Leibniz Universität Hannover



Aufnahme des bioverfügbaren Sr-90 Inventars in Pflanzen Uptake of bioavailable Sr-90 into plants

Malte Böhsl 3056090 Arbeit zur Erlangung des M.Sc. der Physik Erstprüfer Prof. Dr. Clemens Walther Zweitprüfer Prof. Dr. Georg Steinhauser Betreut durch Wolfgang Schulz



22. September 2020

Danksagung

Ich möchte mich an dieser Stelle herzlich bei Prof. Dr. Clemens Walther für die Gelegenheit bedanken, diese Arbeit am Institut für Radioökologie und Strahlenschutz ablegen zu können.

Des Weiteren bedanke ich mich bei Prof. Dr. Georg Steinhauser für die Zweitprüferschaft meiner Abschlussarbeit.

Wolfgang Schulz gilt für die kompetente und engagierte Betreuung über meine Zeit am Institut Anerkennung. Lieben Dank auch an Dr. Stefan Bister und Sebastian Büchner für die tatkräftige Unterstützung. Markus Mandel und Simon Pottgießer danke ich für ihre Hinweise bei der Probenaufarbeitung.

Vielen Dank auch an Simone und Gregor Pfau für ihre investierte Zeit zum Korrekturlesen meiner Arbeit.

Darüber hinaus danke ich allen Mitarbeitern des IRS der Leibniz Universität Hannover für die wundervolle Arbeitsumgebung und freundliche Aufnahme.

Abschließend bedanke ich mich bei meinen Freunden für die emotionale Unterstützung.

Selbstständigkeitserklärung

Hiermit versichere ich, Malte Böhsl, dass die vorliegende Arbeit mit dem Titel "Aufnahme des bioverfügbaren Sr-90 Inventars in Pflanzen", selbstständig und nur unter Verwendung der angegebenen Quellen und Hilfsmittel angefertigt, alle Stellen der Arbeit, welche wörtlich oder sinngemäß aus anderen Quellen übernommen wurden, als solche kenntlich gemacht und diese Arbeit in gleicher oder ähnlicher Form noch keiner Prüfungsbehörde vorgelegt habe.

Hannover, 22. September 2020,

Malte Böhsl

Zusammenfassung

Ziel dieser Arbeit war die Untersuchung des Einflusses der Pilzkulturen Leucoagaricus naucinus (LN) und Schizophyllum commune (SC) auf den Sr-90 Transfer aus dem Boden eines Testfeldes in der unmittelbaren Umgebung des Kernkraftwerks Tschernobyl in Kartoffelknollen und Winterroggengrün. In Folge des Reaktorunglücks 1986 finden sich in der unmittelbaren Umgebung noch heute dosisrelevante Sr-90 Aktivitätskonzentrationen. Eine Inkorporation dieses Radionuklides resultiert in Gesundheitsrisiken, welche durch genaue Kenntnisse des Transferfaktors durch Berechnung der Folgedosis präziser abgeschätzt werden können. Die verwendeten Pilzkulturen wurden dahingehend auf einen möglichen Einfluss einer veränderten Radionuklidaufnahme in Pflanzen untersucht. Zu diesem Zweck wurden im Rahmen des Projektes BioVeStRa Boden-, sowie Pflanzenproben untersucht. Die bioverfügbare Fraktion der Bodenproben wurde mittels Extraktion nach Zeien und Brümmer abgetrennt und dort angebaute Pflanzen, geerntet 2018, wurden für diese Arbeit zur Verfügung gestellt. Im Rahmen dieser Arbeit sind die Proben für die β -spektrometrische Aktivitätsbestimmung präpariert, sowie analysiert worden. Pflanzenmaterial wurde zu diesem Zweck in einem Ofen verascht. Für die Bestimmung der Wiederfindungsrate wurde Sr-85 verwendet, dessen Verbleib in der Probe γ -spektrometrisch durch Halbleiterdetektoren bestimmt wurde.

In dieser Arbeit konnte kein signifikanter Unterschied der Pilzkulturen gegenüber der Kontrollgruppe auf die Aufnahme von Sr-90 aus der bioverfügbaren Fraktion des Projektbodens in Kartoffelknollen nachgewiesen werden. Die durchschnittliche Aktivität der untersuchten Kartoffelknollen pro Kilogramm betrug (0.57 ± 0.12) kBq kg⁻¹. Der Transferfaktor der Kartoffel aus Lehmböden lag in dieser Arbeit bei 0.119 ± 0.027 . Zwecks einer Risikoabschätzung wurde die effektive Folgedosis der Kartoffelknollen konservativ berechnet. Legt man die durchschnittlichen Verzehrgewohnheiten der allgemeinen deutschen Bevölkerung zu Grunde, ergibt sich durch die Radionuklidbelastung der Kartoffelknollen eine zusätzliche jährliche Ingestions-Folgedosis von (0.94 ± 0.20) mSv.

Auch im Fall des untersuchten Roggengrüns wurde kein signifikanter Unterschied der Pilzkulturen gegenüber der Kontrollgruppe beobachtet. Die Aufnahme von Sr-90 aus der bioverfügbaren Fraktion des Bodens in das Roggengrün entspricht nach den Ergebnissen dieser Arbeit dem Transferfaktor 1.4 ± 0.4 . Eine resultierende jährliche Ingestions-Folgedosis durch die Verwendung des Roggens als Futtermittel, wurde für Milch- und Fleischkonsum berechnet. Diese zusätzliche Dosis entspricht dabei im Fall der Milchprodukte (0.82 ± 0.26) mSv, sowie (0.54 ± 0.17) mSv für Fleischerzeugnisse.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde bei der Analyse der Bodenproben zudem eine Abweichung der Aktivitätskonzentrationen des Projektbodens des Roggens gegenüber dem der Kartoffeln erkannt.

Abstract

The aim of this thesis was to investigate the influence of the fungal cultures *Leucoagaricus* naucinus (LN) and Schizophyllum commune (SC) on Sr-90 transfer into plants. For that purpose a test field in the immediate vicinity of the Chernobyl nuclear power plant (NPP) was used to plant potato tubers and winter rye. As a consequence of the reactor accident in 1986, dose-relevant activity concentrations of Sr-90 are still to be found in the immediate vicinity of the NPP. Incorporation of these radionuclides leads to a dose, for the precise estimation of which, an exact knowledge of the transfer factor is neccecary. The fungal cultures used were examined for a possible influence in respect to radionuclide uptake in plants. For this purpose, the plants were grown and harvested within the project *BioVeStRa* in 2018 and the bioavailable fraction of the soil samples were separated by sequential chemical extraction according to Zeien and Brümmer. In the course of this thesis, the samples were prepared for the β -spectrometic determination of the activity and analyzed. Plant material was incinerated in a furnace for this purpose. For the determination of the recovery rate, Sr-85 was added prior to chemical separation and quantified in the final sample using high-purity germanium γ -spectrometry.

No significant difference of the fungal cultures compared to the control group for the uptake of Sr-90 from the bioavailable fraction of the project soil into potato tubers was found. The average activity of examined potato tubers per kilogram was measured as $(0.57 \pm 0.12) \text{ kBq kg}^{-1}$. The transfer factor for potatoes on loam soil was found to be 0.119 ± 0.027 in this thesis. For the purpose of a risk assassment, the effective follow-up dose from potato tubers was calculated conservatively. If one takes the average consumption habits of the general German population as a basis, the radionuclide content of the potato tubers results in an additional annual ingestion dose of $(0.94 \pm 0.20) \text{ mSv}$.

No significant difference was observed between the fungal cultures and the control group for the examined rye green. According to this works results, the uptake of Sr-90 from the bioavailable fraction into the rye green corresponds to a transfer factor of 1.4 ± 0.4 . The consequential annual effective follow-up dose from rye consumption, was calculated using it as food for livestock. Milk and meat consumption would lead to an additional annual ingestion dose of (0.82 ± 0.26) mSv and (0.54 ± 0.17) mSv respectively.

Within the scope of this thesis, the analysis of soil samples has further revealed a deviation of activity concentrations between soil samples cultivated with winter rye plants and soil samples cultivated with potatoes.

Inhaltsverzeichnis

1	Motivation
T	wouvation

2	Theorie 2.1 Migrationsverhalten von Strontium 2.2 Physikalische Eigenschaften von Strontium 90 2.3 Strontium 85 2.4 Transferfaktoren 2.4.1 Bioverfügbarkeit 2.5 Dosis, Dosiskoeffizienten 2.6 Flüssigszintillationszähler - Liquid Scintillation Counting (LSC) 2.6.1 Funktionsweise der LSC 2.6.2 Quench und andere Störeffekte	11 11 12 13 13 15 15 16 17 18 19
3	Material und Methoden 3.1 Entnahme und Vorbereitung der Proben 3.1.1 Herkunft der Proben 3.1.2 Präparation der Bodenproben 3.1.3 Präparation der Pflanzenproben: Kartoffel 3.1.4 Präparation der Pflanzenproben: Roggen 3.1.5 Chemische Separation von Sr-90 3.1.6 Überführen der Proben in geeignete Messpräparate für die LSC 3.2 Wallac 1220 Quantulus 3.3 Kalibration des Quantulus mit einem Sr-90 Standard 3.4 Quenchkorrektur	22 22 24 25 26 28 29 30 30 32 33
4	 Ergebnisse und Diskussion 4.1 Berechnung der Unsicherheiten. 4.2 Nachweis- und Erkennungsgrenze 4.3 Analyse des Strontiumgehalts über Yttrium 90 in Bodenproben 4.4 Analyse des Strontiumgehalts über Yttrium 90 in Kartoffeln und Roggen 4.5 Ermittelte Transferfaktoren 4.6 Abschätzung der effektiven Folgedosis, sowie der Organfolgedosis durch Ingestion 	 35 39 41 44 46 51
5	Fazit	54
6	Ausblick	56
7	Anhang7.1Einseitiger Hypothesentest	58 58 59

1 Motivation

Die technische Entwicklung der Menschheit fand Anfang des 20. Jahrhunderts eine rasante Beschleunigung. Die Kernspaltung wurde im Jahr 1938 von Otto Hahn und Kollegen entdeckt [1], wenig mehr als einhundert Jahre nach dem Bau des ersten Generators im Jahr 1832 von Pixii [2]. Die Kernenergie wird seit dem Anschluss an das Stromnetz in Calder Hall, England, 1956 kommerziell genutzt. Im Jahr 2019 befanden sich weltweit 450 Kernkraftwerke (KKW) am Netz, weitere sind im Bau.

In dieser relativ kurzen Entstehungsgeschichte ereigneten sich eine Reihe schwerer Unfälle und Katastrophen: Bereits ein Jahr nach Inbetriebnahme des ersten kommerziellen KKW, kam es in der militärischen Anlage, nahe der Stadt Kyschtym in der Sowjetunion, zu einer chemischen Explosion die 400 PBq an radioaktiven Stoffen über 20 000 km² freisetzte [3]. Im Jahr 2011 sorgten Erdbeben und ein anschließender Tsunami für den Unfall des Fukushima Daiichi Kernkraftwerks [4]. Im April 1986 kam es, nahe der Stadt Tschernobyl (Ukraine) im Rahmen eines Tests zur Bestimmung der Restenergieerzeugung der Turbinen in einem simulierten Stromausfall, zur verheerendsten Katastrophe in der Geschichte der Kernenergie. Die Kontrollmannschaft verlor die Kontrolle und die Explosion des Reaktorblocks 4 des Kernkraftwerks kontaminierte weite Landstriche auf der Nordhalbkugel.

Die Explosion schleuderte große Teile des Gebäudes in die Luft und das als Moderator verwendete Graphit des Reaktors begann zu brennen. Eine zweite Explosion, Sekunden später, setzte Block 4 in Brand. In den Folgetagen nach dem Unfall wurden insgesamt 5000 Tonnen Sand und Lehm über den Luftweg auf die Brandherde geworfen. Das akute Emissionsgeschehen dauerte noch die kommenden zehn Tage, bis Stickstoff-Löschmittel den Brand unter Kontrolle brachten.

Um eine Fortsetzung der Emissionen in die Umgebung zu verhindern, wurde im Herbst 1986 ein Betonmantel errichtet, der erste Sarkophag. Durch vollständiges Verschließen vor der Umgebung konnten die Gefahrenstoffe innerhalb des Schutzgebäudes eingeschlossen werden. Der erste Sarkophag zeigte jedoch wesentlich früher Alterserscheinungen als erhofft und ein zweiter, größerer Schutzmantel wurde 2015 in unmittelbarer Nähe gebaut und anschließend über den ersten Sarkophag geschoben (siehe Abb. 1.1).

Besonderes Interesse der durch Tschernobyl freigesetzten Nuklide gilt in dieser Arbeit Sr-90, welches laut UNSCEAR [6] zu über 90 % in Brennstoffpartikeln gebunden in die nähere Umgebung des Kernkraftwerks niederging, siehe Abbildung 1.2. Insgesamt wird die freigesetzte Aktivität von Sr-90 auf etwa 10 PBq geschätzt (vgl. [6, Table A1]), ein Wert der ungefähr 1.5 % des damaligen Reaktorinventars entspricht.

Eine genaue Beschreibung der kontaminierten Gebiete und weiterer Aktivitäten, sowie ein detaillierter Ablauf des Unglücks findet sich in etlichen Fachliteraturen ([7], [6], [8], [4]).

Diese Arbeit wurde im Rahmen des Projektes Biological methods for precautionary radiation protection against radionuclide contamination, kurz BioVeStRa angefertigt. Ziel des Projektes war eine Untersuchung des Einflusses der Pilzkzulturen Leucoagaricus naucinus (LN) und Schizophyllum commune (SC) auf die Radionuklidaufnahme von Pflanzen [9]. Als Teil des Projektes wurden dafür Winterroggen und Kartoffeln 5 km



Abb. 1.1: Zweiter Sarkophag über den beschädigten Reaktorblöcken von Tschernobyl. Das Bild wurde 2017 aufgenommen [5].



Abb. 1.2: Sr-90 Kontamination in der N\u00e4he von Tschernobyl. Ausschnitt aus Abbildung VIII des UNSCEAR Berichts von 2000 [7, Figure VIII]. Der Kreis stellt dabei einen 30 km Radius dar.

süd-südwestlich des Reaktors, in der Chernobyl-Exclusion-Zone (CEZ) angebaut.

Bisherige Ergebnisse der untersuchten Proben zeigten weder für das Cs-137 und das Am-241 in Feldversuchen, noch für das Sr-85 in Laborversuchen einen erkennbaren Einfluss der Pilze in Bezug auf Mobilität im Boden oder Transfer in die Pflanzenproben [9].

Im Rahmen dieser Arbeit wird der Transfer von Sr-90 vom Boden in die Pflanze im Hinblick auf den Einfluss der Bodenbehandlung durch die Pilzkulturen LN und SC und schließlich die resultierende Veränderung einer Dosis im Falle einer Ingestion der kontaminierten Pflanzen untersucht.

Eine Gegenüberstellung der Dosiskoeffizienten von Sr-90 und Cs-137 zeigt, dass das in dieser Arbeit untersuchte Nuklid im näheren Umfeld der Explosion, in welcher die freigesetzten Aktivitäten beider Nuklide vergleichbar hoch sind, einen maßgeblichen Anteil des Risikos beim Verzehr kontaminierter Nahrungsmittel liefert. Während Cs-137 sich primär im Dickdarm ablagert, wird Sr-90 in der Knochenoberfläche deponiert [10]. Ein Blick auf die Dosiskoeffizienten der beiden Isotope zur Umrechnung in die effektive Dosis zeigt für Sr-90 $g_{g,E} = 2.8 \cdot 10^{-8} [Sv/Bq]$ und Cs-137 $g_{g,E} = 1.4 \cdot 10^{-8} [Sv/Bq]$ (vgl. [10]).

2 Theorie

2.1 Migrationsverhalten von Strontium

Die Nutzung der Kernspaltung hat zu einer Freisetzung vieler verschiedener Spaltprodukte geführt. Mit einer Spaltausbeute von 5.7 %¹ ist Strontium-90 ein vergleichsweise häufig gebildeter Vertreter dieser Spaltprodukte. Laut UNSCEAR [7, Table 9.] wurden global etwa 622 PBq durch Kernwaffentests freigesetzt, davon aufgrund der Testorte ein wesentlicher Anteil auf der nördlichen Hemisphäre. Da die Troposphäre eine Dispersion zwischen den Halbkugeln einschränkt, kann dieser Unterschied mit entsprechenden Messgeräten bis heute beobachtet werden. Freisetzungen durch Unfälle wie Tschernobyl tragen zur Kontamination mit Sr-90 bei. Aber auch der Brennstoffkreislauf der Kernenergie setzt jährlich Strontium Isotope frei. Durch verschiedene operative Verbesserungen wurde die Freisetzung in Wiederaufbereitungsanlagen weltweit zwischen 1970 und 1997 von 230 TBq auf 40 TBq jährlich reduziert. Kleinere Mengen Sr-90 werden des Weiteren jährlich über Industrieanlagen abgegeben, beispielsweise durch das Schmelzen kontaminierter Metalle [11].

Die Deposition durch diese Quellen kann zu unterschiedlichen Risiken für Mensch und Umwelt führen, je nach regionalem Klima oder Geologie, um einige Einflussgrößen zu nennen. Daher ist Kenntnis über die Verweildauer der Nuklide in diesen Gebieten von großem Vorteil für Risikoabschätzungen. Mehrere im Buch "Radionuclides in the Environment" [11] aufgeführte Quellen, sowie [12], weisen eine hohe Mobilität von Strontium nach. Das Element ist in untersuchten Böden vor allem in den leichter zu lösenden Bodenfraktionen enthalten. Weiter gibt Atwood [11] an, dass jener Sr-Gehalt innerhalb der Bodenlösung hauptsächlich mit Molekülen kleiner Masse gebunden vorliegt. Durch die vergleichsweise hohe Mobilität ist der vertikale Transport von Strontium gegenüber anderen radioökologisch relevanten Nukliden, wie Cs-137 und Am-241 erleichtert und das Gefährdungspotential einer Kontamination des Grundwassers, sowie eine potentielle Aufnahme durch Pflanzen ist erhöht.

Durch die Aufnahme in Pflanzen kann Strontium direkt oder über Tiere indirekt in den Nahrungskreislauf des Menschen gelangen. Aufgrund der chemischen Ähnlichkeit zu Calcium führt der Verzehr von Sr-haltigen Pflanzen bei Nutztieren zu einer Akkumulation in Milch und Knochen und der Transfer auf den Menschen durch Tiere ist primär auf Milchprodukte zurückzuführen. Der Transfer von Sr in Milch ist fast unabhängig von der Quelle, hängt aber von der produzierten Milchausbeute und Laktationsphase ab [11]. Die Akkumulation von Sr in einem erwachsenen Menschen findet primär im Knochengewebe statt, wo es durch seine unmittelbare Nähe zum Knochenmarksgewebe, sowie die hochenergetische β -Stahrlung insbesondere seiner Tochter Y-90 (siehe folgendes Kapitel), potentiell schwerwiegende Schäden im menschlichen Organismus bewirken kann.

¹Für U-235, thermische/schnelle Neutronen

2.2 Physikalische Eigenschaften von Strontium 90

Daten zu den folgenden Isotopen entstammen Nucleonica [13]. Strontium-90 ist ein reiner β^- -Strahler mit einer Halbwertzeit (HWZ) von $T_{1/2} = 28.79$ a. Dies bedeutet, dass zum Zeitpunkt der Ernte, 32 Jahre nach dem Unfall bei Tschernobyl, bereits eine HWZ verstrichen ist.

Beim β -Zerfall wird ein Nukleon im Kern umgewandelt. Für den Fall des Sr-90 liegt ein β^- Zerfall vor. In diesem wird ein Neutron des Kerns in ein Proton, ein Elektron sowie ein Antineutrino umgewandelt:

$${}^{0}_{1}\mathbf{n} \rightarrow {}^{1}_{1}\mathbf{p} + \mathbf{e}^{-} + \overline{\nu}_{e} \tag{1}$$

$${}^{A}_{Z}X \rightarrow {}^{A}_{Z+1}Y + e^{-} + \overline{\nu}_{e}$$
(2)

Das Proton verbleibt nach dem Zerfall im Kern, Elektron und Antineutrino werden jedoch abgegeben. Die Energie, welche das Nukleon bei der Umwandlung freisetzt, wird über den Q-Wert beschrieben und beim Zerfall auf die beiden letztgenannten Teilchen in Gleichung 1 verteilt. Folglich entsteht über die Energie der emittierten Elektronen ein charakteristisches Spektrum mit einer zum Q-Wert des Zerfalls äquivalenten Maximalenergie, bezeichnet als β -Endpunktenergie. Die Endpunktenergie bezeichnet dabei den Fall, indem das detektierbare Elektron den maximalen Anteil der Zerfallsenergie erhalten hat.

Sr-90 hat eine Endpunktenergie von $E_{\text{max}} = 546 \text{ keV}$. Auch die Tochter, Y-90, ist ein β^- -Strahler mit einer Endpunktenergie von $E_{\text{max}} = 2280 \text{ keV}$ und HWZ $T_{1/2} = 64 \text{ h}$. Für eine Analyse des Sr-90 Gehalts im Boden sind γ -Messungen in der Praxis über einen weiten Aktivitätsbereich nahezu ausgeschlossen, da Y-90 die Zerfallskette beim stabilen Zr-90 beendet (γ Ausbeute $\approx 1.4 \times 10^{-6}$). Zusammengefasst werden kann dieser Prozess durch das Schema in Abbildung 2.1.



Abb. 2.1: Schema der Strontium 90 Zerfallskette. Unterschiede der Endpunktenergien sind angedeutet.

Bei der Untersuchung von radioaktiven Proben, spielt das Gleichgewicht (GGW) der Isotopen eine große Rolle, welches sich durch unterschiedliche HWZ von Mutter und Tochter ergibt. Dabei können sich drei mögliche Situationen einstellen:

- Transientes Gleichgewicht $T_{1/2,Mutter} > T_{1/2,Tochter}$
- Säkulares Gleichgewicht $T_{1/2,Mutter} \gg T_{1/2,Tochter}$

• Kein Gleichgewicht $T_{1/2,\text{Mutter}} \leq T_{1/2,\text{Tochter}}$

Bei einem transienten GGW ist die HWZ der Mutter nur etwas größer als die HWZ der Tochter. Ist die Tochter langlebiger als die Mutter stellt sich kein GGW zwischen beiden Aktivitäten ein. Bei der Sr-90 Zerfallskette liegt ein säkulares GGW vor. Dieses stellt sich ein, wenn die Mutter eine wesentlich längere HWZ als die Tochter aufweist.

Im Fall von Tschernobyl liegt die Kontamination über 30 Jahre zurück, daher ist für alle Umweltproben von einem säkularen GGW zwischen Y-90 und Sr-90 auszugehen. Das säkulare GGW stellt sich nach ca. 6 bis 8 vergangenen Halbwertszeiten der Tochter ein. Nach einer chemischen Separation vom Strontium wurde im Rahmen dieser Arbeit von 21 Tagen (~8 Halbwertzeiten) ausgegangen, in denen sich ein säkulares GGW mit Y-90 wieder vollständig einstellte.

2.3 Strontium 85

Für die Bestimmung der Wiederfindungsrate der Probenvorbereitung wird Sr-85 verwendet. Bei Sr-85 handelt es sich um einen electron capture Kern mit einer HWZ von 64.8 d, welcher sich in seinem Zerfallsprozess von β^- -Strahlern unterscheidet. Statt ein Neutron im Kern umzuwandeln, wandelt sich ein Proton des Kerns mit einem Hüllenelektron zusammen in ein Neutron und ein Neutrino um:

$${}^{1}_{1}\mathbf{p} + \mathbf{e}^{-} \rightarrow {}^{0}_{1}\mathbf{n} + \nu_{e} \tag{3}$$

Bei Spaltprodukten kommt electron capture aufgrund des Neutronenüberschusses der spaltbaren Ausgangsnuklide nicht vor. Dies hat den Vorteil, dass eine Sr-85 Kontamination von Umweltproben ausgeschlossen ist und sich das Nuklid damit gut als Tracer eignet. Das Strontium Isotop kann γ -spektrometrisch über seinen Full Energy-Peaks bei 514 keV bestimmt werden.

2.4 Transferfaktoren

Transferfaktoren (TF) quantifizieren die Aufnahme eines Elements aus einer Quelle in ein anderes Medium. Die Quelle des Elements ist in dieser Arbeit der kontaminierte Boden des Testfeldes, und das Zielmedium die untersuchte Pflanze. Um eine Risikoabschätzung treffen zu können wird versucht, die Formeln zur Bestimmung solcher Transferfaktoren einfach zu halten. Für den Untersuchten TF ergibt sich:

$$TF = \frac{Aktivitätskonzentration der Pflanze [Bq/kg]}{Aktivitätskonzentration des Bodens [Bq/kg]}$$
(4)

Aus der Fachliteratur sind mehrere Faktoren für einen Einfluss auf die Mobilität von Elementen bekannt, einige Beispiele sind pH-Werte, anwesende Organik und Feuchtigkeit [14]. Daher ist es für eine Vergleichbarkeit von Transferfaktoren zwingend erforderlich, die experimentellen Parameter der untersuchten Gruppen möglichst identisch zu halten. Um einen Vergleich der TF zu ermöglichen, muss aufgrund der Unterschiede in der Biologie verschiedener Pflanzenarten, mit der Unterteilung in die Arten begonnen werden.

Der Report 472 der IAEA [15] listet verschiedene Transferfaktoren für Pflanzenarten auf verschiedenen Bodentypen auf. Aufgrund der Thematik dieser Arbeit wird aus dem Report im Folgenden ein Vergleich von Getreide (Cereals) und Kartoffeln (Tubers) auf Lehm und Sandigen Böden über die Tabelle 17 des Reports aufgeführt:

Pflanze	Boden	Transferfaktor	Std.Abweichung
Getreidekorn	Lehm	0.11	2.7
	Sandig	0.14	3.0
Getreidestängel	Lehm	1.8	2.3
	Sandig	2.1	2.3
Kartoffel	Lehm	0.13	3.0
	Sandig	0.22	2.6

Tab. 2.1: Auswahl verschiedener Transferfaktoren aus der Tabelle 17, IAEA Report 742. Kartoffeln sind Teil der "Tubers" Gruppe, Roggen wird unter "Cereals" geführt [15]. Die für diese Arbeit relevanten Bodenproben des Testfeldes sind nach [16] der Lehm Gruppe zugehörig.

Tabelle 2.1 betont Unterschiede in den Transferfaktoren verschiedener Pflanzen. Selbst innerhalb derselben Pflanzengruppen ist die Aufnahme von Sr-90 in unterschiedliche Pflanzenkompartimente, wie Stängel und Körner, unterschiedlich. Die Werte der IAEA sind allerdings mit Vorsicht zu genießen. Es wurde im Report versucht, eine möglichst simple Klassifikation der Transferfaktoren zu erzielen. Aus diesem Grund sind verschiedene Pflanzen zu der Getreidegruppe zusammengefasst und ein Mittelwert über diese ist genommen worden. Diese Vereinfachung und die teils geringe Anzahl an verwertbaren Quellen führt zu den hohen Standardabweichungen der tabellarisierten Transferfaktoren.

Die Aufnahmefähigkeit von Sr-90 in Pflanzen hängt neben den zuvor genannten Faktoren zudem von der Art des Kontaktes ab. Die relevanten Pfade sind wie folgt:

- Aufnahme über die Wurzeln
- Sorption über Blatt und Stängel
- Soil Loading

Unter normalen Umständen ist die Aufnahme über die Wurzeln der dominierende Aufnahmepfad. *Soil Loading* ist die Aufnahme durch Partikel, die im Erdreich an der Pflanze anhaften [11]. Die Adsorption über Blätter ist kurz nach einer größeren Freisetzung, unter Einschränkungen durch Jahreszeiten, jedoch überwiegend. Da die untersuchten Proben der CEZ-Böden 32 Jahre vor der Ernte kontaminiert wurden, kann hier primär von einer Aufnahme durch die Wurzeln ausgegangen werden.

2.4.1 Bioverfügbarkeit

Neben dem simplen Konzept des Transferfaktors gibt es Versuche, die Übertragung auf die Pflanze besser darzustellen. Die Idee der *Bioverfügbarkeit* (siehe Gupta et. al. [17]) ist, dass nicht alle Fraktionen für die Pflanzen zur Verfügung stehen und geht davon aus, dass Strontium im Boden in verschieden starken Bindungen vorliegt, die sich zum Beispiel durch sequentielle Extraktionen, wie das Extraktionsverfahren nach Zeien und Brümmer [18] auftrennen lassen.

Ergebnisse von Mark Viebrock [19] haben gezeigt, dass (76 ± 4) % Sr-90 Aktivität aus Bodenproben des CEZ-Testfeldes bioverfügbar vorliegt (Fraktionen 1 u. 2 nach Zeien und Brümmer). Die Residualfraktion (Fraktion 7, HNO₃ + HClO₄) enthält dagegen mit (12 ± 3) %, etwa die Hälfte von Fraktion 3 bis inklusive 7 zusammengerechnet (24 ± 4) %.

Aufgrund der heterogenen, partikulären (und damit zunächst bioverfügbaren), Kontamination des Testfeldes werden Transferfaktoren in dieser Arbeit ausschließlich auf Basis des - mittels der Zeien und Brümmer Extraktion - als bioverfügbar identifizierten Bodeninventars von Sr-90 ermittelt.

2.5 Dosis, Dosiskoeffizienten

Die Dosis stellt im praktischen Strahlenschutz einen errechneten Wert dar, welcher zur Einschätzung eines Risikos durch radioaktive Stoffe und ionisierende Strahlung verwendet wird. Verschiedene Dosen werden dabei für verschiedene Zwecke herangezogen. Die Energiedosis D gibt beispielsweise die Energie an, die auf eine Masse m übertragen wird. Angegeben wird die Energiedosis in Gray $1 \text{ Gy} = 1 \text{ J kg}^{-1}$. Dies ermöglicht eine einfache Abschätzung für deterministische Schäden am Menschen anhand der Energie, die ein Zerfall eines Radionuklids abgibt. Diese deterministischen Schäden erfolgen allerdings erst ab einem Schwellenwert.

Eine weitere Folge von radioaktiven Substanzen sind stochastische Schäden, deren Auswirkungen sich oft erst Jahrzehnte nach einem Aussetzen der Dosis zeigen. Um diesen Unterschied zu verdeutlichen, wird für die Beschreibung stochastischer Schäden die sogenannte Äquivalentdosis $H_{\rm R}$ in der Einheit Sievert $1 \,\rm Sv = 1 \,\rm J \,\rm kg^{-1}$ verwendet. Bei der Äquivalentdosis wird zusätzlich zur Energie der Strahlung auch deren Strahlungsart berücksichtigt und welche schädigende Wirkung die verschiedenen Arten auf den Menschen haben. Dies spiegelt sich im Strahlungs-Wichtungsfaktor $\omega_{\rm R}$ wieder. Um unterschiedliche Krebsrisiken für verschiedene Organe abzuschätzen, wird die Äquivalentdosis mittels eines Gewebefaktors $\omega_{\rm T}$ in die Organ-Äquivalentdosis $H_{\rm R,T}$ umgerechnet. Der Gewebefaktor spiegelt dabei die relative Empfindlichkeit der Organgruppe wider. Werden alle so gewichteten Organ-Äquivalentdosen aufsummiert, ergibt sich daraus die *effektive Dosis E*. Diese wird ebenfalls in Sievert angegeben und ist dabei gemäß des LNT-Modells (linear-no-threshold) proportional zu dem zusätzlichen Risiko Krebs auszubilden. Hierbei kann von einem zusätzlichen Risiko einer Krebserkrankung von etwa 5% pro Sievert ausgegangen werden [20].

Um Risikoabschätzungen im praktischen Strahlenschutz zu vereinfachen, sind in der Literatur die so genannten *Dosiskoeffizienten* tabelliert. Diese stellen eine Abkürzung dar, eine konservative Abschätzung der deponierten effektiven Dosis, bzw Organ-Aquivalentdosis durch ein Nuklid zu berechnen. Der folgende Abschnitt orientiert sich an den Erklärungen aus Grundzüge des Strahlenschutzes von Vogt und Vahlbruch [10].

Folgedosis ist ein Begriff der für eine konservative Abschätzung eines Risikos durch eine Kontamination dient. Dazu wird ein Standardmensch nachgebildet und alle Einflüsse auf die erhaltene effektive Dosis der nächsten 50 Jahre verwendet, wenn es sich um einen Erwachsenen handelt. Für Kinder wird der Wert bis zu einem Alter von 70 Jahren hochgerechnet. Um eine effektive Folgedosis E_g , oder Folge-Organ-Äquivalentdosis $H_{g,T}$ durch Konsumieren von Sr-90 kontaminierten Pflanzen mit der Aktivität A_g zu bestimmen, wird der Ingestionspfad betrachtet. Dieser wird durch die Ingestions-Dosiskoeffizienten $g_{g,E}$ [Sv/Bq] für die Effektive- und $g_{g,T}$ [Sv/Bq] für die Folge-Organ-Äquivalentdosis [Sv] bestimmt, gemäß folgenden Ausdrücken:

$$E_g = g_{g,E} \cdot A_g \; ; \; H_{g,T} = g_{g,T} \cdot A_g \tag{5}$$

Um den Faktor A_g der zugeführten Aktivität zu bestimmen, wird folgende Abschätzung verwendet:

$$A_q = a_M \cdot \dot{M}_q \cdot t \tag{6}$$

Dabei ist a_M die spezifische Aktivität des Konsumguts. Der Faktor t entspricht der Zeit der Aufnahme und die Verbrauchsrate \dot{M}_g entspricht der Masse des Konsumguts über einen Zeitraum in kg a⁻¹. Für Strontium ergibt sich die relevante Dosis durch die Ablagerung in der Knochenoberfläche mit $g_{g,T}$. Aus Tabelle 15.84 von Vogt und Vahlbruch [10] können die gesuchten Dosiskoeffizienten für Sr-90 entnommen werden:

$$g_{q,E} = 2.4 * 10^{-8} ; g_{q,T} = 2.7 * 10^{-7}$$
 (7)

2.6 Flüssigszintillationszähler - Liquid Scintillation Counting (LSC)

Die LSC, vom Englischen Liquid Scintillation Counting, ist eine Methode zur Messung von Ionisationen in einem Cocktail, bestehend aus einer zu untersuchenden Messprobe und Szintillatormolekülen durch Photokathoden.

Ein prominentes Beispiel für Emission von Teilchen ist der β^- -Zerfall. Die vom Kern ausgesandten Elektronen besitzen ein für das Nuklid charakteristisches Energiespektrum mit einer spezifischen β -Endpunktenergie, welche zu Analysezwecken verwendet werden kann. Die LSC eignet sich besonders durch ihre Nachweisfähigkeit niederenergetischer Zerfallsprozesse.

Strontium-90 ist mit seiner 546 keV β -Endpunktenergie über dieses Nachweisverfahren quantitativ auswertbar. Da weder dieses Isotop noch seine Töchter in geringen Konzentrationen mittels γ -Spektrometrie nachgewiesen werden können, ist die LSC die wichtigste Analysemethode für eine Aktivitätsbestimmung. Im Folgenden werden die Methoden die zur Bestimmung der Zerfallsrate eines Stoffes Verwendung finden beschrieben. Herangezogen wird dabei das "LSC Handbuch" von Siegurd-Siegfried und Tiana Lalao von der deutschen Gesellschaft für Flüssigszintillationsspektrometrie e.V. aus Karlsruhe von 2008 [21]. Eine neuere englische Version von 2013, derselben Institution, zeigt für die Methodik keine essentiellen Unterschiede.

2.6.1 Funktionsweise der LSC

Organische aromatische Verbindungen werden in der LSC verwendet, um die abgegebene Energie von Radionukliden in Photonen zu konvertieren. Durch Verwendung eines geeigneten Lösemittels, kann die gesamte Masse der Probe in den Analysator gebracht werden, wodurch potentiell hohe Effizienzen erzielt werden können. Die Kombination aus Lösungsmittel und den Szintillatormolekülen wird als Szintillationscocktail, kurz Cocktail, bezeichnet.

Der Energieübertrag wird im Fall von β -Strahlern über Streuprozesse an die Szintillatormoleküle weitergegeben und von diesen durch Resonanzen der π -Elektronen an die Lösungsmittelmoleküle übertragen. Der Prozess der Energieübertragung von Szintillatorzum Lösungsmittelmolekül wird als *Migration* bezeichnet. Um die gewünschte Photonenausbeute zu erhalten, ist zudem das *Tapping* nötig. Durch dieses kann die Energie strahlungsfrei im Cocktail weitergegeben werden und schließlich ein Molekül erreichen, welches Photonen in einer, seiner molekülspezifischen Anregungsenergie entsprechenden, Wellenlänge emittieren kann. Die Abgabe dieser Energie geschieht als prompte Fluoreszenz vom angeregten in den Grundzustand.

Dieser Prozess lässt sich in vier Schritten darstellen:

1	$P^* + S$	=	$P + S^*$	Lösungsmittelanregung
2	$S^* + F_1$	=	$S + F_1^*$	Fluoranregung des primären Szintillators
3	$\mathrm{F}_1^* + \mathrm{F}_2$	=	$F_1 + F_2^*$	Fluoranregung des sekundären Szintillators
4	F_2^*	=	$F + h\nu$	Lichtemission

 Tab. 2.2: Schema der LSC-Cocktail Funktion, aus dem LSC-Handbuch. P ist das radioaktive Isotop, S ein Lösungsmittelmolekül und F die Szintillatormoleküle,
 * bezeichnet einen angeregten Zustand (angepasst aus: [21].)

Zerfällt im Cocktail ein Teilchen, so werden wie im Schema 2.2 aufgeführt, Photonen statistisch in alle Raumrichtungen emittiert. Die Anzahl der abgegebenen Photonen ist dabei proportional zur Energie des Beta-Teilchens.

Eine Photomultiplier-Tube (PMT) kann diese Photonen dann mit einer hohen Ausbeute detektieren und durch die Anzahl der Ereignisse einem Kanal zuordnen, welcher proportional zur Energie des emittierten Teilchens ist. Einzelne Photonen lösen dabei durch den äußeren Photoeffekt ein Elektron aus, sofern sie mindestens dessen Bindungsenergie aufbringen können. Durch Anoden und Dioden wird das ausgelöste Teilchen beschleunigt und löst weitere Elektronen aus. Dieser Kaskadeneffekt wird von der letzten Anode detektiert.

Um die Störsignale zu minimieren und die Ausbeute der detektierten Photonen zu erhöhen werden die Proben in einer Dunkelkammer gemessen. Reflektierende Oberflächen erhöhen die Wahrscheinlichkeit für die Quanten, in Richtung der PMT zu propagieren.

Verschiedene Schutzmaßnahmen für Untergrundreduzierungen erhöhen die Effizienz der LSC-Methode noch weiter. Eine Bleiwand um die Dunkelkammer reduziert den Einfluss kosmischer Strahlung, sowie Hintergrundstrahlung des Messraums. Um die Fluoreszenz durch Untergrundeffekte zu reduzieren, verfügen Detektoren zudem über ein Koinzidenz-System. Durch dieses werden nur solche Ereignisse gezählt, welche von zwei Photomultiplier-Tubes innerhalb einer Koinzidenzzeit detektiert werden. In einigen Detektoren wird ein weiterer PMT verwendet, um gegen statistische Koinzidenzen durch den Untergrund zu diskriminieren.

Typische Werte für die Effizienz der LSC werden im LSC-Handbuch für niederenergetische β -Strahler bei etwa 150 keV mit 90% sowie hochenergetische β -Strahler mit 95% angegeben. Als Grund dieser hohen Effizienz wird die Nähe der Probe zum Szintillatormolekül in einer homogenen und effektiven 4π -Geometrie angegeben.

2.6.2 Quench und andere Störeffekte

Der Verlust von Energie während des Detektionsprozesses wird als Quenching bezeichnet. Das Resultat dieses Verlustes ist unabhängig von der Art des Quenchings eine Verringerung der Zählrate und eine Verschiebung des Spektrums hin zu niedrigeren Kanälen. Ursprünge für dieses Phänomen werden in die folgenden Kategorien unterteilt:

- Konzentrationsquench: Wird die Konzentration zwischen gelöster Probe und Szintillator inkorrekt gewählt, kann die Energie der Zerfallsteilchen nicht vollständig über strahlungslose Übergänge auf die Szintillatormoleküle transferiert werden.
- Chemischer Quench: Chemische Substanzen in der Lösung absorbieren die Energie eines Lösungsmittelmoleküls. Dadurch wird die Energieweitergabe unterbunden und Szintillatormoleküle werden nicht angeregt. Dieser Quench ist die häufigste Störquelle in der LSC.
- Farbquench: Verunreinigungen oder Trübungen der Lösung absorbieren die vom Szintillator emittierten Photonen. Dadurch wird die Energie vor dem Erreichen des Photodetektors verringert.
- Optischer Quench: Werden Photonen durch eine Geometrie oder Oberfläche vom Erreichen der PMT abgehalten, wird dies als optischer Quench bezeichnet.

Jeder dieser Verlustprozesse kann durch Einflussnahme von außen verringert, aber nicht ausgeschlossen werden. Optischer Quench wird durch die Hersteller des LSC-Messgerätes verringert. Farb- und chemischer Quench kann durch die Präparation der Proben und des Probenvials beeinflusst und der Konzentrationsquench kann durch die Angaben des Cocktail-Herstellers reduziert werden.

Für das Bestimmen des Verlustfaktors werden verschiedene Methoden im LSC Handbuch aufgelistet, welche es ermöglichen, eine Quenchkorrektur durchzuführen.

In dieser Arbeit wird eine externe Korrekturmethode mit einem im Gerät verbauten Ra-226 Standard verwendet. Der Standard wird von außen an die Probe gebracht. Die γ -Strahlung der externen Quelle durchdringt die Gefäße und löst im Vial Elektronen von Lösungsmolekülen aus. Die entstehenden Compton-Elektronen verhalten sich analog zu den Elektronen der β^- -Zerfälle und induzieren dieselben Effekte im Szintillator. Das Compton-Spektrum der vom Ra-226 ausgelösten Elektronen steht in einer festen Relation zum ungequenchten Compton-Spektrum, welches dem Detektor als Vergleich zur Verfügung steht. Der Wert vom *Spectral Quench Parameter of the External Standard* (SQP(E)) wird vom Detektor als der Kanal angegeben, in welchem 99% der Impulse in kleineren Kanälen gemessen wurden, siehe dazu Abbildung 2.2. Für stärkeres Quenching wird der Kanal, an welchem dies erreicht, ist zu kleineren Werten verschoben, der SQP(E) sinkt. Mehr zur Verwendung im Abschnitt Quenchkorrekturkurve 3.4.



SQP(E) based on Ra-226 external standard (unquenched sample)

Abb. 2.2: Graph eines ungequenchten Spektrums des externen Ra-226 Standards und die Position den SQP(E) Wertes aus dem Handbuch des Quantulus [22].

In Abbildung 2.3 ist der Einfluss des Quenchings auf die untersuchten Proben gezeigt. Nimmt der Quench zu, werden die Peaks zu kleineren Kanälen verschoben. Das Absinken der Peakhöhe ist zuerst nur bei dem rechten Peak zu erkennen. Die gleichzeitige Verschiebung überkompensiert den Verlust der detektierten Ereignisse des linken Signals. Unterstützt wird diese These durch einen erkennbaren Anstieg der Höhe des Minimums zwischen den Peaks. Ab einem gewissen Punkt verliert diese Verschiebung allerdings ihren Einfluss auf die Peakhöhe resultierend in dem einbrechenden Signal, zu erkennen in der grünen Kurve.

2.7 Statistische Signifikanz

Um den Wahrheitsgehalt einer Annahme in der Wissenschaft zu überprüfen, werden Hypothesentests verwendet. Diese bestehen dabei aus zwei Hypothesen, der Nullhypothese H_0 , von der ausgegangen wird, sie sei korrekt und der ihr gegenüberstehenden Gegenhypothese H_1 . Bei den Ergebnissen dieser Arbeit wurde angenommen, dass das Auftreten jeder Sr-90 Konzentration innerhalb derselben Gruppe, dieselbe Wahrscheinlichkeit besaß. Dies ist für einen parametrischen Hypothesentest notwendig, um von einer Grundgesamtheit innerhalb der Gruppe ausgehen zu können. Es resultiert näherungsweise eine normalverteilte Grundgesamtheit für die Aktivitäten der Proben um den Mittelwert der jeweiligen Gruppe. Abbildung 2.4, entliehen von [23], stellt diese Verteilung mit der



Abb. 2.3: Beispiel für Quenching anhand von fünf gemessenen Standards normiert auf deren jeweilige Aktivität. Angegeben sind die SQP(E) Werte, die über eine Ra-226 Quelle extern bestimmt wurden. Der Einfluss des Quenchings nimmt mit sinkendem SQP(E) zu. Quench reduziert die Ereignisse und verschiebt die Peaks zu kleineren Kanälen. Durch die stärker werdende Überschneidung vom rechten Y-90 Peak mit dem linken Sr-90 Peaks, sinkt die Höhe des letzteren erst ab einem stärkerem Quench. Ebenfalls steigt die Höhe des Minimums zwischen den Peaks vorerst an.

Standardabweichung σ dar. Die Prozentwerte markieren dabei den relativen Anteil der Fläche unterhalb der Verteilung.

Die Normalverteilung wird unterteilt in den Ablehnungsbereich, durch welchen die Nullhypothese abgelehnt und das Konfidenzintervall, in welchem sie beibehalten wird. Letzterer liegt für beidseitige Hypothesentests symmetrisch um den Mittelwert \overline{x} , der Ablehnungsbereich am Rand der Verteilung. Getrennt werden beide durch den kritischen Wert c, welcher beidseitig berechnet wird:

$$c = \overline{x} \pm \text{SEM} \cdot k_{1-\alpha/2} \tag{8}$$

Der Standardfehler des Mittelwerts (SEM= σ/\sqrt{n}), mit n als Stichprobenumfang, gibt eine Aussage über die wahrscheinliche Abweichung des Stichprobenmittels zum Mittel der Grundgesamtheit an, wenn mehr als eine Stichprobe durchgeführt wurde. Er normiert die Standardabweichung auf den Umfang der Stichprobe. Der Wert $k_{1-\alpha/2}$ entspricht dem gewählten Quantil der Normalverteilung. Das Signifikanzniveau α gibt dabei die Wahrscheinlichkeit an, die Hypothese fälschlicherweise als inkorrekt anzusehen. Dies wird als Fehler 1. Art bezeichnet. Zugleich gibt das Signifikanzniveau, über $1 - \alpha$, als Fehler der 2. Art an, wie wahrscheinlich es ist, einen falschen Wert irrtümlicherweise als korrekt anzusehen.

In dieser Arbeit wurde ein α von $\approx 32\%$ mit einem $k_{1-\alpha/2} = 1$ verwendet. Die Größe dieses Wertes bedeutet also, eine Wahrscheinlichkeit von 32% einen Fehler 1. Art zu



Abb. 2.4: Darstellung einer Normalverteilung aus [23]. Die Flächen stellen relative Anteile der Fläche unterhalb der Normalverteilung dar, beschränkt durch ganze Vielfache der Standardabweichung σ . Die Gesamtfläche weicht durch Rundungen von 100% ab.

erhalten, oder aber eine Wahrscheinlichkeit von $1 - \alpha / = 0.7$ also 68 % einen Fehler 2. Art zu erhalten (vgl. [24]).

3 Material und Methoden

3.1 Entnahme und Vorbereitung der Proben

3.1.1 Herkunft der Proben

In dieser Arbeit wurden sowohl Boden- als auch Pflanzenproben auf ihren Sr-90 Anteil untersucht. Die Proben wurden 2018 von einem Testfeld (Abb. 3.1) des Projektes *Bio-VeStRa* in 5 km Entfernung zum Sarkophag geerntet bzw. entnommen. Abbildung 3.2a zeigt den Anbau der Kartoffeln, und 3.2b die Ernte in 2018 [9].



Abb. 3.1: Satellitenkarte vom 07.07.2020 von Google Maps [25], Markierungen zeigen ungefähre Position des Reaktors des Kernkraftwerks bei Tschernobyl und des Testfelds. Der Abstand der beiden Positionen beträgt etwa 5 km.

Ein Schema der Anbaureihen ist in Abbildung 3.3 gezeigt. In den Reihen A bis D sind je 18 Pflanzlöcher mit Kartoffeln und Winterrogen bepflanzt, auf E und F sind es 10. Anbaureihen A und B wurden mit *Schizophyllum commune* (SC), E und F mit





Leucoagaricus naucinus (LN) behandelt. Eine Kontrollgruppe (Ctrl) befindet sich auf C und D.

Es wurden insgesamt fünf individuelle Pflanzen- und entsprechende Bodenproben gesampled. Für einige der Kartoffelproben konnte zu den fünf individuellen Proben zusätzliches Material gesammelt werden, welches je Reihe in einer *Bulk*-Probe vereinigt wurde. Eine entsprechende Boden-*Bulk*-Probe liegt dazu für die Kartoffelpositionen ebenfalls vor.

Vorangegangene Forschungsberichte von Schumann [26] und Stäger [27] führen die Erklärungen zur Ernte der Proben ausführlicher aus:

Die Roggenpflanzen wurden im Anschluss an die Ernte im Mai vor Ort zunächst in Aluschalen bei 105 °C getrocknet, und anschließend im Labor in Hannover tiefgekühlt. Danach erfolgte eine Überführung in Petrischalen, welche mit Parafilm versiegelt wurden. Mit den Bodenproben wurde analog verfahren, mit dem Zusatz, dass die Proben nach der Trocknung über einem 2 mm Sieb von groben Pflanzenresten befreit wurden (vgl. [26]). Bei den Kartoffelproben verlief die Präparation ähnlich. Allerdings wurden die Pflanzen im September geerntet, geschält, im Ofen getrocknet und in kleine Stücke geschnitten. (vgl. [27]).



Abb. 3.3: Schema des Testfeldes mit Positionen der Proben. Vorlage vom Forschungsbericht von Nanne Schumann [26]. Anzahl der Proben je Reihe nur stilisiert dargestellt. Reihen A und B wurden mit Schizophyllum commune (SC) und D und E mit Leucoagaricus naucinus (LN) präpariert. Die Reihen C und D dienen als Kontrollgruppe (Ctrl). Die entnommenen Proben dieser Arbeit sind im Anhang mit entsprechender Bezeichnung gelistet.

3.1.2 Präparation der Bodenproben

Alle Bodenproben wurden im Verlauf dieser Arbeit über das Zeien-Brümmer Verfahren [18] zur schrittweisen Extraktion von Schwermetallverbindungen in Böden in verschiedene Fraktionen präpariert. Verwendet werden dabei (20.0 ± 0.5) g Bodenprobe. Aufgrund der im Abschnitt 2.4.1 erläuterten Eigenschaften wurde angenommen, dass sich das für die Pflanze verfügbare Sr in den Fraktionen 1 und 2 von Zeien und Brümmer befindet. Daher wurden im Zuge der Vorarbeiten des Projekts *BioVeStRa* diese beiden bereits abgetrennt.

Fraktion 1 wurde in 1 L Zentrifugengefäßen aus Plastik mit 500 mL 1 M Ammoniumnitratlösung und der Probenmasse für 24 h über einem Schüttler durchmischt. Anschließend wurde die Probe bei relativer Zentrifugalbeschleunigung von 570 g zentrifugiert und die Lösung danach über Filterpapier mit Rückhaltebereich 0.45 bis 0.7 µm filtriert.

In Fraktion 2 wurde der Bodensatz der ersten Fraktion analog zu dieser mittels 500 mL Ammoniumacetatlösung extrahiert. Beide Fraktionen wurden dann vermischt und zum Ausgleich kleinerer Flüssigkeitsverluste mit Ammoniumnitrat auf einen Liter aufgefüllt.

Es wurde jeweils ein Aliquot von 400 mL vom Extrakt zur weiteren Analyse entnommen. Zu dieser Lösung wurde Sr-85 als Tracer zugegeben, vgl. Tabelle 7.3 für Kartoffelböden und 7.5 für die Roggenböden im Anhang, und in einem Becherglas zur Trockene eingedampft. Über eine Heizplatte wurden die Ammoniumsalze der eingeengten Extrakte thermisch zersetzt. Dies geschah analog zu dem Verfahren, welches in der Masterarbeit von Viebrock [19] entwickelt wurde. Das Verrauchen der NH_4 -Salze verbessert dabei die Qualität der weiteren Arbeitsschritte.

Zeigte der Bodensatz eine weiße salzige Konsistenz, wurde dieser mit 8 M HNO_3 aufgenommen. Dazu wurden in 2 Schritten je 5 mL konzentrierte Salpetersäure über den Rand hinzugegeben. War der Bodensatz nicht ganz aufgenommen, wurde noch ein weiteres Mal Salpetersäure zugegeben, hat dies nicht ausgereicht, wurde erneut eingeengt.

Die Flüssigkeit wurde dann in 20 mL Vials, siehe Abb. 3.4, überführt und war bereit für die chemische Separation des Strontiums über das Austauscherharz. Das anschließende Verfahren war für Pflanzen und Böden identisch und wird in Abschnitt 3.1.5 beschrieben.



Abb. 3.4: Vollständig präparierte Proben des Kartoffelbodens in den Vials, bereit für die LSC Messung im Quantulus. Im Hintergrund ist die Vakuumbox für die chemische Separation zu erkennen.

3.1.3 Präparation der Pflanzenproben: Kartoffel

Die zu kiesartigen Pellets vorbehandelten Kartoffelproben wurden in einem Tiegel abgewogen und mit 1 bis 2 mL einer Verdünnung des Industriestandards Sr85-03 [28] gespiked. Die Aktivitäten und Wiederfindungsraten können im Anhang in der Tabelle 7.4 eingesehen werden.

Das Präparat wurde mit Aluminiumfolie abgedeckt und in einem Ofen verascht. Die Zeiten, sowie Temperaturen können der Tabelle 3.1 entnommen werden. Das Programm zur Veraschung der Proben wurde analog zum Verfahren von Frau Anica Weller [29] durchgeführt.

Da Aluminium bei 660.2 °C schmilzt, wurde die Folie bei etwa 300 °C entfernt. Die Folie, in welche zuvor ein paar Löcher gestochen wurden, diente bis zu diesem Zeitpunkt

Temperatur [°C]	600	600	900	900
Laufzeit [min]	180	180	180	180
Anmerkung	A	Н	A	Н

Tab. 3.1: Heizprogramm für die Kartoffel, A Aufheizen, H Halten.

dazu, dass die Kartoffel im Fall eines zu heftigen Veraschens nicht aus dem Probentiegel entweichen kann. Die verbleibende Asche wurde, analog zur Präparation der Bodenproben, auf einem Filterpapier aufgenommen und mittels 8 M Salpetersäure in ein 20 mL Vial überführt. Die Salpetersäure wurde zum Ausspülen in 10 Schritten je 1 mL über den Rand des Tiegels zugegeben.

3.1.4 Präparation der Pflanzenproben: Roggen

Aufgrund einer Frühernte war nur eine geringe Menge Pflanzenmaterial verfügbar, daher wurde nur das Grün des Roggens untersucht. Winterroggen und Kartoffeln gehören nicht nur verschiedenen Pflanzenordnungen an, auch beim Prozess des Veraschens zeigten sich deutliche Unterschiede, die zu berücksichtigen waren. Wie sich in einem Testlauf für den Roggen gezeigt hat, ist der Verlust, gemessen am Sr-85 Tracer, für den Winterroggen weitaus größer beim Veraschen als im Fall der Kartoffeln. Ein möglicher Grund könnten die hohen Ofentemperaturen gewesen sein, da nach dem Verfahrensschritt Überreste am Tiegelboden eingebrannt waren, welche sich durch konzentrierte Salpetersäure nicht aufnehmen ließen.

Der Standard des Tracers für die Roggenproben wurde dabei, abweichend zu den Boden- und Kartoffelproben, mit dem Institutsstandard Sr85-04 [30] angesetzt. Die Aktivitäten und Wiederfindungsraten können im Anhang in der Tabelle 7.6 eingesehen werden. Zur Optimierung der Veraschung wurden folgende Parameter variiert: Ofentemperaturen, ein zusätzlicher Mikrowellenaufschluss, sowie Nassveraschung. Die Nassveraschung verbesserte die Wiederfindung bereits von unter 50 % auf über 60 %. Die folgende Methode zeigte allerdings Wiederfindungsraten über 80 % für die gesamte Präparation und ist daher für alle Roggenproben angewandt worden.

Das Ofenprogramm der Veraschung wurde anhand der hausinternen Methoden von Herrn Simon Pottgießer und Marcus Mandel angepasst und ist in Tabelle 3.2 zusammengefasst. In Abbildung 3.5 ist beispielhaft ein Bild der Roggenasche unmittelbar nach dem Ofenaufschluss gezeigt. Die Kartoffelasche zeigte ein ähnliches Erscheinungsbild. Zudem wurde ein Mikrowellenaufschluss der Asche für eine halbe Stunde bei 160 °C in 3 M Salpetersäure durchgeführt. Die Säure wurde anschließend in einem Becherglas zur Trockene eingedampft.

Der Bodensatz der Gefäße wurde in 8 M Salpetersäure aufgenommen und über einen 0.45 bis $0.7 \,\mu\text{m}$ Filter in Vials, analog zu Boden- und Kartoffelproben, überführt.



Abb. 3.5: Roggenasche vor dem Mikrowellenaufschluss.

Temperatur [°C]	250	250	400	400	550	550
Laufzeit [min]	30	30	30	240	30	640
Anmerkung	A	Η	A	Н	A	Н

Tab. 3.2: Heizprogramm für den Roggen, A Aufheizen, H Halten. Anschließender Mikrowellenaufschluss in $3 \,\mathrm{M}$ HNO $_3$ für $30 \,\mathrm{min}$ bei $160 \,^{\circ}\mathrm{C}$.

3.1.5 Chemische Separation von Sr-90

Vor der Messung des Sr-90 in den Pflanzen- und Bodenproben mittels LSC, muss dieses von weiteren β -Strahlern separiert werden, um einen störenden Einfluss insbesondere durch Cs-137 auszuschließen. Abbildung 3.6a zeigt eine Roggenprobe, 3.6b mehrere Proben nach einem Filterschritt direkt vor der chemischen Separation.



Abb. 3.6: (a) Eine Roggenprobe 5 min nach der Filtrierung mit einem 0.7 μm Glasfaserfilter. (b) Vergleich mehrerer gefilterter Roggenproben.

Zur Separation verwendet wurde das Sr-Resin 2 mL mit Partikelgröße 50 bis $100 \,\mu\text{m}$ der Firma Triskem (Artikel Nr. SR-R10-S [31]). Zur Trennung wurde folgendes, im Haus etablierte Trennschema angewandt, welches an die Eichrom Vorschrift [32] angelehnt ist: Der Prozess der chemischen Abtrennung erfolgte in vier Schritten:

- LOAD: Das Resin wurde mit 5 mL 8 M HNO₃ konditioniert. Anschließend wurde die Probe durch die Säule geleitet. Abbildung 3.7a ist als Beispiel aufgeführt. Für die leichtere Überführung wurde eine Kanüle einer Spritze verwendet.
- RINSE 1: Das Resin wurde mit 5 mL 8 M HNO₃ gespült. Ein neues Vial diente zum Auffangen.
- RINSE 2: Das Resin wurde mit 10 mL 8 M HNO₃ gespült. Ein neues Vial wurde zum Auffangen verwendet. Dieser Schritt unterschied sich von der Vorschrift von Eichrom insofern, dass dort insgesamt drei RINSE Schritte a 5 mL angegeben werden.
- ELUTE: Abschließend wurde das im Austauscherharz fixierte Strontium mit 10 mL 0.025 M HNO₃ in ein sauberes Vial ausgewaschen. Dieses Vial darf ausschließlich am Deckel beschriftet werden. In diesem Schritt wurde die von Eichrom empfohlene Konzentration der Salpetersäure auf 0.025 M reduziert.

Ein Beispiel für die einzelnen Ergebnisse der chemischen Separation ist in Abbildung 3.7b an einer Roggenprobe abgebildet. Das ELUTE ganz rechts im Bild zeigt eine gewünschte Transparenz für die LSC. Bei größeren Verlusten der Wiederfindungsrate,



Abb. 3.7: (a) Abtrennung von Strontium über das Austauscherharz. Hier gezeigt eine gefilterte Roggenprobe (LOAD). (b) Gezeigt sind von links nach rechts: LOAD, RINSE 1, RINSE 2 und ELUTE einer Roggenprobe.

kann jeder der Schritte über diese Gefäße mit einer γ -Messung untersucht werden. Stichproben ergaben für keine der Gruppen einen nennenswerten Verlust der Sr-85 Aktivitäten in der chemischen Separation (vgl. Anhang Tab. 7.7).

Für einige der Kartoffelproben wurde eine zweite ELUTE-Probe angefertigt. Wie bei der ersten ELUTE wurden $10 \text{ mL} \ 0.025 \text{ M} \text{ HNO}_3$ über das Resin gegeben. Dies diente dem Überprüfen, ob nach dem Auswaschen noch Strontium durch das Austauscherharz zurückgehalten wurde. Die Messungen der ELUTE 2 Fraktionen ergaben jedoch, dass dies nicht der Fall war (vgl. Anhang Tab. 7.7).

3.1.6 Überführen der Proben in geeignete Messpräparate für die LSC

Um die Säurekonzentration der Elutefraktion weiter zu verringern, wurde das Volumen der Probenvials nach der Abtrennung zunächst auf 3 mL eingeengt. Verwendet wurden dazu Bechergläser mit einem 50 mL Volumen, in welche die ELUTE überführt werden. Auf einer Heizplatte, wahlweise mit einer Heizlampe, wurde das Volumen durch Evaporation bis kurz vor Trockene eingeengt und dann 1 mL H₂O hinzugefügt, um ein Austrocknen zu verhindern. Dieser Schritt wurde neun weitere Male wiederholt. Das Gefäß wurde anschließend zum Abkühlen zur Seite gestellt und mit der Füllhöhe von 1 mL in ihr Vial zurückgeführt. Das Becherglas wurde 2 mal mit 1 mL H₂O über den Rand ausgespült. Testmessungen zeigten einen vernachlässigbaren Verlust durch dieses Einengen in der Wiederfindung an.

Dieses Verfahren wurde an dem der Arbeitsgruppe Steinhauser orientiert und nur leicht abgewandelt (vgl. supporting information zu [33]). Der Unterschied bestand bei der Spülung des Becherglases, dort wurde bei Steinhauser mehrfach 0.5 mL verwendet. Durch das Erhitzen verringerte sich der Säuregehalt, wodurch die Kompatibilität mit dem Cocktail verbessert und der Quench folglich reduziert wurde. Nach diesem Prozess wurden die Proben in dem Vial mit einem γ -Detektor gemessen um die Wiederfindungsraten zu bestimmen. Drei Wochen nach der Abtrennung war genügend Zeit vergangen damit sich ein säkulares Gleichgewicht zwischen Sr-90 und der Tochter Y-90 einstellen konnte. Zu diesem Zeitpunkt wurden 17 mL Ultima Gold AB hinzugeben und die Proben zur Messung in den Probenhalter des Quantulus gestellt.

Der "Ultima Gold[™] LSC Cocktail", im Folgenden nur Cocktail, der Marke Sigma ist laut Hersteller für eine große Anzahl an wässrigen und nicht wässrigen Proben für die LSC geeignet. Besonders für Proben mit einem hohen Quenchrisiko wird dieser Cocktail beworben [34]. Der pH-Wert des Cocktails liegt bei Zimmertemperatur bei 6.3 (dem Sicherheitsdatenblatt entnommen [35]).

3.2 Wallac 1220 Quantulus

Die LSC Messungen wurden an einem 1220 QuantulusTM von der Firma PerkinElmer durchgeführt. Der Quantulus verwendet bei den Messungen einen Ra-226 Standard zur Bestimmung der SQP(E) Werte. Drei Photomultiplier-Tubes sind in dem Gerät integriert, um Koinzidenz und Anti-Koinzidenzkorrekturen auszuführen.

Für die Messungen im Quantulus wurden je Probe 3 Messungen durchgeführt. Jede dieser Messungen hatte eine Laufzeit von 6 h. Die Anzahl der Kanäle lag bei 1024. Die SQP(E)-Werte für die Quenchkorrektur wurden mit je 15 s Messungen des integrierten Standards ermittelt. Die gewählten Kanalfenster liegen bei:

Fenster 1Fenster 2Fenster 310 bis 299300 bis 719720 bis 940

Es hat sich bei dem Gerät als vorteilhaft erwiesen, in einer Messung nicht mehr als 3 Proben gleichzeitig zu messen. Der Quantulus zeigte andernfalls vermehrt Speicherfehler, wodurch einzelne Messungen wiederholt werden mussten.

3.3 Kalibration des Quantulus mit einem Sr-90 Standard

Der Quantulus sortiert vom Cocktail emittierte Photonenlawinen in Kanälen von 1 bis 1024. Zur Quantifizierung der Proben wurde eine externe Kalibrationsreihe angefertigt. Dazu wurden Strontium-90 Standards (Anhang: Referenzbrief Sr-90-9 [36]) in 3 mL 0.025 M HNO₃ und 17 mL Cocktail angesetzt.

Für eine erste Abschätzung der zu erwarteten Sr-Inventare wurden die Masterarbeit von Mark Viebrock [19], sowie die IAEA Transferfaktoren [15] zurate gezogen. Es wurden jeweils fünf Standards mit 0.1 Bq bis 0.9 Bq in 0.2er Schritten für die Pflanzenproben, sowie 5 Bq bis 45 Bq in 10er Schritten für die Bodenproben angesetzt. Wie sich später gezeigt hat, ist die Aktivität der Pflanzenproben größer als der Schätzwert.

Für die Bestimmung der Sr-Aktivität wurden nur die Ergebnisse zwischen Kanal 720 und 940 verwendet. In Abbildung 3.8a sind die gewählten Fenster Anhand der fünf Messungen zwischen 5 und 50 Bq aufgeführt. Die linke Schranke liegt im Minimum zwischen den Peaks für Strontium-90 (links im Graph) und Yttrium-90 (rechts im Graph). Für die Standards kleiner 1 Bq liegt das Minimum nahe bei 720 \pm 5, siehe Abbildung 3.8b.



Abb. 3.8: Ereignisse aufgetragen nach Aktivität der Sr-90 Standards. Legende enthält gerundete Werte. (a) Spektrum der Standards 5 bis 45 Bq. Messfenster für Sr-85, Sr-90 und Y-90 für den Vergleich eingezeichnet. Minimum von Y-90 mit Sr-90 bei Kanal 720. (b) Spektrum der Standards 0.1 bis 0.9 Bq. Minimum nahe bei Kanal 720. Messfenster der linken Abbildung auch hier eingezeichnet.

Die Begründung für die ausschließliche Verwendung dieses Fensters wird ersichtlich, wenn man es mit dem Spektrum einer Sr-85 gespiketen Probe vergleicht (Abb 3.9). Dort kann bis Kanal 300 ein deutlicher Einfluss auf die Ereignisse erkannt werden, bei Kanal 720 ist dies jedoch auszuschließen. Zudem ist in dieser beispielhaft zu erkennen, wie der Quench der Proben das Spektrum zu den kleineren Kanälen verschoben hat.

Aufgrund der unerwartet hohen Aktivität der Pflanzenproben gegenüber der ersten Abschätzung, war ebenfalls eine Kalibration zwischen 1 Bq und 5 Bq notwendig. Da die Steigungen der einzelnen Kalibrationsgeraden über dasselbe Messfenster nicht stark verschieden waren, konnte ein Fit über die CPS des Kanalfensters 720 bis 940 aller zehn Standards angefertigt und einer Linearitätsprobe nach DIN 38402 unterzogen werden (vgl. Anhang Abb. 7.2), welcher für die Auswertung sämtlicher Proben verwendet wurde.



Abb. 3.9: Beispiel für den Einfluss des Sr-85 Wiederfindungsstandards auf das Spektrum einer Bodenprobe. Es liegt bei allen Proben eine Verschiebung des Spektrums aufgrund von Quenching analog zu diesem Spektrum vor.

3.4 Quenchkorrektur

Um den Quench der Proben auszugleichen, wurden mehrere Standards aus 3 mL HNO_3 und 17 mL Ultima Gold AB mit einer bekannten Aktivität Sr-90 gespiked und der Säuregehalt unter Zugabe konzentrierter Salpetersäure variiert. Die aus diesem Verfahren resultierenden Proben unterliegen einem stärkeren chemischem Quench, der sich in den SQP(E) Werten widerspiegelt. Dieser SQP-Wert wird vom System für jede einzelne Messung bestimmt. Für eine statistische Aussagekraft wurden alle Proben jeweils drei mal gemessen.

Für die Darstellung des Verlusts der Zählrate wurden die Ereignisse normiert auf die Aktivität der Probe nach den invertierten SQP-Werten aufgetragen. In Abbildung 3.10 ist der logistische Fit über die normierten Messwerte zu erkennen. Eingezeichnet ist zudem das 95% Konfidenzintervall, berechnet mithilfe des Programms Origin [37].

Es wurde aus mehreren Gründen ein logistischer Fit gewählt: Erstens ist es sinnvoll von einem Sattelpunkt für den Schnittpunkt der Quenchkurve zwischen dem Minimum der Peaks von Sr-90 und Y-90 auszugehen. Werden die Peaks durch den Quench verschoben, während das Minimum bei Kanal 720 liegt, so ergibt sich für stärkeren Quench eine Zunahme an Ereignisverlusten. Wird der Quench allerdings schwächer, so nimmt der Ereignisgewinn zu. Zweitens liegt eine Notwendigkeit eines Wendepunktes vor, wenn das Y-90 Maximum durch eine Verschiebung den Kanal 720 schneidet. Analog kann gedanklich der Schnittpunkt mit der Flanke des Yttrium-Peaks entlang gewandert werden. Erreicht man das Maximum, wird deutlich, dass dort der Verlust von Ereignissen bei



Abb. 3.10: Quenchkorrekturkurve anhand von fünf Sr-90 Standards mit variierten Säuregehalt und einem 5 Bq Kalibrationsstandard. Die CPS stammen Analog zu der Kalibrationsgerade aus dem Messfenster 720 bis 940 und sind auf die Aktivität normiert.

einem Quench maximal ist und bei stärkerem Quench abzunehmen beginnt. Ein dritter Grund findet sich darin, dass es einen Punkt gibt, ab welchem keine Ereignisse mehr durch ansteigenden Quench verloren werden können. Dieser Punkt stellt den Maximal korrigierbaren Quench dar.

Es ist erwähnenswert, dass es zusätzlich zur Verschiebung des Spektrums zu kleineren Kanälen, auch zu einem Verlust der Zählrate kommt. Der resultierende Höhenverlust im Spektrum kann zu kleineren Verschiebungen des Wende- bzw. Sattelpunktes der Quenchkurve führen.

Die Quenchkurve liefert anhand des inversen SQP einen Faktor, über welchen die vom Quantulus ausgegebenen CPS korrigiert werden können. Eine Gauss-Fehlerfortpflanzung der Fitfunktion und der im Programm angegebenen Abweichungen liefert die Unsicherheit des Faktors für weitere Fehlerbetrachtungen.

3.5 Gammadetektoren

Eine bewährte Methode, die γ -Aktivität in Proben zu bestimmen, ist die γ -Spektrometrie mittels Halbleiterdetektor. Die Photonen lösen freie Ladungsträger aus der Sperrschicht des Halbleiters aus. Das zurückbleibende Loch bildet mit diesem freien Teilchen ein Elektron-Loch-Paar. Die angelegte Hochspannung zum Vorverstärker beschleunigt die freie Ladung und kann diese anschließend registrieren. Die Energie, welche über den Photoeffekt Ladungen auslöst, wird vom Detektor als *Full Energy Peak* (FEP) aufgenommen und ist nuklidspezifisch.

Zur Bestimmung der Wiederfindungsrate des Strontiums wurde den Proben zu Beginn der Aufarbeitung Sr-85 als *Tracer* beigegeben. Dieses zeigt über die Gamma-Emission des Tochternuklids Rb-85 einen FEP bei 514 keV. Bei Verwendung eines Detektors mit niederenergetischem Fenster (wie Detektor Nr. 5), können zusätzlich eine charakteristische Röntgenlinie bei ca. 13 keV (Rb-K_{α}), sowie ein Summationspeak bei ca. 527 keV registriert werden, welche jedoch nicht zur Auswertung herangezogen wurden. Ein Beispielspektrum eines Kalibrierstandards ist in Abbildung 3.11 zu erkennen.



Abb. 3.11: Beispiel einer Kalibrationsmessung mit einem Sr-85 Standard auf Detektor Nr.5. Ereignisse hier beispielsweise als Linie auf halb-log-Achsen dargestellt. Messzeit 115 min.

Es wurden zwei hoch-reine-Germanium Detektoren für die Messungen des *Tracers* verwendet. Der erste institutsinterne Detektor Nr.5 ist ein Canberra 131 cm planarer n-Typ Detektor mit einer relativen Effizienz von 28% bei der Co-60 1332 keV Linie und einer Auflösung von 1.9 keV. Der zweite verwendete Detektor (Nr.3) ist ein Ortec 226 cm koaxialer p-Typ. Die relative Effizienz beträgt hier 12.6% bei einer Auflösung von 1.83 keV (1333 keV).

Die Quantifizierung wurde mit einer Standardlösung (Sr-85-03 [28]) durchgeführt, die analog zu den Proben, allerdings ohne Probenmaterial, präpariert wurde. Für eine Verbesserung der Ergebnisse wurde ein Vergleich mit einer neueren Standardlösung (Sr-85-04 [30]) durchgeführt. Ergebnisse der Wiederfindungsraten sind auf den Messtag korrigiert worden.

4 Ergebnisse und Diskussion

4.1 Berechnung der Unsicherheiten.

Besonders bei Pflanzenproben sind Schwankungen in den Ergebnissen durch diverse Umwelteinflüsse, selbst zwischen den Individuen innerhalb einer Gruppe, unvermeidbar. Um eine valide Aussage über die Qualität von Ergebnissen treffen zu können, ist eine solide Abschätzung der mess- und verfahrenstechnischen Unsicherheiten notwendig. Im Folgenden wurden die verwendeten Rechenschritte zur Bestimmung der einzelnen, in der Arbeit angegebenen, Unsicherheiten dargestellt. Als optisches Hilfsmittel dient ein Flussdiagramm in Abbildung 4.1. Die enthaltenen Unsicherheiten wurden in der Grafik blau markiert. Um die größte und zweitgrößte Unsicherheit hervorzuheben, wurden diese in rot, bzw. orange dargestellt.

Grundlage der Abschätzungen bildet die gaußsche Fehlerfortpflanzung, welche für jeden Rechenschritt der Arbeit angewandt wurde, mit Ausnahme zweier Rechnungen, die später erläutert werden. Die allgemeine Form dieser Rechnung für die Unsicherheit $u(f(x_i))$ des funktionalen Zusammenhangs $f(x_i)$ entspricht:

$$u(f(x_i)) = \sqrt{\sum_{i} \left(\frac{\mathrm{d}f}{\mathrm{d}x_i} \cdot u(x_i)\right)^2} \tag{9}$$

Die Größen x_i entsprechen verschiedenen Messwerten mit einer Unsicherheit $u(x_i)$.

Pfad 1 des Flussdiagramms die Berechnung der Effizienz des γ -Detektors, besteht aus drei Schritten. Beginnend mit der Bestimmung für die Aktivität A_{Standard} des Kalibrierstandards, welche sich aus einer einfachen Multiplikation zwischen Masse m des verwendeten Industriestandards und dessen spezifischer Aktivität a wie folgt ergibt:

$$u(A_{\text{Standard}}(m,a)) = \sqrt{\left(\frac{\mathrm{d}(a\cdot m)}{\mathrm{d}a}\cdot u(a)\right)^2 + \left(\frac{\mathrm{d}(a\cdot m)}{\mathrm{d}m}\cdot u(m)\right)^2} \tag{10}$$

$$=\sqrt{(m \cdot u(a))^{2} + (a \cdot u(m))^{2}}$$
(11)

Die Unsicherheit u(a) der zerfallskorrigierten spezifischen Aktivität wurde im Vergleich mit dem LSC-Handbuch [21] auf 2 % für Standards festgelegt. Für die Massen der Tracer ergab die Analysenwaage eine Ungenauigkeit von ±0.00001 g.

Der nächste Schritt ist die Bestimmung der Zählrate r_{Det} des Kalibrierstandards, gemessen über den γ -Detektor. Diese erfolgt über eine Division der Impulse I durch die Messzeit t. Die Unsicherheiten u(I) und u(t) sind dabei über das Messprogramm ausgegeben. Um die geometrischen Ungenauigkeiten nicht zu vernachlässigen, wurde für die Unsicherheiten der γ -Zählraten mit 1.02 multipliziert.

$$u(r_{\rm Det}(I,t)) = \sqrt{\left(\frac{1}{t} \cdot u(I)\right)^2 + \left(-\frac{I}{t^2} \cdot u(t)\right)^2 \cdot 1.02}$$
(12)



36



Malte Böhsl

-
Die Effizienz des Detektors wurde aus dem Vergleich von A_{Standard} mit r_{Det} errechnet und mit dem Schema von Gleichung 12 die Unsicherheit dieses Wertes bestimmt.

Pfad 2 zur Bestimmung der Wiederfindungsrate W verlief für die Aktivität A_{Tracer} analog zu A_{Standard} mit der Besonderheit, dass die Unsicherheit für die Analysenwaage bei den Pflanzenproben nur 0.0001 g betrug. Die Zählrate $r_{\text{Det;Tracer}}$ der Probe mit dem Tracer wurde über denselben γ -Detektor gemessen, für den die Effizienz errechnet wurde. Diese Zählrate führte über die Effizienz des Detektors zur Aktivität $A_{\text{Det;Tracer}}$. Sowohl die Unsicherheit der Zählrate $u(r_{\text{Det;Tracer}})$, als auch die der gemessenen Aktivität des Tracers $u(A_{\text{Det;Tracer}})$ erfolgte über das Verwenden des Schemas aus Gleichung 12, denn:

$$r_{\text{Det:Tracer}} = \text{Counts/Messzeit}$$
 (13)

$$A_{\text{Det;Tracer}} = r_{\text{Det;Tracer}} / \text{Effizienz} \cdot 100$$
(14)

Die Wiederfindungsrate W ergab sich analog zur Effizienz über $A_{\text{Det;Tracer}}/A_{\text{Tracer}}$ und die Berechnung der Unsicherheit u(W) erfolgte daher über dasselbe Schema wie zuvor.

Bei der Bestimmung der Unsicherheit der Proben sind mehrere Schritte in Pfad 3 der Abbildung 4.1 aufgeführt. Die Zählrate $r_{LSC} = \overline{x}$ entsprach dem Mittelwert dreier Messungen (n = 3). Ihre Unsicherheit $u(r_{LSC}) = \sigma$ wurde durch die gleichverteilte allgemeine Formel der Standardabweichung berechnet:

$$\sigma = \sqrt{\frac{1}{n} \sum_{i=0}^{n} (x_i - \overline{x})^2}$$
(15)

Analog ergab sich der Spectral Quench Parameter of the External standard (SQP(E)) durch einen Mittelwert, sowie dessen Unsicherheit durch Gleichung 15. Über den SQP(E)-Wert wurde die Zählrate $r_{\rm LSC}$ mit der Quenchkorrekturkurve aus Abschnitt 3.4 korrigiert. Die resultierende Unsicherheit $u(r_{\rm Korr+Back})$ der quench-korrigierten Zählrate $r_{\rm Korr+Back}$ erfolgte durch die Fehlerfortpflanzung der allgemeinen Form einer logistischen Funkion mit den Unsicherheiten $r_{\rm LSC}$ und $r_{\rm SQP(E)}$:

$$f = A_2 + \frac{A_1 - A_2}{1 + \left(\frac{x}{x_0}\right)^p}$$
(16)

Der Wert x entspricht dabei dem Inversen des SQP(E)-Wertes, die restlichen Werte wurden mit den Konstanten über das Fitprogramm bestimmt. Die Ableitungen dieser Funktion, entsprechend aller Größen, welche in der Fehlerfortpflanzung aufsummiert wurden, werden in Tabelle 4.1 einzeln aufgeführt.

Die quench-korrigierte Zählrate $r_{\text{Korr}+\text{Back}}$ enthielt noch die Hintergrundzählrate r_{Back} , durch Subtraktion beider ergibt sich die korrigierte Zählrate r_{Korr} , sowie analog deren Unsicherheit $u(r_{\text{Korr}})$:

$$r_{\text{Korr}} = r_{\text{Korr}+\text{Back}} - r_{\text{Back}} ; \ u(r_{\text{Korr}}) = r_{\text{Korr}+\text{Back}} - r_{\text{Back}}$$
(17)

Summand	Formel	Fehlerrechnung
i = 1	$(\frac{\mathrm{df}}{\mathrm{d}x}\cdot u(x))^2$	$\left(-(A_1 - A_2) \cdot \frac{p \cdot (\frac{x}{x_0})^p}{x((\frac{x}{x_0})^{p+1})^2} \cdot u(x) \right)^2$
i = 2	$(rac{\mathrm{d}f}{\mathrm{d}x_0}\cdot u(x_0))^2$	$\left(\frac{(A_1-A_2)\cdot p\cdot (\frac{x}{x_0})^p}{((\frac{x}{x_0})^{p+1})^2\cdot x_0}\cdot u(x_0)\right)^2$
i = 3	$(\frac{\mathrm{d}f}{\mathrm{d}A_1} \cdot u(A_1))^2$	$\left(\frac{1}{\left(\frac{x}{x_0}\right)^p+1}\cdot u(A_1)\right)^2$
i = 4	$(\frac{\mathrm{d}f}{\mathrm{d}A_2} \cdot u(A_2))^2$	$\left(\left(1-\frac{1}{\left(\frac{x}{x_0}\right)^{p+1}}\right)\cdot u(A_2)\right)^2$
i = 5	$(\frac{\mathrm{d}f}{\mathrm{d}p}\cdot u(p))^2$	$\left(\frac{(A_2-A_1)\cdot(\frac{x}{x_0})^p\cdot\log(\frac{x}{x_0})}{\left((\frac{x}{x_0})^p+1\right)^2}\cdot u(p)\right)^2$

Tab. 4.1: Summanden der Fehlerfortpflanzung einer logistischen Funktion (Gl. 16).

Die Umrechnung der Zählrate r_{Korr} in die Aktivität A_{Kali} erfolgte über die Kalibrierfunktion, erläutert in Kapitel 3.3. Für diese wurde, anhand von DIN38402 [38], sowohl ein Linearitätstest durchgeführt, als auch ein Vertrauensbereich VB bestimmt. Der Vertrauensbereich vernachlässigt jedoch die Unsicherheit durch die Quenchkorrektur, daher wurde diese konservativ mit einbezogen über:

$$u(A_{\text{Kali}}) = VB + u(r_{\text{Korr}}) \tag{18}$$

Um die Verluste durch die Präparationsschritte zu korrigieren, wurde A_{Kali} durch die Wiederfindungsrate dividiert. Das Ergebnis entspricht der Aktivität der Gesamtprobe A_{Probe} . Die Fehlerfortpflanzung lieferte entsprechend der Gleichung 12, mit den Unsicherheiten $u(A_{\text{Kali}})$ und u(W), die Unsicherheit $u(A_{\text{Probe}})$.

Der vorletzte Schritt der Fehlerrechnung bestand in der Normierung der Aktivitäten auf dieselbe Masse. Dazu wurde A_{Probe} durch die jeweilige Masse m der Proben dividiert. Die Masse konnte für die Pflanzenproben auf Folgende Nachkommastelle präzise angegeben werden $u(m) = \pm 0.0001$ g. Bei den Bodenproben wurde das Volumen von 400 mL über einen Messzylinder abgefüllt, daher ergaben sich größere Schwankungen und es wurde von $u(m) = \pm 0.1$ g ausgegangen.

Zuletzt wurden die Aktivitätskonzentrationen \tilde{A} mit den Unsicherheiten $u(\tilde{A})$ auf den Referenztag des 01.04.2019 zerfallskorrigiert zur Sr-90 Aktivitätskonzentration A und der Unsicherheit der Sr-90 Aktivitätskonzentration u(A).

Verfahrensweisen für die Mittelwerte der Gruppen und TF-Fits

Zur Bestimmung der Fehlerbereiche der Gruppen wurden die arithmetischen Mittelwerte \overline{x} herangezogen. Aus diesen konnte die Standardabweichung σ berechnet werden, welche über die Anzahl der Proben pro Gruppe auf den Standardfehler des Mittelwertes (SEM)

mit $\alpha = 32\%$ normiert wurde.

$$\overline{x} = \sum_{i=0}^{n} \left(\frac{x_i}{n}\right) \tag{19}$$

$$\sigma = \sqrt{\sum_{i=0}^{n} \frac{x_i - \overline{x}}{n}}$$
(20)

$$SEM = \sigma / \sqrt{n} \tag{21}$$

Für die Berechnung der Transferfaktoren wurden Regressionen der Proben verwendet. Das Programm Origin hat dabei die zuvor in diesem Kapitel beschriebene Unsicherheit u(A) der Proben für die Regression gewichtet. Anstatt des SEMs wurde der Standardfehler des Koeffizienzen (SEK), ebenfalls mit einem $\alpha = 32\%$, verwendet.

4.2 Nachweis- und Erkennungsgrenze

Die Bestimmung der Erkennungs- sowie Nachweisgrenze erfolgt in dieser Arbeit über die DIN 11929-1 [39]. Die Erkennungsgrenze gibt nach dieser an, ob für ein ermitteltes Messergebnis ein quantifizierter physikalischer Effekt vorliegt. Die Nachweisgrenze stellt eine Aussage über die gestellten Anforderungen des Messverfahrens dar. Da die Wiederfindungsraten, sowie die Massen im Fall der Pflanzen, für jede Probe verschieden sind, wurden diese Grenzen für alle Werte individuell berechnet. Die Ergebnisse dieser Rechnung finden sich im Anhang 7.8.

Die Rechnungen setzten hier ein, nachdem die Zählrate im Quantulus bestimmt und durch die zuvor besprochene Quench-Korrekturfunktion ausgeglichen wurde.

Verwendete Kürzel sind:

- y Zählrate ohne Quench in [cps] u(y)
- t_g Messzeit der Probenmessung in [s]
- y_0 Zählrate Hintergrund in [cps]
- f Wiederfindungsfaktor [arb]
- g Steigung Kalibriergerade [arb]
- m Masse Probenmaterial in [g]
- S Signal in [cps]
- w Umrechnungsfaktor [1/g]
- y^* Erkennungsgrenze

- $\iota(y)$ Unsicherheit Zählrate ohne Quench
- *a* Verschiebung Kalibriergerade [cps]
- t_0 Messzeit Hintergrund in [s]
- u(f) Unsicherheit von f [arb]
- u(g) Standardfehler der Steigung [arb]
- u(m) = 0.1g für Boden, 0.0001 g für Pflanzen
- u(S) Unsicherheit des Signals
- u(w) Unsicherheit des Umrechnungsfaktors $y^{\#}$ Nachweisgrenze

Das Signal S ist gegeben über die Zählrate abzüglich aller Hintergrundeffekte, also Nullrate y_0 und der Verschiebung a der Kalibriergerade. Das heißt:

$$S = y - y_0 - a \tag{22}$$

Aus diesem Signal ergibt sich über die Multiplikation mit dem Umrechnungsfaktor w das Inventar x in Bq g⁻¹. In diesem Umrechnungsfaktor sind der Wiederfindungfaktor

f, die Steigung der Kalibriergerade g und die Masse der jeweiligen Probe m enthalten:

$$x = S \cdot w = S \cdot \left(\frac{f}{m \cdot g}\right) \tag{23}$$

Nun gilt für die Erkennungsgrenze y^* , dass für $x > y^*$ ein untersuchter physikalischer Effekt nachgewiesen werden kann. Diese Grenze berechnet sich hier über:

$$y^* = k \cdot w \cdot u(S) \tag{24}$$

Für den k-Faktor wird der Wert 1.65 verwendet. Anzumerken ist, dass die Unsicherheit u(S) anders berechnet wurde als in der Norm angegeben:

$$u(S)_{\text{Norm}} = \sqrt{y/t_g - y_0/t_0} \tag{25}$$

$$u(S) = \sqrt{u(r_{\text{Korr+Back}}) - y_0/t_0}$$
(26)

Statt den statistischen Fehler der Zählrate (y/t_g) durch den Ausdruck der Wurzel zu verwenden, wie es die DIN vorsieht, wurde hier der Fehler u(y) eingesetzt, welcher wie im Abschnitt 4.1 erklärt wurde, die Unsicherheit der Quench-Korrektur enthält. Dadurch werden die Abweichungen und Probleme der Aktivitätsbestimmung realitätsnäher dargestellt und ein Risiko, die statistische Belastbarkeit der Proben zu überschätzen, reduziert.

Die Nachweisgrenze wurde der DIN 11929 entsprechend über die folgende Gleichung berechnet:

$$y^{\#} = \frac{2 \cdot y^* + \frac{k^2 \cdot w}{t_g}}{1 - k^2 \cdot u(w)^2} \tag{27}$$

Wie in der DIN 11929 beschrieben, wird $y^{\#}$ mit einem Richtwert verglichen. Ist der Richtwert größer als die Nachweisgrenze, so genügt das Messverfahren den gestellten Anforderungen. Für die Umweltproben dieser Arbeit können jedoch keine Richtwerte aus der Literatur entnommen werden, daher wird der Vergleich mit dem Inventar x gezogen.

Weiter gibt die Norm an, dass für einen Richtwert kleiner der Nachweisgrenze empfohlen wird, die Messzeiten zu erhöhen, um die Grenze dadurch zu senken und so die Anforderungen anzupassen. Laut DIN 11929-1 (S.32, Abschnitt 8.4 [39]) kann jedoch das Ergebnis akzeptiert werden, "[w]enn das primäre Messergebnis [x] und die ihm zugeordnete Standardunsicherheit [u(x)] dem Messzweck genügen, [...], obwohl formal das Kriterium der Nachweisgrenze im Vergleich zum Richtwert nicht erfüllt ist." Dies ist für nur eine der Proben nötig, für welche der Messwert (0.57 ± 0.19) Bq g⁻¹ mit einer Nachweisgrenze von 0.58 Bq g⁻¹ im Rahmen seiner Unsicherheit ausreichend genau ist, um das Ergebnis zu akzeptieren. Für die Erkennungsgrenze gilt, dass keines der Inventare x kleiner ist als y^* , damit kann ein quantifizierter physikalischer Effekt nachgewiesen werden (vgl.7.8).

4.3 Analyse des Strontiumgehalts über Yttrium 90 in Bodenproben

Eine Variation der Aktivitätskonzentration für eine der Gruppen würde einen Einfluss auf den Transferfaktor ausüben, daher wurde an dieser Stelle betrachtet, ob eine Pilzkultur einen signifikanten Unterschied in der bioverfügbaren Sr-90 Aktivität zur Kontrollgruppe ausübt. Die Bodenproben wurden unterteilt in die Pilzkulturen und die Kontrollgruppen und in den Abbildungen 4.2a und 4.2b graphisch über ihre Mittelwerte dargestellt.

Die erste der beiden Abbildungen führt die bioverfügbare Sr-90 Aktivität in Böden der Kartoffelpflanzlöcher auf. Es stellte sich die Frage, ob die Aktivitätskonzentration der LN kleiner, oder die SC Gruppe größer als die der Kontrollgruppe ist. Im Fall der LN-Gruppe wäre dies der Fall, wenn folgende Beziehung der Mittelwerte \overline{x} der Gruppen korrekt ist:

$$\overline{x}_{\rm LN} + {\rm SEM}_{\rm LN} < \overline{x}_{\rm Ctrl} - {\rm SEM}_{\rm Ctrl} \tag{28}$$

Dies war jedoch nicht der Fall, da mit der Legende von Abb. 4.2a:

$$3.9 \operatorname{Bq} \mathrm{g}^{-1} + 0.3 \operatorname{Bq} \mathrm{g}^{-1} = 4.2 \operatorname{Bq} \mathrm{g}^{-1} \not< 4.08 \operatorname{Bq} \mathrm{g}^{-1} = 4.33 \operatorname{Bq} \mathrm{g}^{-1} - 0.25 \operatorname{Bq} \mathrm{g}^{-1} \quad (29)$$

Dies konnte analog für die SC-Gruppe überprüft werden:

$$\overline{x}_{\rm SC} - \text{SEM}_{\rm SC} > \overline{x}_{\rm Ctrl} + \text{SEM}_{\rm Ctrl}$$

$$4.78 \,\mathrm{Bq}\,\mathrm{g}^{-1} - 0.29 \,\mathrm{Bq}\,\mathrm{g}^{-1} = 4.49 \,\mathrm{Bq}\,\mathrm{g}^{-1} \not> 4.58 \,\mathrm{Bq}\,\mathrm{g}^{-1} = 4.33 \,\mathrm{Bq}\,\mathrm{g}^{-1} + 0.25 \,\mathrm{Bq}\,\mathrm{g}^{-1}$$

$$(31)$$

Die Mittelwerte der Pilzkulturen zeigten im Rahmen des SEM für das gewählte $k_{1-\alpha/2}$ mit Signifikanzniveau $\alpha = 32\%$ daher keine signifikanten Unterschiede in der bioverfügbaren Sr-90 Aktivität des Bodens.

Analog konnte dieselbe Fragestellung zur Grundgesamtheit auch mit Abbildung 4.2b bei den Roggenpflanzlöchern überprüft werden. Zudem wurde hier über das gewählte Quantil kein signifikanter Unterschied festgestellt.

Bei der Untersuchung des Sr-90 Inventars der Bodenproben fiel weiter auf, dass die Gruppen der Roggenböden geringere Sr-90 Aktivitäten der bioverfügbaren Fraktion als die Kartoffelgruppen aufwiesen (siehe Abb. 4.2). Dazu wurde für einen einfachen Vergleich angenommen, die Kartoffelböden und Roggenböden gehörten jeweils einer Grundgesamtheit an, sodass hier die Mittelwerte beider Gruppen nebeneinander gestellt werden konnten:

Kartoffelboden
$$(4.34 \pm 0.18)$$
 Bq g⁻¹; Roggenboden (3.42 ± 0.25) Bq g⁻¹

Mit dem verwendeten $k_{1-\alpha/2} = 1$ konnte somit ein signifikanter Unterschied der Böden erkannt werden. Der Boden der Kartoffelernte zeigte eine Sr-90 Aktivitätskonzentration 21.2% größer als die des Bodens der Winterrogenernte.

In diesem Abschnitt sei abschließend angemerkt, dass die Sr-90 Aktivitäten der Bodenproben sich als heterogen erwiesen haben, wie in Abbildung 4.3 im Fall der Roggenböden zu erkennen ist. Daher, und aufgrund der geringen Stichprobengröße von sechs bzw. fünf Proben, wurde für die weitere Betrachtung nicht von einer Grundgesamtheit der Bodenproben der Kartoffeln, bzw. des Roggens ausgegangen.







Abb. 4.3: Darstellung der bioverfügbaren Aktivität von Sr-90 in den Bodenproben des Winterroggens. Heterogenität der Proben zwischen 7.2 Bq g^{-1} und 2.5 Bq g^{-1} erkennbar. Unsicherheiten nach dem Schema der Abbildung 4.1 einzeln berechnet.

4.4 Analyse des Strontiumgehalts über Yttrium 90 in Kartoffeln und Roggen

Der Vergleich der Pflanzengruppen lieferte einen ersten Anhaltspunkt über die Aufnahmefähigkeit von Sr-90 in die untersuchten Kompartimente. Ein Vergleich mit Report 472 [15], in welchem die Gesamtaktivität im Boden verwendet wurde, ließ einen Unterschied zwischen Winterrogengrün und Kartoffelknollen erwarten.

Abbildung 4.4a zeigt die Sr-90 Aktivität in Kartoffelknollen. Gegenüber der Sr-90 Aktivität von Roggengrün in Abbildung 4.4b konnte ein klarer Unterschied zwischen den Pflanzenarten erkannt werden. Die Knollen zeigten eine Aktivitätskonzentration von einem Faktor 9 bis 10 weniger als das Grün.

Der Mittelwert der Kontrollgruppe in Abbildung 4.4a enthielt statt der 6 Proben der Pilzkulturen nur 4. Zwei Proben aus dieser Gruppe mussten entfernt werden, da es zu Verfahrensfehlern bei der Präparation kam. Ctrl Bulk zeigte auf, dass ein Filterschritt zwingend notwendig war, um eine chemische Abtrennung durchzuführen. Dabei entstand ein Verlust von etwa der Hälfte der Probenmasse. Zudem lag die Unsicherheit durch den Quench bei 50%. Die Probe Ctrl 4 wurde bei der Separation vom Strontium in eine geleeartige Substanz gepresst, welche durch weitere Zugabe von Salpetersäure wieder aufgenommen werden konnte. Dieser Effekt schien eine Unsicherheit des Quench-Parameters von 200% zur Folge zu haben. Dieses Problem trat bei keiner anderen Probe auf. Innerhalb der Kartoffelknollen konnte, analog zum Test der Bodengruppen, kein signifikanter Unterschied zwischen den Pilzkulturen und der Kontrollgruppe erkannt werden. Für LN- und Kontrollgruppe ist direkt an der Abbildung zu erkennen, dass die Konfidenzintervalle sich überschneiden.

Die SC-Gruppe zeigte einen Schnittpunkt im Konfidenzintervall mit der Kontrollgruppe, da:

$$\overline{x}_{\rm SC} - {\rm SEM}_{\rm SC} > \overline{x}_{\rm Ctrl} + {\rm SEM}_{\rm Ctrl} \tag{32}$$

$$0.56 \operatorname{Bq} \operatorname{g}^{-1} \ge 0.60 \operatorname{Bq} \operatorname{g}^{-1}$$
 (33)

Betrachtet man nun Abbildung 4.4b, so konnte auch bei der SC-Gruppe des Roggengrüns kein signifikanter Unterschied zur Kontrollgruppe erkannt werden:

$$\overline{x}_{\rm SC} - \rm SEM_{\rm SC} > \overline{x}_{\rm Ctrl} + \rm SEM_{\rm Ctrl} \tag{34}$$

$$4.6 \,\mathrm{Bq}\,\mathrm{g}^{-1} \not> 5.0 \,\mathrm{Bq}\,\mathrm{g}^{-1}$$
 (35)

Bei der LN-Gruppe des Roggengrüns folgte die Untersuchung eines Schnittpunkts der Konfidenzintervalle. Hier zeigte der Roggen auf dem Boden der LN-Pilzkultur eine signifikant größere Aktivitätskonzentration von Sr-90, als die Kontrollgruppe. Dieser Unterschied betrug (31 ± 13) %.

$$\overline{x}_{\rm LN} - {\rm SEM}_{\rm LN} > \overline{x}_{\rm Ctrl} + {\rm SEM}_{\rm Ctrl} \tag{36}$$

$$5.5 \,\mathrm{Bq}\,\mathrm{g}^{-1} > 5.0 \,\mathrm{Bq}\,\mathrm{g}^{-1}$$
 (37)

Der signifikante Unterschied der LN-Gruppe von der Kontrolle ist ein Indiz für einen erhöhten Transferfaktor in Roggen durch die Präparation des Projektbodens durch LN.



4.5 Ermittelte Transferfaktoren

Die durchgeführten Untersuchungen der Kartoffelknollen und des dazugehörenden Bodens haben in den vorangegangenen Abschnitten keine signifikanten Unterschiede durch die Pilze nachweisen können. Abbildung 4.5 zeigt Sr-90 Aktivitätskonzentrationen von bioverfügbaren Fraktionen des Projektbodens und den Knollen in 4.5a gegenüber der resultierenden Transferfaktoren der Mittelwerte in 4.5b. Letzteres zeigte im Bereich seiner SEM ebenfalls keine signifikanten Unterschiede der Pilzkulturen zur Kontrollgruppe. Zudem ist in der Abbildung der Referenzwert aus Report 472 für *Tubers* mit der Standardabweichung eingezeichnet. Die Kartoffelknollen unterstützten daher diesen Literaturwert in dem Sinn, dass hier angenommen wurde, der Transfer aus dem gesamten Bodeninventar gleiche dem Transfer aus den bioverfügbaren Fraktionen.

Die hier aufgeführten Mittelwerte der Transferfaktoren sollen verdeutlichen, dass der SEM die Heterogenität der Proben, sowie ihre Unsicherheiten vernachlässigt und eine lineare Regression daher bessere Ergebnisse liefert.

Dazu wurden in Abbildung 4.6 die einzelnen Proben über die bioverfügbare Sr-90 Aktivität im Boden gegen die Sr-90 Aktivität in Kartoffelknollen aufgetragen. Über eine lineare Regression konnte der Transferfaktor anhand der Steigung ermittelt werden. Die Schnittpunkte mit dem Ursprung wurden erzwungen, da das Modell des Transferfaktors ohne Aktivität im Boden keine Aktivität in die Pflanzen übertragen kann. Die aufgeführten Regressionen wurden über Origin berechnet und ein Konfidenzinterfall für $\alpha = 32\%$ eingezeichnet. Das Fitprogramm betrachtete dabei die individuellen Unsicherheiten der einzelnen Werte und gewichtete sie entsprechend im SEK und der Regression.

Vergleicht man die Transferfaktoren, welche über die Regression folgten mit den Transferfaktoren in 4.5b, wurde erkenntlich, dass die Letzteren etwas höhere Werte lieferten:

Gruppe	LN	Ctrl	SC
Regression	$(0.119 \pm 0.012) \mathrm{Bq}\mathrm{g}^{-1}$	$(0.117 \pm 0.016) \mathrm{Bq}\mathrm{g}^{-1}$	$(0.122 \pm 0.011) \mathrm{Bq g^{-1}}$
Mittelwerte	$(0.140 \pm 0.020) \mathrm{Bq}\mathrm{g}^{-1}$	$(0.128 \pm 0.016) \mathrm{Bq g^{-1}}$	$(0.133 \pm 0.012) \mathrm{Bq g^{-1}}$

Tab. 4.2: Vergleich der Transferfaktoren berechnet durch Regressionen in Abb. 4.6 und der Mittelwerte in Abb.4.5b. TFs mit SEM für Mittelwerte und SEK bei Regressionen angegeben.

Aufgrund der Vernachlässigung der zuvor berechneten systematischen Unsicherheiten bei der Verwendung von Mittelwerten und den SEM, wurden im Folgenden die Regressionen für die Bestimmung von Transferfaktoren verwendet.

In Abbildung 4.6 ist weiter zu erkennen, dass im Rahmen des Konfidenzintervalls mit einem Signifikanzniveau von $\alpha = 32\%$ kein signifikanter Unterschied zwischen den Pilzkulturen und der Kontrollgruppe nachgewiesen werden konnte. Weder die SC noch die LN Gruppe zeigte daher einen Anstieg, oder eine Verminderung, des Transferfaktors bei der Aufnahme von Sr-90 von bioverfügbaren Fraktionen des Projektbodens in die Kartoffelknollen. Daher kann der Transferfaktor als Mittelwert der Steigungen und





Abb. 4.6: Berechnung der Transferfaktoren für Kartoffeln anhand der Steigung. Schnittpunkt mit (0,0) wurde erzwungen. Konfidenzintervalle für $\alpha = 32\%$ je Fit angegeben. Unsicherheiten der Messwerte sind in der Regression gewichtet. Kein signifikanter Unterschied der Pilzkulturen zur Kontrollgruppe.

Fehlerfortpflanzung von SEK $\cdot t$ als Unsicherheit zusammengefasst werden als:

$$TF_{\text{Kartoffelknolle}} = 0.119 \pm 0.027 \tag{38}$$

Die Berechnung der Transferfaktoren des Winterroggens wurde in Abbildung 4.7 für die drei untersuchten Gruppen aufgeführt. Es wurden ebenfalls beidseitige Konfidenzintervalle für ein Signifikanzniveau von $\alpha = 32\%$ eingezeichnet. Aufgrund der Lage der Regression der SC-Gruppe ist nicht eindeutig zu erkennen, ob eine Überschneidung zwischen den Konfidenzintervallen der LN- sowie Ctrl-Gruppe vorlag. Daher wurden in Abbildung 4.8 die Regressionen von LN und Ctrl einzeln aufgeführt.

Es ist in dieser Abbildung ersichtlich, dass die Konfidenzintervalle für einen beidseitigen Hypothesentest mit einem verwendeten Signifikanzniveau von alpha = 32%überschneiden und daher kein signifikanter Einfluss der LN-Pilzkultur auf die Sr-90 Aufnahme aus der bioverfügbaren Fraktion des CEZ-Bodens in Roggengrün nachgewiesen werden konnte. Im Fall der LN-Gruppe kann jedoch in Verbindung mit den Ergebnissen der Aktivitätskonzentrationen des Roggengrüns, der Trend einer erhöhten Aufnahme von Sr-90 erahnt werden.

Um zu unterstreichen, dass keine Veränderung des TF nachgewiesen werden konnte, folgt die Untersuchung auf eine Überschneidung der Konfidenzgrenzen, ähnlich zu den in der Betrachtung der Mittelwerte verwendeten Methoden. Die Grenzen werden dabei über Multiplikation von SEK und dem Quantil der studentischen t-Verteilung $t_{1-\alpha/2}$ (hier ≈ 1.189) berechnet. Eine Überschneidung liegt vor falls:



Abb. 4.7: Darstellung der LN-, SC- und Ctrl-Gruppe. Schnittpunkt beidseitiger Konfidenzintervalle zu erkennen. Beidseitige Konfidenzintervalle für $\alpha = 32\%$. Anmerkungen zum Chi² der SC-Gruppe erfolgt am Ende dieses Kapitels.



Abb. 4.8: Darstellung der Regressionen für die Aktivitätsaufnahme von Sr-90 in Roggengrün der LN- und Ctrl-Gruppe. Beidseitige Konfidenzintervalle für $\alpha = 32\%$.

$$TF_{LN} - SEK_{LN} \cdot t_{1-\alpha/2} = TF_{LN;unten} \not > TF_{Ctrl;oben} = TF_{Ctrl} - SEK_{Ctrl} \cdot t_{1-\alpha/2}$$
 (39)

Dies ist, wie im Folgenden zu erkennen, der Fall:

$$1.67 - 0.26 \cdot 1.189 = 1.36 \ge 1.44 = 1.17 - 0.23 \cdot 1.189 \tag{40}$$

Analog wurden in Abbildung 4.9 die Transferfaktoren der Kontrollgruppe und der SC-Gruppe aufgeführt. Aufgrund der bereits erwähnten Position der Geraden der SC-Gruppe kann hier von einer Überschneidung mit der Kontrollgruppe ausgegangen werden. Für eine Bestätigung ergibt sich analog zu vorheriger Berechnung:

$$TF_{SC} - SEK_{SC} \cdot t_{1-\alpha/2} = TF_{SC;unten} \not> TF_{Ctrl;oben} = TF_{Ctrl} - SEK_{Ctrl} \cdot t_{1-\alpha/2}$$
(41)
1.42 - 0.05 \cdot 1.189 = 1.36 \neq 1.44 = 1.17 - 0.23 \cdot 1.189 (42)



Abb. 4.9: Darstellung der Regressionen für die Aktivitätsaufnahme von Sr-90 in Roggengrün der SC- und Ctrl-Gruppe. Beidseitige Konfidenzintervalle für $\alpha = 32\%$.

Aufgrund der nachgewiesenen Überschneidung kann daher auch für die SC-Pilzkultur ein signifikanter Einfluss auf den Transfer von Sr-90 in Roggen für die bioverfügbare Fraktion des untersuchten Bodens nicht nachgewiesen werden.

Zusammenfassend kann der Transferfaktor des Roggengrüns aus der bioverfügbaren Fraktion des CEZ-Bodens des Testfeldes als eine Grundgesamtheit über den Mittelwert der 15 Proben angegeben werden als:

$$TF_{\text{Roggengrün}} = 1.4 \pm 0.4 \tag{43}$$

Es sei anzumerken, dass die Summe der Fehlerquadrate für die Gerade der SC-Proben unterhalb von 1 liegt. Aufgrund der Fehlerquellen dieser Arbeit und der Schwankungen in biologischen Prozessen ist es unwahrscheinlich, dass die Unsicherheiten der SC-Gruppe überschätzt wurden. Da die Daten für diese Arbeit erhoben wurden, ist es daher wahrscheinlich, dass die Werte diese Genauigkeit aufgrund der geringen Stichprobengröße zufällig erreicht haben.

4.6 Abschätzung der effektiven Folgedosis, sowie der Organfolgedosis durch Ingestion

Aus den Aktivitätskonzentrationen der Pflanzenproben wurden Abschätzungen der Folgedosen im Fall einer Ingestion, ausschließlich durch Sr-90 der Pflanzen des Testfeldes in der CEZ, hergeleitet. Die Berechnung der Folgedosen benötigt Kenntnis der aufgenommenen Aktivität A_g , welche nach Gleichung 6 im Abschnitt 2.5 über die mittlere Verzehrsrate \dot{M} , den Zeitraum des Verzehrs t, sowie der Aktivitätskonzentration des konsumierten Lebensmittels a_M bestimmt wurde. Im Rahmen einer konservativen Abschätzung wurde angenommen, dass die gesamte Sr-90 Aktivität der untersuchten Pflanzen aufgenommen würde ($A = a_M$). Aktivitätskonzentrationen der Proben befinden sich im Anhang in Tabelle 7.9 für Kartoffelknollen und in 7.10 für Roggengrün.

Laut Vogt und Vahlbruch [10, Tab.15.86] betrug die mittlere Verzehrsrate im Jahr 2016 von Kartoffeln 68.9 kg in Deutschland. Da der Verzehr von Roggengrün nicht realitätsnah ist, wurde angenommen, dass dieses als ausschließliches Weide- und Futtermittel an Nutztiere verwendet wird. Die effektive Folgedosis ergibt sich dann aus Milch und Milcherzeugnissen, sowie dem Fleischkonsum. Zu diesem Zweck kann aus Vogt und Vahlbruch für die mittlere Verbrauchsrate entnommen werden, dass im Jahr 2016 durchschnittlich 89.9 kg Milch und Milcherzeugnisse und 59.8 kg Fleisch und Wurst konsumiert wurden.

Im Fall der Milcherzeugnisse und des Fleisches muss an dieser Stelle ein Zwischenschritt durchgeführt werden, um zu bestimmen, welche Aktivitätskonzentration aus dem Roggengrün ($C_{\rm Fu}$) in die Produkte übertragen wird. Dazu gibt die "Allgemeine Verwaltungsvorschrift zur Ermittlung der Exposition von Einzelpersonen der Bevölkerung durch genehmigungs- oder anzeigebedürftige Tätigkeiten" [40, Gl.56] für die Aktivitätskonzentration von Milch $C_{\rm Mi}$ und Fleisch $C_{\rm Fl}$ an:

$$C_{\rm Mi} = C_{\rm Fu} \cdot M_{\rm Fu} \cdot T_{\rm Mi} \tag{44}$$

$$C_{\rm Fl} = C_{\rm Fu} \cdot M_{\rm Fu} \cdot T_{\rm Fl} \tag{45}$$

Der Faktor $\dot{M}_{\rm Fu}$ entpricht der täglichen Aufnahme von Futter in Kilogramm. Tabelle 3 im Anhang 3 von [40] benennt die tägliche Futtermenge mit 70 kg d⁻¹. Die Transferfaktoren für die Aufnahme von Sr in Milch, bzw das Fleisch sind in [40, Anh.3, Tab.4] mit $T_{\rm Fl} = T_{\rm Mi} = 1 \times 10^{-3} \, \rm d \, kg^{-1}$ angegeben.

Die effektiven Ingestionsdosen wurden gemäß Gleichung 5 berechnet, die in Abschnitt 2.5 aufgeführt ist. Da für Kartoffel und Roggengrün kein signifikanter Unterschied zwischen den Pilzkulturgruppen und der Kontrollgruppe nachgewiesen werden konnte, wurde im Folgenden ein Mittelwert der Pflanzen mit den individuellen Standardabweichung verwendet. Abbildung 4.10 führt die effektiven Folgedosen auf, welche durch den Konsum von Kartoffelknollen sowie durch Roggengrün als Futter für Viehbestände indirekt durch Milcherzeugnisse und Fleisch resultiert.



Abb. 4.10: Resultierende effektive Folgedosis durch den Konsum von Kartoffelknollen, sowie Milch- und Fleischerzeugnisse nach Verfüttern von Roggengrün an Viehbestände. Überschreiten des Grenzwertes für die allgemeine Bevölkerung ist für Milcherzeugnisse durch Sr-90, sowie bei Kartoffelknollen im Rahmen der Unsicherheit nicht auszuschließen.

Der Grenzwert der zusätzlichen effektiven Dosis, welche der allgemeine Bevölkerung in Deutschland im Jahr exponiert sein darf, liegt laut Strahlenschutzverordnung [41] bei 1000 μ Sv/a und wurde in der Abbildung 4.10 in grün hervorgehoben. Eine Überschreitung kann für Milcherzeugnisse, sowie Kartoffelkonsum im Rahmen der Standardabweichung erkannt werden. Der Konsum von Fleisch liefert über Sr-90 in der Berechnung der effektiven Folgedosis keine Grenzwertüberschreitung.

In Tabelle 4.3 wurden die Organfolgedosen für dasselbe Szenario des Konsums durch Pflanzen des Testfeldes aufgeführt. Der Grenzwert von 1.8 mSv a⁻¹ galt bis zum 30.12.18 in Deutschland für beruflich exponierte Personen aufgrund von Luft oder Abwasser für die Äquivalentdosis der Knochenoberfläche [42, Tab.3.g]. Für die allgemeine Bevölkerung

	Organfolgedosis
Kartoffelknolle	$(11.0 \pm 2.3) \mathrm{mSv}$
Roggen (Milchprodukte)	$(9.1\pm2.9)\mathrm{mSv}$
Roggen (Fleisch)	$(6.1 \pm 2.0)\mathrm{mSv}$

Tab. 4.3: Organfolgedosis durch die Pflanzen des CEZ-Testfeldes.

	$E_{g;\text{Nied.}}$	$E_{g;\text{CEZ}}$	$E_{g;\text{Nied.}}/E_{g;\text{CEZ}}$ [%]
Kartoffelknolle	$(0.217 \pm 0.022)\mu Sv$	$(940 \pm 200) \mu\text{Sv}$	0.02
Roggen (Milch)	$(0.7\pm0.4)\mu\mathrm{Sv}$	$(820 \pm 260)\mu\mathrm{Sv}$	0.08
Roggen (Fleisch)	$(0.44 \pm 0.27)\mu Sv$	$(540 \pm 170)\mu\mathrm{Sv}$	0.08

Tab. 4.4: Effektive Folgedosis in der Lebensmittelkette durch Fleisch und Milchprodukten mit Roggengrün als Futterquelle, sowie Kartoffelknollen aufgrund von Sr-90 im Boden Niedersachsens. Abweichungen von $E_{g;\text{Nied.}}$ wurden über die Differenz zum Maximalwert aus [43] abgeschätzt. Mit Nied. für Niedersachsen.

liegt aktuell kein Grenzwert vor. Eine Berechnung der Organfolgedosis für die Kartoffel, sowie der Milch- und Fleischerzeugnisse durch Roggengrün als Futtermittel liefert die in Tabelle 4.3 aufgeführten Werte. Eine Überschreitung der bis 2019 gültigen Grenzen kann erkannt werden, sollten die Lebensmittel konsumiert werden, der Grenzwert galt jedoch explizit für Luft und Abwasser, nicht den Verzehr. Daher würde aktuell keine Grenzwertüberschreitung der Organfolgedosis der Knochenoberfläche vorliegen.

Ein Vergleich der 50 Jahre Folgedosis durch Sr-90 kann über den Jahresbericht 2016 der Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung [43] durchgeführt werden. Tabelle T II.35 zur radioaktiven Kontamination von Weideböden gibt im Mittel eine Sr-90 Aktivität von 3.1 Bq kg⁻¹ in Niedersachsen in 2016 an und Tabelle T II.36 1.1 Bq kg⁻¹ für Ackerflächen. Der hypothetische Vergleich betrachtet, nach Report 472 [15] vergleichbare Böden in Niedersachsen, mit dem Lehmboden des CEZ-Testfeldes. Mittels der in dieser Arbeit bestimmten Transferfaktoren für Kartoffeln und der Aktivität der Ackerböden, wird so die Dosis dort angebauter Kartoffelknollen abgeschätzt. Da zuvor angenommen wurde, der Winterrogen würde als Futtermittel der Nutztiere verwendet, wird hier im konservativen Sinn des Strahlenschutzes angenommen, der Roggen wachse auf den Weideflächen. Folgende Tabelle 4.4 führt die Ergebnisse auf:

Wie in der Tabelle 4.4 abzulesen, befinden sich die Folgedosen aufgrund von Sr-90 in den aufgeführten Lebensmitteln unterhalb von einem μ Sv. Das Verhältnis der Dosis durch Sr-90 von in Niedersachsen produzierten Lebensmitteln gegenüber denen der CEZ, wurde als < 0.1 % ermittelt.

5 Fazit

Im Rahmen dieser Arbeit wurde eine Reihe interessanter Ergebnisse zu Transferfaktoren von Sr-90 aus dem Projektboden der unmittelbaren Umgebung von Tschernobyl in Kartoffeln und Roggen gewonnen.

In dieser Arbeit konnte gezeigt werden, dass für ein Signifikanzniveau von $\alpha = 32\%$, basierend auf den SEK Werten einer linearen Regression, weder *Leucoagaricus naucinus*, noch *Schizophyllum commune* einen nachweisbaren Einfluss auf den Transfer von Sr-90 aus den bioverfügbaren Fraktionen des Testfeldbodens in Kartoffelknollen haben. Die Untersuchungen zeigen weiter, dass die Transferfaktoren der Knollen mit 0.119 ± 0.027 den IAEA-Literaturmittelwert für den Transfer aus dem Gesamtinventar bekräftigen. Bei der Behandlung des Lehmbodens durch die Pilzkulturen kann daher keine Veränderung der Dosis durch Sr-90 aufgrund von Kartoffelknollen nachgewiesen werden. Die Berechnung der 50 Jahre Folgedosis durch den Jahresdurchschnittskonsum, von auf dem Testfeld angebauten Kartoffelknollen, ergab (0.94 ± 0.20) mSv.

Die Untersuchung der Bodenproben lieferte, neben der Bestimmung der im Fokus stehenden Transferfaktoren, weitere interessante Ergebnisse zur Radioökologie des Sr-90. Die Reihen der Kartoffelproben haben in ihren bioverfügbaren Fraktionen ca. (27 ± 6) % höhere Aktivitätskonzentrationen, als die Reihen der Winterroggenproben. Im Rahmen der Unsicherheit auf einem Konfidenzniveau von 68% betrug die Unsicherheit der Sr-90 Aktivitätskonzentrationen im Boden etwa 1 Bq g⁻¹. Die Präparationen der Proben verlief ohne systematische Unterschiede, daher ist als Ursache eine Veränderung an dieser Stelle nicht zu erwarten. Weitere Gründe für diesen Unterschied konnten im Rahmen dieser Arbeit nicht überprüft werden, seien hier allerdings kurz erwähnt.

Eine Möglichkeit umfasst einen saisonalen Unterschied aufgrund der verschiedenen Erntemonate. Niederschlag, Temperatur und Luftdruck könnten sich auf die Aktivitätskonzentration im Boden ausgewirkt haben. Laut der norwegischen Wetterseite "timeanddate.de" [44] hat es im Mai 2018 in Pripyat zwei Tage mit Gewitter, im September desselben Jahres 6 Regentage gegeben, welche einen Einfluss auf besagte Eigenschaften haben könnten, um ein Beispiel zu nennen.

Ein weiterer möglicher Grund für die Variation in den Bodenproben wären Wechselwirkungen zwischen den verschiedenen Wurzelgeflechten der Pflanzen und des Transports des Strontiums im Erdreich. Für eine genauere Aussage an dieser Stelle sind Gesamtinventare der Bodenproben nötig, welche im Rahmen der in dieser Arbeit getätigten Untersuchungen der Transferfaktorbestimmung nicht ermittelt wurden. Die dritte hier erwähnenswerte Option für die Differenz liegt im Transfer in die Pflanzen selbst.

Der um einen Faktor von 8 bis 9 höhere Transferfaktor des Roggens könnte für die beobachtete relative Abreicherung der Sr-90 Aktivitätskonzentration in den zu Grunde liegenden Bodenproben verantwortlich sein. Gegen diese Begründung spricht, dass die LN-Gruppe des Roggengrüns in der Betrachtung der Mittelwerte eine signifikant höhere Aktivitätskonzentration aufweist, dieser Unterschied bei den Bodenproben jedoch nicht erkennbar ist. Für eine genauere Kontrolle sind größere Stichprobenumfänge notwendig. Im Rahmen dieser Arbeit konnten bei der Untersuchung der Roggenproben keine signifikanten Veränderungen der Transferfaktoren beobachtet werden. Keine der beiden Pilzkulturen hat, im Rahmen der Untersuchungen über die SEK-Werte, einen Anstieg oder eine Abnahme der Aufnahme von Sr-90 aus der bioverfügbaren Fraktionen des Projektbodens gezeigt. Der durchschnittliche Transferfaktor des Winterrogengrüns wurde als 1.4 ± 0.4 bestimmt. Dieser liegt im Rahmen der Unsicherheiten im Bereich des von der IAEA ausgegebenen Faktors für die Aufnahme von Sr aus dem Gesamtinventar von Lehmböden in Getreidestängel und Wurzeln [15]. Die zusätzliche 50 Jahre Folgedosis wurde in dieser Arbeit aufgrund des Jahresdurchschnittskonsums von Milch und Fleisch mit Roggengrün des Testfeldes als Futtermittel der Nutztiere mit (0.82 ± 0.26) mSv bzw. (0.54 ± 0.17) mSv abgeschätzt.

Für zukünftige Untersuchungen der Sr-90 Aktivitätskonzentration in Boden und Pflanzenproben sind an dieser Stelle ein paar Hinweise aufgeführt. Bei der chemischen Abtrennung von Sr hat sich herausgestellt, dass eine Pflanzenmasse von bis zu 10 g nach dem Veraschen unproblematisch für die verwendeten 2 ml Cartridges der Sr-Resins ist. Zudem ist diese Masse Pflanzenmaterials im Fall der untersuchten Proben vom CEZ-Testfeld ausreichend aktiv für den Nachweis durch die LSC.

Die systematische Untersuchung der Fehlerquellen der Probenaufbereitung hat gezeigt, dass die größte Quelle in dieser Arbeit aus dem Quench resultiert. Diesen durch eine Ausgleichsfunktion zu korrigieren, ist mit gewissen Unsicherheiten verbunden, welche die Qualität der Messungen reduziert. Die zweitgrößte Fehlerquelle dieser Arbeit erwies sich in der Bestimmung der Wiederfindungsrate. Begründet werden kann dies durch die Unsicherheit der Analysenwaage, der Unsicherheit durch die Geometrie bei einer Aktivitätsmessung, sowie der Unsicherheit der Bestimmung der Zählrate, welche in die Ungenauigkeit der Wiederfindungsrate einfließen.

6 Ausblick

Einige zu untersuchende Fragestellungen im Rahmen dieser Arbeit bleiben offen. Darunter der Transfer von Sr-90 in die Kartoffelpelle und das Roggenkorn. Beide Pflanzenbestandteile konnten nur in geringen Mengen geerntet werden. Die im Rahmen dieser Arbeit ermittelten Ergebnisse für das Roggengrün sind in abgeschwächter Form ebenfalls für den Transferfaktor des Korns zu erwarten.

Es hat sich gezeigt, dass der Stichprobenumfang der Roggengruppen (N=5) in Anbetracht der hohen Proben-Inhomogenität relativ klein ausfiel. Eine Wiederholung des Experiments mit größerer Probenzahl wäre daher sinnvoll. Eine Verschiebung des Erntemonats von Mai auf Juni hätte zudem Potential, die Kornmasse zu erhöhen, um eine vergleichbare Masse des Pflanzenmaterials gegenüber dem Grün zu gewährleisten.

Ein signifikanter Unterschied der Sr-90 Aktivitätskonzentration wurde in den Proben der LN-Gruppe des Roggengrüns zur Kontrollgruppe durch den Vergleich via SEM beobachtet. Dieses Ergebnis ist aufgrund der Vernachlässigung der Unsicherheiten durch die Bestimmung der Mittelwerte, mit Vorsicht zu verwenden. Weitere Untersuchungen sind zwingend notwendig, um einen möglichen Einfluss bekräftigen oder widerlegen zu können. Der erhöhte, wenn auch nicht signifikant größere, Transferfaktor der LN-Gruppe des Roggengrüns gegenüber der Kontrollgruppe, liefert dahingehend einen Grund, diese Ergebnisse durch eine Reproduktion zu bekräftigen.

Die mögliche Eigenschaft, den Transferfaktor des Winterroggens durch die Behandlung des Bodens mit der LN-Pilzkultur zu erhöhen, könnte sich für zukünftige Arbeiten als interessant erweisen. Ein Ansatz der Nutzung dieses Merkmals könnte sich in der gezielten Aufnahme von Sr-90 aus kontaminierten Böden zeigen (Remediation). Weiterhin sollte der Stichprobenumfang zukünftiger Untersuchungen auf wenigstens 30 Proben für Pflanzen und Bodenproben zuzüglich einer ebenso großen Kontrollgruppe erhöht werden, um die statistische Aussagekraft zu erhöhen. Für beide Pilzkulturen konnte gezeigt werden, dass sie im Sinne eines Strahlenschutzvorhabens zur Nuklidfixierung von Sr-90 im Boden bei Anbau von Roggen und Kartoffeln ungeeignet sind. Es ist daher nicht sinnvoll, weitere Untersuchungen zu diesem Zweck an den Kulturen durchzuführen.

Die Unterschiede der bioverfügbaren Sr-90 Aktivitätskonzentration der Bodenprobe werfen Fragen auf, welche in zukünftiger Forschung Beachtung finden sollten. Zur Untersuchung auf einen möglichen saisonalen Effekt sei hier eine monatliche Untersuchung von mehreren Bohrkernen auf die bioverfügbare Sr-90 Aktivität in Bodenproben vorgeschlagen. Aufgrund der Heterogenität des CEZ-Bodens eigenen sich für diesen Zweck möglicherweise andere homogener kontaminierte Gebiete, welche beispielsweise durch Fallout mit Sr-90 kontaminiert wurden.

Die durchgeführte Untersuchung der Fehlerquellen hat den Quench als die größte Unsicherheitsquelle identifiziert. Um diesen in zukünftigen Untersuchungen zu reduzieren, ist besondere Umsicht bei den Präparationsschritten notwendig. Zur Reduzierung der Fluoreszenz innerhalb des Proben-Vials wurden die Proben für eine Stunde in der Dunkelkammer des Quantulus ruhen lassen. Weitere Ruhezeit könnte dieses Quenching möglicherweise weiter senken. Die Winderfindungsrate, als zweitgrößte Fehlerquelle, könnte durch größere Messzeiten der Standards und Proben präziser bestimmt werden. Mehrere Messungen zur Bestimmung der geometrischen Unsicherheit könnten die Genauigkeit der Wiederfindungsrate weiter verbessern.

Abschließend wird empfohlen für die Angabe der Transferfaktoren die Methode der Regressionen zu verwenden. Diese zeigte - gegenüber der Bestimmung durch einen Mittelwert - den Vorteil, dass die ermittelten Messwerte über deren Unsicherheiten in der Steigung und dem dazugehörenden SEK gewichtet wurden.

7 Anhang

7.1 Einseitiger Hypothesentest

Aufgrund der Lage der Transferfaktoren innerhalb der Abbildung wurde ein einseitiger Hypothesentests durchgeführt. Annahme dieses Tests war, dass LN einen größeren Transferfaktor als die Kontrollgruppe aufweist und daher nicht zur selben Grundgesamtheit gehört. Diese Annahme ist allerdings aufgrund der hohen Unsicherheiten im Rahmen dieser Arbeit als zweifelhaft anzusehen und wurde daher lediglich als Zusatz durchgeführt.

Bei einem einseitigen Hypothesentest, wird statt $t_{1-\alpha/2}$ für die Multiplikation der SEKs zur Bestimmung der links- und rechtsseitigen Konfidenzintervallgrenzen, der Wert $t_{1-\alpha}$ verwendet. Die einseitigen Konfidenzintervallgrenzen wurden wie folgt berechnet:

$$TF_{LN} - SEK_{LN} \cdot t_{1-\alpha} = TF_{LN;unten}$$
(46)

$$TF_{Ctrl} - SEK_{Ctrl} \cdot t_{1-\alpha} = TF_{Ctrl;oben}$$
(47)

Die Größe $t_{1-\alpha}$ entspricht - mit Signifikanzniveau $\alpha = 32\%$ und drei Freiheitsgraden - etwa dem Wert 0.518. Die obere Grenze des Konfidenzintervalls der Kontrollgruppe wurde hier als TF_{Ctrl:oben} bezeichnet, die untere Grenze der LN-Gruppe als TF_{LN:unten}.



Abb. 7.1: Einseitiger Hypothesentest mit $\alpha = 32\%$ über den SEK. Die Konfidenzintervalle wurden von Hand eingefügt. Der Schnittpunkt mit dem Ursprung wurde erzwungen. Test auf signifikanten Anstieg des TF in LN Proben.

Die berechneten Intervallsgrenzen entsprechen folgender Relation:

$$TF_{LN;unten} = 1.53 > 1.29 = TF_{Ctrl;oben}$$

$$\tag{48}$$

In der Abbildung 7.1 ist diese Relation als optisches Hilfmittel aufgeführt. Es ist zu erkennen, dass für das Signifikanzniveau von $\alpha = 32\%$ keine Schnittmenge der Konfidenzintervalle des Transferfaktors der LN Gruppe mit dem Transferfaktor der Kontrollgruppe durch dieses Verfahren vorliegt. Ein signifikanter Anstieg der Aufnahme von Sr-90 aus den bioverfügbaren Fraktionen des Projektbodens in Roggengrün läge damit in dieser Verfahrensweise vor. Der relative Unterschied der Steigungen in Abbildung 7.1 entspräche einem Anstieg von $(43 \pm 19)\%$ zugunsten der LN-Gruppe. Die Unsicherheit wurde hier über eine Fehlerfortpflanzung des SEK· $t_{1-\alpha}$ angegeben.

7.2 Tabellen und Zusatzinformationen

Standard	Tag	$A_{\rm abgewogen}$ [Bq]	Tracer [cps]	Eff. [%]
$Sr85-03_{Det.5}$	28.06.2019	56.0 ± 1.1	3.0813 ± 0.0022	5.29 ± 0.11
$Sr85-03_{Det.3}$	26.11.2019	11.15 ± 0.22	0.611 ± 0.008	5.27 ± 0.12
$Sr85-04_{Det.3}$	10.02.2020	2067 ± 41	108.65792 ± 0.00004	5.26 ± 0.11

Tab. 7.1: Effizienzmessungen der Kalibrierstandards auf Detektor Nr.3 (Det.3) und Detektor Nr.5 (Det.5). A_{gewogen} entspricht der Aktivität des Standards am Messtag. Die Effizienz (Eff.) des Standards Sr85-03 wurde hier über die relative Abweichung zu Sr85-04 korrigiert.

Nummer	Tag	HNO_3	Sr-85-03 [g]	$Sr-85/HNO_3 [g/g]$
1	30.07.2019	15.68240	3.00030 ± 0.00001	0.1913164 ± 0.0000006
2	09.09.2019	15.32510	3.00280 ± 0.00001	0.1959400 ± 0.0000007
3	15.10.2019	15.27803	2.99450 ± 0.00001	0.1960004 ± 0.0000007
Nummer	Tag	HNO_3	Sr-85-04 [g]	$Sr-85/HNO_3$
4	21.02.2020	35.64931	0.09580 ± 0.00001	0.0026873 ± 0.0000003

Tab. 7.2: Angesetzte Zwischenverdünnungen von Sr-85 für die Spikes der Pflanzen vor
dem Veraschen. Unsicherheit der HNO3 Spalte beträgt ± 0.00001 g

Kart.B.	m(Sr85-03) [g]	$A_{\rm spiked} [Bq]$	$A_{\text{Det.5}}$ [Bq]	W [%]
LNBulk	0.20213	41.7 ± 0.4	11.7 ± 0.3	28.0 ± 1.0
LN2	0.01122	2.805 ± 0.028	1.29 ± 0.04	46.0 ± 1.6
LN4	0.01089	2.581 ± 0.026	1.29 ± 0.04	50.0 ± 1.7
LN6	0.01062	2.463 ± 0.025	1.09 ± 0.03	44.1 ± 1.6
LN7	0.20294	41.4 ± 0.4	13.0 ± 0.3	31.4 ± 1.1
LN8	0.01008	2.363 ± 0.024	1.41 ± 0.04	59.8 ± 2.1
CtrlBulk	0.20162	41.1 ± 0.4	11.9 ± 0.3	28.9 ± 1.0
Ctrl3	0.01061	2.951 ± 0.030	0.555 ± 0.015	18.5 ± 0.6
Ctrl4	0.20191	41.6 ± 0.4	17.0 ± 0.4	40.8 ± 1.3
Ctrl5	0.20082	47.6 ± 0.5	20.4 ± 0.6	42.9 ± 1.5
Ctrl8	0.20077	47.6 ± 0.5	15.5 ± 0.4	32.5 ± 1.1
Ctrl9	0.00980	2.249 ± 0.023	0.835 ± 0.027	36.7 ± 1.4
SCBulk	0.20106	41.0 ± 0.4	8.59 ± 0.24	20.9 ± 0.7
SC1	0.01101	2.812 ± 0.028	1.55 ± 0.04	55.0 ± 1.9
SC4	0.20052	47.5 ± 0.5	15.0 ± 0.4	31.6 ± 01.1
SC5	0.20125	41.1 ± 0.4	11.2 ± 0.3	27.3 ± 0.9
SC7	0.01127	2.878 ± 0.029	1.58 ± 0.04	55.1 ± 1.9
SC10	0.20079	47.6 ± 0.5	14.1 ± 0.4	29.7 ± 1.0

Tab. 7.3: Gespiketen Masse m mit Industriestandard Sr85-03 der Kartoffelbodenproben (Kart.B.). A_{spiked} entspricht der Aktivität die sich aus der Masse des Tracers ergibt, $A_{\text{Det.5}}$ ist die Aktivität bestimmt aus Detektor Nr.5. Unsicherheit der Masse in 0.000 01 g. Wiederfindungsrate W ergibt sich aus den Aktivitäten A

Kart. Kn.	m(Sr85-03) [g]	Verd.	$A_{\rm spiked}$ [Bq]	$A_{\text{Det.5}}$ [Bq]	W [%]
Ln Bulk	2.5391	3	40.5 ± 0.4	25 ± 3	61.8 ± 2.1
$\operatorname{Ln} 2$	1.4954	1	34.9 ± 0.3	25 ± 3	71.2 ± 2.2
LN 4	3.140	2,3	41.2 ± 0.4	24 ± 3	58.5 ± 2.0
LN 6	2.5223	3	40.2 ± 0.4	26 ± 3	63.5 ± 2.2
${\rm Ln} 7$	2.5468	3	40.6 ± 0.4	26 ± 3	63.7 ± 2.2
Ln 8	2.5398	3	40.5 ± 0.4	24 ± 3	58.8 ± 2.0
Ctrl Bulk [*]	1.5396	1	54.6 ± 0.5	16.7 ± 0.7	30.6 ± 1.4
Ctrl 3	2.0180	2	44.3 ± 0.4	29 ± 4	65.6 ± 2.1
Ctrl 4^*	1.5573	1	55.2 ± 0.6	20.1 ± 0.8	36.4 ± 1.7
Ctrl 5	2.0587	2	48.7 ± 0.5	27 ± 3	55.1 ± 1.8
Ctrl 8	2.0496	2	45.0 ± 0.5	20.9 ± 2.7	46.3 ± 1.6
Ctrl 9	2.0179	2	44.3 ± 0.4	25 ± 3	56.6 ± 2.0
SC Bulk	2.0343	1	49.1 ± 0.5	29 ± 4	59.5 ± 1.9
SC 1	2.4921	2	59.0 ± 0.6	37 ± 5	62.0 ± 2.1
SC 4	2.0291	1	47.4 ± 0.5	31 ± 4	64.9 ± 2.1
SC 5	1.8994	1	43.9 ± 0.4	26 ± 3	58.3 ± 1.9
SC 7	1.4568	1	33.7 ± 0.3	22.8 ± 2.8	67.8 ± 2.1
SC 10	1.9469	1	47.0 ± 0.5	31 ± 4	66.7 ± 2.3

Tab. 7.4: Gespiketen Masse $m (\pm 0.0001 \text{ g})$ mit Industriestandard Sr85-03 der Kartoffelknollen (Kart. Kn.). A_{spiked} entspricht der Aktivität die sich aus der Masse des Verdünnung (Tabelle (Ref Verdünnung)) ergibt, $A_{\text{Det.5}}$ ist die Aktivität bestimmt aus Detektor Nr.5. Wiederfindungsrate W ergibt sich aus den Aktivitäten A. Probe LN 4 enthält 0.56 g von Verdünnung 2, die Unsicherheit durch verschiedene Verd. 0.001 g. Proben mit * wurden nicht ausgewertet und mit einem nicht angegeben Detektor Nr.1 gemessen.

Rog. B.	m(Sr85-03) [g]	$A_{\rm spiked}$ [Bq]	$A_{\text{Det.3}}$ [Bq]	W [%]
LN 1	0.34731	19.86 ± 0.20	17.55 ± 0.22	88.4 ± 2.9
LN 5	0.34869	19.72 ± 0.20	11.6 ± 0.4	58.7 ± 2.0
LN 10	0.20094	7.33 ± 0.07	3.9 ± 0.3	52.8 ± 1.9
LN 13	0.20077	7.25 ± 0.07	5.3 ± 0.4	72.7 ± 2.3
LN 17	0.54973	25.11 ± 0.25	21.8 ± 0.3	86.9 ± 2.8
Ctrl 1	0.34692	19.84 ± 0.20	12.17 ± 0.25	61.4 ± 2.1
Ctrl 5	0.35052	19.62 ± 0.20	10.4 ± 0.4	53.1 ± 1.7
Ctrl 9	0.54796	25.03 ± 0.25	22.0 ± 0.5	87.8 ± 2.8
Ctrl 13	0.20061	7.32 ± 0.07	5.6 ± 0.5	76.1 ± 2.5
Ctrl 17	0.34851	19.50 ± 0.20	15.1 ± 0.5	77.3 ± 2.5
SC 1	0.34922	19.75 ± 0.20	13.93 ± 0.14	70.5 ± 2.3
SC 5	0.34683	19.62 ± 0.20	8.83 ± 0.11	45.0 ± 1.4
SC 9	0.20187	7.21 ± 0.07	4.57 ± 0.13	63.3 ± 2.2
SC 13	0.20021	7.23 ± 0.07	4.68 ± 0.13	64.7 ± 2.3
SC 17	0.54949	25.37 ± 0.25	19.71 ± 0.13	77.7 ± 2.5

Tab. 7.5: Gespiketen Masse m ((± 0.00001g))mit Industriestandard Sr85-03 der Roggenbodenproben (Rog.B.). A_{spiked} entspricht der Aktivität die sich aus der Masse des Tracers ergibt, $A_{\text{Det.3}}$ ist die Aktivität bestimmt aus Detektor Nr.5. Wiederfindungsrate W ergibt sich aus den Aktivitäten A

Rog. Pf.	m(Sr85-03) [g]	$A_{\rm spiked}$ [Bq]	$A_{\text{Det.3}}$ [Bq]	W [%]
LN 1	2.0281	83.6 ± 0.8	70.1 ± 1.5	83.8 ± 2.2
LN 5	2.0094	82.0 ± 0.8	69.8 ± 1.5	85.1 ± 2.6
LN 10	2.0252	63.9 ± 0.6	60.0 ± 1.5	93.9 ± 3.0
LN 13	1.9880	62.8 ± 0.6	39.8 ± 1.6	63.4 ± 2.0
LN 17	2.0088	81.1 ± 0.8	66.0 ± 1.5	81.4 ± 2.5
Ctrl 1	2.0377	83.1 ± 0.8	72.2 ± 1.5	86.8 ± 2.5
Ctrl 5	1.9994	81.6 ± 0.8	70.6 ± 1.5	86.6 ± 2.6
Ctrl 9	2.0125	81.2 ± 0.8	71.7 ± 1.4	88.3 ± 2.8
Ctrl 13	2.0180	63.7 ± 0.6	54.1 ± 1.5	85.0 ± 2.7
Ctrl 17	2.0330	82.9 ± 0.8	67.1 ± 1.7	80.9 ± 2.5
SC 1	2.0214	82.5 ± 0.8	72.8 ± 1.3	88.2 ± 2.6
SC 5	2.0100	82.9 ± 0.8	71.0 ± 1.5	85.6 ± 2.5
SC 9	2.0214	63.8 ± 0.6	58.6 ± 1.0	91.8 ± 2.9
SC 13	2.0277	64.0 ± 0.6	52.4 ± 1.3	81.8 ± 2.6
SC 17	2.0216	81.6 ± 0.8	69.5 ± 1.4	85.2 ± 2.4

Tab. 7.6: Gespiketen Masse $m (\pm 0.0001 \text{ g})$ mit Industriestandard Sr85-04 des Roggengrüns (Rog. Pf.). A_{spiked} entspricht der Aktivität die sich aus der Masse der Verdünnung 4 (Tabelle (Ref Verdünnungen)) ergibt, $A_{\text{Det.5}}$ ist die Aktivität bestimmt aus Detektor Nr.3. Wiederfindungsrate W ergibt sich aus den Aktivitäten A.

(a) Kartoffel								
	Ι	Messzeit [s]	Tracer [cps]	$A_{\rm spiked}$ [Bq]	$A_{\text{Det.}}$ [Bq]	W [%]		
LN 2 Preload	2514	1800.4	1.396	47.4	25.5	53.8		
LN 2 LOAD	16	2485.8	0.000	37.1	0.0	0.0		
LN 2 RINSE 1	27	2080.1	0.006	37.1	0.1	0.3		
LN 2 RINSE 2	0	2438.8	-0.007	37.1	-0.1	-0.3		
LN 2 ELUTE 2	24	2746.7	0.002	37.1	0.0	0.1		
SC 7 Preload	2753	1800.5	1.522	46.2	27.8	60.2		
SC 7 LOAD	22	1928.3	0.005	36.5	0.1	0.2		
SC 7 RINSE 1	7	1801.3	-0.003	36.5	-0.1	-0.1		
SC 7 RINSE 2	20	1819.0	0.004	36.5	0.1	0.2		
SC 7 ELUTE 2	38	2293.0	0.010	36.5	0.2	0.5		
		(b) Roggen					
LN 1 Gefiltert	3493	1627.2	2.128	93.1	85.6	91.9		
SC 1 Gefiltert	5014	2223.1	2.237	92.8	89.9	97.0		
LN 5 Gefiltert	5007	2278.0	2.180	92.2	87.6	95.0		
SC 5 Gefiltert	5008	2407.4	2.062	92.2	82.9	89.9		
Ctrl 1 Gefiltert	5406	2432.7	2.204	93.5	88.6	94.8		

Tab. 7.7: (a) Stichprobenmessungen der Widerfindungsrade W bei der chemischen Abtrennung von Sr bei Kartoffelproben, gemessen mit Detektor 5. Preload bezieht sich auf eine Messung direkt vor der Abtrennung. Arbeitsschritte einschließlich der zusätzlichen in ELUTE 2 und ein Vergleich mit 7.4 zeigten nicht nennenswerte Verluste. Die Peakfläche ist in Spalte I angegeben. (b) Messungen der Roggenproben mit dem Verwendeten Ofenprogramm nach dem Filterprozess. Die Proben waren damit für die chemische Abtrennung vorbereitet. Aufgrund der positien Verbesserung zur Kartoffelpräparation im Vergleich der gefilterten Roggenproben mit 7.6, wurden keine Stichproben der Zwischenschritte gemessen.

Kartoffelboden				Kartoffelknolle						
Probe	y	w	x	y^*	$y^{\#}$	y	w	x	y^*	$y^{\#}$
LN Bulk	5.2	0.66	3.42	1.03	2.06	2.1	0.217	0.45	0.21	0.42
LN 2	13.1	0.40	5.27	0.98	1.97	3.2	0.157	0.50	0.19	0.38
LN 4	10.8	0.37	4.00	0.82	1.64	2.2	0.202	0.45	0.21	0.41
LN 6	7.3	0.42	3.05	0.75	1.51	2.0	0.207	0.42	0.20	0.40
LN 7	7.3	0.59	4.31	1.06	2.12	2.4	0.217	0.53	0.23	0.46
LN 8	11.0	0.31	3.39	0.69	1.39	5.2	0.153	0.79	0.31	0.61
Ctrl Bulk	6.9	0.64	4.44	1.14	2.29					
Ctrl 3	3.7	1.00	3.66	1.30	2.62	2.1	0.212	0.44	0.20	0.41
Ctrl 4	8.7	0.453	3.95	0.91	1.83					
Ctrl 5	9.8	0.43	4.22	0.91	1.83	3.0	0.227	0.68	0.27	0.53
Ctrl 8	7.2	0.57	4.11	1.04	2.08	1.8	0.320	0.57^{\dagger}	0.29	0.58
Ctrl 9	10.7	0.50	5.40	1.10	2.20	2.0	0.238	0.48	0.23	0.46
SC Bulk	4.8	0.88	4.21	1.27	2.54	3.3	0.200	0.66	0.24	0.49
SC 1	13.6	0.34	4.58	0.84	1.69	2.1	0.199	0.42	0.20	0.39
SC 4	7.0	0.59	4.08	1.04	2.09	2.3	0.231	0.54	0.24	0.48
SC 5	7.5	0.676	5.06	1.20	2.41	2.8	0.222	0.63	0.26	0.52
SC 7	17.9	0.34	6.01	0.96	1.93	2.9	0.212	0.63	0.25	0.50
SC 10	7.3	0.62	4.51	1.12	2.24	3.6	0.206	0.74	0.26	0.53
		Rog	genboo	len		Roggengrün				
Probe	y	w	x	y^*	$y^{\#}$	y	w	x	y^*	$y^{\#}$
LN 1	6.6	0.21	1.37	0.38	0.77	21.6	0.220	4.75	0.75	1.51
LN 5	13.0	0.31	4.08	0.78	1.57	54.1	0.165	8.93	1.55	3.11
LN 10	9.1	0.35	3.19	0.71	1.43	37.5	0.135	5.04	0.58	1.15
LN 13	15.5	0.254	3.94	0.67	1.35	9.4	0.893	8.40	1.85	3.70
LN 17	16.5	0.213	3.52	0.58	1.17	12.9	0.357	4.62	0.89	1.78
Ctrl 1	11.7	0.30	3.53	0.71	1.41	38.5	0.144	5.55	0.81	1.63
Ctrl 5	14.0	0.348	4.87	0.88	1.77	23.9	0.157	3.76	0.62	1.25
Ctrl 9	10.2	0.210	2.15	0.45	0.91	19.2	0.166	3.18	0.49	0.97
Ctrl 13	9.2	0.24	2.25	0.50	1.00	18.7	0.282	5.28	0.85	1.70
Ctrl 17	16.6	0.24	3.97	0.69	1.39	24.6	0.170	4.18	0.69	1.38
SC 1	14.6	0.26	3.82	0.68	1.37	28.5	0.200	5.71	0.77	1.54
SC 5	6.5	0.410	2.68	0.72	1.45	18.5	0.181	3.34	0.56	1.13
SC 9	14.5	0.29	4.22	0.77	1.54	33.0	0.194	6.42	0.76	1.52
SC 13	12.3	0.29	3.50	0.68	1.35	7.4	0.634	4.70	1.19	2.39
SC 17	13.5	0.238	3.21	0.60	1.20	23.8	0.196	4.66	0.68	1.35

Tab. 7.8: Erfassungsgrenze y^* und Nachweisgrenze $y^{\#}$ der Kartoffel- bzw. Roggen- und zugehörigen Bodenproben. Die Zählrate y [cps] wurde bereits Quenchkorrigiert, der Umrechnungsfaktor w ist als Referenz angegeben. Das Inventar hier x [Bq/g] ist in Ermangelung eines Literaturvergleichs für Umweltproben nicht auf einen Messtag korrigiert als Referenzwert für die Nachweisgrenze verwendet worden. Die Probe mit[†] ist knapp unterhalb der Nachweisgrenze, aufgrund der Unsicherheiten wird sie jedoch als ausreichend betrachtet und nicht verworfen.

	Kartoffelboden	Kartoffelknolle
Probe	Akt Konz [Bq/g]	Akt Konz [Bq/g]
LN Bulk	3.5 ± 0.8	0.46 ± 0.14
LN 2	5.3 ± 1.0	0.51 ± 0.13
LN 4	4.0 ± 0.8	0.46 ± 0.13
LN 6	3.1 ± 0.6	0.43 ± 0.13
LN 7	4.4 ± 0.9	0.54 ± 0.15
LN 8	3.4 ± 0.7	0.80 ± 0.27
Ctrl Bulk	4.5 ± 0.9	
Ctrl 3	3.6 ± 0.9	0.44 ± 0.13
Ctrl 4	4.0 ± 0.8	
Ctrl 5	4.3 ± 0.8	0.69 ± 0.18
Ctrl 8	4.1 ± 0.9	$0.58^{\dagger} \pm 0.19$
Ctrl 9	5.4 ± 1.0	0.48 ± 0.15
SC Bulk	4.3 ± 0.9	0.66 ± 0.17
SC 1	4.6 ± 0.9	0.43 ± 0.13
SC 4	4.1 ± 0.9	0.55 ± 0.16
SC 5	5.1 ± 1.0	0.64 ± 0.17
SC 7	6.1 ± 1.1	0.63 ± 0.17
SC 10	4.6 ± 0.9	0.75 ± 0.18

Tab. 7.9: Aufgeführt ist das Inventar der Kartoffelproben, sortiert nach ihrer Position innerhalb der einzelnen Gruppen. Gruppen LN, Ctrl und SC. In gelb sind Proben, die aufgrund von Problemen bei der Abtrennung stark herausstechen und nicht gewertet werden können. Aktivitäten Normiert auf den 01.04.2019. Die Kartoffelpflanze Ctrl 8 (mit [†]) ist unterhalb der Nachweisgrenze, wird durch ihre Unsicherheit allerdings als Auswertbar betrachtet.



Abb. 7.2: Aufgeführt ist eine Kalibrationsgerade für die Aktivitäten 0.1 Bq bis 49 Bq. Für einen Linearitätstest ist ein linearer und ein quadratischer Fit durchgeführt worden. Werte zwischen 0 und 1 Bq sowie 4 und 50 Bq wurden einzeln angesetzt. Aus Notwendigkeit wurden die Werte zu einer Kalibration kombiniert.

	Roggenboden	Roggengrün
Probe	Akt Konz [Bq/g]	Akt Konz [Bq/g]
LN 1	1.4 ± 0.3	4.9 ± 1.0
LN 5	4.2 ± 0.8	9 ± 6
LN 10	3.3 ± 0.6	5.2 ± 1.0
LN 13	4.0 ± 0.8	8.6 ± 1.7
LN 17	3.6 ± 0.7	4.7 ± 0.9
Ctrl 1	3.6 ± 0.7	5.7 ± 1.8
Ctrl 5	5.0 ± 0.9	3.9 ± 1.0
Ctrl 9	2.2 ± 0.4	3.3 ± 0.6
Ctrl 13	2.3 ± 0.5	5.4 ± 1.1
Ctrl 17	4.1 ± 0.8	4.3 ± 1.1
SC 1	3.9 ± 0.8	5.9 ± 1.2
SC 5	2.7 ± 0.6	3.4 ± 0.7
SC 9	4.3 ± 0.8	6.6 ± 1.2
SC 13	3.6 ± 0.7	4.8 ± 1.0
SC 17	3.3 ± 0.6	4.8 ± 1.0

Tab. 7.10: Aufgeführt ist das Inventar der Roggenproben, sortiert nach ihrer Position innerhalb der einzelnen Gruppen. Gruppen LN, Ctrl und SC. Die Unsicherheiten beziehen sich dabei auf den Vertrauensbereich, ermittelt über DIN38402. Aktivitäten Normiert auf den 01.04.2019.

Position	TF zu Kartoffelkn.	Position	TF zu Roggengr.
LN Bulk	0.13 ± 0.05	LN 1	3.5 ± 1.1
LN 2	0.10 ± 0.03	LN 5	2.2 ± 1.4
LN 4	0.11 ± 0.04	LN 10	1.6 ± 0.4
LN 6	0.14 ± 0.05	LN 13	2.1 ± 0.6
LN 7	0.12 ± 0.04	LN 17	1.3 ± 0.4
LN 8	0.24 ± 0.09		
Ctrl 3	0.12 ± 0.05	Ctrl 1	1.6 ± 0.6
Ctrl 5	0.16 ± 0.05	Ctrl 5	0.78 ± 0.25
Ctrl 8	0.14 ± 0.05	Ctrl 9	1.5 ± 0.4
Ctrl 9	0.09 ± 0.03	Ctrl 13	2.4 ± 0.7
		Ctrl 17	1.1 ± 0.3
SC Bulk	0.16 ± 0.05	SC 1	1.5 ± 0.4
SC 1	0.09 ± 0.03	SC 5	1.3 ± 0.4
SC 4	0.13 ± 0.05	SC 9	1.5 ± 0.4
SC 5	0.13 ± 0.04	SC 13	1.4 ± 0.4
SC 7	0.10 ± 0.03	SC 17	1.5 ± 0.4
SC 10	0.17 ± 0.05		

Tab. 7.11: Transferfaktoren (TF), aufgeteilt in die Gruppen LN, Ctrl und SC. Auf der linken Seite sind die Faktoren für den Transfer vom Boden in das Kartoffelknolle, Rechts vom Boden in das Roggengrün. Fehlerangaben über Gaußsche Fehlerfortpflanzung angegeben.

x Sr-85-03



Radiolabeled Chemicals, Inc.

101 ARC Dr. St. Louis, MO 63146 U.S.A. Ph. (314) 991-4545 or (800) 331-6661 Fax (314) 991-4692 or (800) 999-9925 Web: http://www.arc-inc.com E-mail: arcinc@arc-inc.com

TECHNICAL DATA SHEET ARX 0108 Strontium-85 as 85SrCl₂

SPECIFIC LOT DATA:

Lot Number: 170630

Specific Activity 18.99 mCi/mg

Solvent: 0.5M HCl

07 Calibration Date: _

Concentration: 14.28 mCi/ml

Storage: Room Temperature

Contaminants 9.95E-2% Rb-84 4.81E-2% Rb-86

Half Life: 64.84 days

OCCUPATIONAL LIMITS:

Derived Air Concentration (DAC): 6 x 10-7 µCi/ml Annual Limit on Intace (ALI): 2mCi

DECAY TABLES:

To use the decay tables, find the number of days in the top and left hand columns, then find the corresponding decay factor.

				D	ays After	Calibratio	on			
	0	1	2	3	4	5	6	7	8	9
0	1.00	0.9894	0.9788	0.9684	0.9581	0.9480	0.9379	0.9279	0.9180	0.9083
10	0.8986	0.8891	0.8796	0.8703	0.8610	0.8518	0.8428	0.8388	0.8250	0.8162
20	0.8075	0.7989	0.7904	0.7820	0.7737	0.7655	0.7573	0.7493	0.7413	0.7334
30	0.7256	0.7179	0.7103	0.7027	0.6953	0.6879	0.6806	0.6733	0.6662	0.6591
40	0.6521	0.6451	0.6383	0.6315	0.6248	0.6181	0.6116	0.6051	0.5986	0.5923
30	0.5860	0.5797	0.5736	0.5675	0.5614	0.5555	0.5496	0.5437	0.5379	0.5322
20	0.5266	0.5210	0.5154	0.5099	0.5045	0.4991	0.4938	0.4886	0.4834	0.4783





Н	ARTMANN ANAL	YTIC GmbH. Steinrie	dendamm 15, DE-3810	Lieferschein			
I	nstitut für F	Radioökologi	e und		Nr.	Datum	Kunden Nr
F	rau Alemo	lar			311224	04.07.2017	100078
	Herrenhaus 30419 HAN DEUTSCH	NOVER ILAND		181677	BestDatum BestNummer	: 12.06.2017 : (per E-Mail	Seite: 1 / 1 besteilt)
	Waranompför	ger/Besteller:	Rechnungsadre	sse:	Auftrag-Nr.	: 181677	
	Institut für Radioökologie und		Institut für Radioökologie und Strahlenschutz		Versand	: tof	
	Herrenhäuse D 30419 HAN	rstr. 2 NOVER	Herrenhäuserst D 30419 Hanno	r, 2 wer	Versanddatum	: 04.07.2017	
	17 - 1977 - 19	40)	
Pos.	ITEM	Code	Nuklid	physik. Form	Menge		
	19167720	ARX0108	SR85	Flüssig	74,0 MBq (2,0	0 mCi)	007
20	10107720	Strontium-85	Radionuclide a	s strontium chi	DING		

UN2915 – RADIOAKTIVE STOFFE, TYP A – VERSANDSTÜCK, II-GELB, TI: 0,2

Gesamtaktivität :

74,0 MBq (2,00 mCi)

Quotient: 0,00

Ware ordnungsgemäß erhalten.

Datum / Unterschrift:

Verpackung und Bezettelung entsprechen den ADR-Regeln in der jeweils geltenden Form.

HARTMANN ANALYTIC GmbH Steinriedendamm 15, Geb 1G DE-38106 Braunschweig

Geschäftsführer: Dr. Ursula Hartmann und Dr. Heinrich Hartmann

HRB 3726 Amtsgericht Braunschweig Tei:+49 (0)531 260 280 Fax:+49 (0)531 260 2828 info@hartmann-analytic.de www.hartmann-analytic.de USt-ID: DE 163997555 Steuer-Nr.: 13/200/3493/2313

Zahlungen in EUR (€) Bank: Postbank Hannover IBAN: DE 36 2501 0030 0433 3353 09 BIC: PBNKDEFF250

Zahlungen in EUR (€) Bank: Braunschweigische Landessparkasse IBAN: DE28 2505 0000 0001 9349 34 BIC: NOLADE2HXX Zahlungen in USD (\$) Bank: Postbank Saarbrücken IBAN: DE95 5901 0066 0901 2846 62 BIC: PBNKDEFF590

Zahlungen in GBP (E) Bank: LloydsTS8 Account: 00990828 Sort Code: 30-91-91

Sr-85 Verdünnung				
Inventar Nr.:	xSr-85-03			
Ansatz:	13.07.2017			
Schraubglas:	Hartmann A	nalytic (ARC)		
chemische Zusammensetzung	HCL	0,5	mol/L	
der Trägerlösung				
Lösung in der Ampulle ldt. Kalibrierschein (m)		0,10531859	g	
Aktivität ltd. Kalibrierschein (a)		702630	kBq/g	
Gesamtaktivität berechnet (a)		74000	kBq	
Bezugszeitpunkt ldt. Kalibrierschein	07.07.2017			

Flasche Deckel inkl. Verdünnungslösung (m)	358,774681	g
Flasche Deckel leer (m)	238,68	g
Verdünnungslösung berechnet (m)	120,094681	g

Gewichte sind ohne Edikett

Verdünnungslösung (m)	120,094681	g
Ampullenlösung (m)	0,10531859	g
Gesamtmasse Lösung (m)	120,2	g

Aktivität der Verdünnung		615,641 kBq/g
Verdünnungsfaktor:	k	0,00087619
chemische Zusammensetzung	HCI	0,5 mol/L

100 µl	61,5640599	kBq
	100 µl	100 μl 61,5640599



Nationales Metrologieinstitut

× Sr 85-04



Kalibrierschein

Calibration Certificate

Gegenstand: Object:

Hersteller:

Manufacturer:

Typ:

Type:

Aktivitätsnormal Activity standard

Physikalisch-Technische Bundesanstalt Fachbereich 6.1

Wässrige Lösung in Glasampulle (AM05) Aqueous solution in glass ampoule (AM05)

Kennnummer: Serial No.:

Auftraggeber: Customer: 2019-1845

Institut für Radioökologie und Strahlenschutz (IRS) Leibniz Universität Hannover Herrenhäuser Str. 2

30419 Hannover

PTB-6.11-296/17.2020

PTB-6.11-2019-1845

PTB Braunschweig

4

Anzahl der Seiten: Number of pages:

Geschäftszeichen: Reference No.:

Kalibrierzeichen: Calibration mark:

Ort der Kalibrierung: Location of calibration:

Datum der Kalibrierung: Date of calibration:

Im Auftrag On behalf of PTB

Dr. O. Nähle

Braunschweig, 28.01.2020

Siegel _{Seal}

28.01.2020

gel

Im Auftrag On behalf of PTB

M. Ehlers

Kalibrierscheine ohne Unterschrift und Siegel haben keine Gültigkeit. Dieser Kalibrierschein darf nur unverändert weiterverbreitet werden. Auszüge bedürfen der Genehmigung der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt. Die dargestellten Ergebnisse beziehen sich nur auf die kalibrierten Gegenstände.

Calibration Certificates without signature and seal are not valid. This Calibration Certificate may not be reproduced other than in full. Extracts may be taken only with the permission of the Physikalisch-Technische Bundesanstalt. The presented results relate only to the items calibrated.
Seite 2 zum Kalibrierschein vom 28.01.2020, Kalibrierzeichen: PTB-6.11-2019-1845 Page 2 of the Calibration Certificate dated 28.01.2020, calibration mark: PTB-6.11-2019-1845

Gegenstand: Object:

Typ: Type:

Kennnummer: Serial No.:

Radionuklid: Radionuclide:

Chemische Zusammensetzung der wässrigen Lösung: Chemical composition of the aqueous solution:

Kalibrierverfahren: Method of calibration: Aktivitätsnormal Activity standard

Wässrige Lösung in Glasampulle (AM05) Aqueous solution in glass ampoule (AM05)

2019-1845

Strontium-85 Strontium-85

HCI 0,1 mol/L SrCl₂ 30 mg/L

Die Lösung wurde durch definierte Mischung einer Ausgangslösung bekannter spezifischer Aktivität mit einem Verdünnungsmittel hergestellt. Die spezifische Aktivität der verwendeten Ausgangslösung wurde durch Messung der Photonenstrahlung mit einer 4π -Ionisationskammer bestimmt. Die 4π -Ionisationskammer ist eine Sekundärnormal-Messeinrichtung, kalibriert mit Aktivitätsnormalen der PTB.

Die spezifische Aktivität dieses Aktivitätsnormals ergibt sich aus der spezifischen Aktivität und der Lösungsmasse der verwendeten Ausgangslösung und der Gesamtmasse der durch Mischung hergestellten Lösung.

Die Aktivität dieses Aktivitätsnormals ergibt sich aus dessen spezifischer Aktivität und Lösungsmasse.

Die Lösungsmassen wurden durch Wägung bestimmt.

The solution was prepared by a defined mixture of a parent solution of known specific activity (activity divided by mass of solution) and a carrier solution. The specific activity of the parent solution was determined by measuring its photon radiation with a 4π ionization chamber. The 4π ionization chamber is a secondary-standard measuring system calibrated by means of activity standards of PTB.

The specific activity of this activity standard follows from the specific activity and the mass of the applied parent solution and the total mass of the mixed solution.

The activity of this activity standard follows from its specific activity and the mass of the solution.

The masses of the solutions were determined by weighing.



This calibration certificate is written in German. In case of any conflict between the German language version and the English translation of it, the German version shall prevail.

PTB | Physikalisch-Technische Bundesanstalt | Nationales Metrologieinstitut

Seite 3 zum Kalibrierschein vom 28.01.2020, Kalibrierzeichen: PTB-6.11-2019-1845 Page 3 of the Calibration Certificate dated 28.01.2020, calibration mark: PTB-6.11-2019-1845

Lösungsmasse: Mass of solution:

Spezifische Aktivität: Specific activity:

Bezugszeitpunkt: Reference date:

Radioaktive Verunreinigungen: Radioactive impurities:

Messunsicherheit: Uncertainty of measurement:

Bemerkung: Remark:



 $m = (2,0259 \pm 0,0017)$ g

 $a = (1075 \pm 11) \text{ kBq/g}$

1. Februar 2020, 00:00 Uhr MEZ 00:00 CET on 1 February 2020

Die verwendete Ausgangslösung wurde mit einem kalibrierten Halbleiterspektrometer auf gammastrahlende radioaktive Verunreinigungen geprüft. Dabei wurden Rb-84 und Fe-59 mit folgenden Aktivitätsanteilen nachgewiesen:

 $A(\text{Rb-84})/A(\text{Sr-85}) = (2,59 \pm 0,16) \cdot 10^{-4}$ $A(\text{Fe-59})/A(\text{Sr-85}) = (1,80 \pm 0,12) \cdot 10^{-4}$

am Bezugszeitpunkt.

Die oben angegebene spezifische Aktivität bezieht sich allein auf Sr-85.

The parent solution was checked for gamma-emitting radioactive impurities using a calibrated semiconductor spectrometer. The following activity portions of Rb-84 and Fe-59 were detected:

 $A(Rb-84)/A(Sr-85) = (2.59 \pm 0.16) \cdot 10^{-4}$ $A(Fe-59)/A(Sr-85) = (1.80 \pm 0.12) \cdot 10^{-4}$

on the reference date.

The specific activity stated above refers to Sr-85 only.

Angegeben ist die erweiterte Messunsicherheit, die sich aus der Standardmessunsicherheit durch Multiplikation mit dem Erweiterungsfaktor k = 2 ergibt. Sie wurde gemäß dem "Guide to the Expression of Uncertainty in Measurement (GUM)" ermittelt. Der Wert der Messgröße liegt dann im Regelfall mit einer Wahrscheinlichkeit von annähernd 95 % im zugeordneten Überdeckungsintervall.

The uncertainty stated is the expanded measurement uncertainty obtained by multiplying the standard measurement uncertainty by the coverage factor k = 2. It has been determined in accordance with the "Guide to the Expression of Uncertainty in Measurement (GUM)". The value of the measurand then normally lies, with a probability of approximately 95 %, within the attributed coverage interval.

Es wird empfohlen, für Umrechnungen der Aktivität auf einen anderen Bezugszeitpunkt die Halbwertszeit $T_{1/2}$ (Sr-85) = (64,850 ± 0,014) Tage zu verwenden. Diese wurde in *M.-M. Bé et al., Table of radionuclides, Monographie BIPM-5, vol. 1, Bureau International des Poids et Mesures, Pavillon de Breteuil, F-92310 Sèvres, France, 2004, ISBN 92-822-2206-3* veröffentlicht.

For calculating the activity at a different reference date it is recommended to use the half-life $T_{1/2}(Sr-85) = (64.850 \pm 0.014)$ days. It was published in M.-M. Bé et al., Table of radionuclides, Monographie BIPM-5, vol. 1, Bureau International des Poids et Mesures, Pavillon de Breteuil, F-92310 Sèvres, France, 2004, ISBN 92-822-2206-3.

This calibration certificate is written in German. In case of any conflict between the German language version and the English translation of it, the German version shall prevail.

PTB | Physikalisch-Technische Bundesanstalt | Nationales Metrologieinstitut

Seite 4 zum Kalibrierschein vom 28.01.2020, Kalibrierzeichen: PTB-6.11-2019-1845 Page 4 of the Calibration Certificate dated 28.01.2020, calibration mark: PTB-6.11-2019-1845

Die Physikalisch-Technische Bundesanstalt (PTB) in Braunschweig und Berlin ist das nationale Metrologieinstitut und die technische Oberbehörde der Bundesrepublik Deutschland für das Messwesen. Die PTB gehört zum Geschäftsbereich des Bundesministeriums für Wirtschaft und Energie. Sie erfüllt die Anforderungen an Kalibrier- und Prüflaboratorien auf der Grundlage der DIN EN ISO/IEC 17025.

Zentrale Aufgabe der PTB ist es, die gesetzlichen Einheiten in Übereinstimmung mit dem Internationalen Einheitensystem (SI) darzustellen, zu bewahren und weiterzugeben. Die PTB steht damit an oberster Stelle der metrologischen Hierarchie in Deutschland. Die Kalibrierscheine der PTB dokumentieren eine auf nationale Normale rückgeführte Kalibrierung.

Dieser Ergebnisbericht ist in Übereinstimmung mit den Kalibrier- und Messmöglichkeiten (CMCs), wie sie im Anhang C des gegenseitigen Abkommens (MRA) des Internationalen Komitees für Maße und Gewichte enthalten sind. Im Rahmen des MRA wird die Gültigkeit der Ergebnisberichte von allen teilnehmenden Instituten für die im Anhang C spezifizierten Messgrößen, Messbereiche und Messunsicherheiten gegenseitig anerkannt (nähere Informationen unter <u>http://www.bipm.org</u>).

Diese Aussage und das CIPM-MRA-Logo beziehen sich nur auf die Messergebnisse in diesem Kalibrierschein.



The Physikalisch-Technische Bundesanstalt (PTB) in Braunschweig and Berlin is the National Metrology Institute and the supreme technical authority of the Federal Republic of Germany for metrology. The PTB comes under the auspices of the Federal Ministry of Economics and Energy. It meets the requirements for calibration and testing laboratories as defined in DIN EN ISO/IEC 17025.

The central task of PTB is to realize, to maintain and to disseminate the legal units in compliance with the International System of Units (SI). PTB thus is at the top of the metrological hierarchy in Germany. The calibration certificates issued by PTB document a calibration traceable to national measurement standards.

This certificate is consistent with the Calibration and Measurement Capabilities (CMCs) that are included in Appendix C of the Mutual Recognition Arrangement (MRA) drawn up by the International Committee for Weights and Measures (CIPM). Under the MRA, all participating institutes recognize the validity of each other's calibration and measurement certificates for the quantities, ranges and measurement uncertainties specified in Appendix C (for details, see <u>http://www.bipm.org</u>).

The CIPM MRA Logo and this statement attest only to the measurement component of the certificate.

Physikalisch-Technische Bundesanstalt Bundesallee 100 38116 Braunschweig DEUTSCHLAND

Abbestraße 2-12 10587 Berlin DEUTSCHLAND

PTB | Physikalisch-Technische Bundesanstalt | Nationales Metrologieinstitut

Physikalisch-Technische Bundesanstalt

Braunschweig und Berlin

Empfänger:	Absender:	
Institut für Radioökologie und Strahlenschutz (IRS) Leibniz Universität Hannover	₽TB, Arbeitsgrup Bundesallee 100,	pe 6.11 Aktivitätseinheit D-38116 Braunschweig
Herrenhäuser Str. 2	Geschäftszeichen:	6.11-296/17.19
·	Sachbearbeiter:	Frau Ehlers
30419 Hannover	Telefon:	0531-592-6315
	Telefax:	0531-592-6305

Bezug: Bestellung Dr. Stefanf Bister Braunschweig, 04.02.2020

Beförderungspapier zum Transport radioaktiver Stoffe auf der Straße

Verpackung: 1 Karton Masse: 2 kg

Inhalt: 1 Aktivitätsnormal als Lösung in einer Glasampulle zu 2 gl Sr-85 (2019-1845) Aktivität 2,2 MBq

UN 2915. Radioaktive Stoffe, Typ A-Versandstück, 7, (E) ADR.

Radionuklid(e): Sr-85

Phys./chem. Zustand: Flüssig / Lösung

Aktivität: 2,2 MBq

Kategorie: II-gelb

Transportkennzahl: 0,1

Besondere Maßnahmen gemäß Abschnitt 5.4.1.2.5.2 ADR sind nicht erforderlich.

Trans-o-flex Lieferservice

hat die Sendung am in einem äußerlich einwandfreiem Zustand übernommen.

Unterschrift:

Ausgeschrieben:

Verpackt:





Kalibrierschein

Calibration Certificate

PTB-6.11-2005-1704





x S+ 90-09

Kalibrierschein

Calibration Certificate

Gegenstand: Object:

Aktivitätsnormal Activity standard

Hersteller: Manufacturer:

Typ: Type:

Kenn-Nummer: Serial No.:

Auftraggeber: Applicant:

Physikalisch-Technische Bundesanstalt Fachbereich 6.1

Wässrige Lösung in Glasampulle (AM) Aqueous solution in glass ampoule (AM)

2005-1704

Institut für Radioökologie und Strahlenschutz Herrenhäuser Straße 2

30149 Hannover

4

Anzahl der Seiten: Number of pages:

Geschäftszeichen: Reference No .:

Kalibrierzeichen: Calibration mark:

Datum der Kalibrierung: Date of calibration:

Im Auftrag On behalf of PTB

Dr. O. Nähle

Braunschweig, 21.07.2015

21.07.2015

PTB-6.11-277/24.2015

PTB-6.11-2005-1704



Im Auftrag On behalf of PTB

M. Chlers

M. Ehlers

Kalibrierscheine ohne Unterschrift und Siegel haben keine Gültigkeit. Dieser Kalibrierschein darf nur unverändert weiterverbreitet werden. Auszüge bedürfen der Genehmigung der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt. Calibration certificates without signature and seal are not valid. This calibration certificate may not be reproduced other than in full. Extracts may be taken only with the permission of the Physikalisch-Technische Bundesanstalt.



Seite 2 zum Kalibrierschein vom 21.07.2015, Kalibrierzeichen: PTB-6.11-2005-1704 Page 2 of calibration certificate of 21.07.2015, calibration mark: PTB-6.11-2005-1704

Gegenstand: Object:

Typ: Type: Aktivitätsnormal Activity standard

Wässrige Lösung in Glasampulle (AM) Aqueous solution in glass ampoule (AM)

0.1 mol/L

30 mg/L

30 mg/L

25

Kenn-Nummer: Serial number:

Radionuklid: Radionuclide: Strontium-90 Strontium-90

HCI

SrCl₂

YCl₃

2005-1704

Chemische Zusammensetzung der wässrigen Lösung: Chemical composition of the aqueous solution:

Kalibrierverfahren: Method of calibration:



Die Lösung wurde durch definierte Mischung einer Ausgangslösung bekannter spezifischer Aktivität mit einem Verdünnungsmittel hergestellt. Die spezifische Aktivität der verwendeten Ausgangslösung wurde mit einem Flüssigszintillations-Spektrometer nach der CIEMAT/NIST-Methode mit H-3 als Tracer bestimmt. Das Messverfahren wurde in *Metrologia 44 (2007), S36-S52* beschrieben.

Die spezifische Aktivität dieses Aktivitätsnormals ergibt sich aus der spezifischen Aktivität und der Lösungsmasse der verwendeten Ausgangslösung und der Gesamtmasse der durch Mischung hergestellten Lösung.

Die Aktivität dieses Aktivitätsnormals ergibt sich aus dessen spezifischer Aktivität und Lösungsmasse.

Die Lösungsmassen wurden durch Wägung bestimmt.

The solution was prepared by a defined mixture of a parent solution of known specific activity (activity divided by mass of solution) and a carrier solution. The specific activity of the parent solution was determined by means of a liquid scintillation spectrometer by the CIEMAT/NIST method, using H-3 as tracer. The measurement procedure was described in Metrologia 44 (2007), S36-S52.

The specific activity of this activity standard follows from the specific activity and the mass of the applied parent solution and the total mass of the mixed solution.

The activity of this activity standard follows from its specific activity and the mass of the solution.

The masses of the solution were determined by weighing.

This calibration certificate is written in German. In case of any conflict between the German language version and the English translation of it, the German version shall prevail.



Seite 3 zum Kalibrierschein vom 21.07.2015, Kalibrierzeichen: PTB-6.11-2005-1704 Page 3 of calibration certificate of 21.07.2015, calibration mark: PTB-6.11-2005-1704

Lösungsmasse: Mass of solution:

Spezifische Aktivität: Specific activity:

Bezugszeitpunkt: Reference date:

Messunsicherheit: Uncertainty of measurement:

Bemerkung: Remark: $m = (2,0278 \pm 0,0017)$ g

 $a = (329 \pm 5) \text{ kBq/g}$

1. Juli 2015, 00:00 Uhr MEZ 00:00 CET on 1 July 2015

Angegeben ist die erweiterte Messunsicherheit, die sich aus der Standardmessunsicherheit durch Multiplikation mit dem Erweiterungsfaktor k = 2 ergibt. Sie wurde gemäß dem "Guide to the Expression of Uncertainty in Measurement (GUM)" ermittelt. Der Wert der Messgröße liegt dann im Regelfall mit einer Wahrscheinlichkeit von annähernd 95 % im zugeordneten Überdeckungsintervall.

The uncertainty stated is the expanded measurement uncertainty obtained by multiplying the standard measurement uncertainty by the coverage factor k = 2. It has been determined in accordance with the "Guide to the Expression of Uncertainty in Measurement (GUM)". The value of the measurand then normally lies, with a probability of approximately 95 %, within the attributed coverage interval.

Die spezifische Aktivität bezieht sich allein auf Sr-90. Y-90 befindet sich im radioaktiven Gleichgewicht mit Sr-90.

The activity divided by mass (specific activity) refers to Sr-90 only. Y-90 is in radioactive equilibrium with Sr-90.



This calibration certificate is written in German. In case of any conflict between the German language version and the English translation of it, the German version shall prevail.



Seite 4 zum Kalibrierschein vom 21.07.2015, Kalibrierzeichen: PTB-6.11-2005-1704 Page 4 of calibration certificate of 21.07.2015, calibration mark: PTB-6.11-2005-1704

Die Physikalisch-Technische Bundesanstalt (PTB) in Braunschweig und Berlin ist das nationale Metrologieinstitut und die technische Oberbehörde der Bundesrepublik Deutschland für das Messwesen. Die PTB gehört zum Geschäftsbereich des Bundesministeriums für Wirtschaft und Energie. Sie erfüllt die Anforderungen an Kalibrierund Prüflaboratorien auf der Grundlage der DIN EN ISO/IEC 17025.

Zentrale Aufgabe der PTB ist es, die gesetzlichen Einheiten in Übereinstimmung mit dem Internationalen Einheitensystem (SI) darzustellen, zu bewahren und weiterzugeben. Die PTB steht damit an oberster Stelle der metrologischen Hierarchie in Deutschland. Die Kalibrierscheine der PTB dokumentieren eine auf nationale Normale rückgeführte Kalibrierung.

Dieser Ergebnisbericht ist in Übereinstimmung mit den Kalibrier- und Messmöglichkeiten (CMCs), wie sie im Anhang C des gegenseitigen Abkommens (MRA) des Internationalen Komitees für Maße und Gewichte enthalten sind. Im Rahmen des MRA wird die Gültigkeit der Ergebnisberichte von allen teilnehmenden Instituten für die im Anhang C spezifizierten Messgrößen, Messbereiche und Messunsicherheiten gegenseitig anerkannt (nähere Informationen unter http://www.bipm.org).



The Physikalisch-Technische Bundesanstalt (PTB) in Braunschweig and Berlin is the National Metrology Institute and the supreme technical authority of the Federal Republic of Germany for metrology. The PTB comes under the auspices of the Federal Ministry of Economics and Energy. It meets the requirements for calibration and testing laboratories as defined in DIN EN ISO/IEC 17025.

The central task of PTB is to realize, to maintain and to disseminate the legal units in compliance with the International System of Units (SI). PTB thus is at the top of the metrological hierarchy in Germany. The calibration certificates issued by PTB document a calibration traceable to national measurement standards.

This certificate is consistent with the Calibration and Measurement Capabilities (CMCs) that are included in Appendix C of the Mutual Recognition Arrangement (MRA) drawn up by the International Committee for Weights and Measures (CIPM). Under the MRA, all participating institutes recognize the validity of each other's calibration and measurement certificates for the quantities, ranges and measurement uncertainties specified in Appendix C (for details, see http://www.bipm.org).

Physikalisch-Technische Bundesanstalt Bundesallee 100 38116 Braunschweig DEUTSCHLAND

Abbestraße 2-12 10587 Berlin DEUTSCHLAND

Physikalisch-Technische Bundesanstalt

Braunschweig und Berlin

Empfohlene Radionukliddaten

Stand: 01.01.2010

Radionuklid:	Sr-90 und Y-90 im radioaktiven Gleichgewicht	
Halbwertszeit:	<i>T</i> ½ (Sr-90) = 1,0523(35)·10 ⁴ Tage <i>T</i> ½ (Y-90) = 2,6689(9) Tage	[28,81(10) Jahre]

Betastrahlen-Energien E_{max} und \overline{E} und –Emissionswahrscheinlichkeit p_{B} :

Stra typ	hlungs-	. E _{max} in keV	<i>Ē</i> in keV	p_{β}	
β_1^-	Sr-90	546(2)	196(1)	1,0	
β_2^-	Y-90	532,2(25)	188(1)	0,00016(7)	
β_3^-	Y-90	2283,9(25)	939(1)	0,99984(7)	

Messunsicherheiten:

Die Ziffern in Klammern hinter dem Zahlenwert einer Messgröße geben die Messunsicherheit in der(n) letzten Stelle(n) des Zahlenwertes an. Die Messunsicherheiten entsprechen der einfachen Standardabweichung.

Literatur:

Schötzig, U. und Schrader, H.:

Halbwertszeiten und Photonen-Emissionswahrscheinlichkeiten von häufig verwendeten Radionukliden; PTB-Bericht PTB-Ra-16/5, Braunschweig 1998, ISBN 3-89701-279-0

Lagoutine, F., Coursol, N. und Legrand, J.: Table de radionucléides; LMRI, F-91193 Gif-sur-Yvette 1982-1987, ISBN 2-7272-0078-1

Kossert, K. und Schrader, H.: Applied Radiation and Isotopes 60 (2004), 741-749

X S \sim 90 - 09 Physikalisch-Technische Bundesanstalt

Braunschweig und Berlin

Empfänger:

Institut für Radioökologie und Strahlenschutz (ehemals: Zentrum f. Strahlenschutz und Radioökologie) Herrenhäuser Straße 2

30419 Hannover

Bezug: Mail Frau Erb-Bunnenberg vom 20.07.2015

Absender:

PTB, Arbeitsgruppe 6.11 Aktivitätseinheit Bundesallee 100, D-38116 Braunschweig

Geschäftszeichen:	6.11-277/24 15
Sachbearbeiter:	Frau Ehlers
Telefon:	0531-592-6315
Telefax:	0531-592-6305

Braunschweig, 22.07.2015

Beförderungspapier zum Transport radioaktiver Stoffe auf der Straße

Verpackung: 1 Karton

Masse: kg

Inhalt: 1 Aktivitätsnormal Sr-90 (2005-1704) als Lösung in einer Glasampulle zu 2 g Gesamtaktiviät: 668 kBg

UN 2910, Radioaktive Stoffe, freigestelltes Versandstück, begrenzte Stoffmenge, 7, (E) ADR.

TNT Lieferservice

hat die Sendung am <u>22.7-2015</u> übernommen.

Unterschrift:

Literatur

- O. Hahn and F. Strassmann, "Über den Nachweis und das Verhalten der bei der Bestrahlung des Urans mittels Neutronen entstehenden Erdalkalimetalle," *Die Naturwissenschaften*, 1939.
- [2] A.-M. Ampère, "Ueber einen von Hrn. Hyppolyte Pixii mit einem Apparat von seiner Erfindung angestellten Versuch, die Erzeugung elektrischer Ströme durch Rotation eines Magneten betreffend," Annalen der Physik und Chemie, 1833.
- [3] A. Aarkrog, H. Dahlgaard, S. P. Nielsen, A. V. Trapeznikov, I. V. Molchanova, V. N. Pozolotina, E. N. Karavaeva, P. I. Yushkov, and G. G. Polikarpov, "Radioactive inventories from the Kyshtym and Karachay accidents: Estimates based on soil samples collected in the South Urals (1990-1995)," *Science of the Total Environment*, 1997.
- [4] G. Steinhauser, A. Brandl, and T. E. Johnson, "Comparison of the Chernobyl and Fukushima nuclear accidents: A review of the environmental impacts." *The Science* of the total environment, vol., vol. 470-471, pp. pp. 800–817, 2014.
- [5] Wikipedia, "New Safe Confinement," 2020. [Online]. Available: https://de. wikipedia.org/wiki/New{_}Safe{_}Confinement
- [6] UNSCEAR, "Sources and Effects of Ionizing Radiation Annex C, D e E," pp. 99–101, 2008.
- [7] —, "Exposure and Effects of Chernobyl Accident," pp. 453–551, 2000. [Online]. Available: http://www.unscear.org/unscear/en/publications/2000{_}2.html
- [8] V. A. Kashparov, S. M. Lundin, S. I. Zvarych, V. I. Yoshchenko, S. E. Levchuk, Y. V. Khomutinin, I. M. Maloshtan, and V. P. Protsak, "Territory contamination with the radionuclides representing the fuel component of Chernobyl fallout," *Science of the Total Environment*, 2003.
- [9] W. Schulz, "Untersuchung des Migrationsverhaltens von Radionukliden in Umweltkompartimenten mit Spektroskopischen und Massenspektrometrischen Methoden," Dissertation, Leibniz Universität Hannover, 2020.
- [10] H.-G. Vogt, J.-W. Vahlbruch, H.-G. Vogt, and J.-W. Vahlbruch, Grundzüge des praktischen Strahlenschutzes. Hanser, 2019.
- [11] F. J. Guillen, A. Baeza, and A. Salas, "Strontium," in *Radionuclides in the Envi*ronment, D. A. Atwood, Ed., 2020, ch. Strontium, pp. 79–93.
- [12] D. K. Gupta and C. Walther, "Behaviour of strontium in plants and the environment," 2017.

- [13] Nucleonica GmbH, "Nucleonica," 2020. [Online]. Available: https://nucleonica. com/
- [14] S. Ehlken and G. Kirchner, "Environmental processes affecting plant root uptake of radioactive trace elements and variability of transfer factor data: A review," *Journal* of Environmental Radioactivity, vol. 58, no. 2-3, pp. 97–112, 2002.
- [15] S. Sheppard, "Review of "Handbook of Parameter Values for the Prediction of Radionuclide Transfer in Terrestrial and Freshwater Environments"," *Journal of Environmental Radioactivity*, vol. 102, no. 2, p. 217, 2011.
- [16] W. Schulz, D. K. Gupta, B. Riebe, G. Steinhauser, and C. Walther, "Sorption of radiostrontium on various soils," *Applied Geochemistry*, vol. 101, no. March 2018, pp. 103–108, 2019. [Online]. Available: https://doi.org/10.1016/j.apgeochem.2019. 01.001
- [17] D. K. Gupta, W. Schulz, G. Steinhauser, and C. Walther, "Radiostrontium transport in plants and phytoremediation," pp. 29996–30008, 2018.
- [18] H. Zeien and G. W. Brümmer, "Chemische Extraktionen zur Bestimmung von Schwermetallbindungsformen in Böden," pp. 505–510, 1989.
- [19] M. Viebrock, "Untersuchungen zur Extrahierbarkeit von Radionukliden aus Bodenproben an einem Beispiel aus Tschernobyl," p. 96, 2018.
- [20] H. M. Cullings, "Impact on the Japanese atomic bomb survivors of radiation received from the bombs," *Health Physics*, 2014.
- [21] S.-S. Moebius and T. L. Moebius, "LSC Handbuch Flüssigszintillation Stand der Technik und neuere entwicklungen zur Bestimmung natürlicher Radionuklide," Karlsruhe, 2008.
- [22] Perkin Elmer, "1220 Quantulus Instrument manual," p. 210, 2002.
- [23] Wikipedia, "Normalverteilung." [Online]. Available: https://de.wikipedia.org/ wiki/Normalverteilung{#}/media/Datei:Standard{_}deviation{_}diagram.svg
- [24] —, "Statistische Signifikanz," 2020. [Online]. Available: https://de.wikipedia. org/wiki/Statistische{_}Signifikanz
- [25] Google Maps, "Testfeld bei Tschernobyl," 2020. [Online]. Available: https://www.google.com/maps/@51.3673878,30.1081796,4517m/data=!3m1!1e3
- [26] N. Schumann, "Gammaspektrometrische Untersuchungen zum Einfluss von bodenlebenden Pilzkulturen auf den Radionuklidtransfer in Roggenpflanzen aus der Sperrzone von Tschernobyl," 2018.

- [27] F. Stäger, "Gamma-spektrometrische Untersuchungen zum Einfluss bodenlebender Pilzkulturen auf die Radionuklidaufnahme von Kartoffeln in der Sperrzone von Tschernobyl," p. 21, 2018.
- [28] Hartmann Analytic, "Kalibrierschein Sr85-03," p. 3, 2017.
- [29] A. Weller, "Determination of strontium-90 in food concentrates from Japan," p. 71, 2017.
- [30] Physikalisch-Technische Bundesprüfanstalt, "Kalibrierschein Sr85-04," Braundschweig und Berlin, p. 5, 2019.
- [31] TRISKEM, "Product Sheet SR Resin." [Online]. Available: https://www.triskem-international.com/scripts/files/5c585b0660e066. 42767457/PS{_}SR-Resin{_}EN{_}160927.pdf
- [32] E. Technologies, "Determination of Sr-89/90 in water samples, modified version of Eichrom method SRW01-14." [Online]. Available: https://www.eichrom.com/ wp-content/uploads/2018/02/srw01-15{_}sr-water-vbs.pdf
- [33] B. L. Rosenberg, J. E. Ball, K. Shozugawa, G. Korschinek, M. Hori, K. Nanba, T. E. Johnson, A. Brandl, and G. Steinhauser, "Radionuclide pollution inside the Fukushima Daiichi exclusion zone, part 1: Depth profiles of radiocesium and strontium-90 in soil," *Applied Geochemistry*, vol. 85, pp. 201–208, 2017.
- [34] Sigma-Aldrich, "UltimaGold," 2020. [Online]. Available: https://www. sigmaaldrich.com/catalog/product/sigma/l8286?lang=de{&}region=DE
- [35] —, "Sicherheitsdatenblatt: Ultima Gold LSC Cocktail," p. 8, 2019.
- [36] Physikalisch-Technische Bundespr
 üfanstalt, "Kalibrierschein Sr90-09," Braundschweig und Berlin, p. 7, 2005.
- [37] OriginLab Corporation, "Origin," 2020. [Online]. Available: https://www.originlab. com/
- [38] Deutsche Norm, "DIN 38402 Teil51 Kalibrierung von Analyseverfahren.pdf," p. 16, 1986.
- [39] —, "DIN ISO 11929-1 VDE 0493-9291:2020-03," p. 51, 2020.
- [40] Bundesministerium der Justiz und für Verbraucherschutz, "Bekanntmachung Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und nukleare Sicherheit," 2020.
- [41] "Strahlenschutzverordnung (BGBl. I Nr 41; 2018 I S. 2034)," 2018.
- [42] AKU, "Radioaktivität und Strahlung Grenzwerte und Richtwerte," pp. 1–77, 2002.

- [43] BMU, "Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung Jahresbericht 2016," pp. 1–308, 2018.
- [44] Time and Date AS, "Wetterdaten Pripyat 2018." [Online]. Available: https://www.timeanddate.de/wetter/@8161578/rueckblick?month=5{&}year=2018