



Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover Zentrum für Strahlenschutz und Radioökologie

# $\begin{array}{c} {\rm Transfer \ von \ }^{137}{\rm Cs \ in \ die} \\ {\rm Nahrungskette \ in \ hochkontaminierten} \\ {\rm Gebieten \ der \ n\"ordlichen \ Ukraine} \end{array}$

Masterarbeit zur Erlangung des Grades "Master of Education" Erstprüfer: Prof. Dr. Rolf Michel Zweitprüfer: Dr. Ingo Leya

> von Jens Rother Hannover, den 17. September 2009

# Inhaltsverzeichnis

1.	Einl	eitung	1
	1.1.	Aufgal	penstellung
	1.2.	Emissi	on von Radionukliden beim Reaktorunfall in Tschernobyl 2
2.	Phy	sikalisc	he Grundlagen 5
	2.1.	Radioa	aktiver Zerfall
		2.1.1.	Alphazerfall
		2.1.2.	Betazerfall
		2.1.3.	Gammazerfall
	2.2.	Künstl	liche und natürliche Radionuklide
		2.2.1.	Plutonium, Strontium und Caesium
	2.3.	Radioa	aktives Gleichgewicht
	2.4.	Wechs	elwirkung von Strahlung mit Materie
	2.5.	Funkti	onsweise von HPGe-Halbleiterdetektoren
		2.5.1.	Eigenschaften eines Detektors
		2.5.2.	Charakteristische Peaks im Spektrum
		2.5.3.	Nulleffekt und Abschirmung
	2.6.	Statist	ische Grenzen eines Messprozesses
		2.6.1.	Direkte und indirekte Messung
		2.6.2.	Erkennungsgrenze
		2.6.3.	Nachweisgrenze
		2.6.4.	Vertrauensgrenzen
		2.6.5.	Bester Schätzwert
		2.6.6.	Charakteristische Grenzen der spezifischen Aktivität
3.	Best	timmur	ng der Transferfaktoren für <sup>137</sup> Cs 24
	3.1.	Vorber	reitung der Proben
	3.2.	Messu	ng der Proben mittels Gammaspektrometrie
		3.2.1.	Auswertung der Spektren
		3.2.2.	Bestimmung der Nachweiswahrscheinlichkeit
	3.3.	Berech	nung der Transferfaktoren
		3.3.1.	Verhältnis von Frischmasse zu Trockenmasse
		3.3.2.	Transfer von <sup>137</sup> Cs in die Nahrungskette
	3.4.	Qualit	$\tilde{a}$ tssicherung
		3.4.1.	Kalibrierung der Waage
		3.4.2.	Nulleffektmessungen

# $\label{eq:Inhaltsverzeichnis}$

3.4.3. Doppelmessungen	42	
4. Zusammenfassung und Diskussion	44	
A. Anhang	46	
B. Datenblätter	55	
Abkürzungsverzeichnis		
Literaturverzeichnis		
Eigenständigkeitserklärung		
Danksagung		

# Abbildungsverzeichnis

1.1.	Karte der nördlichen Ukraine
1.2.	Zeitliche Radionuklidfreisetzung beim Unfall von Tschernobyl
2.1.	Wirkungsquerschnitt von Germanium
2.2.	Schema eines Messplatzes zur Gammaspektrometrie
2.3.	Verschiedene Ausführungen eines HPGe-Detektorkristalls
2.4.	Spektrum der Probe JR09K3 16
2.5.	Nulleffektspektrum des Detektors EMMI 17
2.6.	Erkennungs- und Nachweisgrenze 19
2.7.	Vertrauensgrenzen
3.1.	Bestimmung der Nettopeakfläche
3.2.	QCY48-Standardpräparate
3.3.	Migrationswege von <sup>137</sup> Cs
3.4.	Transfer von $^{137}$ Cs in Kartoffeln
3.5.	Transfer von $^{137}$ Cs in Karotten
3.6.	Transfer von $^{137}$ Cs in Rote Bete
3.7.	Kontrollmessungen sechs ausgewählter Proben
A.1.	Bodenarten des Feinbodens nach der US-Soil-Taxonomy

# Tabellenverzeichnis

2.1.	Alphastrahlende Radiumisotope mit Halbwertszeit und Energie	7
2.2.	Strahlenschutzrelevante Radionuklide aus dem Unfall von Tschernobyl $.$ .	10
3.1.	Verhältnis von Trockenmasse zu Frischmasse bei Kartoffeln	33
3.2.	Verhältnis von Trockenmasse zu Frischmasse bei Karotten	34
3.3.	Verhältnis von Trockenmasse zu Frischmasse bei Rote Bete	34
3.4.	Verhältnis von Trockenmasse zu Frischmasse bei Flussalgen	34
3.5.	Verhältnis von Aschemasse zu Frischmasse bei den Fischfilets	35
3.6.	Literaturangaben für den Transferfaktor von Kartoffeln und Roter Bete	37
3.7.	Literaturangaben für den Transferfaktor von Karotten	39
3.8.	Kalibriermassen mit zugehörigen Unsicherheiten	41
3.9.	Gegenüberstellung der Ergebnisse acht ausgewählter Proben	42
A.1.	Radionuklidfreisetzung beim Unfall von Tschernobyl	47
A.2.	Liste der untersuchten Bodenproben	47
A.3.	Liste der untersuchten Gemüseproben	48
A.4.	Liste der untersuchten Flussproben	49
A.5.	Liste der untersuchten Tierknochenproben	49
A.6.	Messdatum aller Proben	50
A.7.	Massen der untersuchten Bodenproben	51
A.8.	Massen der untersuchten Gemüseproben	52
A.9.	Nachweiswahrscheinlichkeiten für Boden- und Gemüseproben	53
A.10	.Transferfaktoren für Kartoffeln	54
A.11	.Transferfaktoren für Karotten	54
A.12	.Transferfaktoren für Rote Bete	54

# 1. Einleitung

## 1.1. Aufgabenstellung

Durch den Reaktorunfall in der Nähe von Tschernobyl am 26. April 1986 sind beträchtliche Mengen künstlicher Radionuklide aus dem Reaktor in die Umwelt gelangt. Am stärksten betroffen davon ist natürlich die direkte Umgebung des Reaktors, die nach dem Unfall in vier Zonen eingeteilt wurde. Diese sind durch unterschiedliche Konzentrationen des Fallout von <sup>137</sup>Cs gekennzeichnet. In Zone I beträgt die Depositionsdichte von  $^{137}$ Cs mehr als 1480 kBq/m<sup>2</sup> und entspricht im Wesentlichen dem 30 km-Radius um den Reaktor, der unmittelbar nach dem Unfall evakuiert wurde. Ebenfalls die Zone II mit einer Depositionsdichte von 555 kBq/m<sup>2</sup> bis 1480 kBq/m<sup>2 137</sup>Cs gehört zu der evakuierten Zone. Nicht mehr evakuiert wurden die Zone III mit einer Depositionsdichte zwischen  $185 \text{ kBq/m}^2$  und  $555 \text{ kBq/m}^2$ . Die Bewohner dieser Zone hatten allerdings ein Recht auf eine freiwillige Umsiedlung. Zone IV mit 37 kBq/m<sup>2</sup> bis 185 kBq/m<sup>2</sup> gilt als Zone unter andauernder Radiologischer Kontrolle. Kurz nach dem Unfall dominierte die Strahlenbelastung durch das kurzlebige Iodisitop<sup>131</sup>I und führte zu einer beträchtlichen Schilddrüsendosis. Nach 23 Jahren sind für die Strahlenbelastung der dortigen Bevölkerung mittlerweile hauptsächlich die Radionuklide <sup>90</sup>Sr, <sup>137</sup>Cs und einige Plutoniumisotope wegen ihrer längeren Halbwertszeiten maßgeblich. Die Exposition erfolgt dabei entweder durch die Direktstrahlung vom Boden oder durch Aufnahme von Radionukliden über die Nahrungskette als interne Strahlung. Um die langfristigen Strahlenexpositionen der Bevölkerung sinnvoll modellieren und abschätzen zu können, sind daher möglichst genaue Kenntnisse über die Verzehrgewohnheiten und den Transfer von Radionukliden in die entsprechenden Lebensmittel notwendig.

Die Proben, die für diese Arbeit zur Verfügung stehen, stammen alle aus der unmittelbaren Umgebung von Christinovka, das nach [24] ein typisches Bauerndorf mit landwirtschaftlich genutzten Flächen und semi-natürlichen Weiden und Wäldern in der Zone II ist. Christinovka liegt in der nördlichen Ukraine 50 km südwestlich des Reaktors am Fluss Usch und damit in der Westfahne des Fallouts. Das Zentrum für Strahlenschutz und Radioökologie der Leibniz Universität Hannover untersucht seit Mitte der 90er Jahren zusammen mit der State University of Agriculture and Economy der Ukraine in Zhitomir die Strahlenexposition der Rückkehrer in diese Gebiete. Die dort lebenden Familien sind Selbstversorger und ernähren sich bis auf Brot von den lokal angebauten Lebensmitten. Abbildung 1.1 zeigt wie unterschiedlich stark <sup>137</sup>Cs in der Umgebung von Christinovka abgelagert wurde. Durch die Untersuchungen in dieser Arbeit sollen Transferfaktoren für den Boden-Pflanze-Pfad für Kartoffeln, Karotten und Rote Bete, die in der Umgebung von Christinovka angebaut werden, bestimmt werden. Desweiteren soll

#### 1. Einleitung



Abbildung 1.1.: Karte der nördlichen Ukraine mit <sup>137</sup>Cs-Depositionsdichte im Bereich von Christinovka, Daten der Depositionsdichte aus [13]

der Transfer für den Pfad Flussand-Flussalgen-Fisch untersucht werden.

# 1.2. Emission von Radionukliden beim Reaktorunfall in Tschernobyl

Die Freisetzung von Radionukliden aus dem Kerninventar des Reaktors erstreckte sich hauptsächlich vom 26. April über zehn Tage bis zum 5. Mai 1986. Am 6. Mai 1986 war die Emission sprunghaft auf unter 1% der Anfangsrate gefallen und hatte sich danach kontinuierlich verringert. In Abbildung 1.2 wird deutlich, dass die Emission in vier Phasen eingeteilt werden kann.

Während der ersten Phase wurden durch die Explosion des Reaktorkerns und die große Hitze des anschließenden Graphitbrandes sehr große Mengen radioaktiver Isotope freigesetzt. Dabei sind mit <sup>85</sup>Kr und <sup>133</sup>Xe die radioaktiven Edelgase und mit <sup>131</sup>I, <sup>132</sup>Te, <sup>137</sup>Cs und <sup>134</sup>Cs vor allem die leichtflüchtigen Elemente zu nennen. Die Zusammensetzung der schwerflüchtigen Elemente entsprach dabei in etwa der Zusammensetzung des Reaktorkerns, da dieser durch die Explosion zum Teil fein zermahlen und diese Schwebstoffe mit der Rauchfahne herausgetragen wurden. Die Rauchfahne war an diesem Tag bis über 1200 m aufgestiegen wobei die größte Aktiviät in 600 m Höhe gemessen wurde. [30]

Die zweite Phase war durch eine stetige Abnahme des freigesetzten radioaktiven Materials gekennzeichnet. Durch die intensive Bekämpfung des Graphitbrandes wurde eine Abkühlung des Reaktorkerns und damit verbunden eine Reduzierung der Emission von

1. Einleitung



Abbildung 1.2.: Zeitlicher Verlauf der Freisetzung von Radionukliden des Tschernobyl Unfalls mit angenommener Unsicherheit von 50 %, Daten aus [16, 11]

Radionukliden erreicht. Dazu wurden über 5000 t Material per Hubschrauber über dem Reaktorkern abgeworfen. Dies setzte sich aus ca. 40 t Borcarbid ( $B_4C$ ), 600 t Dolomit ( $CaMg[CO_3]_2$ ), 2400 t Blei und 1800 t Sand und Lehm zusammen. Das Neutronengift Bor sollte verhindern, dass eine erneute Kettenreaktion auftreten konnte. Durch die Zersetzung des Dolomit, das dabei entstehende Kohlendioxid und durch das Schmelzen des Bleis sollte der Reaktorkern gekühlt und der Graphitbrand erstickt werden. Das Blei diente zudem als gewisse Abschirmung gegen die Gammastrahlung und der Lehm und Sand sollten die Radionuklide binden. Durch die niedrigere Temperatur gelangten – neben Caesium und Iod – feine Brennstoffteilchen nun nur noch in Höhen von 200 bis 400 m. [29, 30, 31]

Die Folge der Abdeckung kennzeichnete die dritte Phase. Nach der Abkühlphase von fünf Tagen war der Reaktorkern nun so isoliert, dass die weiterhin produzierte Wärme durch die Spaltung des Kernmaterials nicht mehr nach außen abgegeben werden konnte. Dadurch stieg die Temperatur auf 2000 °C an und führte zum Schmelzen des Kerns. Die Freisetzung von radioaktivem Material erhöhte sich währenddessen erneut über vier Tage. Hauptsächlich entwichen dabei leichtflüchtige Elemente wie Iod und Caesium. Am 6. Mai 1986 konnte schließlich ein Stickstoff-Kühlsystem unterhalb der Reaktorgrube installiert werden. Die Temperatur konnte durch dieses Verfahren stabilisiert werden und es führte zusammen mit den übrigen Gegenmaßnahmen dazu, dass die Emission von Radionukliden am 7. Mai 1986 auf unter 1 % des Anfangswertes zurückging. Geringe Emissionen waren auch noch den restlichen Monat messbar. Dies war die vierte Phase des zeitlichen Ablaufs. [18, 29]

Im gesamten Verlauf des Unfalls wurden dabei nach [31] radioaktive Isotope mit ei-

#### 1. Einleitung

ner Aktivität von 5300 PBq<sup>1</sup> freigesetzt. Die schwerflüchtigen Elemente und über 90 % der mittelflüchtigen Elemente waren dabei an Brennstoffteilchen gebunden. Durch deren Größe und hohe Dichte wurden diese Teilchen hauptsächlich in einem Umkreis von etwa 30 km um das Atomkraftwerk deponiert. Nach russischen Informationen liegen 0,3 - 0,5 % des Kerninventars auf dem Areal des Reaktors, 1,5 - 2 % innerhalb von 20 km um den Reaktor und 1 - 1,5 % sollen über 20 km weit verfrachtet worden sein. Gasförmige und kondensierte Radionuklide wurden hingegen über sehr große Entfernungen verfrachtet. [17, 11]

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup>Die Aktivität bezieht sich auf alle freigesetzten Radionuklide ohne das Edelgas Xenon. Für eine detailierte Auflistung siehe Tabelle A.1 auf Seite 47.

# 2. Physikalische Grundlagen

### 2.1. Radioaktiver Zerfall

In der Natur gibt es eine Vielzahl von Elementen, die durch ganz unterschiedliche Eigenschaften charakterisiert sein können. So gibt es beispielsweise Elemente die stabil sind und sich physikalisch gesehen von sich aus nicht weiter verändern können. Zu ihnen gehören unter anderem die bekannten Nuklide <sup>12</sup>C, <sup>14</sup>N, <sup>16</sup>O oder <sup>56</sup>Fe aber ebenso schwere Elemente wie <sup>208</sup>Pb oder das oft mit Radioaktivität und Kernspaltung assozierte Plutonium mit den Isotopen <sup>194</sup>Pu, <sup>195</sup>Pu und <sup>196</sup>Pu. Der ungleich größere Teil der bekannten Nuklide ist aber instabil und zerfällt unter Aussendung von Strahlung. Aus diesem Grund wird dieser Prozess auch als radioaktiver Zerfall bezeichnet. Im Gegensatz zu der im Alltag weit verbreiteten Annahme gibt es keine radioaktive Strahlung. Stattdessen wird die bei einem Kernzerfall freigesetzte Strahlung wegen ihrer Fähigkeit, Atome zu ionisieren, als ionisierende Strahlung bezeichnet. Sie wird in die drei Kategorien  $\alpha$ -,  $\beta$ und  $\gamma$ -Strahlung mit jeweils zunehmendem Durchdringungsvermögen von Materie eingeteilt. Darüber hinaus können schwere Kerne wie <sup>238</sup>U oder <sup>239</sup>Pu durch spontane bzw. induzierte Spaltung in zwei leichtere Kerne zerfallen. Beim Zerfall von Teilchen spricht man von Mutter- und Tochternukliden. Der radioaktive Zerfall ist aber kein deterministischer sondern ein rein stochastischer Prozess. Das bedeutet, dass für einen speziellen Kern eines radioaktiven Elements kein Zeitpunkt angegeben werden kann an dem dieser zerfällt. Trotzdem kann von einem Radionuklid die so genannte Halbwertszeit angegeben werden, bei der im Mittel über viele Kerne und eine lange Zeit die Hälfte der ursprünglich vorhandenen Kerne zerfallen sind. Mit der Zahl der Kerne N(t) zum Zeitpunkt t und der Halbwertszeit  $T_{1/2}$  lautet das Zerfallsgesetz für radioaktive Kerne

$$N(t) = N(0) \cdot exp\left(-ln(2) \cdot \frac{t}{T_{1/2}}\right) \quad . \tag{2.1}$$

Um Aussagen über die Intensität der Strahlung zu treffen, die beim Zerfall eines Elementes frei wird, ist hingegen die Aktivität eine aussagekräftigere Größe. Dabei werden nur die Kerne betrachtet, die pro Zeiteinheit zerfallen und somit Strahlung emittieren. Also gilt für die Aktivität nach (2.1)

$$A(t) = -\frac{dN(t)}{dt} = \frac{ln(2)}{T_{1/2}} \cdot N(t) \quad .$$
(2.2)

Diese Formel verdeutlicht noch einmal, dass die Aktivität eines Stoffes einerseits von der Zahl der Ausgangskerne und andererseits von der reziproken Halbwertszeit abhängt.

Die Einheit der Aktivität ist das Becquerel (Bq) oder die mittlerweile veraltete Einheit Curie (Ci). Heute wird die Einheit Ci nicht mehr verwendet, da diese als die Aktivität von 1 g<sup>226</sup>Ra festgelegt wurde und für die meisten Anwendung zu hoch ist. Ein Becquerel beschreibt hingegen einen Kernzerfall pro Sekunde und somit beträgt der Faktor zwischen diesen beiden Einheiten

$$1 \text{ Ci} = 3,7 \cdot 10^{10} \text{ Bq} \quad . \tag{2.3}$$

#### 2.1.1. Alphazerfall

Die  $\alpha$ -Strahlung ist eine Teilchenstrahlung bei der ein Mutternuklid in ein Tochternuklid mit einer um vier geringeren Massenzahl und um zwei geringeren Kernladungszahl zerfällt. Das heißt bei dieser Zerfallsart wird ein zweifach positiv geladener <sup>4</sup>He-Kern frei. So zerfällt beispielsweise das Radiumisotop <sup>226</sup>Ra auf zwei Arten unterschiedlicher Wahrscheinlichkeit

94, 45% : 
$${}^{226}_{88}$$
Ra  $\longrightarrow {}^{222}_{86}$ Rn +  ${}^{4}_{2}$ He<sup>2+</sup> + 4, 784 MeV  
5, 55% :  ${}^{226}_{88}$ Ra  $\longrightarrow {}^{222}_{86}$ Rn +  ${}^{4}_{2}$ He<sup>2+</sup> + 4, 601 MeV

in das Radonisotop<sup>222</sup>Rn, wobei leicht unterschiedliche Energien frei werden<sup>1</sup>. Diese Energie ist die kinetische Energie des Heliumkerns oder teilt sich, wenn das Tochternuklid in einem angeregten Zustand ist, auf den Heliumkern und das Tochternuklid auf. Die unterschiedlichen Wahrscheinlichkeiten, die zum Beispiel beim Alphazerfall des <sup>226</sup>Ra auftreten, können anschaulich verstanden werden, wenn man die Ursache dieser Zerfallsart betrachtet. Klassisch gesehen ist diese Art des radioaktiven Zerfalls eigentlich nicht möglich. In Kernnähe erzeugt die kurzreichweitige starke Wechselwirkung der Nukleonen einen Potentialtopf, der ein attraktives Potential für ein Alphateilchen darstellt. Weiter entfernt vom Kern erzeugt die Coulombwechselwirkung zwischen Kern und Alphateilchen ein abstoßendes Potential. Diesen Coulombwall kann das Alphateilchen klassisch gesehen nicht überwinden. Quantenmechanisch besteht für ein Teilchen bei einem endlich hohen und endlich breiten Potential hingegen eine gewisse Wahrscheinlichkeit, dass das Teilchen diese Barriere überwindet. Man bezeichnet dies als Tunneleffekt. Die Wahrscheinlichkeit des Durchtunnelns der Potentialbarriere hängt dabei zum einen natürlich vom Potential selbst ab. Desweiteren sinkt die Tunnelwahrscheinlichkeit mit zunehmender Masse des Teilchens und steigt aber für höhere Energien, da für ein höher energetisches Teilchen die Potentialbarriere effektiv niedriger und schmaler ist. Das Beispiel des <sup>226</sup>Ra zeigt so sehr deutlich, dass schon eine leicht höhere Energie des Alphateilchens zu einer signifikant höheren Tunnelwahrscheinlichkeit führt. Ebenso können auf diese Weise die unterschiedlichen Halbwertszeiten von Alphastrahlern erklärt werden. Je niedriger die Energie des Alphateilchens ist, desto unwahrscheinlicher wird der Tunneleffekt und desto länger dauert es bis dieses Nuklid zerfällt. Tabelle 2.1 zeigt dies anschaulich für verschiedene Isotope von Radium. Da beim Alphazerfall kein dritter Stoßpartner vorhanden ist, ist die Energie des Heliumkerns immer gleich und ermöglicht es so, ein alpha-

<sup>&</sup>lt;sup> $^{1}$ </sup>Die Wahrscheinlichkeiten und Energien wurden [7] entnommen.

Alphaenergie, Daten aus [22]						
Ra 216	Ra 218	Ra 219	Ra 220	Ra 222	Ra 224	Ra 226
$0,\!18~\mu{ m s}$	$25,\!6~\mu{ m s}$	$10 \mathrm{ms}$	$23 \mathrm{\ ms}$	$38  \mathrm{s}$	$3,\!66~{ m d}$	$1600  {\rm a}$
$9,\!349~{ m MeV}$	$8,\!390~{ m MeV}$	$7,\!679~{ m MeV}$	7,460 MeV	$6,559~{ m MeV}$	$5,\!685~{ m MeV}$	4,784 MeV

Tabelle 2.1.: Alphastrahlende Radiumisotope mit Halbwertszeit und wahrscheinlichster Alphaenergie, Daten aus [22]

strahlendes Nuklid über ein mittels Alpha-Spektrometrie gemessenes charakteristisches Linienspektrum zu identifizieren.

Bezüglich des Strahlenschutzes ist wichtig, dass  $\alpha$ -Strahlung in der Lage ist, Materie sehr dicht zu ionisieren. Das heißt entlang der Flugbahn des Alphateilchens werden dabei viele Atome pro zurückgelegter Weglänge ionisiert. Daher wurde von der Strahlenschutzkommission dieser Art Strahlung ein Strahlenwichtungsfaktor von 20 zugeordnet. Dieser Faktor soll bei der Berechnung der Dosis berücksichtigen, dass die Ionisationswirkung Zellen in besonderem Maße schädigen kann. Ergänzend dazu muss allerdings auch erwähnt werden, dass  $\alpha$ -Strahlung in Form eines <sup>4</sup>He-Kerns auf Grund seiner großen Masse nicht tief in Materie eindringen kann. So kann diese durch ein Blatt Papier oder die obere abgestorbene Hautschicht abgeschirmt werden. In Luft hat sie hingegen eine Reichweite von einige Zentimetern und findet sogar in Rauchmeldern Anwendung. Ein schwerwiegendes Problem besteht aber dann, wenn ein Alphastrahler inkorporiert wurde und direkten Kontakt zu lebendem Gewebe hat.

#### Kernspaltung und Protonen- bzw. Neutronenemission

Ähnlich dem Alphazerfall können schwere Kerne wie zum Beispiel<sup>238</sup>U unter spontaner Spaltung in zwei ähnlich schwere Kerne zerfallen. Diese Zerfallsart kann man ebenso quantenmechanisch über den Tunneleffekt erklären. So hat dementsprechend das angeregte<sup>238</sup>U-Isomer eine höhere Wahrscheinlichkeit unter spontaner Spaltung zu zerfallen als<sup>238</sup>U im Grundzustand. Gleiches gilt für die Emission von Protonen bzw. Neutronen. Wegen der geringeren Masse der beiden Nukleonen gegenüber einem Alphateilchen ist der Tunneleffekt für diese allerdings viel wahrscheinlicher.

#### 2.1.2. Betazerfall

Allgemein werden unter  $\beta$ -Strahlung zwei Strahlungsarten zusammengefasst. Bei der  $\beta^-$ -Strahlung zerfällt ein instabiler Kern unter Aussendung eines Elektrons und eines Elektronen-Antineutrinos zu einem Kern mit einer um eins erhöhten Kernladungszahl. Tritt hingegen die  $\beta^+$ -Strahlung auf, wird vom Kern ein Positron und ein Elektron-Neutrino emittiert. Die Kernladungszahl verringert sich dabei um eins.

#### 2. Physikalische Grundlagen

Die Betastrahlung ist also eine Teilchenstrahlung bei der entweder Elektronen oder Positonen mit zugehörigem Neutrino abgestrahlt werden. Ursache dieser Strahlung ist die schwache Wechselwirkung, die beim  $\beta^-$ -Zerfall ein Neutron in ein Proton, ein Elektron und ein Elektron-Antineutrino und beim  $\beta^+$ -Zerfall ein Proton in ein Neutron, ein Positron und ein Elektron-Neutrino umwandelt. Diese beiden Zerfallsarten finden also bei Nukliden mit Neutronen- bzw. Protonenüberschuss statt. Im Gegensatz zur Alpha- und Gammastrahlung ist dabei die Energie der  $\beta$ -Strahlung kontinuierlich verteilt und es kann nur eine Maximalenergie angegeben werden. Die Ursache für dieses kontinuierliche Energiespektrum ist das Neutrino, das bei der Reaktion den dritten Stoßpartner darstellt. Dadurch kann die beim Kernzerfall frei werdende Energie beliebig auf Betateilchen und Neutrino aufgeteilt werden.

Der Betastrahlung wird von der SSK nur ein Strahlenwichtungsfaktor von eins zugeordnet. Grund dafür ist die wesentlich geringere Ionisationsdichte im Vergleich zur Alphastrahlung. Allerdings kann Materie von dieser Strahlungsart durchdrungen werden und daher muss bei der Arbeit mit Betastrahlern auf einen sicheren Umgang geachtet werden. Ein guter Schutz vor Betastrahlung kann durch einen Absorber mit niedriger Ordnungszahl und dahinter liegendem Absorber mit hoher Ordnungszahl erreicht werden. Im ersten Teil werden die Betastrahlen abgebremst wodurch Bremsstrahlung emittiert wird. Beim Durchgang durch die zweite Schicht nimmt dann die Intensität der Bremsstrahlung exponentiell ab und es kann auf diese Weise ein effektiver Schutz vor Betastrahlung realisiert werden.

#### Elektroneneinfang

Vergleichbar zur  $\beta^+$ -Strahlung existiert ein Effekt bei dem ein Elektron aus der Schale eingefangen wird und ein Proton im Kern zu einem Neutron und einem Elektron-Neutrino umgewandelt wird. Dieser Vorgang wird als Elektroneneinfang oder auch Electron Capture (EC) bezeichnet. Der unbesetzte Zustand in der Hülle wird durch ein Elektron aus einer höheren Schale wieder besetzt, wodurch charakteristische Röntgenstrahlung frei wird. Im Gegensatz zu der Energie des Betateilchens hat das Elektron-Neutrino ein diskretes Energiespektrum, da mit Neutrino und Tochterkern wieder nur zwei Stoßpartner zur Verfügung stehen. Der Übergang eines Elektrons zwischen den Energieniveaus kann allerdings auch strahlungslos geschehen. Bei dem so genannten Auger-Meitner-Effekt wird die bei Übergang frei werdende Energie von einem Elektron aus einer höheren Schale aufgenommen und somit vom Kern gelöst. Die Energien dieses Auger-Elektrons hängen natürlich wie die charakteristische Röntgenstrahlung wieder vom Abstand der Energieniveaus und somit vom Element selbst ab, so dass die Energien wieder diskret verteilt und somit charakteristisch für dieses Element sein müssen.

#### 2.1.3. Gammazerfall

Der Gammazerfall ist im engeren Sinn eigentlich kein Zerfall. Die Gammastrahlung ist vielmehr ein sekundärer Effekt der an andere Zerfallsarten gekoppelt ist, bei denen das Tochternuklid bzw. bei der Spaltung die Tochternuklide in einem angeregten Zustand

#### 2. Physikalische Grundlagen

sind. Beim Ubergang der Nuklide in den Grundzustand wird dann Energie in Form von elektromagnetischer Strahlung frei – die Gammastrahlung. Dieser Effekt kann mit der charakteristischen Röntgenstrahlung eines Elements verglichen werden. Im Gegensatz dazu sind aber nicht die Elektronen in der Hülle angeregt sondern das Atom als Ganzes. Daraus resultieren auch höhere Energien, die sich beim Gammazerfall über einen weiten Bereich von wenigen keV wie beispielsweise <sup>210</sup>Pb (47 keV) bis hin zu einigen MeV wie <sup>40</sup>K (1,461 MeV) oder <sup>238</sup>U (2,514 MeV) erstrecken.

Für den Strahlenschutz stellt die Gammastrahlung die größte Herausforderung dar. Zwar wird dieser Strahlenart nur der Strahlenwichtungsfaktor eins zugeordnet aber die Energie ist noch deutlich größer als die von Röntgenstrahlung und somit können Gammaquanten sehr tief in Materie eindringen. Die Schwächung kann dabei analog zum Zerfallsgesetzt (2.1) beschrieben werden. Wenn I(x) die Intensität der Gammastrahlung nach Durchquerung der Strecke x im Absorber ist, ergibt sich

$$I(x) = I(0) \cdot exp\left(-ln(2) \cdot \frac{x}{d_{1/2}}\right)$$
(2.4)

als Gesetz für die Schwächung von elektromagnetischer Strahlung in Materie. Analog zum Zerfallsgesetz bezeichnet  $d_{1/2}$  die Halbwertsschichtdicke. Das heißt nach dem Durchqueren hat die Intensität der Strahlung um die Hälfte abgenommen. Eine wirksame Abschirmung von Gammastrahlung kann also nur durch eine ausreichend dicke Schicht eines Elementes hoher Ordnungszahl erreicht werden, wodurch aber gleichzeitig auf Grund der Masse auch die Mobilität eingeschränkt wird. Blei mit der Ordnungszahl A = 208 oder abgereichertes Uran mit A = 238 mit einigen Zentimetern Dicke sind dies bezüglich effiziente Absorber.

## 2.2. Künstliche und natürliche Radionuklide

Für eine erste Klassifizierung der Radionuklide können diese in die Kategorien künstlich erzeugt und natürlich eingeordnet werden. Nach [28] sind in der Natur etwa 80 Nuklide in messbaren Konzentrationen vorhanden, die wiederum in verschiedene Gruppen eingeteilt werden können. Zu dem Teil der primordialen Radionuklide gehören solche, die schon vor der Entstehung der Erde vorhanden waren. Diese Nuklide haben Halbwertszeiten die groß gegenüber geologischen Zeiträumen sind und deshalb noch heute vorhanden sind. Die Zerfallsreihen von <sup>232</sup>Th (4n), <sup>235</sup>U (4n+3) und <sup>238</sup>U (4n+2) beinhalten dabei allein schon über die Hälfte der natürlichen Radionuklide. Die Nuklide der (4n+1)-Zerfallsreihe beginnend bei <sup>241</sup>Pu sind wegen der geologisch gesehen kurzen Halbwertszeiten heute bis auf das stabile <sup>209</sup>Bi nicht mehr vorhanden. Desweiteren existieren primordiale Nuklide ohne Zerfallsreihe bei denen schon nach dem ersten Zerfall ein stabiler Zustand erreicht ist. Von diesen ist <sup>40</sup>K wohl der bekannteste Vertreter, da dieses einen signifikanten Beitrag zur natürlichen Strahlenexposition eines Menschen leistet. Die nächste Gruppe sind die kosmogenen Radionuklide. Diese entstehen durch Wechselwirkung der primären kosmischen Strahlung, die zum überwiegenden Teil aus sehr energiereichen Protonen und

Heliumkernen besteht, mit den Atomen in der oberen Atmosphäre. Mögliche Entstehungsreaktionen sind die Spallation oder der Einfang von sekundären Neutronen, die beispielsweise bei Spallationsreaktionen entstehen können. Durch die kosmische Strahlung wird ein Kaskadenschauer von verschiedenen Elementarteilchen wie Myonen, Kaon und Pionen sowie Gammastrahlung, Protonen und Neutronen erzeugt. Diese kann auch noch auf der Erde registriert werden und führt in großen Höhen zu einer erhöhten Strahlenexposition. So ist es zum Beispiel möglich, nach einem Langstreckenflug die Aktivierung von Goldschmuck durch Neutronen quantitativ zu messen. Seit der Nutzung der Radioaktivität hat die Radionuklidverteilung eine anthropogene Komponente erhalten. Durch Kernkraftwerke oder Wiederaufbereitungsanlagen werden kontinuierlich kleinere Mengen an Radionukliden freigesetzt. Die erste weltweite Belastung durch künstliche Radioaktivität wurde durch die oberirdischen Kernwaffenversuche der Großmächte in den Jahren 1956 bis 1962 hervorgerufen. Sie trägt auch heute noch, zusammen mit den Folgen des Unfalls in Tschernobyl, zu einem geringen Teil zur jährlichen Strahlenbelastung bei, da <sup>90</sup>Sr mit 28,64 Jahren und <sup>137</sup>Cs mit 30,17 Jahren genügend lange Halbwertszeiten haben.

#### 2.2.1. Plutonium, Strontium und Caesium

Bezüglich des Reaktorunfalls von Tschernobyl sind heute nur noch die Radionuklide <sup>90</sup>Sr, <sup>137</sup>Cs und Plutonium mit den Isotopen <sup>238</sup>Pu, <sup>239</sup>Pu, <sup>240</sup>Pu und <sup>241</sup>Pu von radiologischer Bedeutung. Wird nicht die direkte Umgebung des Reaktors betrachtet, spielt wie in Kapitel 1.2 auf Seite 3 erläutert nur noch <sup>137</sup>Cs eine bedeutende Rolle. Mit Tabelle 2.2 wird

		Aktivität in $\%$	
Nuklid	Halbwertszeit	zum Bezugszeitpunkt	
		des Unfalls	
$^{90}\mathrm{Sr}$	28,64 a	56,81	
$^{137}\mathrm{Cs}$	$30,\!17~{ m a}$	58,46	
$^{238}\mathrm{Pu}$	87,74 a	83,14	
$^{239}$ Pu	24110 a	$99,\!93$	
$^{240}\mathrm{Pu}$	6563 a	99,75	
$^{241}\mathrm{Pu}$	$14,\!35$ a	$32,\!35$	

Tabelle 2.2.: Freigesetzte Strahlenschutzrelevante Radionuklide aus dem Unfall von Tschernobyl, Halbwertszeiten aus [22]

noch einmal verdeutlicht, dass die Aktivitäten von Strontium und Caesium mitlerweile auf unter 60 % und von <sup>241</sup>Pu sogar auf gut 30 % gesunken sind. Lediglich auf die Tochter <sup>241</sup>Am dieses Plutoniumisotops muss noch Rücksicht genommen werden. Mit einer Halbwertszeit von 432,2 Jahren ist sie deutlich langlebiger als das Plutonium, hat aber auf Grund der freigesetzten Menge des Plutoniumisotops trotzdem eine hohe Aktivität.

## 2.3. Radioaktives Gleichgewicht

Da  $^{137}$ Cs kein Gammastrahler ist, könnte dessen Aktivität eigentlich nicht mittels Gammaspektrometrie bestimmt werden. Es kann allerdings der Umstand genutzt werden, dass  $^{137}$ Cs zu einem Großteil in das Isomer  $^{137m}$ Ba zerfällt und dieses mit einer Halbwertszeit von wenigen Minuten wesentlich kurzlebiger ist als das Caesiumisotop mit einer Halbwertszeit von 30 Jahren. Beim Isomerenübergang in den Grundzustand wird dann ein Gammaquant mit einer Energie von 661,66 keV emittiert, der dann gammaspektrometrisch erfasst werden kann. Unter der Voraussetzung wie bei  $^{137}$ Cs, dass die Mutter wesentlich langlebiger ist als die Tochter, sind die Aktivitäten von Mutter- und Tochternuklid gleich. Dieser Umstand wird durch ein einfaches Gedankenexperiment deutlich: Man nehme einen Klumpen, der vollständig aus dem radioaktiven Element A besteht. In diesem Klumpen zerfalle pro Jahr im Durchschnitt ein Atom dieses Elements in das radioaktive Element B. Von diesem Element B sei bekannt, dass es im Mittel nach einer Sekunde zerfällt. Somit ist die Aktivität der beiden Elemente in dem Klumpen gleich, da sowohl von A als auch von B ein Atom pro Jahr zerfällt.

# 2.4. Wechselwirkung von Strahlung mit Materie

Es existieren verschiedene Möglichkeiten wie elektromagnetische Strahlung mit Materie wechselwirken kann. Eine mögliche Interaktion ist die Rayleigh-Streuung, bei der das einfallende Photon an einem Atom gestreut wird, ohne dabei Energie an das Atom zu übertragen. Wenn die Energie des einfallenden Photons größer ist als die Bindungsenergie eines Nukleons im Atomkern, kann es zum Kernphotoeffekt kommen, bei dem das Photon vom Atomkern absorbiert wird und ein Proton bzw. Neutron emittiert wird. Dieser Effekt tritt wegen der großen Bindungsenergie von Nukleonen überhaupt erst ab 2 MeV auf und benötigt stoffabhängig meist sogar deutlich höhere Energien ab 8 MeV. Da diese Energie wesentlich größer ist als die typische Energie aus Gammazerfällen ist der Kernphotoeffekt für den Nachweis von Gammastrahlung weniger interessant. Ebenso ist die Rayleigh-Streuung diesbezüglich von geringer Bedeutung, da durch diese keine Energie an den Detektorkristall übertragen werden kann und somit als Nachweis von Gammastrahlung unbrauchbar ist. Photoeffekt, Compton-Streuung und Paar-Bildung sind die drei wichtigsten Prozesse, die bei der Gammaspektrometrie eine Rolle spielen. In Abbildung 2.1 werden die Wirkungsquerschnitte der einzelnen Prozesse bezüglich eines für die Gammaspektrometrie wichtigen Germanium-Absorbers gezeigt.

#### Photoeffekt

Beim Photoeffekt interagiert ein Photon mit einem Elektron in der Atomhülle eines Absorbers. Die gesamte Energie wird dabei an das Elektron übertragen. Ist die Photonenenergie  $E_{Ph} = h\nu$  größer als die Bindungsenergie  $E_B$  des Elektrons, wird dieses vom Atomkern gelöst. Das Elektron besitzt dann die Energie

$$E_{e^{-}} = E_{Ph} - E_B \quad . \tag{2.5}$$



Abbildung 2.1.: Wirkungsquerschnitt von Germanium aufgetragen gegen die einfallende Photonenenergie erzeugt nach [8] mit XCOM

Durch den Photoeffekt finden also Ionisationen im Absorbermaterial statt bei denen Elektronen-Loch-Paare erzeugt werden. Das Loch in der Elektronenhülle wird innerhalb kurzer Zeit wieder mit einem freien Elektron oder mit einem Elektron aus einer höheren Schale aufgefüllt. Die dabei frei werdende Bindungenergie wird dann erneut als elektromagnetische Strahlung abgegeben. Ein Element hat dabei zwischen verschiedenen Schalen immer die gleiche Energiedifferenz und daher wird bei diesem Prozess auch immer Strahlung gleicher Energie frei. Da sich je nach Element auch die Energiedifferenzen der Schalen unterscheiden, wird diese auch als charakteristische Strahlung bezeichnet und kann somit auch zur Identifizierung eines Elements genutzt werden. Der Photoeffekt ist bei niedrigen Energien (wenige keV) der dominierende Prozess und der Wirkungsquerschnitt zeigt bei Energien, die genau der Bindungsenergie der Elektronen in den verschiedenen Schalen entsprechen, scharfe Maxima. Auf Grund der Energieund Impulserhaltung kann der Photoeffekt nur an gebundenen Elektronen auftreten, da ein freies Elektron diesem nicht gerecht werden kann. Bei einem gebundenen Elektron hingegen kann der Kern den Impuls des Photons aufnehmen und somit können beide Erhaltungssätze gewährleistet werden.

#### Compton-Streuung

Im Energiebereich typisch für radioaktive Quellen ist der Compton-Effekt von besonderer Bedeutung. Dabei wechselwirkt zum Beispiel ein Gammaquant mit einem freien Elektron. Bei Photonenenergien im Bereich von Röntgen- oder Gammastrahlung können näherungsweise auch die Hüllenelektronen eines Atoms als quasi frei betrachtet werden. Mit dem Teilchencharakter von elektromagnetischer Strahlung kann die Compton-Streuung so erklärt werden, dass dabei durch einen inelastischen Stoß ein Teil der Energie des Photons auf das Elektron übertragen wird. Dabei wird das einfallende Photon am Elektron gestreut und hat nach dem Stoß eine geringere Energie.

#### Paarbildung

Bei hochenergetischer elektromagnetischer Strahlung tritt die Paarbildung als dominierender Effekt auf. Übersteigt die Photonenenergie die doppelte Ruhemasse eines Elektrons von 511 keV, kann in Kernnähe ein Elektron-Positron-Paar erzeugt werden. Der Atomkern ist als dritter Stoßpartner zwingend notwendig, da andernfalls der Impulserhaltungssatz verletzt werden würde und kein Teilchen-Antiteilchen-Paar erzeugt werden könnte. Hat ein Photon beispielsweise genau die Energie 1,022 MeV, kann ein Elektron-Positron-Paar gebildet werden. Beide Teilchen besitzen danach keine kinetische Energie und sind in Ruhe, da die Energie bei diesem Prozess erhalten bleiben muss. Vor der Paarbildung wird dem Photon der Impuls

$$p_{Ph} = \frac{E_{Ph}}{c} \tag{2.6}$$

und den beiden Elementarteilchen nach der Paarbildung der Impuls

$$p = mv \tag{2.7}$$

zugeordnet. Gäbe es keinen dritten Stoßpartner, könnte der Impuls bei diesem Prozess nicht erhalten bleiben.

# 2.5. Funktionsweise von HPGe-Halbleiterdetektoren

Der wichtigste Bestandteil eines Reinstgermanium-Halbleiterdetektors oder kurz HPGe-Detektoren (nach dem engl.: high purity germanium) ist, wie der Name schon sagt, ein hochreiner Germaniumkristall. Bei der Gammaspektrometrie wird die Energie eines Gammaquants in diesem Detektorkristall vollständig absorbiert und durch die angeschlossene Elektronik wird bei der gemessenen Energie der Ereigniszähler um Eins erhöht. In Kapitel 2.4 auf Seite 11 wird erklärt, auf welche Weise elektromagnetische Strahlung mit Materie wechselwirken und somit Energie an diese abgeben kann. Abbildung 2.2 zeigt den schematischen Aufbau eines Gammaspektrometers. Da die Bandlücke zwischen Leitungsband und Valenzband im Germanium-Halbleiterkristall nur 0,7 eV beträgt, können schon bei Raumtemperatur thermisch angeregte Elektronen in das Leitungsband wechseln. Diese würden beim Betrieb zu so großen Leckströmen führen, dass keine Messung von Gammaenergien möglich wäre. Aus diesem Grund wird der Detektor mit flüssigem Stickstoff auf 77 K herunter gekühlt. Die Idee hinter der Messung der Energie von Gammaquanten ist, dass diese durch Ionisation von Germaniumatomen ihre gesamte Energie an den Kristall abgeben und dadurch Elektronen-Loch-Paare erzeugen, die dann wiederum elektronisch registriert werden können. Die Zahl der Ladungsträger



Abbildung 2.2.: Schematischer Aufbau eines HPGe-Detektors mit angeschlossener Elektronik zur Signalverarbeitung, aus [12]

ist dabei proportional zu der Energie des Photons. Zur Trennung der Elektronen und Löcher wird der Ge-Kristall als Diode in Sperrrichtung mit angelegter Hochspannung betrieben. Gammaspektrometer gibt es in den Ausführung mit planarem und mit koaxialem Halbleiterkristall, die für unterschiedliche Messzwecke geeignet sind. So werden planare Detektoren wegen dünner Kontakte, die bezüglich der Gammaspektrometrie eine Totschicht darstellen, und der geringen Größe des Kristalls bevorzugt für niederenergetische Gammastrahlung verwendet. Für Gammastrahlung von hoher Energie und dem damit korrelierten stärkeren Durchdringungsvermögen eignen sich dagegen eher die koaxialen Detektoren, da diese ein größeres Kristallvolumen besitzen.

#### 2.5.1. Eigenschaften eines Detektors

Ein HPGe-Halbleiterdetektor hat mehrere charakteristische Eigenschaften, die die Form des Spektrums beeinflussen. Eine Typische Kenngröße ist das Energieauflösungsvermögen, das als FWHM (Full Width at Half Maximum) des Peaks von <sup>60</sup>Co bei der Energie 1332,5 keV angegeben wird. Diese wird nach [20] durch statistische Schwankungen der Ladungsträger, eine unvollständige Trennung der Elektronen-Loch-Paare und durch das elektronische Rauschen beeinflusst. Als weiterer Indikator für die Güte des Detektors wird das Peak-zu-Compton-Verhältnis herangezogen. Je niedriger diese Kenngröße ist, desto wahrscheinlicher ist die Absorption der kompletten Energie eines Gammaquants. Wie in Kapitel 2.4 auf Seite 11 beschrieben, wird bei der Compton-Streuung das Photon 2. Physikalische Grundlagen



Abbildung 2.3.: Planarer Detektorkristall mit Kontakten auf der Ober- und Unterseite (oben) und zwei Ausführungen eines koaxialen Detektorkristalls mit Kontakten auf der Innen- und Außenseite (unten), verändert aus [20]

an einem Kern abgelenkt. Dieses gibt dabei einen Teil seiner Energie an den Germaniumkristall ab. Entkommt das Photon mit der Restenergie nun aus dem Detektor, wird der Zählimpuls dem Kanal der Energiedifferenz des Gammaquants vor und nach dem Streuprozess zugeordnet. Da die Energieabgabe vom variierenden Streuwinkel abhängig ist, wird der Zählimpuls immer unterschiedlichen Energien zugeordnet. Die maximale Energie kann dabei bei einem Streuwinkel von 180 ° abgegeben werden. Aus diesem Grund bildet sich im Spektrum die sogenannte Compton-Kante zu einem FEP (Full Energy Peak) aus. Zwischen der Compton-Kante und dem FEP bestimmen multiple Compton-Streuungen das Spektrum. Da bei Germanium-Detektoren mit zunehmendem Kristallvolumen auch die Wahrscheinlichkeit der vollständigen Absorption eines Gammaquants zunimmt, haben große Detektoren ein besseres Peak-zu-Compton-Verhältnis als solche mit einem kleinen Germanium-Kristall.



Abbildung 2.4.: Darstellung des mit Gamma-W erzeugten Spektrums der Probe JR09K3 bei einer Messdauer von 24 Stunden mit Markierung der FEPs von <sup>137</sup>Cs und <sup>40</sup>K

#### 2.5.2. Charakteristische Peaks im Spektrum

Liegt die Energie der Gammastrahlung über 1022 keV, kann in der Abschirmung des Detektors ein Elektron-Positron-Paar erzeugt werden. Wenn nun das bei der Vernichtung des Positrons entstehende Photon im Detektor absorbiert wird, wird ein Zählimpuls der Energie 511 keV zugeordnet. Dieser Peak ist im Spektrum der Probe JR09K3 in Abbildung 2.4 zu erkennen, da die Gammaquanten des in der Probe enthaltenen <sup>40</sup>K ausreichende Energie für die Paarerzeugung besitzen. Weitere Peaks können immer dann entstehen, wenn eine definierte Energie mit einer ausreichend großen Wahrscheinlichkeit den Detektorkristall verlassen kann. Dies ist zum Beispiel bei der Paarerzeugung möglich, wenn die Vernichtungsstrahlung eines Elektron-Positron-Paares aus dem Detektor entkommen kann. Da bei der Paarvernichtung nach der Einstein'schen Formel  $E = mc^2$ zwei Photonen mit jeweils 511 keV emittiert werden, entstehen neben dem FEP auch der SEP (Single Escape Peak) und DEP (Double Escape Peak) in Abhängigkeit davon, ob ein Quant oder beide Quanten den Detektor verlassen. Darüber hinaus kann knapp unterhalb der Energie des FEP ein weiterer Peak entstehen, wenn die charakteristische Röntgenstrahlung des Germaniums nicht im Detektorvolumen absorbiert wird. Analog dazu entstehen Peaks bei geringer Energie, wenn die in der Abschirmung erzeugte Röntgenstrahlung im Kristall absorbiert wird.

#### 2.5.3. Nulleffekt und Abschirmung

Die Abschirmung des Detektors durch Blei soll die natürlicherweise vorhandene Umgebungsstrahlung reduzieren, führt aber gleichzeitig dazu, dass ein Beitrag zum Spektrum durch natürlicherweise im Blei enthaltene Radionuklide entsteht. Das ZSR besitzt im Keller des Isotopenlabors sogar einen Messraum, der zusätzlich durch dicke Wände aus Barytbeton besonders von der Umgebungsstrahlung abgeschirmt wird und dadurch die Messung von geringen Aktivitäten begünstigt, da der Untergrund im Spektrum geringer wird. Sind Linien bei niedrigen Energien von Interesse, kann eine Kupferschicht die



Abbildung 2.5.: Darstellung des mit Gamma-W erzeugten Spektrums des Nulleffekts aufgenommen mit dem Detektor EM-MI bei einer Messdauer von 10 Tagen

Röntgenstrahlung des Bleis abschirmen. Zusätzlich würde eine Kunstoffschicht als innerste Abschirmung wiederum die Röntgenstrahlung des Kupfers abschirmen. Die Fluoreszenzstrahlung, die durch den Kunststoff auftritt, ist von so geringer Energie, dass die Messung durch diese nicht mehr beeinflusst wird. An diesem Beispiel wird deutlich, dass die Abschirmung des Detektors auch immer von der Messaufgabe selbst abhängig ist. Abbildung 2.5 zeigt das Nulleffektspektrum, das vor der ersten Probenmessung am Detektor EMMI im ZSR aufgenommen wurde.

## 2.6. Statistische Grenzen eines Messprozesses

Mit der Messung einer beliebigen Größe kann nie ein exakter Wert bestimmt werden. Wegen statistischer Schwankungen der Messgröße oder ungenauem Ablesen wird vielmehr

#### 2. Physikalische Grundlagen

ein wahrscheinlicher Wert gemessen, der innerhalb einer zu bestimmenden Unsicherheit dem wahren Wert entspricht. Ein vollständiges Messergebnis y einer Größe Y wird nach DIN 25482-10 mit zugehöriger Unsicherheit u(y) in Form von

$$y = \bar{y} \pm u(y)$$

mit den zugehörigen charakteristischen Grenzen

 $y^*$  : Erkennungsgrenze  $y^{\#}$  : Nachweisgrenze  $y^{\triangleleft,\triangleright}$  : Vertrauensbereich  $\hat{y}$  : Bester Schätzer des wahren Wertes

angegeben.  $\bar{y}$  ist hierbei das primäre Messergebnis bzw. der Mittelwert bei Mehrfachmessungen. Zusätzlich muss speziell bei der Messung von Umweltproben bewertet werden ob ein Beitrag der Probe zu dem gemessenen Ergebnis bei einem natürlich vorhanden Untergrund vorliegt, was die Bestimmung der Erkennungsgrenze, Nachweisgrenze und des Vertrauensbereiches notwendig macht. [23]

#### 2.6.1. Direkte und indirekte Messung

Es gibt zwei Möglichkeiten eine Größe zu messen. Bei einer direkten Messung – wie z.B. dem Bestimmen einer Masse, Länge oder Netto Peakfläche – kann die Messgröße direkt am Messgerät abgelesen werden. Zugehörige Messunsicherheiten können dabei den entsprechenden Messgeräten entnommen werden, werden aus der vorhandenen Skaleneinteilung berechnet oder werden von verwendeten Auswertungsprogrammen angegeben. Wenn eine Messgröße Y hingegen indirekt gemessen wird, liegt dabei ein mathematisches Modell M zugrunde, das die Messgröße Y mit Eingangsgrößen  $X_i(i = 1, ..., n)$  in der Form

$$Y = M(X_1, ..., X_n)$$
(2.8)

verknüpft. Die Eingangsgrößen und deren Unsicherheiten werden dabei aus Schätzungen oder Messungen als gegeben vorausgesetzt. Mittels der Gauß'schen Varianzenfortpflanzung kann dann auch die Unsicherheit u(y) der Messgröße bestimmt werden. Vorausgesetzt, dass sämtliche Eigangsgrößen paarweise stochastisch unabhängig sind, bestimmt sich diese zu

$$u^{2}(y) = \sum_{i=1}^{n} \left(\frac{\partial M}{\partial x_{i}}\right)^{2} \cdot u^{2}(x_{i}) \quad .$$
(2.9)

Nun können zur Angabe des vollständigen Messergebnisses die charakteristischen Grenzen berechnet werden.

#### 2.6.2. Erkennungsgrenze

Die Entscheidung ob ein Beitrag der Probe zu einem Messergebnis vorliegt, kann durch die Bestimmung der Erkennungsgrenze  $y^*$  getroffen werden. Dazu wird eine Wahrscheinlichkeit  $\alpha$  festgelegt mit der ein Fehler 1. Art gemacht wird. Bei einem Fehler 1. Art wird

#### 2. Physikalische Grundlagen

die Nullhypothese, dass der wahre Wert  $\tilde{y}$  einer Messgröße Y gleich Null ist, verworfen obwohl diese war ist und somit irrtümlich ein Beitrag der Probe angenommen. Daher kann überhaupt erst oberhalb der Erkennungsgrenze ein Beitrag der Probe erkannt werden. Mit dem (1- $\alpha$ )-Quantil  $k_{1-\alpha}$  der Normalverteilung und der Messunsicherheit des wahren Wertes  $\tilde{u}(\tilde{y})$  an der Stelle  $\tilde{y} = 0$  kann die Erkennungsgrenze

$$y^* = k_{1-\alpha} \cdot \tilde{u}(0) \tag{2.10}$$

berechnet werden.

#### 2.6.3. Nachweisgrenze

Da nicht nur der Untergrund statistischen Schwankungen unterliegt, sondern auch die Messgröße selbst, muss zudem geprüft werden, ab welchem Wert das Messverfahren ein Probenbeitrag vertrauenswürdig nachweisen kann. Daher wird die Wahrscheinlichkeit  $\beta$  definiert, einen Fehler 2. Art zu machen, d.h. die fälschliche Annahme der Nullhypothese. Also ergibt sich die Nachweisgrenze  $y^{\#}$  mit dem (1- $\beta$ )-Quantil  $k_{1-\beta}$  der Normalverteilung als implizite Gleichung

$$y^{\#} = y^* + k_{1-\beta} \cdot \tilde{u}(y^{\#}) \quad , \tag{2.11}$$

die mit Iteration beginnend bei dem Startwert  $y_0^{\#} = 2y^*$  gelöst werden kann. In Abbildung 2.6 ist die Erkennungs- und Nachweisgrenze zur Verdeutlichung nochmals graphisch dargestellt.



Abbildung 2.6.: Darstellung von Erkennungs- und Nachweisgrenze bei normalverteilten Größen

#### 2.6.4. Vertrauensgrenzen

Zur vollständigen Angabe des Messergebnisses wird schließlich noch der Vertrauensbereich angegeben, in dem der wahre Wert mit der Wahrscheinlichkeit 1- $\gamma$  liegt. Abbildung 2.7 zeigt untere  $y^{\triangleleft}$  und obere Vertrauensgrenze  $y^{\triangleright}$ . Mit dem  $(1-\gamma/2)$ -Quantil der Normalverteilung ergeben sich die Vertrauensgrenzen zu

$$y^{\triangleleft} = y - k_{1-\gamma/2} \cdot u(y) y^{\triangleright} = y + k_{1-\gamma/2} \cdot u(y) , \qquad (2.12)$$

wenn  $y \gg u(y)$  gilt. Sind y und u(y) hingegen von der gleichen Größenordnung muss die Formel für die Vertrauensgrenze auf

$$y^{\triangleleft} = y - k_{\omega \cdot (1 - \gamma/2)} \cdot u(y)$$
  

$$y^{\triangleright} = y + k_{1 - \omega \cdot \gamma/2} \cdot u(y)$$
(2.13)

mit der Verteilungsfunktion der Normalverteilung  $\Phi(t)$ 

$$\omega = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \cdot \int_{-\infty}^{y/u(y)} exp\left(-\frac{z^2}{2}\right) dz = \Phi\left(\frac{y}{u(y)}\right)$$
(2.14)

erweitert werden. Die Näherung (2.12) kann verwendet werden, wenn  $y/u(y) \ge 2 \cdot k_{1-\gamma/2}$ ,



Abbildung 2.7.: Vertrauensgrenzen zur Wahrscheinlichkeit  $\gamma$  um den besten Schätzer mit beidseitigem (1- $\gamma/2$ )-Quantil

da in diesem Fall  $\Phi(y/u(y))$  gegen Eins geht.

#### 2.6.5. Bester Schätzwert

Liegt ein Messergebnis oberhalb der Erkennungsgrenze, kann der bester Schätzwert  $\hat{y}$  der Messgröße und dessen Unsicherheit  $u(\hat{y})$  ermittelt werden. Mit  $\omega$  wie in Gleichung (2.14) ergibt sich

$$\hat{y} = y + \frac{u(y)}{\omega \cdot \sqrt{2\pi}} \cdot exp\left(-\frac{y^2}{2 \cdot u^2(y)}\right)$$
(2.15)

und

$$u(\hat{y}) = \sqrt{u^2(y) - (\hat{y} - y) \cdot \hat{y}} \quad . \tag{2.16}$$

Wenn  $y \gg u(y)$  gilt, können die Näherungen

$$\begin{aligned}
\hat{y} &= y \\
u(\hat{y}) &= u(y)
\end{aligned}$$
(2.17)

verwendet werden.

#### 2.6.6. Charakteristische Grenzen der spezifischen Aktivität

Da in dieser Arbeit die Messung der spezifischen Aktivität a von essentieller Bedeutung ist, wird im Folgenden noch einmal speziell auf die Bestimmung der charakteristischen Grenzen eingegangen. Es wird dazu

$$a = \frac{s}{m \cdot p \cdot \varepsilon} \cdot \left(\frac{N_p}{t_p} - \frac{N_0}{t_0}\right) \tag{2.18}$$

 $\operatorname{mit}$ 

s: Summationskorrektur (bei <sup>137</sup>Cs gilt s = 1)

- m : Probenmasse
- p : Emissionswahrscheinlichkeit
- $\varepsilon$  : Nachweiswahrscheinlichkeit
- $N_p$  : Netto Peakfläche der Probe
- $N_0$ : Netto Peakfläche der Nulleffektmessung
- $t_p$  : Messzeit der Probe
- $t_0$ : Messzeit der Nulleffektmessung

als Modell der Auswertung verwendet. Der Faktor für die Summationskorrektur s wurde [14] entnommen, der Faktor für die Emissionswahrscheinlichkeit p sowie deren Unsicherheit wurde [27] entnommen und die Nachweiswahrscheinlichkeit  $\varepsilon$  und die zugehörige Unsicherheit wird gemäß Kapitel 3.2.2 auf Seite 28 bestimmt. Die Unsicherheit der Masse ist nach [19] die Ablesbarkeit der Waage dividiert durch  $\sqrt{12}$ . Dabei muss allerdings noch beachtet werden, dass sich die Probenmassen als eine Differenz von Brutto- und Taramasse ergeben und daher die Unsicherheit nach Gleichung (2.9) noch berechnet werden muss. Mit Gamma-W werden die Netto Peakfläche und deren Unsicherheit bestimmt, wobei die Annahme dieser als Standardunsicherheit als konservativ betrachtet werden kann<sup>2</sup>. Unsicherheiten der Zeitmessungen werden vernachlässigt.

#### Erkennungsgrenze

Die Erkennungsgrenze ist nach Gleichung (2.10) die Unsicherheit des wahren Wertes  $\tilde{u}(\tilde{a})$  an der Stelle  $\tilde{a} = 0$  multipliziert mit dem (1- $\alpha$ )-Quantil der Normalverteilung. Für den wahren Wert  $\tilde{a}$  soll nach dem Modell der Auswertung (2.18)

$$\tilde{a} = \frac{1}{m \cdot p \cdot \varepsilon} \cdot \left(\frac{N_p}{t_p} - \frac{N_0}{t_0}\right)$$
(2.19)

gelten. Nach der Gauß'schen Varianzenfortpflanzung (2.9) ergibt sich für die Unsicherheit des wahren Wertes

$$\tilde{u}^{2}(\tilde{a}) = \tilde{a}^{2} \cdot \left( \left( \frac{u(m)}{m} \right)^{2} + \left( \frac{u(p)}{p} \right)^{2} + \left( \frac{u(\varepsilon)}{\varepsilon} \right)^{2} \right) + \left( \frac{1}{m \cdot p \cdot \varepsilon} \right)^{2} \cdot \left( \left( \frac{u(N_{p})}{t_{p}} \right)^{2} + \left( \frac{u(N_{0})}{t_{0}} \right)^{2} \right)$$
(2.20)

und an der Stelle  $\tilde{a}=0$ 

$$\tilde{u}^2(0) = \left(\frac{1}{m \cdot p \cdot \varepsilon}\right)^2 \cdot \left(\left(\frac{u(N_p)}{t_p}\right)^2 + \left(\frac{u(N_0)}{t_0}\right)^2\right) \quad . \tag{2.21}$$

Für die Auswertung wird in dieser Arbeit  $\alpha = 0,05$  verwendet und die Erkennungsgrenze ist damit auf

$$a^* = k_{0,95} \cdot \frac{1}{m \cdot p \cdot \varepsilon} \cdot \sqrt{\left(\frac{u(N_p)}{t_p}\right)^2 + \left(\frac{u(N_0)}{t_0}\right)^2}$$
(2.22)

festgelegt. Zu beachten ist hierbei, dass die Erkennungsgrenze für jede Probe neu berechnet werden muss, da diese von der Netto Peakfläche und Messzeit der Probe selbst abhängig ist.

#### Nachweisgrenze

Für das (1- $\beta$ )-Quantil wird ebenfalls  $\beta = 0,05$  gewählt und damit gilt  $k_{1-\alpha} = k_{1-\beta} = k_{0,95}$ . Somit ergibt sich mit Gleichung (2.20) für  $\tilde{a} = a^{\#}$  die Nachweisgrenze

$$a^{\#} = a^{*} + k_{0,95} \cdot \sqrt{\left(a^{\#}\right)^{2} \cdot \left(\left(\frac{u(m)}{m}\right)^{2} + \left(\frac{u(p)}{p}\right)^{2} + \left(\frac{u(\varepsilon)}{\varepsilon}\right)^{2}\right) + \left(\frac{a^{*}}{k_{0,95}}\right)^{2}} \quad (2.23)$$

<sup>&</sup>lt;sup>2</sup>vgl. Kapitel 3.2.1 auf Seite 28

und kann – nur für  $\alpha=\beta$  – zu der expliziten Gleichung

$$a^{\#} = \frac{2a^{*}}{1 - k_{0,95} \cdot \left(\left(\frac{u(m)}{m}\right)^{2} + \left(\frac{u(p)}{p}\right)^{2} + \left(\frac{u(\varepsilon)}{\varepsilon}\right)^{2}\right)}$$
(2.24)

zusammengefasst werden. Da die Nachweisgrenze wiederum von der Erkennungsgrenze abhängig ist, muss auch diese für jede Probe neu berechnet werden.

#### Vertrauensgrenzen und bester Schätzwert

Da sämtliche Proben die Bedingung  $y \gg u(y)$  erfüllen, können die Näherungen (2.12) mit  $\gamma = 0,05$  und (2.17) verwendet werden. Damit ergeben sich die Vertrauensgrenzen zu

$$y^{\triangleleft} = y - k_{0,975} \cdot u(y) y^{\triangleright} = y + k_{0,975} \cdot u(y)$$
(2.25)

und für den besten Schätzwert gilt  $\hat{y} = y$  und  $u(\hat{y}) = u(y)$ .

# Bestimmung der Transferfaktoren für <sup>137</sup>Cs

# 3.1. Vorbereitung der Proben

Bei der Messung von Proben mittels Gammaspektrometrie müssen bei deren Vorbereitung mehrere Punkte beachtet werden. Da das Ziel einer solchen Messung sein soll, möglichst vertrauenswürdige Aussagen über die Aktivität in einer Probe treffen zu können, muss dafür gesorgt werden, dass die dabei entstehenden Unsicherheiten möglichst gering sind. So wird zum Beispiel durch die Reduktion des Probenvolumens durch Trocknung erreicht, dass die Aktivität im restlichen Probenmaterial aufkonzentriert wird und man somit bei der späteren Messung eine geringere statistische Unsicherheit erhält. Von besonderer Bedeutung ist dies bei Proben mit sehr geringer Aktivität. Dabei muss die Aktivität gegebenenfalls stark aufkonzentriert werden, um Ergebnisse oberhalb der Nachweisgrenze zu erhalten. Eine Möglichkeit bietet dabei beispielsweise die Veraschung von Proben, da damit das Probenvolumen drastisch reduziert werden kann. Allerdings ist dabei zu beachten, dass eine ausreichende Menge Probenmaterial zur Verfügung steht, damit nach der Veraschung noch genügend Masse vorhanden ist, um einen Marinelli-Behälter oder eine Petrischale zu füllen. Des Weiteren muss berücksichtigt werden, dass zum Beispiel Elemente wie Iod oder Caesium nicht beliebig hoch erhitzt werden dürfen. da sich diese sonst verflüchtigen. Eine vorgegebene Geometrie wie von Marinelli-Gefäßen oder Petrischalen ist für die Gammaspektrometrie besonders wichtig, um den Detektor bezüglich der Nachweiswahrscheinlichkeit kalibrieren zu können. Sogar unterschiedliche Positionen der Probe auf dem Detektor können zu verschiedenen Ergenissen führen.

Die Boden-, Nahrungsmittel-, Sediment- und Algenproben aus der Ukraine lagen schon in gefriergetrockneter Form und wie die Fischproben in Polyethylen-Beuteln verschweist vor. Die Fische wurden vor dem Einfrieren ausgenommen aber sonst nicht weiter behandelt. Die PE-Beutel wurden im ZSR tiefgekühlt bis zur Weiterverarbeitung gelagert. Allerdings konnte keine der vorhandenen Proben nach dem Auftauen direkt in Messgefäße gefüllt werden. Bei den Bodenproben waren noch kleine Steine und Teile von Wurzeln zu erkennen, die es vor dem Umfüllen zu entfernen galt. Außerdem aggregierte der Boden teilweise zu recht großen Klumpen. Auch in den Gemüseproben waren Aggregate vorhanden und darüberhinaus war das Material nicht gleichmäßig zerkleinert. In vielen Proben wurden feste Stücke mit einem Durchmesser von ungefähr 1 cm gefunden. Zusätzlich waren bei einigen PE-Beuteln die Schweißnähte aufgebrochen. Es musste daher davon ausgegangen werden, dass die Proben wieder Wasser aus der Umgebungsluft aufgenommen hatten und daher nachgetrocknet werden mussten. Alle Proben, die im Trockenschrank getrocknet wurden, wurden dafür in Keramikschalen gefüllt, die mit handelsüblicher Aluminiumfolie ausgekleidet wurden. Durch diese Maßnahme sollte das Risiko einer Kreuzkontamination mit anderen Proben verringert werden. Zur Verhinderung einer Kontamination der Gammaspektrometer wurden alle Petrischalen ordentlich verklebt und zusätzlich in einen PE-Beutel eingeschweißt. Dazu wurde zuerst dünn Montagekleber in den Rand des Deckels aufgetragen. Danach wurde der Deckel auf das Unterteil der Petrischale gelegt und leicht angedrückt. Die Fuge zwischen Boden und Deckel der Petrischale wurde zusätzlich mit Montagekleber verfüllt und geglättet, um sicher zu stellen, dass kein Probenmaterial nach außen gelangen kann.

#### Boden

Bei der Aufbereitung der neun Bodenproben wurde das Verfahren aus den Messanleitungen des BMU [5] angewandt. Um sicherzustellen, dass der Boden vollständig trocken ist, wurde dieser bei 50 °C bis zur Gewichtskonstanz im Trockenschrank getrocknet. Dazu wurden große Aggregate im Boden zerkleinert und dieser danach in Keramikschalen gefüllt. Alle Proben wurden mindestens 24 Stunden getrocknet und hatten danach eine Masse von je etwa 200 g<sup>1</sup>. Im nächsten Schritt wurde der Skelettanteil entfernt. Das heißt, es wurden Steine und Wurzelmaterial aussortiert. Dazu wurde das Probenmaterial nacheinander durch Siebe mit einer Maschenweite von 2 mm, 1 mm und 0,5 mm gegeben. Wenn in einem Siebrückstand noch Bodenaggregate vorhanden waren, wurden diese mit Hilfe eines Keramikmörsers aufgebrochen und nochmals gesiebt. Der dann übrig gebliebene Rückstand wurde als Skelettanteil identifiziert und gewogen. Anschließend wurde der Boden nochmals von Hand durchmischt, um eine möglichst gute Homogenisierung zu gewährleisten und in große Petrischalen<sup>2</sup> gepresst. Dazu wurde soviel Material in die Petrischale eingefüllt und mit einer hydraulischen Presse mit etwa 100 bar Druck verdichtet, dass diese bis zum Rand gefüllt war. Anschließend wurde die Petrischale mit Montagekleber verschlossen.

#### Gemüse

Die 27 Gemüseproben wurden nach dem Verfahren aus der Loseblattsammlung des Fachverbands für Strahlenschutz für landwirtschaftliche Produkte [6] aufbereitet. Hierbei wurde das Gemüse bei 105 °C im Trockenschrank für mindestens vier Tage getrocknet und anschließend in einer Schwingmühle staubfein zermahlen. Nach dem Mahlvorgang wurden die Proben nochmals nachgetrocknet und dann mittels einer hydraulischen Presse mit einem Druck von etwa 100 bar in kleine Petrischalen<sup>3</sup> verpackt. Für die Gemüseproben konnten nur kleine Petrischalen verwendet werden, da nach dem Trocknungsvorgang lediglich etwa 50 g - 100 g<sup>4</sup> zur Verfügung standen.

 $<sup>^{1}</sup>$ vgl. Tabelle A.7 auf Seite 51

 $<sup>^2 \</sup>rm Mit$ großen Petrischalen sind die im ZSR verwendeten Petrischalen mit einem Durchmesser von 10 cm gemeint.

 $<sup>^3{\</sup>rm Mit}$ kleinen Petrischalen sind die im ZSR verwendeten Petrischalen mit einem Durchmesser von 5 cm gemeint.

 $<sup>^4\</sup>mathrm{vgl.}$  Tabelle A.8 auf Seite52

#### Sediment

Für die Aufarbeitung der Sedimentprobe wurde nach dem Verfahren aus den Messanleitungen des BMU [3] vorgegangen. Zuerst wurde das Sediment bei 105 °C im Trockenschrank bis zur Gewichtskonstanz getrocknet. Von der Option des Glühens der Probe bei 450 °C im Muffelofen wurde abgesehen, um den Verlust von Caesium ausschließen zu können. Im Anschluss wurde das Probenmaterial in einer Schwingmühle staubfein zermahlen und anschließend nochmals im Trockenschrank nachgetrocknet. Zum Schluss wurde das feingemahlene Sediment nach kurzem Durchmischen in einer großen Petrischale mittels einer hydraulischen Presse zu einem Pressling verarbeitet. Der maximale Druck lag bei etwa 100 bar. Abschließend wurde die Petrischale mit Montagekleber verklebt und abgedichtet.

#### Algen

Zur Verarbeitung der Algenprobe wurde die Messanleitung des BMU für Schwebstoffe [2] verwendet. Danach wurde die Probe im Trockenschrank bei 105 °C bis zur Gewichtskonstanz getrocknet, aber nicht bei 450 °C im Muffelofen geglüht, da einerseits nicht genügend Probenmaterial zur Verfügung stand und andererseits so der Verlust von Caesium ausgeschlossen werden konnte. Mit einer Schwingmühle wurde die Probe anschließend staubfein zermahlen, im Trockenschrank nachgetrocknet und mit einer hydraulischen Presse bei etwa 100 bar zu einem Pressling in einer großen Petrischale verarbeitet. Diese wurde mit Montagekleber verschlossen und zusätzlich abgedichtet.

#### Fisch

Bei der Aufarbeitung der Fische wurde die Messanleitung des BMU für Fisch [1] als Grundlage verwendet. Hiernach sollen nur essbare Teile des Fisches gammaspektrometrisch untersucht werden. Dementsprechend wurden die Fische direkt nach dem Auftauen von Haut und Gräten befreit. Wegen der geringen Masse der fünf verschiedenen Fischsorten von knapp 1,5 kg wurden die Fische nicht getrennt behandelt sondern werden zum Schluss zu einer Probe zusammengefasst. Durch das Entfernen von Gräten und Haut wurde die Probenmasse auf knapp 550 g reduziert. In der Messanleitung wird nun ein stufenweises Veraschungsprogramm bis 450 °C vorgeschlagen. Um die Gefahr der Verflüchtigung von Caesium zu verringern, wurde ein alternatives Veraschungsprogramm mit einer Maximaltemperatur von 380 °C gewählt. Mit den Hinweisen aus [1] wurde folgendes Veraschungsprogramm verwendet:

- Trocknen bei 110 °C für 48 Stunden
- Aufheizen auf 260 °C in 24 Stunden
- Trocknen bei 260 °C für 18 Stunden
- Aufheizen auf 300 °C in 4 Stunden
- Trocknen bei 300 °C für 18 Stunden

- Aufheizen auf 340 °C in 4 Stunden
- Trocknen bei 340 °C für 18 Stunden
- Aufheizen auf 380 °C in 4 Stunden
- Trocknen bei 380 °C für 18 Stunden

Die Fischfilets wurden dazu zerkleinert und auf drei mit Transparentpapier ausgelegte Keramikschalen aufgeteilt, damit wegen der dünnen Probenschicht die Veraschung effizienter abläuft. Das Papier sollte das Festbacken der Probe am Boden der Schale verhindern. Nach der Veraschung hat sich die Masse des Papiers zudem soweit verringert, dass diese das Ergebnis der Aschmasse nicht verfälscht. Alle drei Schalen wurden dabei gleichzeitig in demselben Ofen erhitzt. Anschließend wurde die Probe mit einer hydraulischen Presse bei etwa 100 bar zu einem Pressling verarbeitet. Durch den Veraschungprozess wurde die Probenmasse soweit reduziert, dass als Gefäß eine modifizierte kleine Petrischale gewählt wurde, die zum Schluss doppelt mit Montagekleber verschlossen und eingeschweißt wurde. Da die Aschmasse deutlich geringer war als erwartet, wurde von der Werkstatt des ZSR der Rand einer kleinen Petrischale soweit abgedreht, dass der Deckel beinahe bündig mit dem Boden abgeschlossen hat. Diese Petrischale konnte bis zum Rand mit Probenmaterial gefüllt werden.

#### Knochen

Zu den Proben aus der Ukraine gehören noch drei Proben von Schweineknochen und eine Probe von Wildschweinknochen. Aus Zeitmangel konnten diese nicht mehr vorbereitet und untersucht werden. Für eine spätere Bearbeitung dieser Proben ist zu beachten, dass in den Messanleitungen des BMU bzw. der Loseblattsammlung des AKU kein Verfahren zur Bearbeitung von Knochen zu finden ist, da diese sich hauptsächlich auf vom Menschen verzehrte Teile beschränken. Aus früheren Versuchen am ZSR ist zudem bekannt, dass die Knochen bei einer Temperatur von 450 °C noch nicht vollständig verascht werden sondern lediglich porös werden. Höhere Temperaturen sind auf jeden Fall zu vermeiden, da ab 400 °C mit Verlust von Caesium zu rechnen ist. Zufriedenstellende Ergebnisse wurden hingegen mit dem Zerschlagen und anschließenden Mörsern von in flüssigem Stickstoff tiefgekühlten Knochen gemacht. Mit dem abschließenden Mahlen in der Schwingmühle könnte dann eventuell ein homogenes staubfein zermahlenes Pulver erreicht werden.

# 3.2. Messung der Proben mittels Gammaspektrometrie

Ziel dieser Arbeit war es, Aussagen über den Transfer von <sup>137</sup>Cs zwischen zwei Kompartimenten zu treffen. Um dies zu realisieren, musste die Aktivität des Caesiums in beiden Kompartimenten bestimmt werden. Wie in Kapitel 2.3 auf Seite 11 erläutert, wurde dazu die Spektrallinie der Gammastrahlung des <sup>137m</sup>Ba genutzt, die mit Hilfe des Reinstgermanium-Halbleiterdetektors<sup>5</sup> EMMI am ZSR ausgewertet wurde.

#### 3.2.1. Auswertung der Spektren

Für die Auswertung der Spektren wurde das Programm Gamma-W verwendet. Mit diesem Programm konnte die Netto Peakfläche mit der zugehörigen Unsicherheit bestimmt werden. Die Untergrundstrahlung wird dabei von der Strahlung des <sup>137</sup>Cs nach dem folgenden Prinzip wie in Abbildung 3.1 verdeutlicht herausgerechnet. Aus den Rand-



Abbildung 3.1.: Bestimmung der Nettopeakfläche am Beispiel der Bodenprobe JR09J9

bereichen wird eine mittlere Ereigniszahl für den Bereich links und rechts des Peaks bestimmt. Die Funktion für den Hintergrund unter dem Peak ist eine glatte Treppenfunktion. Durch Subtraktion der Untergrundzählrate von der Peakfläche erhält man nun die Netto Peakfläche. Mit dem Befehl *CALC* führt *Gamma-W* die Berechnung der Netto Peakfläche automatisch aus und gibt zusätzlich die Unsicherheit aus. Die Unsicherheit der Peakfläche setzt sich dabei aus den Unsicherheiten des Peakfits und der des Untergrundes zusammen und überschätzt die  $1-\sigma$ -Standardabweichung durchschnittlich um den Faktor 1,5 - 2,5. [32]

#### 3.2.2. Bestimmung der Nachweiswahrscheinlichkeit

Zur Bestimmung der Aktivität einer Probe wird zusätzlich zur Peakfläche die Nachweiswahrscheinlichkeit oder Efficiency  $\varepsilon$  benötigt. Sie gibt an mit welcher Wahrscheinlichkeit

<sup>&</sup>lt;sup>5</sup>Diese Detektoren werden auch als HPGe-Detektoren (high purity germanium) bezeichnet.

ein von der Probe emittiertes Photon vom Detektor registriert wird und muss für jede Probe experimentell bestimmt werden. Die Efficiency ergibt sich dann als Quotient der im Detektor registrierten Photonen pro Sekunde zu den tatsächlich emittierten Photonen pro Sekunde.

$$\varepsilon = \frac{N_{reg}}{N_{em}} \tag{3.1}$$

Für die Bestimmung der Efficiency wurde der Multielementstandard QCY48<sup>6</sup> verwendet. Die Standardlösung mit bekannter Aktivität der Nuklide wurde im ZSR von 5,3709 g auf 223,22 g verdünnt und dann zu Standardpräparaten verschiedener Größe weiterverarbeitet. Da alle Proben in kleinen und großen Petrischalen gemessen wurden, wurden zwei Standardpräparate mit 5 cm und 10 cm Durchmesser benötigt. Bei dem Standardpräparat für die großen Petrischalen wurde 3,918 g des verdünnten Multielementstandards auf ein passend zugeschnittenes Filterpapier aufgetragen, getrocknet und in Folie eingeschweißt<sup>7</sup>. Für das Standardpräparat für kleine Petrischalen wurde ebenfalls ein



Abbildung 3.2.: QCY48-Standardpräparate für große Petrischalen (links) und kleine Petrischalen (rechts)

Filterpapier zurecht geschnitten und in den Deckel der Petrischale gelegt. Dann wurden 2,442 g des verdünnten Multielementstandards gleichmäßig auf das Filterpapier pipettiert und dieses dann 48 Stunden an der Luft getrocknet. Abschließend wurde der Boden der Petrischale in den Deckel gelegt und an der Seite mit Montagekleber verschlossen. Vorteilhaft hieran ist, dass das Standardpräparat plan auf dem Detektor bzw. der Probe liegt und dabei weniger Schichten nötig sind als bei dem Folienstandardpräparat bei

 $<sup>^6\</sup>mathrm{Die}$  Spezifikationen können dem Beiblatt auf Seite 56 entnommen werden.

<sup>&</sup>lt;sup>7</sup>Die genaue Herstellung ist [10] zu entnehmen.

großen Petrischalen. Um die Efficiency einer Probe auf einem Detektor zu bestimmen, sind drei Messungen notwendig. Bei der ersten Messung liegt nur der Standard auf dem Detektor. Als nächstes wird die Probe mit oben aufliegendem Standard gemessen und schließlich wird in der eigentlichen Messung nur die Probe auf den Detektor gelegt. Aus einem Satz von drei Messungen kann dann die Efficiency folgendermaßen bestimmt werden.

$$\varepsilon_{oben} = \frac{N_{reg,oben}}{N_{em}}$$

$$\varepsilon_{unten} = \frac{N_{reg,unten}}{N_{em}}$$

$$\varepsilon = \frac{\varepsilon_{oben} - \varepsilon_{unten}}{ln(\varepsilon_{oben}) - ln(\varepsilon_{unten})}$$
(3.2)

Wie in Kapitel 3.2.1 auf Seite 28 erläutert, werden die registrierten Photonen pro Sekunde nach jeder Messung mittels *Gamma-W* bestimmt. Man erhält  $N_{reg,oben}$  als Differenz der Zählraten der Probe mit oben aufliegendem Standardpräparat und der Zählrate ohne Standardpräparat und dessen quadratische Unsicherheit  $u(N_{reg,oben})^2$  als Summe der quadratischen Unsicherheit der Messung der Probe und der Messung der Probe mit Standardpräparat. Die tatsächlich pro Sekunde emittierten Photonen  $N_{em}$  in dem Standardpräparat werden über die Angaben des Herstellers der QCY48-Standardlösung und der Masse der Lösung auf dem Filterpapier bestimmt. Zusätzlich wirde eine Zerfallskorrektur auf den Tag der Messung durchgeführt und man erhält

$$N_{em}(t) = k \cdot m_{Filter} \cdot N_{Std} \cdot exp\left(-ln(2) \cdot \frac{t}{T_{1/2}}\right)$$
(3.3)

 $\operatorname{mit}$ 

k : Verdünnungsfaktor

 $m_{Filter}$ : Masse der verdünnten Standardlösung auf dem Filter

 $N_{Std}$ : Zahl pro Sekunde emittierter Photonen der unverdünnten Standardlösung

 $t \; : \;$ Zerfallszeit seit dem Referenzzeitpunkt der Standardlösung

 $T_{1/2}$  : Halbwertszeit von <sup>137</sup>Cs

als zeitlich abhängige theoretische Zählrate. Insgesamt lautet die Formel für die Berechnung der Nachweiswahrscheinlichkeiten also

$$\varepsilon_{oben,\,unten} = \frac{N_{reg,oben},\,N_{reg,unten}}{k \cdot m_{Filter} \cdot N_{Std} \cdot exp\left(-ln(2) \cdot \frac{t}{T_{1/2}}\right)} \tag{3.4}$$

und die Unsicherheiten ergeben sich nach Gleichung (2.9) zu

$$\left(\frac{u(\varepsilon_{oben})}{\varepsilon_{oben}}\right)^{2} = \left(\frac{u(N_{reg,oben})}{N_{reg,oben}}\right)^{2} + \left(\frac{u(k)}{k}\right)^{2} + \left(\frac{u(m_{Filter})}{m_{Filter}}\right)^{2} + \left(\frac{u(N_{Std})}{N_{Std}}\right)^{2} + \left(\frac{ln(2) \cdot t}{T_{1/2}}\right)^{2} \cdot \left(\frac{u(T_{1/2})}{T_{1/2}}\right)^{2}$$
(3.5)

und

$$\left(\frac{u(\varepsilon_{unten})}{\varepsilon_{unten}}\right)^2 = \left(\frac{u(N_{reg,unten})}{N_{reg,unten}}\right)^2 + \left(\frac{u(k)}{k}\right)^2 + \left(\frac{u(m_{Filter})}{m_{Filter}}\right)^2 + \left(\frac{u(N_{Std})}{N_{Std}}\right)^2 + \left(\frac{ln(2) \cdot t}{T_{1/2}}\right)^2 \cdot \left(\frac{u(T_{1/2})}{T_{1/2}}\right)^2 \quad . \tag{3.6}$$

Nun kann unter Berücksichtigung der Rechengesetze für Logarithmen auch die Unsicherheit des logarithmischen Mittelwerts der Nachweiswahrscheinlichkeit

$$u^{2}(\varepsilon) = \left(\frac{\ln\left(\frac{\varepsilon_{oben}}{\varepsilon_{unten}}\right) + \frac{\varepsilon_{unten}}{\varepsilon_{oben}} - 1}{\ln^{2}\left(\frac{\varepsilon_{oben}}{\varepsilon_{unten}}\right)}\right)^{2} \cdot u^{2}(\varepsilon_{oben}) + \left(\frac{\ln\left(\frac{\varepsilon_{unten}}{\varepsilon_{oben}}\right) + \frac{\varepsilon_{oben}}{\varepsilon_{unten}} - 1}{\ln^{2}\left(\frac{\varepsilon_{unten}}{\varepsilon_{oben}}\right)}\right)^{2} \cdot u^{2}(\varepsilon_{unten}) \quad .$$
(3.7)

berechnet werden. Danach ergeben sich dann Nachweiswahrscheinlichkeiten von 2 % für die Bodenproben und 2,75 % für die Gemüseproben<sup>8</sup>. Bemerkenswert hieran ist, dass trotz der geringeren Probenmasse der Gemüseproben in den kleinen Petrischalen die Nachweiswahrscheinlichkeit deutlich größer ist als bei den großen Petrischalen. Zudem wird an Tabelle A.9 deutlich, dass es nicht zwingend notwendig ist, die Efficiency von jeder Probe einzeln zu bestimmen. Die Standardunsicherheit aller Proben gleichen Typs beträgt lediglich 0,5 % und es könnte bei folgenden Messungen überlegt werden, weniger Kalibrierungsmessungen für die Nachweiswahrscheinlichkeit durchzuführen. Wegen der gleichen Probenvorbereitung hätte in diesem Fall eine Kalibriermessung für die Böden und eine für die drei Gemüsesorten ausgereicht. Dies wäre eine Möglichkeit, die Messungen bezüglich des benötigten Zeitaufwandes zu optimieren.

## 3.3. Berechnung der Transferfaktoren

Für die Bestimmung der Aktivitäten des Bodens und der Nahrungsmittelproben wurden diese zuerst aufwendig vorbereitet und danach mit einem HPGe-Halbleiterdetektor gemessen. Durch die Trocknungsvorgänge wurden die Radionuklide im Probenmaterial aufkonzentriert, so dass eine effizientere Messung erreicht werden konnte. Bei den vorliegenden Proben aus der Ukraine konnte die Nachweisgrenze dabei oft sehr deutlich überschritten werden. Sämtliche Bodenproben liegen mindestens um den Faktor Zehn über der Nachweisgrenze und auch die Werte der Nahrungsmittel sind etwa dreimal so groß wie die Nachweisgrenze. Die Messzeiten betrugen für die Bodenproben 12 Stunden und für alle Nahrungsmittel-, Sediment- und Algenproben einheitlich 24 Stunden, da eine längere Messdauer den Zeitraum dieser Arbeit überschritten hätte. Für die Unsicherheiten der spezifischen Aktivität bezüglich der Trockenmasse ergeben sich somit Werte

 $<sup>^8\</sup>mathrm{Vgl.}$  Tabelle A.9 auf Seite 53
zwischen 1 % und 10 %. Der Median von ihnen liegt bei knapp unter 5 %, so dass gut die Hälfte der Ergebnisse eine Unsicherheit kleiner als 5 % haben. Werden aber beispielsweise für die übrigen Messungen auch kleine Unsicherheiten verlangt, muss die Messzeit dementsprechend verlängert werden, da der Beitrag aus der Messung der Signifikanteste ist. Pauschal erfordern Proben mit niedriger Aktivität immer eine längere Messdauer. Für die Transferfaktoren müssen die Ergebnisse bezogen auf die Trockenmasse erst wieder auf die Frischmasse umgerechnet werden, da zur Bewertung der Strahlenexposition eines Menschen immer dessen Verzehr eines Nahrungsmittels in frischer Form zu Grunde gelegt wird.

#### 3.3.1. Verhältnis von Frischmasse zu Trockenmasse

Um die Umrechnungsfaktoren von Trockenmasse eines Nahrungsmittels bzw. der Algen zu der entsprechenden Frischmasse bestimmen zu können, wurde schon in der Ukraine die Frischmasse bestimmt. Dort wurden jeweils 500 g einer Probe in frischer Form abgewogen und nach der Gefriertrocknung unter Angabe der dort bestimmten Trockenmasse in PE-Beutel eingeschweißt. Im ZSR wurden die Proben aufgetaut und nochmals wie in Kapitel 3.1 auf Seite 24 beschrieben nachgetrocknet, da einige Proben nicht mehr verschlossen waren. Ob dies zwischen einigen Proben zu Kreuzkontaminationen geführt hat, kann nicht ausgeschlossen werden, wird aber auf Grund der geringen Masse, die nach außen gelangt ist, nicht angenommen. Darüber hinaus liegen die spezifischen Aktivitäten aller Nahrungsmittelproben in der gleichen Größenordnung, so dass selbst bei einer Kontamination in geringen Mengen innerhalb der Proben nicht mit einer signifikanten Änderung der spezifischen Aktivität gerechnet werden muss. Nach der Trocknung wurde eine deutliche Abweichung der Trockenmassen zu den ukrainischen Daten festgestellt. Dabei beträgt der Unterschied in gut 60 Prozent der Fälle über 15 % und maximal sogar fast 25 %. Lediglich bei der Probe JR09A2 betrug der Unterschied der Trockenmasse nach dem Trocknen im ZSR zu der Angabe aus der Ukraine nur 0,1 %. Die nächst höhere Abweichung beträgt schon 9 %. Der Tabelle A.8 auf Seite 52 können alle diese Daten entnommen werden. Aus diesem Grund wurden die ukrainischen Daten für die Trockenmasse verworfen und die Ergebnisse der Trocknung im ZSR als wahr festgelegt. Die Angaben über die Frischmasse der Proben werden wegen fehlender Uberprüfungsmöglichkeiten ebenfalls als wahr angenommen. Da es von jeder Gemüsesorte jeweils nur drei Proben eines Typs gibt, konnten keine vertrauenswürdigen Mittelwerte der Faktoren für die Reduktion der Masse durch den Trocknungsvorgang bestimmt werden.

#### Kartoffeln

Die Probenmasse der Kartoffeln konnte durch die gesamte Trocknung auf durchschnittlich 18 % reduziert werden. Für die ungeschälten Kartoffeln ergibt sich ein Verhältnis TM/FM von 0,172  $\pm$  0,017 und für die Kartoffelschalen von 0,191  $\pm$  0,003. Bei der verstärkt interessierenden geschälten Kartoffel erhält man 0,185  $\pm$  0,010 als Verhältnis von Trocken- zu Frischmasse. Diese Werte sind vergleichbar mit anderen Arbeiten. In [9] wird für Kartoffeln beispielsweise eine Trockenmasse von 23 % ermittelt. Auch vom BMU [4] wird ein mittlerer Wassergehalt bei Kartoffeln von 77,8 % angegeben. Somit besteht eine kleine Differenz zwischen Literaturwerten und den im ZSR ermittelten Werten, die aber trotzdem als glaubhaft angenommen werden, da es sich bei der Kartoffel um ein Naturprodukt handelt und als solches keinen konstanten Wassergehalt besitzt. Zudem wurden in der genannten Literatur keine Angaben über Konfidenzintervalle gemacht, so dass kein aussagekräftiger Vergleich zwischen den Literaturangaben und den gemessenen Werten gezogen werden kann.

Kennzeichen	Beschreibung	Verhältnis TM/FM	u(TM/FM) in %
JR09 A1	ungeschält	$0,\!144$	0,08
JR09 D1	${ m ungesch\"alt}$	0,203	$0,\!07$
JR09 G1	${ m ungesch\"alt}$	0,169	$0,\!08$
JR09 A2	geschält	0,166	0,08
JR09 D2	$\operatorname{gesch\"alt}$	0,199	$0,\!07$
JR09 G2	$\operatorname{gesch\"alt}$	0,190	$0,\!07$
JR09 A3	Schalen	0,188	$0,\!07$
JR09 D3	$\operatorname{Schalen}$	0,197	$0,\!07$
JR09 G3	$\operatorname{Schalen}$	0,189	$0,\!07$

Tabelle 3.1.: Verhältnis von Trockenmasse zu Frischmasse bei Kartoffeln

#### Karotten

Durch die Trocknung der Karotten und Karottenteile konnte die Masse auf durchschnittlich 10 % der Frischmasse reduziert werden. Im einzelnen ergibt sich ein Umrechnungsfaktor von Frisch- zu Trockenmasse für geschälte Karotten von  $0,097 \pm 4,8$  %. Für die drei Proben der ungeschälten Karotten wurde ein relativ konstanter Wert von  $0,104 \pm 1,3$  % ermittelt. Im Gegensatz dazu ist die Streuung bei dem Verhältnis TM/FM bei den Karottenschalen mit 19,4 % deutlich größer. Der Anteil der Trockenmasse bei den Schalen liegt bei durchschnittlich 9 %  $\pm 1$  % und ist damit bei den drei untersuchten Gemüsesorten der Niedrigste.

#### Rote Bete

Bei der Rote Bete konnte im Mittel ein Massenverlust von etwa 89 % gemessen werden. Der Mittelwert der Umrechnungsfaktoren von Frischmasse zu Trockenmasse beträgt bei der geschälten und ungeschälten Rote Bete 0,106. Die Standardabweichung des Mittelwertes ist bei der ungeschälten Frucht mit 12,9 % nur etwas höher als bei der geschälten Rote Bete mit 10,7 %. Für die Umrechnung der Frischmasse der Schalen ergibt sich ein Faktor von 0,12  $\pm$  10,9 %.

#### Algen

Bei den Flussalgen konnte die Frischmasse durch Trocknen um 94 % reduziert werden.

#### 3. Bestimmung der Transferfaktoren für <sup>137</sup>Cs

Kennzeichen	Beschreibung	Verhältnis TM/FM	u(TM/FM) in %
JR09 C1	ungeschält	0,103	0,18
JR09 F1	${ m ungesch\"alt}$	0,106	0, 10
JR09 J1	${ m ungesch\"alt}$	0,102	0, 10
JR09 C2	$\operatorname{gesch\"alt}$	0,096	0,10
JR09 F2	$\operatorname{gesch\"alt}$	0,090	$0,\!11$
JR09 J2	$\operatorname{gesch\"alt}$	0,106	0, 10
JR09 C3	Schalen	$0,\!070$	0,13
JR09 F3	$\operatorname{Schalen}$	$0,\!098$	0, 10
JR09 J3	$\operatorname{Schalen}$	$0,\!102$	0, 10

Tabelle 3.2.: Verhältnis von Trockenmasse zu Frischmasse bei Karotten

Tabelle 3.3.: Verhältnis von Trockenmasse zu Frischmasse bei Rote Bete

Kennzeichen	Beschreibung	Verhältnis TM/FM	u(TM/FM) in %
JR09 B1	ungeschält	0,099	0, 10
JR09 E1	${ m ungesch\"alt}$	$0,\!087$	0, 11
JR09 H1	ungeschält	0,133	$0,\!08$
JR09 B2	geschält	0,092	0,11
m JR09~E2	$\operatorname{gesch\"alt}$	$0,\!097$	0, 10
JR09 H2	$\operatorname{gesch\"alt}$	0,128	0,09
JR09 B3	$\operatorname{Schalen}$	0,105	0, 10
JR09 E3	$\operatorname{Schalen}$	$0,\!110$	0,09
JR09 H3	$\operatorname{Schalen}$	0,146	0,08

#### Fisch

Der Fisch wurde wie in Kapitel 3.1 auf Seite 26 beschrieben in drei Keramikschalen verascht. Danach ergaben sich drei verschiedene Faktoren für die Umrechnung von Frischmasse in Aschemasse. Es wurden Gewichtsreduzierungen auf 1,2 %, 2,4 % und 3,2 % erreicht. Nach [1] wurde eigentlich eine Aschemasse von 20 % (Bereich 5 % bis 35 %) der Frischmasse erwartet. Daher ergaben sich auch die genannten Probleme bei der Verpackung der Probenmasse.

Tabelle 3.4.: Verhältnis von Trockenmasse zu Frischmasse bei Flussalgen

Kennzeichen	Beschreibung	Verhältnis TM/FM	u(TM/FM) in %
JR09 K2	${ m Flussalgen}$	$0,\!06$	0,08

Kennzeichen	Beschreibung	Verhältnis AM/FM	u(AM/FM) in %
JR09 K3	Fischfilets	$0,\!0245$	0,53
	Schale 1	0,0117	1,32
	Schale 2	$0,\!0321$	$0,\!69$
	Schale 3	$0,\!0235$	$0,\!93$

Tabelle 3.5.: Verhältnis von Aschemasse zu Frischmasse bei den Fischfilets der fünf Fischsorten

# 3.3.2. Transfer von <sup>137</sup>Cs in die Nahrungskette

Der Übergang eines Stoffes zwischen zwei Kompartimenten wird durch die entsprechenden Transferfaktoren beschrieben. Der Boden ist in dieser Arbeit das Ausgangskompartiment für die Bestimmung des Transfers von <sup>137</sup>Cs in unterschiedliche Gemüsesorten und speziell sogar in verschiedene Teile der Gemüse. Bei den Fischen werden die Flussalgen als Ausgangskompartiment betrachtet und in einer weiteren Stufe bildet der Flusssand das Ausgangskompartiment für die Flussalgen. Das Modell der Auswertung lautet dabei



Abbildung 3.3.: Betrachtete Migrationswege von <sup>137</sup>Cs

für den Übergang vom Boden in die Pflanze

$$TF_{Boden-Gemüse} = \frac{a(Gemüse_{FM})}{a(Boden_{TM})}$$
(3.8)

. . .

und für den Übergang von Flusssand in Fisch

$$TF_{Flusssand-Algen} = \frac{a(Algen_{FM})}{a(Flusssand_{TM})}$$
$$TF_{Algen-Fisch} = \frac{a(Fisch_{FM})}{a(Algen_{FM})}$$
(3.9)

 $\mathrm{TF}_{\mathrm{Flusssand-Fisch}} = \mathrm{TF}_{\mathrm{Flusssand-Algen}} \cdot \mathrm{TF}_{\mathrm{Algen-Fisch}} \quad,$ 

wobei die Transferfaktoren TF als Quotient der spezifischen Aktivitäten in den jeweiligen Kompartimenten gebildet werden. Bis auf die Böden und den Flusssand wird dabei alles auf die Frischmasse bezogen. Nicht berücksichtigte Unsicherheiten könnten bei der Bestimmung der Umrechnungsfaktoren von Frisch- in Trockenmasse entstanden sein. Obwohl die Proben unmittelbar nach dem Trocknen in die Petrischalen verpackt wurden, besteht die Möglichkeit, dass sie während dieses Vorgangs wieder Wasser aus der Umgebungsluft aufgenommen haben. Für die Berechnungen in dieser Arbeit wurde allerdings angenommen, dass die Proben vollständig getrocknet sind. Die Böden im Probenahmegebiet sind nach [24] sodige und lehmige Podsole.

#### Kartoffeln

Aus der Darstellung der Ergebnisse in Abbildung 3.4 ist kein eindeutiger Zusammenhang zwischen der Stärke der Kontamination des Bodens und der spezifischen Aktivität im Gemüse zu erkennen. Nur bei den Kartoffelschalen kann vermutet werden, dass bei zunehmender spezifischer Aktivität des Bodens die Aufnahme in die Schale abnimmt. Auch ein klarer Trend beim Transfer von Caesium in Abhängigkeit vom Pflanzenteil kann



Abbildung 3.4.: Transfer von <sup>137</sup>Cs aus verschieden stark kontaminierten Böden in Kartoffeln bzw. Kartoffelteile

nicht eindeutig aufgezeigt werden. Die Vermutung liegt Nahe, dass die Caesiumbelastung der Schale am größten und die Belastung der geschälten Kartoffel am geringsten ist, da der Boden natürlich direkten Kontakt zur Kartoffel hat. Bei den Proben A und D lässt sich dies in den Ergebnissen wieder erkennen. Bei den Proben G, die von den Feldern mit der höchsten spezifischen Aktivität von Caesium stammen, nimmt der Transfer in die Kartoffelschale im Vergleich zu der ungeschälten Kartoffel hingegen signifikant ab. An dieser Stelle wären Daten über die Probenbehandlung in der Ukraine wünschenswert. Laut der Messanleitung des BMU [4] sollen Kartoffeln normiert gewaschen werden, um eine immer gleich bleibende Probenvorbereitung und somit eine bessere Vergleichbarkeit der Ergebnisse gewährleisten zu können. Da in diesem Fall gerade das Ergebnis der Schale der Kartoffeln Zweifel aufkommen lässt, könnten diese eventuell stärker gewaschen worden sein und somit eine niedrigere spezifische Aktivität haben. Aus der Mittelung der jeweils drei Ergebnisse für die verschiedenen Kartoffelproben ergeben sich

geschälte Kartoffeln	:	$0,00187 \pm 38,6 \%$
ungeschälte Kartoffeln	:	$0,00315\pm27,3~\%$
Kartoffelschalen	:	$0,00444 \pm 38,4 \%$

als Transferfaktoren für den Boden-Pflanze-Pfad mit zugehöriger Standardunsicherheit des Mittelwertes. Die Mittelwerte unterstützen also auch die These, das der Transfer von Caesium in die Schalen am größten ist und zu den ungeschälten Kartoffeln hin abnimmt. Im Vergleich dazu sind in Tabelle 3.6 empfohlene Transferfaktoren für Knol-

Tabelle 3.6.: Literaturangaben für den Transferfaktor von essbaren Teilen von Knollengemüse aus [25, 15]; für die Erklärung der Bodenart nach der US-Soil-Taxonomy siehe Abbildung A.1 auf Seite 46

		95 % Vertra	uensbereich
Bodenart	Empfohlener Wert	Untere Grenze	Obere Grenze
NRPB			
Sand	0,110	0,0140	0,89
Loam	0,029	0,0029	$0,\!28$
Clay	0,029	0,0034	$0,\!25$
Sand + Loam + Clay	$0,\!044$	0,0035	$0,\!56$
Organic	$0,\!055$	0,0060	$0,\!51$
IUR			
Sand	$0,\!170$	0,0170	1,70
Loam + Clay	$0,\!070$	0,0070	0,70
Organic	0,270	0,0270	2,70

lengemüse bezüglich verschiedener Bodentypen mit 95 % Vertrauensbereich aufgeführt. Die im ZSR erhaltenen Transferfaktoren liegen also an der Untergrenze des Vertrauensbereiches der Literaturangaben. Zur genaueren Bewertung dieses Ergebnisses müssten nähere geologische Informationen über den Boden verfügbar sein, da durch Sorption und Fixierung von <sup>137</sup>Cs im Boden die Pflanzenverfügbarkeit deutlich verändert werden kann. In [21] ist nachzulesen wie das Sorptionsvermögen von Caesium von verschiedenen Bodenparametern abhängt.

#### Karotten

Abbildung 3.5 macht deutlich, dass aus den gewonnenen Daten ein eventueller Zusammenhang zwischen Kontaminationsgrad des Bodens und Caesium in der Frucht hergestellt werden kann. Allerdings ist nur die Tendenz zu erkennen, dass die Aufnahme von Caesium in die Pflanze zu höher belasteten Böden hin abnimmt. Die Probe JR09C3 der Karottenschalen bei dem Boden mit der geringsten spezifischen Aktivität fällt dabei aus dem Muster. Wie schon bei den Ergebnissen bezüglich der Kartoffelproben erwähnt, könnte die Probenvorbereitung in der Ukraine dabei eine wichtige Rolle spielen, zu der aber leider keine Dokumentation existiert. Dies betreffend wären auch hier die geologischen Eigenschaften des Bodens von Interesse und ob diese die abnehmenden Transferfaktoren erklären können. Auch bei den Karotten als Wurzelgemüse erscheint es logisch,



Abbildung 3.5.: Transfer von  $^{137}$ Cs aus verschieden stark kontaminierten Böden in Karotten bzw. Karottenteile

dass die Belastung der Schalen durch Caesium wegen des direkten Kontaktes zum Boden am größten ist. Allerdings liefern die Daten hierfür keinen konsistenten Nachweis. Die Proben F zeigen genau das erwartete Verhalten, aber bei den Proben C und J fallen die Daten der Karottenschalen aus dem Rahmen. Der Transferfaktor nimmt bei der Probe JR09C3 der Schalen im Vergleich zu den geschälten und ungeschälten Karotten sehr stark ab. Und auch der Transfer in die Probe JR09J3 der Schalen hat gegenüber dem vorigen Wert leicht abgenommen. Da der Unterschied zwischen den Proben der geschälten Früchte und den Proben der ungeschälten Früchte lediglich im Vorhandensein der Schale besteht, müsste logischerweise die spezifische Aktivität der Schalen deutlich größer als die der ungeschälten Kartoffel sein. Würde nämlich die Schale von einer Kartoffel entfernt und dann geschälte Frucht und Schale einzeln gemessen werden, müsste sich bei der anschließenden Messung der vereinigten Probe ein Wert zwischen diesen ergeben. Hat man umgekehrt einen höheren Transferfaktor in die ganze Frucht als in die Geschälte, muss der Transferfaktor in die Schalen wiederum höher sein als in die ungeschälte Karotte. Da die Proben F genau diesen Zusammenhang zeigen und die anderen beiden Proben gerade bei den Werten der Schalen ein anderes Verhalten zeigen,

liegt die Vermutung nahe, dass durch die Probenvorbereitung diese Werte nicht mehr vergleichbar sind. Aus der Mittelung der jeweils drei Ergebnisse für die verschiedenen Karottenproben ergeben sich

geschälte Karotten	:	$0,00251 \pm 66,7 \%$
ungeschälte Karotten	:	$0,00358 \pm 46,9 \%$
Karottenschalen	:	$0,00249 \pm 34,9 \%$

als Transferfaktoren für den Boden-Pflanze-Pfad mit zugehöriger Standardunsicherheit des Mittelwertes. Im Vergleich dazu sind in Tabelle 3.7 empfohlene Transferfaktoren für

Tabelle 3.7.: Literaturangaben für den Transferfaktor von essbaren Teilen von Wurzelgemüse aus [25, 15]; für die Erklärung der Bodenart nach der US-Soil-Taxonomy siehe Abbildung A.1 auf Seite 46

		95 % Vertra	uensbereich
Bodenart	Empfohlener Wert	Untere Grenze	Obere Grenze
NRPB			
Sand	$0,\!054$	$0,\!0087$	0,33
Loam	$0,\!037$	$0,\!0015$	$0,\!90$
Clay	$0,\!022$	$0,\!0035$	$0,\!14$
Sand + Loam + Clay	$0,\!040$	0,0028	0,56
Organic	$0,\!079$	$0,\!0033$	$1,\!90$
IUR			
Sand	$0,\!011$	$0,\!0011$	0,11
Loam + Clay	$0,\!040$	$0,\!0040$	$0,\!40$

Wurzelgemüse bezüglich verschiedener Bodentypen mit 95 % Vertrauensbereich aufgeführt. Die Werte, die im ZSR bestimmt wurden, liegen also auch bei den Karotten an der unteren Grenze des Vertrauensbereiches.

#### Rote Bete

Die Charge der Proben von Rote Bete zeigt eindeutig das auch schon bei den Kartoffeln und Karotten beobachtete Verhalten. Anhand der Darstellung der Ergebnisse in Abbildung 3.6 kann man erkennen, dass die Aufnahme von Caesium in die Pflanze umso niedriger wird, je höher die spezifische Aktivität des Bodens ist. Dies gilt für die jeweiligen Proben der geschälten und der ungeschälten Rote Bete sowie der Schalen. Auch die Vermutung, dass der Transfer in die Schalen der Frucht am größten und in die geschälte Frucht am kleinsten ist, kann durch die Ergebnisse der Messung unterstützt werden. Die Proben B, E und H zeigen dabei alle ein identisches und deutliches Verhalten. Aus der Mittelung der jeweils drei Ergebnisse für die verschiedenen Proben von Rote Bete



Abbildung 3.6.: Transfer von <sup>137</sup>Cs aus verschieden stark kontaminierten Böden in Rote Bete bzw. Teile von Rote Bete

ergeben sich

geschälte Rote Bete :  $0,00088 \pm 37,7 \%$ ungeschälte Rote Bete :  $0,00132 \pm 31,1 \%$ Rote Bete Schalen :  $0,00340 \pm 39,6 \%$ 

als Transferfaktoren für den Boden-Pflanze-Pfad mit zugehöriger Standardunsicherheit des Mittelwertes. Diese Ergebnisse unterstützen nochmals die Vermutung, dass der Transfer von geschälter Rote Bete über ungeschälte Rote Bete zu den Schalen der Rote Bete hin zunimmt. Verglichen mit den Literaturwerten aus Tabelle 3.6 für Knollengemüse liegen die Ergebnisse dieser Arbeit aber sogar noch etwas unterhalb der unteren Grenze des 95 % Vertrauensbereiches. Ein Grund dafür könnte die Abhängigkeit der Aufnahme des Caesiums aus dem Boden durch die Pflanzen von den geo-chemischen Eigenschaften des Bodens sein. Wegen der Komplexität der Prozesse im Boden und in der Pflanze kann über diesen Punkt allerdings nur spekuliert werden, da zudem auch keinerlei Informationen über den Boden vorliegen.

#### Flussalgen und Fisch

Die Transferfaktoren wurden nach den Gleichungen (3.9) berechnet und nur auf den Transfer in das Fischfilet bezogen. Bis auf das Sediment wird alles auf den Transfer in die Frischmasse bezogen. Danach ergeben sich

#### 3. Bestimmung der Transferfaktoren für <sup>137</sup>Cs

Kalibriermasse in g	Unsicherheit in g
10	$0,\!00006$
100	$0,\!00016$
200	0,0003
500	0,0008
1000	$0,\!0075$
2000	$0,\!0150$

Tabelle 3.8.: Kalibriermassen mit zugehörigen Unsicherheiten

als Transferfaktoren für die unterschiedlichen Pfade. Auffällig dabei ist, dass sich das Caesium anscheinend vermehrt im Fischfleisch sammelt.

# 3.4. Qualitätssicherung

Um gewährleisten zu können, dass die in dieser Arbeit erhobenen Daten glaubwürdig sind, wurden verschiedene qualitätssichernde Maßnahmen ergriffen. So wurde die für die Messungen verwendete Waage kalibriert, es wurden regelmäßig Nulleffektmessung am Detektor *EMMI* durchgeführt und Proben durch andere Mitarbeiter im ZSR erneut gemessen.

# 3.4.1. Kalibrierung der Waage

Für die Massenbestimmung wurde die Waage im Probenvorbereitungsraum des ZSR mit der Typenbezeichnung Kern 474 verwendet. Mit einem EXCEL Arbeitsblatt<sup>9</sup> von Jonny Birkhan [10] konnte diese Waage kalibriert und die gemessenen Werte entsprechend korrigiert werden. Zu diesem Zweck stehen dem ZSR Kalibriermassen mit bekannten Unsicherheiten zur Verfügung, die auch nur mit speziellen Baumwollhandschuhen angefasst werden dürfen. Die Massen werden nacheinander auf die Waage gestellt und der angezeigte Wert notiert. Um eine höhere Anzahl von Messpunkte zu erreichen, werden die Gewichte ebenfalls noch einmal miteinander kombiniert. Zum Schluss wird der angezeigte Wert über der Kalibriermasse aufgetragen und eine Ausgleichsgerade durch die Wertepaare gelegt. Im Idealfall sollte sich dabei eine Gerade durch den Ursprung mit der Steigung Eins ergeben. Bei dieser Waage waren die angezeigten Werte ganz leicht gegenüber den Kalibriermassen erhöht. Der Korrekturfaktor für die Masse ist dann der Kehrwert der Geraden und liegt bei 0,99950025. Die Waage war also auch schon vor der Kalibrierung sehr genau.

 $<sup>^9 {\</sup>rm Siehe}$  Seite 57

#### 3.4.2. Nulleffektmessungen

Um sicher zu gehen, dass der Detektor trotz großer Vorsichtsmaßnahmen im Fall dieser Arbeit nicht mit <sup>137</sup>Cs kontaminiert worden ist, wurden regelmäßig Messungen des Nulleffektes durchgeführt. Dabei wurde vor dem Messen der ersten Probe eine Nulleffektmessung von Zehn Tagen gemacht, bei der keine Auffälligkeiten bei der Energie der Gammalinie von <sup>137</sup>Cs bei 661,66 keV zu erkennen waren. Während des Messbetriebes wurden monatlich Nulleffektmessungen mit einer Dauer von Fünf Tagen wiederholt, die auch keine Kontamination des Detektors zeigten.

### 3.4.3. Doppelmessungen

Als wichtigster Indikator für die Güte der Messungen dieser Arbeit sollte die erneute und unabhängige Messung und Auswertung von ausgewählten Proben durch einen anderen Mitarbeiter des ZSR sein. Dafür wurden zwei Bodenproben mit deutlich unterschiedlicher spezifischer Aktivität und sechs Gemüseproben mit geringer spezifischer Aktivität ausgewählt. Die Kontrollmessungen wurden freundlicherweise von Christian Stieghorst durchgeführt, der sich in seiner Diplomarbeit ebenfalls mit dem Nachweis von Radionukliden mittels Gammaspektrometrie beschäftigt. Die Gegenüberstellung der Daten in

Probe	$\mathbf{a}_P(\mathbf{Rother})$	$\mathbf{u}(\mathbf{a}_P)$	$\mathbf{a}_{\Sigma}(\mathbf{Stieghorst})$	$\mathbf{u}(\mathbf{a}_{\Sigma})$	$\left  \mathbf{a}_{\Sigma} - \mathbf{a}_{P}  ight  / \mathbf{a}_{P}   \mathbf{in}   \%$
JR09 B9	658,58	12,1	727,72	$23,\!97$	10,5
JR09 G9	4385,81	$265,\!78$	$4750,\!63$	$433,\!5$	$^{8,3}$
JR09 A2	9,10	$0,\!82$	10,08	$1,\!14$	10,8
JR09 F2	12,95	0,83	12,44	$1,\!15$	$^{3,9}$
JR09 G3	25,15	1,22	24,86	$1,\!13$	1,2
JR09 J2	24,20	$1,\!17$	24,49	$1,\!96$	1,2
JR09 B2	10,68	0,98	11,78	$1,\!04$	10,3
JR09 E3	33,62	1,53	31,25	$1,\!58$	$^{7,0}$

Tabelle 3.9.: Gegenüberstellung der Ergebnisse von acht ausgewählten Proben zusätzlich gemessen von Christian Stieghorst

Tabelle 3.9 zeigt, dass die maximale Abweichung zu den Daten aus dieser Arbeit nur etwa 10 % beträgt. Zum Teil stimmen die Werte sogar sehr gut überein. In Abbildung 3.7 sind die Daten noch einmal graphisch gegen einander aufgetragen. Idealerweise sollten alle Wertepaare auf der eingezeichneten Ursprungsgeraden mit Steigung Eins liegen. Dieses kann nur bedingt festgestellt werden, aber dennoch stimmen alle Ergebnisse innerhalt der Unsicherheiten überein. Das verwendete Verfahren zur Auswertung der Proben wird daher als geeignet angesehen.



Abbildung 3.7.: Kontrollmessungen sechs ausgewählter Proben durch Christian Stieghorst aufgetragen gegen die in dieser Arbeit ermittelten Daten

# 4. Zusammenfassung und Diskussion

Der aufwändigste Teil dieser Arbeit war die Probenvorbereitung. Das Trocknen und Behandeln der Proben nach den Messanleitungen des BMU oder AKU hat viel Zeit in Anspruch genommen, sollte aber dazu dienen, dass die in dieser Arbeit ermittelten spezifischen Aktivitäten vergleichbar und reproduzierbar sind. Ein Problem ergab sich bei der Veraschung der Fischproben, da die Frischmasse viel stärker als erwartet reduziert wurde. Um die geringe Probenmasse trotzdem in einer gleichbleibenden und kalibrierbaren Geometrie messen zu können, wurde von der Werkstatt des ZSR der Rand einer kleinen Petrischale soweit abgedreht, dass der Deckel beinahe bündig mit dem Boden abschließt. Die kleine Petrischale mit verringertem Volumen konnte komplett gefüllt werden.

Für sämtliche Nahrungsmittelproben wurde eine Messzeit von 24 Stunden gewählt, um sicher zu gehen, dass die Nachweisgrenze erreicht wird. Die Ergebnisse der Gammaspektrometrie mit Erkennungs- und Nachweisgrenze, Unsicherheit, und 95 % Vertrauensbereich können den *EXCEL* Arbeitsblättern aus dem Kapitel Datenblätter im Anhang entnommen werden. Diese bilden die Grundlage für die Bestimmung der Transferfaktoren. Positiv ist dabei aufgefallen, dass trotz der verhältnismäßig kurzen Messdauer die Unsicherheit generell kleiner als 10 % sind. Der Median aller Unsicherheiten liegt sogar unter 5 %. Eine Zerfallskorrektur aller Ergebnisse auf ein festes Datum wurde nicht durchgeführt und die spezifischen Aktivitäten beziehen sich somit auf das Messdatum der Probe, die in Tabelle A.6 auf Seite 50 aufgeführt sind.

Im Vergleich zur Literatur sind die in dieser Arbeit bestimmten Transferfaktoren sehr gering und liegen an der Untergrenze des 95 % Vertrauensbereiches, der von [15] und [25] angegeben wird. Das heißt vom Caesium in den Böden der untersuchten Felder geht nur verhältnismäßig wenig in die drei Gemüsesorten über.

Nun stellt sich die Frage ob die Bevölkerung bei einer Häufung solcher Ergebnisse in naher Zukunft wieder in die evakuierten Zonen zurückkehren kann, ohne einer erhöhten Strahlenexposition ausgesetzt zu sein. In [24] wird beschrieben, dass die durch den Unfall bedingte Strahlenexposition in einigen Gebieten der Zone I und II mittlerweile innerhalb der Schwankungsbreite der natürlichen Radioaktivität liegt. Allerdings erhalten einige kritische Bevölkerungsgruppen auf Grund ihres Verhaltens immernoch deutlich erhöhte Dosen. Somit muss zuerst auch für solche Gruppen und unter Berücksichtigung der Dosisbeiträge durch <sup>90</sup>Sr und Pu ausgeschlossen werden können, dass extrem hohe Expositionen auftreten, bevor Empfehlungen für eine Rückkehr in diese Zonen gegeben werden können. So könnte eine radio-chemische Analyse des vorhandenen Probenmaterials zu weiteren Erkenntnissen bezüglich der Belastung der Umgebung von Christinovka mit Strontium und Plutonium führen.

#### 4. Zusammenfassung und Diskussion

Für diese Arbeit standen verschiedene Pflanzenproben mit dem dazu gehörigen Boden zur Untersuchung bereit. Interessant für eine weitere Diskussion wäre, wenn zusätzliche Informationen über die Beschaffenheit des Bodens zur Verfügung ständen, um abhängig davon eventuell Rückschlüsse auf die Pflanzenaufnahme von <sup>137</sup>Cs ziehen zu können. Es wäre ebenfalls für zukünftige Untersuchungen empfehlenswert, wenn eine größere Zahl von Proben zur Verfügung stehen würde, da bei lediglich drei Proben eines Typs kaum Aussagen über mögliche Ausreißer getroffen werden können und die statistische Aussagekraft sehr gering ist. So konnten in dieser Arbeit teilweise lediglich Vermutungen angestellt werden. Ein Problem, das allerdings bei einer größeren Probenzahl berücksichtigt werden muss, ist die begrenzte Messkapazität am ZSR und der längere Zeitraum, der für die Vorbereitung der Proben notwendig ist. Als weiterer Verbessungspunkt wäre eine vollständige Dokumentation der Proben auch schon in der Ukraine vorteilhaft, um detailierte Aussagen über die erhaltenen Ergebnisse treffen zu können. Von Interesse wäre beispielsweise aus welcher Tiefe die Bodenproben genommen wurden und ob diese über das ganze Feld verteilt als Mischprobe genommen wurden oder nur von einem Punkt des Feldes stammen. Wenn in der Ukraine sinnvollerweise die Proben schon vorbehandelt werden, um die Masse und das Volumen für den Transport nach Deutschland zu verringern, sollte auf eine vollständige Dokumentation dieses Prozesses Wert gelegt werden und zum Beispiel ein normiertes oder zumindest festgelegtes Verfahren, wie in den Messanleitung vom BMU beschrieben, verwendet werden.



Abbildung A.1.: Bodenarten des Feinbodens nach der US-Soil-Taxonomy aus [26]

Radionuklid	Freigesetzte Aktivität (PBq)			
Edelgase				
<sup>133</sup> Xe	6500			
lei	chtflüchtige Elemente			
<sup>132</sup> Te	1150			
<sup>131</sup> I	ca. 1760			
$^{134}Cs$	ca. 54			
$^{137}Cs$	ca. 85			
mi	ttelflüchtige Elemente			
<sup>89</sup> Sr	ca. 115			
$^{90}$ Sr	ca. 10			
<sup>103</sup> Ru	> 168			
<sup>106</sup> Ru	>73			
<sup>140</sup> Ba	240			
sch	werflüchtige Elemente			
$^{95}$ Zr	196			
<sup>99</sup> Mo	> 168			
<sup>141</sup> Ce	196			
$^{144}\mathrm{Ce}$	ca. 116			
<sup>239</sup> Np	945			
<sup>238</sup> Pu	0,035			
<sup>239</sup> Pu	0,03			
<sup>240</sup> Pu	0,042			
<sup>241</sup> Pu	ca. 6			
$^{242}\mathrm{Cm}$	ca. 0,9			

Tabelle A.1.: Annahmen der freigesetzten Radionuklide während des Unfalls in Tschernobyl nach [31]

Tabelle A.2.: Liste der untersuchten Bodenproben

Probenname	Kennzeichen
Probe 1. Boden, auf dem Kartoffeln angebaut wurden	JR09 A9
Probe 1. Boden, auf dem Rote Bete angebaut wurden	JR09 B9
Probe 1. Boden, auf dem Karotten angebaut wurden	JR09 C9
Probe 2. Boden, auf dem Kartoffeln angebaut wurden	JR09 D9
Probe 2. Boden, auf dem Rote Bete angebaut wurden	JR09 E9
Probe 2. Boden, auf dem Karotten angebaut wurden	JR09 F9
Probe 3. Boden, auf dem Kartoffeln angebaut wurden	JR09 G9
Probe 3. Boden, auf dem Rote Bete angebaut wurden	JR09 H9
Probe 3. Boden, auf dem Karotten angebaut wurden	JR09 J9

Tabelle A.3.: Liste der untersuchten Gemüseproben

Lfd. Nr.	Probenname	Kennzeichen
1	Probe 1. Kartoffeln ungeschält	JR09 A1
2	Probe 1. Kartoffeln geschält	JR09 A2
3	Probe 1. Kartoffelschalen	JR09 A3
4	Probe 1. Rote Bete ungeschält	JR09 B1
5	Probe 1. Rote Bete geschält	JR09 B2
6	Probe 1. Rote Bete, Schalen	JR09 B3
7	Probe 1. Karotten ungeschält	JR09 C1
8	Probe 1. Karotten geschält	JR09 C2
9	Probe 1. Karottenschalen	JR09 C3
10	Probe 2. Kartoffeln ungeschält	JR09 D1
11	Probe 2. Kartoffeln geschält	JR09 D2
12	Probe 2. Kartoffelschalen	JR09 D3
13	Probe 2. Rote Bete ungeschält	JR09 E1
14	Probe 2. Rote Bete geschält	JR09 E2
15	Probe 2. Rote Bete, Schalen	JR09 E3
16	Probe 2. Karotten ungeschält	JR09 F1
17	Probe 2. Karotten geschält	JR09 F2
18	Probe 2. Karottenschalen	JR09 F3
19	Probe 3. Kartoffeln ungeschält	JR09 G1
20	Probe 3. Kartoffeln geschält	JR09 G2
21	Probe 3. Kartoffelschalen	JR09 G3
22	Probe 3. Rote Bete ungeschält	JR09 H1
23	Probe 3. Rote Bete geschält	JR09 H2
24	Probe 3. Rote Bete, Schalen	JR09 H3
25	Probe 3. Karotten ungeschält	JR09 J1
26	Probe 3. Karotten geschält	JR09 J2
27	Probe 3. Karottenschalen	JR09 J3

Probenname	Frischge-	Trockenge-	Kennzeichen
	wicht in g	wicht in g	
Flusssand			JR09 K1
Flussalgen	959	68	$\rm JR09~K2$
Fische aus dem Fluss Usch			
neben Christinovka:			JR09 K3
Karausche			
Barsch			
Hecht			
Wels			
Karpfen			

Tabelle A.4.: Liste der untersuchten Flussproben

Tabelle A.5.: Liste der untersuchten Tierknochenproben

Probenname	Kennzeichen
Schweineknochen (3 Proben)	m JR09~L1
Wildschweinknochen (1 Probe)	m JR09~L2

Beschreibung	Kennzeichen	Messdatum
	JR09 A9	15.06.2009
	JR09 B9	24.06.2009
	JR09 C9	25.06.2009
	JR09 D9	26.06.2009
Boden	JR09 E9	27.06.2009
	JR09 F9	29.06.2009
	JR09 G9	30.06.2009
	JR09 H9	01.07.2009
	JR09 J9	03.07.2009
	JR09 A1	13.07.2009
	JR09 A2	15.07.2009
	JR09 A3	16.07.2009
	JR09 D1	17.07.2009
Kartoffeln	JR09 D2	20.07.2009
	JR09 D3	23.07.2009
	JR09 G1	24.07.2009
	JR09 G2	27.07.2009
	JR09~G3	28.07.2009
	JR09 C1	05.08.2009
	JR09 C2	07.08.2009
	JR09 C3	08.08.2009
	JR09 F1	30.07.2009
Karotten	JR09 F2	31.07.2009
	JR09 F3	04.08.2009
	JR09 J1	11.08.2009
	JR09 J2	12.08.2009
	JR09 J3	17.08.2009
	JR09 B1	27.08.2009
	JR09 B2	31.08.2009
	JR09 B3	02.09.2009
	JR09 E1	04.09.2009
Rote Bete	JR09 E2	07.09.2009
	JR09 E3	08.09.2009
	JR09 H1	09.09.2009
	JR09 H2	11.09.2009
	JR09 H3	12.09.2009
Flusssand	JR09 K1	14.09.2009
${ m Flussalgen}$	JR09 K2	15.09.2009
Fischfilet	JR09 K3	16.09.2009

Tabelle A.6.: Messdatum aller Proben

Kenn-	TM-ua <sup>a</sup>	$\mathbf{TM} extsf{-}\mathbf{zsr}^b$	Wassergehalt	Skelett	$\mathbf{Skelett}$	$\mathbf{TM}$
zeichen	in g	in g	in $\%$	in g	in $\%$	in g
JR09 A9	195,6	194,1	0,8	3,7	$1,\!9$	190,4
JR09 B9	$202,\!6$	$201,\!1$	0,7	6,6	$^{3,3}$	194,5
JR09 C9	208,3	$206,\!5$	0,9	7,3	$^{3,5}$	199,2
JR09 D9	206,0	204,1	0,9	6,9	$^{3,4}$	197,2
JR09 E9	210,7	209,2	0,7	10,1	$^{4,8}$	199,1
JR09 F9	223,2	221,2	0,9	4,5	$^{2,0}$	216,7
JR09 G9	207,8	$206,\! 6$	$0,\!6$	1,4	$^{0,7}$	205,2
JR09 H9	197,3	194,2	$1,\!6$	1,1	$^{0,6}$	193,1
JR09 J9	205,1	$202,\!4$	$1,\!3$	2,9	$^{1,4}$	199,5
Mittelwert	206,29	204,38	0,930	4,94	2,40	199,43
σ	8,08	$^{8,21}$	0,316	$3,\!00$	$1,\!44$	7,77

Tabelle A.7.: Massen der untersuchten Bodenproben

 $^a{\rm Nach}$ dem Auftauen gemessene Masse des Inhalts der PE-Beutel aus der Ukraine $^b{\rm Nach}$ dem Trocknen im ZSR gemessene Masse inkl. des Skelettanteils

Lfd.	Kenn-	FM	$\mathbf{TM}$ -ua <sup>a</sup>	$\mathbf{TM} extsf{-}\mathbf{zsr}^b$	TM	TM/TM-ua
Nr.	$\mathbf{zeichen}$	in g	in g	in g	in g	in $\%$
1	JR09 A1	500	86	83,1	72,2	83,95
2	JR09 A2	500	83	92,4	82,9	99,88
3	JR09 A3	500	109	106, 5	$93,\!9$	$86,\!15$
4	JR09 B1	500	62	62,7	49,8	80,32
5	JR09 B2	500	61	58,4	46,1	75,57
6	JR09 B3	500	62	62,7	52,4	84,52
7	JR09 C1	500	63	62,9	$51,\!6$	81,90
8	JR09 C2	500	58	57,2	48,2	$83,\!10$
9	JR09 C3	500	42	41,2	35,0	83,33
10	JR09 D1	500	115	112,7	101,7	88,43
11	JR09 D2	500	113	110,7	99,6	88,14
12	JR09 D3	500	112	109,4	98,4	87,86
13	JR09 E1	500	56	55,9	43,6	77,86
14	JR09 E2	500	63	$60,\! 6$	48,7	77,30
15	$\rm JR09~E3$	500	66	66,2	55,2	83,64
16	JR09 F1	500	65	64,7	53,2	81,85
17	JR09 F2	500	56	$55,\!9$	45,0	$80,\!36$
18	JR09 F3	500	58	58,0	48,8	84,14
19	JR09 G1	500	102	98,2	84,7	83,04
20	JR09~G2	500	109	$106,\! 6$	95,2	87,34
21	JR09 G3	500	104	102,1	$94,\!6$	$90,\!96$
22	JR09 H1	500	74	75,4	66,6	90,00
23	JR09 H2	500	75	$75,\!3$	64,2	85,60
24	$\rm JR09~H3$	500	82	84,1	73,3	89,39
25	JR09 J1	500	62	$61,\! 6$	51,0	82,26
26	JR09 J2	500	65	64, 4	53,0	81,54
27	JR09 J3	500	62	61,7	51,1	82,42

Tabelle A.8.: Massen der untersuchten Gemüseproben

 $^a{\rm Ukrainische}$  Angabe $^b{\rm Nach}$  dem Auftauen gemessene Masse des Inhalts der PE-Beutel aus der Ukraine

Böd	en	Gemüse			
Kennzeichen	Efficiency	Kennzeichen	Efficiency		
		JR09 A1	$0,\!02745$		
JR09 A9	0,02020	JR09 A2	$0,\!02748$		
		JR09 A3	$0,\!02752$		
		JR09 B1	0,02764		
JR09 B9	0,02010	JR09 B2	$0,\!02762$		
		JR09 B3	$0,\!02777$		
		JR09 C1	$0,\!02751$		
JR09 C9	0,02007	m JR09~C2	$0,\!02732$		
		$\rm JR09~C3$	$0,\!02760$		
		JR09 D1	$0,\!02715$		
JR09 D9	0,02001	JR09 D2	$0,\!02742$		
		JR09 D3	$0,\!02736$		
		JR09 E1	$0,\!02758$		
JR09 E9	0,02002	m JR09~E2	$0,\!02761$		
		$\rm JR09~E3$	$0,\!02763$		
		JR09 F1	$0,\!02741$		
JR09 F9	0,02008	JR09 F2	$0,\!02749$		
		JR09 F3	$0,\!02758$		
		JR09 G1	$0,\!02742$		
JR09 G9	0,02020	m JR09~G2	$0,\!02720$		
		m JR09~G3	$0,\!02725$		
		JR09 H1	$0,\!02761$		
JR09 H9	0,02024	JR09 H2	$0,\!02738$		
		m JR09~H3	$0,\!02743$		
		JR09 J1	$0,\!02757$		
JR09 J9	0,02027	JR09 J2	$0,\!02755$		
		JR09 J3	$0,\!02756$		
Mittelwert	$0,\!02013$	Mittelwert	$0,\!02749$		
σ	$0,\!00010$	$\sigma$	$0,\!00015$		
	$0,\!48~\%$		$0,\!53~\%$		

Tabelle A.9.: Nachweiswahrscheinlichkeiten für Boden- und Gemüseproben

Lfd. Nr.	Kennzeichen	Beschreibung	TF	u(TF)	u(TF) in %
1	JR09 A1	${ m ungesch\"alt}$	0,00243	0,00017	7,16
10	JR09 D1	${ m ungesch\"alt}$	0,00487	0,00033	6,78
19	JR09 G1	${ m ungesch\"alt}$	0,00216	$0,\!00015$	6,78
2	JR09 A2	geschält	0,00207	0,00019	9,08
11	JR09 D2	$\operatorname{gesch\"alt}$	0,00302	0,00028	9,29
20	JR09 G2	$\operatorname{gesch\"alt}$	0,00053	$0,\!00005$	9,29
3	JR09 A3	Schalen	0,00666	0,00038	5,78
12	JR09 D3	Schalen	0,00558	0,00029	$5,\!12$
21	JR09 G3	Schalen	0,00108	0,00008	7,77

Tabelle A.10.: Transferfaktoren für die Aufnahme von  $^{137}\mathrm{Cs}$  durch Kartoffeln aus dem Boden

Tabelle A.11.: Transferfaktoren für die Aufnahme von  $^{137}\mathrm{Cs}$  durch Karotten aus dem Boden

Lfd. Nr.	Kennzeichen	Beschreibung	$\mathbf{TF}$	u(TF)	u(TF) in %
7	JR09 C1	${ m ungesch\"alt}$	0,00683	0,00036	5,22
16	JR09 F1	${ m ungesch\"alt}$	$0,\!00265$	$0,\!00017$	6,26
25	JR09 J1	${ m ungesch\"alt}$	$0,\!00125$	$0,\!00007$	5,51
8	JR09 C2	$\operatorname{gesch\"alt}$	$0,\!00583$	0,00023	$3,\!91$
17	JR09 F2	$\operatorname{gesch\"alt}$	$0,\!00113$	0,00008	7,24
26	JR09 J2	$\operatorname{gesch\"alt}$	$0,\!00055$	0,00004	$6,\!39$
9	JR09 C3	Schalen	0,00243	0,00017	6,86
18	JR09 F3	$\operatorname{Schalen}$	0,00403	0,00022	5,56
27	JR09 J3	Schalen	0,00102	0,00006	5,76

Tabelle A.12.: Transferfaktoren für die Aufnahme von  $^{137}\mathrm{Cs}$  durch Rote Bete aus dem Boden

Lfd. Nr.	Kennzeichen	Beschreibung	TF	u(TF)	u(TF) in %
4	JR09 B1	ungeschält	0,00208	$0,\!00021$	$9,\!91$
13	JR09 E1	${ m ungesch\"alt}$	0,00124	$0,\!00009$	$7,\!66$
22	JR09 H1	${ m ungesch\"alt}$	0,00066	$0,\!00005$	$^{8,02}$
5	JR09 B2	geschält	0,00149	0,00014	9,36
14	JR09 E2	$\operatorname{gesch\"alt}$	0,00078	$0,\!00007$	$^{8,67}$
23	JR09 H2	$\operatorname{gesch\"alt}$	0,00036	$0,\!00004$	$11,\!88$
6	JR09 B3	Schalen	0,00594	$0,\!00031$	5,14
15	JR09 E3	$\mathbf{Schalen}$	0,00292	$0,\!00017$	$5,\!93$
24	JR09 H3	Schalen	0,00134	$0,\!00010$	7,75

**GE Healthcare Limited** The Grove Centre



ISSUED **GE Healthcare Limited** ISSUED **QSA Global GmbH** BY: FOR: **Radiation & Radioactivity Gieselweg 1 Calibration Laboratory** 38110 Braunschweig The Grove Centre Germany White Lion Road Amersham Buckinghamshire HP7 9LL

Description Product code: QCY48

Solution number: R8/21/13

This mixed radionuclide gamma-ray reference standard consists of a solution in 4M HCl of the ten radionuclides listed below.

# Measurement Reference time: 1200 GMT on 1 September 2008 and accuracy

#### Mass of solution: 5.3709 grams

Parent radionuclide	Gamma-ray Energy (keV)	Gamma-rays per second per gram	Combined Type A uncertainty	Combined Type B uncertainty	Expanded uncertainty	Calibration start date	Calibration finish date
Americium-241	59.54	1131	±0.1%	± 0.8 %	± 1.5 %	07/05/2002	08/05/2002
Cadmium-109	88.03	648	±0.1%	± 2.9 %	± 5.7 %	07/04/2008	11/04/2008
Cobalt-57	122.1	585	±0.1%	± 0.7 %	± 1.4 %	27/02/2008	27/02/2008
Cerium-139	165.9	715	±0.1%	± 0.7 %	±1.4%	29/01/2008	29/01/2008
Mercury-203	279.2	1954	±0.1%	± 0.7 %	±1.3 %	14/03/2008	14/03/2008
Tin-113	391.7	2182	± 0.2 %	± 2.0 %	± 4.0 %	14/03/2008	14/03/2008
Strontium-85	514.0	4110	± 0.2 %	± 0.7 %	± 1.4 %	22/01/2008	24/01/2008
Caesium-137	661.6	2457	± 0.2 %	± 0.8 %	± 1.6 %	09/02/2006	10/02/2006
Yttrium-88	898.0	6329	±0.1 %	± 0.7 %	± 1.5 %	23/11/2007	27/11/2007
Cobalt-60	1173	3389	±0.1%	± 0.8 %	± 1.5 %	16/04/2008	16/04/2008
Cobalt-60	1333	3394	±0.1 %	± 0.8 %	± 1.5 %	16/04/2008	16/04/2008
Yttrium-88	1836	6694	±0.1%	± 0.7 %	± 1.4 %	23/11/2007	27/11/2007
	1			1			

The calibration date is provided for added information only, and must not be confused with the reference date. It is the reference date that must be used in all calculations relating to the values of activity.

Approved Signatory

1-1-12

4 the September 2008 Date of issue



B D D Singleton

Page 1 of 2 pages

This certificate is issued in accordance with the laboratory accreditation requirements of the United Kingdom Accreditation Service. It provides traceability of measurement to recognised national standards, and to units of measurement realised at the National Physical Laboratory or other recognised national standards laboratories. This certificate may not be reproduced other than in full, except with the prior written approval of the issuing laboratory.

B. Datenblätter



Kennzeichen	Tara in g	Masse in g	Masse in g	Masse in g	Masse in g	Masse in g	Masse in g	Masse in g
	Messdatum	6.6.09 15:00	6.6.09 16:30	7.6.09 14:00	7.6.09 20:00	8.6.09 10:30	9.6.09 10:30	10.6.09 12:00
	Stunden	0	1,5	23	29	43,5	67,5	93
JR09 A9	148,9	344,5	343,5	343,0				
JR09 B9	174,2	376,8		375,3				
JR09 C9	150,0	358,3		356,5				
JR09 D9	145,4	351,4			349,5	349,5		
JR09 E9	252,5	463,2			461,8	461,7		
JR09 F9	248,5	471,7	470,3	469,7	469,7	469,7	469,7	
JR09 G9	232,6	440,4			439,2	439,1	439,2	
JR09 H9	229,7	427,0			424,0	423,9	424,0	423,9
JR09 J9	232,3	437,4			434,8	434,7	434,8	434,7

Kennzeichen	Tara in g	Masse in g	Masse in g	Masse in g
	Messungszeit	12.6.09 11:30	15.6.09 11:00	16.6.09 12:00
	Stunden	0'0	71,5	96,5
JR09 A1	252,7	335,8	326,1	324,9
JR09 A2	247,8	340,2	330,9	330,7
JR09 A3	231,6	338,1	325,7	325,5
JR09 D1	231,9	344,6	333,8	333,6
JR09 D2	228,6	339,3	328,3	328,2
JR09 D3	149,8	259,2	248,4	248,2
JR09 G1	145,0	243,2	229,9	229,7
JR09 G2	148,6	255,2	243,9	243,8
JR09 G3	145,2	247,3	239,9	239,8

Kennzeichen	Tara in g	Masse in g	Masse in g	Masse in g
	Messungszeit	1.7.09 16:00	3.7.09 10:30	6.7.09 12:00
	Stunden	0'0	42,5	116,0
JR09 C1	145,4	208,3	199,0	197,0
JR09 C2	148,5	205,7	197,8	196,7
JR09 C3	145,1	186,3	180,8	180,1
JR09 F1	149,8	214,5	205,0	203,0
JR09 F2	252,1	308,0	298,5	297,1
JR09 F3	248,0	306,0	298,2	296,8
JR09 J1	229,1	290,7	281,4	280,1
JR09 J2	232,1	296,5	286,8	285,1
JR09 J3	232,1	293,8	284,7	283,2

Kennzeichen	Tara in g	Masse in g	Masse in g	Masse in g	Masse in g	Mass in g	Masse in g
	Messungszeit	18.8.09 16:00	19.8.09 10:30	20.8.09 10:30	21.8.09 13:30	24.8.09 11:30	25.8.09 10:30
	Stunden	0'0	18,5	42,5	69,5	139,5	162,5
JR09 B1	248,8	6'267	297,0	297,0	296,9	296,6	296,5
JR09 B2	232,4	277,5	276,9	276,8	276,7	276,4	276,3
JR09 B3	252,8	304,2	303,5	303,4	303,3	302,9	302,9
JR09 E1	229,3	272,2	271,6	271,5	271,4	271,1	271,1
JR09 E2	232,9	280,2	279,5	279,3	279,2	278,8	278,8
JR09 E3	145,7	199,8	199,2	199,1	198,9	198,6	198,5
JR09 H1	150,2	215,0	214,4	214,3	214,2	213,9	213,9
JR09 H2	145,7	207,6	206,9	206,8	206,7	206,2	206,2
JR09 H3	149,0	220,8	220,2	220,1	220,0	219,7	219,6
Kennzeichen	Tara in g	Masse in g					
	Messungszeit	25.8.09 10:30	27.8.09 11:00	28.8.09 12:30	1.9.09 15:30	2.9.09 12:00	3.9.09 10:30
	Stunden	162,5	211,0	236,5	335,5	356,0	378,5
JR09 B1	248,8	236,5					
JR09 B2	232,4	276,3	276,3				
JR09 B3	252,8	302,9		302,7			
JR09 E1	229,3	271,1		270,9			
JR09 E2	232,9	278,8			278,1		
JR09 E3	145,7	198,5			197,9	197,9	
JR09 H1	150,2	213,9			213,2	213,1	
JR09 H2	145,7	206,2			205,4	205,3	205,2
JR09 H3	149,0	219,6			219,1	219,0	219,0

Kennzeichen	Tara in g	Masse in g	Masse in g	Masse in g	Masse in g
	Messungszeit	3.9.09 14:00	4.9.09 11:00	7.9.09 13:00	8.9.09 13:00
	Stunden	0'0	21,0	95,0	119,0
JR09 K1	229,8	447,7	447,4	447,4	447,4
Kennzeichen	Tara in g	Masse in g	Masse in g	Masse in g	Masse in g
	Messungszeit	4.9.09 13:30	7.9.09 13:00	8.9.09 13:00	9.9.09 15:00
	Stunden	0'0	71,5	95,5	121,5
JR09 K2	232.3	289.3	288.8	288.7	288.7

			Ē	raebnisse der	Bodenprobe	ua				
ø		Ø	u(a)	u <sub>rel</sub> (a)	a*	9 <sup>#</sup>	σ	o^	a^	u(a^)
(Bq/g)		(Bq/kg)	(Bq/kg)	(%)	(Bq/kg)	(Bq/kg)	(Bq/kg)	(Bq/kg)	(Bq/kg)	(Bq/kg)
7,301E-0	~	730,11	9,55252	1 ,308365356	7 ,37	14,75	711,39	748,83	730,11	9,55
6,586E-0	-	658,58	12,09893	1,837122413	12,57	25,15	634,87	682,29	658,58	12,10
7,309E-0	-	730,89	15,37922	2,104176014	17,67	35,37	700/25	761,03	730,89	15,38
9,719E-0	-	971,90	32,17635	3,310664236	39,01	78,12	908,84	1034,96	971,90	32,18
1,267E+(	8	1266,51	48,28200	3,812216033	60,62	121,44	1171,88	1361,14	1266,51	48,28
1,027E+(	8	1027,50	34,91452	3,398020733	44,79	89'68	969,06	1095,93	1027,50	34,91
4,386E+(	8	4385,81	265,78174	6,060043976	175,30	353,55	3864,88	4906,73	4385,81	265,78
4,393E+(	8	4392,92	266,01734	6,055590184	190,04	383,16	3871,54	4914,31	4392,92	266,02
4,636E+C	g	4635,64	194,58849	4,197659418	100,65	202,17	4254,26	5017,03	4635,64	194,59
			Ш	gebnisse der l	Kartoffelprob	nen				
69		Ø	u(a)	u <sub>rel</sub> (a)	a*	9 <sup>#</sup>	σ <sup>`</sup>	<b>"</b> 0	a^	u(a^)
(Bq/g	)	(Bq/kg)	(Bq/kg)	(%)	(Bq/kg)	(Bq/kg)	(Bq/kg)	(Bq/kg)	(Bq/kg)	(Bq/kg)
1,227E-	02	12,27	0,86350	7 ,038090309	1,40	2,81	10,58	13,96	12,27	0,86
9,099E-	03	9,10	0,81754	8,984967	1,33	2,67	7,50	10,70	9,10	0,82
2,588E	-02	25,88	1,45624	5,626686358	2,34	4,68	23,03	28,74	25,88	1,46
2,326E	·02	23,26	1,37583	5,915879232	2,23	4,45	20,56	25,95	23,26	1,38
1,472E	-02	14,72	1,27810	8,685618495	2,09	4,18	12,21	17,22	14,72	1,28
2,755E	-02	27,55	1 ,07477	3,901286572	1,67	3,35	25,44	29,66	27,55	1,07
5,603E	:02	56,03	1,69968	3,033790334	2,56	5,13	52,69	59,36	56,03	1,70
1,229E	-02	12,29	0,86581	7,046635242	1,40	2,81	10,59	13,98	12,29	0,87
2,515E-	5	25,15	1,22404	4,867868211	1,96	3,92	22,75	27,54	25,15	1,22

				Ū	vehnicee der l	Karottennroh	ner				
						עמו חוובווחו חו	112				
Datoi	٩	Ø	ល	u(a)	u <sub>rel</sub> (a)	a*	o <sup>#</sup>	۳,	<b>o</b> ^	a^	u(a^)
רמופו	(Bq)	(Bq/g)	(Bq/kg)	(Bq/kg)	(%)	(Bq/kg)	(Bq/kg)	(Bq/kg)	(Bq/kg)	(Bq/kg)	(Bq/kg)
JR09C1.chn	1 ,243E+00	4,841E-02	48,41	2,31104	4,774199646	3,68	96' 2	43,88	52,94	48,41	2,31
JR09C2.chn	1,167E+00	4,423E-02	44,23	1,45900	3,298575239	2,25	4,50	41,37	47,09	44,23	1,46
JR09C3.chn	6,094E-01	2,540E-02	25,40	1,66002	6,534633389	2,70	5,39	22,15	28,66	25,40	1,66
JR09F1.chn	6,645E-01	2,557E-02	25,57	1,34490	5,259859491	2,14	4,28	22,93	28,21	25,57	1,34
JR09F2.chn	3,210E-01	1,295E-02	12,95	0,82734	6,389423451	1,34	2,67	11,33	14,57	12,95	0,83
JR09F3.chn	1 ,093E+00	4,240E-02	42,40	1,86415	4,396947219	2,97	5,94	38,74	46,05	42,40	1,86
JR09J1.chn	1 ,459E+00	5,678E-02	56,78	2,02714	3,569948741	3,18	6,37	52,81	60,76	56,78	2,03
JR09J2.chn	6,144E-01	2,420E-02	24,20	1,16566	4,816794993	1,87	3,73	21,92	26,48	24,20	1,17
JR09J3.chn	1,186E+00	4,618E-02	46,18	1,81941	3,93982297	2,87	5,74	42,61	49,75	46,18	1,82
				Erg	ebnisse der R	ote Bete-Pro	ben				
	A	ø	Ø	u(a)	u <sub>rel</sub> (a)	a*	B#	°9`	<b>"</b>	a^	u(a^)
Later	(Bq)	(Bq/g)	(Bq/kg)	(Bq/kg)	(%)	(Bq/kg)	(Bq/kg)	(Bq/kg)	(Bq/kg)	(Bq/kg)	(Bq/kg)
JR09B1.chn	3,306E-01	1,378E-02	13,78	1,34162	9,735499243	2,19	4,38	11,15	16,41	13,78	1,34
JR09B2.chn	2,572E-01	1,068E-02	10,68	0,98033	9,179588522	1,60	3,20	8,76	12,60	10,68	0,98
JR09B3.chn	9,225E-01	3,737E-02	37,37	1,79432	4,801673866	2,87	5,74	33,85	40,89	37,37	1,79
JR09E1.chn	4,483E-01	1,801E-02	18,01	1,19647	6,642973645	1,94	3 <mark>,88</mark>	15,67	20,36	18,01	1,20
JR09E2.chn	2,509E-01	1,021E-02	10,21	0,79509	7,790651206	1,30	2,60	8,65	11,76	10,21	0'80
JR09E3.chn	8,467E-01	3,362E-02	33,62	1,52892	4,548183135	2,44	4,88	30,62	36,61	33,62	1,53
JR09H1.chn	5,728E-01	2,171E-02	21,71	1,14265	5,263900934	1,82	3,64	19,47	23,95	21,71	1,14
JR09H2.chn	3,076E-01	1,226E-02	12,26	1,25252	10,21619824	2,05	4,10	9,81	14,72	12,26	1,25
JR09H3.chn	1 ,027E +00	4 ,029E-02	40,29	1 ,94692	4,832781103	3,12	6,25	36,47	44,10	40,29	1,95
					:		i				
				Ergebnisse	der Sediment	-, Algen- una	Fischprobe				
Datoi	٩	Ø	Ø	u(a)	u <sub>rel</sub> (a)	a*	o <sup>#</sup>	œ`	<b>ത</b> ^	a^	u(a^)
רמומו	(Bq)	(Bq/g)	(Bq/kg)	(Bq/kg)	(%)	(Bq/kg)	(Bq/kg)	(Bq/kg)	(Bq/kg)	(Bq/kg)	(Bq/kg)
JR09K1.chn	1,234E+01	8,460E-02	84,60	1,60505	1,897291948	2,10	4,21	81,45	87,74	84,60	1,61
JR09K2.chn	7,789E+00	3,575E-01	357,47	5,99287	1,676481979	7,60	15,20	345,72	369,21	357,47	5,99
JR09K3.chn	2,237E+01	1,850E+00	1850,01	29,10201	1,573074092	35,01	70,04	1792,97	1907,05	1850,01	29,10

# 64

# Abkürzungsverzeichnis

AK	Arbeitskreis Umweltsicherheit des Fachverbandes für Strahlenschu	itz
AM	Aschemasse	
Ba	Chemisches Element: Barium	
ΒM	Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherhe	eit
С	Chemisches Element: Kohlenstoff	
Ce	Chemisches Element: Cerium	
Cm	Chemisches Element: Curium	
$\mathbf{Cs}$	Chemisches Element: Caesium	
DE	Double Escape Peak	
$e^{-}$	Elektron	
$e^+$	Positron	
eV	Elektronenvolt	
FE]	Full Energy Peak	
FΜ	Frischmasse	
Ι	Chemisches Element: Iod	
IUF	International Union of Radioecologists	
Κ	Chemisches Element: Kalium	
Kr	Chemisches Element: Krypton	
Mo	Chemisches Element: Molybdän	
Ν	Chemisches Element: Stickstoff	
Np	Chemisches Element: Neptunium	
NR	National Radiological Protection Board	
0	Chemisches Element: Sauerstoff	
Pb	Chemisches Element: Blei	
ΡE	Polyethylen	
Pu	Chemisches Element: Plutonium	
Ru	Chemisches Element: Ruthenium	
$\sigma$	Empirische Standardabweichung	

# $Abk\"{u}rzungsverzeichnis$

SEP	Single Escape Peak
SI	Internationales Einheitensystem (frz: $\mathbf{S}$ ystème international d'unités)
$\operatorname{Sr}$	Chemisches Element: Strontium
SSK	Strahlenschutzkommission
Те	Chemisches Element: Tellur
$\mathrm{TF}$	Transferfaktor
ТМ	Trockenmasse
U	Chemisches Element: Uran
ua	Ukraine
$ u_e$	Elektron-Neutrino
$\bar{\nu}_e$	Elektron-Antineutrino
Xe	Chemisches Element: Xenon
Zr	Chemisches Element: Zirconium
ZSR	Zentrum für Strahlenschutz und Radioökologie

# Literaturverzeichnis

- Verfahren zur gammaspektrometrischen Bestimmung von Radionukliden in Fisch. In: Messanleitungen für die "Überwachung radioaktiver Stoffe in der Umwelt und externer Strahlung". Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit, Dez 1993, Kapitel G-γ-SPEKT-FISCH-01
- [2] Verfahren zur gammaspektrometrischen Bestimmung von Radionukliden in Schwebstoffproben. In: Messanleitungen für die "Überwachung radioaktiver Stoffe in der Umwelt und externer Strahlung". Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit, Dez 1993, Kapitel C-γ-SPEKT-SCHWE-01
- [3] Verfahren zur gammaspektrometrischen Bestimmung von Radionukliden in Sedimentproben. In: Messanleitungen für die "Überwachung radioaktiver Stoffe in der Umwelt und externer Strahlung". Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit, Dez 1993, Kapitel C-γ-SPEKT-SEDIM-01
- [4] Verfahren zur gammaspektrometrischen Bestimmung von Radionukliden in Lebensmitteln. In: Messanleitungen für die "Überwachung radioaktiver Stoffe in der Umwelt und externer Strahlung". Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit, Mai 1997, Kapitel E-γ-SPEKT-LEBM-01
- [5] Verfahren zur gammaspektrometrischen Bestimmung von Radionukliden in Bodenproben. In: Messanleitungen für die "Überwachung radioaktiver Stoffe in der Umwelt und externer Strahlung". Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit, Nov 1998, Kapitel F-γ-SPEKT-BODEN-01
- [6] Überwachung der Radioaktivität von landwirtschaftlichen Produkten. In: Empfehlungen zur Überwachung der Umweltradioaktivität (Loseblattsammlung, FS-78-15-AKU). Fachverband für Strahlenschutz, Jan 2004, Kapitel 3.1.11
- [7] AKOVALI, Y. A.: Nuclear Data Sheets for A = 222\*. In: Nuclear Data Sheets 77 (1996), S. 271–298
- [8] BERGER, M. J.; HUBBELL, J. H.; SELTZER, S. M.; CHANG, J.; COURSEY, J. S.; SUKUMAR, R.; ZUCKER, D. S.: XCOM: Photon Cross Section Database (Version 1.4). Gaithersburg, MD: National Institute of Standards and Technology, Online, 2009. – Abrufbar: http://physics.nist.gov/PhysRefData/Xcom/html/xcom1.html [September 2009]
## Literaturverzeichnis

- [9] BILO, Michael: Untersuchungen zum Transfer des durch den Reaktorunfall von Tschernobyl abgelagerten Radiocäsiums vom Boden in die Pflanze, Universität Tübingen, Diss., Nov 1991
- [10] BIRKHAN, Jonny: Gamma-Spektrometrie an Bodenproben von als Grünland genutzten Auenflächen der Zwickauer und Vereinigten Mulde. Hannover, Leibniz Universität Hannover, Diplomarbeit, Mär 2009
- [11] BUNDESAMT FÜR ENERGIEWIRTSCHAFT, HAUPTABTEILUNG FÜR DIE SICHER-HEIT DER KERNANLAGEN (Hrsg.): Der Unfall Chernobyl - Ein Überblick über Ursachen und Auswirkungen. Würenlingen, CH, 1986
- [12] BUNDESMINISTER FÜR UMWELT, NATURSCHUTZ UND REAKTORSICHERHEIT (Hrsg.): Messanleitung für die Überwachung der Radioaktivität in der Umwelt und zur Erfassung radioaktiver Emissionen aus kerntechnischen Anlagen. München : Elsevier, 2006
- [13] CORT, M. D.; DUBOIS, G.: Atlas of Caesium Deposition on Europe after the Chernobyl Accident. Lucembourg : Office fo official publication of the european communities, 1998
- [14] DEBERTIN, Klaus; SCHÖTZIG, Ulrich: PTB-Bericht Ra-24, Bedeutung von Summationskorrektionen bei der Gammastrahlen-Spektrometrie mit Germaniumdetektoren.
   Braunschweig: Physikalisch-Technische Bundesanstalt, 1990
- [15] FRISSEL, M. J.: An Update of the Recommended Soil-to-plant Transfer Factors of Sr-90, Cs-137 and Transuranics. In: International Union of Radioecologists: 8th Report of the Working Group Soil-to-Plant Transfer Factors. Balen, Belgien : IUR Technical Secretariat, 1992
- [16] GESELLSCHAFT FÜR ANLAGEN- UND REAKTORSICHERHEIT (Hrsg.); INSTITUT DE RADIOPROTECTION ET DE SÛRETÉ NUCLÉAIRE (Hrsg.): Study of the Radioecological Consequences. The French-German Initiative for Chernobyl, 2006
- [17] IAEA (Hrsg.): Environmental Consequences of the Chernobyl Accident and their Remediation: Twenty Years of Experience. Wien : International Atomic Energy Agency, 2006
- [18] INFORMATIONSKREIS KERNENERGIE (Hrsg.): Der Reaktorunfall in Tschernobyl.
  4. Berlin : Informationskreis KernEnergie, 2007
- [19] INTERNATIONAL ORGANISATION FOR STANDARDIZATION (Hrsg.): Guide to the expression of uncertainty in measurement. 1. Auflage. Genève, 1995
- [20] KNOLL, Glenn F.: Radiation Detection and Measurement. 3. Auflage. John Wiley & Sons, 2000

- [21] KONOPLEV, A. V.; BULGAKOV, A. A.: Transformation of the Forms of <sup>90</sup>Sr and <sup>137</sup>Cs in Soil and Bottom Deposits. In: Atomic Energy 88 (2000), Nr. 1, S. 56–60
- [22] MAGILL, J.; PFENNIG, G.; GALY, J.: *Karlsruher Nuklidkarte*. 7. Auflage. European Commission, 2006
- [23] MICHEL, R.; KIRCHHOFF, K.: Nachweis-, Erkennungs- und Vertrauensgrenzen bei Kernstrahlungsmessungen. Köln : TÜV-Verlag, 1999. – Publikationsreihe: Fortschritte im Strahlenschutz
- [24] MICHEL, Rolf: 20 Jahre nach Tschernobyl. In: Nachrichten aus der Chemie. 54. Ges. Dt. Chemiker, Apr 2006, S. 390–397
- [25] NISBET, A. F.; WOODMAN, R. F. M.; HAYLOCK, R. G. E.: Recommended Soilto-plant Transfer Factors for Radiocaesium and Radiostrontium for Use in Arable Systems / National Radiological Protection Board. 1999. – Forschungsbericht
- [26] SCHEFFER ; SCHACHTSCHNABEL: Lehrbuch der Bodenkunde. 15. Auflage. Heidelberg : Spektrum, 2002
- [27] SCHÖTZIG, Ulrich ; SCHRADER, Heinrich: PTB-Bericht Ra-16/5, Halbwertszeiten und Photonen-Emissionswahrscheinlichkeiten von häufig verwendeten Radionukliden. 5. erweiterte Auflage. Braunschweig : Physikalisch-Technische Bundesanstalt, 1998
- [28] SIEHL, Agemar (Hrsg.): Umweltradioaktivität. Berlin : Ernst, 1996
- [29] SSK BUNDESAMT FÜR STRAHLENSCHUTZ (Hrsg.): 20 Jahre nach Tschernobyl: Eine Bilanz aus Sicht des Strahlenschutzes. Bd. 50. Berlin : Hoffmann, 2006
- [30] Kapitel Annex D "Exposures from the Chernobyl accident". In: UNSCEAR (Hrsg.): Sources, Effects and Risks of Ionizing Radiation, United Nations Committee on the Effects of Atomic Radiation 1988 Report to the General Assembly, with annexes. New York : United Nations, 1988
- [31] Kapitel Annex J "Exposures and effects of the Chernobyl accident". In: UNSCEAR (Hrsg.): Sources and Effects of Ionizing Radiation, United Nations Committee on the Effects of Atomic Radiation 2000 Report to the General Assembly, with scientific annexes. New York : United Nations, 2000
- [32] WESTMEIER, Dr.: GAMMA-W High-precision quantitative gamma-ray spectrometry with your personal computer. 14.27, Aug 1993

## Eigenständigkeitserklärung

Hiermit versichere ich, dass diese Arbeit selbständig von mir verfasst und keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel benutzt wurden, alle Stellen der Arbeit, die wörtlich oder sinngemäß aus anderen Quellen übernommen wurden, als solche kenntlich gemacht sind und die Arbeit in gleicher oder ähnlicher Form noch keiner Prüfungsbehörde vorgelegen hat.

Hannover, den 17.09.2009

Jens Rother

## Danksagung

Ich möchte zuerst allen Mitarbeitern des ZSR meinen Dank für eine sehr angenehme Arbeitsatmosphäre aussprechen. Es hat mir immer sehr viel Spaß gemacht, im Institut zu arbeiten.

Speziell möchte ich mich bei Herrn Prof. Dr. Rolf Michel für die Bereitstellung dieses Themas bedanken. Während meiner Arbeit an diesem Thema habe ich viele Erkenntnisse bezüglich des Themas Radioaktivität gewonnen, von denen ich mir erhoffe, diese in meinen späteren Unterricht einbinden zu können.

Herrn Dr. Ingo Leya danke ich für die Übernahme des Koreferats.

Darüber hinaus danke ich Karl-Heinz Iwannek für einen Platz an seiner Seite in seinem Büro. Besonderer Dank gilt ihm für die Erstellung einer Zeichnung in letzter Minute und für die selten ruhige aber sehr unterhaltsame Zeit.

Ich danke Jonny Birkhan für eine intensive Einführung in die Probenvorbereitung, die Unterstützung beim Anfertigen eines Standardpräparates und die vielen erleuchtenden Einblicke in seine Arbeit. Alexander Solle und Christian Stieghorst danke ich für die ständige Ansprechbarkeit bei Problemen und speziell bei Christian Stieghorst möchte ich mich für die Kontrollmessungen meiner Proben bedanken.

Besonders möchte ich mich bei meiner Freundin Diana Scheide bedanken, die mich während der ganzen Zeit uneingeschränkt unterstützt hat und fortwährend versucht, meine Rechtschreibung, Grammatik bzw. Ausdrucksweise zu verbessern.