flüchtig wird und zum Teil bei 600 °C keine vollständige Veraschung erreicht werden kann, besteht grundsätzlich die Möglichkeit, noch höhere Temperaturen anzuwenden. Es hat sich jedoch gezeigt, daß die beginnende Sinterung zu Analyteinschlüssen führen kann, die eine darauffolgende Extraktion erschwert. Eine vollständige Veraschung bei den oben genannten Temperaturen wird jedoch erreicht, wenn dem vorveraschten Boden vor einer erneuten Erhitzung Salpetersäure zugegeben wird [Pi95]. Die sich bildenden nitrosen Gase stellen ein aggressives Oxidationsmittel dar.

Weist die Matrix einen hohen Sulfatanteil auf, so muß das Strontium durch einen alkalischen Aufschluß zunächst in das Carbonat überführt werden. In den meisten Fällen ist dies jedoch nicht notwendig, so daß eine saure Extraktion an die Veraschung angeschlossen wird. Dies erfolgt beispielsweise durch mehrmalige Extraktion mit heißer Salzsäure [Bi92] oder mehrstündiges Kochen am Rückfluß [Ho69]. Nach nuklearen Unfällen ist zu erwarten, daß ein Anteil der Emission in Form der keramischen Brennstoffmatrix erfolgt. Diese wird durch Salzsäure nicht oder nur unvollständig aufgeschlossen, so daß in diesem Fall Salpetersäure zur Extraktion des Strontiums verwendet werden muß [Kr94, Ou93]. Dies hat des weiteren den Vorteil, daß Spuren der organischen Bestandteile der Probe, die die trockene Veraschung nicht zerstörte, vollständig oxidiert werden. Ist eine Entfernung der Silikate erforderlich, so erfolgt das Abrauchen in einer Lösung aus Wasserstoffperoxid, Salpeter-, Perchlor- und Flußsäure [Bo82].

Für flüssige Proben wie Milch und Urin hat sich vor allem die nasse Veraschung als Probenvorbereitung bewährt. Bei einem hohen Anteil an organischen Bestandteilen wird die Probe beispielsweise in konzentrierter Schwefelsäure unter Zugabe eines Oxidationsmittels wie Wasserstoffperoxid erhitzt [Me92]. Ist sichergestellt, daß organische Bestandteile nicht stören, kann Strontium auch direkt auf einem Kationenaustauscher angereichert werden. Eine Veraschung ist in diesem Fall nicht notwendig [Ov88].

Eine sehr schnelle Möglichkeit, organische Proben zu veraschen stellt die Entwicklung eines auf bis zu 800 °C aufheizbaren Wirbelschichtreaktors dar. Flüssige und nach Modifikation des Gerätes bzw. Zerkleinerung des Gewebes auch feste organische Proben können innerhalb weniger Stunden in einem reduzierenden oder oxidierenden Gasstrom verascht werden [Ab97]. Die Methode stellt durch die geringe benötigte Arbeitszeit und die breite Anwendung auf eine Vielzahl von Matrices eine wichtige Weiterentwicklung in der ^{90}Sr - und Umweltanalytik dar.

2.2 Radiochemische Trennung

Durch die neutroneninduzierte Spaltung des Urans und des Plutoniums werden vor allem Nuklide nahe den Massenzahlen 100 und 138 gebildet. Bei der Strontium-Analytik stellt die Abtrennung der übrigen Erdalkalimetalle einen zentralen Schritt dar, da das chemische Verhalten dieser Elemente dem Analyt sehr ähnlich ist.

In den Schichten von Bodenproben einer Tiefe von 0 bis 20 cm sind Strontiumgehalte von 240 ppm typisch [Li87]. Es wurden allerdings auch Konzentrationen von 60 bis 400 ppm bestimmt. Dieses Strontium liegt zum Teil in mineralischen Verbindungen vor und wird nicht durch jeden Aufschluß vollständig gelöst. Unter der Annahme, daß die gesamte Fraktion bei der Extraktion erfaßt wird, kann die in der Probe maximal natürlich vorhandene Trägermenge abgeschätzt werden. In einer Probe von 100 g Boden ist daher im Mittel mit 24 mg Strontium zu rechnen. Die zu erwartende Schwankungsbreite beträgt etwa 6 bis 40 mg.

Radioisotope des Calciums werden bei der thermischen Spaltung des Urans nicht gebildet. Die Abtrennung dieses Elements ist daher zur vollständigen Reinigung des Strontiums von anderen Radionukliden nicht notwendig. In Proben, die natürlichen Ökosystemen entnommen wurden, ist aber zum Teil mit erheblichen inaktiven Anteilen dieses Elements zu rechnen. So enthalten Böden gewöhnlich 0,1 bis 1,2 % Calcium. Handelt es sich bei der Matrix um Gips- oder carbonathaltiges Gestein (Dolomite), so liegt der Anteil oft beträchtlich höher [Sc92]. Desweiteren weist Milch und die daraus hergestellten Nahrungsmittel einen hohen Anteil dieses Elements auf. Das mineralische Skelett des Menschen besteht aus Apatit und daher zu etwa 20 % aus Calcium. Eine Abtrennung der Calcium-Matrix kann für die sich anschließende Messung der Aktivität des Radiostrontiums erforderlich sein. Dies ist

beispielsweise der Fall, wenn eine spätere Detektion des Radiostrontiums aus einem Niederschlag, etwa in einem Proportionalzähler, erfolgen soll. Bei Verwendung einer solchen Meßeinrichtung muß sichergestellt sein, daß durch Selbstabsorptionseffekte schwankender Mengen mitgefällten Calciums die Zählausbeute nicht verändert wird.

Beim Barium, dem schwereren Homologen des Strontiums, liegt der umgekehrte Fall wie beim Calcium vor. Der Anteil an der Erdkruste ist mit $2,6 \times 10^{-4}$ (260 ppm) [Ho85] als gering anzusehen, und in Umweltproben sind daher keine störenden Matrixeffekte zu erwarten. Allerdings wird Barium-140 mit einer Isobarenausbeute von 6,2 % bei der thermischen Spaltung von Uran-235 in vergleichbaren Mengen wie Strontium gebildet (5,84 %, Tab. 2). Die β -Emission dieses Nuklids ($E_{\beta, \max} = 1020$ KeV) führt nach seiner unvollständigen Trennung zur Erhöhung des Untergrundsignals und damit zu einer Fehlbestimmung der Aktivität.

Radium wird wie Calcium bei der thermischen Spaltung des Urans und Plutoniums nicht gebildet. Es handelt sich bei diesen Nukliden jedoch um Folgeprodukte des ubiquitären Uran-238 (^{226}Ra) und Uran-235 (^{223}Ra), sowie des Thoriums (^{228}Ra und ^{224}Ra). Daher sollte bei der Analyse jeder Umweltprobe eine Abtrennung dieses Elements erfolgen.

Von der Vielzahl der anderen Radioisotope verhält sich insbesondere das Blei-210 in vielen Trennungsschritten ähnlich wie das Strontium. Das zweiwertige Pb^{2+} -Kation bildet beispielsweise schwer lösliche Sulfate und mit dem 18-Krone-6-Ether stabile Komplexe, die als Nitrate vorliegen. Da es sich um ein Folgeprodukt des Uran-238 handelt, ist in allen Bodenproben mit diesem Nuklid zu rechnen. Durch den Aufbau des Tochternuklids Bismut-210 mit einer Halbwertszeit von 5,01 d kann es die Kinetik des Yttrium-90 ($T_{1/2} = 2,67$ d) vortäuschen.

Um eine ausreichende Isolation des Strontiums zu gewährleisten, wurde eine Vielzahl von Trennungsgängen beschrieben [Wa92, Bi92, Cl95]. Während früher vorwiegend Fällungsreaktionen genutzt wurden, gewinnen flüssig/flüssig-Extraktionen, chromatographische Methoden, sowie die Massenspektrometrie zunehmend an Bedeutung.

Auf O. Hahn und F. Straßmann geht die Entwicklung der Nitrat-Methode zurück [Wa92]. In diesem komplexen Trennungsgang, in dem Strontium durch eine Vielzahl von Fällungsreaktionen gereinigt wird, findet die Abreicherung der Calcium-Matrix unter

Ausnutzung der unterschiedlichen Löslichkeit der Nitrats statt. Nach der Abtrennung der Erdalkalielemente als Sulfate schließen sich mehrere Reinigungsschritte an. Unter anderem findet die Ausfällung des Strontiumnitrats in rauchender Salpetersäure statt, während das Löslichkeitsprodukt des Calciums unter diesen Bedingungen nicht überschritten wird. Der Niederschlag wird nach dem Absaugen mit einer Waschlösung aus Ethanol und Diethylether gereinigt. Bei der Durchführung dieser Nitrat-Fällung ist ein Kontakt von konzentrierter Salpetersäure und organischem Lösungsmittel unbedingt zu vermeiden, da er zur Bildung von explosiven Gemischen führen kann. Die Abtrennung des Bariums und Bleis erfolgt in diesem Trennungsgang durch eine Chromat-Fällung [Bi92, Wi91].

Um die oben beschriebene Handhabung rauchender Salpetersäure insbesondere bei großen Salzfrachten zu vermeiden, sind viele Variationen vorgeschlagen worden. So ermöglicht es die Ausfällung der Erdalkalielemente als Oxalat, Calcium abzutrennen ohne rauchende Salpetersäure zu verwenden [Bu91]. Im weiteren Verlauf des Trennungsganges wird die unterschiedliche Löslichkeit der Oxalate in Abhängigkeit vom pH-Wert genutzt. Ferner bieten chromatographische und Extraktionsmethoden eine Möglichkeit, diesen Schritt zu ersetzen. So gelingt es durch die Extraktion des Strontiums aus der salzsauren Aufschlußlösung mit in Chloroform gelösten Dicyclohexano-18-Krone-6-Ether Calcium und die meisten anderen Radionuklide abzutrennen [Pi95]. Für die Reinigung von den verbleibenden Nukliden können weitgehend die gleichen Fällungsreaktionen benutzt werden wie in der Nitrat-Methode.

Strontium liegt nach der Probenvorbereitung meist in einer wäßrigen sauren Lösung vor. Eine weitere Alternative die aufwendige Reinigung des Strontiums zu vermeiden stellt die Isolation des Tochternuklids dar. Denn grundsätzlich ist es möglich, das Strontium-90 oder das Yttrium-90 für die Bestimmung der Aktivität zu nutzen. Als Extraktionsmittel sind häufig in der Wiederaufarbeitung verwendete organische Lösungsmittel eingesetzt worden. Da diese meist Strontium nur unzureichend komplexieren, wird eine zweistufige Extraktion des Yttrium durchgeführt. Die organische Phase entfernt in der ersten Reinigung zunächst die dreiwertigen Ionen quantitativ aus der Probelösung, das zweiwertige Strontium verbleibt hingegen in der wäßrigen Phase. Da die Trennung jedoch nicht spezifisch erfolgt, enthält das Extraktionsmittel viele höherwertige Kationen, darunter auch β -Strahler. Daher wird die erste Lösung verworfen und nach erfolgter Gleichgewichtseinstellung die zweite Extraktion durchgeführt. Das neu aufgebaute Yttrium-90 läßt sich nun als einziges Kation extrahieren, da alle störenden Nuklide

bereits bei der ersten Trennung entfernt wurden. Steht genügend Zeit zur Verfügung um den Aufbau des Tochternuklids abzuwarten, so ermöglicht es diese Analytik die aufwendige Reinigung des Strontiums zu vermeiden. Allerdings muß sichergestellt sein, daß die übrigen in der Lösung verbleibenden Radionuklide keine Tochternuklide aufbauen, die die Detektion des Yttrium-90 beeinflussen. Als Extraktionsmittel fanden unter anderem Bis-(2-ethylhexyl)-orthophosphorsäure (HDEHP) [Fo69, Al70, Bo82, Bo86] und Tributylphosphoxid (TBPO) [Ba69, Me92] Verwendung.

Eine Strontiumisolierung kann durch die Extraktion mit Kobalt-dicarbolid $\{[\pi\text{-}3\text{-}1,2\text{-B}_9\text{C}_2\text{H}_{11}]_2\text{Co}\}^-$ [Ma85] in Nitrobenzol durchgeführt werden [Wa92]. Die Löslichkeit des zweiwertigen Kations in organischen Flüssigkeiten ist so gering, daß dafür ein Komplexbildner notwendig ist. Die Extraktion des Strontiums in die organische Phase gewinnt seit der genaueren Charakterisierung der unten beschriebenen Kronenether [Ge81] zunehmend an Bedeutung.

Kationenaustauscher wurden nicht nur zur Voranreicherung des Strontiums, sondern auch zur Trennung insbesondere vom Calcium und Barium eingesetzt [Or88, Ta97]. Nach einer Separation der Erdalkalielemente von der Matrix können diese auf einer Kationensäule getrennt werden [St88, De88]. Der Einsatz von Komplexbildnern wie Lactat, α -Hydroxybuttersäure und Ethylendiamintetraacetat (EDTA) führt zu einer weiteren Verbesserung der Methode [Se70].

Die Anreicherung und Trennung ist durch eine Zweisäulentechnik automatisiert worden. Kationen in einem Probevolumen von bis zu 500 ml werden auf einer Vorsäule aufkonzentriert [La89] bzw. verascht und eingengt [Di97] und danach auf einem zweiten Austauscherharz getrennt.

Eine Zwischenstellung zwischen den Extraktionsmethoden und der Säulenchromatographie nehmen die Kronenether ein. Schon 1967 wies Pedersen auf die besonderen Vorteile dieser Substanzen zur Trennung von Kationen hin [Pe67]. Im Verlauf der achziger Jahre wurden eine Vielzahl neuer Kronenether dargestellt und auf ihre Kationenselektivität getestet. Dabei stellte sich der 18-Krone-6-Ether für Sr^{2+} -Kationen als sehr selektiv heraus. Durch Variation der Reste am Ring gelang es die Löslichkeit in der organischen Phase und damit die Einsatzmöglichkeiten zur flüssig/flüssig-Trennung erheblich zu erweitern [Ge81, Ta93].

Zunächst wurden die Kronenether vor allem zur Trennung von Kationen zwischen organischer und wäßriger Phase verwendet. Erste auf Harzen verankerte Kronenether waren für die Chromatographie in stark saurem Milieu noch nicht geeignet. Horwitz und Dietz lösten den 4,4'(5')-Bis-(tert-butylcyclohexano)-18-Krone-6-Ether in Oktanol und überzogen mit dieser Lösung ein poröses organisches Trägermaterial [Ho91]. Derart fixiert bildet der Kronenether mit dem Strontium stabile Nitrat-Komplexe, die eine weitgehend selektive Anreicherung und Reinigung ermöglichen. Nach dem Wechsel der Spüllösung läßt sich das Strontium quantitativ eluieren. Dieses Austauscherharz zeigt eine hohe Selektivität für Strontium und verträgt stark saure Lösungen. Ferner ist es möglich große Volumina und hohe Salzfrachten zu trennen.

2.3 Radio- und massenspektrometrische Detektionsmöglichkeiten

Für die Detektion des Radiostrontiums stehen mit Flüssigszintillations-Zählern, Proportional- und Cerenkovmeßgeräten mehrere radiochemische Detektoren zur Verfügung.

Cerenkov-Strahlung tritt immer dann auf, wenn geladene Teilchen (Elektronen) ein transparentes Medium mit einer Geschwindigkeit durchdringen, die größer als die Phasengeschwindigkeit des Lichts in dem Medium ist. Charakteristisch ist ferner, daß die Abstrahlung bei konstanter Teilchengeschwindigkeit unter einem bestimmten Winkel θ zur Bahn des Elektrons erfolgt. Durch die Bestimmung dieses Winkels im Cerenkov-Zähler kann auf die Geschwindigkeit und Energie des Teilchens zurückgeschlossen werden [Sc88]. Liegt der Analyt beispielsweise in einer wäßrigen Lösung vor, so kann mit Flüssigszintillations-Zählern (Liquid Scintillation Counter, LSC) ein Cerenkov-Spektrum gemessen werden.

Gewöhnlich werden diese Geräte jedoch lediglich zur Detektion der Szintillationen verwendet. Um die kinetische Energie des Elektrons in Lichtblitze umzuwandeln, erfolgt die Zugabe eines organischen Leuchtstoffs, des Szintillators. Über eine Kaskade von Molekülen wird die Energie von den Elektronen oder Heliumkernen des radioaktiven Zerfalls zunächst auf die Lösungsmittelmoleküle, dann auf primäre und schließlich auf sekundäre Szintillatoren übertragen. Diese emittieren die Anregungsenergie als Fluoreszenzen. Die Anzahl der erzeugten Lichtblitze ist der Energie des emittierten Teilchens proportional. Ein Sekundärionenvervielfacher zeichnet Impulse proportional zur Energie des einfallenden Teilchens auf. Je nach Aufbau des Geräts ermöglicht ein Vielkanalanalysator über die Analyse des Spektrums die Reinheit der Trennung zu kontrollieren. Des weiteren kann der Aufbau von

Tochternuklidern zeitlich verfolgt und α - von β -Strahlung diskriminiert werden. Der Flüssigszintillations-Zähler bietet durch die 4π -Geometrie den Vorteil einer hohen Zählausbeute von nahezu zu 100% für hochenergetische β -Strahler.

Als weiteres radioanalytisches Meßgerät steht der Proportionalzähler zur Verfügung. In einer Zählkammer erzeugen emittierte Elektronen eine ihrer Energie proportionale Spannungsänderung, die elektronisch verstärkt wird.

Ohne Verwendung eines Spektrometers ist es nur möglich die Anzahl der Zerfälle, nicht aber ihre Energie zu messen. Ferner können Verunreinigungen aufgrund der uncharakteristischen Strahlung nur durch die Aktivitätsänderung erkannt werden. Daher erfolgt der Nachweis des Strontium-90 häufig über die Kinetik des Tochternuklids Yttrium-90. Bei Meßzeiten im Bereich der Halbwertszeit von 2,67 Tagen kann durch die Aufnahme der Zerfallskurve die Reinheit der Trennung überprüft werden.

Anstelle der Elektronen kann zur Detektion auch die Bremsstrahlung, die Elektronen erzeugen, genutzt werden. So beschreibt Burkhart die in-vivo-Messung an Menschen zur Abschätzung der Strahlenexposition der Bevölkerung in der Region des Südurals, die durch den Betrieb der Plutoniumfabrik Mayak Radiostrontium inkorporiert haben [Bu94].

Das Nachweisvermögen der einzelnen Geräte ist stark von der Abschirmung und der Matrix der Probe abhängig. In der Regel können Aktivitäten von 20 bis 500 mBq nachgewiesen werden [Bi92].

Massenspektrometrische Verfahren ermöglichen nicht nur die Bestimmung des Strontium-90 sondern die simultane Erfassung des Isotopenverhältnisses $^{90}\text{Sr}/^{89}\text{Sr}$ bzw. $^{90}\text{Sr}/^{88}\text{Sr}$. Es ist notwendig, das einzige stabile Isobare Zirkonium-90 in der Analyse quantitativ abzutrennen und bei der Detektion Interferenzen durch Molekülonen zu vermeiden [Ba93]. Bei der Wahl einer massenspektrometrischen Detektion ist die Effizienz der isobaren Reinigung zentral für die Leistungsfähigkeit der Detektion und der gesamten Methode. Wird 1 mg Strontium-Träger eingesetzt, so ergibt sich das Verhältnis der Massen 90/88 bei einer ^{90}Sr -Aktivität von 1 Bq zu $3,1 \times 10^{-13}$. Es ist daher günstig, die Trennung mit möglichst geringem Zusatz von stabilem Strontium bzw. trägerfrei [Wa92] durchzuführen.

Durch die Laser-Resonanz-Massen-Spektrometrie (LRMS) gelingt es, die Radiostrontiumisotope sicher von stabilem isobaren Trägeranteil abzutrennen. Ähnlich der Beschleunigermassenspektroskopie wird der Analyt zunächst ionisiert, durch ein Potential von 35 bis 60 keV beschleunigt und mit Hilfe eines Magneten von dem Hauptanteil an stabilem Strontium getrennt. Durch die Überlagerung dieses monoenergetischen schnellen Atomstrahls mit einem Laser spalten die Energieniveaus für die Resonanzbedingungen der unterschiedlichen Isotope auf. Nach der Anregung der Atome in Rydbergzustände werden sie durch ein elektrisches Feld selektiv ionisiert, erneut abgelenkt und detektiert. 5×10^8 Atome Strontium-90 konnten mit diesem Verfahren in Anwesenheit von 10^{17} stabilen Atomen Strontium-88 innerhalb von einer Stunde Meßzeit nachgewiesen werden [Wa92, Mo93, We97].

3 Aufgabenstellung

Bisher wurde für die Abtrennung des Strontium-90 aus Bodenproben ein Trennungsgang verwendet, der eine Vielzahl von Fällungsreaktionen und die Handhabung aggressiver Chemikalien, wie der Nitrat-Fällung in rauchender Salpetersäure, erfordert. Ferner war es notwendig, die Einstellung des radiochemischen Gleichgewichtes zwischen Strontium-90 und dem Tochternuklid Yttrium-90 vor Beginn der Aktivitätsmessung abzuwarten, so daß von dem Einliefern der Probe bis zur Ermittlung der Aktivität zwei bis drei Wochen vergingen. Die Erfassung einer eventuell vorliegenden ^{89}Sr -Kontamination war nicht vorgesehen.

Daher sollte in dieser Arbeit eine Methode entwickelt werden, die den naßchemischen Aufwand der Routineanalytik zur Bestimmung von Strontium-90 in Bodenproben verringert. Um nach einem kerntechnischen Unfall eine schnelle Aussage über die Kontamination von Umweltproben zu ermöglichen, soll die Erfassung der Radiostrontiumaktivität in wenigen Tagen erfolgen. Da in frischem Fallout ebenfalls mit einer ^{89}Sr -Kontamination zu rechnen ist, soll die gleichzeitige Bestimmung des Strontium-90 und Strontium-89 möglich sein. Darüber hinaus soll das Verfahren auch für routinemäßiges Umweltmonitoring anwendbar sein.

Die Einsatzfähigkeit dieser Analytik soll beispielhaft mit Referenzmaterialien und ^{89}Sr -kontaminierten Proben dokumentiert werden.

Der globale Fallout der sechziger Jahre und die lokale Kontamination durch den Unfall von Tschernobyl stellen die wichtigsten Quellen der ^{90}Sr -Kontamination von Umweltproben dar. An ausgewählten chilenischen, antarktischen und ukrainischen Proben soll die Immission mit der zu entwickelnden Methode beispielhaft gemessen und mit bestehenden Daten verglichen werden.

4 Experimentelles

Nach der trockenen Veraschung der Böden im Muffelofen erfolgt der Aufschluß in Salz- oder Salpetersäure. Daraufhin werden die Erdalkalielemente als Sulfate von der Matrix getrennt. Um eine ausreichende Abreicherung des Bariums zu erlangen, folgt eine Chromat-fällung. Strontium wird daraufhin auf einem Austauscherharz angereichert und extraktionschromatographisch von den übrigen Ionen getrennt. Die Detektion des Anstiegs der Aktivität des Tochternuklids Yttrium-90 erfolgt mit einem Flüssigszintillations-Spektrometer.

4.1 Entnahme und Vorbereitung der Proben

Die Probenahmen fanden auf freien, durch landwirtschaftliche Maschinen (Pflügen) und Vieh (Viehtritt) so weit möglich unbeeinträchtigten Flächen statt. Wie in Abb. 9 dargestellt, wurde der Boden etwa 50 cm tief ausgehoben, so daß eine Säule von einer Grundfläche von 20 cm mal 20 cm zu zwei Seiten freigelegt war. Daraufhin erfolgte die Markierung der in der Skala angegebenen Tiefen. Die auf diese Weise gekennzeichneten Horizonte wurden schichtweise abgetragen. Befand sich an dem Standort eine Vegetationsdecke, so fand die Entnahme einer Bewuchsprobe statt.

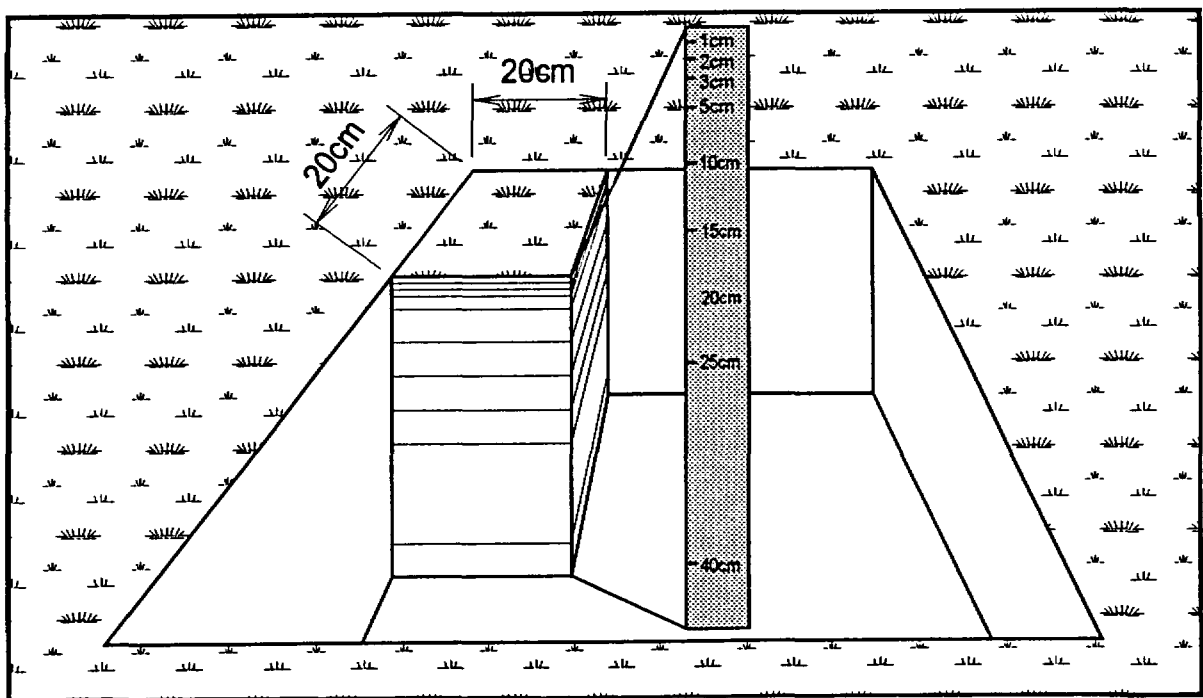


Abb. 9 : Zur Probenahme wurde eine Vertiefung ausgehoben und eine 20 cm × 20 cm große Bodensäule stehen gelassen. Die dargestellten Markierungen ermöglichen das schichtenweise Abtragen des Profils.

Die Proben wurden zunächst an der Luft getrocknet (14 Tage), gemahlen und gesiebt (2mm Maschenweite). Daraufhin erfolgte die zweite Trocknung bei 105 °C (48 Stunden). Die Proben wurden luftdicht verpackt, verschickt und gelagert. Durch die Trennung in höher kontaminierte Profile aus dem Bereich um Korosten und durch den Unfall von Tschernobyl geringer beeinträchtigte aus dem Gebiet um Zitomir sowie der Südhalbkugel sollten Kontaminationen im Labor vermieden werden. Abhängig vom Kontaminationsgrad erfolgt die Handhabung der Proben mit unterschiedlichen Geräten in verschiedenen Räumen.

4.2 Radiochemische Abtrennung und Reinigung des Strontiums

Alle außer den gekennzeichneten Reagenzien sind vom Reinheitsgrad p. a. und wurden von der Fa. Merck (Darmstadt) bezogen. Der Boden wird zunächst durch mindestens sechsstündiges Erhitzen auf 550 °C verascht und in einen Kolben gefüllt. Der sich anschließende Trennungsgang ist in Abb. 10 schematisch dargestellt.

Nach der Veraschung erfolgt die Zugabe einer Trägerlösung von 30 mg Strontium- und 50 mg Calciumnitrat, sowie 30 Bq ⁸⁵Sr-Tracer (Amersham-Buchler, Braunschweig). Für den Aufschluß der ukrainischen Proben wird Salpetersäure (8 mol l⁻¹), für die chilenischen Salzsäure verwendet. Das Volumenverhältnis Flüssigkeit zu Asche betrug 2 : 1. Die Extraktion des Strontiums gelingt durch zweistündiges Kochen am Rückfluß.

In tonreichen Proben findet eine Abtrennung des Feinbodens durch eine Zentrifugation statt (10 Min, 19 370 g). Die auf 60 °C abgekühlte Aufschluß-Lösung wird gefiltert und die Bodenmatrix verworfen. Zu der sauren Aufschlußlösung wird zunächst im Eisbad 15 ml konzentrierte Schwefelsäure zugegeben und der pH-Wert durch langsames Zutropfen von Natronlauge (30 %) auf 1,8 eingestellt. Nach kurzem Aufkochen fallen die Erdalkalielemente während des einstündigen Rührens im Eisbad als Sulfate aus.

Diese werden durch eine Zentrifugation abgetrennt und mit gesättigter Carbonat-Lösung sowie 10 g Natriumcarbonat versetzt. Durch zweistündiges Kochen am Rückfluß gelingt die Überführung der schwer löslichen Sulfate in die Carbonate. Der Niederschlag wird abfiltriert, gewaschen und dann mit einigen Tropfen Salzsäure aufgenommen.

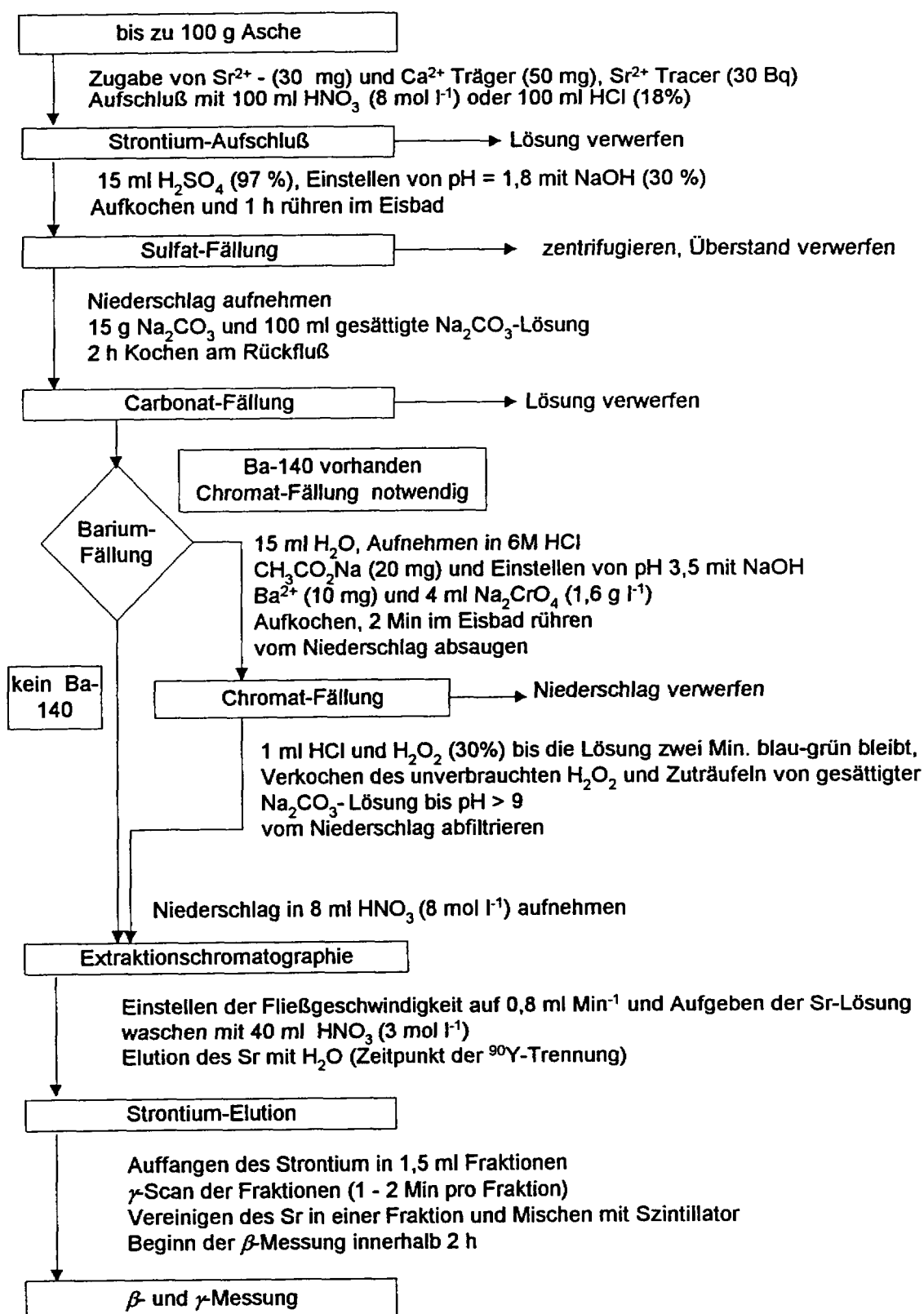


Abb. 10 : Schema der Abtrennung des Strontium-90 aus der Bodenmatrix. In Proben, die kein Barium-140 enthalten, ist die Chromat-Fällung nicht erforderlich.

Für die sich anschließende Chromat-Fällung ist es notwendig, den pH-Wert durch die Zugabe von 20 mg Natriumacetat und Natronlauge auf $\text{pH} = 3,5$ einzustellen. Um eine möglichst vollständige Abtrennung des Bariums zu erreichen, erfolgt die Zugabe von 10 mg inaktivem Träger. Auch beim Ausfällen des Bariums und Bleis mit 4 ml Natriumchromatlösung (16 g l^{-1}) sinkt die Säurekonzentration nicht unter $\text{pH} = 3,8$ ab. Nach kurzem Aufkochen (1 Min) wird 5 Minuten unter Eiskühlung gerührt, die Lösung gefiltert und der Niederschlag verworfen.

Um überschüssiges Chromat zu reduzieren, erfolgt die Zugabe von Wasserstoffperoxid (30 %) und einigen Millilitern Salzsäure bis die Lösung mindestens zwei Minuten eine grünblaue Färbung annimmt. Daraufhin schließt sich die Carbonat-Fällung des von Barium und Blei gereinigten Calciums und Strontiums an. Durch das Zuträufeln von gesättigter Carbonatlösung werden die beiden Erdalkalimetalle ausgefällt, auf einem Filter gesammelt und mit einigen Millilitern Salpersäure (8 mol l^{-1}) aufgenommen. Enthält die Probe kein Barium-140 mehr, wie in den Proben, die durch den Kernwaffenfallout der sechziger Jahre kontaminiert wurden, so kann auf die Chromat-Fällung verzichtet werden.

Die Säule für die chromatographische Trennung (Durchmesser 1 cm) enthält 3 g Austauscherharz (SrSpec, $150 \mu\text{m}$; Fa. IEChrom, Darien, Illinois), das mit einer Lösung aus dem Kronenether 4,4'(5')-Bis-(tert-butylcyclohexano)-18-Krone-6 in 1-Octanol überzogen ist. Ein freies Säulenvolumen entspricht etwa $6,5 \text{ cm}^3$, 65 % des Bettvolumens [Di91]. Das 11 cm hohe Bett wird zunächst mit 10 ml Wasser gespült und daraufhin mit 30 ml Salpetersäure (3 mol l^{-1}) konditioniert. Nachdem die Fließgeschwindigkeit auf etwa $0,8 \text{ ml pro Minute}$ eingestellt ist, wird zunächst die salpetersaure Lösung des Strontiums aufgegeben und daraufhin mit 40 ml Salpetersäure gespült. Da bei diesem Arbeitsschritt auch die Abtrennung von Yttrium-90 erfolgt, entspricht der Endpunkt der Reinigung mit der Salpetersäure dem Beginn des ^{90}Y -Aufbaus. Es schließt sich die Elution des Strontiums mit Wasser an. Barium wird nach dem Wechsel der Spüllösung von Salpetersäure auf Wasser etwa ein halbes freies Säulenvolumen (4 cm^3) vor Strontium eluiert. Bei einer zu hohen Elutionsgeschwindigkeit ($> 1,5 \text{ ml Min}^{-1}$) ist die chromatographische Trennleistung der Säule nicht mehr ausreichend, und der Beginn des Strontium-Peaks ist durch Barium kontaminiert. Das Eluat wird in Fraktionen von 1,5 ml aufgefangen und kurz (1 bis 2 Min) auf die γ -Aktivität untersucht, um die Radiostrontium-Fraktionen zu identifizieren. Diese werden in einem LSC-vial vereinigt, mit Szintillator versetzt (Ultima Gold, Fa. Packard) und die γ - und β -Aktivität gemessen.

4.3 Aktivitätsmessung und -berechnung

Für die Bestimmung der γ -Aktivität wird ein Germanium-Detektor (GMX-30200-P, Fa. EG&G Ortec) eingesetzt. Die Flüssigszintillationszählung (Liquid Scintillation Counting, LSC) findet an einem 1220 Quantulus (Fa. Wallac) mit geringem Untergrund und Pulshöhen-spektrometrie statt. Um Lumineszenzen abklingen zu lassen und eine Stabilisierung des Cocktails zu gewährleisten, beginnt die β -Zählung erst eine Stunde nach dem Durchmischen der wäßrigen Phase mit dem Szintillator. In dieser Zeit findet die Bestimmung der chemischen Ausbeute an Strontium im LSC-vial (514 KeV-Linie des Strontium-85) am GMX statt. Ist eine schnelle Ermittlung der Aktivität der Probe nicht notwendig, so wird die γ -Messung später mit einer längeren Meßzeit durchgeführt. Aufgrund der größeren absoluten Impulszahl kann die Aktivität in diesem Fall mit höherer Präzision gemessen werden. Die Bestimmung der chemischen Ausbeute ermöglicht es gleichzeitig, die vollständige Abtrennung der γ -Strahler (beispielsweise ^{140}Ba bzw. ^{133}Ba) zu kontrollieren.

Die β -Messung beginnt spätestens zwei Stunden nach der Abtrennung des Yttrium-90 auf der Extraktionssäule, so daß sich höchstens 3 % des Tochternuklids aufgebaut hat. Zur Überprüfung der Reinheit der Trennung sowie einer Korrektur des Untergrundes, werden vier bis sechs β -Messungen von drei bis sechs Stunden durchgeführt. Die Kinetik des Anstieges der Yttrium-Aktivität ermöglicht die Identifikation des Yttrium-90 und die Überprüfung der Reinheit der Trennung. Vor jeder Szintillationsmessung erfolgt eine unabhängige Bestimmung des Löscheffekts (Quench-Wertes) der Probe. Diese quasi kontinuierliche Erfassung des Zustands des Szintillators ist notwendig, um eine Veränderung des Cocktails durch einen zu hohen Salpetersäureanteil zu erkennen. Ändert sich der Quench-Effekt der Probe systematisch zu kleineren Werten, so wird das Fenster von Messung zu Messung verschoben. Um das komplexe zeitabhängige Spektrum von Strontium-90, Yttrium-90, Strontium-89 und Strontium-85 zu entfalten, werden zwei Fenster gesetzt (Abb. 11).

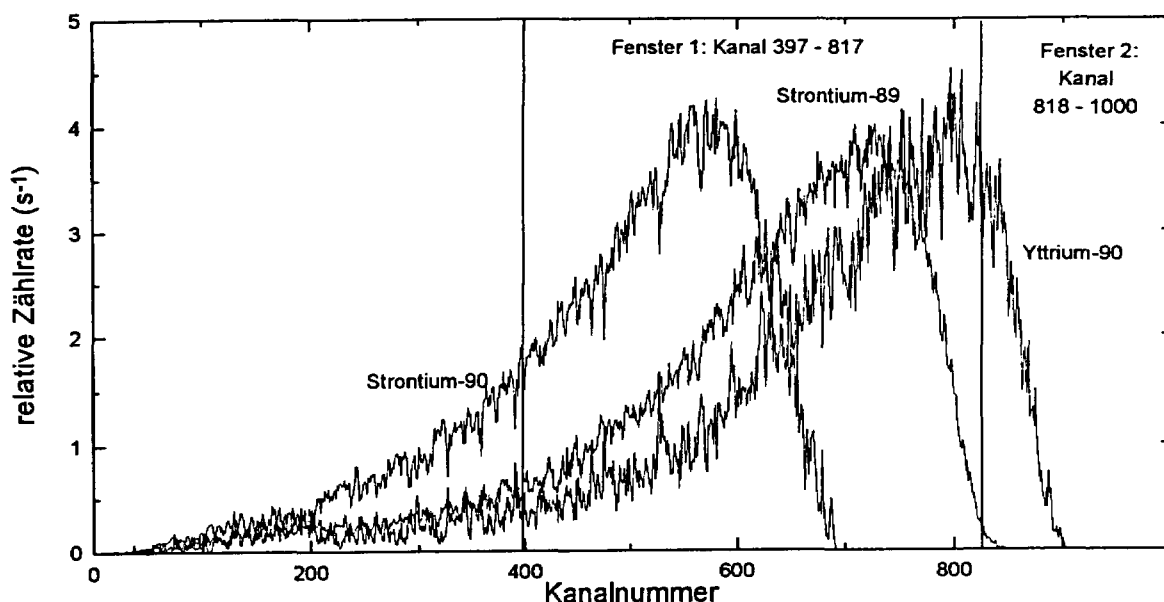


Abb. 11 : Geglättete Flüssigszintillations-Spektren des Strontium-90 ($E_{\beta, \max.} = 546 \text{ keV}$), Strontium-89 ($E_{\beta, \max.} = 1463 \text{ keV}$) und Yttrium-90 ($E_{\beta, \max.} = 2280 \text{ keV}$). Zur Bestimmung der Aktivität der einzelnen Nuklide wird das Spektrum in zwei Fenster geteilt (Standard Quench Parameter 820).

Fenster 2 beinhaltet den hochenergetischen Teil des Spektrums von etwa 1450 bis 2300 keV. In diesem Abschnitt des Spektrums findet die Detektion des Anstiegs der Aktivität des Yttrium-90 statt. Aus Abb. 11 ist ersichtlich, daß in dem hochenergetischen Fenster nur geringe Interferenzen mit anderen Nukliden zu erwarten sind. Während Strontium-90 und Strontium-85 vollständig ausgeblendet sind, wird lediglich 1 % der ^{89}Sr -Emissionen erfaßt. Falls die Proben kein Strontium-89 enthalten, wird die niederenergetische Seite des Fensters bis zu 530 keV geöffnet, um eine höhere Zählausbeute zu erreichen. Fenster 1 dient zur Detektion des Strontium-89 und liegt zwischen etwa 30 und 1500 keV. Daher enthält es nicht den Röntgen-Peak des Strontium-85. Der Untergrund wird allerdings durch den Photo- und Comptoneffekt der γ -Quanten des Tracers erhöht. Eine Ausbeutebestimmung für Yttrium ist nicht notwendig, da die Aktivität im Gleichgewicht der des Strontium-90 entspricht.

4.3.1 Berechnung der ^{90}Sr -Aktivität

Für die Bestimmung der ^{90}Y -Aktivität werden abhängig vom Quench-Effekt und dem Vorhandensein von Strontium-89 in einem zweiten Fenster die registrierten Impulse oberhalb der Kanalnummern 700 bis 800 bis über das Ende des Spektrums hinaus zu Kanal 1000 integriert. Trägt man die Spektren derselben Probe zu unterschiedlichen Meßzeiten nach der

Abtrennung des Yttrium-90 auf, so ergibt sich der in Abb. 4 dargestellte Anstieg der Zählrate. Während die Zunahme der ^{90}Y -Aktivität in den ersten Stunden etwa 1 % der Equilibriumsaktivität beträgt, kann nach 150 bis 200 Stunden kein Anstieg innerhalb der statistischen Schwankungen mehr beobachtet werden.

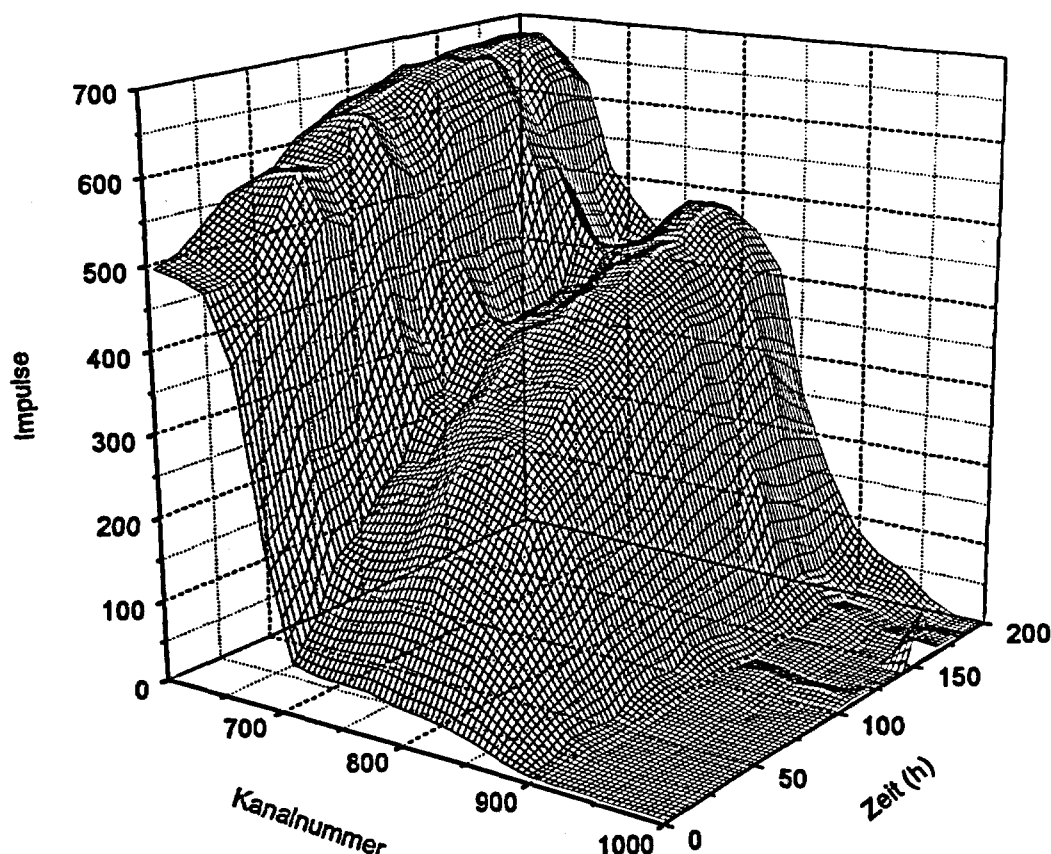


Abb. 12 : Aktivitätsanstieg im hochenergetischen Bereich des Spektrums durch den Aufbau der Yttrium-90 ($T_{1/2}^{Y-90} = 64,1$ Stunden). Dargestellt sind die ersten 200 Stunden nach der Abtrennung des Strontiums von der Matrix.

Falls eine schnelle Bestimmung der Aktivität nicht nötig ist, erfolgt die Messung des Anstiegs der Zählrate mehrmals in einem Zeitraum von zwei Wochen. Danach ist der Aufbau des Tochternuklids durch das Strontium-90 fast abgeschlossen. Yttrium-90 hat 98% der Gleichgewichtsaktivität erreicht und es erfolgt nahezu kein weiterer Anstieg.

Die zeitabhängige Zählrate der Probe $R_{2,s}(t)$ im hochenergetischen Teil des Spektrums wird durch zwei Komponenten bedingt. Zum einen liegt ein Untergrundbeitrag vor, der lediglich statistisch schwankt, zum anderen nimmt der relative Aufbau des Tochternuklids mit der Zeit zu. Nach zwei bis drei Wochen hat er innerhalb der statistischen Schwankung die

Gleichgewichtszählrate $R_{2,eq}$ erreicht. Daher wird die ^{90}Sr -Aktivität durch einen Fit der ansteigenden Zählrate der Probe $R_{2,s}(t)$ im hochenergetischen Fenster 2 bestimmt.

$$R_{2,s}(t) = R_{2,0} + R_{2,eq} [1 - e^{(-\lambda_{Y90} \cdot t)}] \quad (12)$$

Der zweite Faktor des zweiten Summanden berechnet den Aufbau der kurzlebigen Tochter Yttrium-90 ($T_{1/2} = 64,1 \text{ h}$) durch das Mutternuklid Strontium-90 ($T_{1/2} = 28,6 \text{ a}$). Dieser ist abhängig von der Zeit, die seit der Abtrennung des Yttrium-90 vergangen ist. $R_{2,eq}$ ist die Zählrate, die sich aufgebaut hat, wenn sich das radioaktive Gleichgewicht von Yttrium-90 mit Strontium-90 eingestellt hat. Für den Fit des Untergrundsignals und der Gleichgewichtsaktivität wird das Programm Origen (Fa. Microcal Software) verwendet. In Abb. 13 ist der Anstieg der Zählrate im hochenergetischen Fenster der Probe Kupetsch Tschernjanka 2 (Ukraine, 20 bis 25 cm Tiefe) dargestellt.

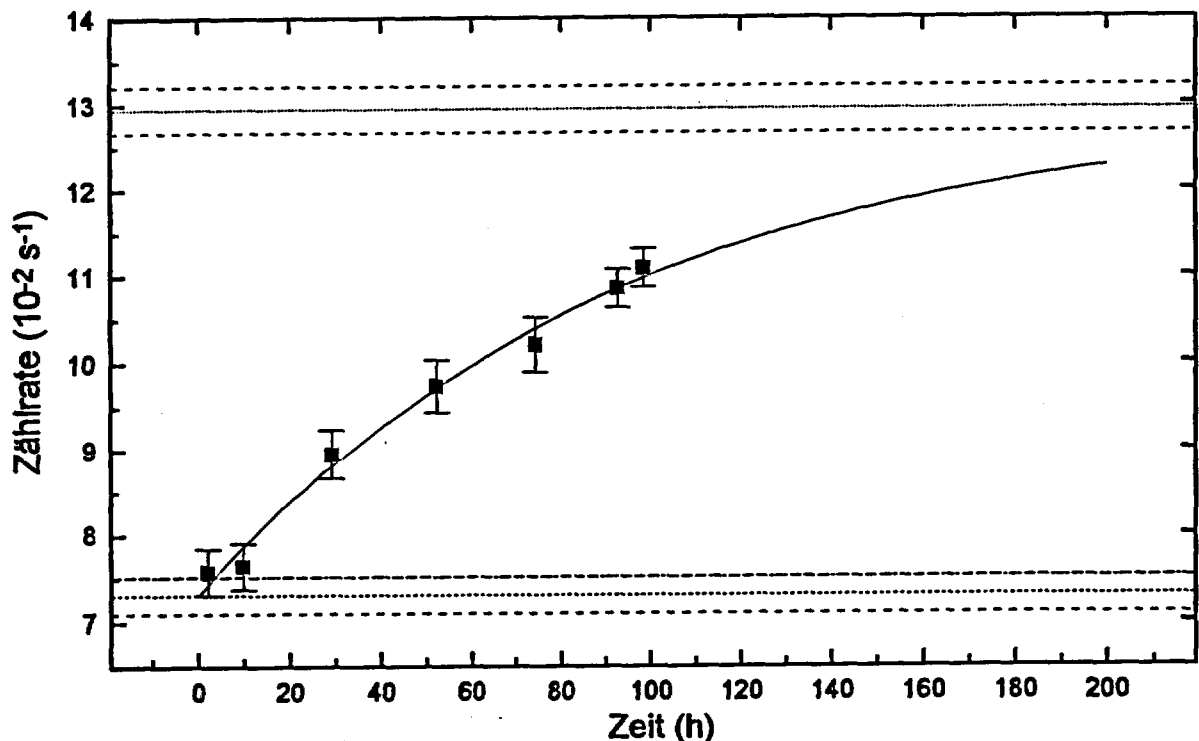


Abb. 13 : Zunahme der Zählraten (Quadrate) der Probe Kupetsch Tschernjanka 2 (Ukraine, 20 bis 25 cm Tiefe). Die gefittete Untergrund- (kurz gestrichelt) und Equilibriumszählrate (gepunktet) sind mit Fehlern eingezeichnet. Ferner ist die gefittete ansteigende Zählrate (durchgezogen) gegeben.

In den ersten Stunden nach der Trennung verläuft die Zunahme der Aktivität des Tochternuklids fast linear und die ^{90}Y -Aktivität erhöht sich um etwa ein Prozent pro Stunde. Eine Halbwertszeit (64,1 h) nach der radiochemischen Trennung ist bereits die halbe Equilibriumsaktivität aufgebaut und der Anstieg verlangsamt sich kontinuierlich. Die Tochteraktivität nähert sich asymptotisch dem radioaktiven Gleichgewicht und nach spätestens zwei Wochen kann innerhalb der statistischen Schwankungen keine Änderung mehr beobachtet werden.

Mit der chemischen Ausbeute an Strontium η_{Sr} und der Zählausbeute für Yttrium-90 $\eta_{2,\text{Y90}}$ kann die Equilibriumsaktivität der Probe berechnet werden.

$$A_{\text{Sr90}} = \frac{R_{2,\text{eq}}}{\eta_{\text{Sr}} \cdot \eta_{2,\text{Y90}}} \quad (13)$$

Über den Anstieg des Tochternuklids Yttrium-90 im hochenergetischen Teil des β -Spektrums wird also die ^{90}Sr -Zählrate gefittet. Die γ -spektrometrische Bestimmung der chemischen Ausbeute jedes vials sowie die Berücksichtigung der ^{90}Y -Zählausbeute im Fenster ermöglichen die Berechnung der absoluten ^{90}Sr -Aktivität der Probe.

4.3.2 Berechnung der ^{90}Sr -Aktivität

Die Zählrate des Strontium-89 ergibt sich entsprechend Gl. (14) aus der zeitabhängigen Zählrate der Probe in Fenster 1 $R_{1,\text{s}}(t)$. Auch in diesem Fall ist es erforderlich, den Beitrag $R_{1,\text{n}}(t)$ zu korrigieren, der nicht vom Analyten sondern von dem Tracer, dem Strontium-90 und dem Untergrund verursacht wird.

$$R_{1,\text{Sr89}}(t) = R_{1,\text{s}}(t) - R_{1,\text{n}}(t) \quad (14)$$

Das Untergrundsignal ergibt sich entsprechend Gl. (15) aus mehreren teilweise zeitabhängigen Komponenten. Unter anderem führen β - und γ -Zerfälle im Glas-vial und im Cocktail, sowie nicht abgeschirmte γ -Quanten zu einem Rauschen des Zählfläschchens. Die mittlere Nullrate des vials selbst $R_{1,0}$ ist durch eine Reihe von Leermessungen an Blank-Proben bestimmt worden. Durch Photo- und Compton-Effekte trägt auch der ^{90}Sr -Tracer zu einem Ansteigen des Signals im Fenster 1 bei ($R_{1,\text{Sr85}}$). Nach der γ -spektrometrischen Bestimmung

der Ausbeute kann dieser Anteil durch Messungen von Standard-Proben berechnet werden. Ferner erfaßt der Energiebereich dieses Fensters einen Anteil (76 %) der ^{90}Sr - und der sich aufbauenden ^{90}Y -Emissionen (76 %). Ist die Bestimmung der Equilibriumszählrate durch den Fit im hochenergetischen Fenster erfolgt, so kann dieser Beitrag zur Erhöhung des Untergrundsignals ($R_{1,\text{Sr}90}$ bzw. $R_{1,\text{Y}90}$) ebenfalls ermittelt werden.

$$R_{1,n}(t) = R_{1,0} + R_{1,\text{Sr}85}(t) + R_{1,\text{Sr}90} + R_{1,\text{Y}90}(t) \quad (15)$$

Mittels der nuklidspezifischen Zählausbeuten $\eta_{1,\text{Nuklid}}$ in Fenster 1 und der chemischen Ausbeute an Strontium η_{Sr} können die Zählraten mittels der Aktivitäten der Nuklide berechnet werden. Die Summe dieser Effekte ergibt entsprechend Gl. (16) den zu korrigierenden Gesamtuntergrund.

$$R_{1,n}(t) = R_{1,0} + A_{\text{Sr}85}(t) \cdot \eta_{1,\text{Sr}85} \cdot \eta_{\text{Sr}} + A_{\text{Sr}90} \cdot \eta_{1,\text{Sr}90} \cdot \eta_{\text{Sr}} + A_{\text{Y}90}(t) \cdot \eta_{1,\text{Y}90} \cdot \eta_{\text{Sr}} \quad (16)$$

Die chemische Ausbeute an Strontium η_{Sr} und die Zählausbeute des Strontium-89 im niederenergetischen Fenster $\eta_{1,\text{Sr}89}$ ermöglichen es daraufhin die ^{89}Sr -Aktivität im LSC-vial zu berechnen.

$$A_{\text{Sr}89}(t) = \frac{R_{1,\text{Sr}89}(t)}{\eta_{\text{Sr}} \cdot \eta_{1,\text{Sr}89}} \quad (17)$$

Wird die Aktivität der Probe über mehrere Tage gemessen, so ist der Zerfall des Strontium-89 zu berücksichtigen ($T_{1/2} = 50,5 \text{ d}$). Erfolgt die Bestimmung der Aktivität schon nach vier Messungen von je 360 Minuten, so kann die ^{89}Sr -Zählrate als zeitunabhängig angesehen werden.

4.4 Bestimmung der statistischen Kennwerte des Verfahrens

Eine detaillierte Vorschrift zur Berechnung der statistischen Kennwerte für kontinuierliche β -Spektren, die eine zeitliche Änderung aufweisen, liegt noch nicht vor. Um in der Kernstrahlungs-Meßtechnik den zufälligen Charakter des radioaktiven Zerfalls und der Impulszählung zu berücksichtigen, ist die DIN 25 482 sinngemäß anzuwenden [Mi97]. Diese beschreibt die Bestimmung der statistischen Kenngrößen, wie der Erkennungsgrenze, der

Nachweisgrenze und des Vertrauensintervalls. Zur Begriffsklärung sei angemerkt, daß die in der DIN 25 482 durch den Fehler 1. Art festgelegte Meßgröße als Erkennungsgrenze definiert ist. Die häufig zur Beschreibung normalverteilter Werte angewandte DIN 32 645 bezeichnet die durch den Fehler 1. Art bestimmte Gehaltsgröße als Nachweisgrenze und den durch den Fehler 2. Art charakterisierten Gehaltswert als Erfassungsgrenze. Die Nachweisgrenze entsprechend der Nomenklatur der DIN 25 482 legt hingegen die durch den Fehler 2. Art bestimmte Meßgröße fest. Über die statistische Streuung der Impulszählung hinaus ist für die Berechnung der $^{89/90}\text{Sr}$ -Aktivitäten der Einfluß der Probebehandlung zu beachten.

4.4.1 Berechnungsgrundlage für das hochenergetische Fenster

Die ^{90}Sr -Aktivität wird aus der Analyse der Zählrate der Probe $R_{2s}(t)$ im hochenergetischen Teil des Spektrums (Fenster 2, Abb. 11) berechnet. Prinzipiell könnte die mittlere Untergrundzählrate in diesem Fenster durch eine Serie von Blank-Proben ermittelt werden. Da sich aber die chemische Zusammensetzung der LSC-vials (^{40}K -Gehalt) unterscheidet, variiert auch der Nulleffekt der vials untereinander. Aus diesem Grund ergibt sich aus einer solchen Bestimmung eine höhere empirische Varianz für die Zählrate $R_{2,0}$ als durch die Wiederholung der Messung desselben Fläschchens bestimmt wird. Die Varianz, die sich aus der Wiederholung der Messung der Aktivität eines einzigen vials berechnen läßt, entspricht hingegen der aus der Poisson-Statistik erwarteten. Daher wird die Untergrundzählrate $R_{2,0}$ in dem Fenster 2 für jede Probe erneut bestimmt.

Der Entscheidung, wann sich ein Signal von der statistischen Schwankung der Untergrundzählrate abhebt, liegt die Anwendung der Poisson-Statistik zugrunde. Andere Unsicherheiten des Verfahrens beeinflussen diese Aussage nicht und gehen daher in die Berechnung der auf die Zählrate bezogenen Nachweisgrenze nicht ein. Erst wenn die Nachweisgrenze als spezifische Aktivität der Probe ausgedrückt wird, sind die übrigen Fehlerquellen zu berücksichtigen. Die Größe der Variationskoeffizienten (relativen Fehler) für die Probebehandlung f_g , die Fenstersetzung f_β und die Ausbeutebestimmung f_γ ist von der ^{90}Sr -Aktivität abhängig und wird in Kapitel 4.6, S. 66 diskutiert.

Zur Beschreibung des zeitabhängigen Anstiegs der Zählrate aufeinander folgender Messungen einer einzigen Probe wird ein statistisches Modell sinngemäß DIN 25 482 verwendet. Da die Untergrundzählrate und die Fehler für unterschiedliche Proben variieren,

unterscheidet sich die Nachweisgrenze von Probe zu Probe. So wird in vials, die eine hohe Untergrundzählrate (> 720 Impulse in 360 Minuten) aufweisen, absolut auch eine hohe Schwankung der Untergrundzählrate beobachtet. Dieser Effekt wirkt sich auf die Entscheidung, ob es sich bei einer Zählrate um ein hohes Untergrund- oder ein Analytsignal handelt und daher auf die Festlegung der Erkennungs- und Nachweisgrenze aus.

Liegt kein Strontium-90 in der Probe vor, so ist die zeitliche Änderung der Zählrate ausschließlich auf die statistische Schwankung der Untergrundzählrate zurückzuführen. Gemäß der Poisson-Statistik kann die Standardabweichung $\sigma_{2,0}$ aus der Quadratwurzel der absoluten Impulszahl während der Meßzeit t_m berechnet werden. Nach den ersten beiden Messungen ist es noch nicht möglich, ein aus dem Fit berechnetes Vertrauensintervall für die Untergrundzählrate anzugeben. Denn die zwei Unbekannten $R_{2,0}$ und $R_{2,eq}$ der Gl. (12), S.47 werden zu diesem Zeitpunkt durch nur zwei Meßwerte bestimmt, und die gefittete Gerade verläuft daher immer ohne Abweichung genau durch diese beiden Punkte hindurch. Aus diesem Grund wird zunächst der Poisson-Fehler der Zählrate der ersten Messung als Schätzwert für die Standardabweichung $\sigma_{2,0}$ der Untergrundzählrate $R_{2,0}$ angesetzt.

$$\sigma_{2,0} = \frac{\sqrt{t_m R_{2,0}}}{t_m} \quad (18)$$

Diese Annahme ist konservativ, da in der ersten 360 Minuten-Messung schon etwa 3 % der Equilibrium-Zählrate des Strontium-90 den Untergrund erhöhen. Der relative Fehler der Bestimmung der Untergrundzählrate beträgt nach zehn Messungen einer Probe mittlerer Aktivität (etwa 0,5 Bq) etwa 2 bis 10 %. Zur Berechnung der Erkennungsgrenze (Bq) ist es unerheblich, ob die Fenstersetzung fehlerbehaftet ist. Die Untergrundzählrate wird innerhalb der Poisson-Unsicherheit in dem ausgewählten Abschnitt des Spektrums unabhängig davon bestimmt, ob dieses Fenster beispielsweise zu groß gewählt ist oder nicht.

Die Erkennungsgrenze stellt die Zählrate dar, an der eine hohe positive Schwankung des Untergrundsignals nur noch mit der Wahrscheinlichkeit α fälschlich als Analytsignal identifiziert wird. Das Quantil der Gauß-Verteilung $k_{1-\alpha}$ ergibt sich aus dieser Wahrscheinlichkeit für den Fehler 1. Art.

$$R_{2,n}^*(s^{-1}) = k_{1-\alpha} \sigma_{2,0} \quad (19)$$

$R_{2,n}^*(s^{-1})$: Erkennungsgrenze der Netto-Zählrate des Strontium-90

$k_{1-\alpha}$: Quantil der Gauß-Verteilung

$\sigma_{2,0}$: Standardabweichung der Untergrundzählrate

Das um die chemische Ausbeute und die Zählausbeute korrigierte Produkt des Quantils der Gauß-Verteilung mit der Standardabweichung entspricht unter Vernachlässigung der Unsicherheiten von η_{Sr} und $\eta_{2,Y90}$ der Erkennungsgrenze der ^{90}Sr -Aktivität.

$$R_{2,Sr90}^*(Bq) = \frac{R_{2,n}^*}{\eta_{Sr} \eta_{2,Y90}} \quad (20)$$

$R_{Sr90}^*(Bq)$: Brutto-Aktivität des Strontium-90 an der Erkennungsgrenze

η_{Sr} : chemische Ausbeute

$\eta_{2,Y90}$: Zählausbeute im Hochenergiefenster

Um die ^{90}Sr -Nachweisgrenze $\rho_{2,n}^*$ sinngemäß nach DIN 25 482 zu definieren, ist es notwendig den Fehler 2. Art (β) festzulegen. Entsprechend Gl. (21) stellt die Nachweisgrenze den kleinsten Erwartungswert der Nettozählrate dar, ab welcher ein Analytsignal, trotz einer negativen statistischen Schwankung, mit der Sicherheit $1-\beta$ nachgewiesen werden kann.

$$\rho_{2,n}^*(s^{-1}) = R_{2,n}^* + k_{1-\beta} \sigma(\rho_{2,n}^*) \quad (21)$$

Die Standardabweichung der Netto-Zählrate an der Nachweisgrenze $\sigma(\rho_{2,n}^*)$ ergibt sich aus den Beiträgen der einzelnen Fehler gemäß Gl. (22):

$$\sigma(\rho_{2,n}^*) = \rho_{2,n}^* \sqrt{f_{Fit}^2 + f_{\beta}^2 + f_{\gamma}^2 + f_{\delta}^2} \quad (22)$$

Nach radiochemischer Gleichgewichtseinstellung entspricht die Nettozählrate der Equilibriumszählrate. Somit ergibt sich die Aktivität an Strontium-90, die mit einer gegebenen Fehlerwahrscheinlichkeit α bzw. β für den Fehler 1. bzw. 2. Art nachgewiesen werden kann:

$$\rho_{2,\text{eq}}^* (\text{Bq}) = \frac{1}{\eta_{\text{Sr}} \cdot \eta_{2,\text{Y90}}} \cdot \frac{\sigma_{2,0} \cdot k_{1-\alpha}}{\left[1 - k_{1-\beta} \cdot \sqrt{f_{\text{Fit}}^2 + f_{\beta}^2 + f_{\gamma}^2 + f_{\theta}^2} \right]} \quad (23)$$

Findet die Berechnung der Aktivität vor Einstellung des radiometrischen Gleichgewichts zwischen Yttrium-90 und Strontium-90 statt, so ist der unvollständige Aufbau des Tochternuklids gemäß Gl. (24) zu berücksichtigen. Die Nachweisgrenze steigt somit umgekehrt porportional zum bereits vorhandenen Anteil an Yttrium-90.

$$\rho_{2,\text{Sr90}}^* (\text{Bq}) = \frac{\rho_{2,\text{eq}}^*}{(1 - e^{-\lambda_{\text{Y90}} \cdot t})} \quad (24)$$

Das Vertrauensintervall wird durch den Vertrauensgrad $1-\gamma$ bzw. dem aus der Gauß-Verteilung abgeleiteten Quantil $k_{1-\gamma}$ und dem Fehler des Verfahrens f bestimmt. Dieser ergibt sich durch die Fehlerfortpflanzung aus dem Fehler des Fits f_{Fit} , der γ -Spektroskopie f_{γ} , der Fenstersetzung f_{β} und der Probebehandlung f_{θ} .

$$\Delta A_{\text{Y90}} = A_{\text{Y90}} \left(1 \pm k_{1-\gamma/2} \cdot \sqrt{f_{\text{Fit}}^2 + f_{\gamma}^2 + f_{\beta}^2 + f_{\theta}^2} \right) \quad (25)$$

4.4.2 Berechnungsgrundlage für das niederenergetische Fenster

In diesem Fenster werden Messungen an Standards verwendet, um die Beiträge der unterschiedlichen Effekte zu bestimmen. Daher geht der Fehler der Probebehandlung f_{θ} , sowie der β - und γ -Spektrometrie (f_{β} bzw. f_{γ}), in die Berechnung der Untergrund- und Analytzählrate in Fenster 1 ein. So wird beispielsweise die Aktivität des ^{85}Sr -Standards γ -spektrometrisch bestimmt und daraufhin die Erhöhung der Untergrundzählrate im β -Spektrum berechnet. Aufgrund der poisson-statistischen Schwankung der Zählrate, der geometrischen Positionierung des vials auf dem Germanium-Kristall und der Bestimmung des Quench-Effekts sind diese Größen fehlerbehaftet. Wird nun die γ -Aktivität einer Probe gemessen, so gelten für diese die gleichen Unsicherheiten. Somit ist in Fenster 1 für die Bestimmung der Brutto-Erkennungsgrenze an Strontium-89 nicht nur zu berücksichtigen, in welchem Maße die Untergrundzählrate statistisch schwankt, sondern auch mit welcher Genauigkeit dieser Beitrag festgelegt werden kann.

$$R_{1,89}^*(t) = k_{1-\alpha} \cdot \sqrt{\sigma_{1,0}^2 + \sigma_{1,85}^2 + \sigma_{1,90}(t)^2} \quad (26)$$

Die Standardabweichungen der Aktivität des Untergrundsignals (Tab. 6, S. 57) und des ^{85}Sr -Tracers (Tab. 7, S. 59) werden durch Messungen an Standards ermittelt. Da sie nicht über die Meß- sondern über die Gehaltsgrößen berechnet werden, sind bei dieser Bestimmung alle Fehlerquellen enthalten. Die mittlere Untergrundzählrate beträgt demnach $0,10 \text{ s}^{-1}$ bei einer relativen Standardabweichung von 4,7 %. Der Beitrag des Tracers ist abhängig von der absoluten ^{85}Sr -Aktivität im LSC-vial. Beträgt die chemische Ausbeute 50 % (15 Bq Strontium-85), so ergibt sich eine mittlere Zählrate von $0,90 \text{ s}^{-1}$, die eine empirische Standardabweichung von 1,5 % aufweist.

Der Fehler des Beitrags des Yttrium-90 und Strontium-90 im Fenster 1 ergibt sich durch den Fit der Equilibriumszählrate in Fenster 2. Für die Erkennung einer signifikanten Änderung der Zählrate im Fenster 1 ist es nicht notwendig, den Einfluß der Fehler der γ -Spektrometrie und der Probebehandlung zu berücksichtigen. Um die Erkennungsgrenze letztlich als Aktivität anzugeben, müssen diese Unsicherheiten jedoch gemäß Gl. (27) wieder berücksichtigt werden.

$$\sigma_{1,90}(t) = \frac{R_{2,\text{eq}}}{\eta_{2,Y90}} \cdot \sqrt{f_{\text{Fit}}^2 + f_{\beta}^2 + f_{\gamma}^2 + f_{\theta}^2} \cdot \left[\eta_{1,S90} + \eta_{1,Y90} (1 - e^{-\lambda_{Y90}t}) \right] \quad (27)$$

Die Brutto-Nachweisgrenze an Strontium-89 wird durch diejenige Zählrate $\rho_{1,S89}^*$ bestimmt, an der das Strontium-89 trotz einer statistisch negativen Abweichung des Analytsignals über positiv streuendem Untergrund noch nachgewiesen werden kann.

$$\rho_{1,S89}^* = R_{1,S89}^* + k_{1-\beta} \cdot \sigma(\rho_{1,S89}^*) \quad (28)$$

Die Standardabweichung der ^{89}Sr -Zählrate ergibt sich aus dem Fehler der γ -Spektroskopie f_{γ} , der Fenstersetzung f_{β} und der Probebehandlung f_{θ} sowie der poissonstatistischen Schwankung.

$$\rho_{1,\text{Sr89}}^* = R_{1,\text{Sr89}}^* + k_{1-\beta} \cdot \sqrt{(f_{\text{Fit}}^2 + f_{\beta}^2 + f_{\gamma}^2 + f_{\theta}^2)} \cdot \rho_{1,\text{Sr89}}^* \quad (29)$$

Somit kann die Brutto-Nachweisgrenze des Strontium-89 in Fenster 1 entsprechend Gl. (30) berechnet werden.

$$\rho_{1,\text{Sr89}}^* = \frac{R_{1,\text{Sr89}}^*}{1 - k_{1-\beta} \cdot \sqrt{(f_{\text{Fit}}^2 + f_{\beta}^2 + f_{\gamma}^2 + f_{\theta}^2)}} \quad (30)$$

Das Vertrauensintervall ergibt sich aus dem Quantil der Gauß-Verteilung für die Wahrscheinlichkeit γ und dem Einfluß der Fehler zu:

$$\Delta A_{\text{Sr89}} = A_{\text{Sr89}} \cdot \left(1 \pm k_{1-\gamma/2} \cdot \sqrt{f_{\text{Fit}}^2 + f_{\gamma}^2 + f_{\beta}^2 + f_{\theta}^2} \right) \quad (31)$$

4.5 Qualitätssicherung

Um die Präzision und Genauigkeit des Verfahrens zu kontrollieren, erfolgte etwa alle drei Monate die erneute Kalibration der Meßgeräte. Ferner wurden Leerproben-, Standard- und Wiederholmessungen durchgeführt.

4.5.1 Kalibration der Meßgeräte

Die Bestimmung der Energie-Kalibration und der energieabhängigen Zählausbeute des γ -Spektrometers wurde mit Prüfstrahlern und Standardlösungen der Physikalisch Technische Bundesanstalt, Braunschweig (PTB) durchgeführt.

Da sich alle ^{90}Sr -Standards (PTB) im radiochemischen Gleichgewicht mit Yttrium-90 befanden, war eine radiochemische Trennung notwendig, um reine Lösungen dieser Isotope zu erhalten. Zur Korrektur der Untergrundzählrate wurde der ^{90}Y -Standard ein erstes Mal gemessen und daraufhin der Zerfall dieses Nuklides abgewartet. Durch die erneute Detektion der Aktivität etwa zehn Tage später wurde der Untergrund genau dieses vials erfaßt. Aus der Differenz dieser beiden Messungen ergibt sich das untergrundkorrigierte ^{90}Y -Spektrum (S. 150).

Aufgrund der längeren Halbwertszeiten war diese Methode für die Erstellung der ^{90}Sr -, ^{89}Sr - und ^{87}Sr -Spektren nicht möglich. Die Korrektur des Beitrages des Untergrunds während der Messungen dieser Nuklide wurde durchgeführt, indem die an Blanks bestimmte mittlere Zählrate subtrahiert wurde. Die Aufnahme eines reinen ^{90}Sr -Spektrums ist nicht möglich, da selbst bei einer sofortigen Messung nach der Abtrennung des Yttrium-90 dieses Nuklid während der Meßzeit immer wieder einwächst. Da der prozentuale Aufbau des Tochternuklids, die absolute Aktivität und die Zählausbeute pro Kanal bekannt war, konnte dieser Anteil korrigiert werden (S. 150). Für die Aufnahme der ^{87}Sr - und ^{89}Sr -Spektren war eine vorhergehende Reinigung der Radionuklide nicht notwendig.

Die einzelnen Schritte der Energieübertragung in der β -Spektrometrie unterliegen einer Vielzahl von Lösch- oder Quench-Effekten. Die Energie des beim Zerfall emittierten Elektrons wird zunächst nur teilweise auf die Lösungsmittelmoleküle (chemischer Quench) und von diesen wiederum nicht vollständig an die Szintillatoren übertragen (Farbquench). Zur Erfassung dieses Löscheffekts stehen mehrere Möglichkeiten zur Verfügung [Mä95]. In der hier verwendeten Methode wird ein γ -Strahler vor der eigentlichen Messung an jede Probe herangefahren und ein Compton-Spektrum erzeugt. Vor allem in Abhängigkeit von dem Mischverhältnis der wäßrigen zur organischen Lösung im jeweiligen Fläschchen kommt es auch bei dieser Energieübertragung zu einer probeabhängigen Löschung. Die hochenergetische Kante dieses Compton-Spektrums dient als Parameter zur Erfassung dieses Effekts im vial (Standard Quench Parameter, SQP). Dieser Wert wird zur Kontrolle des Zustands des Szintillators für jede Probe vor jeder Messung erneut bestimmt. Je höher die Verluste in der Energieübertragung sind, um so geringer ist die absolute Zählausbeute und um so stärker wird das Spektrum in den niederenergetischen Bereich gestaucht. Um in jeder Messung die gleichen Zählausbeuten in den Fenstern 1 und 2 zu erfassen, werden die Grenzen daher stets dem Quench angepaßt. Die Löschung in den Standard-Proben wurde variiert, indem 1 bis 10 ml wäßriger Radionuklid-Standard mit Cocktail (Ultima Gold AB, Fa. Packard) auf 20 ml aufgefüllt wurde. Die Verschiebung der Lage des Fensters in Abhängigkeit von der Löschung ist in den Quenchkurven dargestellt (S. 148).

Die Kalibration des β -Spektrometers wurden alle drei Monate sowie nach dem Wechseln der Analog/Digital-Wandler wiederholt.

4.5.2 Blank-Messungen

Zunächst wurde kontrolliert, ob die Streuung der Zählraten der durch die Poisson-Statistik erwarteten entspricht oder ob etwa ein Drift des Meßgerätes zu beobachten ist. Die zu dieser Messung angefertigten Untergrund-Standards enthielten 4 bis 8 ml demineralisiertes Wasser und 16 bis 12 ml Cocktail, so daß jedes vial mit 20 ml Flüssigkeit gefüllt war. In Tab. 6 ist die Anzahl der in 360 Minuten Meßzeit registrierten Impulse in drei sich teilweise überlappenden Fenstern für drei unterschiedliche Blanks beispielhaft aufgezeigt.

Tab. 6 : Untergrund-Impulse in drei Bereichen des Spektrums von drei Blanks aus 20 Zyklen von je 360 Minuten Meßzeit. Mittelwert, empirische und Poisson-Standardabweichung sind für jede Serie angegeben.

Zyklus	Blank Bl 1			Blank Bl 2			Blank Bl 3		
	Ber. 1	Ber. 2	Ber. 3	Ber. 1	Ber. 2	Ber. 3	Ber. 1	Ber. 2	Ber. 3
1	465	50	2083	580	70	2495	321	7	1920
2	479	65	2123	573	72	2438	326	8	1911
3	483	67	2142	564	85	2453	329	14	1941
4	494	74	2123	589	64	2448	327	16	1979
5	507	68	2113	523	61	2392	314	7	2026
6	498	57	2082	595	73	2477	317	15	2002
7	491	61	2083	618	76	2402	337	14	2021
8	498	76	2079	601	66	2458	327	5	1945
9	491	56	2147	591	76	2458	333	6	1959
10	493	74	2147	647	63	2605	352	12	2011
11	471	64	2090	544	74	2518	340	18	2055
12	454	51	2131	536	56	2434	356	16	2007
13	488	69	2065	582	75	2497	338	9	1928
14	499	72	2156	577	62	2456	377	17	1928
15	471	56	2098	591	85	2475	396	14	2013
16	504	75	2136	600	73	2418	381	9	1995
17	470	58	2115	568	72	2470	363	9	1945
18	456	64	2071	584	79	2477	325	12	1956
19	472	66	2061	564	82	2431	371	7	2013
20	478	68	2096	551	79	2389	324	11	1959
Mittelw. (Impulse)	483	64	2107	579	72	2460	343	11	1976
Mittelw. (10^{-2} s^{-1})	2,24	0,296	9,75	2,68	0,333	11,4	1,59	0,0509	9,15
$S_{0,\text{emp.}}$	15,6	7,97	30,0	28,5	8,15	48,6	23,6	4,06	41,6
$S_{0,\text{Poisson}}$	22,0	8,03	45,9	24,1	8,49	49,6	18,5	3,38	44,5
χ^2	9,54	18,3	8,11	26,5	17,2	18,3	31,2	27,3	16,6

Bereich 1 in Tab. 6 entspricht dem im Umweltmonitoring zur Erfassung von 50 % der ^{90}Y -Emissionen verwendeten Fenster, die Bereiche 2 bzw. 3 den bei gleichzeitiger ^{89}Sr -Detektion gesetzten Fenstern 1 bzw 2.

Die Anzahl der registrierten Untergrundimpulse N und die Mittelwerte $\overline{N}_0$ aller 20 Messungen einer Serie sind in Tab. 6 gegeben. Die empirische Standardabweichung $s_{0,emp.}$ ergibt sich nach Gl. (32) zu:

$$s_{0,emp.} (\text{Impulse}) = \sqrt{\frac{1}{(20-1)} * \sum_{i=1}^{20} (\overline{N}_0 - N_{0,i})^2} \quad (32)$$

Für die erste Meßreihe beträgt die nach der Gauß-Verteilung berechnete Standardabweichung beispielsweise 15,6 Impulse. Für hohe Impulszahlen nimmt die Poisson-Verteilung die Form einer Normalverteilung an. Die mittels der Poisson-Statistik berechnete Standardabweichung sollte dann auch derjenigen der Normalverteilung entsprechen. Daher sollte die Quadratwurzel des Mittelwerts einer Meßserie (Tab. 6) einen ähnlichen Wert ergeben.

$$s_{0, Poisson} (\text{Impulse}) = \sqrt{\overline{N}_0} \quad (33)$$

$s_{0, Poisson}$: Poisson-Standardabweichung des Untergrund-Signals

Wie in Tab. 6 aufgeführt, unterscheiden sich die nach Gl. (32) und Gl. (33) ermittelten Werte in einigen Spalten. Mit einem χ^2 -Test [Ma76] läßt sich untersuchen, ob die n Meßwerte x_i einer Serie mit dem arithmetischen Mittelwert $\overline{x}$ von einer Poisson-Verteilung abweichen.

$$\chi^2 = \sum_{i=1}^n \frac{(x_i - \overline{x})^2}{\overline{x}} > \chi^2_{1-\alpha, n-1} \quad (34)$$

$\overline{x}$: arithmetischer Mittelwert einer Serie

$\chi^2_{1-\alpha, n-1}$: Quantil der χ^2 -Verteilung für $n-1$ Freiheitsgrade und die Wahrscheinlichkeit α für einen Fehler 1. Art.

Beträgt die Wahrscheinlichkeit für den Fehler 1. Art 2,5 %, so ergibt sich das Quantil der χ^2 -Verteilung zu 32,85 [Kr77]. Da die nach Gl. (34) berechnete Summe in keinem Fall den Wert des χ^2 -Quantils übersteigt (Tab. 6), unterscheidet sich die gemessene Verteilung nicht signifikant von der Poisson-Verteilung. Im Folgenden wird daher als erwiesen angesehen, daß das Rauschen des Untergrundsignals durch die Poisson-Verteilung beschrieben wird und keine Drift des β -Spektrometers vorliegt.

Je nach Fenstersetzung erhöht der ^{85}Sr -Tracer durch Photo- und Compton-Effekte den Untergrund. Die Streuung der Zählraten radioaktiver Proben wird durch die Poisson-Statistik beschrieben [Li91]. Während im ^{90}Y -Fenster kaum ein Ansteigen der Zählrate beobachtet wird, ist der Anstieg der Zählrate im ^{85}Sr -Fenster deutlich. Die in Fenster 1 beobachtete Erhöhung der Untergrundzählrate durch den γ -Strahler Strontium-85 ist in Tab. 7 (Spalte 3) angegeben.

Tab. 7 : Erhöhung der Untergrund-Signale durch den Tracer.

Proben-Kennung	Proben-art	$R_{0,1}^a$ (10^{-2} s^{-1})	$R_{0,2}$ (10^{-3} s^{-1})	Meßzeit (h)
Sr85-I	^{85}Sr -Standard	5,98	5,92	12
Sr85-II	^{85}Sr -Standard	6,09	3,38	12
Sr85-III	^{85}Sr -Standard	5,77	6,47	12
Sr85-IV	^{85}Sr -Standard	6,01	6,24	12
Sr85-V	^{85}Sr -Standard	6,17	3,93	12

^a Erhöhung der Zählrate pro Bq Strontium-85

Um zu untersuchen, ob es während der Durchführung des Trennungsgangs zu einer Kontamination kommt, wurde ein Chemie-Blank erstellt (Tab. 8). Für diesen wurde kein Boden ansonsten aber dieselben Glasgeräte und Chemikalien wie bei den anderen Proben eingesetzt. Die Durchführung aller Arbeitsschritte und die Auswertungen erfolgten in identischer Weise. Es wurde kein Anstieg der ^{90}Y -Aktivität beobachtet und die Untergrundzählraten wiesen die üblichen statistisch bedingten Schwankungen auf.

Die Handhabung realer Bodenproben ist aufwendiger als die Analyse eines Chemie-Blanks, da voluminösere Niederschläge aufgearbeitet werden, und die Abtrennung der Boden-Matrix erfolgt. Ferner führt die Extraktion und nur teilweise Abtrennung des Calciums und Bariums zu einer höheren Ionenmatrix. Da solche Einflüsse die Trennleistung der Kronenether-Säule ändern können, wurde untersucht, ob ein Ansteigen des Rauschens zu beobachten ist. Als Blindproben wurden die unteren Schichten von Bodensäulen verwendet, in denen kein Aufbau der ^{90}Y -Aktivität mehr erkannt wurde. Bei allem gewachsenen Boden ist eine ^{90}Sr -Kontamination der oberen Schicht durch den nuklearen Fallout der sechziger Jahre wahrscheinlich. Bis zu den tiefer liegenden Horizonten ist das Radiostrontium noch nicht vorgedrungen. Diese weisen aber meist andere Parameter auf (insbesondere einen geringeren Humusgehalt) als die in dieser Arbeit untersuchten Oberböden.

Tab. 8 : Zählraten von Proben, in denen kein Strontium-90 nachgewiesen wurde.

Proben-Kennung	Proben-Herkunft	Proben-art	Schichttiefe (cm)	$R_{0,2}$ (10^{-2} s^{-1})	Meßzeit (h)
Bl 1	---	Blank	---	2,24	12
Bl 2	---	Blank	---	2,68	12
Bl 3	---	Blank	---	1,59	12
Bl 4	---	Blank	---	1,69	12
Bl 5	---	Blank	---	1,33	12
CB1	---	Chemie-Blank	---	2,96	18
B-AN1416	Anakena	Boden	14 - 16	2,70	30
B-RP3035	Rio Pescado	Boden	30 - 35	2,94	18
B-RP 3540	Rio Pescado	Boden	35 - 40	2,37	18
B-RP 4045	Rio Pescado	Boden	40 - 45	2,75	18
B-RP 4550	Rio Pescado	Boden	45 - 50	2,76	18
B-AR3035	Arquihue II	Boden	30 - 35	3,00	18
B-AR3540	Arquihue II	Boden	35 - 40	2,73	18
B-AR4045	Arquihue II	Boden	40 - 45	3,08	18
B-AR4550	Arquihue II	Boden	45 - 50	2,77	18
CD7	Valle Grey	Boden	12 - 14	2,47	48
CDS7	Valle Grey*	Boden	12 - 14	2,92	48
CD8	Valle Grey	Boden	14 - 16	2,92	48
CDS8	Valle Grey*	Boden	14 - 16	2,44	48

* Wiederholung der Analyse nach Zugabe von 10 Bq Blei-210

Daher wurden die unteren Schichten der untersuchten Profile, in denen kein Strontium-90 nachgewiesen wurde, als Vergleich aufgeführt (Tab. 8). Es ist wahrscheinlich, daß diese Proben noch ein ^{90}Sr -Aktivität geringer der Nachweisgrenze enthalten, da die Migration des Radiostrontiums in den meisten Profilen nicht plötzlich von einer Schicht zur nächsten vollständig zum Stillstand kommt. Aus diesem Grund ist die Zählrate gegenüber den Blanks um bis zum Zweifachen erhöht. Die Meßzeit jedes einzelnen vials betrug mindestens 18 Stunden, um einen eventuellen Anstieg der ^{90}Y -Aktivität zu erfassen. Der Vorteil dieser Proben ist, daß sie abgesehen von kleinen Änderungen der Bodenparameter die gleiche Matrix aufweisen, wie diejenigen Schichten, in denen tatsächlich Strontium-90 bestimmt wurde.

Die tiefsten Schichten des Profils Valle Grey wurden je zweimal untersucht. Bei der Wiederholung der Analyse erfolgte die Zugabe von 10 Bq Blei-210, um die quantitative Abtrennung dieses Nuklids zu überprüfen. Die Zählraten dieser beiden Proben zeigen, daß in einem Fall das erste, im anderen das zweite Mal das höhere Untergrund-Signal gemessen

wurde. Da bei keiner Messung ein zeitabhängiger Aufbau der Zählrate erfolgte, gelang die vollständige Abtrennung des Blei-210.

4.5.3 Messung von Standard- und Ringanalyse-Proben

Die Genauigkeit der Analyse und der Auswertmethode wurde kontinuierlich durch Messungen von Standards dokumentiert. Die Böden verschiedener Ringversuche (Ringversuch Boden 95/96, BGA) und der IAEA dienten zur Kontrolle des Verfahrens. In Tab. 9 sind die Ergebnisse typischer Proben gegeben.

Tab. 9 : Gemessene und zertifizierte (^{89}Sr -gespikte) Radiostrontium-Aktivitäten von Standard-Proben.

Probe	Matrix	Ausb. (%)	Masse (g)	gemessene Aktivität (Bq)	Vertrauens- intervall (Bq)	zertifizierte Aktivität (Bq)	Vertrauens- intervall (Bq)
Ri 2 ^a	RB95/96	74	50,0	1,84	[1,70; 1,97]	1,65	[1,39; 1,90]
Ri 3	BGA	54	25,0	250	[229; 271]	288	[282; 293]
Ri 7	BGA	60	8,80	104	[94,8; 113]	101	[99,4; 103]
Ri 8	RB95/96	46	20,0	0,688	[0,629; 0,746]	0,690	[0,798; 0,581]
SD6	IAEA 375	45	11,6	1,08	[1,00; 1,16]	1,09	[1,02; 1,15]

^a Bei der Analyse wurde keine Sulfat-Fällung durchgeführt.

Da Strontium-89 aufgrund der kürzeren Halbwertszeit in den oben beschriebenen Standardböden nicht vorhanden war, wurde es in den in Tab. 10 aufgeführten Analysen des Standards IAEA-375 zugegeben. Die gemessene und zertifizierte ^{90}Sr - sowie die vorgegebene ^{89}Sr -Aktivität sind mit den Unsicherheiten aufgeführt. Der Anstieg des Yttrium-90 wurde nach einem und nochmals nach mindestens vier Tagen durchgeführt. Aufgrund der größeren statistischen Sicherheit nimmt die Genauigkeit der Aktivitätsbestimmung mit der Zeit zu.

Tab. 10 : Gemessene und zertifizierte (^{89}Sr -gespikete) Radiostrontium-Aktivitäten von Standard Proben.

Kennung	Ausb. (%)	Masse (g)	Analyseergebnis		Zertifizierter Wert		Analyseergebnis		Vorgegebener Wert	
			Aktivität (Bq ^{89}Sr)	Vertrauensintervall (Bq ^{89}Sr)	Aktivität (Bq ^{90}Sr)	Vertrauensintervall (Bq ^{90}Sr)	Aktivität (Bq ^{89}Sr)	Vertrauensintervall (Bq ^{89}Sr)	Aktivität (Bq ^{89}Sr)	Vertrauensintervall (Bq ^{89}Sr)
SD14 ^a	55	13,9	1,11	[0,995; 1,215]	1,30	[1,21; 1,37]	4,45	[4,07; 4,83]	4,24	[4,11; 4,37]
SD14 ^b			1,26	[1,20; 1,37]	1,30	[1,21; 1,37]	4,3	[3,94; 4,67]	4,24	[4,11; 4,37]
SD15 ^a	49	9,4	0,535	[0,263; 0,807]	0,883	[0,824; 0,932]	18	[16,5; 19,5]	18,3	[17,8; 18,8]
SD15 ^b			0,844	[0,797; 0,891]	0,883	[0,824; 0,932]	17,8	[16,3; 19,3]	18,3	[17,8; 18,8]
SD16 ^a	71	13,3	0,97	[0,85; 1,10]	1,24	[1,16; 1,31]	6,31	[5,78; 6,85]	6,94	[6,73; 7,15]
SD16 ^b			1,16	[1,08; 1,24]	1,24	[1,16; 1,31]	6,39	[5,85; 6,93]	6,94	[6,73; 7,15]
SD17 ^a	49	11,4	1,18	[0,793; 1,43]	1,07	[0,996; 1,139]	4,93	[4,51; 5,35]	5,36	[5,19; 5,52]
SD17 ^b			1,05	[1,00; 1,10]	1,07	[0,996; 1,13]	5,02	[4,59; 5,44]	5,36	[5,19; 5,52]

^a Berechnung nach einem Tag^b Berechnung nach vier Tagen

Um die Genauigkeit und Präzision des gesamten Verfahrens für die Analyse von Proben mittlerer Aktivität (etwa 0,5 bis 1 Bq) zu überprüfen, wurde sechsmal die spezifische Aktivität des IAEA-Standardbodens 375 bestimmt (Tab. 11). Die relative Abweichung des Mittelwerts (96 Bq kg^{-1}) vom zertifizierten (98 Bq kg^{-1}) beträgt 2 %, mit einer nach Gl. (32) berechneten relativen empirischen Varianz von 5,5 % ($5,3 \text{ Bq kg}^{-1}$). Die Unsicherheit der Bestimmung der Aktivität nahm bei der Analyse des Bodens des Ringversuchs zu. Für eine Serie von zehn Proben mit einer Masse von je 50 g wurde eine relative empirische Standardabweichung von 8,5 % bestimmt (Spalte 5, Tab. 10). Durch die Reduzierung der Einwaage auf 25 g des gleichen Bodens wurde die absolute Aktivität der Probe halbiert. In dieser Serie aus sieben Proben wurde mit einer relativen empirischen Standardabweichung von 20,2 % die größte Unsicherheit der drei Serien bestimmt. Die mittlere spezifische Aktivität, die in den drei Gruppen bestimmt wurde, weicht um weniger als 3 % von der zertifizierten ab.

Ferner wurde untersucht, durch welche mathematische Methode das genaueste Ergebnis zu erzielen ist. Grundsätzlich kann aus der Differenz des ersten und des letzten Meßwertes der Anstieg der ^{90}Y -Aktivität berechnet werden. In dieser Differenzbildung wird nur die Information aus zwei Messungen verwendet. Die Serie dieser ungefitteten Daten in Spalte 4 Tab. 11 zeigt eine relative empirische Varianz von 15,3 % auf. Durch einen Fit nach Gl. (12), in welchem das Quadrat der Abstände zu der ermittelten Kurve minimiert wird, gehen hingegen alle Messungen des ^{90}Y -Anstieges ein. Wird die Untergrund- und Equilibriumszählrate auf diese Weise ermittelt, so ergibt sich eine geringere Varianz von nur 8,5 %. Die Abweichung zum zertifizierten Wert ($33,7 \text{ Bq kg}^{-1}$) hat allerdings durch dieses mathematische Verfahren zugenommen. Da in Analysen weiterer Standards keine systematisch positive Abweichung mehr beobachtet wurde, ist dieser Effekt statistischen Ursprungs.

Die Serie der zehn Messungen von 50g Boden (Tab. 11, Spalte 5) sind die Werte, die bei der Teilnahme eines Ringversuchs [Ha96, Labor Code 27] ermittelt wurden. Die mit dieser Methode ermittelte spezifische Aktivität des Bodens ($35,5 \pm 3,0 \text{ Bq kg}^{-1}$) wich 5,3 % vom Mittelwert der Gehaltsgrößen aller akzeptierten Laboratorien ($33,7 \pm 5,3 \text{ Bq kg}^{-1}$) und 6,0 % vom Referenzwert ($33,5 \text{ Bq kg}^{-1}$) der Leitstelle bzw. der PTB ab.

Tab. 11 : Spezifische Aktivitäten der Referenzmaterialien (IAEA Standard Boden 375 und Ringversuch-Boden), sowie Angaben der zertifizierten (31.12.95) und aus den eigenen Messungen bestimmten Mittelwerte und Standardabweichungen.

Kennung	Bodenart	a (Bq kg ⁻¹) 7,5g-Ansatz	a (Bq kg ⁻¹) 50g-Ansatz ungefittet	a (Bq kg ⁻¹) 50g-Ansatz	a (Bq kg ⁻¹) 25g-Ansatz
S0	IAEA Std.	96	---	---	---
SA	IAEA Std.	91	---	---	---
SB	IAEA Std.	101	---	---	---
SC	IAEA Std.	102	---	---	---
SD	IAEA Std.	89	---	---	---
SE	IAEA Std.	97	---	---	---
R3	Ringv.	---	35,1	35,4	---
R4	Ringv.	---	36,7	36,1	---
R5	Ringv.	---	46,0	39,7	---
R6	Ringv.	---	26,9	29,2	---
R7	Ringv.	---	40,1	38,2	---
R8	Ringv.	---	32,8	37,3	---
R9	Ringv.	---	30,8	33,5	---
R10	Ringv.	---	31,2	33,6	---
R11	Ringv.	---	35,0	36,3	---
R12	Ringv.	---	32,4	33,3	---
R21	Ringv.	---	---	---	46,8
R22	Ringv.	---	---	---	28,3
R23	Ringv.	---	---	---	36,4
R26	Ringv.	---	---	---	39,7
R27	Ringv.	---	---	---	27,7
R29	Ringv.	---	---	---	33,0
R30	Ringv.	---	---	---	29,6
Mittelwert (Bq kg ⁻¹)	---	96	34,7	35,3	34,5
abs. empirische Standardabw. (Bq kg ⁻¹)	---	5,3	5,3	3,0	7,0
rel. empirische Standardabw. (%)	---	5,5	15,3	8,5	20,2
zertifizierter Mittelw. (Bq kg ⁻¹)	---	98	33,7	33,7	33,7
zertifizierte Standardabw. (Bq kg ⁻¹)	---	---	5,3	5,3	5,3
rel. zertifizierte Standardabw. (%)	---	---	16	16	16

4.5.4 Wiederholungen von Messungen

Um die Reproduzierbarkeit der Methode nicht nur an Standard-Böden zu untersuchen, wurden einige Proben erneut analysiert. In Tab. 12 sind die Ergebnisse der Wiederholungsmessungen am Profil Valle Grey aufgeführt.

Tab. 12 : Spezifische Aktivität und Unsicherheit von Wiederholungs-Messungen am Profil Valle Grey (Westpatagonien).

Proben-Kennung	Masse (g)	Proben-art	Schichttiefe (cm)	spez. Aktivität des Bodens (Bq kg ⁻¹)	
B-VG0002	50	Boden	0 - 2	34,8	±5,0
B-VG0002	50	Boden	0 - 2	27,7	±2,7
B-VG0204	50	Boden	2 - 4	15,2	±2,0
B-VG0204	50	Boden	2 - 4	13,4	±1,6
B-VG0406	50	Boden	4 - 6	4,8	±0,8
B-VG0406	50	Boden	4 - 6	5,6	±0,7
B-VG0608	50	Boden	6 - 8	1,6	±0,4
B-VG0608	50	Boden	6 - 8	1,4	±0,3
B-VG1214	50	Boden	12 - 14	< 0,4	---
B-VG1214*	50	Boden	12 - 14	< 0,4	---
B-VG1416	50	Boden	14 - 16	< 0,4	---
B-VG1416*	50	Boden	14 - 16	< 0,4	---

* Wiederholung der Analyse nach Zugabe von 10 Bq Blei-210

Die oberen Schichten mit den höchsten absoluten Aktivitäten weisen mit etwa 25 % die größten relativen Unterschiede der Wiederholungsmessungen auf. Die drei tiefer liegenden Doppelbestimmungen zeigen demgegenüber nur noch Schwankungen von etwa 14 %. Legt man jedoch die aufgrund der Unsicherheit maximal zu erwartende Differenz zugrunde, so ergibt sich für die spezifische Aktivität der untersten beiden Schichten beispielsweise zu (1,6 + 0,4) Bq kg⁻¹ bzw. (1,4 - 0,3) Bq kg⁻¹. Die relative Abweichung dieser beiden Werte von 82 % ist höher als diejenige für die obersten Schichten, die nach der gleichen Berechnung 60 % beträgt. Bei annähernd gleicher Matrix werden Proben höherer spezifischer Aktivität somit genauer erfaßt.

4.6 Diskussion

4.6.1 Optimierung der chemischen Ausbeute

Um eine möglichst genaue Bestimmung der statistisch schwankenden Zählrate zu erreichen, ist es insbesondere bei Proben geringer Aktivität notwendig, Verluste in der chemischen Ausbeute so gering wie möglich zu halten. Ferner ist die Zählausbeute so zu optimieren, daß ein hoher Anteil der Analyt-Signale erfaßt und gleichzeitig das Rauschen gering gehalten wird.

Die Verwendung großer Mengen (3g) Austauscherharz ermöglicht es prinzipiell, hohe chemische Ausbeuten von über 80 bis 90 % zu erzielen [Je94]. Für die chromatographische Trennung wird wenig Träger (1 bis 20 mg Sr) verwendet, um gute Separation zu erzielen und eine Überschreitung der Säulenkapazität auszuschließen.

Zur Beladung der Säule ist es notwendig, die Probe auf wenige Milliliter zu reduzieren, welches durch das Einengen der sauren Aufschlußlösung gelingt. Mit diesem Schritt wird jedoch die Fracht an dreiwertigen Ionen (vor allem Aluminium und Eisen) nicht abgetrennt, so daß der Analyt in einer relativ ionenreichen Matrix auf die Säule gegeben wird. Ferner ist die Abtrennung des Bariums ausschließlich mit Hilfe der Extraktionssäule häufig unvollständig, so daß in frischem nuklearen Fallout ohne eine weitere Reinigung mit Interferenzen im Spektrum zu rechnen ist.

Die Abtrennung der Matrix der meisten zwei- und dreiwertigen Ionen gelingt in der in dieser Arbeit beschriebenen Kombinations-Methode durch mehrere Fällungsreaktionen. Die sich anschließenden Barium- und Sulfat-Fällungen stellen diejenigen Arbeitsschritte in diesem Trennungsgang dar, in denen die höchsten Verluste an Ausbeute entstehen. Zur quantitativen Überführung des Strontiums in den Niederschlag, muß so viel Träger wie möglich zugegeben werden, um das Löslichkeitsprodukt zu überschreiten. Die saure Aufschlußlösung ermöglichte die Extraktion des schwer löslichen Strontiumsulfats aus der Probenmatrix. Bei der hier beschriebenen Kombination der Trennung durch Chromatographie und Fällungsreaktionen ist die Masse an zugegebenen Strontium durch die Kapazität der Extraktionssäule auf etwa 30 mg begrenzt. Aus diesem Grund ist es nicht möglich, die Trägermenge wie in anderen reinen

Fällungs-Methoden auf beispielsweise 200 mg [Pi95] zu erhöhen. Somit wird die Konzentration an unprotonierten Sulfationen gegenüber anderen Methoden vergrößert. Dies wäre möglich, indem mehr rauchende Schwefelsäure zu der stark sauren Aufschlußlösung zugegeben wird. Da die Sulfationen in konzentrierten Säuren aber weitgehend als Hydrogensulfat-Ionen vorliegen, ist die Zunahme der tatsächlich vorliegenden SO_4^{2-} -Konzentration gering. Durch die Absenkung des pH-Wertes mit Natronlauge in den Bereich der Gleichgewichtskonstante der zweiten Deprotonierung der Schwefelsäure ($\text{pK}_2 = 1,8$) wird eine effektivere Erhöhung der Konzentration der nicht protonierten Sulfationen erreicht. Ferner wird die Löslichkeit des Strontiums durch den hohen Salzgehalt nach der Neutralisation der konzentrierten Schwefelsäure mit konzentrierter Natronlauge reduziert. Unter diesen Bedingungen gelingt selbst bei der relativ geringen Trägerzugabe (30 mg) die Ausfällung von 75 - 85 % des Strontiums.

Der zweite Arbeitsschritt, bei dem geringe Variationen des pH-Werts einen erheblichen Einfluß auf die chemische Ausbeute haben, ist die Chromat-Fällung. Dieser Schritt ist notwendig, da die sich anschließende chromatographische Trennung nur zu einer Abreicherung des Bariums um das Zwanzigfache führt. Je nach dem Verhältnis der Radioisotope zueinander ist diese Trennung nicht ausreichend. Grundsätzlich ermöglicht die Chromat-Fällung aus schwach saurer Lösung ($\text{pH} = 4,8$) die vollständige Abtrennung des Bariums. Allerdings erfolgt unter diesen Bedingungen (10 mg Ba^{2+} , etwa 25 mg verbliebener Sr^{2+} -Tracer) eine erhebliche Mitfällung des Strontiums von zum Teil über 25 %. Daher wird in der Kombinations-Methode ein stärker saures Milieu von $\text{pH} = 3,5$ gewählt. Der Abreicherungsfaktor für Barium beträgt in diesem Fall immer noch mindestens 20 und die Ausbeuteverluste an Strontium sind mit weniger als 15 % noch akzeptabel.

Die Bestimmung der γ -Aktivität im vial ergab in den gespickten Standards eine Gesamtabtrennung des Bariums um mindestens das Fünfhundertfache. Aufgrund der maximalen Emissionsenergie des Barium-140 von 1020 keV kann dieses nur eine Störung der Erfassung der ^{89}Sr -Aktivität verursachen. Als Folge des Unfalls von Tschernobyl wurde im Vergleich zu Strontium-89 etwa die doppelte Aktivität an Barium-140 emittiert [Kr96]. Zur Trennung dieser Aktivität ist die oben beschriebene Abreicherung ausreichend.

Daher ist es günstiger für die Chromat-Fällung ein saures Milieu von $\text{pH} = 3,5$ zu wählen und letzte Reste des Bariums chromatographisch zu entfernen. Durch eine schwach

saure Fällung ($\text{pH}=4,8$) wird zwar direkt eine vollständige Trennung erzielt, aber eine geringere chemische Ausbeute erreicht. Demgegenüber ist die durch die Kombination von Fällungs-Reaktionen und Chromatographie erzielte Abreicherung ausreichend. Ferner führt die höhere Zählrate bei den hier beschriebenen Bedingungen zu einer sichereren Erfassung der $^{89/90}\text{Sr}$ -Aktivität.

Die Umwandlung in die Carbonate und die chromatographische Trennung erfolgt annähernd quantitativ. Die chemische Ausbeute des gesamten Kombinations-Trennungsganges beträgt gewöhnlich 45 bis 65 %. Sie liegt damit in der Größe typischer radiochemischer Trennungsgänge [Pi95].

Über den Verlust an chemischer Ausbeute hinaus wird durch die Festlegung der Fenster bei der Flüssigszintillations-Messung die Zählausbeute des Yttrium-90 weiter reduziert. Weist das Strontium-89 den weitaus höheren Anteil der Aktivität der beiden zu bestimmenden Radioisotope auf, so muß es aus dem Fenster 2 ausgeblendet werden. Denn zum einen führt die Schwankung des erhöhten Untergrund-Signals zu einer unsicheren Festlegung desselben. Zum anderen macht sich bei langen Beobachtungszeiten der Zerfall des Strontium-89 bemerkbar. Da der Nulleffekt in Gl. (12) als zeitunabhängig angesetzt ist, wird ein abnehmendes Untergrund-Signal durch eine zu gering gefittete Equilibriumszählrate ausgeglichen. Dies hat die Bestimmung einer zu kleinen ^{90}Sr -Aktivität der Probe zur Folge. Enthält der Boden Strontium-89, so wird daher statt 50 % nur ein geringerer Teil der ^{90}Y -Aktivität in Fenster 2 erfaßt. Selbst in diesem schmalen Ausschnitt von 18,4 % Zählausbeute des ^{90}Y -Spektrums kann jedoch ein Beitrag von etwa 1 % des Strontium-89 nicht völlig ausgeblendet werden.

Einige Böden weisen spezifische Matrix-Unterschiede auf, die eine Anpassung des Trennungsgangs erfordern, um Strontium mit einer hohen chemischen Ausbeute abzutrennen. Präparativ lassen sich unterschiedliche Proben verschieden gut bearbeiten. Jedoch ist nicht die absolute Masse, sondern die Beschaffenheit der Bodenmatrix entscheidend. So bedingt ein hoher Anteil an Calcium voluminöse Niederschläge und erfordert eventuell ein Nachfällung des Strontiums durch erneute Zugabe von Schwefelsäure. Ein hoher Tongehalt des Feinbodens muß durch sorgfältige Zentrifugation abgetrennt werden, so daß eine Verstopfung der Filter vermieden wird. Weisen nach der Veraschung die tieferen Schichten des Bodens im Tiegel eine dunklere Färbung auf als die oberen, so deutet dies auf eine unvollständige Verbrennung der

organischen Bestandteile hin. In diesem Fall findet die Extraktion des Strontiums prinzipiell in Salpeter- und nicht in Salzsäure statt.

In natürlichen Böden sind etwa 24 bis 60 mg inaktives Strontium pro 100 g in den Mineralien zu erwarten [Li87]. Dieses wird im Aufschluß nicht quantitativ erfaßt, da es teilweise in der Kristallmatrix fixiert vorliegt. Bei einer Erhöhung der Probenmasse oder der erstmaligen Analyse eines neuen Bodentyps ist dennoch zu beachten, ob ein Säulendurchbruch erfolgt. In keinem der im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Böden wurde dies beobachtet. Mit Hilfe des ^{85}Sr -Tracers kann stets verfolgt werden, ob die Austauschkapazität der Säule erschöpft ist und eine zu frühe Elution einsetzt.

4.6.2 Einfluß der Meßbedingungen auf die ^{90}Sr -Kenngrößen

Die Erkennungsgrenze für Strontium-90 $R_{\text{Sr}90}^*$ ist entsprechend Gl. (20) von der Zählausbeute des Yttrium-90 im Hochenergiefenster $\eta_{2,\text{Y}90}$ abhängig:

$$R_{2,\text{Sr}90}^*(\text{Bq}) = \frac{R_{2,n}^*}{\eta_{\text{Sr}} \cdot \eta_{2,\text{Y}90}} \quad (20)$$

Unter der Voraussetzung, daß eine 100 g-Probe analysiert wird, und die chemische Ausbeute 50 % beträgt, ergibt sich die Erkennungsgrenze abhängig vom verwendeten ^{90}Y -Zählfenster zu 0,13 bis 0,35 Bq kg⁻¹ (Tab. 13).

Tab. 13 : Spezifische Erkennungs- und Nachweisgrenze für das über die Zählrate des Yttrium-90 bestimmte Strontium-90 bei der Analyse einer 100 g-Bodenprobe und einer chemischen Ausbeute von 50 %.

^{90}Y - Zählausbeute (%)	Erkennungs- grenze (Bq kg ⁻¹)	Nachweisgrenze nach 24 h (Bq kg ⁻¹)	Nachweisgrenze nach 48 h (Bq kg ⁻¹)	Nachweisgrenze nach 200 h (Bq kg ⁻¹)
18,4	0,35	4,2	1,22	0,46
50,0	0,13	1,6	0,45	0,17

Für die Berechnung der Nachweisgrenze $\rho_{2,\text{Sr}90}^*$ besteht eine Abhängigkeit von der seit der ^{90}Y -Trennung vergangenen Zeit t .

$$\rho_{2,\text{Sr90}}^* (\text{Bq}) = \frac{1}{\eta_{\text{Sr}} \cdot \eta_{2,\text{Y90}}} \cdot \frac{1}{(1 - e^{-\lambda_{\text{Y90}} \cdot t})} \cdot \frac{\sigma_{2,0} \cdot k_{1-\alpha}}{\left[1 - k_{1-\beta} \cdot \sqrt{f_{\text{Fit}}^2 + f_{\beta}^2 + f_{\gamma}^2 + f_{\delta}^2} \right]} \quad (35)$$

Da nach 24 h beispielsweise erst etwa 23 % der Tochteraktivität aufgebaut sind, muß die Probe die 4,3-fache ^{90}Sr -Aktivität enthalten, um zu diesem Zeitpunkt schon nachgewiesen werden zu können.

Wie für die Untergrundzählrate beschrieben, kann mit den ersten beiden Meßwerten auch für die Analyt-zählrate kein aus dem Fit berechneter Fehler gegeben werden. Wird im Extremfall die Aktivität der Probe schon nach zwei Messungen abgeschätzt, so verläuft die mit zwei Unbekannten gefittete Gl. (12) genau durch die zwei Meßwerte und es liegt keine Abweichung zwischen Meßpunkten und gefitteter Gerade vor. Befindet sich der dritte Meßwert zufällig in der Nähe dieser Kurve, so ergibt sich trotz geringer statistischer Sicherheit ein kleiner Fehler des Fits. Es hat sich daher als günstig erwiesen, in den ersten 24 h den Fit-Fehler durch die Beobachtung von Messungen an Standards (Tab. 11, S. 64) abzuschätzen. Aufgrund von dieser wurde die zeitabhängige Abnahme des relativen Fitfehlers der gesamten Methode nach der radiochemischen Trennung t durch die empirische Funktion beschrieben.

$$f(t) = 0,085 + e^{(-t/20)} \quad (36)$$

Durch die zunehmende Anzahl von Meßpunkten steigt die Genauigkeit des Fits mit der Zeit immer weiter an. Dieser Einfluß geht durch den zweiten Summanden in die Berechnung des Fehlers ein. Der zeitabhängige Term beschreibt die zunehmende Sicherheit der Bestimmung der Equilibriumszählrate von anfänglich über 50 % nach erneuten Messungen auf etwa 8,5 %. Messungen an Standards (Tab. 11, S. 64) ergaben diese verbleibende Unsicherheit, obwohl die Equilibriumszählrate durch lange Meßzeiten auf etwa 2 bis 5 % genau gefittet werden kann. Da die Festlegung dieser zeitabhängigen Exponentialfunktion durch die Streuung der Endergebnisse der Analyse (Gehaltsgrößen) erfolgte, sind die übrigen Fehlerquellen berücksichtigt. Diese Annahme ist konservativ, da für hohe Aktivitäten der Anstieg der Tochter-Zählrate schneller und mit höherer Genauigkeit gefittet werden kann als für ^{90}Sr -Aktivitäten von etwa 1 Bq. Soll die Nachweisgrenze nach wenigen Messungen berechnet werden, so erfolgt die Abschätzung der statistischen Unsicherheit durch die in Gl. (36) beschriebene Exponentialfunktion.

$$\rho_{2,\text{Sr90}}^* (\text{Bq}) = \frac{1}{\eta_{\text{Sr}} \cdot \eta_{2,\text{Y90}}} \cdot \frac{1}{(1 - e^{-\lambda_{\text{Y90}} \cdot t})} \cdot \frac{\sigma_{2,0} \cdot k_{1-\alpha}}{\left[1 - k_{1-\beta} \cdot \sqrt{0,085 + e^{-t/20}} \right]} \quad (37)$$

Beträgt die chemische Ausbeute der Analyse 50 % und die Zählausbeute im Fenster 2 ebenfalls 50 %, so ergibt sich die spezifische Nachweisgrenze (100 g Boden) zu 0,17 Bq kg⁻¹ Strontium-90. Bei der Bestimmung der ⁹⁰Y-Zählrate mit dem schmalen Fenster zur gleichzeitigen ⁸⁹Sr-Messung ergibt sich eine Nachweisgrenze von 0,42 Bq kg⁻¹ Strontium-90. Aufgrund der geringeren Zählausbeute bei gleichzeitiger ⁸⁹Sr-Erfassung muß in diesem Fall also 2,7-fache Aktivität Strontium-90 vorliegen, um noch nachgewiesen werden zu können

Nach einem kerntechnischen Unfall ist eine schnelle Erfassung der radioaktiven Kontamination notwendig. Abhängig von der seit der ⁹⁰Y-Abtrennung vergangenen Zeit hat dies eine Änderung des Nachweisvermögens zur Folge. Da die β -Zählung spätestens zwei Stunden nach der Trennung beginnt und nach beispielsweise vier Messungen von je 360 Minuten bereits eine Einschätzung der Aktivität erfolgen soll, werden nur 22 % des gesamten Aufbaus des Tochternuklids beobachtet. Aufgrund der Verringerung des detektierbaren Aktivitätsanstieges während der kürzeren Beobachtungszeit steigt die spezifische Nachweisgrenze (50 % chemische Ausbeute, 100 g Probe) bei Verwendung des schmalen hochenergetischen Fensters von 0,46 auf 4,2 Bq kg⁻¹ an. Ist kein Strontium-89 in der Probe zu erwarten, so werden 50 % der ⁹⁰Y-Emissionen erfaßt. Die Nachweisgrenze nimmt von 0,17 Bq kg⁻¹ durch die kurze Meßzeit von 24 h auf 1,6 Bq kg⁻¹ zu.

Die Unsicherheit der Bestimmung der ⁹⁰Sr-Aktivität ist abhängig von dem Einfluß der Fehlerquellen für unterschiedliche Proben verschieden. Der Fehler der Bestimmung der ⁹⁰Sr-Aktivität ergibt sich daher aus vier Bereichen: Probebehandlung f_g (einschließlich dem Auswiegen des frischen und veraschten Bodens, sowie des Tracers), Bestimmung der chemischen Ausbeute f_γ , Erfassung der Zählausbeute im Fenster f_β und Fit des ⁹⁰Y-Anstiegs f_{Fit} . Abhängig von der absoluten Aktivität, sowie dem Verhältnis der Radionuklide zueinander beeinflussen sie die Genauigkeit des Verfahrens in unterschiedlichem Maße. Um den Gesamtfehler der Verfahrenes empirisch abzuschätzen, wurden Standards einer Gesamtaktivität von 0,9 bis 28 Bq Strontium-90 untersucht (Tab. 9, Tab. 10, Tab. 11).

Eine unpräzise Fenstersetzung verursacht während der Flüssigszintillations-Messung eine ungenaue Bestimmung der Zählausbeute. Dieser Effekt verringert sich für zusätzliche β -Zählungen, da sich der Quench-Effekt nach 12 h nicht mehr ändert und bei jeder Messung erneut bestimmt wird. Die Schwankung des Quenchwertes um 1 % führt bei Verwendung des weit geöffneten Fensters ($\eta_{2,Y90} = 50 \%$) zu einer ungenauen Erfassung der Zählausbeute des Yttrium-90 von etwa 4 %.

Die Fehler der Probebehandlung, wie des Auswiegens des frischen (1 %) und veraschten Bodens (1 %), sowie der Einwaage des Tracers (1,5 %) sind gegenüber den oben diskutierten Effekten von geringem Einfluß. Der Anstieg der ^{90}Y -Zählrate in der hochkontaminierten Probe Ri7 ist mit einer Genauigkeit von über 1,5 % gefittet worden.

Der verbleibende Gesamtfehler f beträgt wie oben beschrieben selbst nach langen Messungen noch etwa 8,5 % und die Equilibriumszählrate von Standards wird mit einer Sicherheit f_{Fit} von etwa 5 % gefittet (Tab. 11, S.64).

$$8,5\% = \sqrt{5\%^2 + f_{\gamma}^2 + f_{\beta}^2 + f_g^2} \quad (38)$$

Daher ergibt sich die Summe der Variationskoeffizienten der Probebehandlung f_g , der Fenstersetzung f_{β} und der Bestimmung der Ausbeute f_{γ} zu 6,9 %.

$$f = \sqrt{f_{\text{Fit}}^2 + 6,9\%^2} \quad (39)$$

An hochkontaminierten Proben läßt sich der Fehler der Probebehandlung, der Fenstersetzung und der γ -Spektrometrie untersuchen. Durch die häufige Wiederholung der Messung des Quencheffekts wurde der Fehler der Fenstersetzung auf 1,5 bis 2 % reduziert. Der Anstieg der ^{90}Y -Aktivität kann aufgrund der hohen Zählraten bis auf eine verbleibende Unsicherheit von 2 bis 4 % gefittet werden. Die Aktivität des Standards mit dem höchsten ^{90}Sr -Spike Ri 7 wurde, bezogen auf den zertifizierten Wert um 2,8 %, überbestimmt (Tab. 9). Als Ursache für diese Abweichung ist vor allem die γ -Spektrometrie anzusehen. Die absolute ^{90}Sr -Aktivität wird für die Ermittlung der Ausbeute nicht bestimmt, sondern nur das Verhältnis zu einem Standard, der die gesamte anfangs zugegebene Aktivität in gleicher Geometrie enthält. Dadurch sind Fehler, die durch die Umrechnung der Zählraten auf absolute Aktivitäten entstehen, ausgeschlossen. Die Ungenauigkeit der γ -Spektrometrie wird durch die Bestimmung

der Nettopeakfläche hervorgerufen. Denn der schmale Tracer-Peak (514,1 keV) muß neben dem breiten Peak durch die Vernichtungsstrahlung (511 keV) gefittet werden (GammaW, Fa. Westmayer). Sowohl durch Kalium-40 im Glas-vial als auch durch Beiträge des Untergrunds ist dieser Untergrundpeak im γ -Spektrum immer vorhanden. Steht zur Bestimmung der Ausbeute nur eine Stunde zur Verfügung, so beträgt der Fehler der Berechnung der Peak-Fläche der Probe etwa 5 %. Durch eine Ausweitung der Meßzeit auf 16 h kann dieser Fehler auf 2,5 % reduziert werden. Da der γ -Standard prinzipiell mindestens fünfmal mit bis zu 24 h Dauer gemessen wird, ist dieser statistisch bedingte Fehler mit 2 % geringer.

Daher ist der Fehler der γ -Spektrometrie für hochkontaminierte Proben (28 Bq, bspw. Ri7) bei Verwendung eines breiten Fensters als Hauptfehlerquelle anzusehen. Abhängig von der Zeit, die für die Bestimmung der Ausbeute zur Verfügung steht, beträgt der Gesamtfehler für hochkontaminierte Proben 4 bis 8 %. Selbst höhere Ausbeuten und längere Meßzeiten steigern die Genauigkeit des Verfahrens nicht mehr.

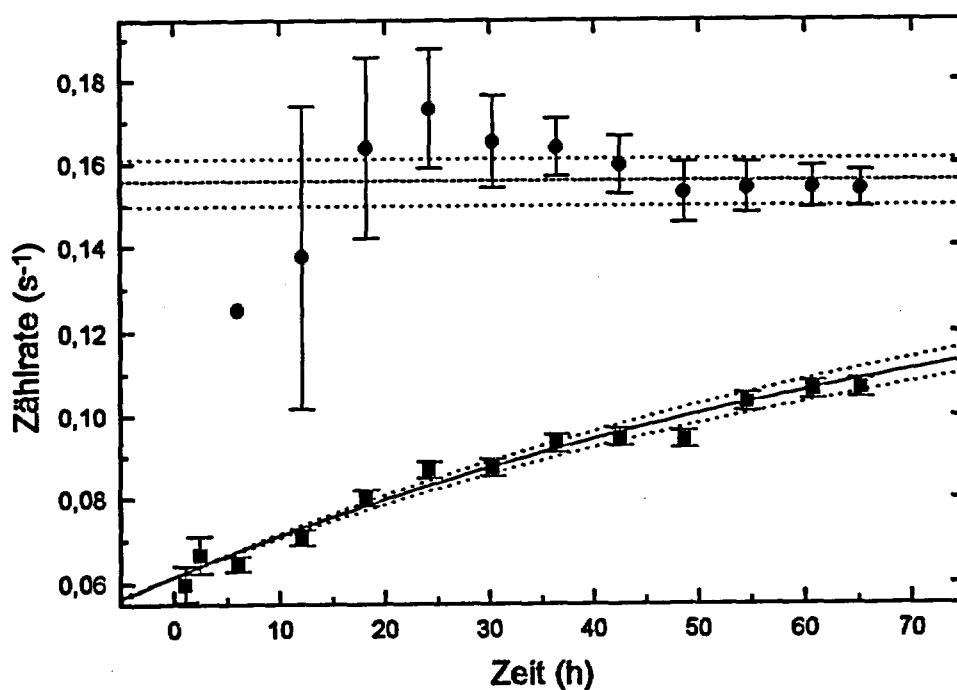


Abb. 14 : Zunahme der Zählrate eines Standards SD17 (IAEA soil 375) durch den Aufbau des Yttrium-90. Die zeitabhängige (Quadrate), sowie die zertifizierte Zählrate (durchgezogene Linie) sind mit Fehlern (Balken bzw. gestr. Linie) eingezeichnet. Ferner ist die gefittete (Kreise) und die zertifizierte Equilibriumszählrate (Balken bzw. kurze gepunktet) gegeben.

In Proben geringer ^{90}Sr -Aktivität von etwa 1 Bq wurde die Aktivität selbst nach zehn Messungen von je 360 Minuten um 6,5 % unterschätzt (SD16, Tab. 10, S. 62), obwohl eine Verringerung des Fehlers der γ -Spektrometrie durch eine Verlängerung der Meßzeit auf 2,5 % gelang. Durch die wiederholte Messung des Quench-Effekts wurde auch die Bestimmung der Zählausbeute im Fenster auf 2 % genau festgelegt. In Abb. 14 sind die Zählraten der einzelnen Messungen (Quadrate) des Standards SD17 und die zu dem jeweiligen Zeitpunkt gefitteten Gleichgewichtszählraten (Kreise) dargestellt. Ferner ist die nach Gl. (12), S. 47 ermittelte Equilibriumszählrate sowie der zertifizierte Wert des Standards eingezeichnet.

Anfangs wird die Equilibriumszählrate bei dieser Probe stark unterschätzt und die durch die Fehlerbalken dargestellte Unsicherheit des Fits ist sehr hoch. Während im weiteren Verlauf der Berechnung sogar eine Überschätzung der zertifizierten Aktivität erfolgt, nähert sich der gefittete Wert immer weiter dem erwarteten an. Ein hoher Fehler ist daher zu erwarten, wenn schon nach vier Messungen von je 360 Minuten der Fit des Anstiegs der ^{90}Y -Aktivität durchgeführt wird. In Standard SD15 (Tab. 10, S. 62) wurde beispielsweise nach 24 h nur 0,54 Bq (61 %) der zertifizierten Aktivität bestimmt. Das Vertrauensintervall von 0,26 Bq bis 0,81 Bq dieser Probe entspricht einem relativen Fehler von 49 %. Ursache ist zum einen der geringe (22 %) Aufbau des Tochternuklids, zum anderen der weiter unten diskutierte Fehler der Fenstersetzung bei dem Arbeiten einer ^{90}Y -Zählausbeute von nur 18,4 %. Längere Meßzeiten reduzieren die Abweichung vom zertifizierten Wert dieses Standards (SD15) auf 1 %. Der Fit der Equilibrium-Zählrate schwankt jedoch wie an Probe SD17 in Abb. 14 gezeigt um den theoretisch erwarteten, so daß abhängig von der statistischen Schwankung der letzten Messung auch mit einer höheren Differenz zu rechnen ist. Die Aktivität in Probe SD16 wird beispielsweise nach langer Beobachtungs- und Meßzeit um 6,5 % unterschätzt. Im Gegensatz zu hoch kontaminierten Böden, wie beispielsweise Probe Ri7 (Tab. 9, S. 61), sind die statistischen Schwankungen der Zählrate so hoch, daß die Bestimmung der Equilibriumszählrate nach mindestens zehn Wiederholungen der Messung diesen Fehler bedingen.

Über die statistischen Schwankungen der Zählraten hinaus ist insbesondere bei gleichzeitiger ^{90}Sr -Bestimmung der Einfluß der Fenstersetzung zu beachten. Denn eine geringe Verschiebung der niederenergetischen Grenze des Fensters 2 ändert die Zählausbeute an Yttrium-90 und Strontium-90 erheblich.

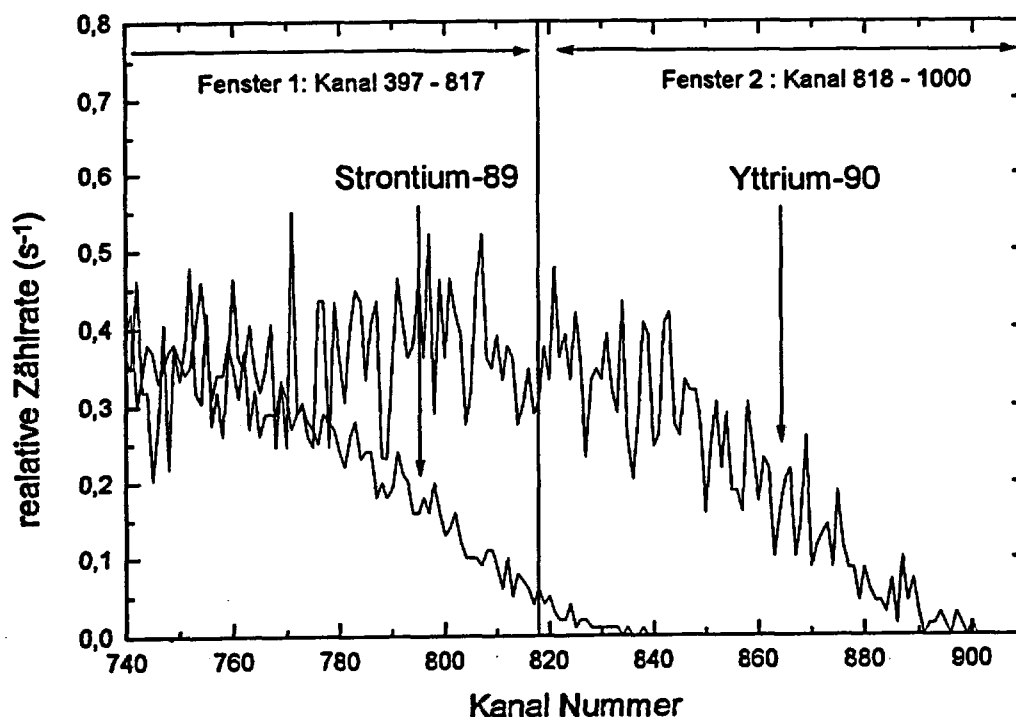


Abb. 15 : Ausschnitt der Grenze zwischen den beiden Fenstern im Flüssigszintillations-Spektrum zur Messung der ^{89}Sr - bzw. ^{90}Y -Zählrate.

Ziel der Festlegung des Ausschnitts des β -Spektrums ist es, eine möglichst hohe Zählausbeute bei geringem Untergrund zu erreichen. Selbst in dem schmalen Ausschnitt von 18,4 % Zählausbeute des ^{90}Y -Spektrums kann ein geringer Beitrag des Strontium-89 nicht völlig ausgeblendet werden, da für die genaue Wahl des Ausschnitts des Spektrums mehrere Aspekte zu berücksichtigen sind. Häufig wird als optimale Fenstersetzung der Wert gewählt, an dem das Verhältnis des Quadrats der Zählausbeute zum Untergrundsignal ein Maximum erreicht.

Dieses Verfahren kann in dem vorliegenden Fall jedoch nicht angewendet werden. Um diesen Parameter zu berechnen ist es notwendig, die ^{89}Sr -Aktivität, die zu einer Erhöhung des Untergrund-Signals beiträgt, zu kennen. Da für die Ermittlung der Aktivität an Strontium-89 jedoch der ^{90}Sr -Beitrag im niederenergetischen Fenster subtrahiert wird, muß das hochenergetische Fenster zur ^{90}Y -Erfassung schon festgelegt sein. Deshalb werden die Grenzen der Fenster und damit die Zählausbeuten unabhängig von dem Verhältnis der Aktivitäten der Radionuklide zueinander in Abhängigkeit vom Quench-Effekt festgelegt.

Die Erhöhung der Untergrundzählrate durch die Erfassung von weniger als einem Prozent der Aktivität des Strontium-89 im hochenergetischen Fenster wird dabei toleriert. Denn um dieses Nuklid absolut sicher auszublenden, müßte anderenfalls die Verringerung der Zählausbeute an Yttrium-90 auf etwa 10 % erfolgen. Wie aus Abb. 15, S.75 ersichtlich, befindet sich die niederenergetische Grenze des Fensters 2, durch die hier gewählte Festlegung auf 18,4 % ^{90}Y -Ausbeute, vor dem starken Ansteigen der Zählausbeute für Strontium-89 und nahe dem Maximum der Emissionswahrscheinlichkeit des Yttrium-90. Wird das Fenster durch eine ungenaue Bestimmung des Quench-Effektes in diesem Fall nicht präzise gesetzt, so sind die Auswirkungen noch relativ gering. Zum einen ist eine Erhöhung der Untergrundzählrate in Fenster 2 sowie ein unsicherer Fit derselben die Folge. Zum anderen weicht die tatsächlich erfaßte von der erwarteten Zählausbeute ab. Ist das hochenergetische Fenster sehr schmal gesetzt und soll beispielsweise nur 10 % der ^{90}Y -Emissionen erfaßt werden, so kann eine ungenaue Fenstersetzung zur tatsächlichen Zählung von 12 % führen. Dies hat eine Überbestimmung der ^{90}Sr -Aktivität in der Probe um 20 % zur Folge. Durch die hier beschriebene Erfassung einer höheren Zählausbeute enthält dieser Ausschnitt 18,4 % der ^{90}Y -Emissionen. Die Verschiebung der niederenergetischen Begrenzung um die gleiche Anzahl von Kanälen führt mit einer Erfassung von etwa 20,9 % gegenüber 18,4 % Yttrium-90 zu einem höheren absoluten Fehler der Bestimmung der Zählausbeute. Relativ ist dieser Einfluß jedoch mit einer Überbestimmung der Aktivität der Probe von 13,6 % geringer als von 20,0 % im Fall der Verwendung eines schmalen Fensters. Des weiteren wird die ^{90}Y -Aktivität aufgrund der höheren absoluten ^{90}Y -Zählrate sicherer erfaßt.

Abhängig von der ^{90}Sr -Aktivität nimmt die statistische Streuung des Untergrund-Signals der ^{90}Sr -Zählrate jedoch so weit zu, daß die weitere Verschiebung des Fensters in den niedrigeren Bereich des Spektrums ungünstig ist. Nach den ersten zwei bis drei Messungen hat sich die physikalische Form des Cocktails stabilisiert und die Zählausbeute der LSC-Messung wird auf 2 % genau erfaßt. Da die Bestimmung des Quench-Wertes immer zu Beginn einer Messung erfolgt, führt eine zunehmende Stauchung zur Verschiebung des Fensters in den hochenergetischen Bereich des Spektrums. Um die genaue Lage der Grenze zu bestimmen, an der die störenden Einflüsse zu überwiegen beginnen, muß die Aktivität des Radiostrontiums der Probe bekannt sein. In der in Abb. 15 dargestellten Festlegung wurde das Fenster für ein Aktivitätsverhältnis des Strontium-89 zum Strontium-90 von etwa einer Größenordnung gewählt, welches dem Verhältnis der Emission nach dem Unfall von Tschernobyl von 10 : 1 [Be96] entspricht.

Für die Berechnung der ^{90}Sr -Aktivität einer Probe mit einer Kontamination von 1 Bq ist der Fit der ^{90}Y -Zählrate der höchste Beitrag an dem Gesamtfehler. Bei der Verwendung des schmalen Zählfensters mit einer Zählausbeute von 18,4 % steigt zusätzlich insbesondere bei kurzen Beobachtungszeiten der Fehler durch eine unpräzise Fenstersetzung. Die Ungenauigkeit durch diese beiden Einflüsse wird durch die Wiederholungen der Messung reduziert. Der Gesamtfehler der Methode beträgt für Langzeitmessungen von Proben einer Gesamtkontamination von etwa 1 Bq daher 8,5 % (Tab. 11).

Das Vertrauensintervall für die Angabe der Gehaltsgröße ist von den unterschiedlichen Fehlerquellen abhängig. Nach mehr als vier Messungen wird der durch die Abweichung der gemessenen Zählraten von der gefitteten Gerade ermittelte Wert verwendet. Das Vertrauensintervall ΔA_{Y90} wird durch den Gesamtfehler f und das Quantil der Gauß-Verteilung $k_{1-\gamma}$ bestimmt.

$$\Delta A_{Y90} = A_{Y90} \left(1 \pm k_{1-\gamma/2} \cdot \sqrt{f_{Fit}^2 + f_{\gamma}^2 + f_{\beta}^2 + f_{\theta}^2} \right) \quad (25)$$

4.6.3 Einfluß der Meßbedingungen auf die ^{89}Sr -Bestimmung

Zur Bestimmung der ^{89}Sr -Aktivität von der Zählrate $R_{1,S}(t)$ im Fenster 1 ist es wie im hochenergetischen Fenster erforderlich, den Beitrag $R_{1,n}(t)$ zu subtrahieren, der nicht vom Analyten verursacht wird.

$$R_{1,Sr89}(t) = R_{1,S}(t) - R_{1,n}(t) \quad (14)$$

Durch Photo- und Compton-Effekte trägt der ^{89}Sr -Tracer zu einem Ansteigen des Signals im Fenster 1 bei. Nach der γ -spektrometrischen Bestimmung der Ausbeute kann dieser Anteil berechnet werden. Ferner erfaßt der Energiebereich dieses Fensters einen großen Anteil (76 %) der ^{90}Sr - und der sich aufbauenden ^{90}Y -Emissionen (76 %). Unter Berücksichtigung des Fehlers der Probebehandlung f_{θ} findet sinngemäß DIN 25 482 Teil 6 Gl. (24) Anwendung. Eine ungenaue Fenstersetzung ist im Gegensatz zur ^{90}Y -Erfassung von geringerer Bedeutung, da eine absolute Verringerung der Zählausbeute des Strontium-89 (89 %) um 2 % nur eine relative Änderung der Zählausbeute von 2,5 % verursacht. Da die γ -Aktivität des Tracers in

jedem vial zur Bestimmung der chemischen Ausbeute gemessen wird, kann die Erhöhung der Untergundzählrate berechnet und korrigiert werden. Enthält eine Probe kein Strontium-90, so beträgt dieser Anstieg bei 50 % chemischer Ausbeute (15 Bq ^{85}Sr) etwa $0,9 \text{ s}^{-1}$ (45 Impulse pro Minute) im Fenster 1.

Die Brutto-Nachweisgrenze für Strontium-89 ergibt sich entsprechend Gl (30) zu:

$$\rho_{1,\text{Sr}89}^* = \frac{R_{1,\text{Sr}89}^*}{1 - k_{1-\beta} \cdot \sqrt{(f_{\text{fit}}^2 + f_{\beta}^2 + f_{\gamma}^2 + f_{\theta}^2)}} \quad (30)$$

Die unterschiedlichen Fehlerquellen beeinflussen die Höhe der Erkennungs- und der in Gl. (30) aufgeführten Nachweisgrenze. Wie oben beschrieben, betragen die relativen Fehler der γ -Spektrometrie, der β -Spektrometrie und der Probevorbereitung 6,9 %. Die ^{89}Sr -Aktivität an der Nachweisgrenze muß mindestens so hoch sein wie an der Erkennungsgrenze. Die Zählrate der geringsten Erkennungsgrenze ist mit dem höchsten relativen Poisson-Fehler behaftet. Für diese Zählrate von $0,0236 \text{ s}^{-1}$ ($0,053 \text{ Bq kg}^{-1}$) berechnet sich dieser nach vier 360 Min-Messungen zu 2,2 %. Somit ergibt sich der Gesamtfehler der ^{89}Sr -Zählrate an der Nachweisgrenze zu 7,3 %.

$$\rho_{1,\text{Sr}89}^* = \frac{R_{1,\text{Sr}89}^*}{1 - k_{1-\beta} \cdot 7,3\%} \quad (40)$$

Der Fehler des Fits der ^{90}Y -Equilibriumszählrate kann zunächst wieder abgeschätzt werden. Für eine größere Anzahl von Messungen wird er aus der Abweichung zur gefitteten Kurve berechnet.

Tab. 14 : Erkennungs- und Nachweisgrenze des Strontium-89 in Abhängigkeit von der Meßzeit und dem ^{90}Sr -Gehalt der Probe.

^{90}Sr -Aktivität (Bq kg^{-1})	Kenngroße	^{90}Y -Aufbau 24 h	^{90}Y -Aufbau 48 h	^{90}Y -Aufbau 24 h
0	Ekgr. (Bq kg^{-1})	0,53	0,53	0,53
	Nwgr. (Bq kg^{-1})	0,60	0,60	0,60
1	Ekgr. (Bq kg^{-1})	0,84	0,63	0,57
	Nwgr. (Bq kg^{-1})	0,96	0,72	0,65
10	Ekgr. (Bq kg^{-1})	6,6	3,5	2,3
	Nwgr. (Bq kg^{-1})	7,5	3,9	2,6

Wie in Tab. 14 dargestellt ist die spezifische ^{89}Sr -Erkennungsgrenze von der ^{90}Sr -Aktivität in der Probe und der Beobachtungszeit abhängig. Denn einerseits erhöht das Strontium-90 das Untergrundsignal während sich ein weiterer Anteil Yttrium-90 kontinuierlich aufbaut. Andererseits ist dieser insbesondere in den ersten Stunden nach der Abtrennung des Yttrium-90 nur mit hoher Unsicherheit bestimmbar. Beträgt die spezifische ^{90}Sr -Aktivität des Bodens beispielsweise 10 Bq kg^{-1} , so enthält das Zählfläschchen bei Bearbeitung einer 100 g Probe und einer chemischen Ausbeute von 50 % $0,5 \text{ Bq}$ Strontium-90. Da die Equilibriumsaktivität immer genauer bestimmt werden kann, sinkt die ^{89}Sr -Erkennungsgrenze von $6,6 \text{ Bq kg}^{-1}$ nach 24 h auf $2,3 \text{ Bq kg}^{-1}$ nach 200 h ab.

Für die Berechnung des Fehlers 2. Art ist die ^{90}Sr -Aktivität der Probe nicht erheblich. Die Erkennungsgrenze ist allerdings von dem absoluten Gehalt an Strontium-90 und der Genauigkeit, mit der dieser bestimmt wird, abhängig. Daher gehen diese Einflüsse auch in die Berechnung der Nachweisgrenze ein. Mit zunehmender Anzahl von Messungen sinkt diese bei einer spezifischen ^{90}Sr -Aktivität des Bodens von 10 Bq kg^{-1} entsprechend Tab. 14 von $7,5 \text{ Bq kg}^{-1}$ Strontium-89 nach 24 h auf $2,6 \text{ Bq kg}^{-1}$ Strontium-89 nach 200 h ab.

Die Unsicherheit der Bestimmung der spezifischen ^{89}Sr -Aktivität von Bodenproben ist mit Hilfe der Messung der Standards SD14, SD15, SD16 und SD17 (Tab. 10) abgeschätzt wurden. Die ^{89}Sr -Aktivität dieser Proben überstieg diejenige an Strontium-90 um das 4 bis 20-fache. Dem für diese Proben verwendeten Verhältnis der Aktivitäten liegt die Annahme zugrunde, daß nach einem kerntechnischen Unfall die Aktivität des kurzlebigen Nuklids überwiegt. Für die Berechnung der ^{89}Sr -Aktivität hat der Fehler der $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ -Bestimmung bei diesem Aktivitätsverhältnis keinen großen Einfluß, obwohl ihr Anteil an der Zählrate in Fenster 1 subtrahiert werden muß. Aber während der ersten Messung ist ein geringer Anteil (5 %) der gesamten ^{90}Y -Aktivität gebildet und daher die zu korrigierende Zählrate gering. Die ^{90}Sr -Zählausbeute in diesem Fenster beträgt 76 %. Daher ist eine präzisere Bestimmung der Untergrundzählrate durch einen genauen Fit der ^{90}Y -Zählrate möglich. Aber selbst in den Proben, die den höchsten Fit-Fehler zeigen, beläuft sich die Änderung der ^{89}Sr -Aktivität nach vier Tagen lediglich auf 4,1 % (SD15, Tab. 10). In dieser Probe wurde die Aktivität anfangs sogar genauer berechnet, so daß dieser Beitrag zur Untergrundzählrate nicht der wichtigste sein kann. In den anderen Proben (SD14, SD16 und SD17) beträgt die maximale Änderung nach der späteren Bestimmung 3,4 % (SD14) und zeigt keinen Anstieg der Genauigkeit. Der Gesamtfehler der Bestimmung der Aktivität ist daher bei dem hier gewählten

Isotopenverhältnis nicht auf den ungenauen ^{90}Y -Fit sondern vor allem auf die Bestimmung der chemischen Ausbeute und anderer Fehler zurückzuführen.

Ein Vergleich der Fenstersetzung für die beiden Nuklide zeigt, daß die Emissionen des Strontium-89 zu 89 % erfaßt werden, von Yttrium-90 hingegen nur zu 18,4 %. Dennoch ist die Methode aufgrund des geringeren Untergrund-Signals im hochenergetischen Fenster für Strontium-90 empfindlicher als für Strontium-89.

4.6.4 Vorteile der Detektion des Yttrium-90 und der Flüssigszintillations-Spektrometrie

Um die Aktivität des Radiostrontiums einer Probe schnell abzuschätzen, ist es prinzipiell möglich, auf die Detektion des Aufbaus des Yttrium-90 ganz zu verzichten. Ein niederenergetisches Fenster ist für eine solche Messung zwischen etwa 50 und 540 keV zu setzen, um die Aktivität des Strontium-90 zu messen. Eine Verwendung des ^{85}Sr -Tracers ist in diesem Fall nicht möglich, da das Spektrum des Strontium-90 von diesem vollständig überdeckt wird. Somit ist auch eine andere Bestimmung der Ausbeute anzuwenden. Das hochenergetische Fenster erfaßt bei der direkten Bestimmung des Strontium-89 etwa den Bereich von 540 bis 1500 keV. Eine solche Messung ermöglicht die Schnellabschätzung der $^{89/90}\text{Sr}$ -Aktivität der Probe. Bei hohen ^{89}Sr -Kontaminationen ist es mit dieser Einstellung des Meßgerätes nicht möglich, das Strontium-90 unter dem ^{89}Sr -Rauschen zu erkennen. Ferner kann der Anstieg der Zählrate des Yttrium-90 im hochenergetischen Fenster nicht beobachtet werden. In frischem Fallout ist eine hohe Aktivität des Strontium-89 zu erwarten, und die Reinheit der radiochemischen Trennung kann nur durch die Änderung der ^{90}Y -Zählrate kontrolliert werden. Daher wurde diese Fenstersetzung nicht verwendet und der Aufbau des Yttrium-90 gemessen.

Aufgrund der Verwendung des ^{85}Sr -Tracer kann eine geringe Aktivitäten des Strontium-90 wie oben beschrieben nicht direkt sondern nur über das Tochternuklid gemessen werden. Grundsätzlich besteht die Möglichkeit den Aufbau oder der Zerfall des Yttrium-90 zu erfassen. Häufig wird nach der Reinigung des Strontiums die Einstellung des radiochemischen Gleichgewichts abgewartet, Yttrium abgetrennt und der Zerfall des Yttrium-90 gemessen. Bevor das Tochternuklid abgetrennt werden kann, muß jedoch eine ausreichende Menge aufgebaut worden sein. Abhängig von der geforderten Nachweisgrenze kann die ^{90}Y -Abtrennung nach einem Störfall schon nach wenigen Stunden durchgeführt werden. Erfolgt die

Unterbrechung des Aufbaus zu früh und liegt die Aktivität unterhalb des Nachweisvermögens, so muß die gesamte naßchemische Arbeit später wiederholt werden, wenn eine genaue Bestimmung der Aktivität durch vollständigen Aufbau des Tochternuklids benötigt wird. Zum Erreichen möglichst genauer Meßergebnisse beim Umweltmonitoring ist in jedem Fall der vollständige Aufbau abzuwarten.

Durch die Detektion des Aufbaus des Tochternuklids muß die Einstellung des radioaktiven Gleichgewichts vor der ^{90}Y -Trennung jedoch nicht abgewartet werden. Die Zeit, die andernfalls für den Aufbau des Tochternuklids notwendig ist, wird bereits für die Detektion verwendet. Abhängig von der absoluten Aktivität in der Probe kann schon nach wenigen Stunden eine Aussage über die Kontamination der Probe gemacht werden. Tritt innerhalb der ersten Stunden keine signifikante Änderung der Zählrate ein, so kann ohne weiteren präparativen Aufwand durch erneutes Messen des vials der eventuelle weitere Anstieg beobachtet werden. Ferner sind keine zusätzlichen Arbeitsschritte notwendig, um die Ausbeute an Yttrium zu bestimmen.

Die Erhöhung der Untergrundzählrate durch den Tracer führt zu einer Verringerung der Nachweisempfindlichkeit des Strontium-89 um etwa eine Größenordnung. Da dieses Nuklid jedoch nur nach einem Störfall bestimmt werden soll, wenn hohe Aktivitäten dieses Isotops zu erwarten sind, ist dieser Einfluß tolerierbar.

Bei der Verwendung eines Szintillations-Meßgerätes ist es prinzipiell möglich, statt der Mischung der Probe mit einem Szintillator und Messung der Fluoreszenzen die Cerenkov-Strahlung zu messen. Diese wird als Folge der Abbremsung der beim Zerfall emittierten Elektronen von einer Geschwindigkeit, die höher ist als die Lichtgeschwindigkeit in dem betreffenden Medium, auf thermische Energie abgegeben. Die Cerenkov-Strahlung weist ein kontinuierliches Spektrum von null eV bis zu der für das Nuklid und Medium charakteristischen Maximalenergie auf und wird häufig für die radiochemische Detektion genutzt. Gegenüber der Flüssigszintillations-Spektrometrie hat diese Arbeitstechnik den Vorteil, daß weniger Quencheffekte zu berücksichtigen sind. Denn die Übertragung und der eventuelle Verlust von Energie auf Lösungsmittelmoleküle ist für diese Meßtechnik nicht erheblich. In Abb. 16 ist das Cerenkov-Spektrum eines $^{90}\text{Y}/^{90}\text{Sr}$ -Standards, eines ^{89}Sr -Standards und eines Blanks aus demineralisiertem Wasser abgebildet.

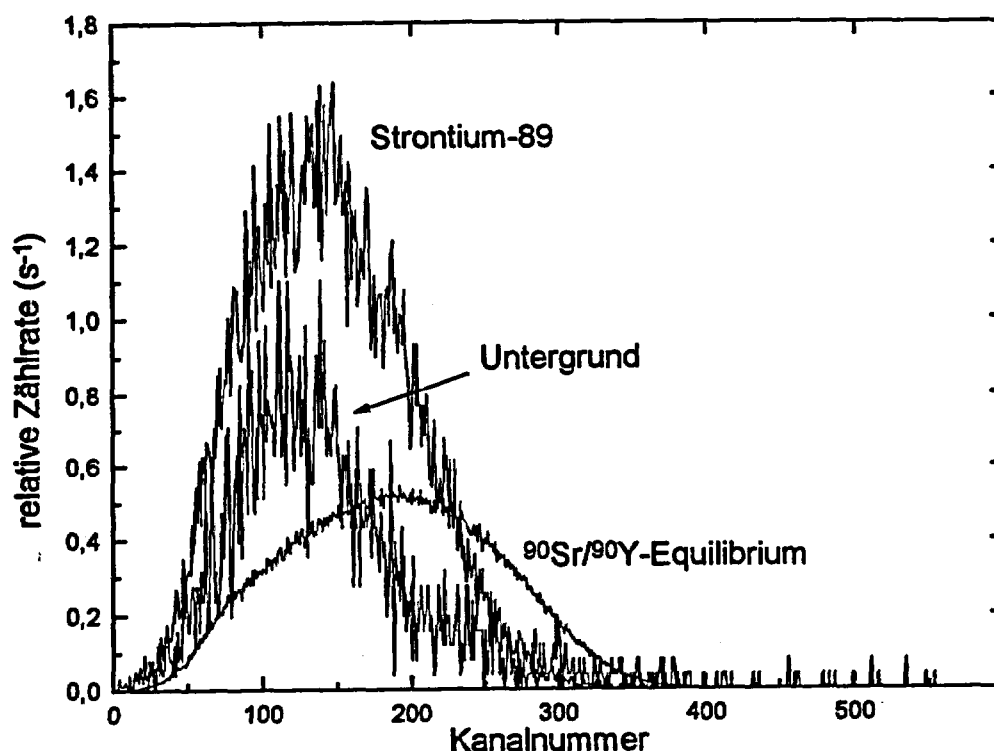


Abb. 16 : Cerenkov-Spektren des Strontium-90 und Yttrium-90 im radiochemischen Gleichgewicht, des Strontium-89 sowie eines Blanks.

Das Cerenkov-Spektrum zeigt gegenüber dem LSC-Spektrum nicht die typischen zwei Maxima der Emissionswahrscheinlichkeiten des Strontium-90 und Yttrium-90. Die Zählausbeute beträgt für das oben abgebildete Summenspektrum in dieser Meßanordnung (Wasser als Lösungsmittel) 28 %. Da nur solche Elektronen einen Zählimpuls auslösen, deren Emissionsgeschwindigkeit diejenige des Lichtes im Wasser übersteigt, ist die Zählausbeute aller Radioisotope geringer. Insbesondere das niederenergetische Strontium-90 wird mit einer Zählausbeute von weniger als 5 % weitgehend unterdrückt. Von dem Isotop Strontium-89 werden weniger als 40 % der Emissionen detektiert. Die stärkere Stauchung des Cerenkov-Spektrums erfordert eine präzisere Fenstersetzung als bei der LSC-Zählung, da die gleiche Verschiebung der Grenzen des Fensters zu einer höheren relativen Änderung der Zählausbeute führt. Um eine höhere Zählausbeute und einen geringen Fehler der β -Spektrometrie zu erreichen, wurde daher die Flüssigszintillation zur Bestimmung der Aktivität verwendet.

4.6.5 Vergleich mit einer massenspektrometrischen Methode

Wenn sich auch in den ersten Tagen nach einem Reaktorunfall die Katastrophenschutzmaßnahmen auf flüchtige kurzlebige Radioisotope (Iod-131) konzentrieren, wird im Ereignisfall von den Entscheidungsträgern eine schnelle Information über die Kontamination der Umwelt gefordert. Vor allem die Massenspektrometrie stellt eine Alternative dar zur β -Zählung langlebiger Radionuklide, wie des Strontium-90. Übersteigt die Konzentration des stabilen Strontium-88 die des Strontium-90 um nicht mehr als neun Größenordnungen, so ermöglicht es die Massenspektrometrie, beide Isotope ohne Interferenzen zu messen. Demgegenüber werden bei der hier verwendeten Fenstersetzung nur 18 % der ^{90}Y -Emissionen erfaßt, wenn Strontium-89 in der Probe vorhanden ist. Dies verringert die Nachweissensitivität gegenüber vollständig geöffnetem Fenster um etwa ein Drittel. Bei der Verwendung radiometrischer Detektionstechniken und des ^{85}Sr -Tracers kann dieser Effekt nicht umgangen werden, da sonst ein zu hoher Anteil ^{85}Sr -Emissionen im ^{90}Y -Fenster erfaßt wird. Um die β -Zählung mit der leistungsfähigsten massenspektrometrischen Detektion zu vergleichen, sind einige Kenngrößen des Systems in Tab. 15 gegeben.

Tab. 15 : Vergleich der Zähleffizienz der Resonanz-Ionisations-Massen-Spektrometrie (RIMS) [Mo93] und radiometrischer Detektionstechniken.

Analyt	Detektiertechnik	Meßzeit (h)	Untergrund (Impulse)	Meßbedingung	Zählausbeute (10^{-6})
^{90}Sr	RIMS	1,4	100	Rydberganregung mit einem Argon Ionen Laser	50
^{89}Sr	β -Zählung	24	9000	89 % Zählausbeute ohne ^{85}Sr -Tracer	12000
^{89}Sr	β -Zählung	24	60000	89 % Zählausbeute mit ^{85}Sr -Tracer	12000
^{90}Sr	β -Zählung	24	---	50 % Zählausbeute	34
^{90}Y	β -Zählung	24*	2500	50 % Zählausbeute	4,0
^{90}Y	β -Zählung	24*	750	18 % Zählausbeute	1,5

* Für die Berechnung wurde ein mittlerer ^{90}Y -Aufbau von 12 % zugrunde gelegt.

Wird für die Anregung des Rydbergzustandes in der Laser-Resonanz-Massen-Spektrometrie (RIMS) ein Argon Ionen Laser verwendet, so beträgt die Zählausbeute etwa 5×10^{-5} [Mo93]. Innerhalb einer Messung können 10^8 Atome (0,1 Bq) Strontium-90

nachgewiesen werden. Der Untergrund während 1,4 h (5000 s) Meßzeit beläuft sich auf etwa 100 Impulse. Aufgrund der Halbwertszeit von 28,6 a können von den ^{90}Sr -Atomen, die sich in einem β -Zähler befinden, niemals mehr als 5×10^{-5} Anteile während einer 24 h-Messung als Folge des radioaktiven Zerfalls nachgewiesen werden. Findet die Detektion über den Anstieg der ^{90}Y -Zählrate statt, so verringert sich die Zählausbeute nochmals, da in den ersten 24 h je nach Zählbeginn im Mittel nur etwa 12 % der Aktivität aufgebaut ist. Ferner liegt der Untergrund mit 750 bis 2500 Impulsen während der Messung deutlich höher als in der RIMS mit etwa 100 Impulsen. Für die ^{90}Sr -Detektion kann daher massenspektrometrisch bei gleicher Meßzeit ein geringeres Untergrundsignal und eine etwa 370-fache Zählausbeute erreicht werden.

Mit nur 50,5 d weist Strontium-89 eine wesentlich geringere Halbwertszeit auf als Strontium-90, so daß während einer 24 h- bzw. 1,4 h-Messung 1,36 % bzw. 0,08 % der Atome zerfallen. Beträgt die Zählausbeute im Detektor 89 %, ergibt sich somit eine Gesamtzählausbeute von 1,2 %. Während einer 24 h-Messung werden 9×10^3 bis 6×10^4 Untergrund-Impulse registriert, abhängig davon, ob zur Bestimmung der chemischen Ausbeute Strontium-85 zugefügt wurde. Unter der Annahme, daß Strontium-89 von der RIMS mit der gleichen Auflösung und dem gleichen Untergrund getrennt wird wie Strontium-90, kann dieses Verfahren auch mit der β -Zählung verglichen werden. Auf die gleiche Meßzeit bezogen, weist die radiometrische ^{90}Sr -Detektion gegenüber der massenspektrometrischen etwa den 35-fachen Untergrund bei 21-facher Zähleffizienz auf. Abhängig von der Streuung des Untergrundsignals sind mit diesen beiden Methoden für die Detektion des Strontium-89 trotz Verwendung des ^{90}Sr -Tracers vergleichbare Nachweismöglichkeiten zu erwarten.

In der Probevorbereitung unterscheiden sich die beiden Methoden nicht wesentlich. Für die β -Zählung stellt die radiochemische Reinheit der Probe nach der naßchemischen Trennung die wichtigste Anforderung dar. Demgegenüber führt bei Verwendung der massenspektrometrischen Detektion eine Kontamination des Strontiumpräparats beispielsweise mit Blei-210 zu keinen Fehlmessungen auf der Isobare 90. Aufgrund der trägerfreien Abtrennung des Strontiums sind in der Massenspektrometrie allerdings besondere Trennschritte notwendig. Ferner erfordert der Betrieb und die Wartung der RIMS einen hohen personellen und wirtschaftlichen Aufwand. Die Einrichtung dieses Meßsystems bleibt auf eines oder wenige Laboratorien beschränkt. Demgegenüber ist die naßchemische Arbeit und Auswertung der Spektren nach der in dieser Arbeit vorgestellten Methode von einer einzigen Person

durchführbar. Ferner verfügt jedes radioanalytisch ausgerichtete Labor über ein γ -Spektrometer. Flüssigszintillations-Zähler, die die Möglichkeit bieten zwei Fenster zu setzen, sind ebenfalls in vielen Einrichtungen vorhanden, und das für die Extraktionschromatographie notwendige Austauscherharz ist kommerziell zugänglich.

Nach der Probeaufbereitung ermöglicht es die RIMS die Aktivität des längerlebigen Strontium-90 schneller zu bestimmen. Da alle zu untersuchenden Proben allerdings zu einem einzigen Ort in Deutschland (Mainz) transportiert werden müssen, ist der Zeitvorteil der kurzen Messung zu relativieren. Mit der in dieser Arbeit vorgestellten Methode kann bereits zwei Tage nach Einlieferung der Probe, etwa 24 h nach Beginn der β -Messung, die Aktivität typischer Umweltproben nachgewiesen werden. Die spezifische Aktivität der oberen Schichten der Böden in Deutschland übersteigt durch die ^{90}Sr -Kontamination mit dem nuklearen Fallout der sechziger Jahre meist 5 Bq kg^{-1} . Für das in frischem Fallout in höherer Aktivität vorliegende Strontium-89 bietet die Massenspektrometrie keinen Zeit-Vorteil. Die RIMS ermöglicht es, die ^{90}Sr -Aktivität wichtiger Proben schnell zu erfassen und die Meßergebnisse an die Entscheidungsträger bzw. die zentrale Datenerfassung (IMIS) weiterzuleiten. Das in dieser Arbeit beschriebene Verfahren stellt eine Methode zur schnellen Bestimmung des Strontium-90 dar, die mit geringem personellen und apparativen Aufwand dezentral in typischen radioanalytischen Laboratorien durchführbar ist.

4.6.6 Nachweisgrenzen für frisch kontaminierte und low-level Proben

Zusammenfassend läßt sich feststellen, daß die absolute $^{89/90}\text{Sr}$ -Aktivität, das Verhältnis der Nuklide zueinander und der Zeitraum der Beobachtung die Berechnung der statistischen Kenngrößen beider Nuklide beeinflussen. Für die meisten praktischen Fälle sind jedoch zwei Probearten ausschlaggebend.

Enthält die Probe kein Strontium-89, so wird das hochenergetische Fenster soweit geöffnet, daß über 50 % der ^{90}Y -Emissionen gezählt werden. Steht genügend Zeit zur Verfügung und ist nach den ersten Messungen abzusehen, daß die Aktivität des vials nahe der Nachweisgrenze liegt, so finden etwa zehn Wiederholungen von je 360 Minuten statt (Umweltmonitoring). Erreicht die chemische Ausbeute 50 %, so beträgt die spezifische Nachweisgrenze bei der Analyse einer 100 g-Probe $0,2 \text{ Bq kg}^{-1}$.

Nach einem kerntechnischen Unfall ist beispielweise in Luftfiltern mit Aktivitäten von mindestens 100 mBq Strontium-90 und 15 Bq Strontium-89 [Mo93] zu rechnen. Diese ^{89}Sr -Aktivität kann mit der Kombinations-Methode innerhalb von zwei Tagen nach Eintreffen der Probe nachgewiesen werden. Für die Bestimmung dieser ^{90}Sr -Aktivität sind vier weitere 6 h-Messungen erforderlich. Nach dem Einliefern einer solchen Probe (100 mBq Strontium-90, 15 Bq Strontium-89) wird die Aktivität somit nach der eintägigen chemischen Trennung weitere 48 h bis zur Erfassung der ^{90}Sr -Aktivität gemessen.

5 Erfassung der ^{90}Sr -Aktivität von Bodenprofilen

Die ^{90}Sr -Aktivität von Umweltproben wurde beispielhaft in zwei Regionen der Erde untersucht. Zum einen fand die Bestimmung der großräumigen Immissionen durch den nuklearen Fallout der sechziger Jahre in der Südhemisphäre statt. Zum anderen wurde die eher regional begrenzte Ausbreitung der Emissionen nach dem Unfall von Tschernobyl ermittelt.

5.1 Globale Kontamination durch den Kernwaffen-Fallout

Die ^{90}Sr -Aktivität in den chilenischen Bodenproben wurde nach der oben beschriebenen Methode ermittelt. In vier Regionen der Südhalbkugel fand exemplarisch die Bestimmung der Immission durch den nuklearen Fallout der sechziger Jahre statt. Die in diesem Rahmen untersuchten Umweltproben der Südhemisphäre gehören zu einer Serie von Bodenprofilen, die während Expeditionen in den Jahren 1990 bis 1995 von Handl, Schuller und Mitarbeitern in Chile entnommen wurden. Die Probenahmen fanden zum einen auf den der Antarktischen Halbinsel vorgelagerten Südshetlandinseln statt. Ferner wurden Profile an der südlichen Spitze des südamerikanischen Kontinents (Westpatagonien), in der 10. Region Chiles (Seengebiet) sowie auf der Osterinsel entnommen. Die Beprobungen fanden an ebenen, mit gleichmäßiger Vegetation bedeckten Flächen statt, so daß ein Analytverlust durch Erosionen oder lateralen Wassertransport so gering wie möglich gehalten wurde. Die quadratischen Bodensäulen mit einer Oberfläche von 20 cm mal 20 cm wurden in Schichten von einem bis zu mehreren Zentimetern Dicke abgetragen (Abb. 9, S.40). Die Verteilung der ^{137}Cs -Aktivität im Boden wurde bereits von Schuller und Mitarbeitern [Sc97, Sc97a] sowie Wilkendorf Schwarzenberg [WS97], Oliva Turbis [OT94] und Castillo Santana [CS97] in den Profilen der Antarktis, der Seenregion Chiles bzw. der Osterinsel beschrieben.

5.1.1 Berechnung der Immissionen

Strontium wurde durch zwölfstündiges Kochen in Salzsäure extrahiert. Die Verwendung von Salpetersäure war nicht erforderlich, da auf der Südhalbkugel keine Immissionen von keramischer Brennstoffmatrix zu erwarten waren. Ferner enthält der Fallout der Kernwaffentests der sechziger Jahre keine nachweisbare Aktivität an Strontium-89 mehr.

Es ist nicht möglich, von der ermittelten massebezogenen Aktivität (Bq kg^{-1}) direkt auf die gesamte Depositionsdichte (Bq m^{-2}) in einem Profil zu schließen, da sich die Bewuchs- und Lagerungsdichten der einzelnen Standorte unterscheiden. Die in der Analyse ermittelten spezifischen Aktivitäten der einzelnen Böden werden daher zur Berechnung der flächenbezogenen Kontamination verwendet. Diese Größe dient zur vergleichenden Betrachtung und zur Erstellung ökologischer Aussagen. So ergibt sich die Depositionsdichte pro Bodenschicht i $A_{F,i}$ (Bq m^{-2}) aus dem Produkt der spezifischen Aktivität des Bodens, der Mächtigkeit der Schicht und ihrer Lagerungsdichte. Diese ist standortspezifisch und wird durch das Mineralvorkommen des Feinbodens (Mineraldichte), den Porenanteil bzw. die Aggregatbeschaffenheit bestimmt.

$$A_{F,i} (\text{Bq m}^{-2}) = a_i \times h_i \times \rho_i \quad (41)$$

a_i : spezifische Aktivität (Bq kg^{-1}) der Schicht i
 h_i : Mächtigkeit der Schicht (cm)
 ρ_i : Lagerungsdichte (g cm^{-3})

Verglichen mit der spezifischen Aktivität des Bodens bietet die Erfassung der Depositionsdichte pro Schicht den Vorteil, daß unterschiedliche Bodendichten berücksichtigt werden. Dieser Wert stellt eine volumenbezogene Aktivitätskonzentration dar. Der im Bewuchs deponierte ^{90}Sr -Anteil (Bq m^{-2}) ergibt sich nach Gl. (42) aus der spezifischen Aktivität und der Bewuchsdichte.

$$A_{F,i} (\text{Bq m}^{-2}) = a_i \times \rho_{\text{Bewuchs}} \quad (42)$$

a_i : spezifische Aktivität (Bq kg^{-1})
 ρ_{Bewuchs} : Bewuchsdichte (kg m^{-2})

Die Depositionsdichten in jeder einzelnen Schicht sowie des Bewuchses addieren sich nach Gl. (43) zu der flächenbezogenen Gesamtdepositionsdichte eines Profils.

$$A_F (\text{Bq m}^{-2}) = \sum_{i=0}^n A_{F,i} \quad (43)$$

$A_{F,i}$: Depositionsdichte pro Schicht i
 n : tiefste untersuchte Schicht

Der Eintrag eines Radionuklids $E(x)$ (Bq m^{-2}) in die Tiefe x eines Profils beschreibt die gesamte Aktivität, die sich in dieser und den tiefer liegenden Schichten befindet. Sie ergibt sich somit für die Schicht der Tiefe x als Integral der Aktivität des Nuklids in dieser sowie in allen darunter liegenden Schichten:

$$E(x) (\text{Bq m}^{-2}) = \sum_{i=x}^n A_{F,i} \quad (44)$$

Auf die Gesamtaktivität des Profils bezogen entspricht der Eintrag also dem relativen Anteil, der bis in diese Tiefe oder tiefer gelangte. Diese Normierung bietet wiederum den Vorteil, die Migration in unterschiedlichen Böden unabhängig von der absoluten Aktivität zu vergleichen. Um die Tiefe der Migration eines Radionuklids in einem Profil darzustellen, wird die Relaxation betrachtet. Unter der Annahme, daß die Aktivität beispielsweise des Strontium-90 exponentiell mit der Tiefe abnimmt, kann sie mit Gl. (45) beschrieben werden:

$$E(x) = E_0 \cdot e^{-x/b} \quad (45)$$

$E(x)$: Eintrag unterhalb der Tiefe x
 E_0 : Eintrag in das gesamte Profil
 x : Tiefe des Profils (cm)
 b : Relaxationstiefe (cm)

In der Relaxationstiefe b (cm) ist die in den tieferen Teil des Boden migrierte Aktivität auf e^{-1} , also auf etwa 37 % abgefallen. Vergleicht man zwei Profile, so weist eine höhere Relaxationstiefe bei gleicher Depositiosgeschichte auf eine schnellere Migration hin. Ohne eine solche Zusatzinformation über den Verlauf der Immission ist eine zeitabhängige Aussage allein aufgrund der Relaxationstiefe jedoch nicht möglich. Ferner ist diese mathematische Beschreibung nur für diejenigen Profile sinnvoll, die zumindest in einem Tiefenabschnitt eine exponentielle Abnahme der Aktivität aufeinanderfolgender Schichten zeigen.

Um alle Proben und Immissionen vergleichend zu betrachten, wurde als Bezugsdatum für die Aktivitätsangabe der chilenischen Proben der 1. Januar 1995 gewählt [OT94].

5.1.2 Spezifische Aktivitäten und Depositionen der einzelnen Regionen

Die ^{90}Sr -Deposition im gesamten Profil und im Bewuchs ist in Tab. 16 für die einzelnen Standorte dargestellt. Ferner ist für die nicht antarktischen Standorte, in denen eine tiefere Migration erfolgte, die Relaxationstiefe gegeben.

Tab. 16 : ^{90}Sr -Aktivität in chilenischen und antarktischen Bodenprofilen.

Profil	Region	geogr. Lage	Entnahmedatum	Depositionsdichte Boden (Bq m^{-2}) ^a	Depositionsdichte Bewuchs (Bq m^{-2}) ^a	Bewuchsform	Depositionsdichte im Profil ^b (Bq m^{-2})	Relaxation (cm)	Verhältnis der Aktivität $^{137}\text{Cs} / ^{90}\text{Sr}$
Anakena	Osterinsel	27°1' S 109°5' W	11.04.1994	367	0,1	Gras	311 ± 16	6,2	2,0 ± 0,2
Arquihue II	Seen Region	40°1' S 72°1' W	17.04.1990	642	---	---	579 ± 42	13	2,5 ± 0,2
Rio Pescado	Seen Region	41°3' S 72°7' W	07.05.1991	1095	---	---	988 ± 67	8,8	1,2 ± 0,2
Mashue	Seen Region	40°3' S 73°3' W	04.10.1990	343	---	---	306 ± 20	7,5	2,1 ± 0,2
Curinanco Alto	Seen Region	40°1' S 72°1' W	12.04.1990	1360	---	---	1221 ± 103	11	1,8 ± 0,2
Curinanco Bajo	Seen Region	39°8' S 73°3' W	12.04.1990	779	---	---	699 ± 53	9,2	1,6 ± 0,2
Valle Grey	Westpatagon.	51°1' S 72°6' W	07.12.1994	309	2,0	Gras	363 ± 27	2,1	2,1 ± 0,2
Ardley (R) ^c	Antarktis	62°13' S 58°54' W	14.01.1993	156	17,1	Flechte	165 ± 21	5°	2,6 ± 0,24
Ardley (X) ^c	Antarktis	62°13' S 58°54' W	03.02.1994	88	---	Moos	108 ± 18	> 9°	< 4,6 ± 0,21
Ardley (Z) ^d	Antarktis	62°13' S 58°54' W	03.02.1994	98	18,7	Moos	109 ± 8,3	---	4,8 ± 0,21
Base Artigas ^d	Antarktis	62°12' S 58°56' W	11.01.1995	54	2,5	Moos	54 ± 13	---	2,5 ± 0,31
Base Ferraz A	Antarktis	62°05' S 58°25' W	09.01.1995	---	---	---	< 71	---	---
Coppermine B	Antarktis	62°22' S 59°40' W	20.01.1993	100	19,7	Moos	114 ± 15	3°	5,8 ± 0,24
Fildes ^e	Antarktis	62°10' S 58°59' W	13.01.1993	315	12,2	Moos	312 ± 32	> 6°	< 1,6 ± 0,22
Isla Snow	Antarktis	62°55' S 59°03' W	06.01.1995	52	11,3	Moos	63 ± 13	2°	3,1 ± 0,29
Maldonado	Antarktis	62°27' S 59°43' W	07.01.1995	112	---	---	122 ± 19	3°	3,8 ± 0,25
Potter ^e	Antarktis	62°13' S 58°45' W	14.01.1993	63	---	---	60 ± 9,8	> 3°	< 2,1 ± 0,26

^a bezogen auf das Entnahmedatum^b bezogen auf das Datum 01.01.95^c Aktivität bis zur tiefsten untersuchten Schicht nachgewiesen^d als Mischproben untersucht^e Migrationstiefe (cm)

5.1.3 Antarktische Proben

Die etwa 300 km lange Inselgruppe der Südshetlandinseln erstreckt sich vom 58° bis zum 62° westlicher Länge bzw. vom 62° bis zum 63° südlicher Breite. Der Winter ist von langen Frostperioden und starken Schneestürmen geprägt [AGS67]. Die Böden sind mehrere Monate gefroren und tauen nur während der Sommermonate (Dezember bis Februar) auf. Die nach den jeweiligen Buchten oder Forschungsstationen benannten Entnahmestellen sind in der Skizze (Abb. 17) eingezeichnet.

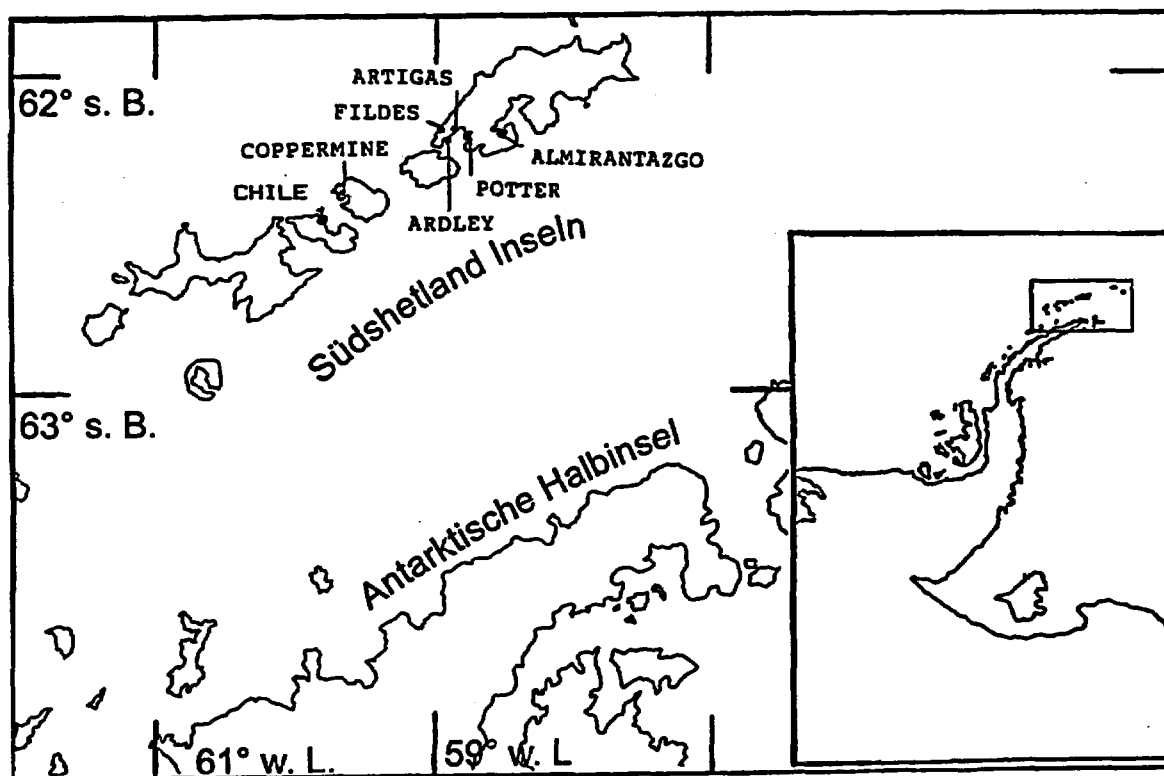


Abb. 17 : Skizze der Südshetlandinseln und einiger Probeentnahmestellen.

Insgesamt wurden die ^{90}Sr -Immission in zehn Profilen von drei unterschiedlichen Inseln der Südshetlands bestimmt. Die spezifischen Aktivitäten der Schichten mit den zugehörigen Unsicherheiten sowie die Dichten des Bodens sind im Anhang (S. 139) aufgeführt. In den Proben Ardley (X) und Almirantazgo wurden bis in die maximal untersuchten Tiefen von 6 bzw. 9 cm eine ^{90}Sr -Aktivität oberhalb der Nachweisgrenze ermittelt. Es ist daher nicht auszuschließen, daß sich ein gewisser Anteil des Radiostrontiums noch unterhalb der untersuchten Schichten befindet. Für die Profile Ardley (Z) und Base Artigas wurden die Bodenschichten nicht getrennt, sondern als Mischproben untersucht.

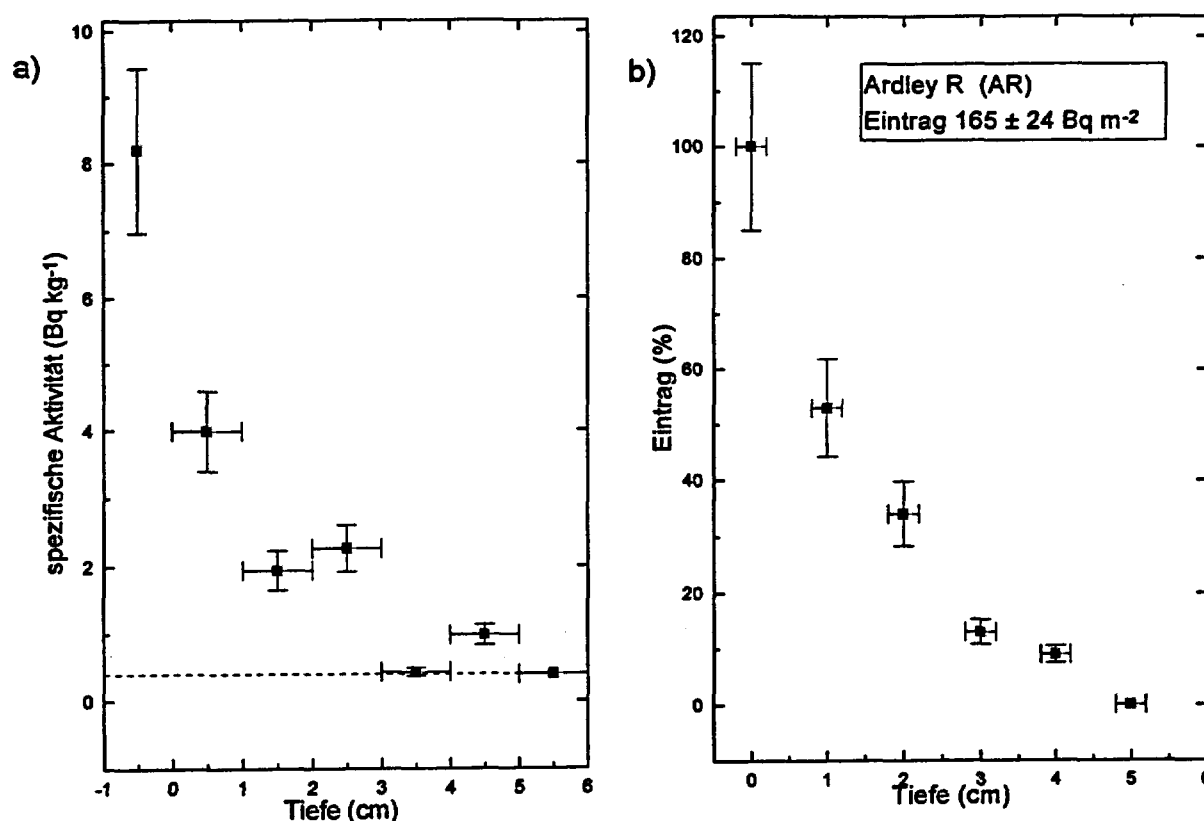


Abb. 18 : a) Abnahme der spezifischen Aktivität des Bewuchses und des Bodens mit zunehmender Tiefe im Profil Ardley R (St. Georg Insel, Antarktis) und b) der Verlauf des Eintrags in den Boden.

In Abb. 18 a) ist die Abnahme der spezifischen Aktivität des Profils Ardley R dargestellt. Die vertikalen Fehlerbalken zeigen die einfache Standardabweichung, die horizontalen stellen die Mächtigkeit der Bodenschicht dar. Da viele Proben eine spezifische Aktivität nahe der Nachweisgrenze aufweisen, sind die Ergebnisse mit einem hohen relativen Fehler behaftet. An diesem Standort wurde mit bis zu 5 cm eine für die Antarktis vergleichsweise tiefe Migration ermittelt. Der Flechtenbewuchs weist mit etwa 8 Bq kg^{-1} die höchste spezifische Aktivität im Profil auf. Da diese Pflanzen auf nährstoffarmen Böden oder sogar auf Steinoberflächen wachsen, sind sie darauf angewiesen, viele Nährstoffe aus der Luft und dem Niederschlag aufzunehmen. In Flechten wurde daher häufig eine Anreicherung der Umweltradioaktivität beobachtet [Sc95]. Aufgrund der geringen absoluten Masse befinden sich jedoch nur etwa 10 % der gesamten Deposition im Bewuchs.

Zum einen kann der nicht kontinuierliche Verlauf der Abnahme der spezifischen Aktivität mit der Tiefe durch die Unsicherheit der Meßtechnik verursacht sein. Die Schwankungen in der spezifischen Aktivität übereinanderliegender Schichten können jedoch auch andere Gründe haben. Denn für stärker kontaminierte Profile, in denen die statistischen

Schwankungen für die Ermittlung des Meßwertes von geringerer Bedeutung sind, wurde ebenfalls ein Anstieg der Aktivität des Strontium-90 unterhalb der Oberfläche beobachtet [Ki92]. Zum einen ist es möglich, daß die Hauptfraktion des Strontium-90 seit der Deposition in den sechziger Jahren schon einige Zentimeter gewandert ist. Zum anderen können durch Änderungen in der mineralischen Bodenmatrix oder dem Humusanteil die Sorptionsparameter zwischen den Schichten variieren.

Die niedrige spezifische ^{90}Sr -Aktivität des Bodens ist zum einen auf eine geringe absolute Deposition, zum anderen auf die fortgeschrittene Verdünnung des Radionuklids in den unteren Bodenschichten zurückzuführen. Horizonte, die über wenige mineralische und organische Austauschplätze verfügen, weisen Migrationsgeschwindigkeiten von mehreren Zentimetern pro Jahr auf [Ki92, Ba82]. Hat ein schneller Transport in tiefere Bodenschichten stattgefunden und liegt das Strontium-90 dort in geringen Konzentrationen vor, so kann es analytisch nicht mehr erfaßt werden.

In dem Profil Base Ferraz Alto wurde in keiner Schicht eine ^{90}Sr -Aktivität oberhalb der Nachweisgrenze ($0,3$ bis $0,5 \text{ Bq kg}^{-1}$) bestimmt. Mit der Dichte von $1,82 \text{ g cm}^{-3}$ für die oberen zwei Zentimeter des Profils bzw. $1,61 \text{ g cm}^{-3}$ für die Schichten von bis zu zehn Zentimetern Tiefe kann die maximal vorliegende Aktivität des Strontium-90 berechnet werden. Der ^{90}Sr -Eintrag in den analysierten Teil dieses Profils beträgt unter dieser Voraussetzung weniger als 71 Bq m^{-2} . Bei dieser Entnahmestelle handelt es sich nicht, wie bei den übrigen, um eine flache Oberfläche, sondern um einen Hang, der Erosionsspuren aufweist. Es ist daher wahrscheinlich, daß die Oberfläche durch neu aufgeschütteten oder abtransportierten Boden verändert wurde.

Die antarktischen Profile zeigen eine hohe Variation in der absoluten Immission. Während am Standort Base Ferraz Alto gar keine ^{90}Sr -Aktivität erfaßt wurde, betrug die Deposition von drei Profilen weniger als einhundert, in fünf ein- bis zweihundert und an dem Standort Fildes 312 Bq m^{-2} . In Tab. 16 (S. 90) ist die Depositionsdichte in den einzelnen Profilen sowie die Aktivität im Bewuchs und Boden aufgeführt.

Die drei nahe beieinander auf der Halbinsel Ardley entnommenen Proben weisen Depositionsdichten von 110 bis 165 Bq m^{-2} auf. Damit zeigen sie eine wesentlich geringere Streuung als die Gesamtheit der antarktischen Proben. Der Durchmesser der im Westen der

St. George Insel gelegenen Halbinsel, beträgt 500 bis 1000 m. Innerhalb dieses Gebietes scheint also noch eine relativ homogene Deposition des nuklearen Fallouts erfolgt zu sein.

Für die oberen zehn Zentimeter des Profils Base Ferraz Alto wurde nur eine spezifische Aktivität von weniger als $0,5 \text{ Bq kg}^{-1}$ und damit eine Deposition von weniger als 71 Bq m^{-2} in dieser Profilhöhe bestimmt. Da also in mindestens einem Profil keine ^{90}Sr -Kontamination erfaßt wurde, liegen (linksseitig) zensierte Daten vor [Gi87].

Insbesondere bei solchen Profilen, bei denen nur in wenigen Schichten eine Aktivität nachgewiesen wurde ist die Unsicherheit der Depositionsdichte höher als die analytische Unsicherheit vermuten läßt. Die Angabe der flächenbezogenen Aktivität besagt lediglich, daß beispielsweise in dem Profil Isla Snow (Tab. 16, S. 90) im Bewuchs und in den oberen zwei Zentimetern $(63 \pm 16) \text{ Bq m}^{-2}$ deponiert wurden. Daher besteht die Möglichkeit, daß bei den Profilen geringer absoluter Aktivität oder tiefgründiger Migration ein erheblicher Anteil der Aktivität nicht mehr nachgewiesen wurde, denn der Verlauf der Aktivitätskonzentration mit zunehmender Tiefe ist nicht bekannt. In den gemäßigten Zonen wird meist ab etwa 5 bis 10 cm eine kontinuierliche Abnahme der spezifischen ^{90}Sr -Aktivität beobachtet. Ein schneller Transport mit dem Niederschlag und ein darauffolgender langsamer lateraler Abfluß über dem eventuell noch gefrorenen Boden kann in der Antarktis jedoch auch zu anderen Verteilungen führen. Legt man für das Profil Isla Snow beispielsweise den ungünstigen Fall zugrunde, daß die tieferen analysierten Zonen des Profils von 2 bis 5 cm genau die Aktivität der Nachweisgrenze von $0,5 \text{ Bq kg}^{-1}$ enthalten, so würde für den betrachteten Gesamtabschnitt des Profils eine Deposition von 81 Bq m^{-2} statt der hier aufgeführten 63 Bq m^{-2} berechnet. Durch die Addition des potentiellen Eintrags der noch tiefer liegenden Schichten vergrößert sich die Differenz noch weiter.

Um den mittleren Eintrag in die Profile der Südshetlandinseln abzuschätzen, ist es nicht ausreichend, das arithmetische Mittel zu berechnen. Für das Profil Base Artigas, in dem keine ^{90}Sr -Aktivität nachgewiesen wurde, können mehrere Werte angegeben werden. So wird beispielsweise empfohlen „null“, „nicht erfaßt“, kleiner der entsprechenden Nachweisgrenze oder einen Wert zwischen null und der Nachweisgrenze aufzuführen [Gi87]. Je nachdem, welche dieser Größen verwendet wird, ändert sich das arithmetische Mittel. Um den Betrag des zensierten Wertes abzuschätzen, wäre eine Information über die zugrunde liegende Verteilung erforderlich.

Zunächst läßt sich ein anderer Kennwert der Verteilung mit höherer Sicherheit angeben, da nur die Hälfte der höchsten Meßwerte der Serie in die Berechnung eingeht. Es finden somit genau diese Ergebnisse Verwendung, die mit der höchsten Sicherheit erfaßt wurden. Der Median gibt bei einer geraden Anzahl von n Proben den Mittelwert der nach aufsteigender Höhe der erfaßten Größe sortierten Proben mit dem $(n/2)+1$ und $(n/2)-1$ höchsten Werten an [Gi87]. Bei der Betrachtung der zehn Profile der Südshetlandinseln ergibt er sich also aus dem Mittelwert der Probe der fünft- und sechsthöchsten Kontamination. Wie aus Tab. 16 (S. 90) ersichtlich, handelt es sich um die beiden auf der Halbinsel Ardley der King George Insel gelegenen Entnahmestellen X und Z. Der Median der Deposition der Südshetlandinseln beträgt also $108,5 \text{ Bq m}^{-2}$. Ein weiterer Vorteil dieser Größe ist, daß sie nicht nur von Proben einer Aktivität unterhalb der Nachweisgrenze unabhängig ist, sondern auch von Extremwerten und insbesondere fälschlich zu hoch bestimmten Werten (Ausreißern) nicht beeinflußt wird.

Ist die zugrundeliegende Verteilung symmetrisch, wie beispielsweise die Gaußverteilung, so entspricht der Median dem Schätzwert für den Mittelwert dieser Messungen. Für die Südshetlandinseln ergibt sich unter dieser Voraussetzung die mittlere Deposition zu 109 Bq m^{-2} . Eine in der Natur sehr häufig beobachtete Verteilung ist jedoch die logarithmische Normalverteilung. Sie wird bei der Analyse so unterschiedlicher Substanzen wie Luftschadstoffen, Radionukliden und Spurenmetallen in unterschiedlichen Umweltproben beobachtet [Gi87, Di71]. Für viele Schadstoffe in der Natur wurde diese unsymmetrische Verteilung beobachtet, in der wenige Proben sehr hohe Kontaminationen aufweisen.

Die absolute Deposition in Proben, die Aktivitäten oberhalb der Nachweisgrenze enthalten, steigt von dem Profil Potter zu Fildes um den Faktor sechs an (Tab. 16). An einem Standort wurde also eine vergleichsweise hohe Kontamination von 312 Bq m^{-2} , an sieben anderen eine geringere als 120 Bq m^{-2} gemessen. Um eine empirische Verteilung zu beschreiben, teilt man die Gesamtheit der Meßwerte häufig in eine Anzahl von Gruppen ein, die etwa der Quadratwurzel der gesamten Proben entspricht. So können die zehn Profile der Südshetlandinseln beispielsweise drei gleichmäßigen Kategorien von bis zu 120, 121 bis 240 bzw. 241 bis 360 Bq m^{-2} zugeordnet werden. Diese enthalten sieben, zwei bzw. eine Probe, welches typisch für unsymmetrische, zu hohen Werten streuende Verteilungen wie der logarithmisch normalen ist.

Die hohe Schwankung des Eintrags an Strontium-90 kann durch eine inhomogene Deposition, einen Transport oberhalb der Erdoberfläche oder in der Pedosphäre sowie einer Überlagerung dieser Effekte verursacht worden sein. Da die bergigen Inseln dem Wind Luv- und Leeseiten bieten, ist ein gleichmäßiger Niederschlag und damit verbunden eine homogene Ablagerung der Radionuklide nicht zu erwarten. Doch selbst wenn ein homogener Fallout die Oberfläche der Inseln kontaminiert, kann die Flächenaktivität zum Zeitpunkt der Probenahme eine hohe Varianz aufweisen. Werden die an Aerosole haftenden Radionuklide beispielsweise durch Schneeflocken aus der Atmosphäre entfernt und gleichmäßig deponiert, so findet durch Schneestürme und -verwehungen ein erster Transport statt, bevor diese den mineralischen Boden erreicht haben. Je nachdem an welcher Stellen der Insel diese Schneeverwehungen tauen und wie sie gegebenenfalls im Frühjahr über den noch gefrorenen Boden abfließen, dringen sie andernorts in den Boden ein und können sich dort ansammeln. Beginnen die im Winter gefrorenen Böden im Sommer von oben zu tauen, so ist ein lateraler Abtransport im Wasser möglich.

Da die Probe Base Ferraz Alto wie oben beschrieben zerstört war, soll sie nicht in die folgende deskriptive Statistik [Gi87] eingehen. Somit kann das arithmetische Mittel der Depositionsdichten $\overline{A_F}$ der n einzelnen Profile gemäß Gl. (46) berechnet werden.

$$\overline{A_F} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n A_{F,i} \quad (46)$$

Entsprechend der Gauß-Statistik ergibt sich die Standardabweichung nach Gl. (47) zu:

$$s = \sqrt{\sum_{i=1}^n (A_{F,i} - \overline{A_F})^2 / (n-1)} \quad (47)$$

Zur Beschreibung einer Grundgesamtheit sind der arithmetische Mittelwert und die empirische Standardabweichung nur geeignet, wenn es sich um normalverteilte Meßwerte handelt. Liegt eine logarithmische Normalverteilung vor, so wird der wahrscheinlichste Wert eher durch das geometrische Mittel

$$\overline{A_{F,geo}} = \sqrt[n]{\prod_{i=1}^n A_{F,i}} \quad (48)$$

und die geometrische Standardabweichung s_{geo} beschrieben:

$$s_{geo} = 10^{\text{Exponent}} \quad \text{mit Exponent} = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^n (\log_{10}(A_{F,i}) - \log_{10}(\overline{A_F}))^2}{(n-1)}} \quad (49)$$

Mittels dieser empirischen statistischen Größen können die Verteilungen der ^{90}Sr - und ^{137}Cs -Depositionsdichten charakterisiert werden. In Tab. 17 sind die arithmetischen und geometrischen Mittelwerte mit ihren Standardabweichungen gegeben.

Tab. 17 : Statistische Beschreibung der Verteilung der ^{90}Sr - und ^{137}Cs -Depositionsdichten in der Antarktis.

der Antarktis.					
Statistische Größe	⁹⁰ Sr-		¹³⁷ Cs-		Verhältnis
	Depositionsdichte		Depositionsdichte		¹³⁷ Cs zu ⁹⁰ Sr
	(Bq m ⁻²)		(Bq m ⁻²)		
arithmetisches Mittel	123	± 79	392	± 192	3,2
geometrisches Mittel	106	* / 1,8	337	* / 1,9	3,2
Median	108	—	464	—	4,3

In der ^{90}Sr -Verteilung ist auffallend, daß das arithmetische Mittel mit 14 % deutlich über dem Median liegt. Hingegen unterscheidet sich der Median vom geometrischen Mittel nur etwa um ein Prozent. Dieser Befund deutet auf eine logarithmische Normalverteilung hin. Allerdings weisen die ^{137}Cs -Depositionsdichten einen anderen Trend auf. Der Median liegt sowohl über dem geometrischen als auch über dem arithmetischen Mittelwert. Aufgrund der geringen Probenzahlen und der hohen Standardabweichungen sind jedoch weitere Meßwerte notwendig, um eine Zuordnung zu einer Verteilung treffen zu können.

Vergleicht man die ^{90}Sr -Deposition mit der des Cäsium-137 [Sc95], so kann das mittlere Verhältnis $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$ (1. Januar 1995) des atmosphärischen Fallouts berechnet werden. Über einen langen Zeitraum an vielen anderen Orten betrug dieses 1,6 bzw. heute 1,7 [UN82]. Die mittlere Flächendeposition an Cäsium-137 aus denselben neun Bodenproben beträgt 392 Bq m⁻². Somit wäre eine ^{90}Sr -Aktivität von 231 Bq m⁻² auf den Südshetlandinseln zu erwarten. Den Berechnungen aus dem weltweiten Monitoring zufolge sollte die mittlere

Depositionsdichte etwa 178 Bq m^{-2} betragen [Mo96]. Es ist also weniger Strontium-90 in den Böden der Südshetlandinseln gefunden worden als aufgrund von Messungen des Niederschlags und der ^{137}Cs -Aktivität des Bodens erwartet wurde.

Legt man den Median der gemessenen Depositionsdichten von 109 Bq m^{-2} zugrunde, so beträgt das gemessene Verhältnis der beiden Radionuklide zueinander 4,3 und übersteigt das erwartete Verhältnis von 1,7 deutlich. Ursache dieser Abweichung kann möglicherweise die unvollständige Erfassung des Radiostrontiums in den tieferen Bodenschichten sein. Des weiteren ist die Verteilung der Depositionsdichte über die beprobte Inselgruppe nicht bekannt. Befinden sich in den zehn Proben zufällig viele, die durch den nuklearen Fallout nur gering kontaminiert wurden, so führt die Auswahl der Entnahmestellen zu einer Unterschätzung des mittleren Eintrags in jedes Profil. Desgleichen könnte es sich bei den Beprobungsorten zufällig um relativ ^{137}Cs -reiche Profile handeln. Eine andere Möglichkeit besteht darin, daß eventuell klimatisch bedingt weniger Strontium-90 auf den Inseln deponiert wurde als durch die Transportmodelle erwartet.

5.1.4 Westpatagonien

Aus Westpatagonien, der südwestlichen Spitze des südamerikanischen Kontinents, wurde das Profil Valle Grey ($50^{\circ} 1' \text{ S } 72^{\circ} 6' \text{ W}$) untersucht. Die spezifischen Aktivitäten des Bodens sowie des Gras-Bewuchses sind in Abb. 19a) dargestellt. Da diese Proben stärker kontaminiert waren, sind die relativen Meßunsicherheiten geringer als in den antarktischen Profilen. Wie durch den linearen Abfall bei Verwendung eines logarithmischen Maßstabes erkennbar, nimmt die spezifische Aktivität des Bodens mit zunehmender Tiefe bis zu etwa 8 cm exponentiell ab.

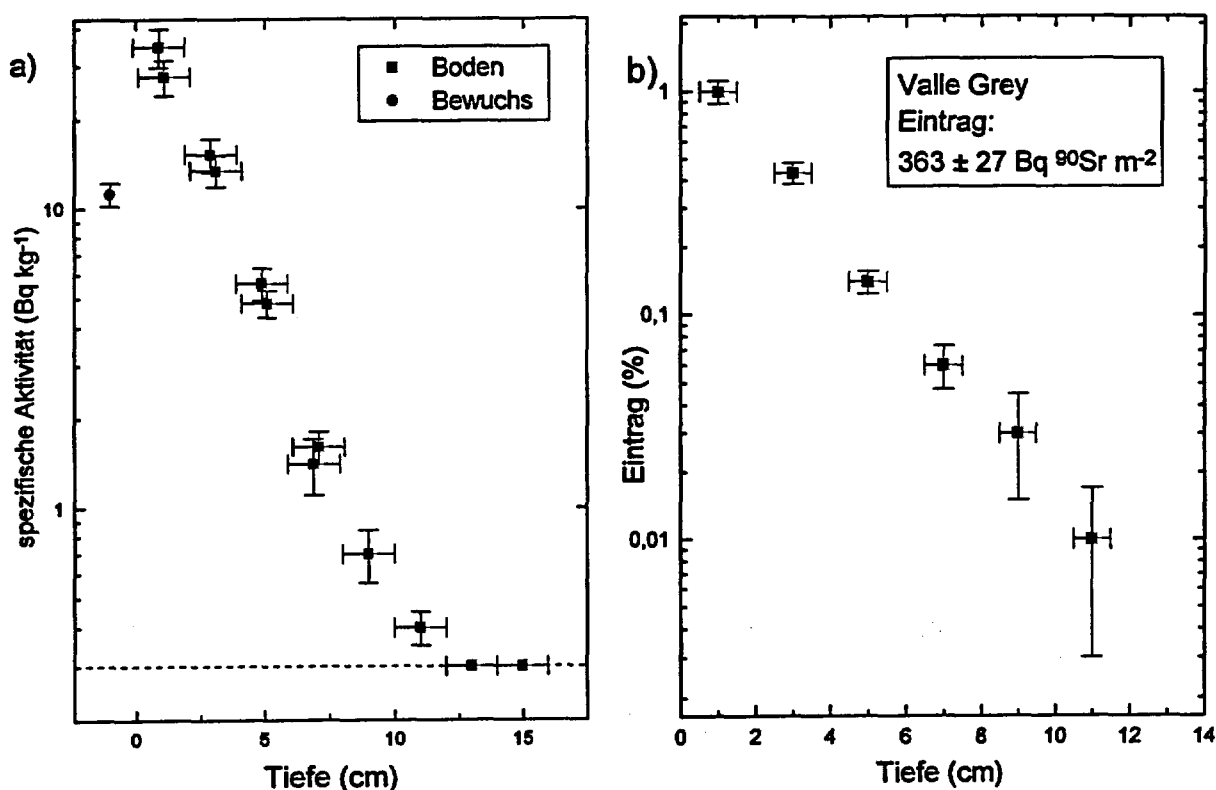


Abb. 19 : a) Abnahme der spezifischen ⁹⁰Sr-Aktivität und b) des Eintrags im Profil Valle Grey (Westpatagonien, Chile). Für die oberen vier Schichten wurden Doppelbestimmungen durchgeführt.

Die gesamte Depositionsdichte beträgt 363 Bq m⁻² und liegt somit über den in der Antarktis bestimmten mittleren Werten. Aus diesem Gebiet weist lediglich das Profil Fildes eine ähnlich hohe ⁹⁰Sr-Aktivität auf. Die jährliche Niederschlagsmenge in der Seenregion von 700 mm a⁻¹ ist mit derjenigen auf den Südshetlandinseln von 800 mm a⁻¹ vergleichbar. Da in der Antarktis ein höherer Anteil in fester Form, vor allem als Schnee fällt, erfolgt dort eine effektivere Reinigung der Atmosphäre (Snowout). Andererseits ist in Westpatagonien aufgrund der atmosphärischen Transportmodelle mit einer höheren Immission der Radionuklide aus den Atomwaffenversuchen zu rechnen.

Nur noch 0,6 % der gesamten ⁹⁰Sr-Aktivität des Profils befinden sich in dem Gras-Bewuchs und über 90 % des Eintrages wurden in den oberen 6 cm gemessen. Es ist also ein geringer Transfer vom Boden in die Pflanze zu beobachten, obwohl sich das Radiostrontium noch in der Wurzelzone befindet.

Die Depositionsdichte des Radiocäsiums beträgt in diesem Profil 747 Bq m⁻² [WS97]. Damit ergibt sich ein ¹³⁷Cs/⁹⁰Sr-Verhältnis von 2,1. Es ist also eine etwas höhere ¹³⁷Cs-Aktivität gemessen worden als aufgrund der Bestimmung der ⁹⁰Sr-Aktivität zu erwarten war.

Um einen repräsentativen Wert für die gesamte Region zu berechnen, sind jedoch weitere Profile notwendig.

5.1.5 Die Seenregion

Aus der Seenregion Chiles, die sich zwischen der Pazifikküste und den Anden etwa zwischen dem 40° und 42° südlicher Breite erstreckt, wurden fünf Profile untersucht. Der jährliche Niederschlag an diesen Standorten beträgt 1250 bis 2500 mm a⁻¹ [Sc97, OT94].

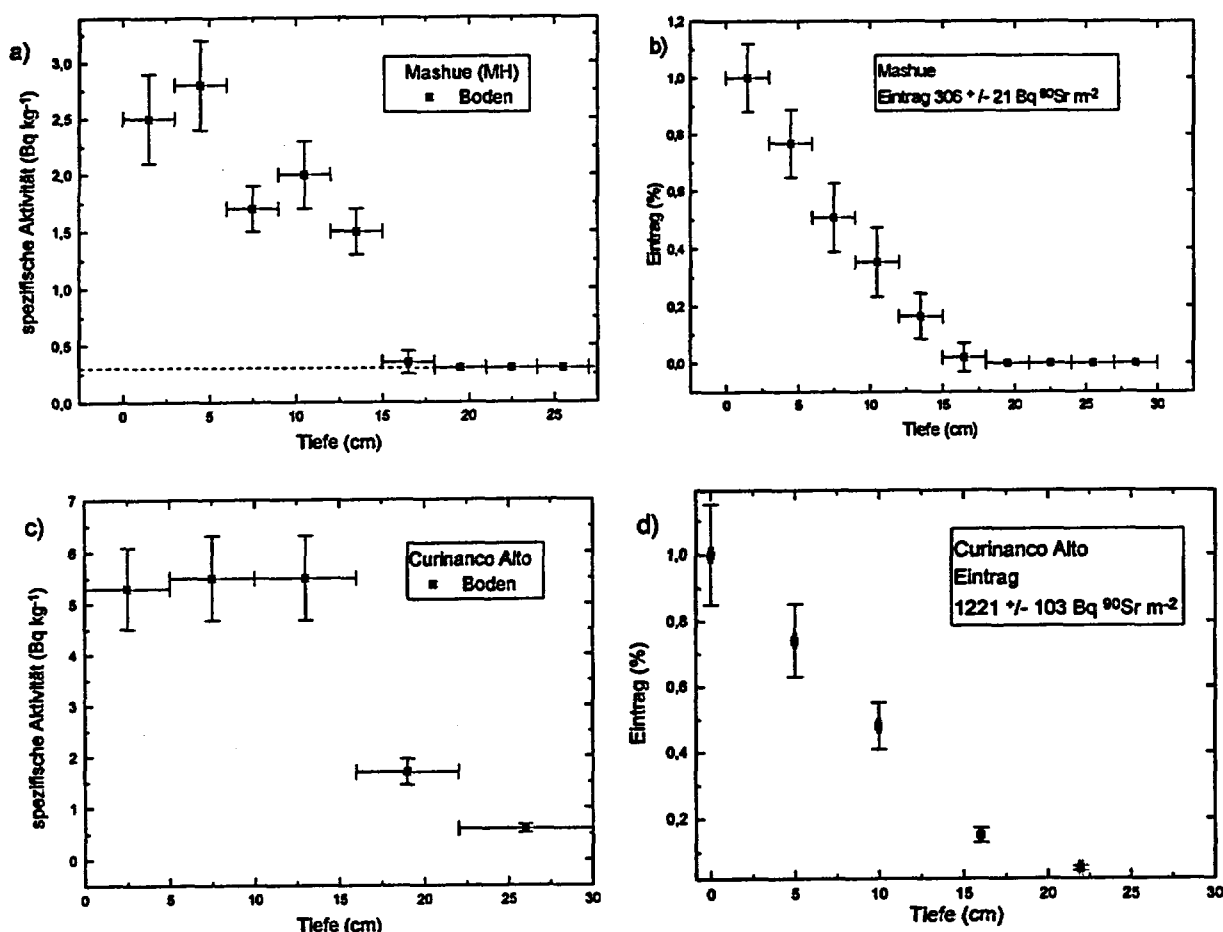


Abb. 20 : Verlauf der spezifischen Aktivität bzw. des Eintrags von Strontium-90 in den Profilen Mashue (a bzw. b) und Curinanco Alto (c bzw. d) aus der Seenregion Chiles.

In Abb. 20 a) und c) ist beispielhaft die Abnahme der spezifischen Aktivität des Bodens zweier Profile der Seenregion mit zunehmender Tiefe dargestellt. Innerhalb der Meßunsicherheit nimmt die ⁹⁰Sr-Aktivität im Boden des Entnahmeortes Mashue kontinuierlich ab bis unterhalb der Schicht von 15 bis 18 cm kein Radiostrontium mehr nachgewiesen werden kann. Die ⁹⁰Sr-Depositionsdichte ist daher innerhalb des analytischen Nachweisvermögens quantitativ erfaßt. Die Migration am Standort Curinanco Alto ist

tiefgründiger und zeigt einen qualitativ unterschiedlichen Verlauf. Auffallend ist, daß die oberen 15 cm dieses Profils eine homogene Durchmischung aufweisen.

Ferner sind mit den Depositionsdichten von 306 bzw. 1221 Bq m⁻² im Profil Mashue bzw. Curinanco Alto Schwankungen um das Vierfache gemessen worden. Wie an den Proben der Südshetlandinseln diskutiert, sind an einzelnen Standorten einer viele Quadratkilometer umfassenden Region erhebliche Unterschiede der Depositionsdichte durch lokale Klimaverhältnisse und Transportvorgänge im Boden zu erwarten. Diese Unterschiede in der absoluten Immission in einem global gesehen begrenzten Gebiet sind vermutlich auf lokale Klima- bzw. Niederschlagsverhältnisse zurückzuführen. Denn auch die Depositionsdichte des Cäsium-137 weist mit 629 Bq m⁻² gegenüber 2191 Bq m⁻² im Profil Mashue bzw. Curinanco Alto ähnlich hohe Schwankungen auf [OT94]. Legt man das weltweit beobachtete ¹³⁷Cs/⁹⁰Sr-Verhältnis von 1,7 (01.01.95) zugrunde [UN82], wäre demzufolge eine Depositionsdichte des Radiostrontium von 370 bis 1290 Bq m⁻² zu erwarten. Die Ergebnisse der Strontium-Analysen stimmen mit diesem Vergleichswert, der aus der Immission an ¹³⁷Cs berechnet wurde, gut überein.

Obwohl die Depositionsdichte beider Radionuklide lokal um das Vierfache schwankt, wurde an allen Entnahmestellen eine höhere ¹³⁷Cs- als ⁹⁰Sr-Depositionsdichte ermittelt. Das Verhältnis dieser beiden Isotope variiert je nach Standort um den Faktor 1,7 bis 2,5 (Tab. 16). In allen fünf untersuchten Profilen beträgt das Verhältnis der gesamten ¹³⁷Cs- zur ⁹⁰Sr-Depositionsdichte 1,7. Damit entspricht es der in langjährigen Messungen des Umweltmonitoring beobachteten Verteilung dieser beiden Radionuklide. Die Betrachtung aller fünf Profile legt den Schluß nahe, daß für die globale Verteilung der beiden Radionuklide ähnliche Transportvorgänge maßgebend sind. Während aufgrund der Depositionsmodelle eine geringere ¹³⁷Cs- und ⁹⁰Sr-Aktivität erwartet wurde [Mo96], deuten die beiden erfaßten Radionuklide auf eine höhere Immission hin.

Um einen Hinweis auf die Verteilung der Depositionsdichten zu erhalten, wurden, wie an den antarktischen Proben dargelegt, die arithmetischen und geometrischen Mittelwerte mit den zugehörigen Standardabweichungen berechnet (Tab. 18).

Tab. 18 : Statistische Beschreibung der Verteilung der ^{90}Sr - und ^{137}Cs -Depositionsdichten in der Seenregion.

Statistische Größe	⁹⁰ Sr-		¹³⁷ Cs-		Verhältnis
	Depositionsdichte		Depositionsdichte		¹³⁷ Cs zu ⁹⁰ Sr
	(Bq m ⁻²)		(Bq m ⁻²)		
arithmetisches Mittel	759	± 356	1318	± 571	1,7
geometrisches Mittel	684	* / 1,7	1221	* / 1,6	1,8
Median	639	---	1152	---	1,8

Für beide Nuklide zeigt sich, daß der Median etwa 15 % kleiner ist als der arithmetische Mittelwert. Demgegenüber beträgt die Abweichung zum geometrischen Mittel nur etwa 6 %. Diese Befunde sind nicht typisch für eine Normalverteilung, sondern deuten eher auf eine logarithmische Normalverteilung hin.

Die Migration des Radiocäsiums und -strontiums in den Profilen der Seenregion verläuft unterschiedlich. Während das Cäsium-137 kontinuierlich und exponentiell abnimmt, ist das Strontium-90 tiefgründiger migriert und in den oberen Zonen einiger Profile homogen verteilt. Auch in norddeutschen Böden wurden unterschiedliche Migrationsgeschwindigkeiten dieser beiden Radionuklide beobachtet [Ki92, Ba82]. Eine Korrelation der Bodenparameter mit der ^{90}Sr -Aktivität ist jedoch aufgrund der Meßunsicherheit und der geringen Anzahl der Profile statistisch nicht verallgemeinerbar.

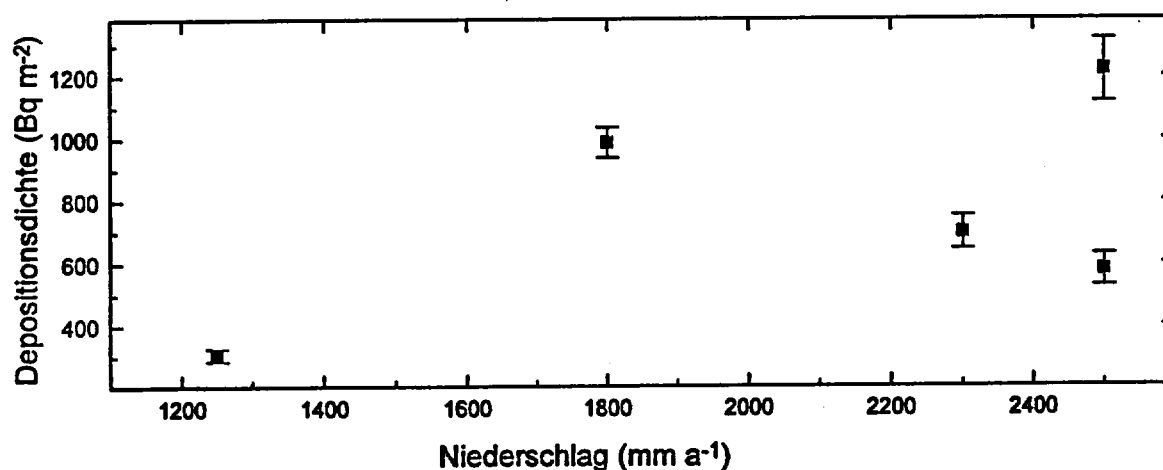


Abb. 21 : ^{90}Sr -Depositionsdichte der fünf Profile der Seenregion in Abhängigkeit vom jährlichen Niederschlag.

Die Niederschlagsmenge der einzelnen Profile der Seenregion variiert zwischen 1250 und 2500 mm a⁻¹. Unter der Annahme, daß die Konzentration der betrachteten Radionuklide in der Atmosphäre konstant ist, bieten diese Unterschiede die Möglichkeit, Ursachen für die variierenden Depositionsdichten zu untersuchen. Da häufig eine Abhängigkeit der Immissionswerte von der Niederschlagsmenge beobachtet wurde [Ba95], ist diese in Abb. 21 aufgetragen. Die höchste ⁹⁰Sr-Aktivität wurde zwar am niederschlagsreichsten Standort gemessen, das Profil Arquihue II weist aber bei gleich hohen Niederschlagsmengen von 2500 mm a⁻¹ eine geringe Depositionsdichte auf. Da also kein eindeutiger Zusammenhang zwischen diesen beiden Parametern besteht, sind weitere Untersuchungen notwendig, um die Depositionsmechanismen mit höherer statistischer Sicherheit zu untersuchen.

5.1.6 Das Profil Anakena, Osterinsel

Von der Osterinsel (27,1 °S; 109,5 °W), die 3500 km westlich des südamerikanischen Kontinents im Pazifischen Ozean liegt, wurde das Profil Anakena untersucht. Die Entnahmestelle befindet sich an der Nordküste der Insel, etwa 3,5 km nordwestlich des Berges Maunga Terevaka.

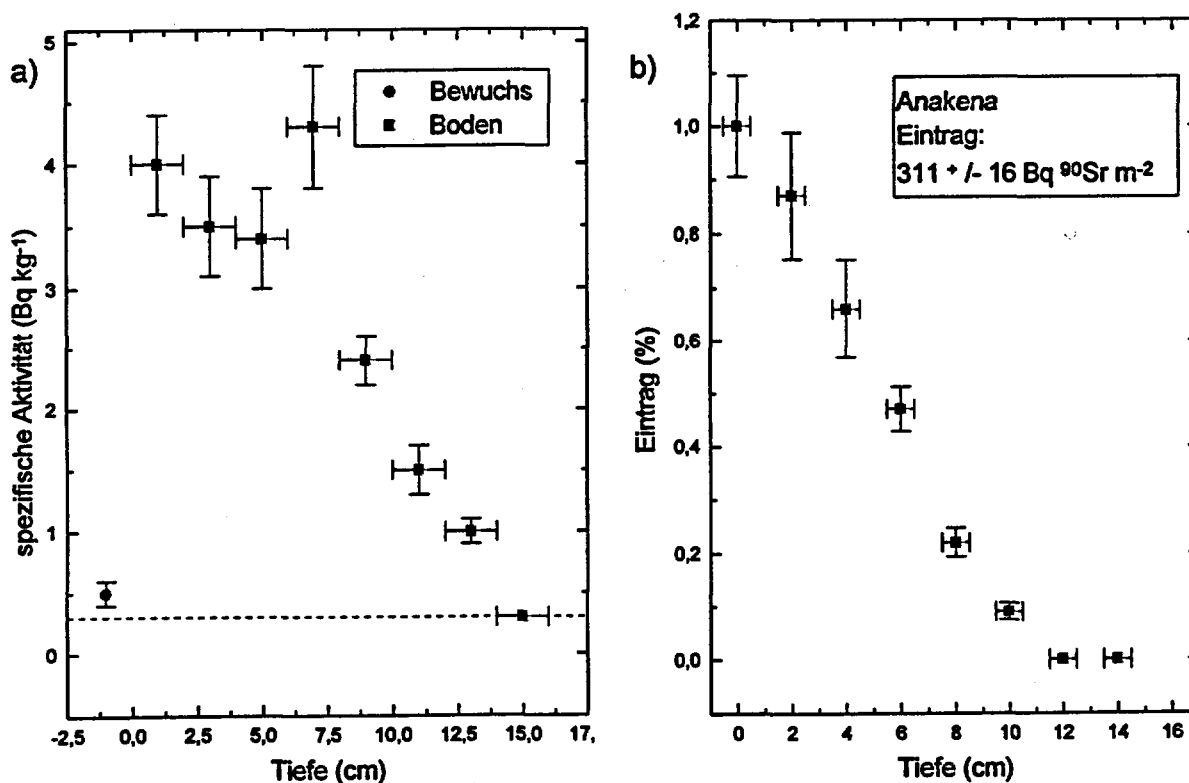


Abb. 22 : a) Abnahme der spezifischen ⁹⁰Sr-Aktivität bzw. b) des Eintrags im Profil Anakena, Osterinsel. Die tiefste Probe lag unterhalb der Nachweisgrenze (0,3 Bq kg⁻¹).

Die Abnahme der spezifischen Aktivität des Bodens des Profils Anakena ist in Abb. 22 a) dargestellt und zeigt, von einem Meßwert abgesehen, eine kontinuierliche Abnahme mit zunehmender Tiefe. Lediglich in der Schicht von sechs bis acht Zentimetern ist ein erneuter Anstieg zu beobachten. Unterhalb der Tiefe von 14 cm ist kein Strontium-90 mehr nachweisbar, so daß die Depositionsdichte des Profils annähernd quantitativ erfaßt wurde. Auch die ^{137}Cs -Aktivität des Profils nimmt nicht kontinuierlich ab, sondern weist in der Schicht von 2 bis 4 cm ein Maximum auf. Dieser Kurvenverlauf deutet auf ein leichtes Ansteigen der spezifischen Aktivität unterhalb der Oberfläche hin. Eine mögliche Ursache ist in der seit den sechziger Jahren erfolgten Migration oder in einer Änderung der Bodenmatrix zu sehen. Um diesen Befund genau zu klären, sind jedoch weitere radiochemische und bodenkundliche Untersuchungen erforderlich.

Der in Abb. 22 b) dargestellte Gesamteintrag an Strontium-90 beträgt 310 Bq m^{-2} und liegt damit nahe am Erwartungswert von 325 Bq m^{-2} (Tab. 19). Über 90 % der ^{90}Sr -Aktivität des Profils befinden sich noch in den oberen elf Zentimetern. Nur noch weniger als 0,1 % der gesamten Flächenaktivität dieses Profils befindet sich im Bewuchs. Gegenüber der Seenregion mit einer Depositionsdichte von etwa 800 Bq m^{-2} zeigt sich eine Abnahme der absoluten Flächenaktivität. Dies entspricht den Beobachtungen des weltweiten Monitoring [Mo96], die von einem lokalen Maximum in der südlichen gemäßigten Zone an eine Abnahme der ^{90}Sr -Kontamination zum Äquator hin beobachten. Die Depositionsdichte des Radiocäsiums an der Entnahmestelle Anakena entspricht mit 624 Bq m^{-2} dem Zweifachen des Radiostrontiums. Sie schwankt allerdings innerhalb der 13 untersuchten Profile zwischen 224 und 873 Bq m^{-2} , so daß nur die Analyse weiterer Proben Aufschluß darüber geben kann, ob dieses Verhältnis für die Osterinsel repräsentativ ist.

5.1.7 Vergleichende Betrachtung

Mit der Zunahme der spezifischen Aktivität von der Antarktis zu der gemäßigten Zone gelingt eine immer genauere Erfassung des Strontium-90. Abgesehen von den teilweise gestörten oberen Zentimetern zeigen einige Profile eine eher lineare (Mashue), andere eine logarithmisch lineare (Valle Grey) Abnahme der Aktivität. In allen Profilen wird über 90 % des gesamten Eintrags in den oberen 20 cm, in den antarktischen sogar oberhalb 10 cm, erfaßt. Da der größte Anteil des Fallouts in den frühen sechziger Jahren deponiert wurde, kann die mittlere Geschwindigkeit der Migration nicht höher als etwa $0,5 \text{ cm a}^{-1}$ gewesen sein.

Von den antarktischen Proben, die mit Flechten und Moosen langsam wachsende Pflanzen aufweisen, über Westpatagonien bis zur Osterinsel nimmt der in der Vegetation befindliche Anteil also immer weiter ab.

Das Verhältnis der Depositionsdichten des Cäsium-137 zum Strontium-90 schwankt in der Seenregion um den Wert 1,7. In einzelnen Profilen können sich die Flächenaktivitäten um das 1,1- bis 2,4-fache unterscheiden. Innerhalb der statistischen Unsicherheit wird somit auch die globale Beobachtung dieses Verhältnisses der beiden Radioisotope bestätigt. Ferner übersteigt die Depositionsdichte des Cäsium-137 in allen Profilen diejenige des Strontium-90. Dies bestätigt die Annahme, daß Transport und Deposition durch ähnliche Mechanismen erfolgen. Die absolute Höhe der Kontamination des Bodens ist allerdings von lokalen Klimaverhältnissen abhängig und schwankt innerhalb einer Region.

Für die ^{90}Sr -Deposition in der südlichen Hemisphäre können die durch das weltweite Monitoring [Mo96] in Tab. 19 aufgeführten Aktivitäten als Anhaltswerte herangezogen werden. Wie in Abb. 4 graphisch dargestellt, beginnt die ^{90}Sr -Deposition von einem lokalen Minimum am Äquator anzusteigen und erreicht in der gemäßigten Zone der Südhalbkugel ein Maximum. Weiter zum Südpol hin nimmt die Immission dann wieder ab.

Tab. 19 : Erwartete kumulative ^{90}Sr -Deposition in der Südhemisphäre (01.01.95) [Mo96].

Breitengürtel	Deposition (Bq m^{-2})	chilenische Region	gemessene Schwankungsbreite (Bq m^{-2})	Median (Bq m^{-2})
00° - 10° S	204	---	---	---
10° - 20° S	195	---	---	---
20° - 30° S	325	Osterinsel	310	310
30° - 40° S	376	---	---	---
40° - 50° S	432	Seenregion	306 - 1221	699
50° - 60° S	259	Westpatagonien	363	363
60° - 70° S	178	Antarktis	< 71 - 312	111
70° - 80° S	109	---	---	---
80° - 90° S	47	---	---	---

Die Immission in dem einzigen Profil Westpatagoniens beträgt 363 Bq m^{-2} , und in der Seenregion wurden Einträge von etwa 300 bis 1200 Bq m^{-2} gemessen. Weltweit wird also ein starker Abfall der ^{90}Sr -Deposition südlich der gemäßigten Breiten der Südhemisphäre erwartet. Der qualitative Verlauf der globalen Verteilung mit einem Maximum der

Depositionsdichte in der gemäßigten Zone wird durch die hier aufgeführten Messungen bestätigt.

Die Seenregion weist allerdings gegenüber diesem Modell eine höhere Depositionsdichte als erwartet auf (Tab. 16). An diesen Standorten übersteigt die vorgefundene Aktivität den Vergleichswert um etwa das Zweifache. Dieser Befund wird durch die ebenfalls hohe ^{137}Cs -Depositionsdichte in diesem Gebiet unterstützt. Eine mögliche Ursache könnte prinzipiell darin begründet liegen, daß die südliche Westküste des südamerikanischen Kontinents schon vor dem Beginn der Niederschlagsuntersuchungen des Environmental Measurements Laboratory 1958 in stärkerem Maße kontaminiert wurde als in den atmosphärischen Transportmodellen für die ersten Jahre berechnet.

In den frühen fünfziger Jahren existierten in Südamerika keine kerntechnischen Anlagen, die mögliche Kontaminationsquellen darstellen. Es ist auch keine andere Einrichtung bekannt, die eine Emission von Radionukliden globalen Ausmaßes verursacht hat. Als Quellen der beobachteten Deposition sind vor allem die in Tab. 20 dargestellten bodennahen atmosphärischen Tests von Kernwaffen der späten vierziger und frühen fünfziger Jahre zu sehen. Erst in der Mitte der fünfziger Jahre begannen die USA und die UdSSR Kernwaffen in der Stratosphäre zu erproben, so daß vor dieser Zeit durch die Zündungen in der Nordhemisphäre vorwiegend die nördliche Troposphäre beeinträchtigt wurde.

Tab. 20 : Atmosphärische Kernwaffentests im Pazifik und in Australien bis 1958 [Ca77].

Staat	Identifikation	Anzahl der atm. Tests	Jahr	Detonations- höhe (m)	Region geogr. Lage
U. S. A.	Crossroads	1	1946	160	Bikini 11° N, 165° O
U. S. A.	Sandstone	3	1948	60	Eniwetok 11° N, 162° O
U. S. A.	Greenhouse	4	1951	60 - 90	Eniwetok
U. S. A.	Ivy	2	1952		Eniwetok
U. S. A.	Castle	5	1954		Bikini, Eniwetok
U. S. A.	Redwing	13	1956		Bikini, Eniwetok
U. K.	Mosaik	2	1956		Monte Bello Isl. 20° S, 115° O
U. K.	Buffalo	4	1956		Maralinga 30° S, 131° O
U. K.	Grapple	9	1957 / 58		Christmas Island 2° N, 157° O

Aus der geographischen Lage der Testgelände geht hervor, daß sich keines nahe der Küste Südamerikas befindet. Die amerikanischen Bomben wurden nördlich des Äquators und einige britische nahe bzw. in Australien gezündet. Geographisch am nächsten befindet sich die Osterinsel ($27,1^{\circ}$ S, $109,5^{\circ}$ W), wo keine erhöhte Deposition gemessen wurde. Die südwestliche Küste Südamerikas ist von dieser Insel noch etwa 3500 km entfernt. In der Seenregion wurden die höchsten Abweichungen vom Erwartungswert gefunden. Zunächst ist die höchste Kontamination durch die auf der Erdoberfläche durchgeführten Kernwaffenversuche in der geographischen Nähe zu erwarten. Allerdings ist eine genaue Kenntnis der Luftströmungen und Niederschlagsverhältnisse zur Testzeit notwendig, um eine Kontamination durch diese Quellen auszuschließen.

Ferner ist abzuschätzen, ob überhaupt eine Abweichung vom erwarteten Befund vorliegt. Es ist nicht möglich, von der Oberfläche von fünf Profilen mit 400 cm^2 auf die Kontamination im gesamten Breitengrad zu schließen. Durch lokale klimatische Effekte kann eine Inhomogenität der Niederschlagsverhältnisse niemals vollkommen ausgeschlossen werden. Ferner führt die Ausbildung von Regenrinnen und Sickerstellen zu einer Anreicherung der mitgeführten Radionuklide in diesen Bodenbereichen.

Wie oben dargelegt, können die Befunde der Antarktis nur als Hinweise auf die tatsächlich erfolgte Deposition durch den nuklearen Fallout dienen. Die absolute Probenanzahl ist mit zehn Profilen verhältnismäßig klein, und die ^{90}Sr -Meßwerte weisen hohe relative Unsicherheiten auf. Aber auch durch die Analyse zusätzlicher Proben können für die Antarktis spezifische Eigenschaften nicht überwunden werden. Durch das extreme Klima, die Schneeverwehungen und die langen Frostperioden ist es nicht gesichert, daß die Aktivität der Bodenprofile der durch den nuklearen Fallout deponierten entspricht.

Großflächige Gletscher und Schelfeisflächen, auf denen der jährliche Niederschlag kontinuierlich abgelagert wird, bieten die Möglichkeit, die absolute Depositionsdichte zu erfassen. Durch die Datierung der Eisschichten kann die zeitliche Abfolge und der Nuklidvektor der Deposition ermittelt werden. Da die meisten oberirdischen Kernwaffen vor 1958 getestet wurden, die ersten Niederschlagswerte aber erst aus diesem Jahr vorliegen [UN82], ergibt sich durch die Analyse von Eisbohrkernen somit zusätzlich die Möglichkeit, die wichtigen frühen Falloutdaten zu ergänzen.

5.2 Kontamination durch den Unfall von Tschernobyl in der Nordukraine

Die Probenahme in der nördlichen Hemisphäre fand in einem Gebiet statt, welches im Gegensatz zu den chilenischen Proben nicht ausschließlich vom Kernwaffenfallout beeinträchtigt war. Es handelte sich zum einen um ukrainische Orte westlich von Kiew, deren Entfernung zum Reaktor 150 bis 110 km beträgt. Das havarierte Kraftwerk befindet sich nicht direkt neben der Verwaltungshauptstadt Tschernobyl, sondern etwa 15 km weiter nördlich, 2 km entfernt von der heute verlassenen Stadt Pripjat. Zum anderen wurden Profile nahe der Stadt Charkow, 400 km ost-südöstlich von Kiew entnommen. Dieser Serie gehört die Probe Charkow 4 an. Das Profil Baraschewka 1 gehört zu der Region der Stadt Zitomir, 130 km westlich von Kiew, etwa 150 km südwestlich von Pripjat. Legt man die ^{137}Cs -Kontaminationskarte des International Tschernobyl Project [IAEA91] zugrunde (Abb. 23), so ist für diese Gegend keine große Beeinträchtigung durch die Emission des Unfalls (Tab. 4, S.10) mehr zu erwarten. Das durch Brennstoffpartikel kontaminierte Gebiet, in dem auch hohe ^{90}Sr -Depositionsdichten gemessen wurden, beschränkt sich weitgehend auf die 30 km-Zone um den Reaktor. Das Gebiet um Zitomir ist aufgrund dieser Untersuchung als „gering kontaminiert“ anzusehen. Die dort entnommenen Proben sollen daher die Erfassung des Backgrounds durch die Kernwaffentests ermöglichen.

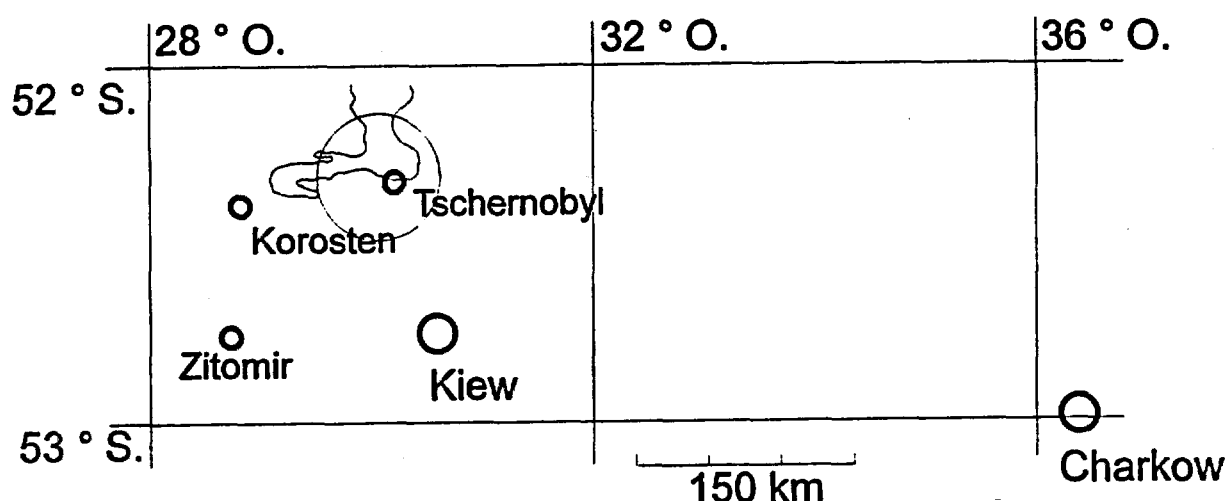


Abb. 23 : Lage der Probeentnahmeregionen in der Ukraine bezüglich der Fläche der höchsten ^{137}Cs -Kontamination mit Flächendepositionen über 1480 Bq m^{-2} sowie der 30 km-Zone um den Reaktor.

Eine weitere Beprobungsregion umfaßt Ortschaften nahe der Stadt Korosten, etwa 150 km nordwestlich Kiews, 110 km west-südwestlich Pripjats (Abb. 23). Die einzelnen

Dörfer, bei denen Proben entnommen wurden, sind in der Kontaminationskarte eingetragen. Sie sind der Kontaminationszone II zuzuordnen, in der die ^{137}Cs -Depositionsdichte 185 bis 555 kBq m^{-2} beträgt. Aus dem Verlauf der hoch kontaminierten Zone ($> 1480 \text{ Bq m}^{-2}$ an Cäsium-137, Abb. 23) ist ersichtlich, daß Korosten durch den Fallout des Unfalls stärker beeinträchtigt ist als Zitomir. Es handelt sich bereits um ein „mittel kontaminiertes“ Gebiet.

Die Proben wurden in den Jahren 1995 und 1996 von Handl und Mitarbeitern entnommen. Um einen Vergleich mit Literaturdaten zu erleichtern, sind die Aktivitätsangaben der Depositionsdichte auf den Tag des Unfalls, den 26. April 1986, bezogen. Diese Zerfallskorrektur dient ausschließlich dem besseren Vergleich der verschiedenen Profile. Der Bezug der Depositionsdichte auf das Unfalldatum bedeutet nicht, daß die Migration zu diesem Zeitpunkt schon soweit fortgeschritten war, wie nach den Entnahmen in den Jahren 1995 und 1996 gemessen.

Die in den Analysen ermittelten spezifischen ^{90}Sr -Aktivitäten und die zugehörigen Meßunsicherheiten sind im Anhang (S. 139) aufgeführt. In den folgenden Abbildungen wird aus Übersichtsgründen auf die Angabe der Fehlerbalken verzichtet. In einigen Profilen wurden die Befunde mit den Aktivitäten des Radiocäsiums [Fi98] verglichen.

Der pH-Wert der Profile wurde nach DIN 19 266, 19 684 T1 und 38 404 T5 ermittelt. Ferner wurden beispielhaft die R_D -Werte und die prozentuale Sorption einiger Radionuklide am Profil Nemirowka 1 gemessen. Aus Übersichtskarten ist ersichtlich, daß es sich bei den Böden in beiden Gebieten um sandige Podsolen oder Parabraunerden handelt, die unterschiedlich vergleht sind. Die lößreichen Schwarzerdegebiete der Ukraine beginnen erst südlich von Zitomir [At96].

5.2.1 Der Background durch die Kernwaffentests

Die spezifische ^{90}Sr -Aktivität des Profils Baraschewka 1 (Abb. 24) fällt innerhalb der Meßunsicherheit kontinuierlich und bis in eine Tiefe von 17 cm exponentiell ab. In den tieferen Schichten, die Aktivitäten nahe der Nachweisgrenze aufweisen, ändert sich die Kontamination nur geringfügig. Bei dem Boden handelt es sich um eine sandige Parabraunerde, die mit 4,4 bis 4,6 einen sauren pH-Wert aufweist. In diesem Milieu ist das Ausfällen des Strontiums als Carbonat nicht zu erwarten. Eine fast exponentielle Abnahme mit zunehmender Tiefe zeigt auch die ^{137}Cs -Aktivität.

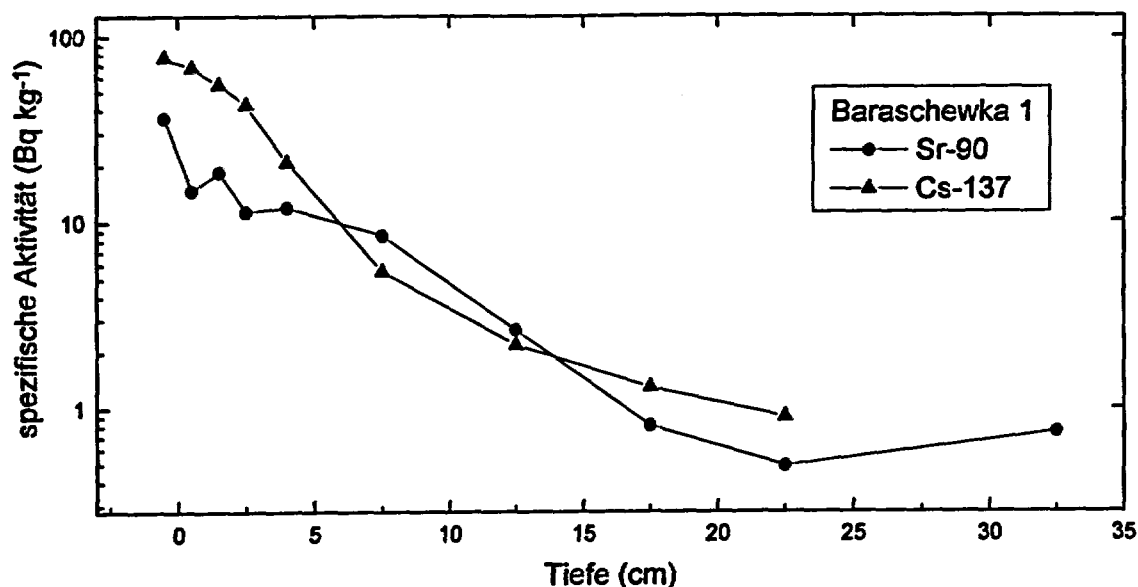


Abb. 24 : Tiefenabhängige Abnahme der spezifischen ^{90}Sr - und ^{137}Cs -Aktivität des Bodens im Profil Baraschewka 1 (Zitomir, Ukraine).

Das in Abb. 25 dargestellte Background-Profil Charkow 4 weist in den Schichten der oberen 5 cm eine annähernd gleiche spezifische ^{90}Sr -Kontamination auf. Ein exponentieller Fit ist zur Beschreibung der ^{90}Sr -Migration dieser Entnahmestelle daher zumindest für die oberen Zentimeter nicht geeignet. Die spezifische Aktivität dieser Bodenschichten beträgt 10,5 bis 8,5 Bq kg⁻¹. Erst zwischen 5 und 17 cm beginnt eine Abnahme des Strontium-90 um etwa eine Größenordnung. Im Gegensatz zum Profil Baraschewka 1 ist die Migration also weiter fortgeschritten.

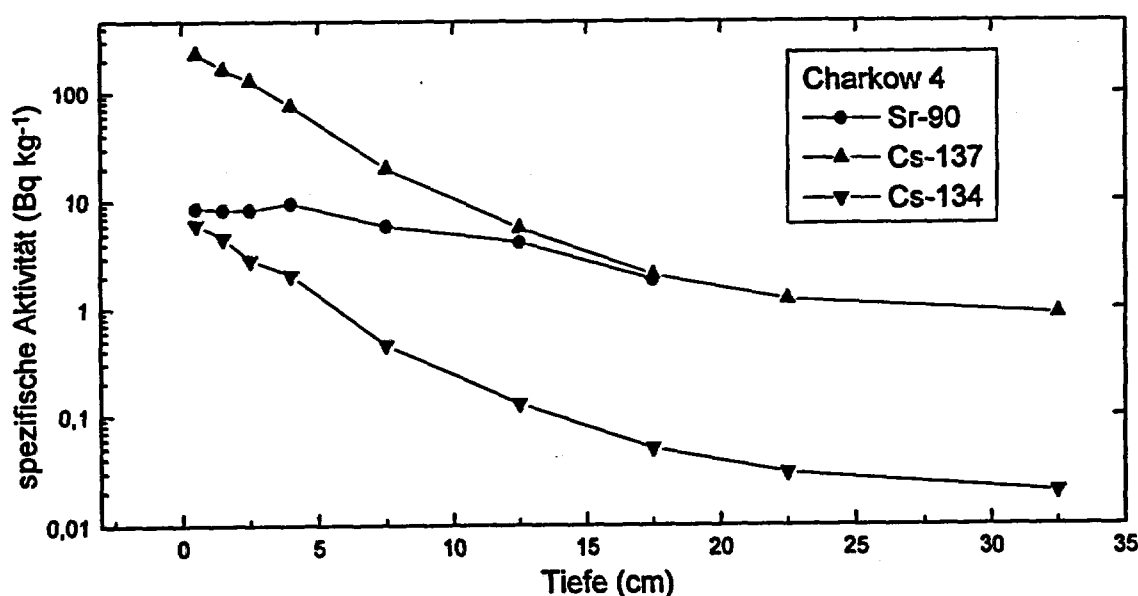


Abb. 25 : Tiefenabhängige Abnahme der spezifischen ^{90}Sr - und $^{137/134}\text{Cs}$ -Aktivität des Bodens im Profil Charkow 4 (Ukraine) am Entnahmedatum.

Abgesehen von der Boden/Humus-Schicht zeigt die ^{137}Cs -Aktivität einen qualitativ anderen Verlauf. Wie für ungestörte Böden häufig beobachtet, nimmt sie ähnlich dem Profil Baraschewka 1 exponentiell ab. An diesem Standort wurde auch noch Cäsium-134 gemessen, welches auf eine Immission von Tschernobyl hindeutet. Auch die Gesamtdeposition an Cäsium-137 von 13300 Bq m^{-2} gegenüber 3000 Bq m^{-2} in Baraschewka 1 bestätigt diese Annahme. Der Verlauf der ^{137}Cs -Aktivität stellt daher die Überlagerung des Fallouts der Kernwaffen mit demjenigen aus Tschernobyl dar.

Aus dem Isotopenverhältnis der beiden Cäsiumnuklide kann der ^{137}Cs -Anteil, der durch den Unfall deponiert wurde, berechnet werden. Die Aktivität des Cäsium-134 ist jedoch zu gering, um die absolute Kontamination durch Radiocäsium als Folge des Unfalls von Tschernobyl quantitativ sicher zu rekonstruieren.

An dem Standort Baraschewka 1 ist mit $\text{pH} = 4,4$ in 3 bis 5 cm bzw. $\text{pH} = 4,6$ in 25 bis 40 cm Tiefe bereits eine teilweise Versauerung festzustellen (Tab. 21). Demgegenüber reagiert der Boden Charkow 4 mit $\text{pH} = 7$ neutral, so daß prinzipiell eine Fixierung des Strontiums als Carbonat eher möglich wäre. In diesem Profil ist ein größerer Anteil des Strontium-90 in die oberen Bodenschichten eingedrungen als am Standort Baraschewka 1. Ferner ist die Migration des Radiostrontiums zumindest in den oberen Bodenschichten weiter fortgeschritten als die des Cäsiums im selben Profil. Daher scheint die Ausfällung eines Strontiumsalzes für den Transport dieses Radionuklids in den untersuchten Böden nicht entscheidend. Eine mögliche Ursache wäre in der Bioturbation, der mechanischen Durchmischung des lockeren sandigen Bodens durch Tiere, zu sehen.

Tab. 21 : Bodenkontamination der Profile aus der Ukraine (26.04.86).

Region	Ort, Probe	^{90}Sr - Depositionsd. (Bq m^{-2})	^{137}Cs - Depositionsd. (Bq m^{-2})	Relaxation (cm)	pH-Wert 4 cm bis 33 cm
Ostukraine	Charkow 4	1690 ± 71	13300	9,0	7,0 bis 7,1
Zitomir	Baraschewka 1	1700 ± 70	3100	9,0	4,4 bis 4,6
Korosten	Nemirowka 1	2970 ± 120	234000	9,0	5,3 bis 5,1
Korosten	Kup. Tsch. 1	5670 ± 240	332000	6,1	5,1 bis 5,4
Korosten	Kup. Tsch. 2	3970 ± 160	277000	10	5,2 bis 5,1

Wie in Tab. 21 dargestellt, beträgt die Depositionsdichte der beiden Backgroundprofile 1700 (Baraschewka 1) bzw. 1690 Bq m⁻² (Charkow 4). Da die Beprobung nur bis in eine Tiefe von 40 cm erfolgte, kann nicht als gesichert angesehen werden, daß alles Radiostrontium erfaßt wurde. Unter der Annahme, daß sich die Bodenparameter in der unteren Hälfte des Profils kontinuierlich ändern, wird die Sorptionseigenschaft des Bodens nicht sprunghaft abnehmen. An beiden Entnahmestellen befindet sich unterhalb von 20 cm weniger als 10 % der Aktivität des Profils. Daher kann der Anteil, der in Tiefen von über 40 cm gewandert ist und nicht mehr erfaßt wurde, vermutlich vernachlässigt werden. Aus den derzeit zur Verfügung stehenden Daten [Mo96] ist wie in Tab. 22 aufgeführt ein Background aus den atmosphärischen Kernwaffentests von etwa 1700 Bq m⁻² vom 50° bis zum 60° nördlicher Breite zu erwarten. Diese ubiquitäre Depositionsdichte wurde auch in der weiteren Umgebung von bis zu 500 km um den Reaktor in Böden der Ukraine, Rußlands und Weißrußlands gemessen [Sa94]. Die Region Zitomir scheint daher durch den Unfall von Tschernobyl nicht zusätzlich mit Strontium-90 kontaminiert worden zu sein.

Tab. 22 : Kumulative Bodenkontamination vor und nach dem Tschernobyl-Unfall (26.04.86).

Ort, Region	geographische Lage	Nuklearwaffen-Fallout (Bq m ⁻²)	Quelle
Breitengürtel	40° - 50° N	1860	[Mo96]
Tschernobyl	30° O; 41° N		
500 km-Zone um den Reaktor	Nordukraine, Rußland, Weißrußland	1400	[Sa94]
Breitengürtel	30° - 40° N	1350	[Mo96]

Legt man das weltweit gemessene Verhältnis des Cäsium-137 zu Strontium-90 von 1,6 [UN82] bzw. 1,7 zugrunde, so ist im dem Gebiet der Nordhalbkugel von 50 bis 60° nördlicher Breite eine ¹³⁷Cs-Deposition von 3400 Bq m⁻² zu erwarten. Dieser Berechnung liegt die Annahme zugrunde, daß die vor allem in der Stratosphäre produzierten Cäsium-Isotope wie das Strontium homogen über die Breitengrade verteilt wurden. Die ¹³⁷Cs-Kontamination des Profils Baraschewka 1 von 3100 Bq m⁻² liegt 8 % unterhalb dieses Erwartungswertes. Allerdings deutet die ¹³⁴Cs-Aktivität wiederum auf eine Immission durch den Unfall von Tschernobyl hin. Denn die aus dem Kernwaffenfallout stammende Aktivität dieses Nuklides (T_{1/2} = 2,06 a) ist heute nicht mehr nachweisbar. Demgegenüber weist Charkow 4 bereits eine

^{137}Cs - bzw. eine ^{134}Cs -Deposition von 13300 bzw. 4900 Bq m^{-2} auf. Die Region Zitomir wurde also durch Cäsium kontaminiert nicht aber durch Radiostrontium.

Dies entspricht der Beobachtung, daß Radiocäsium in anderer physikochemischer Form [Ou93] als das Strontium (keramische Brennstoffmatrix) emittiert wurde und ein weiträumiger Transport des Cäsium-137 erfolgte. Wie sich schon bei anderen Untersuchungen zur Kontamination zeigte [IAEA91], ist Cäsium-137 daher kein geeigneter Tracer für Strontium-90.

5.2.2 Profile aus der Region Korosten

Die Probe Nemirowka 1 wurde wie die beiden anderen Profile mittlerer Entfernung vom Reaktor Kupetsch Tschernjanka 1 und 2 etwa 10 km nördlich der Stadt Korosten entnommen. Wie in Abb. 23 dargestellt, reicht der südwestliche Ausläufer der ^{137}Cs -Isoplethe an diese Region heran. Die ^{90}Sr -Kontamination durch den Reaktorunfall blieb größtenteils auf die 30 km-Zone beschränkt [IAEA91]. Die drei analysierten Profile dieser Region reagieren sauer und weisen einen pH-Wert von $\text{pH} = 5,1$ bis $5,4$ auf. Die Dichte der oberen Schichten von etwa $1,2 \text{ g cm}^{-1}$ steigen mit zunehmender Tiefe bis auf $1,6 \text{ g cm}^{-1}$ an. Die erfaßten Parameter dieser drei Böden weisen nur geringe Unterschiede auf.

In dem Profil Nemirowka 1 zeigt sich qualitativ der gleiche Verlauf der spezifischen ^{90}Sr -Aktivität wie schon im Profil Charkow 4. Abgesehen von der obersten Schicht, die noch Vegetationsreste enthält, nimmt die Konzentration an Strontium-90 bis etwa 19 cm kaum (12 bis 10 Bq kg^{-1}) und in den tieferen Schichten bis etwa 25 cm stark ($9,3$ bis $1,2 \text{ Bq kg}^{-1}$) ab. Anders als im Profil Charkow 4 weist die Abnahme der ^{137}Cs -Aktivität den qualitativ gleichen Verlauf wie die des Strontium-90 auf. Während die Aktivitätskonzentration des Cäsium-137 bis in eine Tiefe von 13 cm annähernd konstant ist, fällt sie daraufhin von 13 bis 23 cm um etwa eine Größenordnung (200 auf 20 Bq kg^{-1}) ab.

Die absolute ^{90}Sr -Depositionsdichte ist mit 3000 Bq m^{-2} gegenüber dem Boden aus der Region Zitomir um etwa 50 % erhöht. Ohne eine Information über die Breite der natürlichen Schwankung kann dieser Befund nicht mit Sicherheit auf eine Immission des Unfalls von Tschernobyl zurückgeführt werden. So weisen die ausschließlich durch den Kernwaffenfallout kontaminierten chilenischen Profile Curinanco Alto und Curinanco Bacho ähnlich hohe

Unterschiede auf (Tab. 16). Die ^{137}Cs -Deposition von $234\,000\text{ Bq m}^{-2}$ ist hingegen deutlich gegenüber dem durch die Kernwaffen verursachten Background von etwa $3000\text{ Bq }^{137}\text{Cs m}^{-2}$ erhöht.

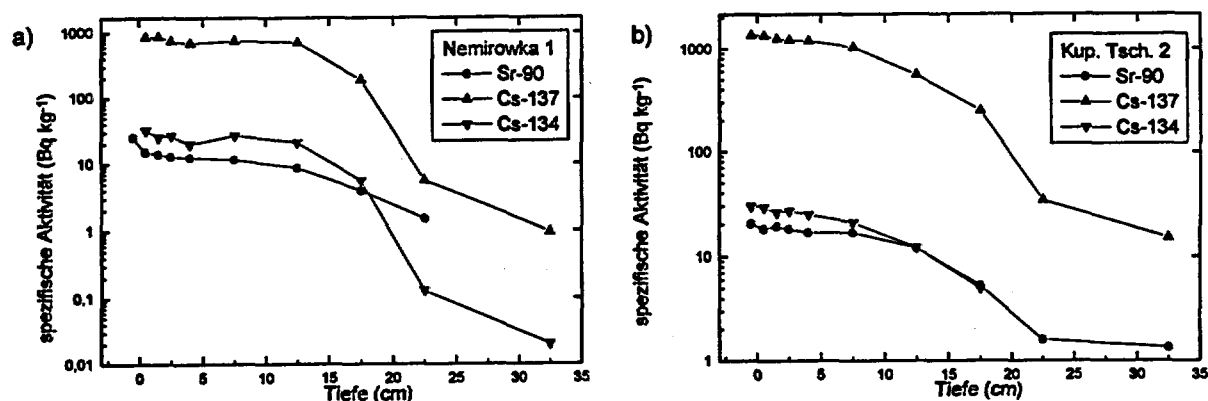


Abb. 26 : Tiefenabhängige Abnahme der spezifischen ^{90}Sr - und $^{137/134}\text{Cs}$ -Aktivität des Bodens im den Profilen a) Nemirowka 1 und b) Kupetsch Tschernjanka 2 aus Korosten (Ukraine).

Die in Abb. 26 b) dargestellte Abnahme der spezifischen Aktivität des Profils Kupetsch Tschernjanka 2 weist qualitativ die gleichen Verläufe der spezifischen ^{90}Sr - und $^{137/134}\text{Cs}$ -Aktivitäten wie Nemirowka 1 auf. Die absoluten Depositionsdichten betragen $4\,000\text{ Bq m}^{-2}$ Strontium-90, $277\,000\text{ Bq m}^{-2}$ Cäsium-137 bzw. $161\,000\text{ Bq m}^{-2}$ Cäsium-134.

Um eine Ursache für die ähnliche Verteilung der spezifischen Aktivität des Bodens an Strontium-90 und Cäsium-137 zu untersuchen, wurden beispielhaft Batchversuche durchgeführt. Die Bestimmung der prozentualen Sorption erfolgte an denselben Schichten, die auch zur Untersuchung des pH-Werts dienten (Tab. 21, S. 111). Je dreimal ein Gramm Boden (2 mm) wurden mit zehn Millilitern synthetischem Bodenwasser sowie Radiotracer (Cäsium-134, Strontium-85 und Iod-125) versetzt und mehrere Wochen geschüttelt. Die zusätzliche Untersuchung des Iods (als Iodid) ermöglichte es, charakteristische Unterschiede in den Sorptionseigenschaften für Kationen und Anionen zu erkennen. Durch die kontinuierliche Entnahme und Untersuchung von Bodenlösung wurde sichergestellt, daß die Gleichgewichtseinstellung eingetreten war.

Tab. 23 : Radionuklid-Sorption dreier Schichten des Profils Nemirowka 1.

Bodenschicht (cm)	pH-Wert	Cäsiumsorption (%)	Strontiumsorption (%)	Iodsorption (%)
3 - 5	5,3	96,6 $\pm$ 0,7	47,2 $\pm$ 1,0	71,4 $\pm$ 1,0
10 - 15	5,0	98,1 $\pm$ 0,4	53,8 $\pm$ 2,9	74,3 $\pm$ 0,9
25 - 40	5,1	94,9 $\pm$ 0,6	45,4 $\pm$ 2,5	62,3 $\pm$ 0,9

Für keines der drei Nuklide läßt sich mit zunehmender Tiefe ein kontinuierlicher Verlauf der prozentualen Sorption feststellen (Tab. 23), jedoch weisen alle qualitativ die gleiche Tendenz auf. Unabhängig von der Ladung steigt die Sorption aller Ionen von der oberen (3 bis 5 cm Tiefe) zur mittleren Schicht (10 bis 15 cm Tiefe) und nimmt zwischen 25 und 40 cm Tiefe den geringsten Wert an. Quantitativ ergeben sich jedoch für die beiden Kationen und das Anion erhebliche Unterschiede. Cäsium weist mit etwa 96 % die höchste prozentuale Sorption auf, Iodid nimmt mit etwa 68 % eine mittlere Stellung in dieser Reihe ein, und Strontium wird mit etwa 50 % am wenigsten sorbiert. Die Konzentration des Anions in der Bodenlösung liegt also zwischen derjenigen der beiden Kationen.

Diese unterschiedlichen Sorptionseigenschaften legen keinen Transport mit dem Wasser als Ursache für die Migration nahe. In diesem Falle sollte die Migration des Cäsiums im Profil weniger weit fortgeschritten sein als die des Strontiums. Diese Sorptionsbefunde deuten daher auf eine mechanische Durchmischung des Bodens beispielsweise durch Pflügen hin.

Da der Transport der Radionuklide vermutlich durch anthropogene Einflüsse gestört wurde, entsprechen Kompartimentmodelle zur Berechnung der Verlagerungsgeschwindigkeit nicht der Realität. Denn in diesem Profil kann nicht ausgeschlossen werden, daß an einem Tag der Boden durch Pflügen durchmischt wurde. Die in Abschnitt 1.4 beschriebenen Kompartimentmodelle setzen jedoch eine kontinuierliche Wanderungsgeschwindigkeit ausschließlich von oben nach unten voraus. Weiterhin ist für die Berechnung des Migrationsverhaltens die Kenntnis des Quellterms erforderlich. Dieses Profil wurde vermutlich einerseits durch den nuklearen Fallout, andererseits durch den Unfall von Tschernobyl kontaminiert. Beide Depositionsdichten werden durch logarithmische Normalverteilungen beschrieben. Je nachdem, welcher Anteil welcher Quelle zugeordnet wird, ergeben sich somit unterschiedliche Migrationsgeschwindigkeiten beim Anpassen der Übergangsgeschwin-

digkeiten zwischen den Profilschichten an die heute vorgefundene Radionuklidverteilung im Boden.

Weiterhin scheint die Migration der Radionuklide an diesem und den übrigen untersuchten Standorten relativ unabhängig von dem pH-Wert der Profile zu sein. Während Baraschewka 1 mit $\text{pH} = 4,5$ den sauersten Boden aufweist, wurde dort die Aktivität in den oberen Schichten dreißig Jahre lang effektiv zurückgehalten. Demgegenüber reagiert das Profil Charkow 4 neutral und die Entnahmestellen um Korosten mit $\text{pH} = 5,2$ bereits sauer. Dort wurde aber eine weiter fortgeschrittene Migration des Strontium-90 in den oberen Schichten gemessen. Ferner fand an den Orten Nemirowka und Kupetsch Tschernjanka vermutlich eine zusätzliche ^{90}Sr -Deposition elf Jahre vor Entnahme der Proben durch den Reaktorunfall statt. Der neu deponierte Anteil an Cäsium überstieg den schon vorhandenen um das 20- bis 100-fache. Während dieses Nuklid in Baraschewka 1 kaum gewandert ist, wurde es im Raum Korosten schnell nach unten transportiert. An allen vier Standorten, die einen sauren pH-Wert aufweisen, fand also eine sehr viel schnellere Verteilung der Radionuklide in den oberen Schichten statt. Eine Ursache für diese Homogenisierung der Radionuklide könnte wiederum die Bioturbation oder die landwirtschaftliche Bearbeitung der Fläche sein. Grundsätzlich ist ein Vergleich der Migration des von den Kernwaffenversuchen stammenden Strontium-90 mit dem als Folge des Reaktorunfalls deponierten nur bedingt möglich, denn die beiden Fraktionen weisen in einigen Böden ein unterschiedliches ökologisches Verhalten auf [Fr91]. Da der nukleare Fallout kontinuierlich während allen Jahreszeiten über einen Zeitraum von mehreren Jahrzehnten deponiert wurde, während die Immission durch Tschernobyl innerhalb weniger Tage zu Beginn der Vegetationsperiode erfolgte, nahmen die verschiedenen Fraktionen an unterschiedlichen Stoffwechsel- und Migrationsprozessen teil.

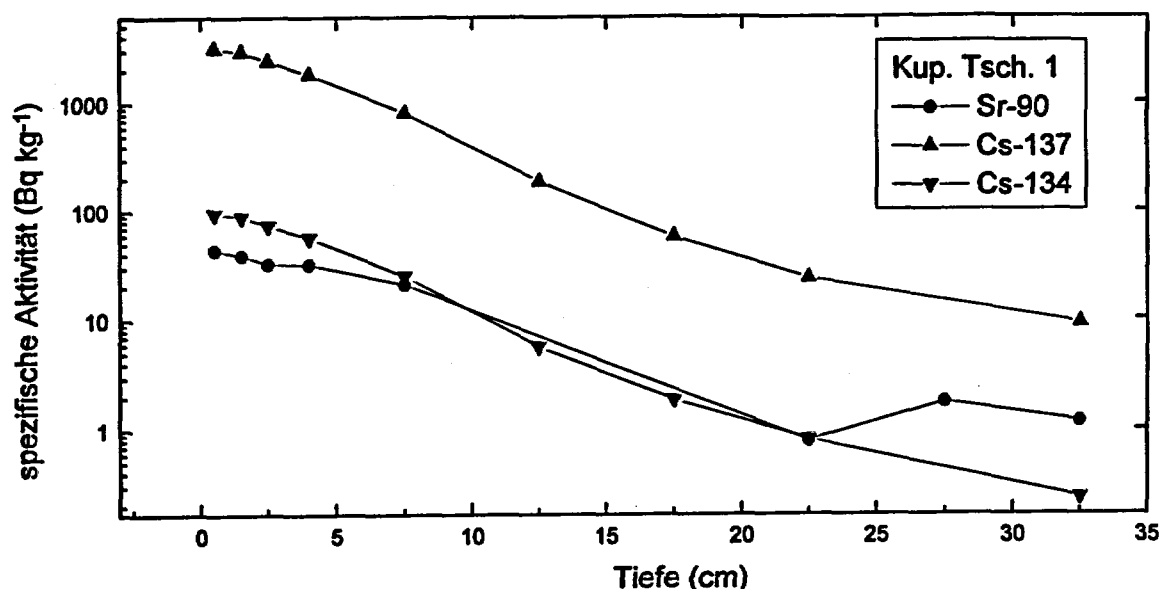


Abb. 27 : Tiefenabhängige Abnahme der spezifischen ^{90}Sr - und $^{137/134}\text{Cs}$ -Aktivität im Profil Kupetsch Tschernjanka 1 (Korosten, Ukraine).

Im Profil Kupetsch Tschernjanka 1 wurden mit 44 bis 33 Bq kg $^{-1}$ in den oberen 5 cm hohe spezifische ^{90}Sr -Aktivitäten gemessen, und die Relaxation beträgt nur 6,1 cm. Die Oberfläche dieser Probe ist 1986 vermutlich mit der höchsten zusätzlichen ^{90}Sr -Aktivität kontaminiert worden. Der neu hinzugekommene Anteil des Radiostrontiums hatte somit weniger Zeit für die Migration. Die geringe Relaxationstiefe unterstützt daher die Vermutung, daß eine Deposition durch den Unfall von Tschernobyl erfolgte.

Das Profil Kupetsch Tschernjanka 1 weist mit 5700 Bq m $^{-2}$ die absolut höchste ^{90}Sr -Depositionsdichte auf. Gegenüber dem Kernwaffen-Background von 1700 Bq m $^{-2}$ also ein Anstieg um etwa das 3,4-fache. Da in allen Profilen dieser Region ein höherer Eintrag als in dem Gebiet um Zitomir gemessen wurden, ist eine ^{90}Sr -Immission von Tschernobyl wahrscheinlich.

Zusammenfassend läßt sich feststellen, daß in den beiden Profilen aus der Region Zitomir eine Depositionsdichte von etwa 1700 Bq m $^{-2}$ ermittelt wurde (Tab. 21, S. 111). Diese Größenordnung ist aufgrund der Informationen, die durch das weltweite Monitoring gewonnen wurden, für den Background durch den Kernwaffenfallout der sechziger Jahre zu erwarten (Tab. 22, S. 112). Demgegenüber ist die ^{90}Sr -Immission im Raum Korosten mit einem Eintrag von 3000 bis 5700 Bq m $^{-2}$ angestiegen. Verglichen mit den Depositionen um Zitomir stellt dies eine Erhöhung auf das Zwei- bis Dreifache dar. Daher ist eine ^{90}Sr -

Immission durch den Unfall nahe der Ortschaft Korosten zu vermuten. Die Variation der Flächenaktivität des durch den Unfall deponierten Strontium-90 [Or95] sowie vieler Schadstoffe allgemein [Gi87] wird durch logarithmische Normalverteilungen beschrieben. Somit besteht bei jeder Probenahme die Möglichkeit, zufällig eine Stelle besonders hoher Depositionsdichte ausgesucht zu haben. Daher sind für in statistisch gesicherte Aussagen weiter Analysen notwendig.

Ernährt sich ein Bewohner einer mit 1000 Bq m^{-2} durch Strontium-90 kontaminierten Agrarlandschaft von den Produkten dieser Region, so ist aufgrund der Erkenntnisse aus den Fallout-Untersuchungen der sechziger Jahre eine mittlere effektive Folgedosis von $40 \mu\text{Gy}$ zu erwarten. Legt man das Profil Kupetsch Tschernjanka 1, in dem die höchste ^{90}Sr -Depositionsdichte (5700 Bq m^{-2}) gemessen wurde, für eine Abschätzung zugrunde, so erhöht sich die in 50 Jahren zu erwartende Folgedosis eines Bewohners um $0,23 \text{ mSv}$. Für diese Berechnung sind die Lebens- und Verzehrsgewohnheiten vieler Bevölkerungsgruppen gemittelt worden. Um genauere Aussagen über die tatsächlich betroffene Bevölkerungsgruppe zu ermöglichen, sind Untersuchungen der Ausscheidungen sowie der Knochen und Zähne erforderlich.

Die Gesamtaktivität des Profils Kupetsch Tschernjanka 1 ist gegenüber dem benachbarten (2 bis 3 km) Entnahmeort Kupetsch Tschernjanka 2 um 40 % erhöht. Damit zeigt sich wie in der Südhemisphäre an den Profilen Curinanco Alto und Bajo, daß selbst in nahe gelegenen Standorten die Immission um 100 % bis 200 % schwanken kann. Die Kontaminationsquelle der chilenischen Profile befand sich hauptsächlich in der äquatorialen Troposphäre sowie der polaren Stratosphäre [UN82] und die Radionuklide wurden über mehrere 1000 km transportiert und durchmischt. In der Region Korosten kam mit den Emissionen des Reaktorunfalls eine zusätzliche etwa 100 km entfernt liegende Quelle hinzu. Für die Deposition dieser Radionuklide waren zusätzlich die aktuelle Wetterlage und insbesondere die Niederschlagsverhältnisse in den Tagen nach dem Unfall absolut entscheidend. In beiden Gebieten wurde auf offenen, mit keiner hohen Vegetation bewachsenen Flächen innerhalb weniger Kilometer ein großer Unterschied beobachtet.

Der Verlauf des Eintrags in die Profile ist nicht kontinuierlich. Während an den Standorten Baraschewka 1 und Kupetsch Tschernjanka 1 eine fast exponentielle Abnahme der spezifischen Aktivität beobachtet wurde, weisen die drei anderen Profile eine fast gleich

bleibende Kontamination der oberen 5 bis 10 cm auf. Da sich Bodenparameter, wie die Sorptionsisothermen, innerhalb eines Hektars um mehrere Größenordnungen ändern können, sind die einzelnen Profile jedoch nicht repräsentativ für einen Acker oder eine gesamte Region [Bö97]. Ferner wurde beobachtet, daß sich Strontium-90, welches durch die Kernwaffenversuche und den Unfall deponiert wurde, auf Agrarböden unterschiedlich verhält [Fr91]. Um mit höherer Meßsicherheit zu klären, ob dieser Befund, die Sorptionseigenschaften der einzelnen Schichten oder eine etwaige landwirtschaftliche Bearbeitung der Flächen Ursache ist, sind weitere radiochemische und bodenkundliche Untersuchungen notwendig.

5.3 Zusammenfassende Betrachtung

Der ^{90}Sr -Eintrag in die obersten Schichten schwankt oft erheblich und zeigt keinen systematischen Verlauf. Abgesehen von der meßtechnischen Unsicherheit ist dies auf die Art und den Zeitpunkt der Deposition sowie die mechanische Durchmischung des Bodens und die Migration zurückzuführen. Durch die Hufabdrücke großer Tiere und durch wühlende Bodentiere wird stärker kontaminierter Boden nach unten und weniger kontaminierter an die Erdoberfläche transportiert. Findet die Deposition der an Aerosole haftenden Radionuklide durch ein Auswaschen der Atmosphäre mit Regentropfen (Washout) statt, so können sie durch in Bodenrissen abfließendes Wasser direkt in einige Zentimeter Tiefe transportiert werden. Diese Effekte bieten eine weitere mögliche Erklärung für die in einigen Profilen beobachtete homogene Verteilung der ^{90}Sr -Aktivität in den oberen Bodenschichten.

Auch in den tieferen Schichten von 5 bis 30 cm folgte die Änderung des ^{90}Sr -Eintrags keinem einheitlichen Verlauf. So fällt die spezifische Aktivität des Profils Anakena (Osterinsel) nach hohen Werten für die oberen 8 cm in den tieferen Schichten bis zu 16 cm von $2,0 \text{ Bq kg}^{-1}$ auf weniger als $0,4 \text{ Bq kg}^{-1}$ ab. An diesem Standort fand wie auch am Profil Valle Grey (Westpatagonien) ausschließlich eine Kontamination durch den globalen Fallout statt. Letzteres zeigt jedoch eine exponentielle Abnahme bis in eine Tiefe von etwa 10 cm (Abb. 19). Der Verlauf des Eintrages in einzelne Profile kann jedoch nicht als repräsentativ für eine Region oder für diesen Bodentyp angesehen werden.

Um die Ursache dieser unterschiedlichen Verlagerungen zu erklären, ist es notwendig, sowohl den Bodentyp als auch die Bodeneigenschaften, wie die Korngrößenverteilung,

Kationenaustauschkapazität und -isothermen u. a., zu erfassen. Denn um den Verlauf des Eintrags eines Radionuklids in ein Profil zu erklären, sind Kenntnisse über den Depositionsterm sowie die Sorptionseigenschaften erforderlich. Beide Informationen liegen derzeit nicht vor. So wäre es im Anschluß an diese Arbeit von Interesse, ob eine Korrelation mit diesen Parametern, insbesondere der Tonfraktion und dem pH-Wert, festzustellen ist. Dies wurde an anderen Böden beobachtet [Ba95].

Die Bestimmung der Depositionen in der Südhemisphäre ergab ein Ansteigen vom Äquator zu den gemäßigten Zonen und eine Abnahme zu den Polgebieten. Der Unterschied der absoluten Kontamination global betrachtet kleiner Regionen wie der Antarktis zeigte Unterschiede um das Vierfache. Dies ist auf den Südshetlandinseln sicherlich zum einen auf das extreme Klima und die Schneeverwehungen zurückzuführen. Hohe Unterschiede in der Deposition wurden aber auch im gemäßigten Klima bei den beiden Profilen Curinanco Bacho und Alto, sowie Kupetsch Tschernkanka 1 und 2 ermittelt. Ähnliche regionale Schwankungen konnten bei der Untersuchung der Kontamination des Bodens mit verschiedenen Isotopen durch den Kernwaffenfallout beobachtet werden [Ci87, Bu88, Ba95]. Als wichtige Parameter stellten sich die geographische Höhe und die Niederschlagsmenge heraus. Durch Steigungsregen stehen diese beiden Parameter häufig in meteorologischem Zusammenhang. Die Depositionsdichte eines oder mehrerer Profile von 400 cm² Oberfläche kann daher nicht als repräsentativ für einen Hektar, eine Region oder einen Abschnitt von zehn Breitengraden angesehen werden.

6 Zusammenfassung

In dieser Arbeit wurde eine neue Analysemethode zur Bestimmung der ^{90}Sr - und ^{89}Sr -Aktivität in Bodenproben entwickelt. Nach der trockenen Veraschung der Probe schließt sich die saure Extraktion des Strontiums an. Die Erdalkalielemente werden als Sulfate gefällt und durch einen alkalischen Aufschluß in die Carbonate überführt. Durch eine Chromat-Fällung findet die Abtrennung des Bariums statt. Die Extraktionschromatographie ermöglicht die radiochemische Reinigung und Abtrennung des Strontiums. Dadurch wird der naßchemische Aufwand reduziert und die Verwendung aggressiver Chemikalien vermieden. Die Bestimmung der Ausbeute des Strontiums findet γ -spektrometrisch durch die Messung des ^{89}Sr -Tracers statt. Die gesamte naßchemische Arbeit ist innerhalb eines Arbeitstages durchführbar. Zudem können zeitgleich zwei Proben analysiert werden.

Durch Nutzung von Flüssigszintillations-Spektrometrie und die Aufteilung des β -Spektrums in zwei Zählfenster ist die Detektion der ^{90}Sr -Aktivität bei gleichzeitiger Erfassung des Strontium-89 möglich. Die Aktivität des Strontium-90 wird über den Fit der Zählrate des Yttrium-90 im hochenergetischen Fenster bestimmt. Da somit nicht der Zerfall sondern der Aufbau des Yttrium-90 detektiert wird, kann direkt nach der Reinigung des Strontiums mit der Messung der Aktivität begonnen werden ohne mehrere Wochen auf den Aufbau des Tochter-nuklids zu warten. Ferner ist eine komplexometrische Bestimmung der Ausbeute des Yttriums nicht mehr notwendig, da die Aktivität des Yttrium-90 im radiochemischen Gleichgewicht derjenigen des Strontium-90 entspricht. Das niederenergetische Fenster im Flüssigszintillations-Spektrum dient zur Bestimmung der ^{89}Sr -Zählrate. Daher eignet sich diese Methode auch für die Analyse von Proben, die beispielsweise nach einem kerntechnischen Unfall mit den beiden Radionukliden Strontium-90 und Strontium-89 kontaminiert sind.

Standard-Böden von der IAEA oder aus Ringanalysen dienen zur Qualitätssicherung. Die durch den Fehler der Probebehandlung f_g , des γ -Spektrometrie f_γ und der Flüssigszintillations-Zählung f_β verursachte relative Unsicherheit bei der Bestimmung der spezifischen Aktivität des Bodens beläuft sich auf etwa 6,9 %. Die Unsicherheit des Fits der Equilibriumsaktivität des Yttrium-90 beträgt für mittelaktive Standard-Proben (etwa 30 Bq kg⁻¹) 5 %. Diese Befunde wurden auch durch die Teilnahme an einer Ringanalyse [Ha96, Labor Code 27] bestätigt. Die mit dieser Methode ermittelte spezifische Aktivität des Bodens (35,5 $\pm$ 3,0 Bq kg⁻¹) wich 5,3 % vom Mittelwert der Gehaltsgrößen aller akzeptierten

Laboratorien ($33,7 \pm 5,3 \text{ Bq kg}^{-1}$) und 6,0 % vom Referenzwert ($33,5 \text{ Bq kg}^{-1}$) der Leitstelle bzw. der PTB ab.

Ferner führte die Wiederholung der Bestimmung der Aktivität von Umweltproben innerhalb der Unsicherheit des Verfahrens zu den gleichen Ergebnissen. Auch nach der erneuten Analyse von teilweise mit Blei-210 und anderen Radionukliden kontaminierten Blanks wurde in keinem Fall ein Anstieg der ^{90}Y -Zählrate beobachtet.

Für die Ermittlung der statistischen Kenngrößen des Verfahrens wurde ein Modell sinngemäß nach DIN 25 482 verwendet. Die absolute Größe dieser Werte ist vor allem von der Fenstersetzung im Flüssigszintillations-Spektrum und der seit der Abtrennung des Yttrium-90 vergangenen Zeit abhängig. Für die Anwendung dieser Methode sind zwei Arten von Proben von besonderem Interesse:

In der Routineanalytik untersuchte Böden enthalten kein Strontium-89, und es steht genügend Zeit zur Ermittlung der Aktivität zur Verfügung (Umweltmonitoring). Nach zehn 6h-Messungen des Anstiegs der ^{90}Y -Aktivität beträgt die Nachweisgrenze dieser Methode (sinngemäß nach DIN 25 482) bei der Analyse von 100 g Boden und einer chemischen Ausbeute von 50 % etwa $0,2 \text{ Bq kg}^{-1}$.

Nach einem kerntechnischen Unfall ist beispielsweise in Luftfiltern mit Aktivitäten von mindestens 100 mBq Strontium-90 und 15 Bq Strontium-89 [Me93] zu rechnen. Diese ^{90}Sr -Aktivität kann mit der hier entwickelten Methode innerhalb von zwei Tagen nach Eintreffen der Probe nachgewiesen werden. Für die Bestimmung dieser ^{90}Sr -Aktivität sind zwei weitere 6 h-Messungen erforderlich. Nach der radiochemischen Reinigung muß eine solche Probe 24 h bis zum Nachweis von 15 Bq Strontium-89 und 36 h bis zum Nachweis von 100 mBq Strontium-90 gemessen werden.

Exemplarisch wurde diese Methode zur Messung der ^{90}Sr -Immission durch den globalen Fallout der sechziger Jahre in der Südhemisphäre und der lokalen Kontamination durch den Unfall von Tschernobyl in der Ukraine eingesetzt.

Die Analyse von Bodenproben aus Chile ermöglichte es, die Kontamination durch den nuklearen Fallout der sechziger Jahre in der Südhemisphäre beispielhaft zu dokumentieren. Die ^{90}Sr -Depositionsdichte der Bodenprofile schwankte innerhalb von global kleinen geographischen Gebieten, wie der Seenregion Chiles und den Südshetlandinseln, um das Vierfache. Die ^{90}Sr -Kontamination der Profile steigt von der dem Äquator am nächsten

gelegenen Osterinsel zur gemäßigten Zone hin an und nimmt für die weiter südlich gelegenen Gebiete wiederum ab. Qualitativ entsprechen diese Depositionsdichten den aus den weltweiten Monitoring gewonnenen Erfahrungen. In der Seenregion Chiles wurde allerdings eine etwa doppelt so hohe Immission gemessen, wie aus diesen Daten zu erwarten wäre. Die Migration war in keinem der Profile über dreißig Zentimeter fortgeschritten und die Konzentration der Aktivität zeigte in den oberen Zentimetern der unterschiedlichen Profile keinen einheitlichen Verlauf. In Westpatagonien und auf der Osterinsel befanden sich weniger als 1 % des Strontium-90 im Bewuchs. Die ^{90}Sr -Depositionsdichte in der Antarktis betrug etwa 50 % der Aktivität, die aufgrund des weltweiten Monitoring erwartet wurde. Aufgrund der geringen spezifischen ^{90}Sr -Aktivität des Bodens war die Erfassung der Kontamination der unteren Schichten dieser Profile nicht mehr möglich. Die Migration betrug zwei bis zehn Zentimeter und in etwa der Hälfte der Profile wurde bis zu 20 % der Radiostrontiumaktivität in dem Bewuchs gemessen. Ferner kann durch die extremen klimatischen Verhältnisse ein Transport des Strontium-90 nach der Deposition aus der Atmosphäre nicht ausgeschlossen werden.

Mit den Profilen der Nordukraine standen Proben zur Verfügung, bei denen über den nuklearen Fallout hinaus eine Kontamination durch den Unfall von Tschernobyl zu erwarten war. Die weiter vom Reaktor entfernt entnommenen Böden aus der Region Zitomir, etwa 150 km südwestlich von Pripjat, wiesen mit $1,7 \text{ kBq m}^{-2}$ (26.04.86) eine Deposition auf, die dem Background aus den Kernwaffentests entspricht. Das Ansteigen der ^{90}Sr -Aktivität auf 3,0 bis $5,7 \text{ kBq m}^{-2}$ im Raum Korosten, 110 km südwestlich des Reaktors, deutet auf einen Eintrag durch den Unfall von Tschernobyl hin. Über 90 % der gesamten ^{90}Sr -Depositionsdichte der einzelnen Profile befand sich noch oberhalb 25 cm.

7 Ausblick

Die Veraschung des Bodens bei Temperaturen von 550 °C stellt einen zeitaufwendigen Arbeitsschritt der Methode dar. In einem häufig verwendeten Programm benötigt der Muffelofen über eine Stunde, um diese Temperatur zu erreichen. Daraufhin wird mindestens vier Stunden verascht und mehrere Stunden abgekühlt. Bei Bewuchsproben ist ein vorsichtiges Aufheizen von etwa einem Grad Celsius pro zwei Minuten über vier bis sechs Stunden erforderlich, um ein kontinuierliches Veraschen zu gewährleisten. Die langsame Erhöhung der Temperatur ist bei Vegetationsproben notwendig, da anderenfalls beispielsweise Gras plötzlich zu brennen beginnt, und durch die lodernden Flammen Rußteilchen ausgetragen werden können.

Unter hohen Drücken und Temperaturen kann die für die Veraschung benötigte Zeit eventuell auf wenige Stunden verkürzt werden. Ferner ist bei dem Einsatz von geschlossenen Gefäßen ein Austrag von Rußpartikeln nicht zu erwarten. Die Untersuchung von Druckaufschlüssen stellt daher im Anschluß an diese Arbeit eine Möglichkeit dar, die Veraschung der Proben zu beschleunigen. Ferner wurde von Knöchel und Mitarbeitern [Ab97] ein Wirbelschichtreaktor entwickelt, der die Zeit der Probebehandlung bei der Veraschung organischen Materials wesentlich verkürzt.

Nach der Erprobung neuer Methoden der Veraschung ist es erforderlich, die Anwendbarkeit des Trennungsgangs für diese Matrices zu untersuchen. Insbesondere die Analyse von Bewuchs- und Kulturpflanzen, sowie von Milch und daraus erzeugten Nahrungsmitteln würde eine vollständige Erfassung der Kompartimente der wichtigsten Expositionspfade für Strontium-90 ermöglichen. Weiterhin stellt die Bestimmung der ⁹⁰Sr-Aktivität in Gewebe- und insbesondere Knochenproben von Versuchstieren eine Möglichkeit dar, die Organdosen und Transferfaktoren zu bestimmen. Mit diesen Befunden können die Kenntnisse, die aus den Untersuchungen des globalen Fallouts der sechziger Jahre gewonnen wurden, mit anderen Ökosystemen wie der durch den Unfall von Tschernobyl kontaminierten Nordukraine verglichen und gegebenenfalls erweitert werden.

Die Verwendung von Glas-vials ermöglicht die lange Lagerung von Proben und die Wiederverwendung der Flaschen. Obwohl zur Herstellung kaliumarmes Material verwendet

wird, sind in allen vials Spuren von Kalium-40 enthalten. Daher wäre es langfristig interessant Flaschen aus Kunststoff zu verwenden, die eine geringere Untergrundzählrate aufweisen. Ferner ist es notwendig zu testen, ob auch die Haltbarkeit des Cocktails gewährleistet ist.

Radioökologisch ergeben sich vor allem aufgrund der Probenahme und der Befunde in der Südhemisphäre neue Fragestellungen.

Um die Depositionsdichte eines Standortes mit höherer statistischer Sicherheit zu erfassen, wäre eine erneute Probenahme in den bereits untersuchten Gebieten von Interesse. Es kann nicht ausgeschlossen werden, daß die Depositionsdichte eines Radionuklids innerhalb eines Hektars schwankt. Daher sind mehrere Entnahmen auf einer Fläche notwendig. Da in keinem der Profile eine Migration eines wesentlichen Anteils des Strontium-90 in Tiefen über 15 cm beobachtet wurde, sollte sich auch an anderen Standorten über 95 % in den oberen 30 cm befinden. Durch die Entnahme von Bohrkernen dieser Höhe kann somit der Gesamteintrag in ein Profil erfaßt werden. Diese Beprobungstechnik allein führt allerdings wiederum nur zu der Ermittlung einer lokalen Größe. Daher ist es günstiger, mehrere Bohrkern zu entnehmen, den Boden zu mischen und Aliquote zu untersuchen. Um sicherzustellen, daß eine Probe die zu untersuchende Fläche repräsentiert, empfehlen die Richtlinien zur Emissions- und Immissionsüberwachung kerntechnischer Anlagen daher eine großräumige Beprobung: „Für die Probenahme muß eine für die Bodenart typische, homogene, möglichst ebene und wenig geneigte Fläche von 0,1 bis 1,0 ha festgelegt werden. ... Zur Probenahme sollte, wann immer möglich, ein Bohrstock von 5 cm Durchmesser verwendet werden. Die Einstichstellen werden gleichmäßig über die Probenahme-Fläche verteilt. Mit einem 5 cm-Bohrstock sind mindestens 20 Einstiche unter genauer Einhaltung der Entnahmetiefe erforderlich“ [BU95]. Die mindestens 5 kg umfassenden Proben sind zu mischen und Aliquote zu untersuchen. Eine solche Bodenentnahme soll sicherstellen, daß lokale Schwankungen auf der bis zu einen Hektar großen Fläche repräsentativ erfaßt werden.

Um den experimentellen Aufwand einer oben beschriebenen Probenahme so gering wie möglich zu halten, besteht die Notwendigkeit, die Anzahl der Einstiche zu minimieren. Daher muß ermittelt werden, wie viele Bohrkern notwendig sind, um die Kontamination einer Fläche zu erfassen. Für diese Aussage ist es notwendig, die Art der statistischen Verteilung zu beschreiben. Es ist daher von Interesse, wenigstens beispielhaft die

Variationsbreite der unterschiedlichen Proben einer einzigen Fläche zu ermitteln, um einen Eindruck von der Größe der verbleibenden Unsicherheit zu erhalten.

Allerdings sind, selbst wenn eine solche Probenahme die Kontamination dieser Fläche repräsentativ erfaßt, die großräumigen Effekte zu berücksichtigen. So wurde häufig eine Korrelation der Depositionsdichte eines Radionuklids mit der geographischen Höhe und Niederschlagsmenge beobachtet. Daher ist es erforderlich, die Orte der Beprobung nach diesen Kriterien auszuwählen. Ferner kann nicht ausgeschlossen werden, daß die Art des Bewuchses einen Einfluß auf die Reinigung der Atmosphäre von Aerosolen hat. So grenzen in einigen Kulturlandschaften beispielsweise landwirtschaftlich genutzte Flächen, die im Winter mit keiner hohen Vegetation bewachsen sind, an immergrüne Nadelwälder. Diese bieten eine höhere Oberfläche und können die Luft effektiver von Aerosolen reinigen. Sterben die Nadeln ab und fallen auf den Boden, so besteht die Möglichkeit, daß sich die Deposition innerhalb weniger Meter abhängig von der Vegetation bzw. der wirtschaftlichen Nutzung unterscheidet. Aus diesem Grund ist es notwendig, bei der Festlegung der Beprobungsorte entweder gleiche Landschaften auszuwählen oder jeweils mehrere Vegetationstypen zu erfassen.

Ist eine so aufwendige Probenahme einmal erfolgt, so bietet sich die Bestimmung der Aktivität anderer anthropogener Radionuklide an, denn es kann nicht als gesichert angesehen werden, daß chemisch so unterschiedliche Elemente wie Plutonium, Cäsium und Strontium den gleichen Transport- und Depositionsmechanismen unterliegen. So bietet das Etablieren einer α -Spektrometrie die Möglichkeit, die Aktivität der Spaltstoffe Uran-235 und Plutonium-239 zu messen. Die Erfassung unterschiedlicher Radioisotope könnte einen Hinweis auf die Bauart und somit Quelle der Kernwaffen geben, die die hohe Kontamination der Seenregion verursachten.

Da die Aktivität eines Radionuklids in einem Bodenprofil immer die Summe aller vergangenen Depositionen darstellt, kann durch die Analyse dieser Art von Proben keine zeitabhängige Aussage erfolgen. Demgegenüber ist in den Gletschern der Anden und der Antarktis der jährliche Niederschlag kontinuierlich abgelagert worden ohne vermischt zu werden. Ferner bieten diese Proben den Vorteil, daß kein Analytverlust durch horizontalen Transport zu erwarten ist. Somit stellen Bohrkern solcher Schneefelder eine Möglichkeit dar, die fehlenden Depositionsterme der ersten Jahre (vor 1958) des weltweiten Monitorings zu ergänzen.

Durch die modifizierte Entnahme von Bodenproben könnten die in dieser Arbeit gemessenen hohen Immissionen in der Seenregion und die geringen Depositionsdichten in der Antarktis mit höherer statistischer Sicherheit ermittelt werden. Die Bestimmung der α -Aktivität stellt eine Möglichkeit dar, auf die Art der Quelle zu schließen, während durch die Analyse von Gletscher-Bohrkernen die vollständige zeitliche Abfolge der Deposition erfaßt werden kann.

8 Literaturverzeichnis

- [Ab97] S. Abbadi, H. Dierks, A. Knöchel, R. Sen Gupta und K. Tödter; Rapid Procedures for the Determination of Radioactive Strontium Isotopes in Food and Environmental Samples; *Kerntechnik* 62 91 (1997).
- [AGS67] American Geographical Society, (Hrsg.); The Antarctic Atmosphere; Climatology of the Surface Environment; Folio 8, Plate 8, National Science Foundation, New Jersey 1967.
- [Al70] J. Alfaro, T. Apfel, H. Dierks, A. Knöchel, R. Sen Gupta und K. Tödter; Spurenbestimmung der Radionuklide ^{90}Sr und ^{89}Sr in Umweltproben; *Angew. Chem.* 107 207 (1995).
- [At96] Gesellschaft Kartographie, Kiew (Hrsg.); Atlas Ukraine (ukrainisch, ISBN 966-7085-05-08); Kiew 1996.
- [Ba69] E. J. Baratta und T. C. Reavey; Rapid Determination of strontium-90 in tissue, food, biota, and other environmental media by tributyl phosphate; *J. Agr. Food Chem.* 17 1337 (1969).
- [Ba82] H. Bachhuber, K. Bunzl, W. Schimmak und I. Gans; The Migration of ^{137}Cs and ^{90}Sr in Multilayered Soils: Results from Batch, Column and Fallout Investigations; *Nucl. Tech.* 59 291 (1982).
- [Ba93] F. Baumgärtner, M. A. Kim, T. Probst und S. Kastl; Comparative Study of Radiometric and Mass-Spectrometric Detection Limits of Rapid $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ Determination; *Radiochim. Acta* 61 235 (1993).
- [Ba95] A. Baeza, M. del Rio, A. Jimenez, C. Miro und J. Paniagua; Relative Sorption of ^{137}Cs and ^{90}Sr in Soil: Influence of Particle Size, Organic Matter Content and pH; *Radiochim. Acta* 68 135 (1995).
- [Be96] B. G. Bennett; Assessment by UNSCEAR of worldwide doses from the Chernobyl accident; in A. Bayer, A. Kaul und C. Reiners; Zehn Jahre nach Tschernobyl, eine Bilanz; Gustav Fischer Verlag, Stuttgart 51 (1996).
- [Bi92] U. I. J. Bittner; Über radiometrische und nicht-radiometrische Bestimmungsverfahren für die umweltrelevanten Radionuklide Iod-129 und Strontium-90; Dissertation TU München; München 1992.
- [BI92] Bundesminister des Inneren (Hrsg.); Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung, Jahresbericht 1992;
- [Bo78] N. Borus-Böszörményi, J. Kovacs und Z. Fekete; Methodische Probleme bei der zur Bestimmung des ^{90}Sr -Gehaltes in Proben pflanzlicher und tierischer Herkunft empfohlenen Lösungsmittelextraktion mittels HDEHP; *Radiochem. Radioanal. Letters* 34 51 (1978).

- [Bo82] N. Borus-Böszörményi und J. Kovacs; Bestimmung des Gehalts an ^{90}Sr und ^{89}Sr in Proben tierischer und pflanzlicher Herkunft; J. Radioanal. Chem. 68 23 (1982).
- [Bo86] J. Borchert und H. Nies; An improved method for the determination of ^{90}Sr in large samples of seawater; J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles 98 127 (1986).
- [Bö97] J. Böttcher; Use of scaling to quantify variability of heavy metal sorption isotherms; European J. Soil Sc. 48 379 (1997).
- [Br86] E. Browne, R. B. Firestone und V. S. Shirley; Table of Radioactive Isotopes; John Wiley & Sons, New York 1986.
- [Bu88] K. Bunzl und W. Kacke; Cumulative Deposition of ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{241}Am from Global Fallout in Soils from Forest, Grassland and Arable Land in Bavaria (FRG); J. Environ. Radioact. 8 1 (1988).
- [Bu91] K. Bunzl und W. Kacke; A simple radiochemical determination of ^{90}Sr in environmental samples; J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles 148 115 (1991).
- [Bu94] W. Burkart; Erste Deutsche Aktivitäten zur Validierung der radioökologischen Lage im Südal; Bundesamt für Strahlenschutz, Bericht BfS-ISH-166/94, Neuherberg 1994.
- [BU95] Bundesminister für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (Hrsg.), Meßanleitungen für die Überwachung der Radioaktivität in der Umwelt und zur Erfassung radioaktiver Emissionen aus kerntechnischen Anlagen; Gustav Fischer Verlag, Stuttgart 1995.
- [Bu96] D. A. Bugai, R. D. Waters, S. P. Dzhepo und A. S. Skal'skij; Risks from Radionuclide Migration to Groundwater in the Chernobyl 30-km Zone; Health Phys. 71 9 (1996).
- [Ca77] M. W. Carter and A. A. Mogissi; Three Decades of Nuclear Testing; Health Phys. 33 9 (1977).
- [Ci87] A. A. Cigna, L. C. Rossi, S. Sgorbini und G. Zurini; Environmental Study of Fallout Plutonium in Soils from the Piemonte Region (North-West Italy); J. Environ. Radioact. 5 71 (1987).
- [Cl95] S. B. Clark; Separation and Determination of Radiostrontium in Calcium Carbonate Matrices of Biological Origin; J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles 194 297 (1995).
- [Co88] P. J. Coughtrey; Models for radionuclide transport in soils; Soil use and management 4 84 (1988).
- [CS97] A. P. Castillo Santana; Concentración Superficial y Distribución Vertical de ^{137}Cs en Suelos de Isla de Pascua, Chile; Dissertation, Universidad Austral de Chile, Valdivia 1997.

- [De72] R. Dehos und G. Kistner; Strontium-90 Gehalt in menschlichen Knochen der westdeutschen Bevölkerung; *Health Phys.* 39 682 (1972).
- [De88] M. M. El-Dessouky und A. N. Sharef El-Deen; Radioanalytical Determination of ^{137}Cs and ^{89}Sr in milk; *J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles* 125 481 (1988).
- [Di71] K. Diem und C. Lentner; *Documenta Geigy, Wissenschaftliche Tabellen; Geigy Pharmazeutika* 7. Auflage, Wehr (Baden) (1971).
- [Di91] M. L. Dietz, E. P. Horwitz, D. N. Nelson und M. Wahlgren; An improved method for determining ^{89}Sr and ^{90}Sr in urine; *Health Phys.* 61 871 (1991).
- [Di97] H. Diercks, I. J. Eggers, A. Knöchel, R. Sen Gupta und K. Tödter; Schnellbestimmung von Strontium in der Umwelt; *atw* 42 33 (1997).
- [Er88] H. N. Erten, S. Aksoyoglu, S. Hatipoglu und H. Göktürk; Sorption of cesium and strontium on Montmorillonite and Kaolinite; *Radiochim. Acta* 44/45 147 (1988).
- [Fi98] M. Filß, J. Handl, R. Michel, V. P. Slavov und V. V. Borschtschenko; A fast method for the determination of strontium-90 and strontium-89 in environmental samples and its application to the analysis of strontium-90 in Ukrainian soils; zu veröffentlichen in *Radiochim. Acta* (1998).
- [Fo69] H. O. Fourie und J. P. Ghijsels; Radiostrontium in biological material: A precipitation and extraction procedure eliminating the use of fuming nitric acid; *Health Phys.* 17 685 (1969).
- [Fr91] C. Friedli, J. J. Geering und P. Lerch; Some aspects of the behaviour of ^{90}Sr in the environment; *Radiochim. Acta* 52/53 237 (1991).
- [Ge81] I. H. Gerow, J. E. Smith, Jr. und M. W. Davis, Jr.; Extraction of Cs^+ and Sr^{2+} from HNO_3 Solution Using Macrocyclic Polyethers; *Sep. Sc. Tech.* 16 519 (1981).
- [Gi87] R. O. Gilbert; *Statistical Methods for Environmental Pollution Monitoring*; Van Nostrand Reinhold Company, New York 1987.
- [Gr93] T. E. Graedel und P. E. Crutzen; *Chemie der Atmosphäre; Spektrum, Akademischer Verlag* Heidelberg (1993).
- [Ha96] G. Haase, D. Tait und A. Wiechen; *Ergebnisse der Ringanalyse Boden 1995/96*; Bundesanstalt für MilCHForschung, Institut für Chemie und Physik, Kiel 1996.
- [He60] W. R. Heald; Characterisation of Exchange Reactions of Strontium and Calcium on four clays; *Soil Sc. Soc.* 24 103 (1960).
- [Ho81] J. Hoeks; *Analytical Solutions for Transport of Conservative and Nonconservative Contaminants in Groundwater Systems; Water, Air, and Soil Pollution* 16 339 (1990).

- [Ho85] A. F. Hollemann und N. Wiberg; Lehrbuch der Anorganischen Chemie (91. - 100. Auflage); de Gruyter Berlin 1985.
- [Ho91] E. P. Horwitz, M. L. Dietz und D. E. Fisher; Separation and Preconcentration of Strontium for Biological, Environmental, and Nuclear Waste Samples by Extraction Chromatography Using a Crown Ether; Anal. Chem. 63 522 (1991).
- [Ho94] M. Hoshi, M. Yamamoto, H. Kawamura, K. Shinohara, Y. Shibata, M. T. Kozlenko, T. Takatsuji, S. Yamashita, H. Namba, N. Yokoyama, M. Izumi, K. Fojimura, V. V. Danilyuk, S. Nagataki, A. Kuramoto, S. Okajima, K. Kikuni und I. Shigematsu; Fallout Radioactivity in Soil and Food Samples in the Ukraine: Measurements of Iodine, Plutonium, Cesium, and Strontium Isotopes; Health Phys. 67 187 (1994).
- [IAEA91] International Atomic Energy Agency (Hrsg.); The International Tschernobyl Project, Surface Contamination Maps; IAEA, Wien 1991.
- [Je94] H. W. Jeter und B. Grob; Determination of Radiostrontium in Milk using an Extaction Chromatography Column; Radioactivity and Radiochemistry 5 8 (1994).
- [Ki92] G. Kirchner und D. Baumgartner; Migration rates of Radionuclides deposited after the Chernobyl accident in various north German soils; Analyst 117 475 (1992).
- [Ki96] A. N. Kiselev, A. I. Surin und K. P. Chercherov; Post-accident survey of the unit 4 reactor of the Chernobyl Nuclear Power Plant; Atomic Energy 50 225 (1996).
- [Ko86] H. Koehler, C. Leising und E. Wirth; Zuverlässigkeit von Transferfaktoren in radioökologischen Rechenmodellen; Bundesgesundheitsblatt 29 106 (1986).
- [Ko91] A. V. Konoplev und A. V. Golubenkov; Modeling Vertical Migration of Radionuclides in the Soil (as a Result of a Nuclear Accident); Soviet Meteorology and Hydrology 10 49 (1991).
- [Ko96] A. V. Konoplev, A. A. Bulgakov, V. E. Popov, O. F. Popov, A. V. Scherbak, Yu. V. Shreikin und F. O. Hoffmann; Model Testing Using Chernobyl Data: I Wash-off of ^{90}Sr and ^{137}Cs from two experimental plots established in the vicinity of the Chernobyl reactor; Health Phys. 70 8 (1996).
- [Kr77] E. Kreyszig; Statistische Methoden und ihre Anwendungen; Vandenhoeck & Ruprecht, Göttingen 1977.
- [Kr78] A. Kreft und A. Zuber; On the physical meaning of the dispersion equation and its solution for different initial and boundary conditions; Chemical Engineering Science 33 1471 (1978).

- [Kr94] S. V. Kruglov, N. A. Vasileva, A. D. Kurinov und R. M. Aleksakhin; Leaching of Radionuclides in Chernobyl Fallout from Soils by Mineral Acids; *Radiochemistry* 36 598 (1994).
- [Kr95] A. P. Krinitsyn und E. M. Pazukhin; Liquid scintillation counting for the determination of ^{90}Sr and its application to radiochemical analysis of soil samples from Belarus and Ukraine; *Radiochemistry* 37 172 (1995).
- [Kr96] F. W. Krüger, L. Albrecht, E. Spoden und W. Weiss; Der Ablauf des Reaktorunfalls Tschernobyl 4 und die weiträumige Verfrachtung des freigesetzten Materials: Neuere Erkenntnisse und ihre Bewertung; in A. Bayer, A. Kaul und C. Reiners; Zehn Jahre nach Tschernobyl, eine Bilanz; Gustav Fischer Verlag, Stuttgart 3 (1996).
- [Ku93] M. M. Kussenko und M. O. Degteva; Risk assesment of long-term irradiation effects in the Urals population; Vortrag 1993.
- [La89] J. D. Lamb, F. R. Normeyer, P. A. Drake, M. P. Elder, R. W. Miles und R. P. Lash; Ion chromatographic separation for analysis of radiostrontium in nuclear reprocessing solutions of high ionic strength; *J. Radioanal. Nucl. Chem., Letters* 134 317 (1989).
- [Le93] F. Lefevre, M. Sardin und D. Schweich; Migration of strontium in clayey and calcareous sandy soil: Precipitation and ion exchange; *J. Contaminant Hydrology* 13 215 (1993).
- [Li87] N. Litz und B. Tietz; Das Verhalten von natürlichen und künstlichen Radionukliden im Boden als Teil von Ökosystemen, Schriftenreihe des Fachbereiches Landschaftsentwicklung der TU-Berlin Nr. 46, Berlin 1987.
- [Li91] K. H. Lieser; Einführung in die Kernchemie; 3. Auflage VCH Weinheim 1991.
- [Lu95] D. Lux, L. Kammerer, W. Rühm und E. Wirth; Cycling of Pu, Sr, Cs, and other longliving radionuclides in forest ecosystems of the 30-km zone around Chernobyl; *The Science of the Total Environment* 173/174 375 (1995).
- [Ly93] A. Yu. Lyul und G. M. Kolesov; Elemental Composition and Uranium Isotope Ratios in Hot Particles from the Chernobyl Accident; *J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles* 181 25 (1994).
- [Ma76] G. Maibaum; Wahrscheinlichkeitstheorie und mathematische Statistik; VEB Deutscher Verlag der Wissenschaften, Berlin 1976.
- [Ma85] E. Makrlik und P. Vanura; Extraction separation of strontium from calcium in the water-nitrobenzene system; *J. Radioanal. Nucl. Chem., Letters* 96 451 (1985).
- [Mä95] P. Mäkinen; Handbook of Liquid Scintillation Counting (Firmenschrift); Turku Institute of Technology, Department of Telecommunications; Turku (Finnland) 1995.

- [Mi97] R. Michel, O. Mende und K. Kirchhoff; On the Determination of Decision Thresholds, Detection Limits and Confidence Intervals in Nuclear Radiation Measurements; *Kerntechnik* 62, 104 (1997).
- [Mo91] M. A. Monetti und R. J. Larsen; Worldwide deposition of ^{90}Sr through 1986; Environmental Measurements Laboratory, US Department of Energy; USDOE-Report EML-533, New York 1991.
- [Mo93] L. Monz, R. Hohmann, H.-J. Kluge, S. Kunze, J. Lantzsch, E. W. Otten, G. Passler, P. Senne, J. Stenner, K. Stratmann, K. Wendt, K. Zimmer, G. Herrmann, N. Trautmann und K. Walter; Fast, low-level detection of strontium-90 and strontium-89 in environmental samples by collinear resonance ionization spectroscopy; *Spectrochim. Acta* 48B 1655 (1993).
- [Mo96] M. A. Monetti; Worldwide deposition of ^{90}Sr through 1990; Environmental Measurements Laboratory, US Department of Energy; USDOE-Report EML-579, New York 1996.
- [Or88] J. Oravec und I. Navarcik; Determination of ^{137}Cs and ^{90}Sr in milk by the static method with an ion exchanger; *J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles* 121 331 (1988).
- [Or95] M. Yu. Orlov, Ts. I. Bobovnikova, V. P. Snykov, L. B. Bochkov und F. I. Lavlitskaya; Contamination of soil in the Bryanska and Ryazanskaya Regions with long-lived radionuclides as a result of the Chernobyl Accident; *Atomic Energy* 79 640 (1995).
- [OT94] L. F. Oliva Turbis; Estudio de la acumulation de Cs-137 en suelos de la IX y X region, Chile; Dissertation, Universidad Austral de Chile, Valdivia 1994.
- [Ou92] D. H. Oughton, B. Salbu, G. Riise, H. Lien, G. Oestby und A. Noeren; Radionuclide Mobility and Bioavailability in Norwegian and Soviet Soils; *Analyst* 117 481 (1992).
- [Ou93] D. H. Oughton, B. Salbu, T. L. Brand, J. P. Day und A. Aarkrog; Under-Determination of Strontium-90 in soils Containing Particles of Irradiated Oxide Fuel; *Analyst* 118 1101 (1993).
- [Pi95] M. Pimpl; $^{89}\text{Sr}/^{90}\text{Sr}$ -Determination in Soils and Sediments Using Crown Ethers for Ca/Sr-Separation; *J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles* 194 311 (1995).
- [Pe67] C. J. Petersen; Cyclic polyethers and their complexes with metal salts; *J. Anal. Chem.* 89 7017 (1967).
- [Ru56] I. J. Russel; Dissertation; Universität Chicago 1956.
- [Sa94] B. Salbu, D. H. Oughton, A. V. Ratnikov, T. L. Zhigareva, S. V. Kruglov, K. V. Petrov, N. V. Grebenshakkikova, S. K. Firsakova, N. P. Astasheva, N. A. Loshchilov, K. Hove und P. Strand; The Mobility of ^{137}Cs and ^{90}Sr in Agricultural Soils in the Ukraine, Belarus, and Russia, 1991; *Health Phys.* 67 518 (1994).

- [Sc88] E. W. Schpolski; Atomphysik; VEB Deutscher Verlag der Wissenschaften, Berlin 1988.
- [Sc92] F. Scheffer und P. Schachtschabel; Lehrbuch der Bodenkunde; Ferdinand Enke Verlag, Stuttgart 1992.
- [Sc95] P. Schuller, A. Ellies, J. Handl und R. Wilkendorf; Concentracion superficial y distribucion vertical de ^{137}Cs en suelos de la peninsula Ardley; Instituto Antartico Chileno 45 39 (1995).
- [Sc96] R. Schnepf, C. Metairie und G. Fraser; Radioactive effluents from nuclear power stations and nuclear fuel reprocessing plants in the European Community, 1987-91; EU-Bericht EUR 16901 EN 1996.
- [Sc97] P. Schuller, A. Ellies und J. Handl; Influence of climatic conditions and soil properties on ^{137}Cs vertical distribution in selected Chilean soils; Z. Pflanzenernähr. Bodenk. 160 423 (1997).
- [Sc97a] P. Schuller, A. Ellies und G. Kirchner; Vertical migration of fallout ^{137}Cs in agricultural soils from southern Chile; Science of the Total Environment 193 197 (1997).
- [Se70] M. Senegacnik, S. Paljk und J. Kristan; Radiochemical determination of cesium-137, strontium-89, 90 and barium-140 in milk and bone ash; Z. Anal. Chem. 249 39 (1979).
- [Se81] W. Seelmann-Eggebert, G. Pfennig, H. Münzel und H. Klewe-Nebenius; Karlsruher Nuklidkarte, Kernforschungszentrum Karlsruhe 1981.
- [Si96] A. Siehl; Umweltradioaktivität; Ernst Verlag, Berlin 1996.
- [St88] E. A. Stadlbauer, C. Trien, H. Hingmann, H. Rohatzsch und J. Weiß; Feinreinigung von Radiostrontium mittels Ionen-Chromatographie; Z. Anal. Chem. 330 1(1988).
- [Ta93] D. Tait und A. Wiechen; Use of Liquid Scintillation Counting for Fast Determination of ^{89}Sr and ^{90}Sr in Milk; The Science of the Total Environment 130/131 447 (1993).
- [Ta97] D. Tait, G. Haase und A. Wiechen; A Fast Method for the Determination of ^{90}Sr in Liquid Milk by Solid Phase Extraction with Cryptand 222 on Cation Exchange Resin; Kerntechnik 62 96 (1997).
- [Tr93] A. V. Trapeznikov, V. N. Pozolotina, M. Ya Chebotina, V. N. Chukanov, V. N. Trapeznikova, N. V. Kulikov, S. P. Nielsen und A. Aarkrog; Radioactive Contamination of the Tеча River, the Urals; Health Phys. 65 481 (1993).
- [UN82] United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation (Hrsg.); Ionizing Radiation: Sources and Biological Effects, 1982 report to the General Assembly, with annexes, United Nations publication, New York 1982.

- [UN83] United Nations Environment Programme, International Labour Organization und World Health Organization, (Hrsg.); Selected Radionuclides; World Health Organization 1983.
- [UN88] United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation (Hrsg.); Ionizing Radiation: Sources and Biological Effects, 1988 report to the General Assembly, with annexes, United Nations publication, New York 1988.
- [Vo96] O. Voitsekhovitch, B. Prister, O. Nasvit, I. Los und V. Berkovski; Present Concept Water Protection and Remediation Activities for the Areas Contaminated by the 1986 Chernobyl Accident; Health Phys. 71 19 (1996).
- [Vö85] H. Völke; Zur Strahlenexposition der Bevölkerung durch den radioaktiven Ausfall der Kernwaffenversuche der 50er- und 60er-Jahre; in Strahlenexposition der Bevölkerung, Fachverband für Strahlenschutz Bericht FS-85-37-T 617 (1985).
- [Wa92] K. Walter; Abtrennung von Strontium durch Lösungsmittlextraktion und Bestimmung von ^{89}Sr und ^{90}Sr durch Laser- und Flüssigszintillations-spektroskopie; Dissertation, Universität Mainz 1992.
- [We97] K. Wendt, J. V. Kratz, J. Lantzs, P. Müller, W. Nörtershäuser, A. Seibert, N. Trautmann, A. Waldek und K. Zimmer; Rapid Ultratrace Determination of $^{89,90}\text{Sr}$ in Environmental Samples by Collinear Laser Resonance Ionization Spectrometry; Kerntechnik 62 81 (1997).
- [Wi91] R.-D. Wilke und S. Joshi; Rapid methods for determining ^{90}Sr , ^{89}Sr and ^{90}Y in environmental samples: A survey; Radioactivity and Radiochemistry 2 13 (1991).
- [WS97] R. C. Wilkendorf Schwarzenberg; Concentracion superficial y distribucion vertical de ^{137}Cs en suelos antarticos y magallanicos; Dissertation Universidad Austral de Chile, Valdivia 1997.
- [Zh92] M. J. Zheleznyak, R. I. Demchenko, S. L. Khursin, Y. I. Kuzmenko, P. V. Tklich und N. Y. Vitiuk; Mathematical modeling of radionuclide dispersion in the Pripyat-Dnieper aquatic system after the Chernobyl accident; The Science of the Total Environment 112 89 (1992).
- [Zi90] W. Ziechmann und U. Müller-Wegener; Bodenchemie; B I Wissenschaftsverlag, Mannheim 1990.

9 Anhang

9.1 Verwendete Radiostandards und Chemikalien

Chemikalie	Kennzeichnung und Hersteller
Kalibrierlösung:	Physikalisch Technische Bundesanstalt, D-38116 Braunschweig.
⁸⁵ Sr-Tracer:	Isotopenreinheit: Sr-85 > 99 %, Sr-89 < 1 %; Fa. Amersham-Buchler, D-38116 Braunschweig.
Strontium-90	Physikalisch Technische Bundesanstalt, D-38116 Braunschweig.
Strontium-89	Physikalisch Technische Bundesanstalt, D-38116 Braunschweig.
Blei-210	Physikalisch Technische Bundesanstalt, D-38116 Braunschweig.
Referenzböden:	Soil 6, International Atomic Energy Agency, Seibersdorf Österreich A-1400-Wien. Soil 375, International Atomic Energy Agency, Seibersdorf Österreich A-1400-Wien.
Austauscherharz	Bi-t-Butyl-cis-Dicyclohexano-18-Krone-6 auf Kieselgel; Fa. EIChroM Industries Inc., Darien, IL 60561 USA.
Szintillator-Flüssigkeit:	Ultima Gold AB, Fa. Packard, D-63303 Dreieich.
Laborchemikalien:	Reinheitsgrad: pro analysi.; Fa. Merck, D-6100 Darmstadt.
demineralisiertes	Filtersystem Barnstead NANOpure II, Vorfilter Barnstead D 3750
Wasser:	Hallow Fibre Filter; Fa. Barnstead, 2555 Keper Boulevard, Dubuque, IOWA 52001 USA.

9.2 Verwendete Geräte

Meßgerät	Typ und Hersteller
Germanium-Detektor	GMX-30200-P, Fa. EG&G Ortec, D-81677 München.
Flüssigszintillations-Zähler	1220 Quantulus, Fa. Wallac, SF-20101 Turku.
Muffelofen	K 1253, Fa. Heraeus, D-6450 Hanau.
Zentrifuge	2 K 15, Fa. Sigma, D-3360 Osterode.

9.3 Symbole und Abkürzungen

Symbol	Größe
a	Jahr
A_i	Aktivität des Nuklids i
$\Delta A_{\text{Sr}89}$	Vertrauensintervall (1σ) der ^{89}Sr -Aktivität (Bq)
$\Delta A_{\text{Y}90}$	Vertrauensintervall (1σ) der ^{90}Y -Aktivität (Bq)
$A_{\text{F},i}$	Depositionsdichte pro Bodenschicht i (Bq m^{-2})
$\overline{A_{\text{F}}}$	arithmetischer Mittelwert der Depositionsdichten (Bq m^{-2})
$\overline{A_{\text{F},\text{geo}}}$	geometrischer Mittelwert der Depositionsdichten (Bq m^{-2})
η_{Sr}	chemische Ausbeute an Strontium
$\eta_{1,i}$	Zählausbeute des Nuklids i in Fenster 1
$\eta_{2,i}$	Zählausbeute des Nuklids i in Fenster 2
χ^2	Quantil der χ^2 -Verteilung
$E(x)$	Eintrag in Tiefe x
f_{β}	Variationskoeffizient (relativer Fehler) der β -Spektrometrie
f_{Fit}	Variationskoeffizient (relativer Fehler) des Fits der Equilibriumsaktivität
f_{γ}	Variationskoeffizient (relativer Fehler) der γ -Spektrometrie
f_{g}	Variationskoeffizient (relativer Fehler) der Probevorbereitung
h	Stunde
$k_{1-\alpha, 1-\beta}$	Quantile der standardisierten Gaußverteilung
$k_{1-\gamma/2}$	Quantil der standardisierten Gaußverteilung
$\lambda_{\text{Y}90}$	Zerfallskonstante des Yttrium-90 = $0,0108 \text{ h}^{-1}$
$\lambda_{\text{Sr}89}$	Zerfallskonstante des Strontium-89 = $5,66 \cdot 10^{-4} \text{ h}^{-1}$
$\lambda_{\text{Sr}85}$	Zerfallskonstante des Strontium-85 = $4,45 \cdot 10^{-4} \text{ h}^{-1}$
LSC	Liquid Scintillation Counting
Min	Minute
n_s	Anzahl der Messungen der Probe
n_0	Anzahl der Null-Messungen

Symbol	Größe
PTB	Physikalisch Technische Bundesanstalt, Braunschweig
RIMS	Resonanz-Ionisations-Massen-Spektrometrie
$R_{1,0}$	Untergrund-Zählrate in Fenster 1 (s^{-1})
$R_{1,S}(t)$	zeitabhängige Zählrate der Probe in Fenster 1 (s^{-1})
$R_{1,i}(t)$	zeitabhängige Zählrate des Nuklids i in Fenster 1 (s^{-1})
$R_{1,Sr89}^*(t)$	^{89}Sr -Zählrate an der Erkennungsgrenze in Fenster 1 (s^{-1})
$\Delta R_{1,Sr89}(t)$	Vertrauensintervall (1σ) der zeitabhängigen ^{89}Sr -Zählrate in Fenster 1 (s^{-1})
$R_{1,n}(t)$	^{89}Sr -Zählrate der Summe aller Untergrundbeiträge im Fenster 2 (s^{-1})
$\rho_{1,n}^*(t)$	^{89}Sr -Zählrate an der Nachweisgrenze (s^{-1})
$\rho_{1,Sr89}^*$	^{89}Sr -Aktivität an der Nachweisgrenze (Bq)
$R_{2,0}$	Untergrundzählrate in Fenster 2 (s^{-1})
$R_{2,S}(t)$	zeitabhängige Zählrate der Probe in Fenster 2 (s^{-1})
$R_{2,eq}$	gefittete ^{90}Y -Equilibriumszählrate in Fenster 2 (s^{-1})
$R_{2,n}^*$	^{90}Sr -Zählrate an der Erkennungsgrenze in Fenster 2 (s^{-1})
$R_{2,Sr90}^*$	^{90}Sr -Aktivität an der Erkennungsgrenze des Strontium-90 (Bq)
$\rho_{2,eq}^*$	^{90}Sr -Equilibriumszählrate an der Nachweisgrenze in Fenster 2 (s^{-1})
$\rho_{2,n}^*$	^{90}Sr -Zählrate an der Nachweisgrenze in Fenster 2 (s^{-1})
$\rho_{2,Sr90}^*$	^{90}Sr -Aktivität an der Nachweisgrenze in Fenster 2 (Bq)
$\Delta R_{2,eq}$	Vertrauensintervall (1σ) der Equilibriumszählrate in Fenster 2 (s^{-1})
$S_{0,emp.}$	empirische (nach der Gauß-Verteilung berechnete) Standardabweichung
$S_{0,Poisson}$	nach der Poisson-Statistik berechnete Standardabweichung
$\sigma_{2,0}$	Standardabweichung der Untergrundzählrate in Fenster 2 (s^{-1})
$\sigma_{1,0}$	Standardabweichung der Untergrundzählrate in Fenster 1 (s^{-1})
$\sigma_{1,i}$	Standardabweichung der Zählrate des Nuklids i im Fenster 1 (s^{-1})
SQP	Standard Quench Parameter
t	Zeit nach der ^{90}Y -Abtrennung (h)
t_m	Zeit pro Messung (h)
$T_{1/2}$	Halbwertszeit

9.4 ^{90}Sr -Aktivität der chilenischen und antarktischen Bodenprofile

Tab. 24 : Spezifische ^{90}Sr -Aktivität der Bodenschichten und des Bewuchses (Entnahmedatum)
sowie des Eintrags in das Profil (Bezugsdatum 1. Januar 1995).

Kennung	Proben- art	Entnahme- datum	Dichte (g cm^{-3})	Höhe (cm)	spez. Akt. des Bodens ^a (Bq kg^{-1})	Eintrag ^b (Bq m^{-2})
MAAR	Moos	14.01.93	1,70 ^c	—	$6,4 \pm 5,9$	— —
Ardley R						
LAAR	Flechte	14.01.93	2,08 ^c	—	$7,8 \pm 1,2$	164 ± 21
BAAR0001	Boden	14.01.93	1,620	1	$3,8 \pm 1,0$	148 ± 21
BAAR0102	Boden	14.01.93	1,620	1	$1,9 \pm 0,5$	$86,8 \pm 14$
BAAR0203	Boden	14.01.93	1,620	1	$2,2 \pm 0,5$	$56,8 \pm 12$
BAAR0304	Boden	14.01.93	1,620	1	$0,4 \pm 0,2$	$21,8 \pm 8,3$
BAAR0405	Boden	14.01.93	1,620	1	$0,9 \pm 0,5$	$15,2 \pm 7,6$
BAAR0506	Boden	14.01.93	1,620	1	< 0,4	— —
Ardley X						
MAAX	Moos	03.02.94	3,14c	—	< 0,4	— —
BAAX0003	Boden	03.02.94	0,920	3	$2,1 \pm 0,5$	107 ± 18
BAAX0305	Boden	03.02.94	0,920	2	$1,9 \pm 0,5$	$50,5 \pm 10$
BAAX0507	Boden	03.02.94	0,920	2	$0,5 \pm 0,2$	$16,2 \pm 5,8$
BAAX0709	Boden	03.02.94	0,920	2	$0,4 \pm 0,2$	$7,2 \pm 3,6$
Base Ferraz Alto						
BAAA0002	Boden	09.01.95	1,820	2	< 0,4	— —
BAAA0204	Boden	09.01.95	1,610	2	< 0,4	— —
BAAA0406	Boden	09.01.95	1,610	2	< 0,4	— —
BAAA0608	Boden	09.01.95	1,610	2	< 0,4	— —
BAAA0810	Boden	09.01.95	1,610	2	< 0,4	— —
Maldonado						
MAMD0025	Moos	07.01.95	5,20c	—	$5,7 \pm 1,4$	122 ± 19
BAMD0002	Boden	07.01.95	16,1 c	—	$3,8 \pm 1,0$	$92,3 \pm 17$
BAMD0203	Boden	07.01.95	1,480	1	$2,1 \pm 0,5$	$31,1 \pm 7,8$
BAMD0304	Boden	07.01.95	1,480	1	< 0,4	— —
Coppermine						
MACO	Moos	20.01.93	2,72c	—	$6,6 \pm 1,6$	113 ± 15
BACO0001	Boden	20.01.93	1,070	1	$4,1 \pm 1,0$	$94,9 \pm 14$
BACO0102	Boden	20.01.93	1,070	1	$2,6 \pm 0,6$	$51,0 \pm 9,0$
BACO0203	Boden	20.01.93	1,070	1	$2,2 \pm 0,5$	$23,5 \pm 5,9$
BACO0304	Boden	20.01.93	1,070	1	< 0,5	— —
BACO0405	Boden	20.01.93	1,070	1	< 0,5	— —
BACO0506	Boden	20.01.93	1,070	1	< 0,5	— —
Isla Snow						
MASN0001	Moos	06.01.95	2,50c	—	$4,5 \pm 0,7$	$63,4 \pm 8,0$
BASN0002	Boden	06.01.95	23,7c	—	$2,2 \pm 0,6$	$52,1 \pm 7,8$
BASN0203	Boden	06.01.95	1,470	1	< 0,5	— —
BASN0304	Boden	06.01.95	1,470	1	< 0,5	— —
BASN0405	Boden	06.01.95	1,470	1	< 0,5	— —

^a Entnahmedatum

^b Bezugsdatum (01.01.95)

^c Vegetationsdichte (g m^{-2})

Kennung	Proben- art	Entnahme- datum	Dichte (g cm ⁻³)	Höhe (cm)	spez. Akt. des Bodens ^a (Bq kg ⁻¹)	Eintrag ^b (Bq m ⁻²)
Fildes						
MAFI	Moos	13.01.93	3,61c	—	3,1 ± 0,8	312 ± 32
BAFI0001	Boden	13.01.93	1,330	1	5,1 ± 1,3	301 ± 32
BAFI0102	Boden	13.01.93	1,330	1	3,9 ± 1,0	233 ± 27
BAFI0203	Boden	13.01.93	1,330	1	4,9 ± 1,2	181 ± 24
BAFI0304	Boden	13.01.93	1,330	1	3,8 ± 1,0	117 ± 17
BAFI0405	Boden	13.01.93	1,330	1	2,4 ± 0,6	66 ± 11
BAFI0506	Boden	13.01.93	1,330	1	2,6 ± 0,6	34 ± 8,6
Potter						
BAPO0001	Boden	14.01.93	1,400	1	1,6 ± 0,4	60,2 ± 9,8
BAPO0102	Boden	14.01.93	1,400	1	1,7 ± 0,4	36,4 ± 8,0
BAPO0203	Boden	14.01.93	1,400	1	0,8 ± 0,4	11,2 ± 5,3
Ardley Z						
MAAZ	Moos	03.02.94	1,34c	—	12,0 ± 3,3	109 ± 8,3
BAAZ	Boden	03.02.94	0,965	10	1,0 ± 0,5	94,3 ± 7,2
Artigas						
MAAI	Moos	14.01.93	84,0c	1	2,8 ± 0,7	53,8 ± 13
BAAI	Boden	14.01.93	1,35	6	0,6 ± 0,3	51,5 ± 13

^a Entnahmedatum^b Bezugsdatum (01.01.95)^c Vegetationsdichte (g m⁻²)

Kennung	Proben- art	Entnahme- datum	Dichte (g cm ⁻³)	Höhe (cm)	spez. Akt. des Bodens ^a (Bq kg ⁻¹)	Eintrag ^b (Bq m ⁻²)
Valle Grey						
G-VG	Gras	07.12.94	210 ^c	0	11,9 ± 1,2	363 ± 26,5
B-VG0002	Boden	07.12.94	0,306	2	33,3 ± 3,8	361 ± 26,5
B-VG0204	Boden	07.12.94	0,350	2	15,1 ± 1,6	157 ± 14,9
B-VG0406	Boden	07.12.94	0,290	2	5,1 ± 0,6	52 ± 5,9
B-VG0608	Boden	07.12.94	0,290	2	1,7 ± 0,4	22 ± 4,8
B-VG0810	Boden	07.12.94	0,530	2	0,7 ± 0,3	12 ± 4,3
B-VG1012	Boden	07.12.94	0,530	2	0,4 ± 0,3	4 ± 2,7
B-VG1214	Boden	07.12.94	0,530	2	< 0,4	—
B-VG1418	Boden	07.12.94	0,530	4	< 0,4	—
Rio Pescado						
B-RP0005	Boden	07.05.91	0,830	5	12,3 ± 1,3	988 ± 67
B-RP0510	Boden	07.05.91	0,830	5	5,2 ± 0,9	528 ± 46
B-RP1014	Boden	07.05.91	0,680	4	4,7 ± 0,8	335 ± 30
B-RP1420	Boden	07.05.91	0,680	6	3,4 ± 0,5	200 ± 22
B-RP2026	Boden	07.05.91	0,670	6	1,5 ± 0,4	95 ± 14
B-RP2630	Boden	07.05.91	0,670	4	1,6 ± 0,2	40 ± 5,7
B-RP3035	Boden	07.05.91	0,510	5	< 0,4	—
B-RP3540	Boden	07.05.91	0,510	5	< 0,4	—
B-RP4045	Boden	07.05.91	0,480	5	< 0,4	—
B-RP4550	Boden	07.05.91	0,480	5	< 0,4	—
Mashue						
B-MH0003	Boden	04.10.90	0,950	3	2,8 ± 0,4	310 ± 22
B-MH0306	Boden	04.10.90	0,950	3	3,1 ± 0,5	239 ± 19
B-MH0609	Boden	04.10.90	0,950	3	1,8 ± 0,3	159 ± 14
B-MH0912	Boden	04.10.90	0,980	3	2,2 ± 0,3	112 ± 12
B-MH1215	Boden	04.10.90	0,980	3	1, ± 0,2	54 ± 8,8
B-MH1518	Boden	04.10.90	0,980	3	0,3 ± 0,2	10 ± 5,9
B-MH1821	Boden	04.10.90	1,000	3	< 0,4	—
B-MH2124	Boden	04.10.90	1,000	3	< 0,4	—
B-MH2427	Boden	04.10.90	1,000	3	< 0,4	—
Arquihue II						
B-AR0006	Boden	17.04.90	0,738	6	4,1 ± 0,6	579 ± 42
B-AR0612	Boden	17.04.90	0,840	6	2,8 ± 0,4	417 ± 34
B-AR1218	Boden	17.04.90	0,891	6	2,7 ± 0,4	290 ± 28
B-AR1824	Boden	17.04.90	0,891	6	2,8 ± 0,4	167 ± 21
B-AR2430	Boden	17.04.90	0,891	6	0,6 ± 0,1	28 ± 4,2
B-AR3035	Boden	17.04.90	0,891	5	< 0,4	—
B-AR3540	Boden	17.04.90	0,891	5	< 0,4	—
B-AR4045	Boden	17.04.90	0,891	5	< 0,4	—
B-AR4550	Boden	17.04.90	0,891	5	< 0,4	—

^a Entnahmedatum^b Bezugsdatum (01.01.95)^c Vegetationsdichte (g m⁻²)

Kennung	Proben- art	Entnahme- datum	Dichte (g cm ⁻³)	Höhe (cm)	spez. Akt. des Bodens ^a (Bq kg ⁻¹)	Eintrag ^b (Bq m ⁻²)
Curinanco Bajo						
B-CUB0005	Boden	12.04.90	0,770	5	17,7 ± 2,6	1220 ± 102
B-CUB0510	Boden	12.04.90	0,770	5	5,3 ± 0,8	609 ± 46
B-CUB1016	Boden	12.04.90	0,770	6	4,2 ± 0,6	427 ± 37
B-CUB1622	Boden	12.04.90	0,790	6	3,3 ± 0,5	251 ± 26
B-CUB2230	Boden	12.04.90	0,790	8	2,0 ± 0,3	111 ± 16
Curinanco Alto						
B-CUA0005	Boden	12.04.90	0,680	5	5,9 ± 0,9	699 ± 53
B-CUA0510	Boden	12.04.90	0,680	5	6,1 ± 0,9	519 ± 46
B-CUA1016	Boden	12.04.90	0,700	6	6,1 ± 0,9	333 ± 36
B-CUA1622	Boden	12.04.90	0,700	6	1,9 ± 0,3	103 ± 12
B-CUA2230	Boden	12.04.90	0,720	8	0,6 ± 0,1	32,5 ± 4,9
Anakena						
G-AN	Gras	11.08.94	120 ^c		0,6 ± 0,1	328 ± 16
B-AN0002	Boden	11.08.94	0,471	2	4,5 ± 0,4	327 ± 16
B-AN0204	Boden	11.08.94	0,800	2	3,9 ± 0,5	286 ± 16
B-AN0406	Boden	11.08.94	0,800	2	3,8 ± 0,5	223 ± 13
B-AN0608	Boden	11.08.94	0,800	2	4,8 ± 0,4	162 ± 9,9
B-AN0810	Boden	11.08.94	0,800	2	2,7 ± 0,3	86 ± 7,2
B-AN1012	Boden	11.08.94	0,800	2	1,7 ± 0,3	44 ± 5,1
B-AN1214	Boden	11.08.94	0,730	2	1,2 ± 0,2	17 ± 3,1
B-AN1416	Boden	11.08.94	0,730	2	< 0,4 —	— —

^a Entnahmedatum^b Bezugsdatum (01.01.95)^c Vegetationsdichte (g m⁻²)

Tab. 27 : ^{90}Sr - und $^{137/134}\text{Cs}$ -Aktivität des Profils Nemirowka 1 (Krosten, Ukraine)

Probeart	Tiefe (cm)	spezifische Aktivität des Bodens (11.06.95)			Dichte (g cm ⁻³)	Depositionsdichte (26.04.86)		
		Strontium-90 (Bq kg ⁻¹)	Cäsium-137 (Bq kg ⁻¹)	Cäsium-134 (Bq kg ⁻¹)		Strontium-90 (Bq m ⁻²)	Cäsium-137 (kBq m ⁻²)	Cäsium-134 (kBq m ⁻²)
B. / V. ^a	---	20,2 ± 3,0	---	---	2,90 ^b	2970 ± 130	---	---
Boden	00-01	12,1 ± 1,8	852 ± 37	32,3 ± 1,19	1,22	2900 ± 130	234 ± 40	128 ± 22
Boden	01-02	11,1 ± 1,7	860 ± 37	25,3 ± 0,93	1,21	2720 ± 120	209 ± 36	114 ± 20
Boden	02-03	10,3 ± 1,6	742 ± 32	26,7 ± 0,99	1,57	2550 ± 120	196 ± 34	107 ± 18
Boden	03-05	10,0 ± 1,5	681 ± 30	19,7 ± 0,73	1,39	2350 ± 120	182 ± 31	98,4 ± 17
Boden	05-10	9,3 ± 1,3	738 ± 32	26,8 ± 1,00	1,51	2000 ± 120	158 ± 27	86,9 ± 15
Boden	10-15	6,9 ± 1,3	701 ± 30	20,9 ± 0,77	1,56	1120 ± 76	88,8 ± 15	44,2 ± 7,6
Boden	15-20	3,1 ± 1,2	188 ± 8,2	5,53 ± 0,21	1,65	448 ± 34	20,3 ± 3,5	9,64 ± 1,6
Boden	20-25	1,2 ± 0,6	5,56 ± 0,24	0,13 ± ---	1,71	128 ± 13	9,28 ± 1,6	---
Boden	25-40	<0,5 ± ---	0,95 ± 0,10	0,02 ± ---	1,89	---	3,35 ± 0,57	---

^a Boden / Vegetations-Schicht^b Bewuchsdichte (kg m⁻²)

Tab. 28 : ^{90}Sr - und ^{137}Cs -Aktivität des Profils Kupetsch Tschernjanka 1 (Korosten, Ukraine)

Probeart	Tiefe (cm)	spezifische Aktivität des Bodens (11.06.95)			Dichte (g cm ⁻³)	Depositionsdichte (26.04.86)		
		Strontium-90 (Bq kg ⁻¹)	Cäsium-137 (Bq kg ⁻¹)	Cäsium-134 (Bq kg ⁻¹)		Strontium-90 (Bq m ⁻²)	Cäsium-137 (kBq m ⁻²)	Cäsium-134 (kBq m ⁻²)
B./V. ^a	—	35,5 ± 3,0	— ± —	— ± —	5,13 ^b	5670 ± 250	— ± —	— ± —
Boden	00-01	44,4 ± 3,8	3163 ± 140	96,6 ± 3,32	1,14	5440 ± 240	332 ± 57	172 ± 30
Boden	01-02	39,5 ± 3,4	2958 ± 130	90,5 ± 3,09	1,28	4780 ± 240	242 ± 42	125 ± 21
Boden	02-03	32,9 ± 2,8	2437 ± 110	74,9 ± 2,57	1,21	4130 ± 230	195 ± 33	101 ± 18
Boden	03-05	32,5 ± 2,8	1851 ± 80	57,4 ± 1,98	1,36	3620 ± 220	158 ± 27	81,3 ± 14
Boden	05-10	21,3 ± 1,9	824 ± 36	25,3 ± 0,87	1,34	2470 ± 190	94,6 ± 16	48,1 ± 8,4
Boden	10-15	— ± —	189 ± 8,2	5,75 ± 0,20	1,32	634 ± 41	25,7 ± 4,4	12,8 ± 2,1
Boden	15-20	0,8 ± 0,4	58,2 ± 2,5	1,90 ± 0,07	1,43	614 ± 41	10,1 ± 1,7	4,18 ± 0,72
Boden	20-25	1,8 ± 0,4	23,9 ± 1,0	0,82 ± 0,03	1,49	542 ± 41	4,89 ± 0,84	1,29 ± 0,22
Boden	25-40	1,2 ± 0,4	9,3 ± 0,4	0,24 ± —	1,53	366 ± 37	2,66 ± 0,46	— ± —

^a Boden / Vegetations-Schicht^b Bewuchsdichte (kg m⁻²)Tab. 29 : ^{90}Sr - und ^{137}Cs -Aktivität des Profils Kupetsch Tschernjanka 2 (Korosten, Ukraine)

Probeart	Tiefe (cm)	spezifische Aktivität des Bodens (11.06.95)			Dichte (g cm ⁻³)	Depositionsdichte (26.04.86)		
		Strontium-90 (Bq kg ⁻¹)	Cäsium-137 (Bq kg ⁻¹)	Cäsium-134 (Bq kg ⁻¹)		Strontium-90 (Bq m ⁻²)	Cäsium-137 (kBq m ⁻²)	Cäsium-134 (kBq m ⁻²)
B./V. ^a	—	15,9 ± 1,3	— ± —	— ± —	4,81 ^b	3970 ± 160	— ± —	— ± —
Boden	00-01	14,2 ± 2,2	1358 ± 598	40,6 ± 1,40	1,15	3870 ± 161	277 ± 47	136 ± 24
Boden	01-02	14,8 ± 2,2	1268 ± 559	37,2 ± 1,29	1,19	3660 ± 159	243 ± 41	119 ± 21
Boden	02-03	14,1 ± 2,1	1234 ± 53	37,9 ± 1,30	1,25	3430 ± 158	224 ± 38	110 ± 19
Boden	03-05	13,1 ± 2,0	1203 ± 52	36,1 ± 1,23	1,30	3210 ± 156	205 ± 35	99,5 ± 18
Boden	05-10	13,1 ± 2,0	1039 ± 45	30,6 ± 1,05	1,35	2770 ± 150	166 ± 28	79,8 ± 14
Boden	10-15	9,4 ± 1,4	563 ± 24	17,4 ± 0,60	1,38	1630 ± 97	78,4 ± 13	36,1 ± 6,4
Boden	15-20	4,1 ± 0,8	251 ± 11	7,2 ± 0,25	1,42	796 ± 45	29,8 ± 5,0	10,7 ± 1,9
Boden	20-25	1,2 ± 0,6	34,9 ± 1,5	— ± —	1,46	419 ± 32	75,8 ± 1,3	— ± —
Boden	25-40	1,0 ± 0,5	15,3 ± 0,66	— ± —	1,52	303 ± 30	43,7 ± 0,7	— ± —

^a Boden / Vegetations-Schicht^b Bewuchsdichte (kg m⁻²)

9.6 Energiekalibration und Quenchkurven

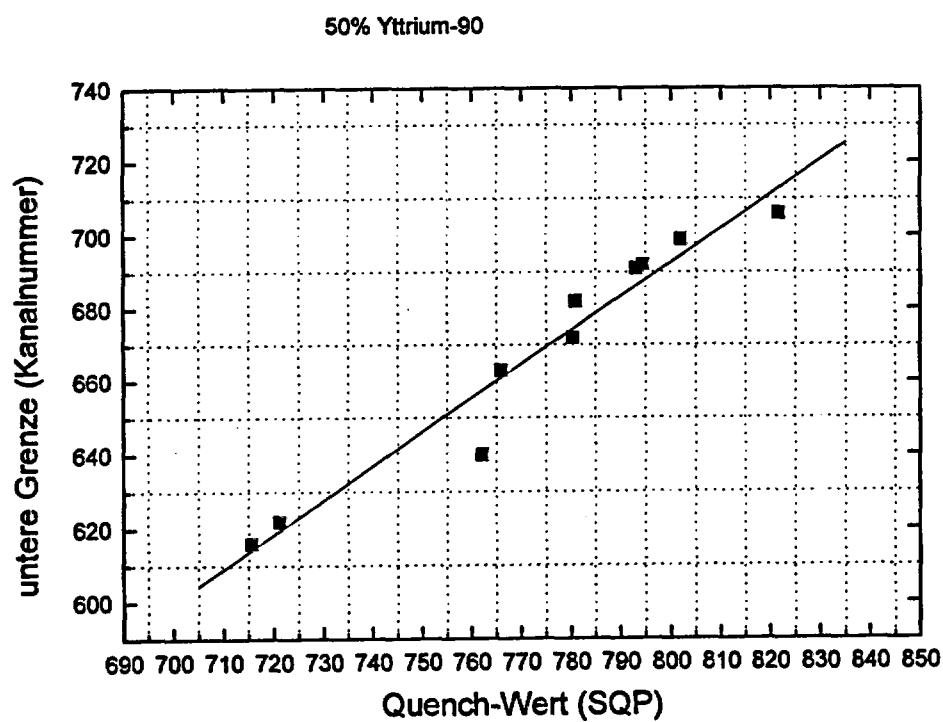


Abb. 28 : Untere Grenze des hochenergetischen Fensters zur Erfassung von 50 % der ^{90}Y -Emissionen in Abhängigkeit vom Quench-Wert (Standard Quench Parameter).

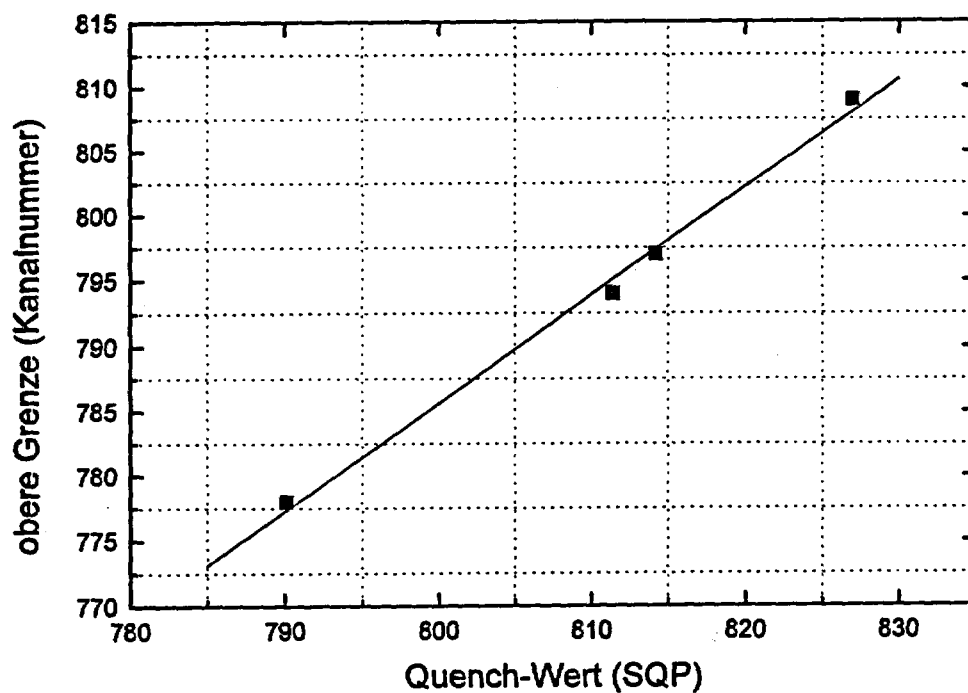


Abb. 29 : Obere Grenze des niederenergetischen Fensters zur Erfassung von 89 % der ^{89}Sr -Emissionen in Abhängigkeit vom Quench-Wert (Standard Quench Parameter).

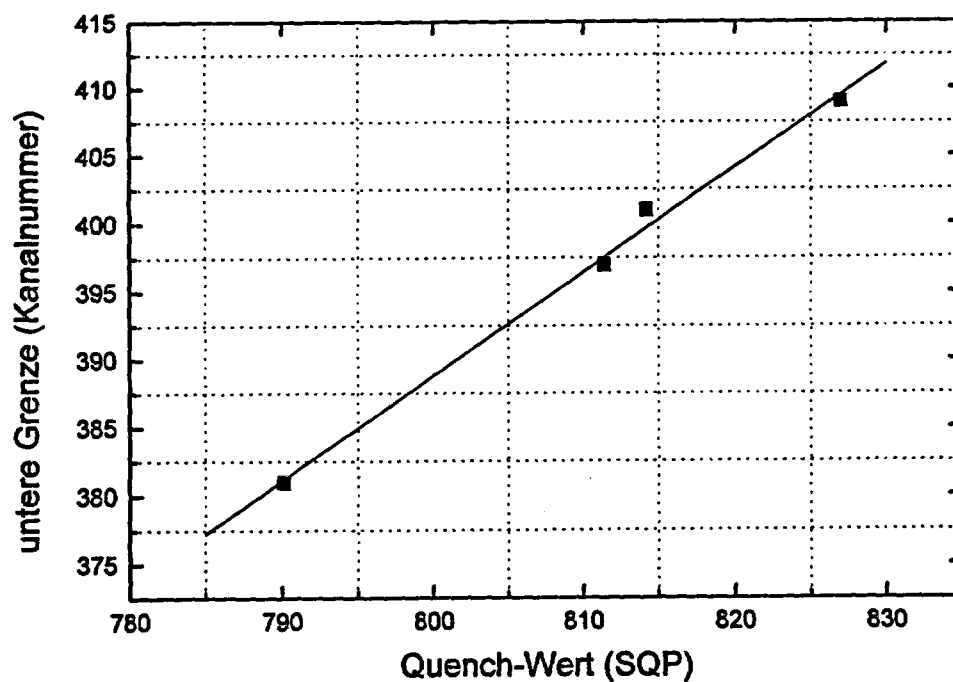


Abb. 30 : Untere Grenze des niederenergetischen Fensters zur Erfassung von 89 % der ^{89}Sr -Emissionen in Abhängigkeit vom Quench-Wert (Standard Quench Parameter).

9.7 Flüssigszintillations-Spektren

Im Folgenden sind die Flüssigszintillations-Spektren der verwendeten Radioisotope (etwa 100 mBq) mit der verwendeten Fenstersetzung für die gleichzeitige Detektion von Strontium-89 und Strontium-90 aufgeführt. Das Verhältnis der wässrigen Phase zum organischen Szintillator betrug 5 ml : 15 ml. Der Quenchwert (Standard Quench Parameter) schwankte zwischen 820 und 825. Die Fläche unter der Kurve ist soweit nicht anders angegeben auf eins normiert.

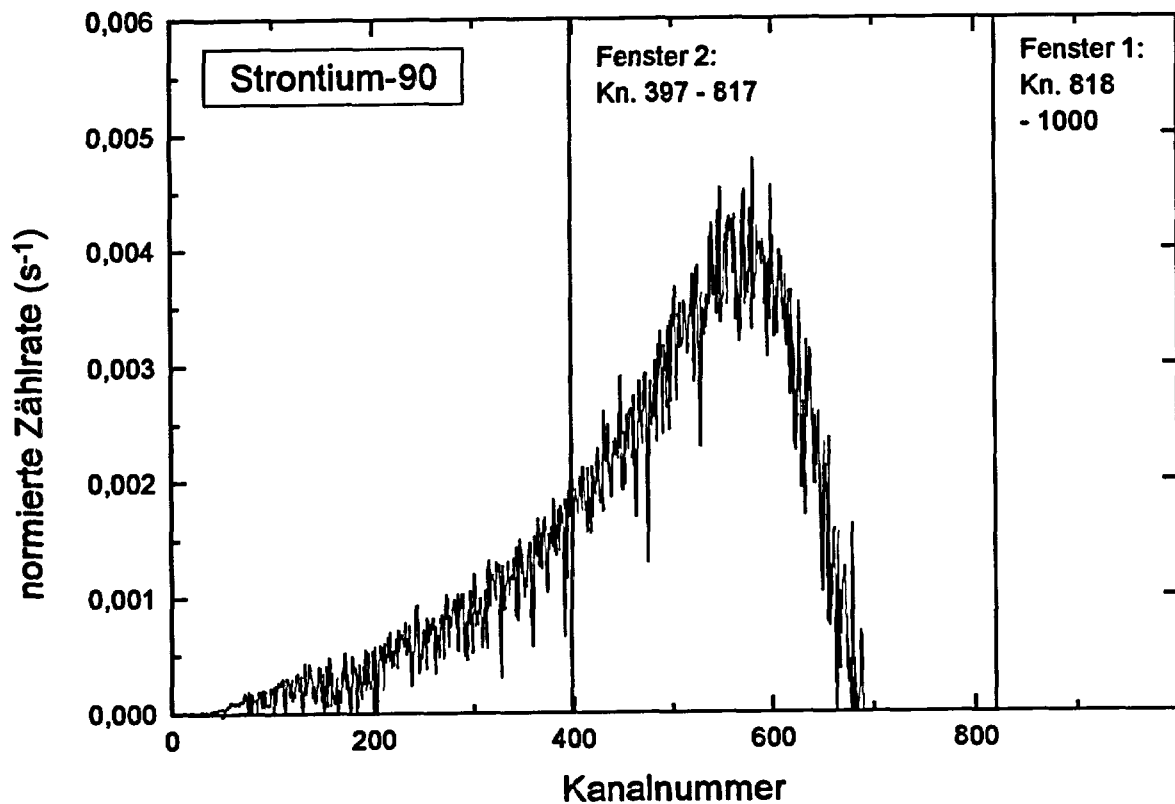


Abb. 31 : Flüssigszintillations-Spektrum des Strontium-90.

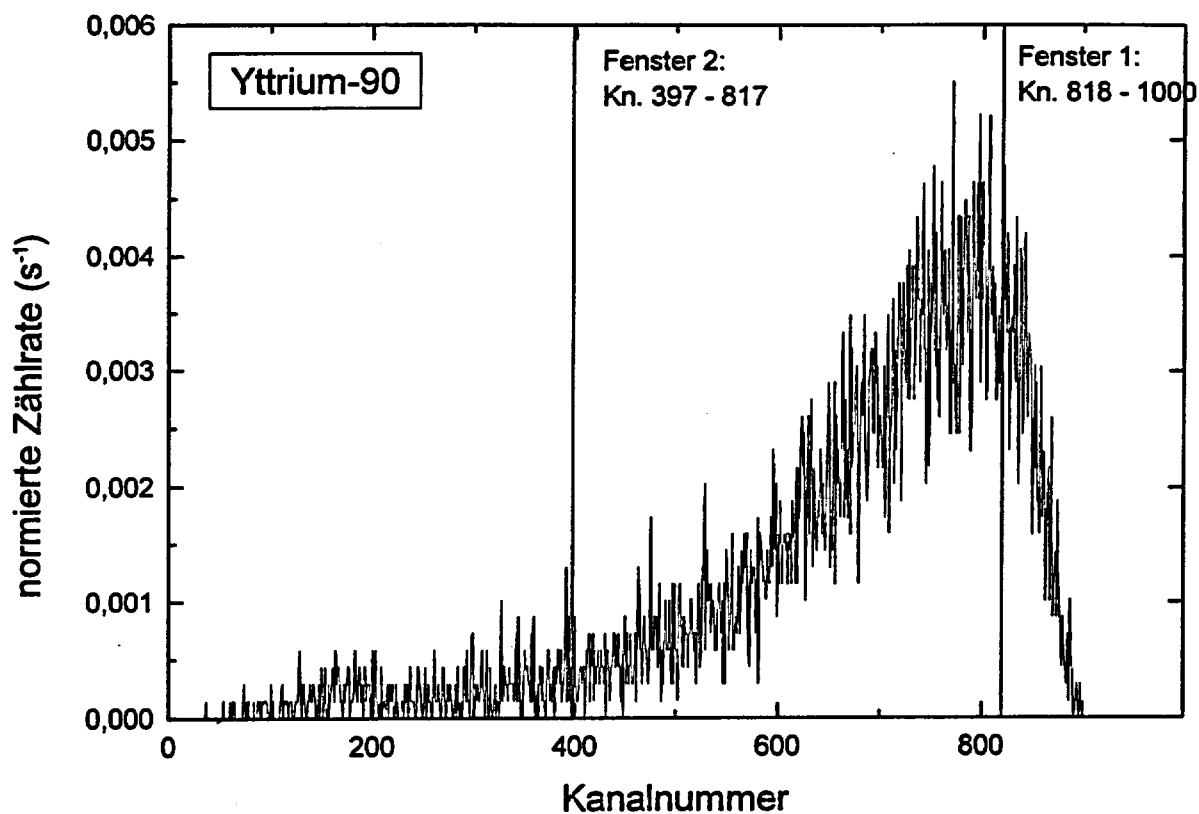


Abb. 32 : Flüssigszintillations-Spektrum des Yttrium-90.

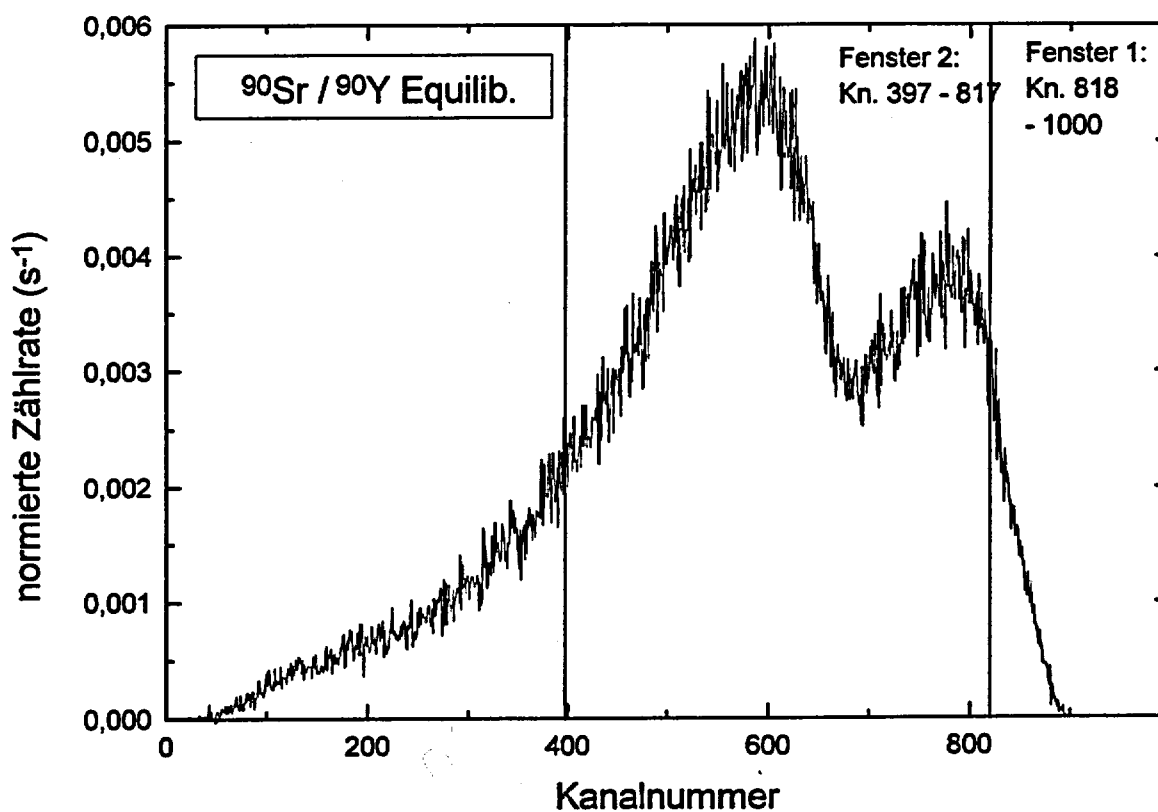


Abb. 33 : Auf zwei normiertes Flüssigszintillations-Spektrum des Strontium-90 und Yttrium-90 im radiochemischen Gleichgewicht.

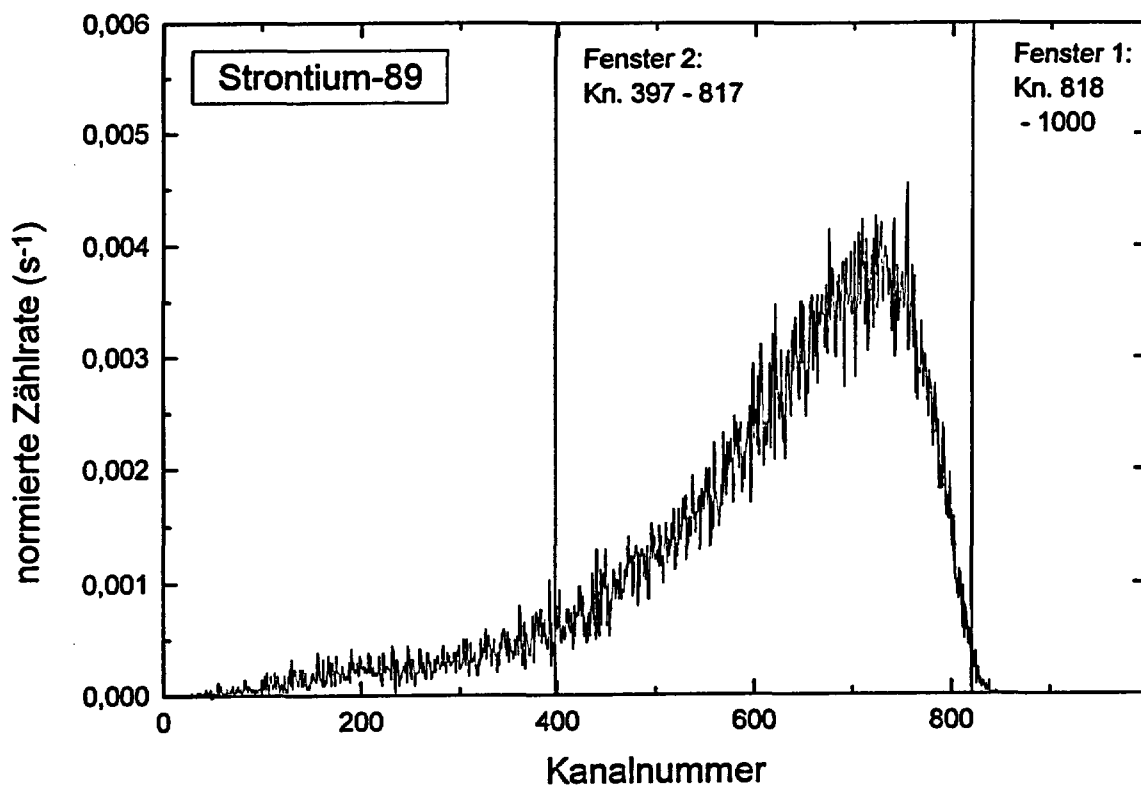


Abb. 34 : Flüssigszintillations-Spektrum des Strontium-89.

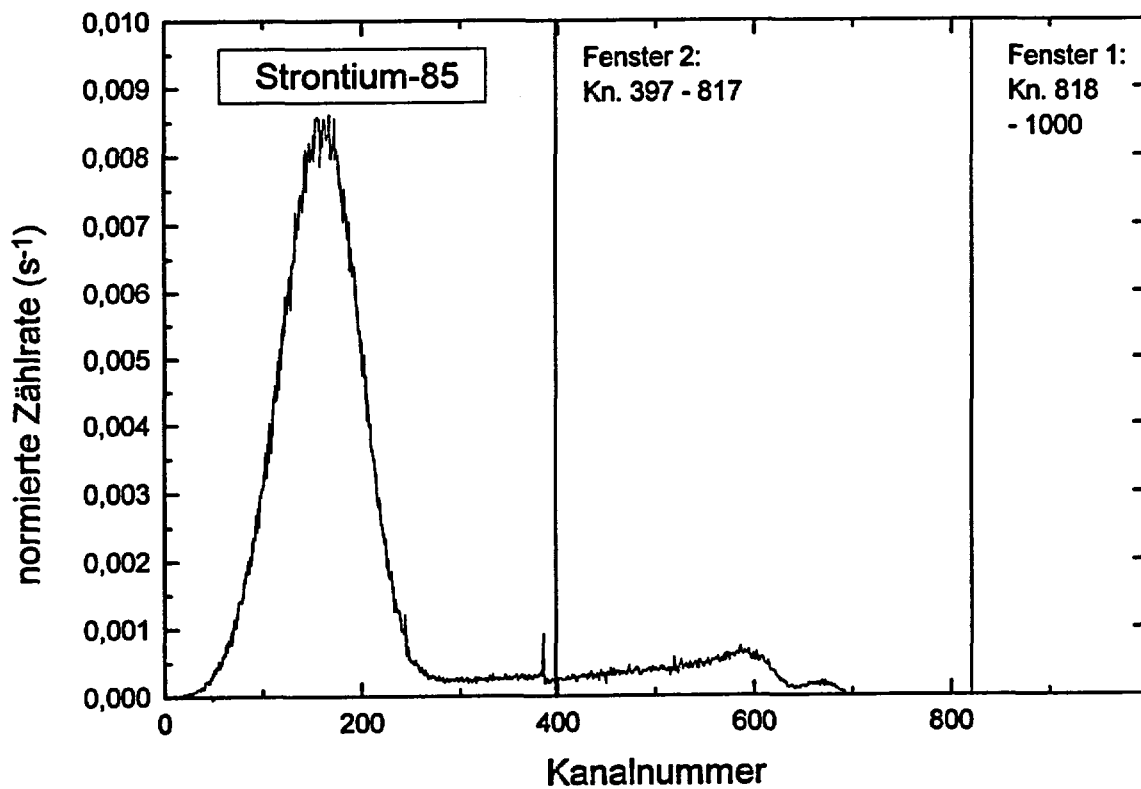


Abb. 35 : Flüssigszintillations-Spektrum des Strontium-85: Im niederenergetischen Teil des Spektrums mit einem Maximum etwa bei Kanal 170 ist ein deutlicher Röntgen-Peak ausgebildet. Das schmale scharfe Signal (Kanal 385) entsteht durch eine Fehlzurordnung der Meßelektronik. Das Spektrum wird zum hochenergetischen hin durch den Compton und Photo-Peak abgeschlossen.

Lebenslauf

Persönliche Daten :

Name: Filß
Vorname: Martin Friedrich
Anschrift: Liepmannstraße 1
30 451 Hannover
geboren am: 10. September 1968
Geburtsort: Braunschweig
Familienstand: ledig

Schul Ausbildung:

09/74 - 07/78 Gemeinschaftsgrundschule Jülich Nord
08/78 - 07/85 Gymnasium Zitadelle Jülich
08/85 - 07/86 Austauschjahr in Conneaut, Ohio (USA) mit dem Besuch der
Conneaut High School und Erlangen des High School Diploma
08/86 - 05/88 Besuch des Gymnasiums Zitadelle Jülich mit Abiturabschluß

Wehrdienst:

07/88 - 10/89 Luftwaffensicherung beim Wachbataillon des Bundesministeriums
der Verteidigung, Siegburg und dem 2. Flugkörpergeschwader,
Geilenkirchen

Studium:

10/89 Immatrikulation an der Universität Hannover
Studium der Chemie mit Abschluß Diplom
10/92 Vordiplom und Beginn des Hauptstudiums mit dem zusätzlichen
Wahlfach Strahlenschutzphysik
05/95 Abschluß der Diplomarbeit im Institut für Anorganische Chemie
am Zentrum für Strahlenschutz und Radioökologie
06/96 Beginn der Dissertation im Institut für Anorganische Chemie am
Zentrum für Strahlenschutz und Radioökologie
03/96 - 04/97 Radioökologische und kerntechnische Exkursionen nach
St. Petersburg und in die Ukraine, sowie zu deutschen
kerntechnischen Anlagen

Hiermit versichere ich, an Eides Statt, daß ich die vorliegende Arbeit selbständig verfaßt und die verwendeten Hilfsmittel angegeben habe.

Hannover, im Januar 1998