

Gammastrahlungsmessung von Umweltproben

-

Von der natürlichen Radioaktivität bis zum Fallout von Fukushima

Masterarbeit

angefertigt am

Institut für Radioökologie und Strahlenschutz

Leibniz Universität Hannover

unter Anleitung von

Prof. Dr. R. Michel

von

B.Sc. Frank Tawussi

Hannover, September 2012

Referent: Prof. Dr. R. Michel
Korreferent: Prof. Dr. C. Walther
Zeitraum: 01.10.2011 - 24.09.2012

Inhaltsverzeichnis

1. Umweltradioaktivität	11
1.1. Natürliche und künstliche Radionuklide	11
1.1.1. Einteilung der natürlichen Radionuklide	11
1.1.2. Natürliche Radionuklide ohne Zerfallsreihe	12
1.1.3. Künstliche Radionuklide	14
1.2. Dosisgrößen	17
1.3. Radioaktivität in der Umwelt	18
1.4. Mathematische Beschreibung des Zerfalls und des Wachstums in Zerfallsreihen	20
1.5. Das radioaktive Gleichgewicht	22
1.5.1. Säkulares Gleichgewicht	23
1.5.2. Transientes Gleichgewicht	24
1.5.3. Kein Gleichgewicht	25
2. Grundlagen der Gammaskopie	27
2.1. Wechselwirkung von Gammastrahlung mit Materie	27
2.1.1. Photoeffekt	27
2.1.2. Comptoneffekt	28
2.1.3. Paarbildungseffekt	29
2.2. Aufbau eines Halbleiterdetektors	31
2.3. Kalibrierung des Detektors	35
2.3.1. Energiekalibrierung	35
2.3.2. Halbwertsbreitenkalibrierung	35
2.3.3. Efficiencykalibrierung	36
2.4. Messunsicherheiten	39
2.5. Bestimmung der spezifischen Aktivität	40
2.5.1. Spezifische Aktivität bei <i>ungestörten</i> Linien	41
2.5.2. Spezifische Aktivität bei <i>gestörten</i> Linien	45
2.6. Erkennungs-, Nachweis- und Vertrauensgrenzen	46
2.7. Bestimmung der Depositionsdichte	48
2.8. Qualitätssicherung	49
3. Messung und Auswertung der Umweltproben aus Deutschland	51
3.1. Untersuchung von Bodenproben aus Deutschland	51
3.1.1. Vorbereitung der Bodenproben für die gammaskopimetrische Untersuchung	53

3.1.2. Gammaspektrometrische Analyse der Bodenproben	54
3.2. Untersuchung einer Partikelsammlung aus bodennaher Luft	63
3.2.1. Vorbereitung der Filter	63
3.2.2. Gammaspektrometrische Analyse der Filter	63
3.3. Untersuchung von Salzlauge aus einer Tiefenbohrung	67
3.3.1. Vorbereitung der Flüssigkeits- und Salzproben	67
3.3.2. Gammaspektrometrische Analyse der Flüssigkeits- und Salzproben	69
3.4. Untersuchung von Immobilisat aus ehemaligem Uranerzbergbau	73
3.4.1. Gammaspektrometrische Analyse des Immobilisats	73
4. Proben aus Japan nach dem Unfall von Fukushima	77
4.1. Unfallablauf im Atomkraftwerk Dai-ichi in Fukushima	77
4.2. Untersuchung der Bodenproben aus Fukushima	79
4.3. Auswertung der Nahrungsmittelbelastung in Fukushima	84
5. Zusammenfassung	93
A. Angaben zu Software und Detektor; Dosiswerte	97
B. Tabellen mit Messergebnissen	99
B.1. Nahrungsmittel aus Fukushima	110
C. Herstellung von Kalibrierstandards	113
D. Abkürzungsverzeichnis	117
Literaturverzeichnis	121
Selbstständigkeitserklärung	129

Abbildungsverzeichnis

1.1. Natürliche Zerfallsreihen	13
1.2. Zerfallsschema vom ^{40}K	14
1.3. Zerfallsschema vom ^{137}Cs	16
1.4. Säkulares Gleichgewicht	24
1.5. Transientes Gleichgewicht	25
1.6. Kein Gleichgewicht	26
2.1. Spektrum von ^{40}K	28
2.2. Wirkungsquerschnitte in Abhängigkeit der Photonenenergie	30
2.3. Schematischer Aufbau eines Halbleiterdetektors	32
2.4. Halbleiterdetektor mit offener Abschirmung	32
2.5. Schematische Darstellung eines Elektron-Loch-Paares im Kristall	33
2.6. Koaxialer P-Typ-Kristall mit einer Hochspannung in Sperrrichtung	33
2.7. Efficiency-Messung mit Jäckel-Westmeier-Fit	37
2.8. Spektrum einer Bodenprobe	41
2.9. Spezifische Aktivität von ^{214}Pb gegenüber ^{226}Ra	50
3.1. Entnahmeort, -datum und Korngrößenverteilung der Bodenproben aus Deutschland	52
3.2. Entnahmeorte der Bodenproben	52
3.3. Tiefenprofile von ^{40}K in den Bodenproben	55
3.4. Tiefenprofile von ^{137}Cs in den Bodenproben	59
3.5. Messwerte der Partikelsammlung aus bodennaher Luft	64
3.6. Übersicht der Proben aus der Tiefenbohrung	68
3.7. Grafische Darstellung der Ergebnisse der Proben aus der Tiefenbohrung	69
4.1. Karte von Japan	79
4.2. Dosisratenabschätzung für Minami-soma City durch ^{134}Cs und ^{137}Cs	83
4.3. Spezifische Aktivität von ^{134}Cs in Zuchtfleisch und Eiern aus der Prä- fektur Fukushima	86
4.4. Spezifische Aktivität von ^{134}Cs in Wildfleisch aus der Präfektur Fuku- shima	87
4.5. Spezifische Aktivität von ^{134}Cs in Fisch und Meeresfrüchten aus der Prä- fektur Fukushima	88
4.6. Spezifische Aktivität von ^{134}Cs in Pilzen aus der Präfektur Fukushima	89
4.7. Spezifische Aktivität von ^{134}Cs in Blattgemüse aus der Präfektur Fuku- shima	90

4.8. Spezifische Aktivität von ^{134}Cs in Nichtblattgemüse aus der Präfektur Fukushima	91
B.1. Spezifische Aktivität von ^{134}Cs in Obst, Beeren und Nüssen aus der Präfektur Fukushima	111
B.2. Spezifische Aktivität von ^{134}Cs in Reis aus der Präfektur Fukushima	112
B.3. Spezifische Aktivität von ^{134}Cs in Bambus aus der Präfektur Fukushima	112
C.1. Ringschale von unten	113

Tabellenverzeichnis

1.1. Mittlere effektive Dosis in Deutschland 2009	19
2.1. Gammalinien der gemessenen Radionuklide	43
3.1. Effektive Dosisrate durch terrestrische Strahlung der natürlichen Radio- nuklide	60
3.2. Depositionsdichten der Bodenproben aus Deutschland	61
3.3. Gesamte effektive Dosisrate durch terrestrische Strahlung	61
3.4. Ergebnisse der Messung des Immobilisats aus Bad Schlema	74
4.1. Ergebnisse der Bodenproben aus der Präfektur Fukushima	81
4.2. Übersicht der Anzahl der vom MHLW gemessenen Nahrungsmittelpro- ben	85
A.1. Verwendete Software	97
A.2. Daten des verwendeten Gamma-Detektors	97
A.3. Übersicht von Dosis- und Grenzwerten	98
B.1. Ergebnisse der Bodenproben aus Schleswig	99
B.2. Ergebnisse der Bodenproben aus Hannover	100
B.3. Ergebnisse der Bodenproben aus Potsdam	101
B.4. Ergebnisse der Bodenproben aus Görlitz	102
B.5. Ergebnisse der Bodenproben aus Nürnberg	103
B.6. Ergebnisse der Bodenproben aus Lahr	104
B.7. Spezifische Aktivität von ^{137}Cs in den Bodenproben	105
B.8. Organischer Anteil in den Bodenproben und pH-Wert	106
B.9. Ergebnisse der Partikelsammlung in bodennaher Luft	107
B.10. Ergebnisse der Proben aus einer Tiefenbohrung	108
B.11. Ergebnisse der gammaspektrometrischen Untersuchung der Bodenpro- ben aus der Präfektur Fukushima	109
C.1. Daten zur Multinuklidlösung QCY48 (2010)	115
C.2. Daten zur ^{210}Pb -Lösung (2008)	116

Einleitung

Nach dem Unfall im japanischen Kernkraftwerk Fukushima Dai-ichi im März 2011 wurde das Thema Radioaktivität und Strahlenschutz auch in Deutschland sehr intensiv diskutiert. Die energiepolitische Ausrichtung der Bundesregierung unter der Führung von Bundeskanzlerin Angela Merkel änderte sich drastisch: Auf die noch im Herbst 2010 beschlossene Laufzeitverlängerung deutscher Kernkraftwerke folgte im Juni 2011 der Beschluss zum vollständigen Atomausstieg bis zum Jahr 2022 [tag11b].

Das Wort „Radioaktivität“ assoziiert bei vielen Menschen die Vorstellung von nuklearen Unfällen und Krebserkrankungen. Dass ionisierende Strahlung ab bestimmten Dosen gesundheitsschädliche bis zu tödliche Folgen hat, steht außer Frage. Doch wie hoch die Dosiswerte für erhöhte gesundheitliche Schäden sind und wie hoch im Vergleich dazu die Strahlenexposition durch natürliche und künstliche Radionuklide in der Umwelt ist, ist hingegen einem großen Anteil der Bevölkerung kaum bekannt.

In der vorliegenden Arbeit werden zum einen Umweltproben aus verschiedenen Regionen in Deutschland gammaspektrometrisch untersucht, zum anderen werden Bodenproben und Nahrungsmittelmessungen aus der vom Fallout betroffenen Region in Japan (Präfektur Fukushima) analysiert und bewertet.

Diese Arbeit ist in fünf Abschnitte gegliedert:

Kapitel 1 befasst sich mit den Grundlagen der Umweltradioaktivität. Zunächst werden die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten natürlichen und künstlichen Radionuklide in der Umwelt vorgestellt und die Dosengrößen zur Beurteilung der Strahlenexposition eingeführt. Im Anschluss folgt eine mathematische Beschreibung des Zerfalls und des Wachstums in Zerfallsreihen sowie eine Darstellung des radioaktiven Gleichgewichts.

Kapitel 2 enthält die Grundlagen der Gammaspektrometrie mittels Germaniumdetektoren. Es wird zunächst auf die Wechselwirkung zwischen Gammastrahlung und Materie eingegangen und der Aufbau und die Kalibrierung des Halbleiterdetektors erläutert. Zudem folgt eine Beschreibung zur Bestimmung der spezifischen Aktivität aus den gemessenen Spektren und die Einführung der charakteristischen Grenzen.

In Kapitel 3 werden die Ergebnisse der gammaspektrometrischen Untersuchungen der Umweltproben aus Deutschland vorgestellt. Hierzu gehören Bodenproben, Luftanalysen mit einem Partikelsammler, Salzlake aus einer Tiefenbohrung und Immobilisat aus einer Wasserbehandlungsanlage in einer ehemaligen Uranbergbauregion (Erzgebirge). Die Ergebnisse werden jeweils eingehend diskutiert und verglichen.

In Kapitel 4 wird zunächst kurz auf den Unfallablauf im Atomkraftwerk Dai-ichi in Fukushima eingegangen. Es folgt eine gammaspektrometrische Untersuchung zweier Bodenproben aus Minami-soma City (Präfektur Fukushima), ungefähr 30 km nördlich vom Unfallort. Außerdem folgt eine Auswertung von Nahrungsmittelmessungen aus Fukushima, welche vom japanischen Gesundheitsministerium „Ministry of Health, Labour and Welfare (MHLW)“ veröffentlicht wurden [MHL12a].

Abschließend erfolgt in Kapitel 5 eine Zusammenfassung der Ergebnisse dieser Arbeit.

Umweltradioaktivität

1.1. Natürliche und künstliche Radionuklide

Bei Radionukliden handelt es sich um instabile Atomkerne, die unter Aussendung von ionisierender Strahlung zerfallen. Sie sind zum einen ein natürlicher Bestandteil der Umwelt, zum anderen existieren auch Radionuklide anthropogenen Ursprungs, die durch Kernwaffentest und Reaktorunfälle vom Menschen in die Umwelt freigesetzt wurden. Die Wissenschaft der *Radioökologie* befasst sich mit der Ausbreitung und dem Verhalten von Radionukliden in der Umwelt. Im Folgenden werden die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Radionuklide vorgestellt.

1.1.1. Einteilung der natürlichen Radionuklide

Natürliche radioaktive Stoffe lassen sich gemäß ihrer Bildung in drei Gruppen einordnen: *primordial*, *radiogen* und *kosmogen*.

Die *primordialen* Radionuklide waren bereits bei der Entstehung der Erde vor ungefähr 4,6 Milliarden Jahren vorhanden. Sie wurden bei Supernova-Explosionen von Sternen gebildet und zeichnen sich durch ihre besonders langen Halbwertszeiten aus, durch die sie auch heute noch in der Natur existieren. Zu den Primordialen gehören zum einen die Radionuklide *mit* Zerfallsreihen wie ^{238}U , ^{235}U und ^{232}Th mit Halbwertszeiten von 4,5, 0,7 und 14 Milliarden Jahren sowie zum anderen Radionuklide *ohne* Zerfallsreihen wie ^{40}K mit einer Halbwertszeit von 1,28 Milliarden Jahren [SV04].

Zu den *radiogenen* Nukliden gehören die Radionuklide, die beim Zerfall von instabilen Atomen gebildet werden, wie zum Beispiel die Nuklide innerhalb der Zerfallsreihen. Die Halbwertszeiten dieser Nuklide variieren zwischen Bruchteilen von Sekunden bis hin zu mehreren zehntausend Jahren. Die relativ schweren Kerne zerfallen hauptsächlich unter α - oder β^- -Emission. Als Nebeneffekt tritt bei vielen Zerfällen charakteristische Gammastrahlung mit diskreten Energien auf.

In Abbildung 1.1 sind die drei natürlichen Zerfallsreihen mit den primordialen Mutter-

nukliden und den radiogenen Folgenukliden dargestellt. Die Mutternuklide der drei natürlichen Zerfallsreihen ^{238}U , ^{235}U und ^{232}Th sind die Ausgangspunkte für eine Kette von Zerfällen. Jedes Mutternuklid zerfällt zu einem Tochternuklid, das für sich auch instabil ist und weiter zerfällt. Die Zerfallskette läuft so lange weiter bis am Ende der Kette ein stabiler Atomkern entsteht. In der ^{238}U -Reihe ist der stabile Endkern ^{206}Pb , in der ^{235}U -Reihe ^{207}Pb und in der ^{232}Th -Reihe ^{208}Pb .

Das natürliche Aktivitätsverhältnis der Uran-Isotope beträgt [DIN07]:

$$\frac{a(^{238}\text{U})}{a(^{235}\text{U})} = 21,7. \quad (1.1)$$

Die dritte Gruppe der natürlichen radioaktiven Nuklide bilden die *kosmogenen* Radionuklide. Diese werden kontinuierlich durch die Wechselwirkung zwischen der hochenergetischen kosmischen Strahlung und der Atmosphäre gebildet. Sie besitzen im Vergleich zu den primordialen Radionukliden kurze Halbwertszeiten τ . Zur Gruppe der kosmogenen Radionuklide gehören unter anderem ^7Be (τ : 53,12 d), Tritium ^3H (τ : 12,32 a) und ^{14}C (τ : 5730 a).

Neben den hier aufgeführten Nukliden existieren noch eine hohe Anzahl weiterer natürlicher Radionuklide, die jedoch ohne große radiologische Bedeutung sind.

1.1.2. Natürliche Radionuklide ohne Zerfallsreihe

Kalium (^{40}K)

Kalium ist ein Alkalimetall, das in der Erdkruste mit einem Anteil von etwa 2,4 Massenprozent vorkommt. Die natürliche Isotopenzusammensetzung besteht aus den zwei stabilen Isotopen ^{39}K (93,2581 %) und ^{41}K (6,7302 %) sowie aus dem instabilen ^{40}K , das zu 0,0117 % im natürlichen Kalium vorkommt. ^{40}K gehört zu den primordialen Radionukliden und besitzt eine Halbwertszeit von $1,28 \cdot 10^9$ Jahren [HW95].

In Abbildung 1.2 ist das Zerfallsschema vom ^{40}K dargestellt. ^{40}K zerfällt mit einer Wahrscheinlichkeit von 89,33 % unter Emission eines β^- -Teilchens zu ^{40}Ca . Es kann jedoch auch durch Elektroneneinfang in einen angeregten $^{40\text{m}}\text{Ar}$ -Kern übergehen. Durch Emission eines charakteristischen Gammaquants der Energie 1460,81 keV entsteht ^{40}Ar im Grundzustand. Das Gammaquant hat eine Emissionswahrscheinlichkeit von 10,67 % [Bun06].

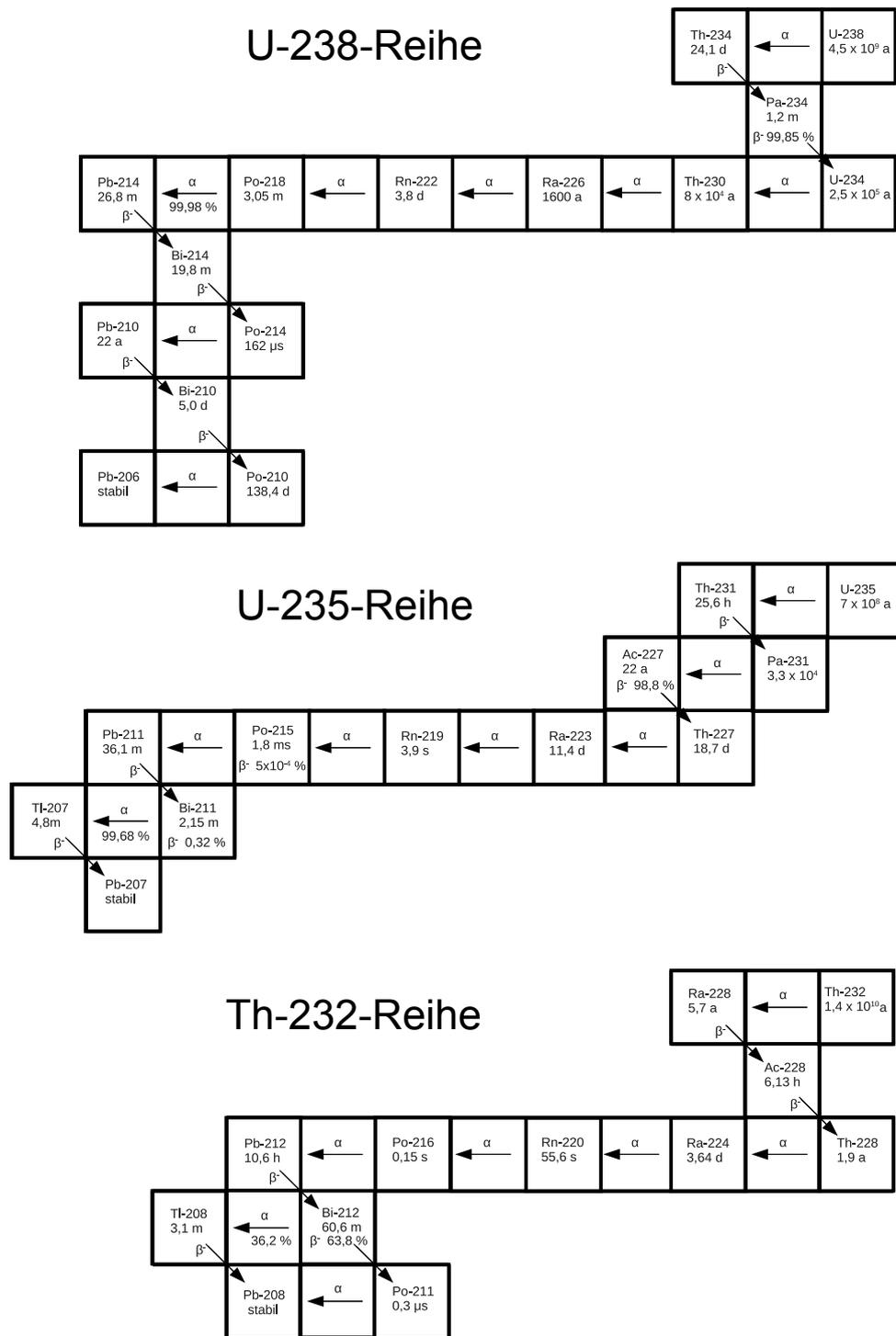


Abbildung 1.1.: Die drei natürlichen Zerfallsreihen: Uran-Radium-Reihe (^{238}U), Uran-Actinium-Reihe (^{235}U) und Thorium-Reihe (^{232}Th). Weitere Verzweigungen mit geringen Emissionswahrscheinlichkeiten wurden der Übersichtlichkeit halber weggelassen (aus [Bun99], bearbeitet).

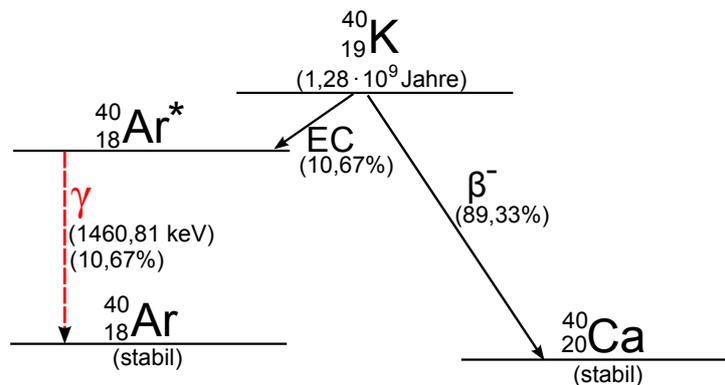


Abbildung 1.2.: Zerfallsschema vom ^{40}K . (EC: Elektroneneinfang)

Beryllium (^7Be)

Die Beryllium-Isotope ^7Be und ^{10}Be gehören zu den kosmogenen Radionukliden. ^7Be besitzt eine relativ kurze Halbwertszeit von 53,12 Tagen; ^{10}Be hat eine Halbwertszeit von $1,6 \cdot 10^6$ Jahren. Da ^{10}Be ein reiner β^- -Strahler ist, wird es im Rahmen dieser gamma-spektrometrisch ausgelegten Arbeit nicht weiter betrachtet.

Das ^7Be entsteht überwiegend in der Stratosphäre bei der Wechselwirkung zwischen kosmischer Strahlung und Sauerstoff- oder Stickstoffatomen der Atmosphäre (Spallation). Es wird kontinuierlich nachproduziert und ist daher auch trotz seiner vergleichsweise kurzen Halbwertszeit nachweisbar. Beim Luftaustausch zwischen Stratosphäre und Troposphäre gelangt das ^7Be von den hochliegenden Atmosphärenschichten in die bodennahen Luftschichten [Glo03].

Es zerfällt unter Elektroneneinfang mit einer Wahrscheinlichkeit von 89,7 % zu ^7Li im Grundzustand. Es kann jedoch auf diese Weise auch in angeregtes ^7mLi übergehen, das dann unter Emission eines charakteristischen Gammaquants mit der Energie von 477,61 keV in seinen Grundzustand fällt. Das Gammaquant hat daher eine Emissionswahrscheinlichkeit von 10,3 % [Bun06].

1.1.3. Künstliche Radionuklide

Zu den künstlichen radioaktiven Nukliden gehören jene, die durch den Menschen erzeugt werden und normalerweise nicht in der Natur vorhanden sind. Sie sind zum Beispiel als Brennstoff in Kernwaffen vorhanden wie ^{239}Pu oder entstehen als Spaltprodukte in Kernreaktoren wie ^{137}Cs . Es ist auch möglich, dass durch Neutronenbestrahlung ein stabiler Atomkern in einen instabilen übergeht, der dann wiederum

unter Teilchenemission zerfällt. Ein Beispiel hierfür ist der Neutroneneinfang vom stabilen Kern ^{59}Co :



Vom Element Technetium mit der Kernladungszahl $Z = 43$ sind zum Beispiel alle Isotope künstlich erzeugt und radioaktiv.

Auch in der Nuklearmedizin finden viele synthetisch hergestellte Radionuklide Verwendung, wie zum Beispiel das Indium-Isotop ^{111}In , das als Tracer zur Markierung von Substanzen und deren Verfolgung im Körper eingesetzt wird.

Dass einige dieser künstlich erzeugten Radionuklide heutzutage in Umweltproben in Deutschland nachweisbar sind, resultiert hauptsächlich aus den oberirdischen Kernwaffenversuchen der 60er und 70er Jahre und dem Reaktorunfall von Tschernobyl im Jahr 1986. Hierbei wurde unter anderem das Radionuklid ^{137}Cs freigesetzt, das aufgrund seiner langen Halbwertszeit von 30 Jahren auch heute noch vorhanden und nachweisbar ist und zudem auch die Region um den Unfallort langfristig kontaminiert. Nähere Informationen zu Tschernobyl und der Kontamination der nördlichen Ukraine sind zum Beispiel in der Dissertation von W. Botsch [Bot00] zu finden. Eine Liste der Kernwaffenversuche ist im Jahresbericht 2009 zur *Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung* [Bun10] dargestellt.

Caesium ^{137}Cs

Das ^{137}Cs entsteht als Spaltprodukt des Uran-Isotops ^{235}U . Es ist von besonderer radioökologischer Bedeutung, da die Umgebung bei seiner Freisetzung in die Umwelt (zum Beispiel nach einem Reaktorunfall) aufgrund der relativ hohen Halbwertszeit (τ : 30,17 a) langfristig über mehrere Jahrzehnte kontaminiert – und zum Teil unbewohnbar – ist. Da ^{137}Cs ohne großen Aufwand gammaspektrometrisch messbar ist, kann durch dieses Nuklid eine schnelle Dosisratenabschätzung erfolgen.

Desweiteren ist ^{137}Cs dafür bekannt, dass es sich in Pflanzen und Pilzen anreichern kann, da es ein ähnliches chemisches Verhalten wie Kalium aufweist. Ein Beispiel hierfür ist der sehr hohe ^{137}Cs -Gehalt in Pilzen aus der nördlichen Ukraine [Bot00].

In Abbildung 1.3 ist das Zerfallsschema vom ^{137}Cs dargestellt. Es zerfällt unter β^- -Emission zu ^{137}Ba . In 94 % der Fälle entsteht ein angeregter $^{137\text{m}}\text{Ba}$ -Kern, der mit einer Halbwertszeit von 2,55 Minuten unter Emission eines charakteristischen Gammaquants mit der Energie von 661,66 keV in den Grundzustand übergeht. Die Emissionswahrscheinlichkeit dieses Gammaquants beträgt 85,1 %.

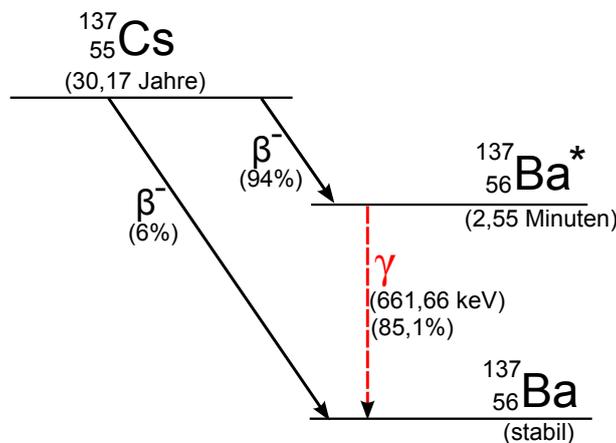


Abbildung 1.3.: Zerfallsschema vom ^{137}Cs

Caesium ^{134}Cs

Das Caesium-Isotop ^{134}Cs entsteht nicht direkt als Spaltprodukt im Reaktor, da dieser Zerfallsweg durch das stabile Xenon-Isotop ^{134}Xe blockiert wird, sondern durch Neutronenaktivierung des stabilen Spaltprodukts ^{133}Cs . Mit einer Halbwertszeit von 2,06 Jahren ist das ^{134}Cs besonders in den ersten Monaten nach einem Reaktorunfall von großer Bedeutung.

Die wichtigsten Gammaenergien vom ^{134}Cs liegen bei 604,72 keV ($p_\gamma = 97,6\%$) und 795,86 keV (85,4%).

Silber $^{110\text{m}}\text{Ag}$

Das Silber-Isotop $^{110\text{m}}\text{Ag}$ ist ein weiteres künstliches Nuklid, das durch Neutronenaktivierung vom stabilen ^{109}Ag in Kernreaktoren anfällt. Dieses Silber ist zum einen Bestandteil in Steuerstäben, zum anderen in der Beschichtung von Dichtungen vorhanden [RBB03]. Es konnte in Umweltproben aus Fukushima detektiert werden (siehe Abschnitt 4.2). Die Halbwertszeit beträgt 249,8 Tage. Die wichtigsten Gammaenergien von $^{110\text{m}}\text{Ag}$ liegen bei 657,76 keV ($p_\gamma = 95,3\%$) und 884,69 keV (73,2%) [Bun06].

1.2. Dosisgrößen

Hochenergetische Teilchen- oder elektromagnetische Strahlung wird auch als ionisierende Strahlung bezeichnet aufgrund der Eigenschaft, Elektronen aus Atomen und Molekülen herauszuschlagen und die Materie damit zu ionisieren. In größeren Mengen kann diese Strahlung eine Gesundheitgefährdung für den Menschen darstellen, da sie die Zellen und die Zellinformation zerstören beziehungsweise verändern kann. Der Strahlenschutz befasst sich daher mit dem Umgang von ionisierender Strahlung und dem Erstellen von Grenz- und Richtwerten. Hierfür wurden Dosisgrößen eingeführt, die im Folgenden kurz erläutert werden.

Energiedosis

Die Energiedosis D beschreibt die Energie, die von ionisierender Strahlung auf eine Masse übertragen wird. Ihre Einheit ist das Gray ($1 \text{ Gy} = 1 \text{ J kg}^{-1}$).

Äquivalentdosis

Die Äquivalentdosis H_T ist ein Maß für die biologische Wirkung von ionisierender Strahlung im Körpergewebe T . Sie entspricht der Energiedosis $D_{T,R}$ multipliziert mit einem Strahlungswichtungsfaktor w_R , der abhängig von der Strahlungsart R ist, und wird in der Einheit Sievert (Sv) angegeben:

$$H_T = w_R \cdot D_{T,R} \quad (1.2)$$

Alphateilchen haben aufgrund ihrer Größe, Ladung und Energie eine höhere Ionisierungsdichte und damit bei gleicher Energiedosis eine viel stärkere Wirkung auf Körpergewebe als zum Beispiel Gammastrahlung. Aus diesem Grund wird Alphastrahlung für die Äquivalentdosis ein höherer Strahlungswichtungsfaktor zugeordnet, $w_R = 20 \text{ Sv Gy}^{-1}$. Für Gamma- und Betastrahlung gilt $w_R = 1 \text{ Sv Gy}^{-1}$ [Str12].

Effektive Dosis

Die effektive Dosis E ist ein Maß für eine Ganzkörperdosis. Zu ihrer Berechnung werden die Organdosen H_T von 13 relevanten Organen mit ihren jeweiligen Gewebewichtungsfaktoren w_T multipliziert. Die Summe aller gewichteten Organdosen ergibt

die effektive Dosis:

$$E = \sum_{T=1}^n w_T \cdot H_T \quad (1.3)$$

Die Gewebe-Wichtungsfaktoren w_T berücksichtigen das stochastische Strahlenrisiko der einzelnen Organe. Sie sind zum Beispiel in der Strahlenschutzverordnung (StrlSchV) aufgelistet ([Str12], Anlage VI Teil C).

1.3. Radioaktivität in der Umwelt

Der Zerfall von instabilen Atomkernen und die dadurch bedingte Freisetzung von ionisierender Strahlung sind natürliche Prozesse. Man unterscheidet zwischen kosmischer (extraterrestrischer) und terrestrischer Strahlung. Zudem existiert heutzutage eine zusätzliche Strahlenexposition aufgrund von zivilisatorischen Einflüssen [Sie96]. Hierzu gehört vor allem die in der Medizin eingesetzte ionisierende Strahlung (Röntgen, CT, ...) sowie die Freisetzung von künstlichen Radionukliden durch Kernwaffentests (Bikini-Atoll, Nevada Test Site, ...) und Unfälle (Tschernobyl, Fukushima, ...).

In Tabelle 1.1 ist die mittlere effektive Dosis in Deutschland im Jahr 2009 dargestellt [Bun10]. Hierbei wird zwischen *natürlicher* und *zivilisatorischer* Strahlenexposition unterschieden.

Für die *natürliche* Strahlenexposition wird eine mittlere effektive Dosis von 2,1 mSv pro Jahr abgeschätzt. Der größte Anteil hiervon (52 %) entsteht durch die Inhalation von Radonfolgeprodukten.

Die mittlere effektive Dosis der *zivilisatorischen* Strahlenexposition beträgt 1,8 mSv pro Jahr. Diese setzt sich nahezu vollständig aus der Verwendung von radioaktiven Stoffen und ionisierender Strahlung in der Medizin zusammen. Weitere anthropogene Strahlenexposition durch zum Beispiel den Fallout von Kernwaffenversuchen, kerntechnische Anlagen und den Unfall von Tschernobyl leisten nur einen verschwindend geringen Beitrag zur effektiven Dosis in Deutschland.

Insgesamt beträgt die mittlere effektive Dosis in Deutschland $3,9 \text{ mSv a}^{-1}$ (2009). Hierbei macht die natürliche Strahlenexposition einen Anteil von 54 % aus. Es ist jedoch zu beachten, dass bei der medizinischen Strahlenexposition lediglich eine Minderheit relativ hohe Dosen pro Jahr erhält, sodass der Mittelwert für die gesamte Bevölkerung nicht repräsentativ ist.

Die Dosis einer einzigen Ganzkörper-Computertomographie beträgt zum Beispiel 10 mSv bis 20 mSv, also drei- bis fünfmal soviel wie die mittlere effektive Gesamtjahresdosis in Deutschland [Bun12]. In Abbildung A.3 im Anhang sind zum Vergleich weitere Dosis- und Grenzwerte vom Bundesamt für Strahlenschutz (BfS) zusammengestellt.

		Mittlere effektive Dosis in Millisievert pro Jahr	
1. Natürliche Strahlenexposition			
1.1	durch kosmische Strahlung (in Meereshöhe)	ca. 0,3	
1.2	durch terrestrische Strahlung von außen	ca. 0,4	
	bei Aufenthalt im Freien (5 Std./Tag)		ca. 0,1
	bei Aufenthalt in Häusern (19 Std./Tag)		ca. 0,3
1.3	durch Inhalation von Radonfolgeprodukten	ca. 1,1	
	bei Aufenthalt im Freien (5 Std./Tag)		ca. 0,2
	bei Aufenthalt im Gebäude (19 Std./Tag)		ca. 0,9
1.4	durch Ingestion von natürlich radioaktiven Stoffen	ca. 0,3	
Summe der natürlichen Strahlenexposition		ca. 2,1	
2. Zivilisatorische Strahlenexposition			
2.1	durch Fallout von Kernwaffenversuchen	< 0,01	
2.2	Strahlenexposition durch den Unfall im Kernkraftwerk Tschernobyl	< 0,012	
2.3	durch kerntechnische Anlagen	< 0,01	
2.4	durch Anwendung radioaktiver Stoffe und ionisierender Strahlen in der Medizin* (ohne Therapie)	ca. 1,8	
	davon durch nuklearmedizinische Untersuchungen		ca. 0,1
Summe der zivilisatorischen Strahlenexposition		ca. 1,8	

* Daten von 2008, Auswertungen von 2010

Tabelle 1.1.: Mittlere effektive Dosis der Bevölkerung der Bundesrepublik Deutschland im Jahr 2009 (aus [Bun10]).

Ionisierende Strahlung kann für den Menschen gesundheitsschädigende Folgen haben. Hierbei wird zwischen deterministischen und stochastischen Schäden unterschieden. Deterministische Schäden treten schon bei kurzzeitiger Strahlenexposition ab Überschreitung einer bestimmten Dosischwelle auf, der Schaden nimmt mit höherer Dosis zu. Zu dieser Art von Schäden gehören zum Beispiel Hautrötungen (ab ca. 500 mSv), Haarausfall und Erbrechen (ab ca. 1000 mSv).

Stochastische Schäden sind Schäden, die nicht direkt auftreten, sondern deren Eintrittswahrscheinlichkeit durch die Strahlenexposition steigt. Ein Beispiel hierfür ist die Erhöhung des Krebsrisikos. So treten zum Beispiel nach Einschätzung des BfS bei einer Dosis von 100 mSv etwa 1 % zusätzliche Krebs- und Leukämiefälle in einer Bevölkerungsgruppe auf. Bei einer Dosis von 1000 mSv sind es 10 % zusätzliche Fälle (siehe auch Tabelle A.3 im Anhang) [Bun12].

Das Risiko von Strahleneinwirkung sollte daher nicht unterschätzt werden. Aus diesem Grund ist es wichtig, die natürliche sowie die künstliche Strahlenexposition zu untersuchen und zu überwachen. Zum Schutz der Bevölkerung wurden deshalb das *Atomgesetz* (AtG, [AtG12]), die *Strahlenschutzverordnung* (StrlSchV, [Str12]), die *Röntgenverordnung* (RöV, [RoV11]) und das *Strahlenschutzvorsorgegesetz* (StrVG, [Str08]) erlassen.

1.4. Mathematische Beschreibung des Zerfalls und des Wachstums in Zerfallsreihen

Die *Aktivität* A eines radioaktiven Stoffes beschreibt die Anzahl der Kernzerfälle pro Zeiteinheit. Sie ist identisch mit der Zerfallsrate. Die zeitliche Abnahme einer Anzahl N von instabilen Atomkernen durch Zerfall kann daher mit einer Zerfallskonstante λ wie folgt beschrieben werden [Lie91]:

$$A = -\frac{dN(t)}{dt} = \lambda \cdot N(t) \quad (1.4)$$

Durch Integration über die Zeit t ergibt sich hieraus das Zerfallsgesetz:

$$N(t) = N_0 \cdot e^{-\lambda t} \quad (1.5)$$

Die Gleichung beschreibt in dieser Form auch die Aktivität $A(t)$ des radioaktiven Stoffes:

$$A(t) = A_0 \cdot e^{-\lambda t}, \quad (1.6)$$

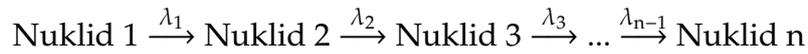
hierbei sind $N_0 = N(0)$ und $A_0 = A(0)$ die Anfangszahl beziehungsweise Anfangsaktivität zum Zeitpunkt $t = 0$. Die Einheit der Aktivität wird in Becquerel angegeben ($1 \text{ Bq} = 1 \text{ s}^{-1}$).

Aus dem Zerfallsgesetz lässt sich eine einfache Formel für die Halbwertszeit τ herleiten. Der Anfangswert A_0 wird der Einfachheit halber gleich 1 gesetzt. Nach der Halbwertszeit τ beträgt die Aktivität also $\frac{1}{2}$:

$$\begin{aligned} A(\tau) &= \frac{1}{2} = e^{-\lambda \cdot \tau} \\ \iff \ln\left(\frac{1}{2}\right) &= -\lambda \cdot \tau \\ \iff \tau &= \frac{\ln(2)}{\lambda} \end{aligned} \quad (1.7)$$

1.4. Mathematische Beschreibung des Zerfalls und des Wachstums in Zerfallsreihen

Zerfallsreihen, die aus einem Mutternuklid (Nuklid 1) erwachsen und über mehrere instabile Tochternuklide verlaufen bis sie schließlich in einem stabilen Atomkern (Nuklid n) enden, können durch folgende Differentialgleichungen ausgedrückt werden [Lie91]:



$$\begin{aligned} \frac{dN_1}{dt} &= -\lambda_1 N_1 \\ \frac{dN_2}{dt} &= \lambda_1 N_1 - \lambda_2 N_2 \\ \frac{dN_3}{dt} &= \lambda_2 N_2 - \lambda_3 N_3 \\ &\dots \\ &\dots \\ \frac{dN_n}{dt} &= \lambda_{n-1} N_{n-1} - \lambda_n N_n \end{aligned} \quad (1.8)$$

Für die Lösung dieser Differentialgleichungen eignet sich ein exponentieller Ansatz mit der Anfangsbedingung, dass zur Zeit $t = 0$ ausschließlich das Mutternuklid vorliegt:

$$N_1(0) = N_1^0 > 0 \quad (1.9)$$

$$N_2(0) = N_3(0) = \dots = N_n(0) = 0 \quad (1.10)$$

Man erhält auf diese Weise für die Anzahl der Atome des n-ten Nuklids $N_n(t)$ zur Zeit t folgende Gleichung:

$$N_n(t) = C_1 \cdot e^{-\lambda_1 t} + C_2 \cdot e^{-\lambda_2 t} + C_3 \cdot e^{-\lambda_3 t} + \dots + C_n \cdot e^{-\lambda_n t} \quad (1.11)$$

Die konstanten Koeffizienten C_i , $i \in \{1, \dots, n\}$, setzen sich aus den Zerfallskonstanten λ_i und $N_1(0)$ wie folgt zusammen:

$$\begin{aligned} C_1 &= \frac{\lambda_1 \cdot \lambda_2 \cdot \dots \cdot \lambda_{n-1}}{(\lambda_2 - \lambda_1) \cdot (\lambda_3 - \lambda_1) \cdot \dots \cdot (\lambda_n - \lambda_1)} \cdot N_1(0) \\ C_2 &= \frac{\lambda_1 \cdot \lambda_2 \cdot \dots \cdot \lambda_{n-1}}{(\lambda_1 - \lambda_2) \cdot (\lambda_3 - \lambda_2) \cdot \dots \cdot (\lambda_n - \lambda_2)} \cdot N_1(0) \\ &\dots \\ C_n &= \frac{\lambda_1 \cdot \lambda_2 \cdot \dots \cdot \lambda_{n-1}}{(\lambda_1 - \lambda_n) \cdot (\lambda_2 - \lambda_n) \cdot \dots \cdot (\lambda_{n-1} - \lambda_n)} N_1(0) \end{aligned} \quad (1.12)$$

Die Aktivität des i -ten Nuklids zur Zeit t lässt sich wie in Gleichung (1.4) bestimmen:

$$A_i(t) = \lambda_i \cdot N_i(t) \quad (1.13)$$

1.5. Das radioaktive Gleichgewicht

Von einem *radioaktiven Gleichgewicht* spricht man, wenn das Aktivitätsverhältnis zwischen einem Nuklid (Mutternuklid, 1) und einem aus ihm hervorgehenden Nuklid (Tochternuklid, 2) über einen längeren Zeitraum konstant ist. Für die mathematische Herleitung des Gleichgewichtszustand wird die Gleichung (1.8) verwendet:

$$\frac{dN_2}{dt} = -\frac{dN_1}{dt} - \lambda_2 N_2 \quad (1.14)$$

$$= \lambda_1 N_1 - \lambda_2 N_2 \quad (1.15)$$

Die Lösung dieser Differentialgleichung sieht wie folgt aus:

$$N_2(t) = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_1(0) (e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}) + N_2(0) \cdot e^{-\lambda_2 t} \quad (1.16)$$

Als Randbedingung kann angenommen werden, dass zu Beginn $t = 0$ nur das Mutternuklid N_1 vorliegt, $N_2(0) = 0$, wodurch der letzte Term wegfällt. Der erste Term lässt sich nun umformen:

$$\begin{aligned} N_2(t) &= \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_1(0) \cdot e^{-\lambda_1 t} (1 - e^{-(\lambda_2 - \lambda_1)t}) \\ &= \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_1(t) (1 - e^{-(\lambda_2 - \lambda_1)t}). \end{aligned} \quad (1.17)$$

Ein radioaktives Gleichgewicht zwischen Mutter- und Tochternuklid wird erreicht, wenn das Verhältnis zwischen Mutter- und Tochternuklid (N_2/N_1) konstant ist. Dies ist der Fall, wenn in Gleichung (1.17) der zeitabhängige Term $e^{-(\lambda_2 - \lambda_1)t}$ für $t \rightarrow \infty$ gegen 0 konvergiert. Demnach liegt ein radioaktives Gleichgewicht vor, wenn

$$N_2(t) = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_1(t) \equiv C \cdot N_1(t). \quad (1.18)$$

Es werden zwei Fälle des radioaktiven Gleichgewichts unterschieden sowie ein Fall des Ungleichgewichts [Lie91]:

- Säkulares Gleichgewicht
- Transientes Gleichgewicht
- Kein Gleichgewicht

1.5.1. Säkulares Gleichgewicht

Ein säkulares (dauerndes) Gleichgewicht tritt in einer Zerfallsreihe dann auf, wenn die Halbwertszeit des Mutternuklids (1) deutlich höher ist als die des Tochternuklids (2):

$$\tau_2 \ll \tau_1 \quad (1.19)$$

In diesem Fall ist die Zerfallskonstante des Mutternuklids vernachlässigbar gegenüber die des Tochternuklids, $\lambda_2 \gg \lambda_1$, sodass sich Gleichung (1.17) mit $\lambda_2 - \lambda_1 \approx \lambda_2$ zu

$$N_2(t) = \frac{\lambda_1}{\lambda_2} N_1(t) (1 - e^{-\lambda_2 t}) \quad (1.20)$$

umformen lässt.

Für lange Zeiten fällt der e-Term weg:

$$\lim_{t \rightarrow \infty} e^{-\lambda_2 t} = 0, \quad (1.21)$$

sodass für das Nuklidverhältnis $N_2 = \frac{\lambda_1}{\lambda_2} N_1$ gilt und damit der Gleichgewichtszustand

$$A_1 = \lambda_1 N_1 = \lambda_2 N_2 = A_2 \quad (1.22)$$

erreicht ist. In diesem Gleichgewichtsfall ist das Aktivitätsverhältnis $A_2/A_1 = 1$. Das bedeutet, dass Mutter- und Tochternuklid die gleiche Aktivität aufweisen. In Abbildung 1.4 ist der Aktivitätsanstieg des Tochternuklids bis zur Einstellung des säkularen Gleichgewichts zu erkennen.

Die Zeit zum Erreichen des Gleichgewichtszustands ist ausschließlich abhängig von der Halbwertszeit des Tochternuklids τ_2 , die im e-Term im Exponenten steht:

$$(1 - e^{-\lambda_2 t}) = \left(1 - e^{-\frac{\ln(2)}{\tau_2} t}\right) = \left(1 - 2^{-\frac{t}{\tau_2}}\right) = \frac{A_2(t)}{A_1(t)} \quad (1.23)$$

Nach sechs Halbwertszeiten des Tochternuklids, $t = 6\tau_2$, beträgt das Aktivitätsverhältnis $A_2/A_1 = 98,4\%$; nach zehn Halbwertszeiten beträgt das Verhältnis $99,9\%$, sodass man nach diesen Zeiten in guter Näherung von einem radioaktiven Gleichgewicht sprechen kann.

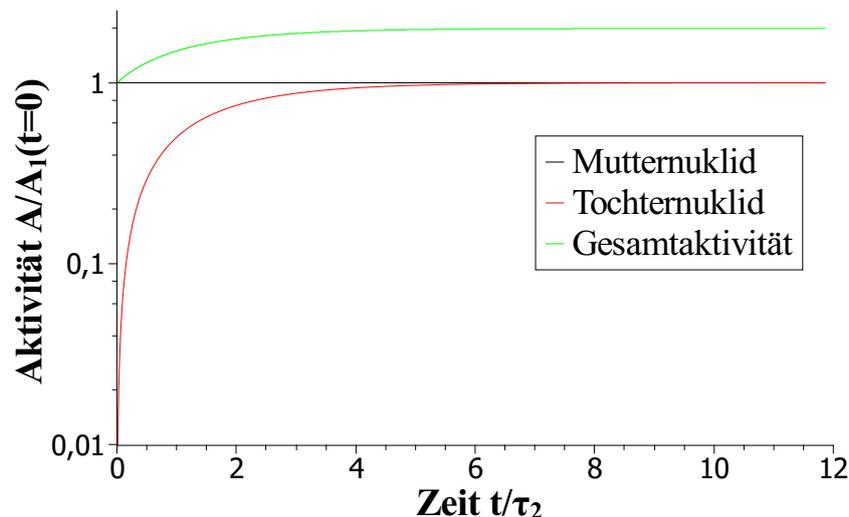


Abbildung 1.4.: Säkulares Gleichgewicht für $\tau_2 \ll \tau_1$ – Die Halbwertszeit des Mutternuklids ist hier 100-mal größer als die des Tochternuklids.

1.5.2. Transientes Gleichgewicht

Ist die Halbwertszeit des Mutternuklids nur etwas größer als die des Tochternuklids,

$$\tau_2 < \tau_1, \quad (1.24)$$

so kann der radioaktive Zerfall des Mutternuklids nicht mehr vernachlässigt werden wie beim säkularen Gleichgewicht. Es bildet sich ein transientes (laufendes) Gleichgewicht, wenn nach Gleichung (1.18) gilt:

$$\frac{N_2(t)}{N_1(t)} = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} \equiv C. \quad (1.25)$$

In Abbildung 1.5 ist die Aktivität beim Aufbau eines transientes Gleichgewichts halb-logarithmisch dargestellt. Die Aktivität des Tochternuklids wächst mit dem Zerfall des

Mutternuklids bis beide Aktivitäten gleich sind (Schnittpunkt). Dann übersteigt die Aktivität der Tochter die der Mutter und es bildet sich ein radioaktives Gleichgewicht und damit ein konstantes Aktivitätsverhältnis aus:

$$\frac{A_2}{A_1} = \text{const.} > 1. \quad (1.26)$$

Die Gesamtaktivität ($A_1 + A_2$) nimmt in diesem Fall mit der Halbwertszeit des Mutternuklids ab.

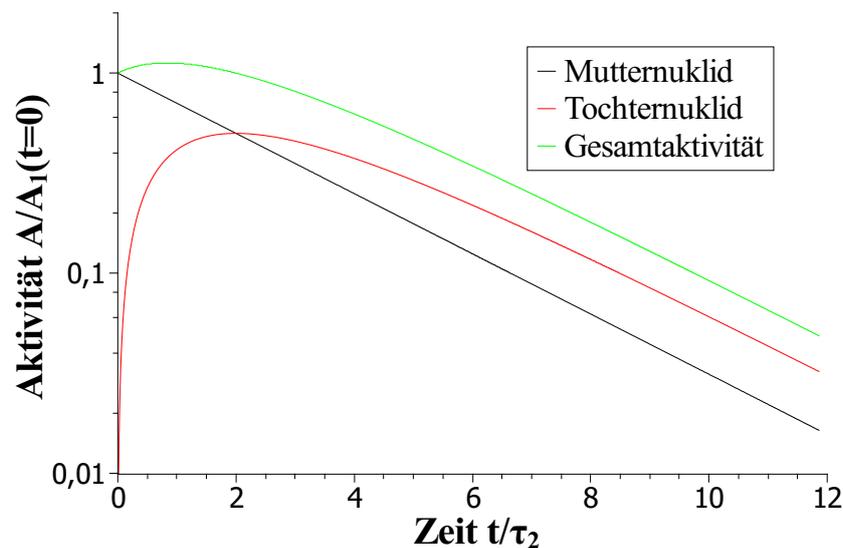


Abbildung 1.5.: Transientes Gleichgewicht für $\tau_2 < \tau_1$ – Die Halbwertszeit des Mutternuklids ist hier doppelt so groß wie die des Tochternuklids.

1.5.3. Kein Gleichgewicht

Ist die Halbwertszeit des Mutternuklids kürzer als die des Tochternuklids,

$$\tau_2 > \tau_1, \quad (1.27)$$

so bildet sich kein radioaktives Gleichgewicht aus, da das Mutternuklid schon aufgezehrt ist, bevor sich ein konstantes Aktivitätsverhältnis einstellen kann. Die Abbildung 1.6 verdeutlicht dies anschaulich.

1. Umweltradioaktivität

In diesem Fall gilt für die Zerfallskonstanten $\lambda_1 > \lambda_2$. Dies führt dazu, dass das Verhältnis

$$\frac{N_2(t)}{N_1(t)} = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} (1 - e^{-(\lambda_2 - \lambda_1)t}) \quad (1.28)$$

für $t \rightarrow \infty$ nicht konstant ist, weil $\lim_{t \rightarrow \infty} (e^{-(\lambda_2 - \lambda_1)t})$ divergiert, wenn $\lambda_1 > \lambda_2$.

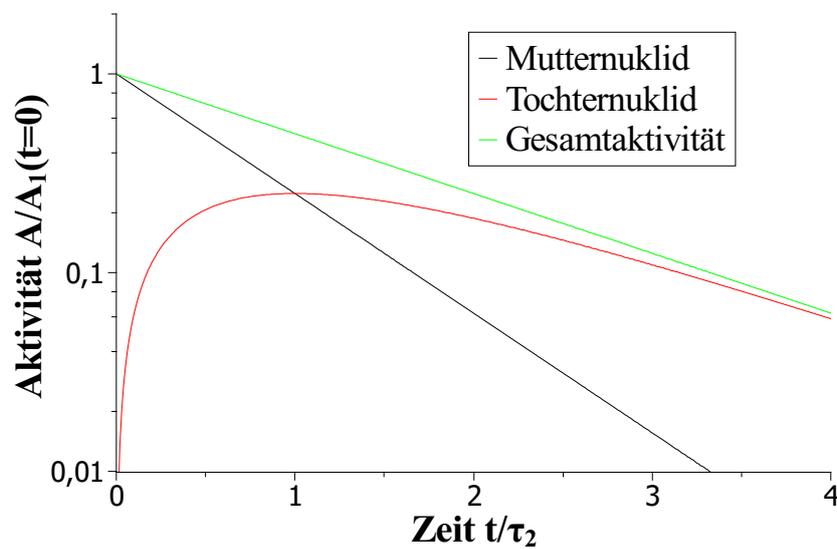


Abbildung 1.6.: Kein Gleichgewicht für $\tau_2 > \tau_1$ – Die Halbwertszeit des Mutternuklids ist hier halb so groß wie die des Tochternuklids.

Grundlagen der Gammaskpektrometrie

In diesem Kapitel werden die grundlegenden Prinzipien für die Gammaskpektrometrie erläutert. Es erfolgt zunächst eine Darstellung der Wechselwirkung von Gammastrahlung mit Materie sowie des Aufbaus eines entsprechenden Detektors. Desweiteren werden die Kalibrierung des Detektors und die Spektralanalyse für die Aktivitätsabschätzung beschrieben.

2.1. Wechselwirkung von Gammastrahlung mit Materie

Da die zu messende Gammastrahlung mit dem Kristall des Halbleiterdetektors in Wechselwirkung tritt, ist es wichtig, die verschiedenen Wechselwirkungsprozesse von energiereicher Strahlung mit Materie zu betrachten. Zu den wichtigsten gehören der Photoeffekt, der Comptoneffekt und der Paarbildungseffekt.

2.1.1. Photoeffekt

Der Photoeffekt tritt auf, wenn ein energiereiches Photon mit einem gebundenen Elektron eines Atoms in Wechselwirkung tritt. Hierbei wird das Photon vollständig absorbiert. Die kinetische Energie des Elektrons ergibt sich aus der Differenz der Photonenenergie und der Bindungsenergie: $E_{\text{kin}} = E_{\gamma} - E_{\text{Bind}}$. Durch die übertragende Energie verlässt das Elektron die Hülle des Atoms, was zu einer Ionisierung des Atoms führt. Desweiteren kann ein gebundenes Elektron höherer Energie unter Aussendung eines Fluoreszenzphotons die freigewordene „Lücke“ auffüllen [Gil08]. Bei dem Fluoreszenzphoton handelt es sich um charakteristische Röntgenstrahlung, welche wiederum weitere Atome anregen oder ionisieren kann.

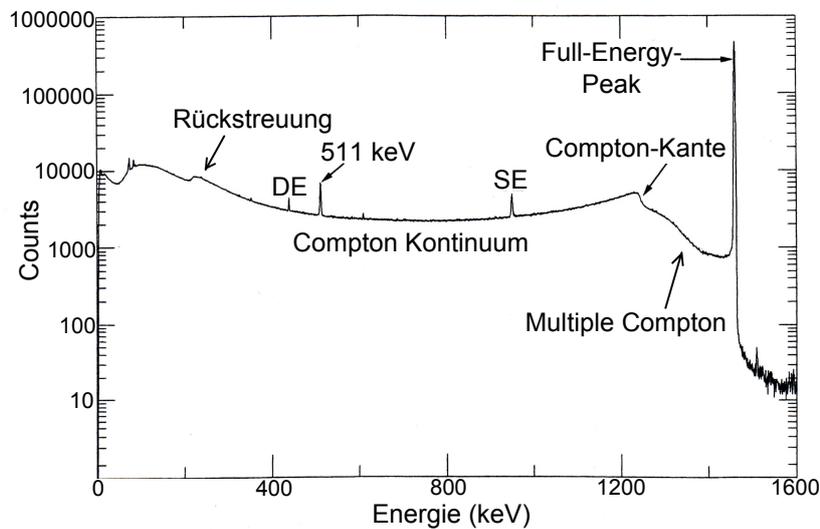


Abbildung 2.1.: Spektrum von ^{40}K mit dem charakteristischen Full-Energy-Peak (1461 keV) und dem Comptonkontinuum. (DE: double escape, SE = single escape) [Kno99], bearbeitet.

2.1.2. Comptoneffekt

Die elastische Streuung eines Photons mit einem Elektron in der Außenhülle eines Atoms wird als Comptoneffekt bezeichnet. Hierbei wird nur ein Teil der Photonenenergie übertragen, sodass sich das gestreute Photon γ' und das Elektron e nach der Streuung in einem bestimmten Winkel θ zueinander weiterbewegen. Die kinetische Energie des Elektrons beträgt [Gil08]:

$$E_e = E_\gamma - E_{\gamma'} \quad (2.1)$$

$$= E_\gamma - E_\gamma \cdot \frac{1}{1 + \frac{E_\gamma}{m_0c^2}(1 - \cos(\theta))} \quad (2.2)$$

Im Spektrum ist der Comptoneffekt als Kontinuum zu erkennen, da die auf das Elektron übertragene Energie in Abhängigkeit zum Streuwinkel θ kontinuierlich verläuft. Bei einem Streuwinkel von $\theta = 180^\circ$ (Rückstreuung) wird der größt mögliche Energiebetrag vom Photon an das Elektron übertragen. Im Spektrum ist hier die sogenannte Comptonkante zu erkennen, nach der die Counts mit steigender Energie abfallen bis dann bei der charakteristischen Energie des Eingangsphotons der Full-Energy-Peak

auftritt, der die gesamte Energie des Photons beinhaltet (siehe Abbildung 2.1). Zurückgestreute Photonen können auch detektiert werden: Im Spektrum ist an der niederenergetischen Grenze des Comptonkontinuums ein Rückstreuungsspek zu erkennen.

Das sogenannte Peak-to-Compton-Verhältnis beschreibt das Verhältnis zwischen dem Photopeak vom ^{60}Co (1332,5 keV) und seinem Comptonhintergrund. Es ist eine charakteristische Größe für den Detektor, die aussagt, wie gut kleinere Peaks im Hintergrund eines großen Photopeaks zu erkennen sind. Das Verhältnis liegt bei dem für diese Arbeit verwendeten Detektor bei 58:1.

2.1.3. Paarbildungseffekt

Bei einer Photonenenergie von mehr als 1022 keV kann der Paarbildungseffekt auftreten, deutlich relevant wird er jedoch erst ab ungefähr 2000 keV. Tritt ein hochenergetisches Photon in Wechselwirkung mit dem Coulombfeld eines Atomkern, kann es sich in ein Elektron-Positron-Paar umwandeln. Die charakteristische Grenzenergie entspricht der doppelten Ruhemasse eines Elektrons (bzw. eines Positrons): $2m_0c^2 = 1022 \text{ keV}$. Höhere Photonenenergie wird in kinetische Energie der entstandenen Teilchen umgewandelt:

$$E_{\text{kin},e^-} + E_{\text{kin},e^+} = E_\gamma - 2m_0c^2 \quad (2.3)$$

Das Positron annihiliert mit einem weiteren Elektron unter Emission zweier Photonen mit jeweils der charakteristischen Energie von $E_\gamma = 511 \text{ keV}$. Im Gammaskpektrum ist in diesem Fall ein Annihilationspeak bei dieser Energie zu erkennen. Entkommt eines der beiden Photonen aus dem Detektor (*single escape*), so fehlen im Spektrum 511 keV in Relation zum Full-Energy-Peak. Aus diesem Grund tritt bei $E_\gamma - 511 \text{ keV}$ ein weiterer kleinerer Peak auf. Entkommen beide Photonen (*double escape*), so fehlen 1022 keV. Diese Phänomene sind im Spektrum in Abbildung 2.1 deutlich zu erkennen.

In Abbildung 2.2 sind die Wirkungsquerschnitte gegenüber der Photonenenergien aufgetragen, jeweils für die drei Wechselwirkungsprozesse in Germanium [L'A03]. Es ist zu erkennen, dass der Photoeffekt bei kleinen Energien bis 160 keV mit Abstand den größten Wirkungsquerschnitt hat; bei größeren Energien überwiegt der Compton-effekt.

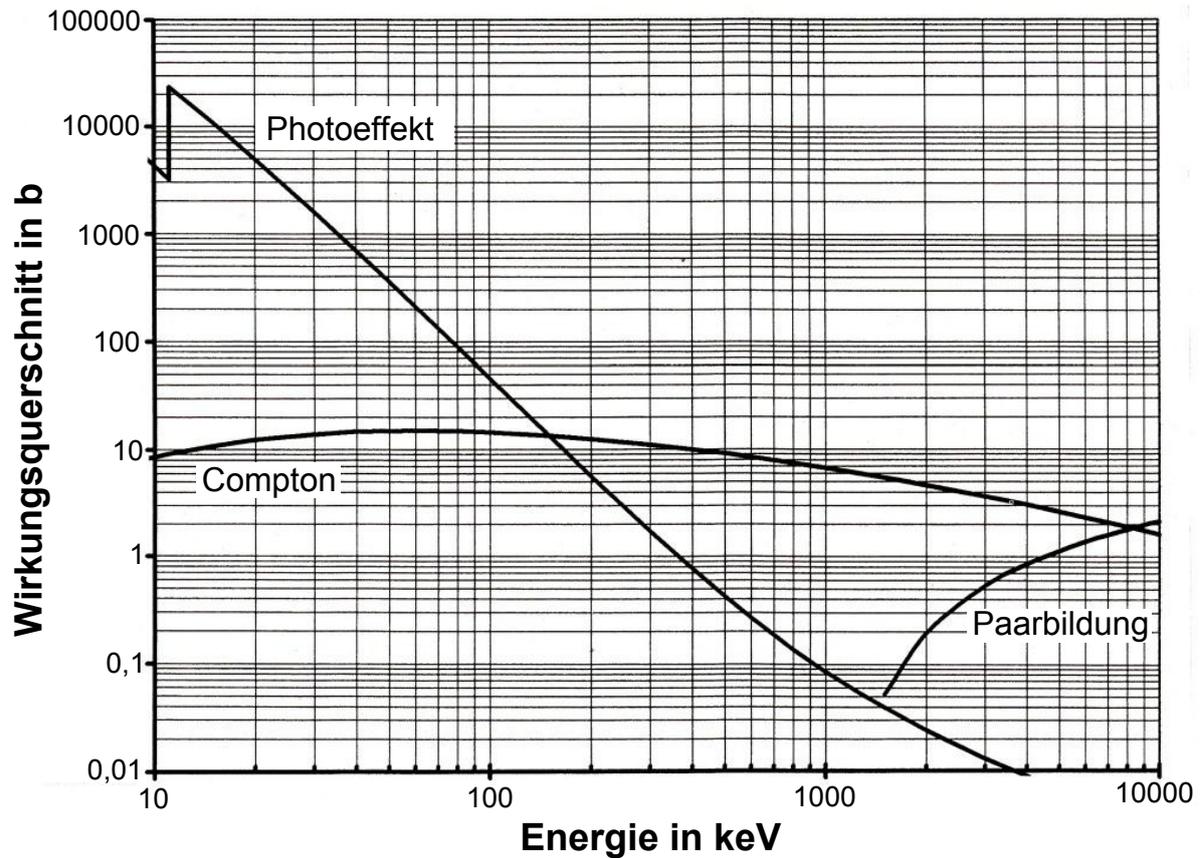


Abbildung 2.2.: Wirkungsquerschnitte in Abhängigkeit der Photonenenergie für Photo-, Compton- und Paarbildungseffekt (aus [L'A03], bearbeitet). Der Wirkungsquerschnitt ist in der Einheit Barn angegeben ($1 \text{ b} = 10^{-24} \text{ cm}^2$).

2.2. Aufbau eines Halbleiterdetektors

Ein Halbleiterdetektor nutzt die Eigenschaft von ionisierender Strahlung freie Ladungsträger zu erzeugen. Halbleiter besitzen im Gegensatz zu Isolatoren eine relativ kleine Bandlücke zwischen Valenz- und Leitungsband (Größenordnung: ~ 1 eV), so dass bereits bei geringer Energiezufuhr freie Ladungsträger erzeugt werden. Aus diesem Grund entsteht schon bei Zimmertemperatur ein kontinuierliches Elektronenrauschen. Für den Betrieb des Detektors ist es notwendig, dieses Rauschen so gut wie möglich zu unterdrücken. Dies geschieht durch eine permanente Kühlung mit flüssigem Stickstoff auf 77 K.

Ein guter Halbleiterkristall besteht in der Regel aus hochreinem Germanium. Trifft nun ein Gammaphoton auf die ladungsträgerarme Zone des Kristallmediums, werden Elektron-Lochpaare erzeugt, bestehend aus einem negativ geladenen Elektron und einer Elektronfehlstelle (Loch), die man aufgrund der fehlenden negativen Ladung als positiv geladen ansehen kann (siehe Abbildung 2.5). Die erzeugten freien Ladungsträger „fließen“ zu den Seiten des Kristalls ab und werden registriert. In Tabelle A.2 im Anhang sind die Kenndaten des verwendeten Germaniumdetektors einzusehen. In Abbildung 2.3 ist der schematische Aufbau des Germaniumdetektors dargestellt [Bun06], Abbildung 2.4 zeigt den verwendeten Detektor. Um unerwünschte Strahlung von außerhalb während der Messung zu minimieren (zum Beispiel kosmische Strahlung oder Gammastrahlung, die von Radionukliden in den Wänden emittiert wird), ist der Detektorkristall von einer dicken Bleiabschirmung umgeben [DIN05].

Ein großer Vorteil dieser Detektion ist die Proportionalität der Anzahl der erzeugten Ladungsträger zur Energie der Gammaphotonen. Halbleiterdetektoren besitzen zudem im Vergleich zu Natriumiodid-Szintillationsdetektoren ein viel höheres Auflösungsvermögen; die Halbwertsbreite der Gammapeaks ist ungefähr um einen Faktor 10 kleiner. Dies lässt sich damit erklären, dass für die Erzeugung der freien Ladungsträger im Halbleitermaterial weniger Energie benötigt wird. Hieraus resultiert eine geringere statistische Schwankungsbreite der Impulshöhe, die zu einer bestimmten Energie gehört [SV04].

Durch das Dotieren (absichtliches Hinzufügen von Fremdatomen) können zwei unterschiedliche Arten von Ge-Kristallen entstehen: Das n-Germanium (N-Typ) entsteht durch Implantation von Donatoratomen. Diese haben ein Elektron mehr in der Außenhülle als Germanium, welches ins Leitungsband abgegeben werden kann. Durch Implantation von Akzeptoratomen mit weniger Elektronen in der Außenhülle entsteht das p-Germanium (P-Typ). Die "Löcher", die durch die fehlenden Elektronen entstehen, wirken wie positive Ladungen.

2. Grundlagen der Gammaspektrometrie

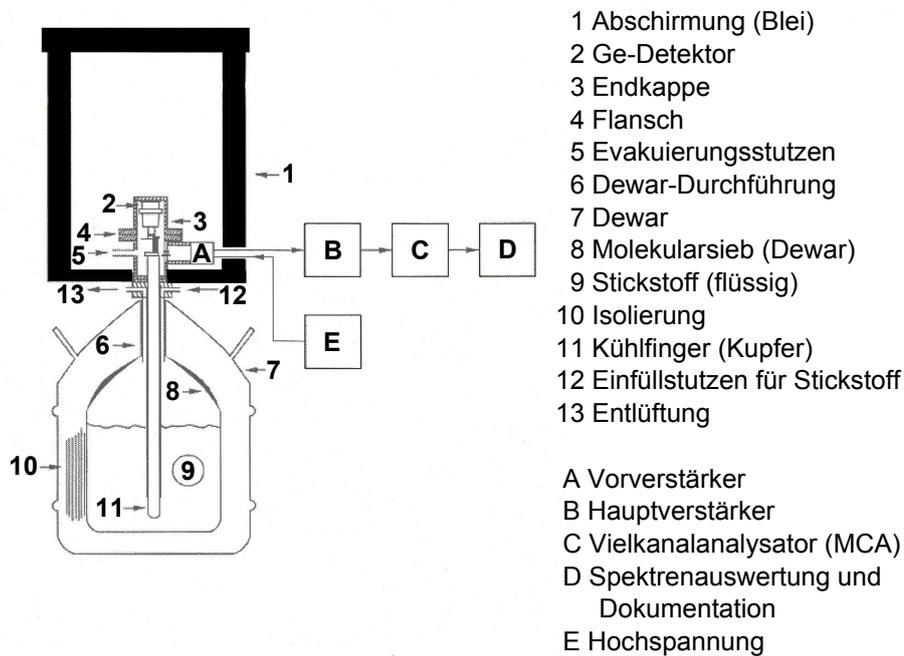


Abbildung 2.3.: Schematischer Aufbau eines Halbleiterdetektors (aus [Bun06], bearbeitet).



Abbildung 2.4.: Halbleiterdetektor mit offener Abschirmung

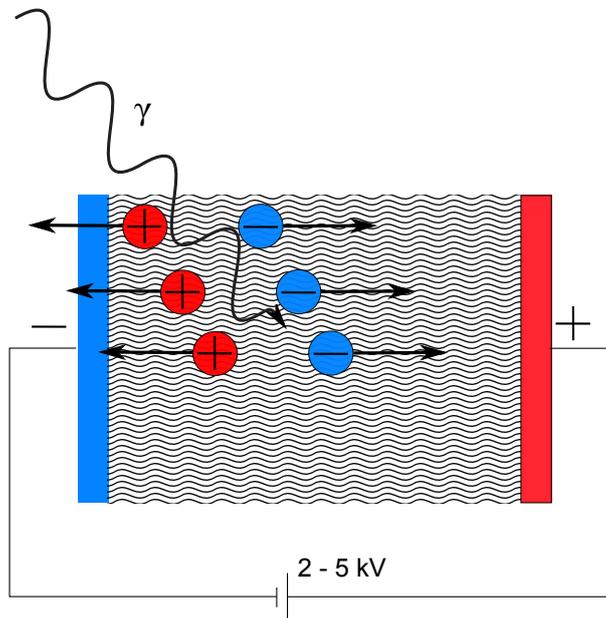


Abbildung 2.5.: Schematische Darstellung eines Elektron-Loch-Paares im Kristall. Durch die angelegte Hochspannung entsteht eine große ladungsträgerarme Zone. Das eintreffende Gammaquant erzeugt freie Ladungsträger, die zu den Seiten abfließen (*collecting*).

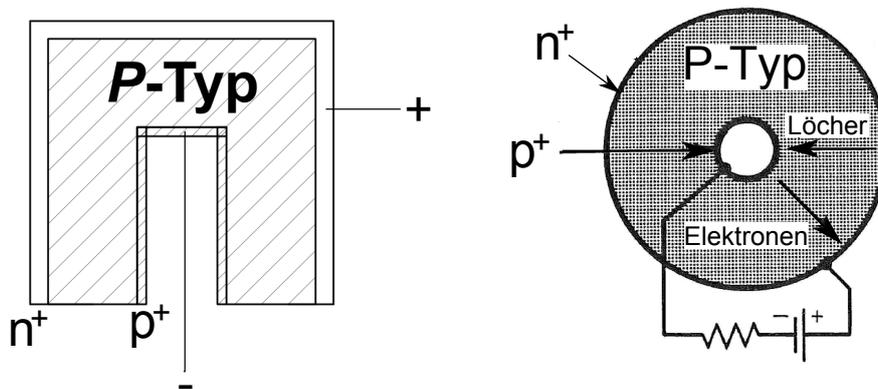


Abbildung 2.6.: Koaxialer P-Typ-Kristall mit einer Hochspannung in Sperrrichtung; schematisch von der Seite (links) und von oben (rechts) [Bir09], [Kno99], bearbeitet. Der schraffierte Bereich stellt die ladungsträgerarme Zone dar, n^+ steht für die Zone mit einer hohen Dotierung negativer Ladung, p^+ für die Zone positiver Ladung.

2. Grundlagen der Gammaskopmetrie

Der Ge-Kristall im Gammadetektor besteht aus einem n- und einem p-Bereich, sodass ein p-n-Übergang entsteht wie bei einer Halbleiterdiode. An den Außenseiten wird eine Hochspannung in Sperrrichtung angelegt, sodass sich die ladungsträgerarme Zone, die als aktives Volumen dient, möglichst über den gesamten Kristall erstreckt.

N-Typ-Kristalle besitzen eine dünnere Totschicht (hochdotierte Schicht zwischen äußerem Rand des Kristall und Anfang der ladungsträgerarmen Zone) als P-Typ-Kristalle. Sie weisen aus diesem Grund auch für niederenergetische Gammaquanten (5 keV bis 100 keV) eine relativ hohe Efficiency auf [L'A03]. P-Typ-Kristalle werden besonders zur Messung hochenergetischer Gammaquanten verwendet. Für die Messungen in dieser Arbeit wurde ausschließlich ein Detektor mit P-Typ-Kristall verwendet (siehe Tabelle A.2 im Anhang), da die untersuchten Nuklide Gammaenergien zwischen 40 keV und 1800 keV aufweisen. In Abbildung 2.6 ist ein koaxialer P-Typ-Kristall mit Hochspannung in Sperrrichtung schematisch dargestellt.

Aufwendige Herstellungsprozesse sorgen für eine hohe Reinheit des Kristalls, also für eine möglichst geringe Fremdatomdichte neben der unerlässlichen absichtlichen Dotierung. Dies ist bei der Detektion wichtig, da eine große Fremdatomanzahl die Leitfähigkeit des Kristalls und somit das Untergrundrauschen erhöhen würde. Hochreine Germanium(HPGe)-Kristalle in Detektoren besitzen eine Reinheit von mehr als 99,999 %.

Trifft nun ein Gammaquant in das aktive Volumen des Kristalls ein, ist die Anzahl n der entstehenden Elektron-Loch-Paare proportional zu der absorbierten Energie des Gammaquants E_{abs} . Es gilt [Bir09]:

$$n = \frac{E_{\text{abs}}}{\epsilon} \propto E_{\gamma} \quad (2.4)$$

mit der Energie ϵ , die für die Elektron-Loch-Paar-Erzeugung benötigt wird.

Ein ladungsempfindlicher Vorverstärker und ein Hauptverstärker erhöhen das Signal der gesammelten Ladungsträger. Desweiteren werden die registrierten Signale durch einen Impulsformer in symmetrische, gauß-förmige Impulse umgewandelt (pulse shaping), welche dann in digitale Information übersetzt und durch einen Vielkanalanalysator (MCA) einem bestimmten Kanal zugeordnet werden abhängig von der Pulshöhe. Die Pulshöhe (Scheitelspannung) ist hierbei proportional zu der im Ge-Kristall deponierten Photonenenergie. Am Computer kann dann das Spektrum näher untersucht werden [Sac11].

2.3. Kalibrierung des Detektors

Um die bei der Gammamessung erhaltenen Signale auswerten und eine Abschätzung für die Aktivität einzelner Radionuklide im Probenmaterial machen zu können, sind drei grundlegende Kalibrierungen durchzuführen [Gil08]:

- Die Energiekalibrierung, die die jeweiligen Energien den einzelnen Kanäle zuordnet.
- Die Halbwertsbreitenkalibrierung, die den Zusammenhang zwischen Peakbreite und Energie schafft.
- Die Efficiencykalibrierung, die das Verhältnis zwischen detektierten und emittierten Photonen in Abhängigkeit der Energie widerspiegelt.

2.3.1. Energiekalibrierung

Nachdem die detektierten Signale in Abhängigkeit ihrer Energie mittels Vielkanalanalysator (MCA) auf unterschiedliche Kanäle verteilt wurden, muss nun den Kanälen die zugehörige Energie zugeordnet werden. Auf diese Weise ist es möglich, Full-Energy-Peaks, die durch vollständige Absorption primärer Gammaquanten erzeugt wurden, aufgrund ihrer charakteristischen Energie den jeweiligen Radionukliden zuzuordnen.

Für die Energiekalibrierung wird ein Standard mit der Multinuklidlösung QCY48 verwendet, die zwölf Radionuklide enthält, deren Gammaenergien im Bereich von 59 bis 1836 keV liegen (siehe Tabelle C.1 im Anhang). Nach Messung des Standards können die entstandenen Full-Energy-Peaks mit den Radionukliden beziehungsweise mit deren bekannten Gammaenergien identifiziert werden und den Kanälen die entsprechenden Energien zugeordnet werden. Der Zusammenhang zwischen Kanalzahl K und zugehöriger Energie $E(K)$ verläuft in guter Näherung linear. Er wird mit einem Polynom zweiten Grades über alle Kanäle angepasst [Bir09]:

$$E(K) = C_0 + C_1 \cdot K + C_2 \cdot K^2. \quad (2.5)$$

2.3.2. Halbwertsbreitenkalibrierung

Die Breite eines Peaks auf halber Höhe seines Maximums wird als Halbwertsbreite bezeichnet (Full Width at Half Maximum - FWHM). Sie ist abhängig von der Auflösung des Detektors und von der Energie des Gammaquants. Die Auflösung eines Detektors wird durch statistische Schwankung der Anzahl der erzeugten Ladungsträger im

Kristall und der Effizienz der Trennung von Elektron-Loch-Paar beeinflusst sowie vom elektronischen Rauschen bei der Signalverarbeitung [Kno99]. Das Auflösungsvermögen beschreibt, wie weit zwei benachbarte Peaks voneinander liegen müssen, damit man sie voneinander unterscheiden kann. Der bei den Messungen verwendete Detektor hat laut Hersteller ein Auslösungsvermögen von 0,875 keV bei 122 keV und von 1,8 keV bei 1,33 MeV. Zur Kalibrierung der Halbwertsbreite in Abhängigkeit zur Kanalzahl wird wie bei der Energiekalibrierung ein Polynom zweiten Grades verwendet.

2.3.3. Efficiencykalibrierung

Da es mehrere Bedeutungen für die *Efficiency* gibt, muss zunächst der Begriff kurz definiert werden. Es wird zwischen der totalen Efficiency, der relativen Efficiency und der Full-Energy-Peak-Efficiency unterschieden.

Die totale Efficiency berücksichtigt alle im Detektor ausgelösten Effekte, wie zum Beispiel Compton- und Paarbildungseffekt, bei denen nicht die vollständige Energie eines Gammaquants vom Detektor absorbiert wird.

Die relative Efficiency wird zum Vergleich der Nachweiswahrscheinlichkeit unterschiedlicher Detektoren verwendet. Sie ist auf die 1332,5keV-Linie von ^{60}Co mittels Messung eines Natriumiodid-Szintillations-Detektors (Kristallgröße: 76 mm \times 76 mm) genormt [Gil08].

Die Full-Energy-Peak-Efficiency berücksichtigt – wie der Name schon sagt – nur die Impulse, die in den entsprechenden Full-Energy-Peak eines Gammaquants einfließen. Sie ist für die Abschätzung der Aktivität der Proben von großer Bedeutung (siehe Abschnitt 2.5) und wird daher im Folgenden kurz *Efficiency* genannt.

Weitere Bezeichnungen für die Efficiency ε sind *Nachweis-* oder *Ansprechwahrscheinlichkeit*, weil sie das Verhältnis zwischen der Rate der detektierten r_{det} und der emittierten Gammastrahlung r_{emit} beschreibt:

$$\varepsilon = \frac{r_{\text{det}}}{r_{\text{emit}}} \quad (2.6)$$

Die Efficiency wird durch verschiedene Faktoren beeinflusst: Sie ist zum einen detektorabhängig und variiert mit der Größe des Kristalls, der Dicke des Detektorfensters und der Totschicht, die die Gammaquanten absorbieren kann, bevor sie das aktive Volumen erreichen [Lül09]. Zum anderen ist die Efficiency von Probe zu Probe unterschiedlich aufgrund verschiedener Messgeometrien sowie unterschiedlicher Proben-dichte, die die Selbstabsorption innerhalb der Probe beeinflusst.

Für die Kalibrierung der Efficiency wird zunächst eine Standard-Probe erstellt, die der zu messenden Probe in Messgeometrie und Probendichte gleicht und mit einer homo-

gen verteilten Menge Multinuklidlösung bekannter Aktivität versetzt wurde. Es bietet sich an, hierfür die Multinuklidlösung QCY48 zu verwenden (siehe Tabelle C.1 im Anhang), da diese Radionuklide enthält, die Gammastrahlen im zu untersuchenden Energiebereich emittieren. Mit der gemessenen Gammarate des Standards und der bekannten Rate der einzelnen Radionuklide im Standard kann nun die Efficiency bei der jeweiligen Energie des Gammaquants ermittelt werden. Um eine kontinuierliche Energieabhängigkeit $\varepsilon(E_\gamma)$ zu erhalten, wird eine Interpolation der Efficiency mithilfe der Jäckel-Westmeier-Funktion [JWP87] durchgeführt:

$$\varepsilon(E_\gamma) = \exp\left(\frac{2}{\pi}(C_1 + C_2x + C_3x^2) \cdot \arctan[\exp(C_4 + C_5x + C_6x^3)] - 25\right) \quad (2.7)$$

mit $x = \ln(E_\gamma)$. Die Parameter C_1, \dots, C_6 sind zur Anpassung der Funktion an die Kalibrierkurve frei wählbar.

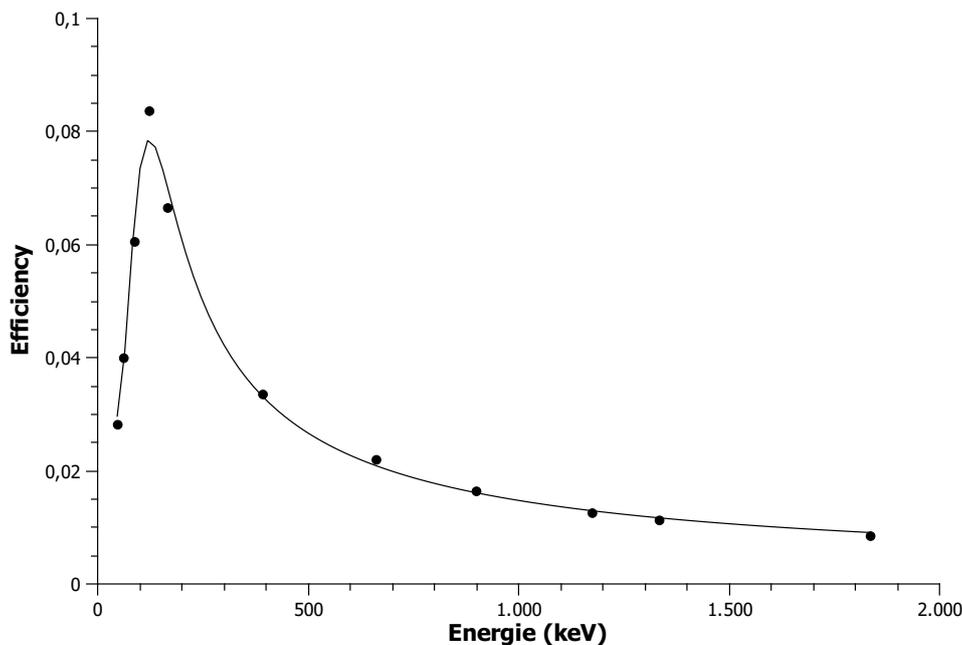


Abbildung 2.7.: Efficiency-Messung mit Jäckel-Westmeier-Fit. Bei dem gemessenen Standard handelt es sich um eine Bodenprobe der Dichte $1,60 \text{ g cm}^{-3}$ in der Ringschalen-Symmetrie.

In Abbildung 2.7 ist eine Jäckel-Westmeier-Funktion dargestellt, die auf die Messwerte eines Bodenprobstandards (mit Multinuklidlösung QCY48) gefittet wurde. Das Maximum der Efficiency liegt bei ungefähr 120 keV. Bei kleinerer Energie überwiegt die

2. Grundlagen der Gammaskpektrometrie

Selbstabsorption, bei größeren Energien transmittieren mehr Photonen durch den Kristall ohne ihre Energie vollständig dort zu deponieren.

Da unterschiedliche Proben in der Regel verschiedene Dichten besitzen, die einen großen Einfluss auf die Selbstabsorption niederenergetischer Gammaphotonen haben, sollte idealer Weise zu jeder Probe ein eigener Standard hergestellt werden. Da dies aber aufgrund vieler Proben aus Zeitgründen nicht möglich war, wurde für die 29 gemessenen Bodenproben eine zusätzliche Dichtekalibrierung durchgeführt. Hierzu wurden Matrizen unterschiedliche Dichte mit Multinuklidlösung versetzt, homogenisiert und die Efficiency abhängig von der Dichte bestimmt. Die Efficiencybestimmung der Bodenproben wurde abhängig von der jeweiligen Schüttdichte an die Efficiency der Dichtekalibrierung angepasst.

In Anhang C wird auf die Herstellung von Kalibrierstandards und die Efficiency-Messung in Ring- und Petrischalen-Symmetrie eingegangen. In Tabelle C.1 sind die Daten zur Multinuklidlösung QCY48 angegeben.

2.4. Messunsicherheiten

Den wahren Wert, zum Beispiel die wahre Aktivität eines Stoffes oder einer Probe, mithilfe einer Messung zu bestimmen, ist aufgrund zahlreicher Messungenauigkeiten unmöglich. Das Ziel einer jeden Messung ist es daher, einen Schätzwert mit entsprechenden Unsicherheiten für den wahren Wert zu ermitteln.

Zur Bestimmung einer Messgröße X kann es von Nutzen sein, mehrere direkte und voneinander unabhängige Messungen durchzuführen. Die Messwerte x_i streuen zufällig nach einer Wahrscheinlichkeitsverteilung. Im Idealfall handelt es sich um eine symmetrische Normalverteilung um einen bestimmten Mittelwert. Bei n Messungen kann in den meisten Fällen der arithmetische Mittelwert \bar{x} als bester Schätzwert angegeben werden [MK99]:

$$\bar{x} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n x_i \quad (2.8)$$

Als Maß der Streuung der einzelnen Messwerte x_i um den Mittelwert \bar{x} wird die empirische Standardabweichung s verwendet. Ihr Quadrat s^2 gibt einen Schätzwert für die Varianz der Wahrscheinlichkeitsverteilung wieder:

$$s^2 = \frac{1}{n-1} \cdot \sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})^2 \quad (2.9)$$

Die Standardabweichung des Mittelwerts \bar{x} wird für die Abschätzung der Unsicherheit $u(x)$ verwendet:

$$u(x) = \frac{s}{\sqrt{n}} = \sqrt{\frac{1}{n(n-1)} \sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})^2} \quad (2.10)$$

Eine zu bestimmende Messgröße Y ist in vielen Fällen nicht direkt messbar, sondern setzt sich als Funktion F von m Eingangsgrößen X_1, \dots, X_m zusammen:

$$Y = F(X_1, \dots, X_m)$$

Die Schätzwerte x_i der einzelnen Eingangsgrößen X_i mit ihren Unsicherheiten $u(x_i)$ können durch eigene Messungen bestimmt werden beziehungsweise aus der Literatur entnommen werden. Sie stehen analog zu ihren Messgrößen in der Beziehung:

$$y = F(x_1, \dots, x_m)$$

Handelt es sich bei den Eingangsgrößen X_i um von einander *unabhängige* Größen, so lässt sich die Unsicherheit des zu bestimmenden Messwerts $u(y)$ mithilfe der Gauß'schen Varianzfortpflanzung ermitteln [GUM95], [DIN96]:

$$u^2(y) = \sum_{i=1}^m \left(\frac{\partial F}{\partial x_i} \right)^2 u^2(x_i). \quad (2.11)$$

2.5. Bestimmung der spezifischen Aktivität

Die *spezifische Aktivität* a beschreibt die Aktivität A einer Probe in Bezug auf ihre Masse m . Sie wird in der Einheit Bq kg^{-1} angegeben. Es ist sinnvoll, Aktivitätsvergleiche verschiedener Umweltproben mit der spezifischen Aktivität durchzuführen, da auf diese Weise der Bezug zur untersuchten Probemasse entfällt. Man vergleicht also jeweils die Aktivität der einzelnen Radionuklide in einem Kilogramm der jeweiligen Probe.

Bei der Abschätzung der spezifischen Aktivitäten der Radionuklide in den Umweltproben wird jeweils die Nettopeakfläche der zugehörigen Gammalinie des entsprechenden Nuklids im Gammaskpektrum verwendet. Einige Radionuklide weisen mehrere Gammalinien auf. In diesem Fall wird der Mittelwert der spezifischen Aktivitäten aus mehreren relevanten Linien bestimmt. Wenn zwischen mehreren Nukliden ein radioaktives Gleichgewicht angenommen werden kann und die Aktivität des Mutternuklids nicht direkt bestimmbar ist (wie zum Beispiel ^{238}U), wird der gewichtete Mittelwert der spezifischen Aktivität der Tochternuklide berechnet und dem Mutternuklid zugeordnet.

Unterschiedliche Radionuklide können Gammalinien besitzen, deren Energien sehr nah beieinander liegen. Die jeweiligen Peaks liegen zum Teil übereinander und beeinflussen die direkte Aktivitätsbestimmung eines Nuklids. Ein Beispiel hierfür ist der 186,10 keV-Peak des ^{226}Ra ($p_\gamma = 3,5\%$), der durch den 185,72 keV-Peak des ^{235}U ($p_\gamma = 57,2\%$) gestört wird. Da diese Störung einen sehr starken Einfluss auf die Aktivitätsbestimmung hat und ihre Genauigkeit erschwert, wird sie im Falle des ^{226}Ra durch seine Folgenuklide ^{214}Pb und ^{214}Bi ermittelt (siehe hierzu Abschnitt 1.5.1).

In Tabelle 2.1 sind die wichtigsten Gammalinien der in dieser Arbeit gemessenen Radionuklide und die jeweiligen Emissionswahrscheinlichkeiten p_γ dargestellt. Abbildung 2.8 zeigt ein Spektrum einer gammaskpektrometrischen Messung.

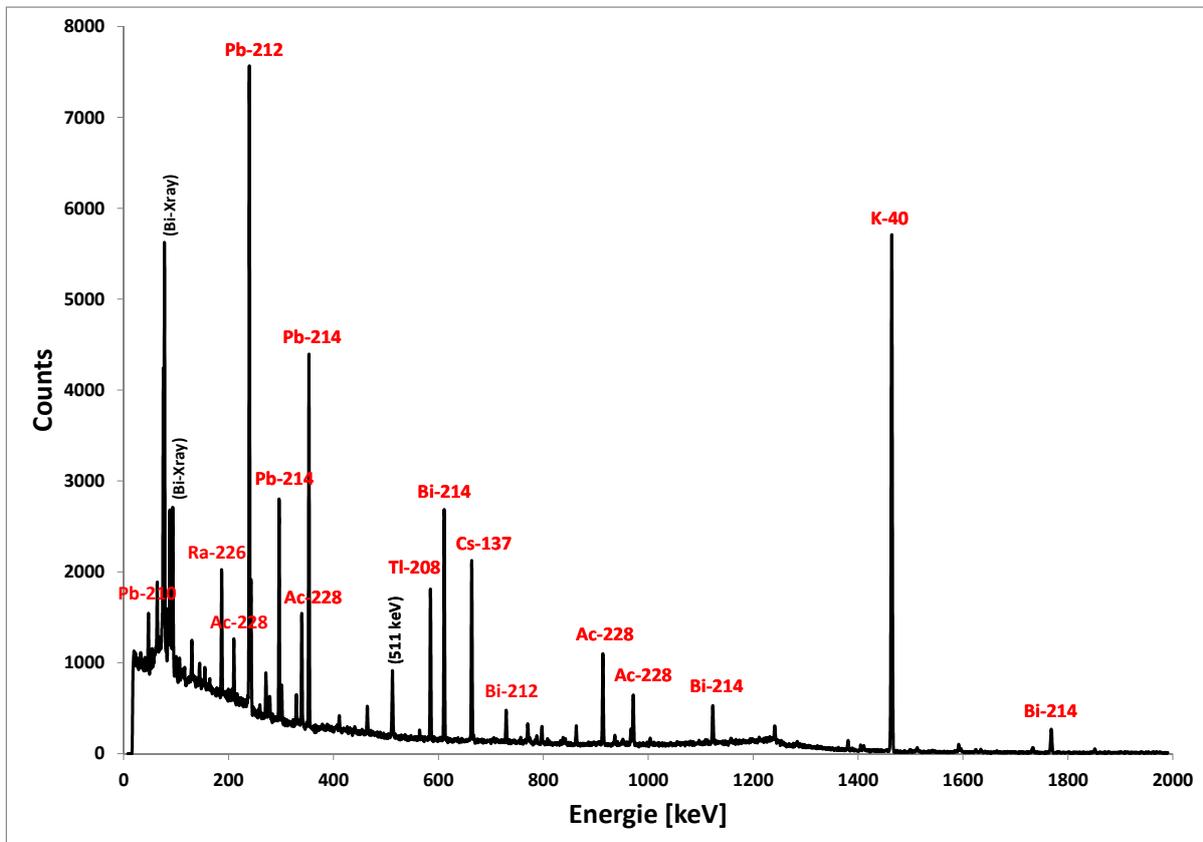


Abbildung 2.8.: Aufgezeichnetes Spektrum mit einer Messdauer von 25 Stunden. Es handelt sich um eine Bodenprobe aus Görlitz (0-5 cm Tiefe).

2.5.1. Spezifische Aktivität bei *ungestörten* Linien

Zur Abschätzung der spezifischen Aktivität eines Radionuklids aus einer ungestörten Gammalinie, wird zunächst ihre Bruttofläche n_b ermittelt (Messzeit t_m). Die Ermittlung erfolgt mit der Gamma Analysis Software *FitzPeaks*, die zudem einen relativen Fehler $u(n_b)$ für die Flächenintegration angibt. Durch Subtraktion der Nulleffektsrate $r_0 = n_0/t_0$ berechnet sich die Nettozählrate r_n des Peaks:

$$r_n = r_b - r_0 = \frac{n_b}{t_m} - \frac{n_0}{t_0} \quad (2.12)$$

mit Bruttozählrate r_b , Nullrate r_0 , Bruttocounts n_b , Nullcounts n_0 , Messzeit der Probenmessung t_m und Messzeit der Nullmessung t_0 .

2. Grundlagen der Gammaskpektrometrie

Die dazugehörige Unsicherheit $u(r_n)$ berechnet sich wie folgt:

$$u(r_n) = \sqrt{\frac{u^2(n_b)}{t_m^2} + \frac{u^2(n_0)}{t_0^2}} \quad (2.13)$$

Die Unsicherheiten der Messzeiten sind verschwindend gering und werden deshalb nicht weiter beachtet.

Bei der Ermittlung der spezifischen Aktivität aus der Nettozählrate r_n muss beachtet werden, dass ein instabiler Kern auf unterschiedliche Weise zerfallen kann. Die Emissionswahrscheinlichkeit p_γ beschreibt daher, wie groß die Wahrscheinlichkeit ist, dass bei einem Kernzerfall ein bestimmtes, charakteristisches Gammaquant emittiert wird. Mithilfe der Kenntnis der Efficiency ε kann die Aktivität A eines Radionuklids in der Probe wie folgt in der Einheit Becquerel abgeschätzt werden:

$$A = \frac{k_s}{\varepsilon p_\gamma} \cdot r_n \quad (2.14)$$

Der dimensionslose Faktor k_s beschreibt eine Summationskorrektur abhängig vom Nuklid. Er beinhaltet die Wahrscheinlichkeit, dass ein Nuklid beim Zerfall zwei Gammaquanten aussendet, die vom Detektor gleichzeitig registriert werden und sich zu einem Summenimpuls addieren. Dementsprechend fehlen die Einzelimpulse in den Einzellinien und müssen korrigiert werden. Die Faktoren k_s wurden aus [DS90] und [Gar01] entnommen und sind in Tabelle 2.1 einzusehen.

Für die spezifische Aktivität a in Bq kg^{-1} muss nun noch die Masse m der Probe in die Formel einfließen:

$$a = \frac{k_s}{m \varepsilon p_\gamma} \cdot r_n \quad (2.15)$$

$$\equiv w \cdot r_n \quad (2.16)$$

Die Unsicherheit der spezifischen Aktivität berechnet sich wie folgt:

$$u(a) = \sqrt{r_n^2 \cdot u_{\text{rel}}^2(w) + w^2 \cdot u^2(r_n)}$$

mit $u_{\text{rel}}^2(w) = u_{\text{rel}}^2(k_s) + u_{\text{rel}}^2(m) + u_{\text{rel}}^2(\varepsilon) + u_{\text{rel}}^2(p_\gamma)$ (2.17)

Im Folgenden werden die einzelnen Messunsicherheiten kurz besprochen.

Tabelle 2.1.: Wichtige Gammalinien der gemessenen Radionuklide, deren Emissionswahrscheinlichkeiten [Bun99], [Bun06] und Summationskorrekturfaktoren [DS90], [Gar01]. Die Nuklide ohne E_γ -Angabe emittieren entweder keine Gammaquanten oder lediglich welche mit zu geringem p_γ und sind durch die direkt danach angegebenen Nuklide zu bestimmen.

Radio-nuklid	Halb-werts-zeit	Energie E_γ in keV	p_γ in %	k_s	Störnuklid (E_γ, p_γ)
U-238	$4,468 \cdot 10^9$ a				
Th-234	24,10 d	63,28	4,1	1,00	Th-232 (63,81 keV; 0,263 %)
Pa-234m	1,17 min	1001,03	0,839	1,00	
Ra-226	1620 a	186,10	3,51	1,00	U-235 (185,72 keV; 57,2 %)
Pb-214	26,8 min	295,22	18,15	1,00	
Bi-214	19,9 min	609,31	44,6	1,08	
Pb-210	22,3 a	46,54	4,25	1,00	
U-235	$7,037 \cdot 10^8$ a				
		143,76	10,96	1,01	Ra-223 (144,23 keV; 3,22 %)
		185,72	57,20	1,00	
Ac-227	21,8 a				
Th-227	18,72 d	235,97	12,3	1,00	
Th-232	$1,41 \cdot 10^{10}$ a				
Ra-228	5,75 a				
Ac-228	6,15 h	911,20	25,80	1,02	
Th-228	1,91 a				
Pb-212	10,64 h	238,63	43,30	1,00	
K-40	$1,277 \cdot 10^9$ a	1460,81	10,67	1,00	
Be-7	53,12 d	477,61	10,32	1,00	
Cs-137	30,17 a	661,66	85,1	1,00	
Cs-134	2,07 a	604,72	97,63	1,11	
		795,86	85,4	1,11	
Ag-110m	249,79 d	657,76	95,3	1,19	
		884,69	73,2	1,20	

Unsicherheit der Nettozählrate

Das verwendete Programm zum Auswerten der Spektren „FitzPeaks Gamma Analysis“ passt automatisch eine Gauß-Kurve an einen Peak an und zieht den Untergrund ab. Es erfolgt eine Integration über die Nettopeakfläche mit dazugehöriger Unsicherheit $u(r_n)$, die aus der Übereinstimmung der Anpassung resultiert.

Unsicherheit der Summationskorrekturfaktoren

Für die Summationskorrekturfaktoren k_s wird eine Unsicherheit von 10 % verwendet, wenn $k_s \neq 1,00$. Für einen Wert von 1,00 wird die Unsicherheit Null gesetzt, da in diesem Fall keine Summationskorrektur nötig ist.

Unsicherheit der Masse

Zur Bestimmung der Masse wird eine Präzisionswaage (Modell 474) der Firma *Kern & Sohn* verwendet mit einer Messanzeige bis 0,1 g. Ihre Messunsicherheit beträgt laut Hersteller 0,2 g. Eine weitere Unsicherheit kann aus einer Unvollständigkeit des Trocknungsprozesses resultieren. Aus diesem Grund wird in dieser Arbeit eine Unsicherheit der Masse von $u(m) = 0,5$ g verwendet.

Unsicherheit der Efficiency

Da die Efficiency sehr stark von der Gammaenergie abhängt und bei kleinen Energien Selbstabsorptionseffekte, die eine genaue Bestimmung erschweren, nicht vernachlässigbar sind, wird die Unsicherheit der Efficiency $u(\varepsilon)$ in drei Intervalle eingeteilt:

$$\begin{aligned}u(\varepsilon < 100) &= 10 \%, \\u(100 < \varepsilon < 200) &= 7 \%, \\u(200 < \varepsilon) &= 5 \%. \end{aligned}$$

Unsicherheit der Emissionswahrscheinlichkeit

Die Emissionswahrscheinlichkeit der Gammalinien der einzelnen Radionukliden p_γ sowie ihre Unsicherheit $u(p_\gamma)$ wurden aus [SS98] entnommen.

2.5.2. Spezifische Aktivität bei gestörten Linien

Liegen die Gammaenergien zweier Nuklide sehr nah beieinander, überlagern sich ihre Beiträge im Spektrum und können nicht mehr eindeutig aufgelöst werden. Bei der Auswertung eines bestimmten Gammapeaks ist daher darauf zu achten, ob der Peak durch andere Gammalinien aus der Probe gestört wird. Die Abschätzung der spezifischen Aktivität wird dadurch ein wenig umfangreicher, da der Einfluss der Störlinien sinnvoll vom auszuwertenden Peak subtrahiert werden muss. Die Formel (2.16) für die spezifische Aktivität muss daher einen zusätzlichen Term erhalten [Bir09]:

$$\begin{aligned}
 a_c &= w \cdot \left(\left(\frac{n_b}{t_m} - \frac{n_0}{t_0} \right) - \frac{n_{n'}}{t_{m'}} \right) \\
 &= w \cdot \left(\left(\frac{n_b}{t_m} - \frac{n_0}{t_0} \right) - \frac{a' \cdot t_m}{w'} \right) \\
 &= w \cdot \left(\frac{n_b}{t_m} - \frac{n_0}{t_0} \right) - \frac{w}{w'} \cdot a' \\
 &= a - \frac{w}{w'} \cdot a'
 \end{aligned} \tag{2.18}$$

Hierbei ist

- a_c die spezifische Aktivität nach Korrektur durch die gestörte Linie,
- a die aus der Linie berechnete spezifische Aktivität bezogen auf die Nukliddaten des zu untersuchenden Nuklids,
- a' die spezifische Aktivität des Nuklids mit der Störlinie,
- n'_n die Nettoimpulszahl in der Störlinie und
- w' der Faktor aus der Gleichung (2.16) bezogen auf die Störlinie.

Die Unsicherheit $u(a_c)$ berechnet sich wie folgt und lässt sich mit Gleichung (2.17) weiter umformen:

$$\begin{aligned}
 u(a_c) &= \sqrt{u^2(a) + u^2\left(\frac{w}{w'}a'\right)} \\
 &= \sqrt{r_n^2 \cdot u^2(w) + w^2 \cdot u^2(r_n) + u^2\left(\frac{w}{w'}a'\right)}
 \end{aligned} \tag{2.19}$$

2.6. Erkennungs-, Nachweis- und Vertrauensgrenzen

Bei Messungen mit geringen Aktivitäten stellt sich oft die Frage, ob ein Messwert aufgrund des Vorhandenseins eines Nuklids in der Probe auftritt oder lediglich auf statistischen Schwankungen des Untergrunds beruht. Auf diese Weise können zwei Fehler entstehen [MK99]:

1. **Fehler 1. Art:** Man nimmt einen Probenbeitrag an, obwohl keiner vorliegt (Irrtumswahrscheinlichkeit: α).
2. **Fehler 2. Art:** Man nimmt keinen Probenbeitrag an, obwohl einer vorliegt (Irrtumswahrscheinlichkeit: β).

Erkennungsgrenze a^* :

Liegt ein Messwert a oberhalb der Erkennungsgrenze a^* , so kann mit einer Irrtumswahrscheinlichkeit von α angenommen werden, dass ein physikalischer Effekt vorliegt. Die Erkennungsgrenze a^* berechnet sich wie folgt [ISO95], [Bir09]:

$$\begin{aligned} a^* &= k_{1-\alpha} \cdot \tilde{u}(0) \\ &= k_{1-\alpha} \cdot w \cdot u(r_n) \\ &= k_{1-\alpha} \cdot w \sqrt{\frac{u^2(N_p)}{t_p^2} + \frac{u^2(N_0)}{t_0^2}} \end{aligned} \quad (2.20)$$

mit der Standardunsicherheit $\tilde{u}(0)$ des wahren Wertes \tilde{a} an der Stelle Null und $w = \frac{k_s}{\epsilon pm}$.

In den Tabellen dieser Arbeit werden Werte unterhalb der Erkennungsgrenze durch „< a^* “ ersetzt.

Nachweisgrenze $a^\#$:

Überschreitet die ermittelte Aktivität eines Nuklids die Nachweisgrenze $a^\#$, so kann das Nuklid mit einer Irrtumswahrscheinlichkeit von β als „in der Probe nachgewiesen“

angesehen werden. Für die Nachweisgrenze gilt:

$$\begin{aligned}
 a^\# &= a^* + k_{1-\beta} \cdot \tilde{u}(a^\#) \\
 &= a^* + k_{1-\beta} \cdot \sqrt{\left(\frac{a^\# \cdot u_{\text{rel}}(w)}{w}\right)^2 + w^2 u^2(r_n)} \\
 &= a^* + k_{1-\beta} \cdot \sqrt{\left(\frac{a^\# \cdot u_{\text{rel}}(w)}{w}\right)^2 + \left(\frac{a^*}{k_{1-\alpha}}\right)^2}
 \end{aligned} \tag{2.21}$$

Die Auflösung nach $a^\#$ ergibt für die Nachweisgrenze:

$$a^\# = \frac{2a^*}{1 - \left(k \cdot \frac{u_{\text{rel}}(w)}{w}\right)^2} \tag{2.22}$$

mit den Quantilen der Standardnormalverteilung $k = k_{1-\alpha} = k_{1-\beta}$.

Für die Auswertung in dieser Arbeit wurde $k_{1-\alpha} = k_{1-\beta} = 1,65$ gesetzt, was einer Fehlerwahrscheinlichkeit von $\alpha = \beta = 5\%$ entspricht [MK99].

Die Grenzen für *gestörte* Gammalinien (siehe Abschnitt 2.5.2) werden wie folgt berechnet:

Erkennungsgrenze:

$$a_c^* = k \cdot \sqrt{\left(\frac{a'}{w'}\right)^2 u^2(w) + w^2 u^2(r_n) + u^2\left(\frac{w}{w'} a'\right)} \tag{2.23}$$

Nachweisgrenze:

$$a_c^\# = 2 \frac{a_c^* + \frac{1}{w'w} a' k^2 u_{\text{rel}}^2(w)}{1 - k^2 \left(\frac{u_{\text{rel}}(w)}{w}\right)^2} \tag{2.24}$$

Vertrauensgrenzen $a^\triangleleft, a^\triangleright$

Liegt mit der Überschreitung der Erkennungsgrenze ($a^* < a$) ein physikalischer Effekt vor, so lässt sich ein Vertrauensbereich mit unterer a^\triangleleft und oberer Vertrauensgrenze

2. Grundlagen der Gammaskpektrometrie

a^* angeben. In diesem Bereich liegt der wahre Wert der Messgröße \tilde{a} mit einer Wahrscheinlichkeit von $1 - \gamma$. Für die Vertrauensgrenzen gilt [MK99], [DIN03]:

$$a^{\triangleleft} = a - k_p \cdot u(a) \text{ mit } p = \omega \cdot \left(1 - \frac{\gamma}{2}\right) \quad (2.25)$$

$$a^{\triangleright} = a + k_q \cdot u(a) \text{ mit } q = 1 - \omega \cdot \frac{\gamma}{2} \quad (2.26)$$

$$\text{mit } \omega = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{a/u(a)} dz \cdot e^{-\frac{z^2}{2}}$$

Für Messwerte a mit vergleichsweise kleiner Unsicherheit, $u(a) \ll a$, gilt näherungsweise:

$$a^{\triangleleft} = a - k_{1-\frac{\gamma}{2}} \cdot u(a) \quad (2.27)$$

$$a^{\triangleright} = a + k_{1-\frac{\gamma}{2}} \cdot u(a) \quad (2.28)$$

Für die Irrtumswahrscheinlichkeit γ wird in dieser Arbeit 5 % gewählt, dies entspricht einem Wert von $k_{1-\frac{\gamma}{2}} = 1,96$ [DIN03].

2.7. Bestimmung der Depositionsdichte

Die Depositionsdichte d beschreibt die Aktivität eines Radionuklids in einer Bodensäule unterhalb einer Fläche. Sie wird vorzugsweise für künstliche Nuklide berechnet, die sich zunächst an der Oberfläche des Erdbodens ablagern und mit der Zeit in tiefere Erdschichten gelangen. Die Depositionsdichte ist daher ein Maß dafür, wie hoch die Aktivität ist, die diese Fläche durchdrungen hat. Sie wird in der Einheit Becquerel pro Quadratmeter (Bq m^{-2}) angegeben [Bot00]. Berechnet man eine Depositionsdichte für *natürliche* Radionuklide, so stellt sie das radioaktive Inventar im betrachteten Profil dar.

Für die Berechnung der Depositionsdichte ist es sinnvoll, eine Bodensäule bis zu einer bestimmten Tiefe in mehrere Schichten einzuteilen. Die Depositionsdichte d_i einer solchen Schicht beträgt dann [Lül09]:

$$d_i = a_i \cdot h_i \cdot \rho_{\text{Sch},i} \cdot \frac{\rho_{\text{Sch},i}}{\rho_{\text{Lag},i}} \quad (2.29)$$

Hierbei ist a_i die spezifische Aktivität des untersuchten Nuklids in der Bodenschicht, h_i ist die Dicke der Schicht und $\rho_{\text{Sch},i}$ ist die Schüttdichte. Das Verhältnis der Schüttdichte zur Lagerungsdichte $\frac{\rho_{\text{Sch}}}{\rho_{\text{Lag}}}$ fließt als zusätzlicher Faktor in die Formel ein, um die mit der Schüttdichte gemessene Aktivität der Probe auf den Boden mit der Lagerungsdichte in der Natur zu übertragen.

Die Depositionsdichte der gesamten Bodensäule d_{BS} erhält man dann durch das Aufsummieren der einzelnen Schichten:

$$d_{\text{BS}} = \sum_i d_i \quad (2.30)$$

Die Unsicherheit errechnet sich nach der Gauß'schen Varianzfortpflanzung, Formel (2.11), wie folgt:

$$u(d_i) = \sqrt{a_i^2 \cdot h_i^2 \cdot \rho_{\text{Sch},i} \cdot u^2\left(\frac{\rho_{\text{Sch},i}}{\rho_{\text{Lag},i}}\right) + a_i^2 \cdot h_i^2 \cdot u^2(\rho_{\text{Sch},i}) \cdot \left(\frac{\rho_{\text{Sch},i}}{\rho_{\text{Lag},i}}\right)^2 + a_i^2 \cdot u^2(h_i) \cdot \rho_{\text{Sch},i} \cdot \left(\frac{\rho_{\text{Sch},i}}{\rho_{\text{Lag},i}}\right)^2 + u^2(a_i) \cdot h_i^2 \cdot \rho_{\text{Sch},i} \cdot \left(\frac{\rho_{\text{Sch},i}}{\rho_{\text{Lag},i}}\right)^2} \quad (2.31)$$

$$u(d_{\text{BS}}) = \sum_i u(d_i) \quad (2.32)$$

2.8. Qualitätssicherung

Radon-Dichtigkeit

In allen drei natürlichen Zerfallsreihen gibt es ein Radon-Isotop. In der Uran-Radium-Reihe ist es das ^{222}Rn mit einer Halbwertszeit von 3,8 Tagen, in der Uran-Actinium-Reihe das ^{219}Rn mit einer Halbwertszeit von 3,9 Sekunden und in der Thorium-Reihe das ^{220}Rn mit 55,6 Sekunden [Bun99]. Das Radon nimmt eine besondere Rolle ein, da es das einzige gasförmige Nuklid innerhalb der Zerfallsreihe ist. Die Gasatome können sehr leicht entweichen und zu einer Störung des radioaktiven Gleichgewichts führen. Es ist daher notwendig, die Probenschale gasdicht zu versiegeln, um keine Verfälschung der Aktivität der Radon-Folgeprodukte zu erhalten.

2. Grundlagen der Gammaskpektrometrie

Am wichtigsten ist die Gasdichtigkeit bei der Bestimmung des Gleichgewichts zwischen ^{226}Ra und ^{214}Pb bzw. ^{214}Bi der Uran-Radium-Reihe. Da die einzige direkte Gammalinie vom ^{226}Ra (186,10 keV) durch eine vom ^{235}U gestört wird, ist es für die genaue Bestimmung der ^{226}Ra -Aktivität besser, die Abschätzung über die vielen Gammalinien der kurzlebigen Folgenuklide ^{214}Pb und ^{214}Bi nach Einstellung des radioaktiven Gleichgewichts vorzunehmen. Das ^{222}Rn befindet sich jedoch in der Zerfallsreihe zwischen diesen Nukliden und sollte daher möglichst nicht aus der Probenschale entweichen. Bei der Präparation der Ringschalen wird der entsprechende Deckel zur Versiegelung mit Montagekleber luftdicht verklebt. Proben in Petrischalen werden zusätzlich in raddondichter Folie eingeschweißt.

In Abbildung 2.9 sind die spezifischen Aktivitäten der Tochternuklide ^{214}Pb bzw. ^{214}Bi gegenüber der vom ^{226}Ra (durch den gestörten Direkt-Peak bei 186,10 keV bestimmt) aufgetragen. Es handelt sich um die in dieser Arbeit in Ringschalen gemessenen Bodenproben, bei denen die ^{226}Ra -Aktivität über der Nachweisgrenze liegt. Es ist deutlich zu erkennen, dass sich ein Gleichgewicht zwischen den Nukliden eingestellt hat, da das Verhältnis der beiden Aktivitäten bei 1 liegt. Dies ist eine Bestätigung für die Dichtigkeit der Ringschalen.

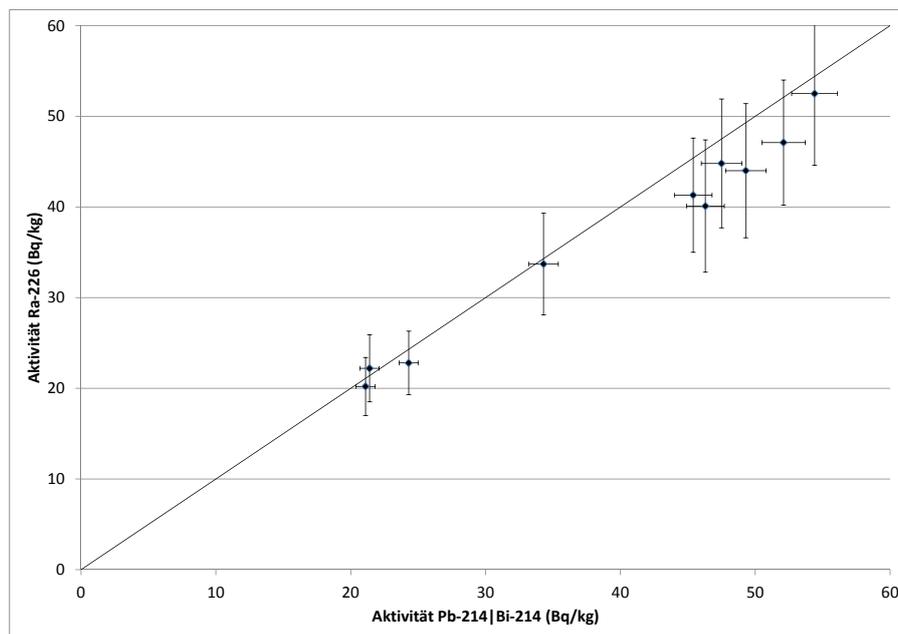


Abbildung 2.9.: Spezifische Aktivität der Tochternuklide ^{214}Pb bzw. ^{214}Bi gegenüber der vom ^{226}Ra (durch den gestörten Direkt-Peak bei 186,10 keV bestimmt). Die lineare Trendlinie spiegelt ein Verhältnis von 1:1 wider.

Messung und Auswertung der Umweltproben aus Deutschland

3.1. Untersuchung von Bodenproben aus Deutschland

Bei dem untersuchten Material handelt es sich um Bodenproben, die an sechs verschiedenen Stationen des Deutschen Wetterdienstes (DWD) entnommen wurden: Schleswig, Hannover (Langenhagen), Potsdam, Görlitz, Nürnberg und Lahr. Die Koordinaten und die Entnahmedaten sind aus Tabelle 3.1 zu entnehmen. Die geographische Lage der Orte in Deutschland ist in Abbildung 3.2 einzusehen. Die Proben wurden im Rahmen des BMBF-geförderten Projektes „Großflächiger Eintrag, Inventare und Transport von Iod-129 und Iod-127 in Deutschland“, das am IRS (Uni Hannover) bearbeitet wird, entnommen und für die gamma-spektrometrische Untersuchung der vorliegenden Arbeit zur Verfügung gestellt.

Für die Entnahme des Probenmaterials wurden mithilfe von Bohrstöcken verschiedenen Durchmessers auf einer vorher abgesteckten Fläche (ca. 10 m × 12 m) jeweils elf bis zwölf Bodensäulen entnommen, die tiefenabhängig zu Mischproben zusammengefügt wurden. Die Erstellung eines Tiefenprofils erfolgte in folgende Bereiche: 0-5 cm, 5-10 cm, 10-20 cm, 20-30 cm und 30-50 cm.

In Tabelle 3.1 ist die Korngrößenverteilung der Bodenproben dargestellt. Diese wurde jeweils mit der Pipettmethode nach Köhn und einer Nasssiebung aus der 5-10 cm-Schicht ermittelt [DIN02]. Die Körnung teilt sich in drei Korngrößen auf: Sand (63-2000 µm), Schluff (2-63 µm) und Ton (< 2 µm).

In Tabelle B.8 im Anhang sind die Anteile der organischen Substanz in den Bodenschichten und der pH-Wert angegeben. Die organische Substanz wurde mit einem C/N-Analysator ermittelt [GS08], der pH-Wert mittels potentiometrischer Bestimmung [DN06].

3. Messung und Auswertung der Umweltproben aus Deutschland

Abbildung 3.1.: Entnahmeort, -datum und Korngrößenverteilung der Bodenproben aus Deutschland. Letztere wurde jeweils aus der 5-10 cm-Schicht mittels Pipettmethode nach Köhn und Nasssiebung bestimmt.

Entnahmeort	Entnahmedatum	Koordinaten		Korngrößenverteilung		
		nördl. Breite	östl. Länge	Sand %	Schluff %	Ton %
Schleswig	04.04.2011	54° 31' 38,80"	9° 32' 53,92"	66,0	23,3	10,8
Hannover	14.04.2011	52° 27' 41,86"	9° 42' 01,73"	60,6	29,8	10,2
Potsdam	05.04.2011	52° 22' 50,72"	13° 03' 44,00"	92,1	5,9	2,0
Görlitz	26.05.2011	51° 09' 44,56"	14° 57' 01,23"	45,7	41,7	12,6
Nürnberg	25.05.2011	49° 30' 11,29"	11° 03' 19,05"	71,2	11,2	17,6
Lahr	11.05.2011	48° 21' 51,48"	7° 49' 39,81"	32,1	52,6	15,3

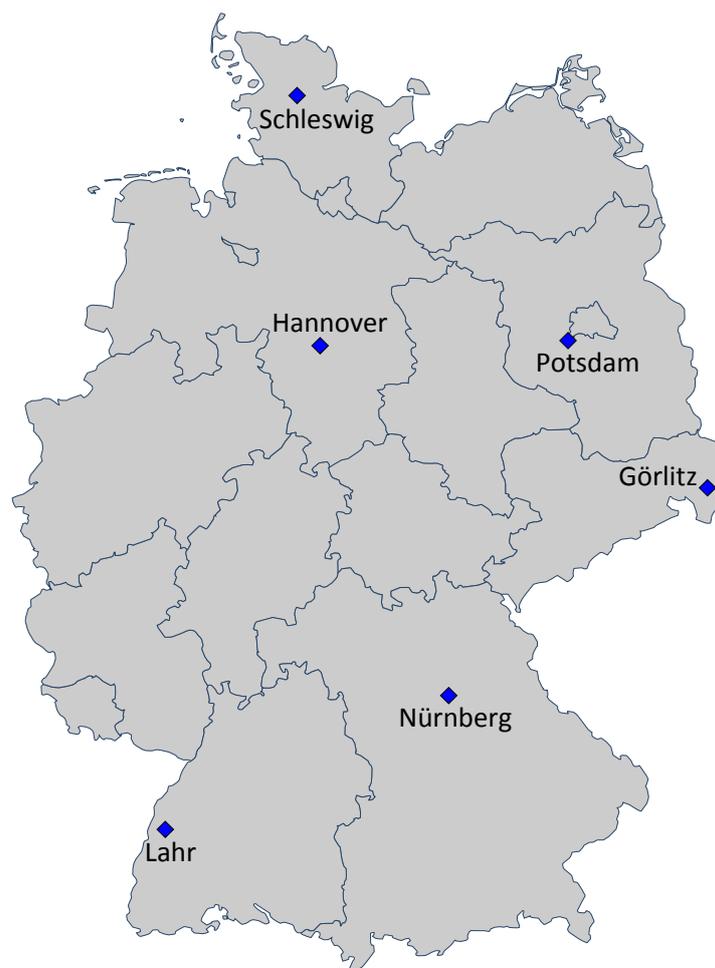


Abbildung 3.2.: Entnahmeorte der Bodenproben

3.1.1. Vorbereitung der Bodenproben für die gammaskopimetrische Untersuchung

Die Aufbereitung und Messung der Bodenproben orientieren sich an den *Messanleitungen für die Überwachung der Radioaktivität in der Umwelt und zur Erfassung aus kerntechnischen Anlagen* [Bun06]. Das Material wurde zerkleinert und gesiebt; dabei wurde der Skelettanteil größer 2 mm abgetrennt. Die Trocknung erfolgte bei einer Temperatur von 105 °C über mindestens 48 Stunden bis zur Gewichtskonstanz. Anschließend wurde das Material jeweils in Ringschalen mit einem Fassungsvermögen von ≈ 280 ml abgefüllt. Um eine homogene Schüttdichte zu erhalten, wurden die Ringschalen während des Abfüllens für kurze Zeit auf einen Rüttler gestellt. Zum Schluss wurde der passende Deckel mit Montagekleber luft- und radondicht auf den Ringschalen fixiert. Insgesamt wurden 29 Bodenproben hergestellt: 6 Entnahmeorte mit je 5 Tiefen; bei der Probe aus Schleswig aus der Tiefe 30-50 cm war zu wenig Material vorhanden, um eine Ringschale zu füllen.

Nach einer Equilibrierungszeit von mindestens drei Wochen zur Einstellung des durch Radon-Emanation gestörten $^{226}\text{Ra}/^{214}\text{Pb}$ -Gleichgewichts (siehe hierzu Abschnitt 1.5.1) wurden die Proben gammaskopimetrisch gemessen.

Dichtebestimmung

Die Kenntnis der Dichte der Probenmatrix ist aus zwei Gründen wichtig: Zum einen für die Dichtekalibrierung zur Bestimmung der Efficiency, insbesondere für niedrig energetische Gammastrahlung (^{210}Pb), zum anderen für die Bestimmung der Depositionsdichte (in Bq m^{-2}) aus der spezifischen Aktivität (in Bq kg^{-1}). Es ist zudem zwischen Schüttdichte ρ_{Sch} , die die Dichte der Matrix innerhalb der Messgeometrie beschreibt, und Lagerungsdichte ρ_{Lag} , die die Dichte der Matrix in ihrer natürlichen Umgebung beschreibt, zu unterscheiden (siehe hierzu Abschnitt 2.7).

Zur Bestimmung der Schüttdichte ρ_{Sch} wurde zunächst das Fassungsvermögen von zehn Ringschalen bis zu einer bestimmten Höhe mithilfe von destilliertem Wasser bestimmt, dessen Dichte bei 19 °C Raumtemperatur $0,998203 \text{ g ml}^{-1}$ beträgt [KT93]. Hieraus wurde ein Durchschnittsvolumen von 283,0 ml bestimmt.

Die Einfüllung der 29 Bodenproben in die Ringschalen erfolgte jeweils bis zu der zuvor definierten Höhe, um ein einheitliches Volumen zu gewährleisten. Hierbei wurden die Becher zeitweise auf einen Rüttler gestellt, um eine homogene Schüttdichte zu erhalten. Danach wurde jeweils die Masse der Matrix bestimmt. Aus Masse und festem Volumen konnte nun die Schüttdichte der jeweiligen Probenmatrix bestimmt werden.

Aufgrund der Ungenauigkeit die definierte Füllhöhe bei unterschiedlichen Ringschalen einzuhalten, wurde eine relativ große Unsicherheit für das Volumen von $u(\rho_{\text{Sch}}) = 4\%$ angenommen. Die Unsicherheit der Masse beträgt $u(m) = 0,5\text{ g}$.

3.1.2. Gammaskpektrometrische Analyse der Bodenproben

Bei der gammaskpektrometrischen Untersuchung der 29 Bodenproben konnten in allen Proben die Radionuklide ^{40}K , ^{226}Ra , ^{228}Ra und ^{228}Th nachgewiesen werden. Auch das künstliche Radionuklid ^{137}Cs konnte bis auf eine Ausnahme in allen gemessenen Bodentiefen nachgewiesen werden. Nuklide der Uran-Actinium-Reihe wurden in keiner der Bodenproben oberhalb der Erkennungsgrenze detektiert. Eine gesamte Übersicht der Messergebnisse ist in den Tabellen B.1 bis B.8 im Anhang zu finden. Im Folgenden werden die Messergebnisse der einzelnen Radionuklide ausführlich diskutiert. Anschließend folgt eine Abschätzung der Dosisrate durch externe Bodenstrahlung.

Kalium (^{40}K)

Bei der ^{40}K -Aktivität ist eine große Variabilität abhängig vom Entnahmeort zu erwarten, die auf den unterschiedlichen natürlichen Kaliumgehalt der Böden zurückzuführen ist. Natürliches Kalium enthält zu 0,0117 % das instabile Isotop ^{40}K . Das Kalium sitzt direkt in der Struktur der Bodenmatrix und befand sich bereits bei der Bodenbildung im Ausgangsgestein. Kaliumatome können auch an der Oberfläche des Bodenmaterials adsorbieren, was besonders bei tonmineralhaltigem Boden der Fall ist [SS10].

Das ^{40}K weist in jeder Probe mit Abstand die höchste spezifische Aktivität aller detektierten Radionuklide auf. Der ^{40}K -Gehalt des Bodens variiert deutlich mit dem Entnahmeort und ist hauptsächlich abhängig vom Bodenmaterial. In Abbildung 3.3 ist eine Übersicht der spezifischen ^{40}K -Aktivitäten im Tiefenprofil dargestellt.

Die Bodenproben aus Potsdam weisen mit durchschnittlich $(235 \pm 3)\text{ Bq kg}^{-1}$ in den ersten 50 cm Tiefe den geringsten ^{40}K -Wert auf. Es handelt sich hierbei um einen Boden mit einem sehr hohen Sandgehalt (92,1 %), der wenig natürliche Radionuklide enthält. Die Proben aus Nürnberg weisen mit $(962 \pm 8)\text{ Bq kg}^{-1}$ den höchsten Durchschnittswert auf. Der Spitzenwert liegt hier bei $(1092 \pm 9)\text{ Bq kg}^{-1}$. Der Grund hierfür ist der hohe Tonanteil in diesem Boden, der mit 17,6 % den größten Wert in allen gemessenen Böden besitzt.

Auch das Tiefenprofil des Kaliums unterscheidet sich in den einzelnen Proben. Im Boden aus Lahr, Potsdam und Hannover bleibt die spezifische ^{40}K -Aktivität in den einzelnen Tiefenschichten bis 50 cm relativ konstant. Der Mittelwert über alle Schichten

3.1. Untersuchung von Bodenproben aus Deutschland

beträgt zum Beispiel in Lahr (538 ± 11) Bq kg⁻¹; die Standardabweichung beträgt in diesem Fall lediglich 2 % vom Mittelwert. Bei den Böden aus Potsdam und Hannover beträgt sie jeweils 4 %.

In den Proben aus Görlitz nimmt die ⁴⁰K-Aktivität ab 20 cm Tiefe deutlich ab; in den Proben aus Nürnberg nimmt die Aktivität mit größerer Tiefe deutlich zu (von (825 ± 7) Bq kg⁻¹ in der 0-5 cm-Schicht bis (1092 ± 9) Bq kg⁻¹ in der 20-30 cm-Schicht). Auch bei den Proben aus Schleswig nimmt die spezifische Aktivität des ⁴⁰K mit der Tiefe zu. Diese Effekte sind auf die Variabilität des natürlichen Kaliumgehalts und die natürlichen Mischprozesse zurückzuführen. Der Anteil zwischen Standardabweichung und Mittelwert der ⁴⁰K-Aktivität aller Schichten ist aufgrund der abnehmenden beziehungsweise zunehmenden Aktivität mit der Tiefe relativ groß. Er beträgt bei den Böden aus Görlitz und Nürnberg jeweils 12 %.

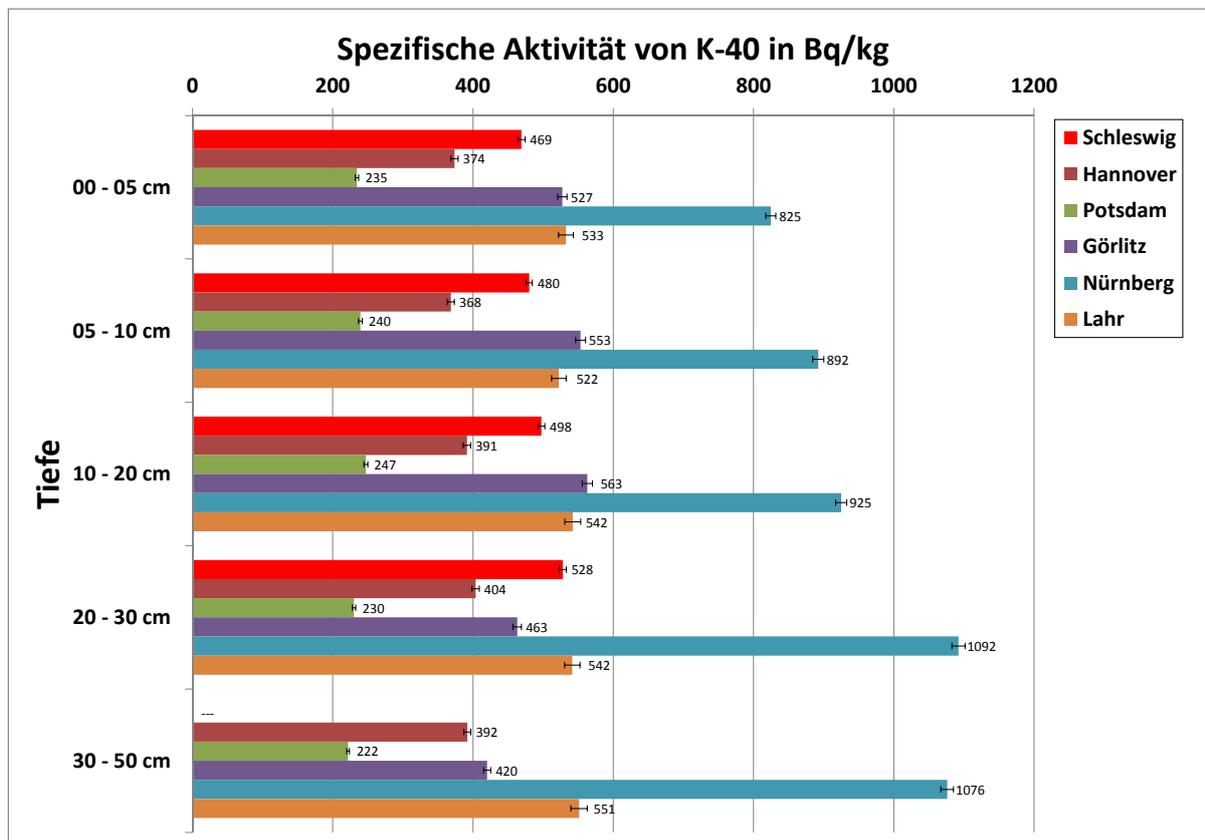


Abbildung 3.3.: Graphische Darstellung der Tiefenprofile von ⁴⁰K in den Bodenproben. Für die Probe „Schleswig 30-50cm“ liegt aus Materialmangel kein Wert vor.

3. Messung und Auswertung der Umweltproben aus Deutschland

Sämtliche hier untersuchten Bodenproben wurden auf Messfeldern des Deutschen Wetterdienstes entnommen. Diese liegen auf Rasenflächen in unmittelbarer Umgebung der jeweiligen Stationen. Die Flächen werden extensiv gepflegt, das heißt, gemäht, jedoch nicht vertikutiert oder gedüngt. Eine Beeinflussung der Kaliumgehalte durch Düngung kann daher für die letzten Jahre und Jahrzehnte ausgeschlossen werden. Da jedoch die Vorgeschichte der Flächen weitgehend unbekannt ist und angenommen werden muss, dass sie in einigen Bereichen aus aufgeschüttetem Material bestehen, könnte dies eine Erklärung für die Tiefenprofile vom ^{40}K darstellen.

Uran (^{238}U), Radium (^{226}Ra , ^{228}Ra) und Thorium (^{232}Th)

Innerhalb eines Entnahmeortes gleichen sich die spezifischen Aktivitäten der Radium-Isotope ^{226}Ra (aus der ^{238}U -Reihe) und ^{228}Ra (aus der ^{232}Th -Reihe) sowie die des ^{228}Th (aus der ^{232}Th -Reihe) in guter Näherung jeweils in allen gemessenen Bodenproben und sind über die verschiedenen Schichten relativ konstant. Die durchschnittlichen Werte liegen für ^{226}Ra zwischen $(9,1 \pm 0,4) \text{ Bq kg}^{-1}$ (Potsdam) und $(49,9 \pm 1,5) \text{ Bq kg}^{-1}$ (Lahr). Der ^{226}Ra -Gehalt zeigt lediglich in den Proben aus Nürnberg und Lahr einen leichten Anstieg mit zunehmender Tiefe.

Dass sich die spezifischen Aktivitäten von ^{228}Ra und ^{228}Th jeweils in guter Näherung gleichen, ist zu erwarten. ^{228}Th ist eine Tochter des ^{228}Ra mit einer kleineren Halbwertszeit und daher befinden sich die Nuklide im säkularem Gleichgewicht (siehe Abschnitt 1.5.1).

Die Radium-Isotope ^{226}Ra und ^{228}Ra stehen aufgrund ihrer unterschiedlichen Zerfallsreihen nicht in direktem Zusammenhang. Sie weisen dennoch in allen gemessenen Bodenproben ähnliche Aktivitäten auf, sodass ihr Aktivitätsverhältnis näherungsweise 1 beträgt.

Die spezifische Aktivität des ^{238}U liegt in fast allen Proben leicht unter der des Tochternuklids ^{226}Ra . Sie weist beim Boden aus Potsdam mit durchschnittlich $(8,9 \pm 4,0) \text{ Bq kg}^{-1}$ den geringsten Wert. Dies lässt sich dadurch begründen, dass dieser Boden einen hohen Quarzsandgehalt (92,1 %) besitzt und einen sehr niedrigen Tongehalt (2,0 %) und damit sehr wenige Tonminerale, die Uran binden. Auch andere Nuklide der natürlichen Zerfallsreihen weisen in diesem Boden erwartungsgemäß geringe Aktivitäten auf; der Durchschnittswert für ^{226}Ra liegt zum Beispiel bei $(9,1 \pm 0,4) \text{ Bq kg}^{-1}$ und ist damit der geringste Wert in allen gemessenen Bodenproben.

Die ^{238}U -Aktivität wurde durch die gestörte Gammalinie des Tochternuklids ^{234}Th bestimmt, welche zudem eine relativ geringe Emissionswahrscheinlichkeit besitzt (siehe Tabelle 2.1). Aus diesem Grund besitzt die abgeschätzte spezifische Aktivität eine relativ hohe Unsicherheit und wird daher hier nicht weiter diskutiert.

Blei (^{210}Pb)

Beim Blei-Isotop ^{210}Pb ist eine Unterscheidung zwischen „supported“ und „non-supported“ sinnvoll. „Supported“ Blei entsteht aus der natürlichen Zerfallsreihe des ^{238}U , das sich im Boden befindet. „Non-supported“ Blei wird durch externe Quellen hinzugefügt. Es kann zum Beispiel durch die Auswaschung von ^{222}Rn aus der Luft ein erhöhter ^{210}Pb -Gehalt auf der Bodenoberfläche auftreten. Dieses zusätzliche „non-supported“ Blei führt zum Ungleichgewicht zwischen ^{226}Ra und ^{210}Pb .

Auch in den Messungen spiegelt sich dieses Phänomen wider: Die spezifische Aktivität von ^{210}Pb weist an allen Entnahmeorten in der obersten Schicht die höchsten Werte auf. Im Bodenprofil von Görlitz liegt zum Beispiel die spezifische Aktivität von ^{210}Pb in der obersten Schicht bei $(44,1 \pm 11,2) \text{ Bq kg}^{-1}$ und sinkt mit zunehmender Tiefe ab. Ab 10 cm Tiefe bleibt der Wert in guter Näherung konstant ($(25,3 \pm 7,3) \text{ Bq kg}^{-1}$ im Durchschnitt). Im Vergleich dazu zeigen die Aktivitäten des Mutternuklids ^{226}Ra über alle gemessenen Schichten keine großen Schwankungen: $(27,6 \pm 0,9) \text{ Bq kg}^{-1}$ in der obersten Schicht und ein Durchschnittswert von $(26,9 \pm 0,9) \text{ Bq kg}^{-1}$ in den vier tieferen Schichten.

Bei fast allen Bodenproben ist zu erkennen, dass sich die ^{210}Pb -Aktivität in tieferen Schichten an die über alle Schichten relativ konstante ^{226}Ra -Aktivität annähert; die Ausnahme bilden die Proben aus Nürnberg und Lahr, bei denen die ^{226}Ra -Aktivität mit zunehmender Tiefe leicht ansteigt. Da die ^{210}Pb -Aktivität in allen obersten Schichten (0-5 cm) mit Abstand die höchsten Werte ausweist, handelt es sich in diesem Fall um zusätzliches „non-supported“ Blei.

Caesium (^{137}Cs)

Für die Verteilung von künstlichen Radionukliden (hier: ^{137}Cs), die sich zunächst an der Oberfläche ablagern und dann in tiefere Bodenschichten vordringen, sind zwei physikalische Effekte verantwortlich: die Diffusion und die Konvektion [BK04].

Bei der Diffusion dringen die Atome und Moleküle aufgrund ihrer thermischen Eigenbewegung in tiefere Bereiche vor. Da dieser Prozess sehr langwierig ist, gelangen nur sehr wenige Atome in die tiefen Schichten. Die meisten verteilen sich in den oberen Schichten.

Die Konvektion beschreibt den Transport der Radionuklide durch Flüssigkeitsströmungen, zum Beispiel Regenwasser, in tiefere Schichten. Die Teilchen gelangen auf diese Weise tiefer in den Boden und lagern sich im Idealfall normalverteilt ab. Je nach Strömung und Bodenbeschaffenheit variiert die Breite der Verteilung.

3. Messung und Auswertung der Umweltproben aus Deutschland

Es kann zudem zu einer Vermischung beider Effekte und somit beider Profile kommen. Je nach Niederschlagslage oder Beschaffenheit des Bodens überwiegt der eine oder der andere Effekt. Desweiteren ist auch bei vom Menschen unberührtem Erdboden eine sonstige Vermischung der Bodenschichten, zum Beispiel durch wühlende Bodentiere, nicht auszuschließen.

In Abbildung 3.4 sind die Messwerte für ^{137}Cs grafisch dargestellt. Bei nahezu allen Proben ist eine deutliche Aktivitätsabnahme des ^{137}Cs mit steigender Tiefe zu erkennen. Das Tiefenprofil kann ein Beispiel für eine Verteilung sein, bei der die Diffusion gegenüber der Konvektion überwiegt. Es ist jedoch wahrscheinlicher, dass das ^{137}Cs beim Transport mit dem Sickerwasser mit organischen und mineralischen Partikeln in Wechselwirkung tritt und es daher zu einer Retardation des Nuklids im Oberboden kommt. Bei den Proben aus Görlitz und Lahr beginnt eine merkbare Abnahme erst in Tiefen von 20-30 cm. Der höchste Wert der ^{137}Cs -Aktivität in den gemessenen Bodenproben wurde in der obersten Schicht (0-5 cm) der Testfläche in Potsdam gemessen. Er beträgt $(41,8 \pm 2,1) \text{ Bq kg}^{-1}$.

Die ^{137}Cs -Gesamtaktivität in den ersten 50 cm liegt bei allen Proben zwischen 41 Bq kg^{-1} und 54 Bq kg^{-1} . Die Depositionsdichten, die sich daraus ergeben, sind in Tabelle 3.2 dargestellt.

Die relativ hohe ^{137}Cs -Aktivität in der obersten Schicht des Bodens aus Potsdam und die starke Abnahme in tieferen Schichten ist zunächst auffallend, da dieser Boden einen sehr hohen Sandgehalt (92,1 %, siehe Tabelle 3.1) aufweist, welcher den Nuklidtransport in tiefere Schichten unterstützt [SM66]. Eine Akkumulation von ^{137}Cs an organischen Substanzen (Gräser, Moose) kann ein Grund für die erhöhte ^{137}Cs -Aktivität an der Oberfläche sein. Hierfür spricht zudem der geringe Kaliumgehalt des Bodens aus Potsdam. Da Caesium und Kalium Homologe mit ähnlichem chemischen Verhalten sind, können Pflanzen aufgrund des geringen Kaliumangebots im Boden vermehrt Caesium aufnehmen. Der Anteil der organischen Substanz weist in der obersten Schicht des Bodens aus Potsdam mit 3,3 % den zweithöchsten Wert aller gemessenen Proben auf (Höchster Wert: 3,4 %, Schleswig 0-5 cm, siehe Tabelle B.8 im Anhang).

Die Aufnahme von ^{137}Cs in Gräsern ist zudem vom Kaliumgehalt des Bodens abhängig. Nach [SM66] ist der ^{137}Cs -Gehalt von Gras auf Boden mit einem niedrigen Gehalt an austauschbarem Kalium und einem hohen Gehalt an Lehm etwa zehnmal größer als derjenige auf dem Boden mit dem hohem Kaliumgehalt.

Zwar handelt es sich beim Boden aus Potsdam nicht um lehmhaltigen Boden, jedoch weist dieser Boden die geringste ^{40}K -Aktivität von allen Proben auf (im Durchschnitt $(235 \pm 3) \text{ Bq kg}^{-1}$).

Das Vorkommen des künstlichen Nuklids ^{137}Cs in Umweltproben ist im Wesentlichen auf den globalen Fallout von oberirdischen Kernwaffenversuchen sowie auf den Un-

3.1. Untersuchung von Bodenproben aus Deutschland

fall von Tschernobyl zurückzuführen. Aufgrund der Probenentnahme auf nicht ökonomisch genutzten Flächen, ist der Tiefentransport von auf der Oberfläche abgelagerten Nukliden (wie ^{137}Cs) ausschließlich auf natürliche Prozesse, wie Auswaschung, Durchwurzelung oder wühlende Bodentiere, zurückzuführen.

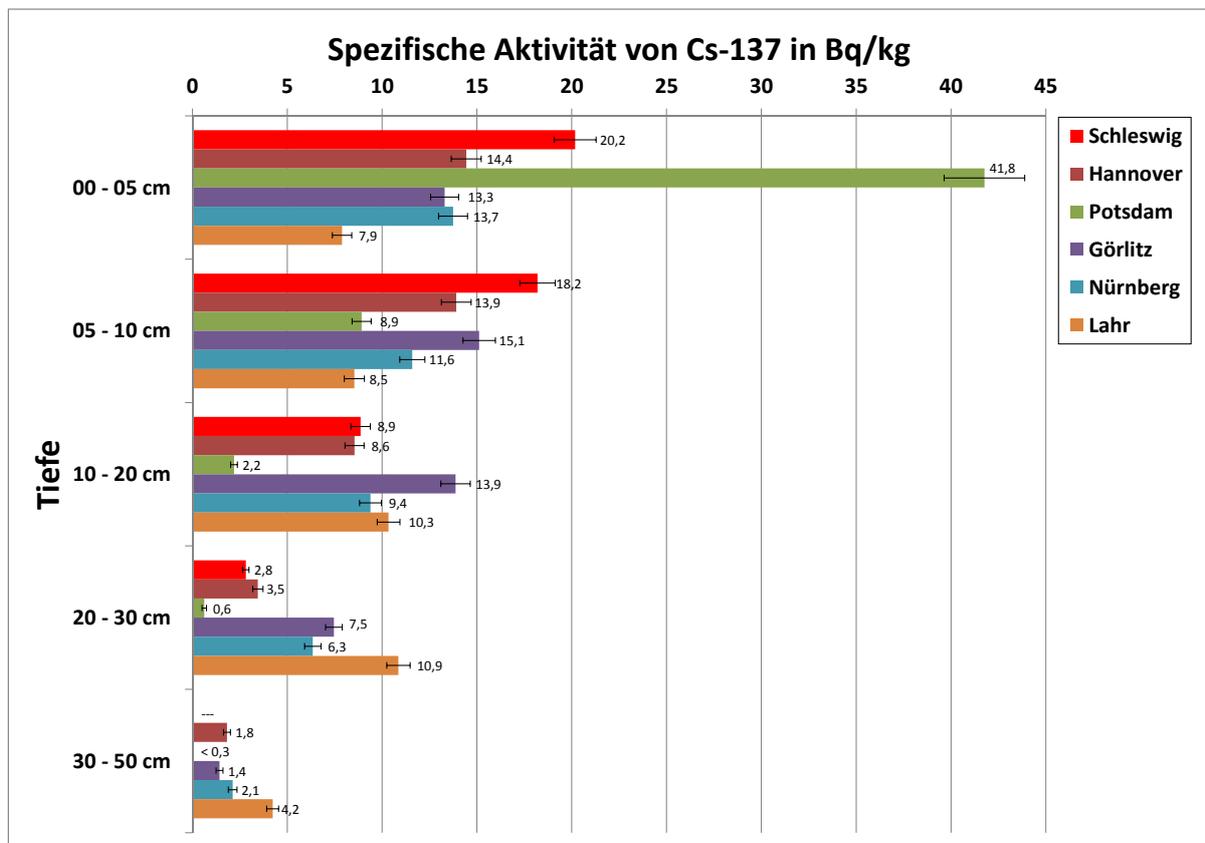


Abbildung 3.4.: Graphische Darstellung der Tiefenprofile von ^{137}Cs in den Bodenproben. Für die Probe „Schleswig 30-50cm“ liegt aus Materialmangel kein Wert vor. Werte mit „<“ geben die Erkennungsgrenze an.

Dosisratenabschätzung

Im Folgenden wird eine Abschätzung der Dosisrate durch Bodenstrahlung durchgeführt. Hierbei werden die natürlichen Radionuklide sowie das ^{137}Cs als künstliches berücksichtigt.

Zur Berechnung der effektiven Dosisrate $\dot{E}_{\text{ter, nat}}$ für einen Erwachsenen über einer unendlichen Halbebene mit homogenen massenbezogenen Aktivitäten der natürlichen Radionuklide ^{40}K , ^{238}U und ^{232}Th gibt [UNS00] folgende Formel an:

$$\dot{E}_{\text{ter, nat}}[\text{nSv h}^{-1}] = 0,030 \cdot A_{\text{K-40}}[\text{Bq kg}^{-1}] + 0,420 \cdot A_{\text{Th-232}}[\text{Bq kg}^{-1}] \quad (3.1)$$

$$+ 0,310 \cdot A_{\text{U-238}}[\text{Bq kg}^{-1}] \quad (3.2)$$

Für die Berechnung wurden die spezifischen Aktivitäten über die einzelnen Tiefenschichten gemittelt. Zudem wurde für die spezifische Aktivität von ^{232}Th der Wert des Tochternuklids ^{228}Ra verwendet. In Tabelle 3.1 sind die ermittelten effektiven Dosisraten dargestellt.

Tabelle 3.1.: Effektive Dosisrate durch terrestrische Strahlung aus den spezifischen Aktivitäten der natürlichen Radionuklide ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K .

Ort	Dosisrate (nSv h ⁻¹)
Schleswig	28
Hannover	27
Potsdam	11
Görlitz	34
Nürnberg	54
Lahr	50

Für die Abschätzung der Rate der effektiven Dosis durch externe Strahlung von einem mit ^{137}Cs kontaminierten Boden wird in [SSK04] der Dosisratenkoeffizient

$$g_{b,r}^{\text{EF}} = 5,3 \cdot 10^{-16} \text{ Sv} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{m}^2 \cdot \text{Bq}^{-1}$$

angegeben. Dies entspricht in guter Näherung einem Verhältnis von

$$1 \text{ kBq m}^{-2} \hat{=} 2 \text{ nSv h}^{-1}. \quad (3.3)$$

In Tabelle 3.2 sind die Depositionsdichten von ^{137}Cs bei einer Bodensäule von 50 cm sowie daraus die resultierende effektive Dosisrate dargestellt. Die Depositionsdichten

Tabelle 3.2.: Depositionsdichten von ^{137}Cs bei einer Bodensäule von 50 cm und daraus resultierende effektive Dosisrate durch terrestrische Strahlung.

Ort	d_{BS} (kBq m^{-2})	$u(d_{BS})$ (kBq m^{-2})	Dosisrate (nSv h^{-1})
Schleswig	4,33	0,63	9
Hannover	4,19	0,62	8
Potsdam	4,43	0,70	9
Görlitz	5,81	0,84	12
Nürnberg	3,73	0,54	7
Lahr	4,49	0,61	9

liegen zwischen $(4,19 \pm 0,62) \text{ kBq m}^{-2}$ (Hannover) und $(5,81 \pm 0,84) \text{ kBq m}^{-2}$ (Görlitz). Es ergeben sich effektive Dosisraten zwischen 8 und 12 nSv h^{-1} .

Die Gesamtdosisrate aus den ausgewählten natürlichen Nukliden und dem ^{137}Cs ergibt sich aus der Summe der Gleichungen:

$$\dot{E}_{\text{ges}} = \dot{E}_{\text{ter, nat}} + \dot{E}_{\text{Cs-137}} \quad (3.4)$$

Die abgeschätzten Werte für die Gesamtdosisrate sind in Tabelle 3.3 dargestellt. Sie liegen zwischen 20 und 61 nSv h^{-1} .

Tabelle 3.3.: Gesamte effektive Dosisrate durch terrestrische Strahlung aus den abgeschätzten Aktivitäten der natürlichen Radionuklide ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K sowie des künstlichen Radionuklids ^{137}Cs .

Ort	Dosisrate (nSv h^{-1})
Schleswig	37
Hannover	36
Potsdam	20
Görlitz	46
Nürnberg	61
Lahr	59

Radiologische Beurteilung

Nach Empfehlung der Strahlenschutzkommission (SSK) kann ein Gelände ohne Einschränkung genutzt werden, wenn die mittlere spezifische Aktivität der Nuklide der Uran-Radium-Reihe unter einem Wert von 200 Bq kg^{-1} liegt [SSK91]. Liegt der Wert zwischen 200 und 1000 Bq kg^{-1} kann das Gelände forstwirtschaftlich oder als Grünland landwirtschaftlich genutzt werden, sollte jedoch nicht mehr als Ackerland genutzt werden. Es muss dazu gesagt werden, dass sich diese Richtwerte hauptsächlich auf vom Uranbergbau kontaminierte Flächen beziehen.

Die abgeschätzten spezifischen Aktivitäten der Radionuklide der Uran-Radium-Reihe liegen in allen Bodenproben deutlich unter 200 Bq kg^{-1} . Die untersuchten Profile weisen keine radiologischen Auffälligkeiten auf.

Es ist jedoch anzumerken, dass es sich bei den Proben um einzelne Stichproben handelt, mit denen man keine generelle Aussage über die Gesamtfläche oder Region treffen kann und die daher nicht repräsentativ sind.

3.2. Untersuchung einer Partikelsammlung aus bodennaher Luft

3.2.1. Vorbereitung der Filter

Bei den Filtern handelt es sich um runde Glasfaserfilter der Firma *Sartorius* mit einem Durchmesser von 25,7 cm und einer Dicke von ca. 0,55 mm (Art.-Nr. 13400-257-K). Diese wurden jeweils für eine Woche in eine entsprechende Pumpenapparatur im Freien in einer Höhe von 1,5 m über dem Boden gelegt. Innerhalb dieser Woche wurden 10.000 m³ Luft durch die Apparatur gesogen, wobei sich Staubpartikel und Aerosole auf dem Filterpapier absetzten. Die Filter waren bei ihrer Entnahme deutlich mit einer schwarzen Partikelschicht überzogen. Nach dem Entfernen aus der Pumpenapparatur wurden die Filter jeweils auf ein Achtel gefaltet und in eine Plastiktüte gelegt, die zugeschweißt wurde. Die gammaspektrometrische Messung erfolgte jeweils nach mehr als vier Wochen. Insgesamt wurden 13 Filter in einem Zeitraum von Oktober 2011 bis März 2012 gemessen. Die Koordinaten der Partikelsammlung liegen bei 52° 23' 39,42" nördlicher Breite und 9° 42' 7,30" östlicher Länge.

Aufgrund des relativ langen Zeitraums zwischen Filterentnahme und Messung, ist es wichtig, bei der ermittelten Aktivität von Radionukliden mit einer kurzen Halbwertszeit eine Rückrechnung bis zum Entnahmezeitpunkt des Filters vorzunehmen, das heißt, bis zum Ende des Sammelvorgangs. Desweiteren zerfallen diese Radionuklide bereits während des Sammelzeitraums von einer Woche, sodass man nicht von einem linearen Zuwachs des Nuklids auf dem Filter ausgehen kann. Im Falle der Partikelsammlung in bodennaher Luft trifft dies vor allem auf das Radionuklid ⁷Be mit der relativ kurzen Halbwertszeit von $\tau = 53,29$ Tagen zu.

Die Radioisotope ²²²Rn und ²²⁰Rn des flüchtigen Radons, die nach [Bun10] in Deutschland die höchste Aktivitätskonzentration in bodennaher Luft aufweisen (²²²Rn: 5 bis 30 Bq m⁻³; ²²⁰Rn: 0,15 Bq m⁻³ im Durchschnitt), können mit dieser Messmethode nicht nachgewiesen werden und werden aus diesem Grund hier nicht weiter berücksichtigt.

3.2.2. Gammaspektrometrische Analyse der Filter

Mit der gammaspektrometrischen Untersuchung konnten auf den meisten Filtern vier Radionuklide nachgewiesen werden: ⁷Be, ²¹⁰Pb, ⁴⁰K und ¹³⁷Cs. In Abbildung 3.5 sind die ermittelten Aktivitätskonzentrationen grafisch dargestellt. Die entsprechenden Messwerte sind in Tabelle B.9 im Anhang zu finden. Die Aktivitätskonzentrationen (in

3. Messung und Auswertung der Umweltproben aus Deutschland

der Einheit Becquerel pro Kubikmeter Luft) beziehen sich jeweils auf das Entnahmedatum des Filters. In der Abbildung sind zusätzlich die Aktivitätsbereiche eingezeichnet, die die Physikalisch-Technische Bundesanstalt (PTB) Braunschweig bei Messungen von bodennaher Luft seit 1963 ermittelt hat [PTB12a], [PTB12b].

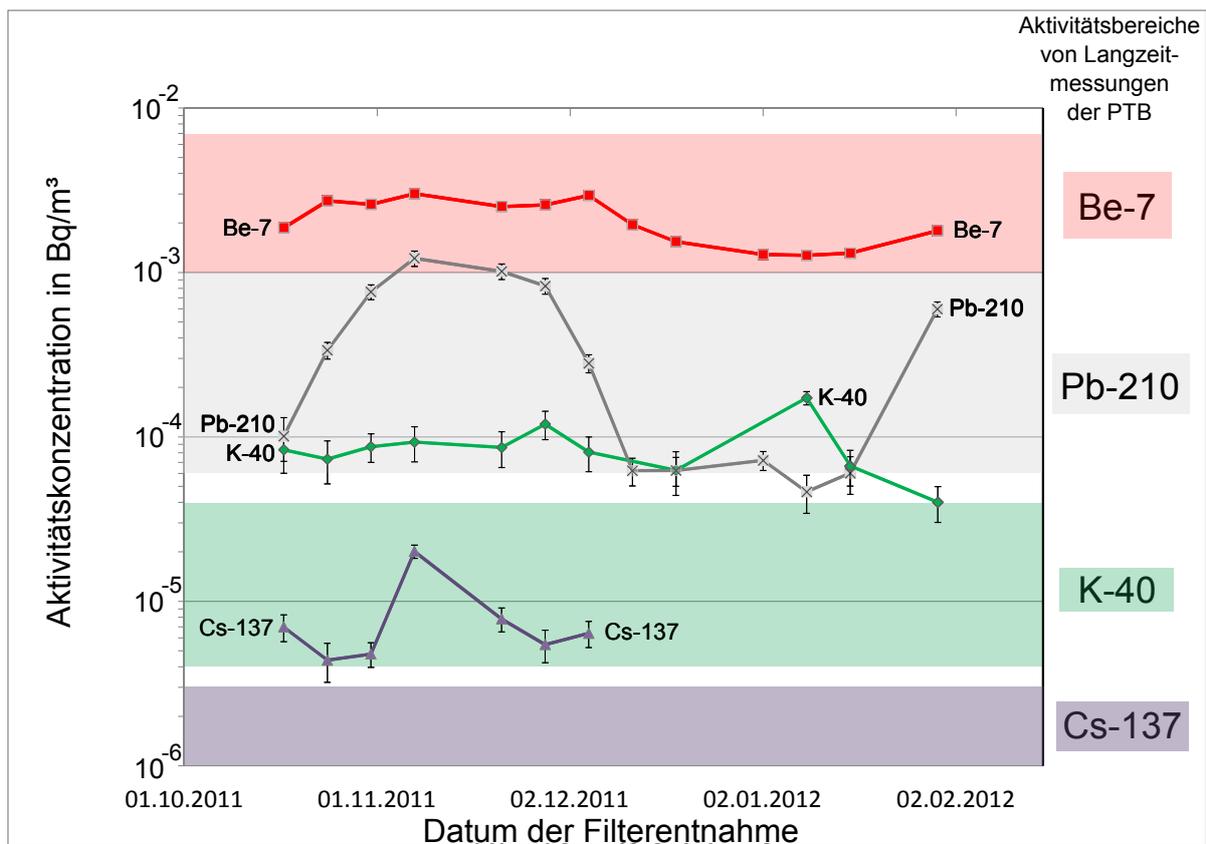


Abbildung 3.5.: Darstellung der Messwerte der Partikelsammlung aus bodennaher Luft. Die farbigen Flächen geben die Aktivitätsbereiche an, in denen die Messwerte von bodennaher Luft vom PTB in Braunschweig seit 1963 liegen [PTB12b]. Für ^{137}Cs wurde der Durchschnittsbereich der letzten zehn Jahre eingezeichnet [PTB12a].

Beryllium (^7Be)

Die ermittelte Aktivitätskonzentration vom ^7Be liegt zwischen 1 mBq m^{-3} und 3 mBq m^{-3} . Es weist damit die höchste Aktivität der nachgewiesenen Radionuklide auf. Die Werte liegen im entsprechenden Aktivitätsbereich der PTB-Messungen (1 mBq m^{-3} bis 7 mBq m^{-3}). Die ^7Be -Konzentration ist von Oktober bis Dezember 2011 leicht höher als in den folgenden Wintermonaten. Dieses Verhalten ist auch in den PTB-Messungen zu erkennen. Der Grund hierfür ist die schwächere Sonneneinstrahlung im Winter, die zu einer geringeren ^7Be -Produktion führt.

Blei (^{210}Pb)

Die ^{210}Pb -Aktivitätskonzentration der Luft weist die höchsten Schwankungen auf: Von Mitte Oktober bis Mitte November 2011 steigt sie stark an von $0,1 \text{ mBq m}^{-3}$ bis 1 mBq m^{-3} , dann nimmt sie bis Mitte Dezember ab (bis $60 \mu\text{Bq m}^{-3}$). Bis Mitte Januar 2012 bleibt sie leicht schwankend auf diesem Niveau und steigt bis zum Februar auf $0,7 \text{ mBq m}^{-3}$ an. Trotz der großen Schwankungen liegt die Aktivitätskonzentration vom ^{210}Pb im mit den Messwerten der PTB verträglichen Bereich.

Das ^{210}Pb ist ein Tochternuklid des Radon-Isotops ^{222}Rn , welches aus dem Erdboden in die Luft diffundiert. Die Schwankungen der ^{210}Pb -Aktivität lassen sich darum durch die Variabilität der ^{222}Rn -Konzentration in der Luft erklären und den Einfluss der Wetterlage wie zum Beispiel durch Niederschläge.

Kalium (^{40}K)

Die ermittelte Aktivitätskonzentration vom ^{40}K liegt im gemessenen Zeitraum zwischen $40 \mu\text{Bq m}^{-3}$ und $200 \mu\text{Bq m}^{-3}$. Damit befindet sie sich während des gesamten Messzeitraums über der Obergrenze des Aktivitätsbereiches der PTB-Messungen ($4 \mu\text{Bq m}^{-3}$ bis $40 \mu\text{Bq m}^{-3}$). Ein Grund für den hohen Kaliumgehalt in der Luft könnten Düngemaßnahmen auf den umliegenden Feldern sein (Berggarten Herrenhausen und botanische Testflächen der Universität Hannover). Dagegen spricht jedoch, dass die ^{40}K -Aktivität relativ konstant auf dem hohen Niveau liegt und in den Herbst- und Wintermonaten wenig gedüngt wird. Es ist auch nicht auszuschließen, dass kaliumhaltige Schmutzpartikel in der Nähe der Messapparatur kontinuierlich angesaugt werden und sich auf den Filtern ablagern.

Caesium (^{137}Cs)

Das ^{137}Cs weist die geringste nachweisbare Aktivitätskonzentration auf. Sie liegt im Bereich von $4\ \mu\text{Bq m}^{-3}$ und $20\ \mu\text{Bq m}^{-3}$, befindet sich damit jedoch deutlich über der durchschnittlichen Obergrenze der PTB-Messungen der letzten zehn Jahre ($0,1\ \mu\text{Bq m}^{-3}$ bis $3\ \mu\text{Bq m}^{-3}$ [PTB12a]). Es wurden allerdings nach dem Unfall von Fukushima im März 2011 von der PTB in Braunschweig Höchstwerte von bis zu $20\ \mu\text{Bq m}^{-3}$ gemessen. Diese nahmen jedoch in den nächsten Monaten auf das Durchschnittsniveau ab. Die Luftmessungen dieser Arbeit weisen dagegen auch noch im Oktober 2011 bis Januar 2012 eine erhöhte Caesium-Konzentration auf. Ob diese durch den Unfall von Fukushima bedingt ist, lässt sich nur spekulieren. Der Anstieg des ^{210}Pb im November 2011, mit dem ein Anstieg des ^{137}Cs einhergeht, kann jedoch ein Hinweis auf eine atmosphärische Auswaschung sein. Unterstützt wird diese Annahme dadurch, dass in den Folgemonaten die Aktivitätskonzentration des ^{210}Pb stark abnimmt und auch die des ^{137}Cs unter die Erkennungsgrenze fällt.

3.3. Untersuchung von Salzlauge aus einer Tiefenbohrung

Bei der untersuchten Probe handelt es sich um eine Salzlauge aus einer Tiefenbohrung. Die Flüssigkeitsprobe wurde von der Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe (BGR) zur Verfügung gestellt. Es handelt sich genauer um eine gesättigte **Salzlauge** aus einer Teufe von ungefähr 4000 m. Der Ort der Tiefenbohrung, die zur Gewinnung von Geothermie dienen soll, liegt in Hannover Groß-Buchholz (52° 24' 18.42"nördliche Breite, 9° 49' 31.07"östliche Länge).

3.3.1. Vorbereitung der Flüssigkeits- und Salzproben

Die Probenahme von ungefähr 16 Litern Flüssigkeit erfolgte aus einem Rückstellbehälter, der eine Woche zuvor befüllt wurde. Eine direkte Probenahme aus dem Bohrloch war nicht möglich, da das Bohrloch zur Probenahmezeit aufgrund einer Aussalzung verstopft war. Bei der Entnahme war die Flüssigkeit stark getrübt und schwach rotbraun bis orange-braun gefärbt und wies eine Temperatur von 6 °C auf.

Für die Probenbehandlung wurde die Flüssigkeitsprobe zunächst filtriert, um größere Rückstände zu entfernen. Ein Teil der Probe (1012,4 g) wurde zur direkten Herstellung eines Messpräparates in eine Ringschale (1 Liter) eingewogen. Es fiel teilweise ein brauner Niederschlag aus, bei dem es sich mit großer Wahrscheinlichkeit um Eisen(III)hydroxid handelt, der auf ein reduktives Milieu schließen lässt. Die Zugabe von 5 ml konzentrierter Salpetersäure führte zur Lösung des braunen Niederschlags in der Probe und stabilisierte sie. Im Anschluss an die gamma-spektrometrische Messung wurde der Probe 5 ml Multinuklidlösung (QCY48) als interner Standard hinzugefügt.

Um ein besseres Messpräparat zu erhalten, erfolgte eine Einengung der restlichen Flüssigkeitsprobe (ungefähr 15 Liter). Hierzu wurde die Lösung mittels Heizlampen und Heizplatte massenkonstant bei 105 °C eingedampft. Es bildeten sich zwei Fraktionen: Zum einen ein hartes, weißes, auskristallisiertes Salz (im Folgenden „Salzpulver“ genannt), zum anderen ein stark hygroskopischer, orangefarbener, polykristalliner Rückstand („Salzteig“).

Das **Salzpulver** wurde zunächst mit einem Hammer grob zerkleinert und mittels einer Schwingmühle zu feinem Pulver zermahlen. Daraufhin erfolgte eine Durchmischung des Probenmaterials mit der Hand (ca. fünf Minuten) und die Abfüllung in eine 1L-Ringschale. Zur Herstellung eines entsprechenden Standards wurde ein analoges Präparat mit der Multinuklidlösung QCY48 und einer ^{210}Pb -Lösung versetzt.

3. Messung und Auswertung der Umweltproben aus Deutschland

Der **Salzteig** war bei 105 °C im Restwasser gelöst und kristallisierte beim Abkühlen unter Einschluss des Wasser zu einem harten Block aus. Aus diesem Grund wurde das Material bei der hohen Temperatur gelöst und zur Homogenisierung während des Abkühlens kontinuierlich durchgerührt. Als das Material eine teigartige Konsistenz besaß, erfolgte die Abfüllung in eine 500 mL-Ringschale. Zudem wurde ein analoges Standardpräparat erstellt.

Neben der Flüssigkeitsprobe stellte die BGR desweiteren eine Feststoffprobe (20 Gramm) zur Verfügung. Diese stammt aus der das Bohrloch verstopfenden **Salzbrücke** und wurde in einer Teufe von 655 m entnommen.

Zur besseren Übersicht ist in Abbildung 3.6 ein Schema der einzelnen Proben dargestellt.

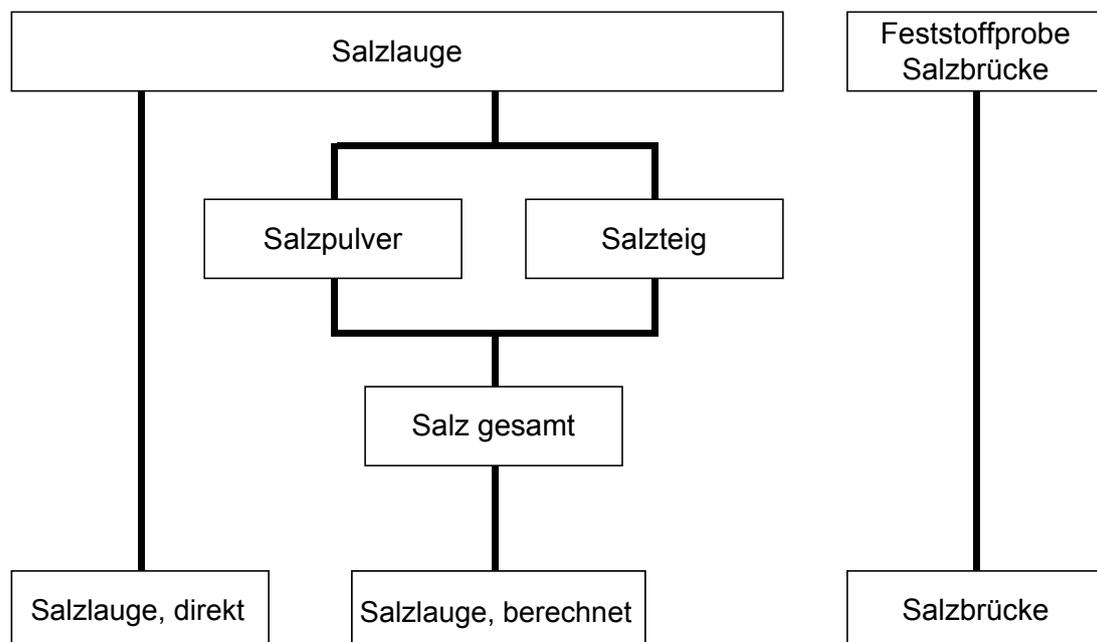


Abbildung 3.6.: Übersicht der Proben aus der Tiefenbohrung

3.3.2. Gammaskpektrometrische Analyse der Flüssigkeits- und Salzproben

In Abbildung 3.7 sind die Ergebnisse der gammaskpektrometrischen Messung grafisch dargestellt. Eine Übersicht der Ergebnisse in Tabellenform ist im Anhang B.10 zu finden.

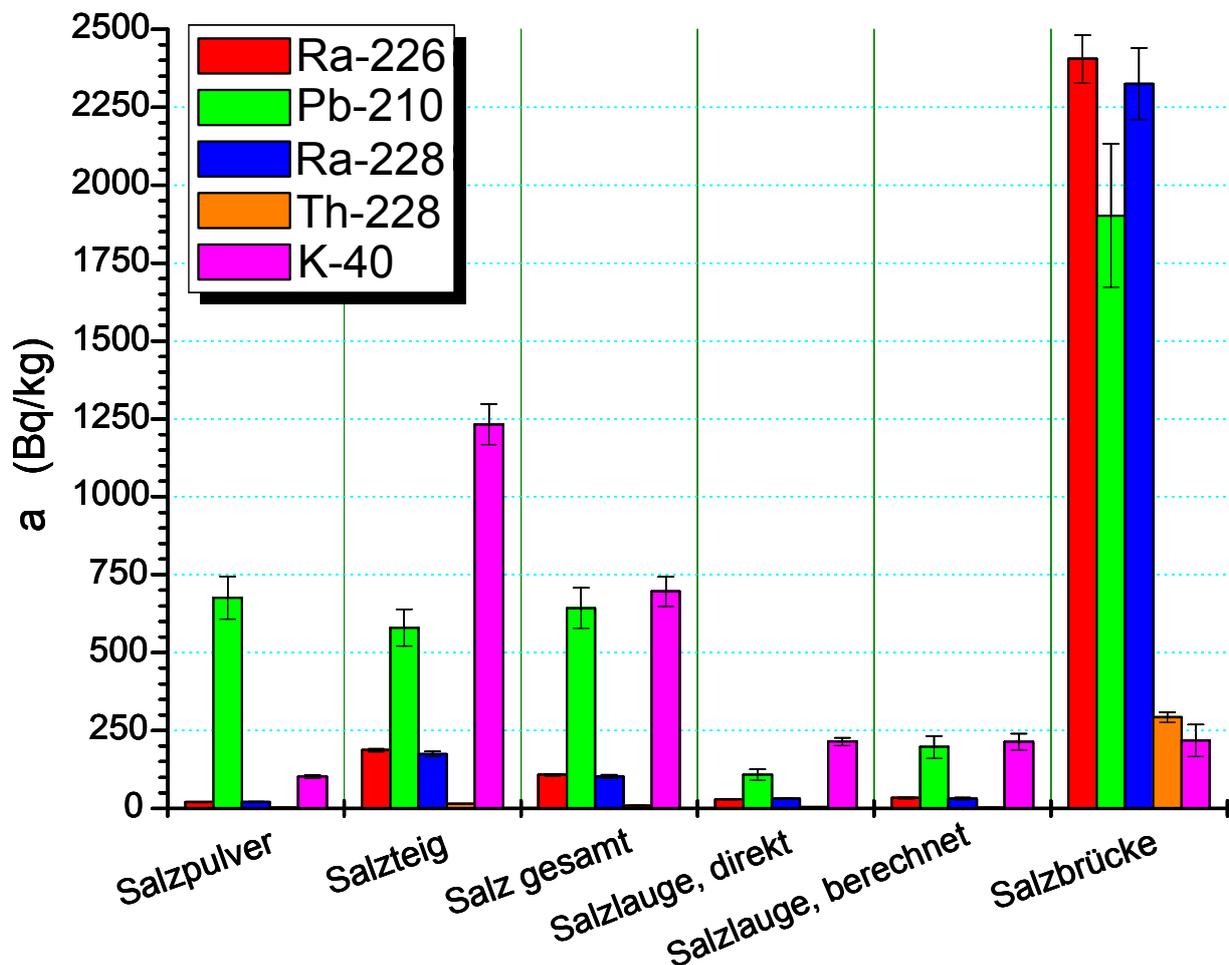


Abbildung 3.7.: Grafische Darstellung der spezifischen Aktivitäten der Proben aus der Tiefenbohrung.

3. Messung und Auswertung der Umweltproben aus Deutschland

Die Probe „Salz gesamt“ berechnet sich aus den Aktivitäten von Salzpulver und Salzteig sowie aus deren Massenanteilen $\frac{m(\text{Pulver})}{m(\text{Salz,gesamt})}$, beziehungsweise $\frac{m(\text{Teig})}{m(\text{Salz,gesamt})}$, und Restfeuchte wie folgt zusammen:

$$a(\text{Salz, gesamt}) = \frac{\text{Massenanteil (Salzpulver) [0,4919]}}{\text{Restfeuchte (Salzpulver) [0,981]}} \cdot a(\text{Salzpulver}) \\ + \frac{\text{Massenanteil (Salzteig) [0,5081]}}{\text{Restfeuchte (Salzteig) [0,971]}} \cdot a(\text{Salzteig})$$

Die Restfeuchte beschreibt die Feuchtigkeit, die während der Probenpräparation aufgenommen wurde im Vergleich zum Feuchtigkeitsgehalt bei 105 °C (massenkonstant).

Zum Vergleich der direkten Messung der Salzlauge („Salzlauge, direkt“) mit der indirekten von Salzpulver und Salzteig („Salzlauge, berechnet“) muss der Massenanteil $\frac{m(\text{Salz})}{m(\text{Lauge})}$ berücksichtigt werden:

$$a(\text{Salzlauge, berechnet}) = \text{Massenanteil} \frac{m(\text{Salz})}{m(\text{Lauge})} [0,3066] \cdot a(\text{Salz gesamt})$$

In allen Proben können die Radionuklide ^{226}Ra , ^{210}Pb , ^{228}Ra , ^{228}Th und ^{40}K gamma-spektrometrisch nachgewiesen werden. Andere Nuklide der natürlichen Zerfallsreihen sind nicht in nachweisbarer Menge vorzufinden. Künstliche Radionuklide wie ^{137}Cs sind in der Lösung und der Feststoffprobe erwartungsgemäß nicht detektiert worden.

Die Proben Salzpulver und Salzteig bilden zwei unterschiedliche Fraktionen der Kristallisation. Beim Salzpulver führt das langsame Auskristallieren zu einem relativ reinen Natriumchloridkristall (NaCl) mit wenig Störionen. Hieraus resultiert eine höhere Anreicherung von Radium und Kalium im Salzteig, was vermutlich ein Grund für dessen gestörtes Kristallisationsverhalten ist. Beide Fraktion weisen jedoch eine ähnliche ^{210}Pb -Aktivität auf, was darauf schließen lässt, dass das Blei sich nicht abhängig von der Art der Kristallisation anreichert, sondern in beiden Fraktionen in Form von Einschlüssen vorliegt.

Ingesamt weist das Salz („Salz, gesamt“) eine erwartungsgemäß hohe ^{40}K -Aktivität von $(696 \pm 47) \text{ Bq kg}^{-1}$ auf, die ^{210}Pb -Aktivität liegt mit $(642 \pm 54) \text{ Bq kg}^{-1}$ nur leicht darunter. Die Radiumaktivitäten (^{226}Ra , ^{228}Ra) liegen jeweils bei ungefähr 100 Bq kg^{-1} .

Da der Salzgehalt der Lauge bei ungefähr 31 % liegt, weisen die hiermit ermittelten Werte der Lauge („Salzlauge, berechnet“) eine dementsprechend geringere Aktivität

auf. Die bestimmten Aktivitäten der direkten Messung der Lake und die berechneten Werte über das auskristallisierte Salz weisen übereinstimmende Werte auf. Lediglich die ^{210}Pb -Werte weichen stark voneinander ab. Sie können jedoch nach *Weise und Wöger* [WW94] mit einem Konformitätsparameter von 2,21 als miteinander verträglich betrachtet werden. Für die Berechnung über die Salzfraktionen sind aufgrund der durch die Nuklidanreicherung verbesserten Messbedingungen, verlässlichere Werte zu erwarten.

Feststoffprobe Salzbrücke

Die Feststoffprobe Salzbrücke wurde von der BGR bereits im Vorfeld mittels Röntgenfluoreszenz untersucht. Hierbei konnten die Verbindungen Halit (Natriumchlorid, NaCl), strontiumreicher Baryt (Barium-Strontiumsulfat, $\text{Ba}(\text{Sr})\text{SO}_4$), Laurionit (basisches Bleichlorid, $\text{Pb}(\text{OH})\text{Cl}$) und elementares Blei (Pb) identifiziert werden. Diese Untersuchungen stehen im Einklang mit den gammaspektrometrischen Ergebnissen:

Die Feststoffprobe Salzbrücke weist ungefähr 80-fach höhere Radiumaktivitäten und 10-fach höhere Bleiaktivität als die Salzlake auf, während die Kaliumaktivität in guter Näherung der der Salzlake entspricht. Der relativ hohe Radiumgehalt in der Salzbrücke (^{226}Ra : $(2404 \pm 77) \text{ Bq kg}^{-1}$; ^{228}Ra : $(2325 \pm 115) \text{ Bq kg}^{-1}$) lässt sich durch das Vorkommen von Baryt erklären. Barium ist ein klassischer Träger für Radium in der Umwelt, das heißt, dass kleinere Mengen Radium aufgrund ihres ähnlichen chemischen Verhaltens oft vergesellschaftet mit größeren Mengen Barium auftreten. Es liegt daher nahe, dass das Radium überwiegend im strontiumreichen Baryt vorhanden ist. ^{210}Pb liegt hauptsächlich als natürliches Blei-Isotop in den Bleiverbindungen der Feststoffprobe vor.

Aufgrund der hohen Aktivitäten könnte es sich bei der Feststoffprobe Salzbrücke auch um eine Ablagerung im Sinne eines Scales handeln, die sich aufgrund von Druck- und Temperaturänderungen abscheiden. Scales bilden daher die Differenz zwischen den im Bohrloch gelösten Stoffen und der Salzlake.

Es muss an dieser Stelle angemerkt werden, dass es sich bei der Feststoffprobe um eine Einzelprobe von 20 g handelt, die nicht repräsentativ für die gesamte Salzbrücke ist.

Eine ausreichende Untersuchung des ^{226}Ra -Mutternuklids ^{238}U ist aufgrund der geringen Emissionswahrscheinlichkeiten seiner Gammaquanten sowie störenden Gammaenergien nicht möglich.

Der ^{228}Th -Gehalt der Salzbrücke fällt durch seine relativ hohe Aktivität auf $((292 \pm 16) \text{ Bq kg}^{-1})$ im Vergleich zur Salzlake (Salzlake, berechnet: $(2,8 \pm 0,3) \text{ Bq kg}^{-1}$). Da Thorium im Wasser extrem schwer löslich ist, liegt die Annahme nahe, dass der Thoriumgehalt der Salzbrücke hauptsächlich aus dem Zerfall des ^{228}Ra resultiert. ^{228}Th

3. Messung und Auswertung der Umweltproben aus Deutschland

besitzt zudem verglichen mit den anderen untersuchten Nukliden eine relativ kurze Halbwertszeit von 1,9 Jahren, sodass bereits nach wenigen Monaten Aktivitätsveränderungen deutlich messbar sind.

Weitere Messungen bestätigen die Annahme des Einwachsens von ^{228}Th auch in der Lauge: Anfang Dezember 2011 wurde für ^{228}Th ein Wert von $(0,8 \pm 0,1) \text{ Bq kg}^{-1}$ abgeschätzt, Mitte April 2012 erhielt man bei einer weiteren Messung derselben Proben eine Aktivität von $(4,6 \pm 0,3) \text{ Bq kg}^{-1}$. Auch die indirekte Messung der Salzlauge über das Salzpulver und den Salzteig ergaben im Februar 2012 einen mit der Annahme verträglichen Wert von $(2,8 \pm 0,3) \text{ Bq kg}^{-1}$ für ^{228}Th .

Kalium bildet als Alkalimetall hauptsächlich leicht lösliche Salze. Das ^{40}K macht daher erwartungsgemäß in der Salzlauge den größten Aktivitätsanteil aus (Salzlauge, berechnet: $(213 \pm 26) \text{ Bq kg}^{-1}$). Bei der Feststoffprobe Salzbrücke dominiert die Radiomaktivität mit großem Abstand; der ^{40}K -Gehalt entspricht ungefähr dem der Salzlauge (Salzbrücke: $(218 \pm 51) \text{ Bq kg}^{-1}$).

Vergleich mit der Geothermieranlage Neustadt-Glewe

Im Vergleich mit Fluidproben aus der Geothermieranlage Neustadt-Glewe im Südwesten Mecklenburg-Vorpommerns weist die untersuchte Salzlauge deutlich höhere Aktivitäten auf [Deg10]: Die Aktivitätskonzentration von ^{226}Ra im Thermalwasser¹ von Neustadt-Glewe beträgt lediglich $(7,7 \pm 0,4) \text{ Bq l}^{-1}$, die von ^{228}Ra $(9,34 \pm 0,23) \text{ Bq l}^{-1}$. Die Werte der untersuchten Salzlauge von Hannover betragen ungefähr das Dreifache. Auch die Werte von ^{210}Pb und ^{40}K liegen in Neustadt-Glewe mit $(0,31 \pm 0,09) \text{ Bq l}^{-1}$ und $(24,4 \pm 0,9) \text{ Bq l}^{-1}$ deutlich unter denen der Tiefenbohrung aus Hannover ($(197,0 \pm 36,1) \text{ Bq kg}^{-1}$ und $(213,3 \pm 26,1) \text{ Bq kg}^{-1}$). Über die Ursache dieser großen Abweichung kann hier nur spekuliert werden.

Im Scale der Anlage Neustadt-Glewe wurden dagegen teilweise sehr viel höhere Aktivitäten gemessen als in der einzelnen Feststoffprobe der Salzbrücke. Die mittleren spezifischen Aktivitäten der Kontamination auf Anlageteilen überstreichen abhängig von der Materialart (Filter, Rohr, Wärmetauscher) und Standzeit (30 d bis 10 a) mehr als 3 Größenordnungen [Deg10]: ^{226}Ra : 100 bis 270.000 Bq kg^{-1} , ^{228}Ra : 100 bis 210.000 Bq kg^{-1} , ^{210}Pb : 100 bis 800.000 Bq kg^{-1} . Die Feststoffprobe Salzbrücke liegt mit spezifischen Aktivitäten um 2000 Bq kg^{-1} vergleichsweise im unteren Bereich der Scalemessungen von Neustadt-Glewe.

¹Die mittlere Dichte des Fluids beträgt $1,1 \text{ kg l}^{-1}$.

3.4. Untersuchung von Immobilisat aus ehemaligem Uranerzbergbau

Bei der Probe handelt es sich um Immobilisat der Wasserbehandlungsanlage (WBA) Schlema-Alberoda bei Bad Schlema (Erzgebirge), die von der Wismut GmbH betrieben wird. Als Immobilisat wird der mit Radionukliden angereicherte Rückstand der Wasserbehandlung bezeichnet. Die Wismut beschäftigt sich mit der Sanierung der vom Uranerzbergbau geschädigten Regionen in Sachsen und Thüringen. Das Grubenwasser aus dem Abbaugbiet Schlema-Alberoda wird vor der Zuleitung in die Zwickauer Mulde in der Anlage behandelt. Durch Zugabe von Flockungsmittel wird ein großer Teil des Urans und Radiums im Wasser ausgefällt und kann abgefiltert werden. Das Immobilisat ist hierbei der eingedickte Fällungsrückstand der Wasseraufbereitung, der in dieser Form eingelagert wird.

Die Koordinaten des Entnahmeortes liegen bei $50^{\circ} 37' 13,20''$ nördlicher Breite und $12^{\circ} 04' 39,91''$ östlicher Länge.

Vorbereitung der Probe

Das rot-braune, lehmartige Immobilisat wurde homogen in eine Petrischale mit einem Durchmesser von ungefähr 8,5 cm und einem Volumen von ungefähr 84 ml gefüllt und mit einem Plastikkleber fest verklebt. Die Probenmasse betrug 130,3 g. Nach dem Trocknen des Klebers wurde sie in eine Radonschutzfolie („Radonprotect“) eingeschweißt und zum Einstellen des radioaktiven Gleichgewichts mehrere Monate gelagert. Das wie beschrieben vorbereitete Messpräparat lag bereits vor.

3.4.1. Gammaskpektrometrische Analyse des Immobilisats

Die Probe ist ein gutes Beispiel für einen anthropogenen Eingriff in die Umwelt, in diesem Fall durch Uranerzbergbau.

In Tabelle 3.4 sind die Messwerte des Immobilisats sowie die Aktivitätsverhältnisse zwischen ^{226}Ra und ^{238}U , ^{228}Ra und ^{238}U und den Uran-Isotopen ^{238}U und ^{235}U dargestellt.

Die erwartete Anreicherung des Urans im Fällungsrückstand spiegelt sich in den Mes-

Tabelle 3.4.: Ergebnisse der Messung des Immobilisats aus Bad Schlema (Referenzdatum: 12.04.2012). Werte mit „<“ geben die Erkennungsgrenze an.

Uran-Radium-Reihe					
U-238		Ra-226		Pb-210	
a (Bq kg ⁻¹)	$u(a)$ (Bq kg ⁻¹)	a (Bq kg ⁻¹)	$u(a)$ (Bq kg ⁻¹)	a (Bq kg ⁻¹)	$u(a)$ (Bq kg ⁻¹)
133680	5050	10060	290	802	238

U-Ac-Reihe			
U-235		Ac-227	
a (Bq kg ⁻¹)	$u(a)$ (Bq kg ⁻¹)	a (Bq kg ⁻¹)	$u(a)$ (Bq kg ⁻¹)
5325	276	42,3	7,2

Thorium-Reihe			
Ra-228		Th-228	
a (Bq kg ⁻¹)	$u(a)$ (Bq kg ⁻¹)	a (Bq kg ⁻¹)	$u(a)$ (Bq kg ⁻¹)
105	101	34,0	4,2

K-40		Cs-137	
a (Bq kg ⁻¹)	$u(a)$ (Bq kg ⁻¹)	a (Bq kg ⁻¹)	$u(a)$ (Bq kg ⁻¹)
< 3,8	—	< 4,1	—

$a(\text{Ra-226}) / a(\text{U-238})$		$a(\text{Ra-228}) / a(\text{U-238})$	
	$u(226/238)$		$u(228/238)$
0,075	0,004	7,9E-04	0,9E-04

$a(\text{Ra-228}) / a(\text{Ra-226})$		$a(\text{U-238}) / a(\text{U-235})$	
	$u(228/226)$		$u(238/235)$
0,010	0,001	25,1	1,6

3.4. Untersuchung von Immobilisat aus ehemaligem Uranerzbergbau

sungen wider. Die spezifischen Aktivitäten von ^{238}U und ^{235}U betragen

$$a(^{238}\text{U}) = (133680 \pm 5050) \text{ Bq kg}^{-1}$$

$$a(^{235}\text{U}) = (5325 \pm 276) \text{ Bq kg}^{-1}.$$

Das hieraus resultierende Verhältnis beträgt

$$^{238}\text{U}/^{235}\text{U} = (25,1 \pm 1,6).$$

Es liegt damit leicht über der natürlichen Isotopenzusammensetzung von 21,7 [DIN07].

Bei der Auswertung ist darauf zu achten, dass es sich um eine Probe aus einer wässrigen Phase handelt. Hierbei sind besonders die Löslichkeiten der Radium- und Uranverbindungen zu beachten. Uran ist im pH-neutralen Wasser aufgrund seiner höheren Löslichkeit im Vergleich zu Radium angereichert. Es besteht daher ein Ungleichgewicht zwischen ^{238}U und dem Tochternuklid ^{226}Ra . Das ermittelte Aktivitätsverhältnis aus den Messungen beträgt

$$^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U} = 0,075 < 1.$$

Es ist zusätzlich zu beachten, dass auch beim Fällungsprozess Uran und Radium zu unterschiedlichen Anteilen ausfallen können.

Der Vergleich zwischen der Thorium-Reihe und der Uran-Radium-Reihe – durch die Radionuklide ^{228}Ra und ^{238}U – kann auf den anthropogenen Einfluss in der Region hinweisen. Für das natürliche, geochemische Verhältnis gilt [Mic05]:

$$^{228}\text{Ra}/^{238}\text{U} > 0,5.$$

Die Messungen des Immobilisats ergeben ein Verhältnis von

$$^{228}\text{Ra}/^{238}\text{U} = 7,9 \cdot 10^{-4} \ll 0,5.$$

Da jedoch wie oben beschrieben die Fällung von Uran und Radium unterschiedlich verläuft, ist es sinnvoll, für die Berechnung dieses Verhältnisses das Radium-Tochternuklid des ^{238}U zu betrachten. Hier beträgt das Verhältnis:

$$^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra} = 0,01 < 0,5.$$

Die starke Unterschreitung dieses Verhältnisses unter 0,5 kann als Indiz für den anthropogenen Einfluss an dieser Umweltprobe gewertet werden [Mic05].

3. Messung und Auswertung der Umweltproben aus Deutschland

Proben aus Japan nach dem Unfall von Fukushima

4.1. Unfallablauf im Atomkraftwerk Dai-ichi in Fukushima

Am 11. März um 14:46 Uhr Ortszeit ereignete sich ein Erdbeben ungefähr 160 km vor der japanischen Ostküste. Diese Beben wurde im Nachhinein mit der Stärke 9,0 bewertet. Mehrere Kernkraftwerke, darunter Fukushima Dai-ichi und Fukushima Dai-ni, wurden aufgrund der Erschütterung automatisch abgeschaltet, sodass es zu einem Stromausfall in Nordjapan kam. Die notwendige Kühlung der Kernreaktoren wurde durch die kraftwerksinternen Dieselmotoren aufrecht gehalten.

Ungefähr eine Stunde nach dem Beben traf ein 7 m - 15 m hoher Tsunami an der Ostküste Japans ein. Er überschwemmte und verwüstete kilometerweise Landstriche und Regionen. Nach einer Zählung vom 24. April 2011 starben mehr als 28.000 Menschen an den Folgen des Erdbebens und des Tsunamis. Es wurden anfangs ungefähr 380.000 Menschen aus den betroffenen Gebieten evakuiert [Mic11].

Die meisten Kernkraftwerke der Ostküste Japans überstanden das Erdbeben und den Tsunami aufgrund ihrer höheren Standorte weitgehend unbeschadet. Zu einem katastrophalen Ausmaß kam es jedoch beim Kernkraftwerk Fukushima Dai-ichi. Das Kraftwerk mit sechs Siedewasserreaktoren war für Tsunamis bis zu einer Höhe von 5,7 m ausgelegt. Die doppelt so hohe Welle, die nun auf die Küste traf, bewirkte eine Überschwemmung und Zerstörung der Dieselmotoren, die die Notkühlung der Reaktorkerne aufrecht hielten.

In Folge des Ausfalls des Kühlsystems kam es zum Verdampfen des Kühlwassers im Reaktordruckbehälter aufgrund der anhaltenden Zerfallswärme der Brennelemente. Der damit verbundene Druckanstieg führte zum Abblasen des Wasserdampfes in die Kondensationskammer. Die Rückführung des Wassers in den Reaktordruckbehälter war nicht mehr möglich, woraufhin die Brennelemente immer weiter trocken fielen und zu schmelzen begannen. Dies führte zu einem kontinuierlichen Temperaturan-

stieg.

Im Reaktordruckbehälter befand sich Zirkonium, das als Schutzhülle für die Brennelemente verwendet wurde. Ab einer Temperatur von ungefähr 850 °C kam es zur exothermen Zirkonium-Wasser-Reaktion ($\text{Zr} + 2\text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{ZrO}_2 + 2\text{H}_2$), bei der große Mengen Wasserstoff entstanden. Beim Öffnen der Druckentlastungsventile („Venting“) gelangte nun auch der entstandene Wasserstoff sowie radioaktive Stoffe in Gasphase aus dem Sicherheitshälter heraus in die obere Serviceebene des Gebäudes. Das Wasserstoff-Sauerstoffgemisch (Knallgas) führte mit der weiteren Temperaturzunahme zu Explosionen, die bei den Reaktorblöcken 1 und 3 die Sicherheitsbehälter beschädigten, woraufhin weitere radioaktive Stoffe freigesetzt wurden.

- Am 12.03.2011 um 15:36 Uhr kam es zu einer Wasserstoffexplosion in Block 1.
- Am 14.03.2011 um 11:00 Uhr kam es zu einer Wasserstoffexplosion in Block 3.
- Am 15.03.2011 um 6:10 Uhr kam es vermutlich zu einer Wasserstoffexplosion und/oder zu einem Versagen des Containments (Sicherheitsbehälter) in Block 2. Das Gebäude blieb größtenteils unversehrt.
- Am 15.03.2011 am Vormittag kam es zu einer Explosion und einem Brand in Block 4.

Die Reaktorblöcke 4, 5 und 6 waren zum Zeitpunkt von Erdbeben und Tsunami zur Wartung abgeschaltet. Die Brennelemente des Blocks 4 befanden sich nicht im Reaktordruckbehälter, sondern im Lagerbecken. Zunächst wurde befürchtet, dass die Explosion im Block 4 durch den Trockenfall der Brennelemente im Lagerbecken verursacht wurde, dies war jedoch nicht der Fall. Sehr wahrscheinlich wurde hier die Explosion durch Wasserstoff aus Block 3 ausgelöst, der durch Systemleitungen in Block 4 gelangte.

4.2. Untersuchung der Bodenproben aus Fukushima

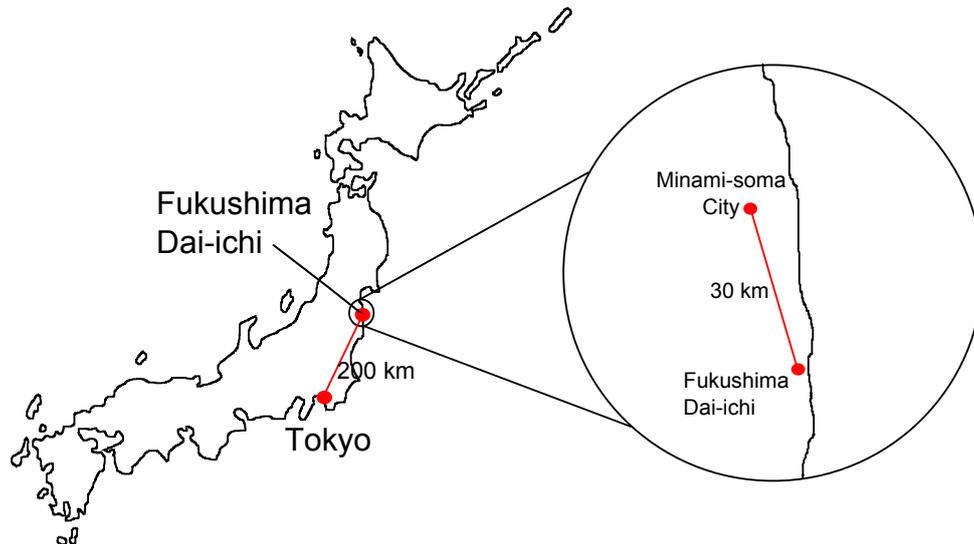


Abbildung 4.1.: Karte von Japan

Bei dem Probenmaterial aus Japan handelt es sich um Erdboden aus Minami-soma City (Präfektur Fukushima), Ortsteil Haramachi, ungefähr 30 km nordnordwestlich entfernt vom havarierten Kernkraftwerk Fukushima Dai-ichi (siehe Abbildung 4.1). Die Probenahme erfolgte am 31.10.2011, es wurden ungefähr die oberen 3-5 cm des Bodens abgetragen. Im Einzelnen wurden zwei unterschiedliche Proben genommen:

- Probe 01: Aus einem Blumenkübel in ca. 4 m Höhe, teils unter einer Überdachung ("Royal Hotel Maruya").
- Probe 02: Von einem Parkplatz ungefähr 100 m von der ersten Probenahmestelle entfernt ("Haranomadi-ekimae Poststation"); die obere Erdschicht zeigt Moosbewuchs.

Probenvorbereitung

Das Probenmaterial wurde bei Zimmertemperatur getrocknet, zerkleinert und gesiebt. Hierbei erfolgte die Abtrennung des Skelettanteils größer 2 mm. Anschließend wurde das Material jeweils in einer luftdicht verschlossenen Ringschale (Fassungsvermögen ca. 280 ml) gammastrahlendosismetrisch untersucht.

Gammaskpektrometrische Analyse der japanischen Bodenproben

Der Fallout von Fukushima ist in beiden Proben deutlich zu erkennen. Er wird durch die erhöhte Aktivität der künstlichen Radionuklide Cs-137, Cs-134 und Ag-110m repräsentiert.

In Tabelle 4.1 sind die Messergebnisse der künstlichen Radionuklide der beiden Japan-Proben dargestellt. Dabei wurden die Aktivitäten zum 14.03.2011 zurückgerechnet. Auf diese Weise lässt sich das ursprüngliche Aktivitätsverhältnis der Nuklide ermitteln. Eine Gesamtübersicht der Messungen ist in Tabelle B.11 im Anhang zu finden.

Es fällt auf, dass Probe 02 für alle künstlichen Radionuklide eine ungefähr zehnfach höhere spezifische Aktivität aufweist als Probe 01. Der Wert für ^{137}Cs liegt zum Beispiel in Probe 01 bei $(679 \pm 33) \text{ Bq kg}^{-1}$ und in Probe 02 bei $(6581 \pm 323) \text{ Bq kg}^{-1}$. Der Grund hierfür ist mit großer Wahrscheinlichkeit der Entnahmeort der Probe 01, da dieser zum Teil überdacht ist. Dieser Vergleich ist ein gutes Beispiel dafür, dass die Messergebnisse von Stichproben stark schwanken können, auch wenn die Entnahmeorte nicht weit voneinander entfernt liegen. Auch eine Überdachung kann einen großen Teil der Nuklide, die vor allem durch Niederschlag aus der Luft ausgewaschen werden, abschirmen.

Messungen des japanischen Wissenschaftsministeriums MEXT ergaben für Bodenproben in Minami-soma City Werte für ^{137}Cs von 3280 Bq kg^{-1} (18.03.2011) und 4040 Bq kg^{-1} (19.03.2011) [MEX11a]. Diese Ergebnisse liegen in der Größenordnung der nicht überdachten Probe 02, für deren spezifische Aktivität von ^{137}Cs lediglich ein 1,6-fach höherer Wert abgeschätzt wurde.

Das ermittelte Aktivitätsverhältnis kurz nach dem Unfall (14.03.2011) zwischen den Caesium-Isotopen ^{137}Cs und ^{134}Cs beträgt für beide gemessenen Proben $1,0 \pm 0,1$ (siehe Tabelle 4.1). Nach ersten Abschätzungen des IRSN (Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire) zur Freisetzung dieser Nuklide in die Atmosphäre (bis zum 22. März 2011) wurden gleiche Aktivitäten für die Cs-Isotope ermittelt (je 10^{16} Bq), was auch einem Aktivitätsverhältnis von 1,0 entspricht. Jedoch sollen nach überarbeiteten Abschätzungen des IRSN aufgrund von neuen Erkenntnissen und genauerer Erforschung der Unfallsituation $2,06 \cdot 10^{16} \text{ Bq } ^{137}\text{Cs}$ und $2,78 \cdot 10^{16} \text{ Bq } ^{134}\text{Cs}$ in die Atmosphäre freigesetzt worden sein [IRS12]. Das Aktivitätsverhältnis beträgt in diesem Fall 0,74. Dieses Verhältnis weicht relativ stark von dem aus den Proben ermittelten ab. Es ist jedoch zu beachten, dass die Abschätzung des IRSN sich direkt auf den Unfallort und auf alle Reaktoren bezieht. Da aus den Reaktoren an unterschiedlichen Tagen Radionuklide freigesetzt wurden, kam es zu mehreren Ereignissen mit unterschiedlichen Aktivitätsverhältnissen. Aufgrund der Wetterlage (Windrichtung, Niederschlag, ...) können die Verhältnisse in den umliegenden Gebieten von der Abschätzung des

IRSN abweichen.

Mit der Abschätzung der spezifischen Aktivität vom ^{110m}Ag ergibt sich ein Aktivitätsverhältnis kurz nach dem Unfall (14.03.2011) zwischen ^{137}Cs und ^{110m}Ag von 121 ± 7 . Die Aktivität des ^{110m}Ag ist mit $(54,3 \pm 1,4) \text{ Bq kg}^{-1}$ vergleichsweise gering. Zudem besitzt es eine Halbwertszeit von nur 250 Tagen, sodass es bei Betrachtungen langfristiger Kontamination nicht stark ins Gewicht fällt und vernachlässigt werden kann.

Tabelle 4.1.: Ergebnisse der Bodenproben aus der Präfektur Fukushima für die künstlichen Radionuklide ^{137}Cs , ^{134}Cs und ^{110m}Ag . Die Aktivitäten wurden auf den 14. März 2011 zurückgerechnet, um das Verhältnis der Nuklide kurz nach dem Unfall zu erhalten.

Probe	Cs-137		Cs-134		Ag-110m	
	a (Bq kg^{-1})	$u(a)$ (Bq kg^{-1})	a (Bq kg^{-1})	$u(a)$ (Bq kg^{-1})	a (Bq kg^{-1})	$u(a)$ (Bq kg^{-1})
Probe 01	679	33	666	19	5,6	0,4
Probe 02	6581	323	6547	160	54,3	1,4

Probe	$\frac{a(\text{Cs-137})}{a(\text{Cs-134})}$	$\frac{a(\text{Cs-137})}{a(\text{Ag-110m})}$	Referenzdatum: 14.03.2011
Probe 01	$1,0 \pm 0,1$	121 ± 11	
Probe 02	$1,0 \pm 0,1$	121 ± 7	

Dosisratenabschätzung

Die folgende Abschätzung der Dosisrate basiert auf den Messergebnissen der unüberdachten Probe 02. Da es sich hierbei um eine Einzelprobe handelt, ist die ermittelte Dosisrate nicht repräsentativ und kann auch in naher Umgebung um den Entnahmeort stark abweichende Werte aufweisen.

Zunächst erfolgt die Berechnung der Depositionsdichte für ^{134}Cs und ^{137}Cs nach Formel (2.29). Das ^{110m}Ag kann aufgrund der geringen spezifischen Aktivität und der kurzen Halbwertszeit vernachlässigt werden. Es wird eine einzelne Schicht mit einer Tiefe von $(3 \pm 1) \text{ cm}$ Tiefe angenommen. Da die Lagerungsdichte nicht bekannt ist, wird diese mit der Schüttdichte gleichgesetzt ($\rho_{\text{Sch}} = 1,12 \text{ g cm}^{-3}$). Mit diesen Werten ergeben sich zum Referenzdatum, 14.03.2011, Depositionsdichten von

$$d_{\text{Cs-134}} = (220 \pm 74) \text{ kBq m}^{-2}$$

$$d_{\text{Cs-137}} = (221 \pm 75) \text{ kBq m}^{-2}.$$

4. Proben aus Japan nach dem Unfall von Fukushima

Für ^{134}Cs beträgt der Dosisratenkoeffizient für externe Strahlung von kontaminiertem Boden [SSK04]:

$$g_{b,r}^{\text{EF}} = 1,5 \cdot 10^{-15} \text{ Sv} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{m}^2 \cdot \text{Bq}^{-1}$$

Hiermit wird die Dosisrate vom ^{134}Cs bestimmt; die vom ^{137}Cs lässt sich nach Formel (3.3) abschätzen:

$$\dot{E}_{\text{Cs-134}} = (1188 \pm 402) \text{ nSv h}^{-1}$$

$$\dot{E}_{\text{Cs-137}} = (442 \pm 151) \text{ nSv h}^{-1}.$$

Bei einem dauerhaften Aufenthalt auf der entsprechenden Bodenfläche (24 Stunden am Tag, 365 Tage im Jahr) ergibt dies folgende effektive Dosisrate durch Strahlenexposition von ^{134}Cs und ^{137}Cs (Referenzdatum: 14.03.2011):

$$\dot{E}_{\text{Cs-134}} = (10,4 \pm 3,5) \text{ mSv a}^{-1}$$

$$\dot{E}_{\text{Cs-137}} = (3,9 \pm 1,4) \text{ mSv a}^{-1}$$

$$\dot{E}_{\text{Cs-134+Cs-137}} = (14,3 \pm 3,8) \text{ mSv a}^{-1}.$$

In Abbildung 4.2 ist die Abnahme der effektiven Dosisraten durch ^{134}Cs und ^{137}Cs basierend auf der Abschätzung von Probe 02 aus Minami-soma City für die nächsten 50 Jahre dargestellt. Es ist deutlich zu erkennen, dass ^{134}Cs in den ersten 3 Jahren nach dem Unfall den größeren Anteil an der Gesamtdosisrate ($^{134}\text{Cs} + ^{137}\text{Cs}$) hat. Aufgrund der kurzen Halbwertszeit (ca. 2 Jahre) nimmt dieser jedoch stark ab, sodass nach 5 Jahren die Gesamtdosisrate in guter Näherung ausschließlich durch das ^{137}Cs bestimmt wird.

Der Wert der zusätzlichen Dosis in Minami-soma City durch ^{137}Cs liegt in den nächsten 30 Jahren zwischen 2 bis 4 mSv a^{-1} . Dies entspricht ungefähr der einfachen bis doppelten durchschnittlichen Strahlenexposition einer Person in Deutschland pro Jahr aus künstlichen Quellen (hauptsächlich aus der Medizin; siehe Tabelle A.3 im Anhang).

Nach Abschätzungen des japanischen Wissenschaftsministeriums MEXT (Referenzdatum 29. April 2011) liegt die Gesamtdositionsdichte von ^{134}Cs und ^{137}Cs für Minami-soma City (Bezirk Haramachi) im Bereich bis 300 kBq m^{-2} [MEX11b]. Die Abschätzungen in dieser Arbeit liegen mit

$$d_{\text{Cs-134+Cs-137}} = (441 \pm 105) \text{ kBq m}^{-2}$$

zwar über diesem Bereich, sind jedoch unter dem Aspekt, dass es sich lediglich um eine Einzelprobe handelt mit der MEXT-Abschätzung vereinbar. Zudem liegt der Entnahmepunkt nur ungefähr 2 km von dem Bereich entfernt, der vom MEXT mit 300 kBq m^{-2} bis 600 kBq m^{-2} abgeschätzt wird.

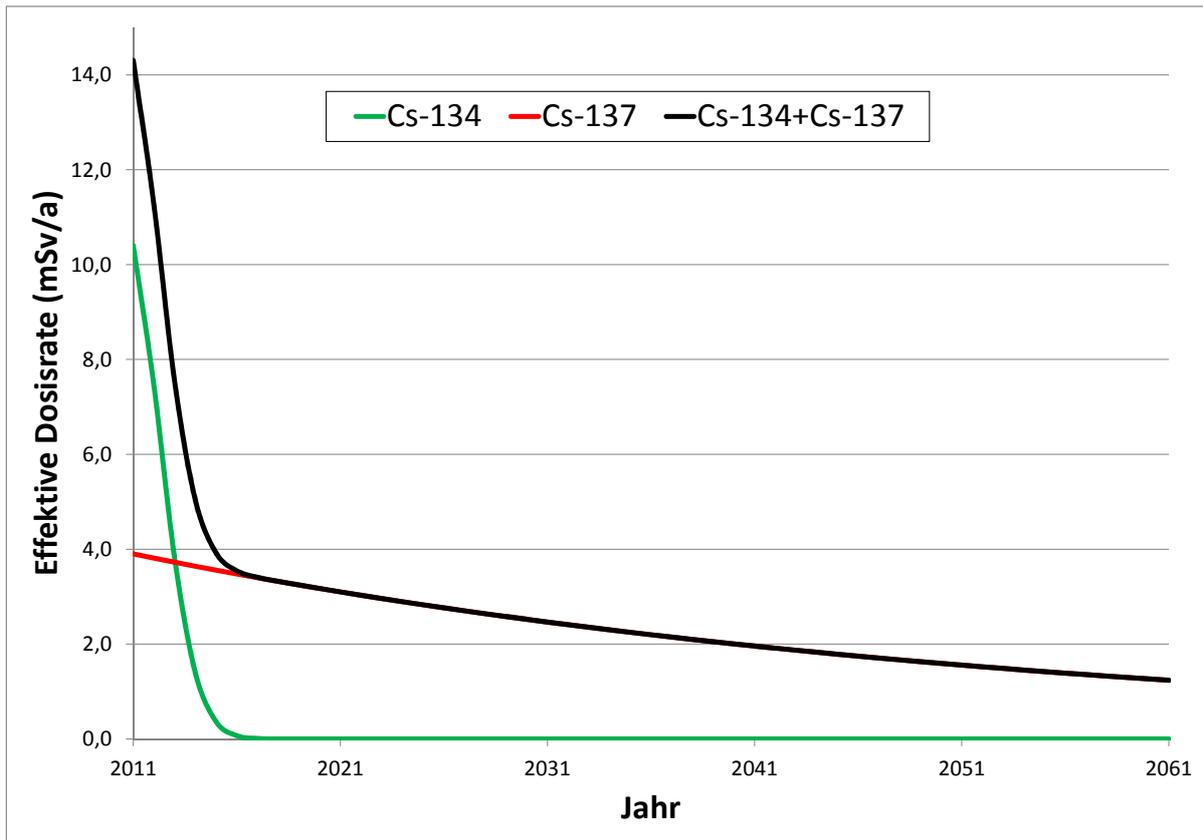


Abbildung 4.2.: Dosisratenabschätzung (basierend auf Probe 02) für Minami-soma City durch ^{134}Cs und ^{137}Cs in den ersten 50 Jahren nach dem Unfall von Fukushima. Die Abnahme verläuft nach dem Zerfallsgesetz und den Halbwertszeiten (^{134}Cs : 2,06 a; ^{137}Cs : 30,12 a).

4.3. Auswertung der Nahrungsmittelbelastung in Fukushima

Nach dem Unfall in Fukushima verordnete die japanische Regierung zur Überwachung eine kontinuierliche Durchführung von gammaspektrometrischen Messungen an Nahrungsmitteln. Hierbei wurde vor allem die potentielle Kontamination durch die Radionuklide ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^{131}I untersucht. Das japanische Gesundheitsministerium „Ministry of Health, Labour and Welfare (MHLW)“ veröffentlichte die Messwerte auf seiner Internetseite [MHL12a].

Im Folgenden wird die vom MHLW gemessene spezifische Aktivität von ^{134}Cs verschiedener Nahrungsmittelsorten aus Fukushima grafisch dargestellt und diskutiert (siehe Abbildungen 4.3 bis 4.8). Sie sind unterteilt in Zuchtfleisch, Wildfleisch, Fisch und Meeresfrüchte, Pilze, Blattgemüse und Nichtblattgemüse. Werte unterhalb der Erkennungsgrenze wurden „1“ gesetzt, um sie in den Abbildungen kenntlich zu machen. Im Anhang B.1 ist zudem eine Übersicht der einzelnen Nahrungsmittel einzusehen sowie Abbildungen zu weiteren Nahrungsmittelmessungen (Obst, Beeren und Nüsse, Bambus und Reis).

Bei der ^{134}Cs -Aktivität ist im Gegensatz zum ^{137}Cs bereits im 1. Jahr aufgrund der kurzen Halbwertszeit von 2 Jahren ein Rückgang zu erkennen. Dieses Verhalten zeigt, dass es sich um chronologische Messergebnisse aus dem ersten Jahr nach dem Unfall handelt. Aufgrund der langen Halbwertszeit vom ^{137}Cs ist ein solcher Aktivitätsrückgang beim ^{137}Cs nicht vorhanden. Die Aktivität entspricht auch nach einem Jahr näherungsweise jener zum Zeitpunkt des Unfalls.

Am 11. April 2011 wurde von der Europäischen Union (EU) eine Verordnung für die Einfuhr von Nahrungsmitteln aus Japan verabschiedet, in der neue Höchstwerte für Radionuklide in Nahrungsmitteln festgesetzt wurden [EU11]. Der Höchstwert von Radiocaesium (^{134}Cs und ^{137}Cs in der Summe) liegt für Säuglingsnahrung, Milch, Milcherzeugnissen und flüssiger Nahrung bei 200 Bq kg^{-1} . Bei sonstigen Nahrungsmitteln liegt der Höchstwert bei 500 Bq kg^{-1} . Die Werte wurden so gewählt, um eine Übereinstimmung mit den in Japan geltenden Grenzwerten sicherzustellen. Ab April 2012 wurde der japanische Grenzwert für ^{134}Cs und ^{137}Cs auf 100 Bq kg^{-1} für sonstige Nahrungsmittel herabgesetzt.

Für den Grenzwert von ^{134}Cs wird im Folgenden 250 Bq kg^{-1} beziehungsweise 50 Bq kg^{-1} (ab April 2012) gewählt.

Tabelle 4.2 zeigt die Anzahl der gemessenen Nahrungsmittelproben aus der Präfektur Fukushima sowie die Anzahl der Proben, die eine ^{134}Cs -Aktivität von mehr als 250 Bq kg^{-1} (beziehungsweise ab April 2012 mehr als 50 Bq kg^{-1}) aufweisen.

4.3. Auswertung der Nahrungsmittelbelastung in Fukushima

Tabelle 4.2.: Übersicht der Anzahl der von MHLW gemessenen Nahrungsmittelproben mit einer spezifischen Aktivität vom ^{134}Cs von mehr als 250 Bq kg^{-1} (bzw. 50 Bq kg^{-1} ab April 2012) [MHL12a]. Das Zeichen „#“ steht für „Anzahl“.

	Zeitraum	# gemessen	# über 250 (50)Bq kg ⁻¹	Anteil (%)
Blattgemüse	März 11 - Sept 11	1013	107	10,6
	Okt 11 - März 12	857	7	0,8
	April 2012	470	0	0,0
Nichtblattgemüse	März 11 - Sept 11	1735	6	0,3
	Okt 11 - März 12	1305	6	0,5
	April 2012	658	16	2,4
Obst, Beeren, Nüsse	März 11 - Sept 11	1102	20	1,8
	Okt 11 - März 12	650	5	0,8
	April 2012	6	0	0,0
Pilze	März 11 - Sept 11	547	62	11,3
	Okt 11 - März 12	432	25	5,8
	April 2012	33	1	3,0
Zuchtfleisch	März 11 - Sept 11	1482	66	4,5
	Okt 11 - März 12	5009	2	0,0
	April 2012	716	0	0,0
Wildfleisch	März 11 - Sept 11	-	-	-
	Okt 11 - März 12	253	141	55,7
	April 2012	-	-	-
Fisch & Meeresfrüchte	März 11 - Sept 11	1199	101	8,4
	Okt 11 - März 12	2376	102	4,3
	April 2012	427	97	22,7
Bambus	März 11 - Sept 11	127	55	43,3
	Okt 11 - März 12	2	1	50,0
	April 2012	18	9	50,0

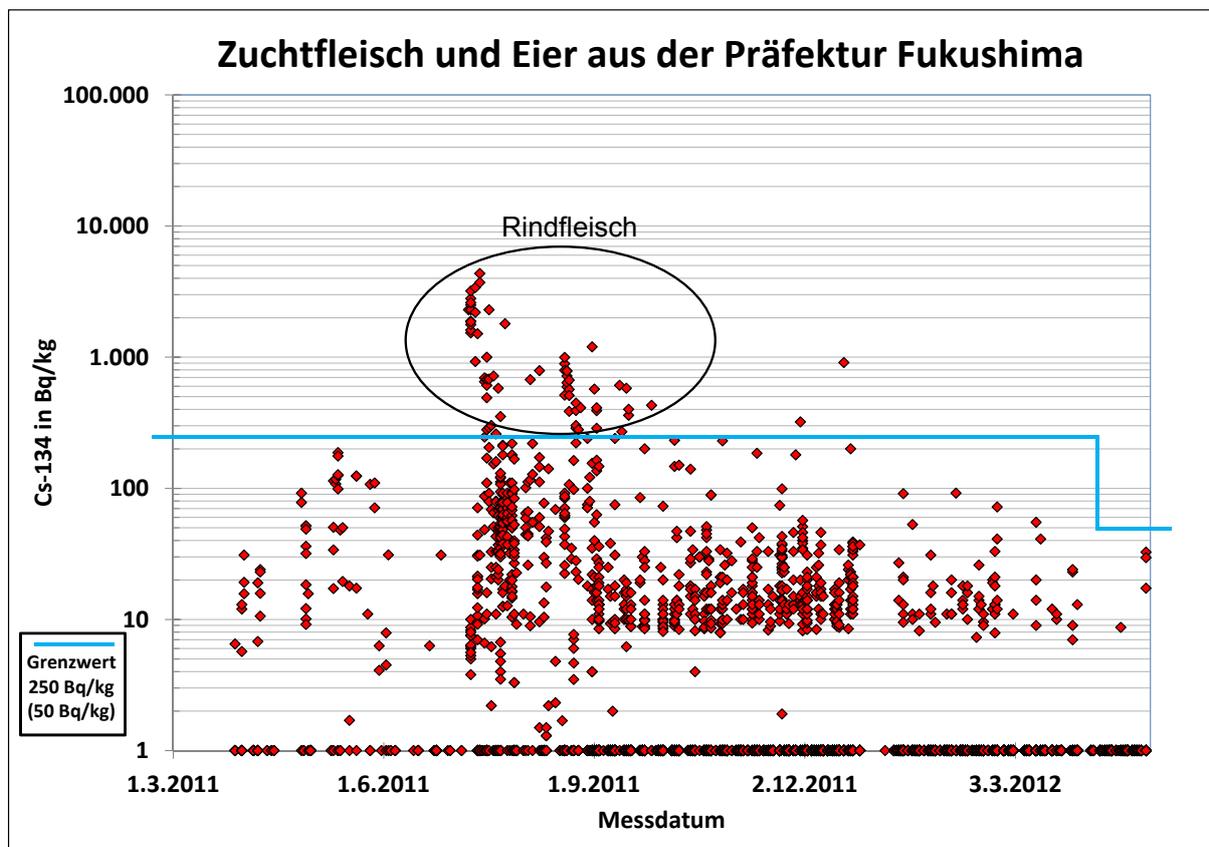


Abbildung 4.3.: Spezifische Aktivität von ^{134}Cs in Zuchtfleisch und Eiern aus der Präfektur Fukushima

Zuchtfleisch

In Abbildung 4.3 sind die Messwerte für Zuchtfleisch (zuzüglich Eier) dargestellt. Sie liegen in den ersten Monaten unterhalb des Grenzwertes. Im Juli 2011 gibt es allerdings einen sehr starken Anstieg der Caesiumkonzentration (markierter Bereich). Bei den hohen Werten des Zuchtfleisches handelt es sich ausschließlich um Rindfleisch. Die Rinder wurden mit Stroh gefüttert, das zuvor unter freiem Himmel gelagert wurde und dadurch einer direkten Kontamination ausgesetzt war [tag11a]. Der höchste Wert des Rindfleisches liegt bei 4350 Bq kg^{-1} . Im Gegensatz zum Wildfleisch (siehe Abbildung 4.4) ist im weiteren zeitlichen Verlauf ein starker Abfall der Aktivität zu erkennen, der sich durch die ausschließliche Fütterung von nicht kontaminierten Futtermitteln erklären lässt.

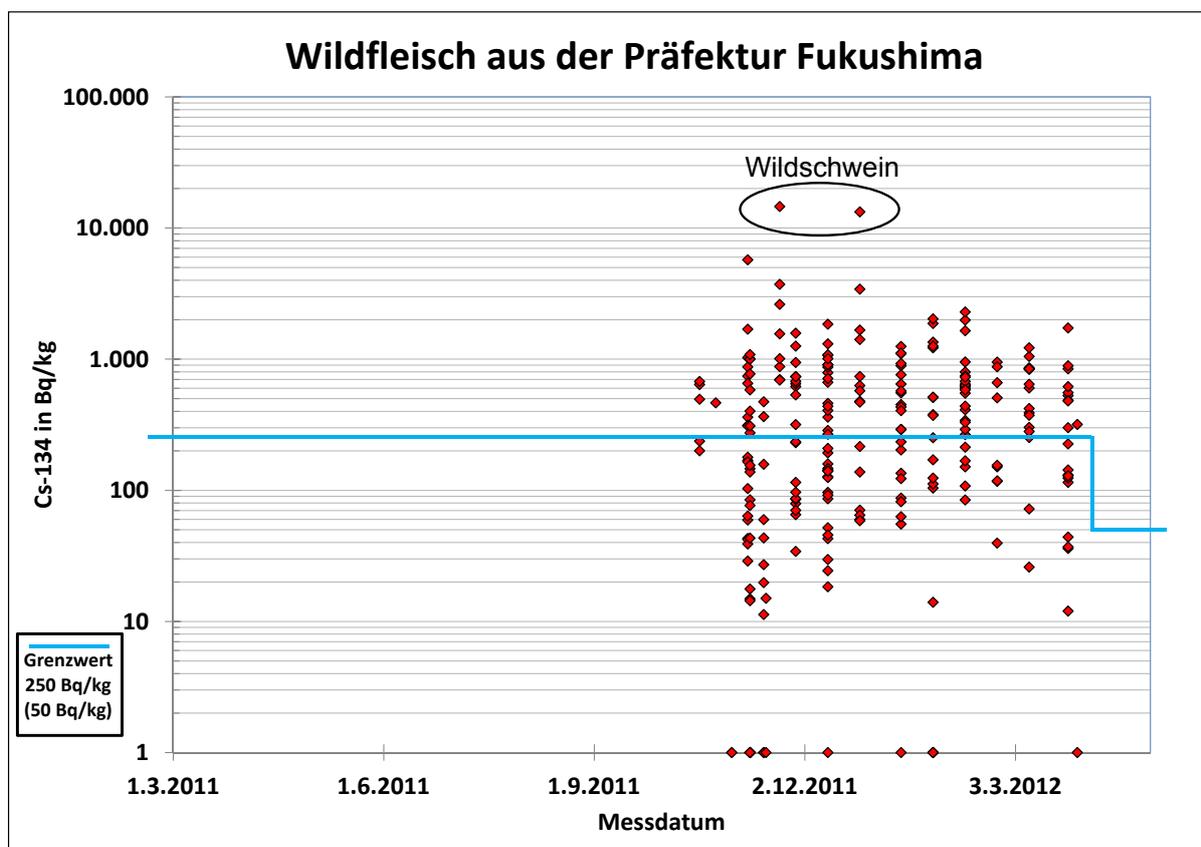


Abbildung 4.4.: Spezifische Aktivität von ¹³⁴Cs in Wildfleisch aus der Präfektur Fukushima

Wildfleisch

In Abbildung 4.4 sind die Messwerte für Wildfleisch dargestellt. Es fällt auf, dass in den ersten Monaten nach dem Unfall (März bis Oktober 2011) keine Messungen von Wildfleisch vorliegen. Dies begründet sich damit, dass die Jagdsaison erst im Herbst begann und vorher das Wildfleisch keine besondere Beachtung fand. Das Wildschweinfleisch weist die höchsten Werte auf: 14600 Bq kg^{-1} , 13300 Bq kg^{-1} (markierter Bereich). Eine Abnahme der ¹³⁴Cs-Konzentration ist in den sechs Monaten, in denen Messdaten vorliegen, nicht zu erkennen. Der Grund hierfür liegt in der kontinuierlichen Caesiumaufnahme durch kontaminierte Nahrung. Dies führt zu einer Akkumulation der Radionuklide im Wildfleisch.

4. Proben aus Japan nach dem Unfall von Fukushima

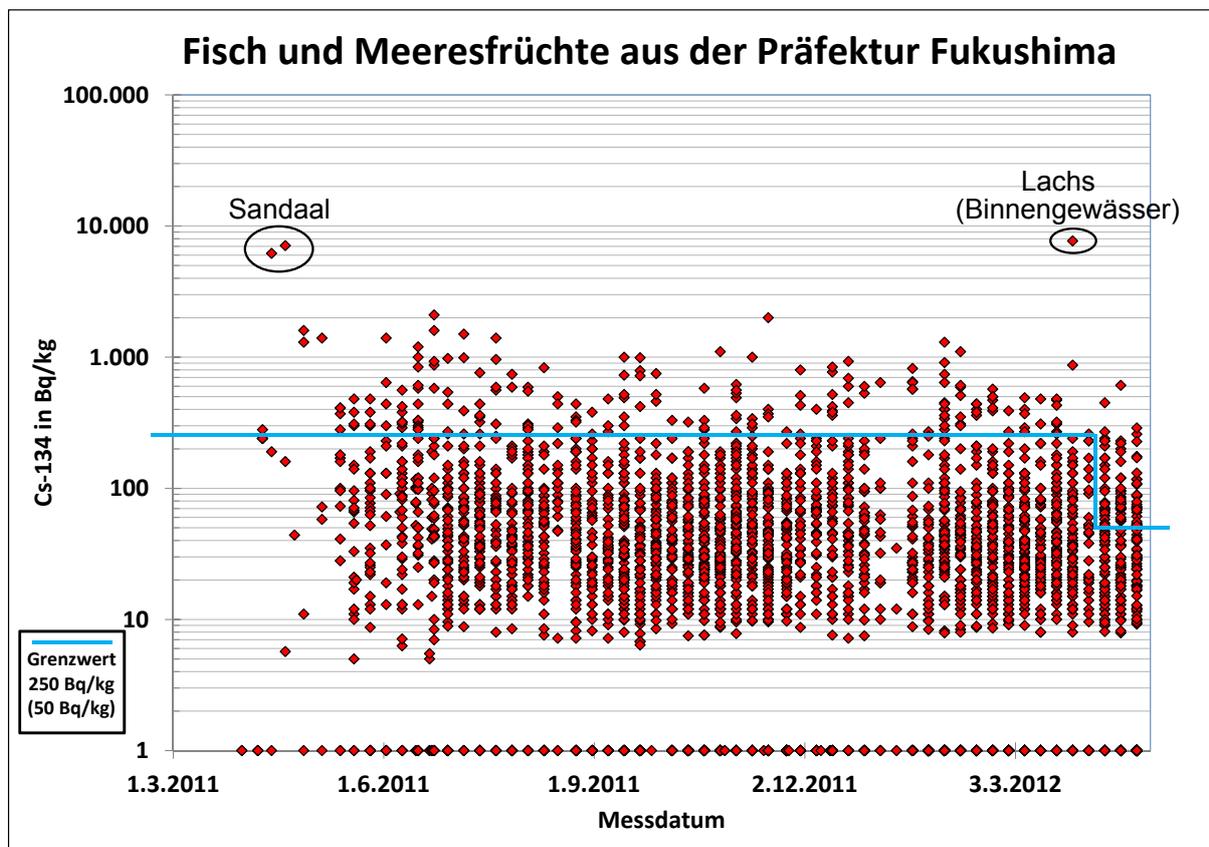


Abbildung 4.5.: Spezifische Aktivität von ^{134}Cs in Fisch und Meeresfrüchten aus der Präfektur Fukushima

Fisch und Meeresfrüchte

In Abbildung 4.5 sind die Messwerte für Fisch und Meeresfrüchte dargestellt. Der ^{134}Cs -Gehalt weist zum Teil hohe Werte von bis zu 7700 Bq kg^{-1} auf. Bei den Höchstwerten im April 2011 handelt es sich um Sandaal. Nach mehr als einem Jahr nach dem Unfall wurde im März 2012 ein weiterer Höchstwert in einer Lachsart aus Binnengewässer detektiert.

Die weiteren Messwerte liegen im Bereich bis 2000 Bq kg^{-1} . Auffällig ist, dass keine signifikante Abnahme über das erste Jahr zu erkennen ist. Dies spricht wie beim Wildfleisch für eine kontinuierliche Caesiumaufnahme durch die Nahrung.

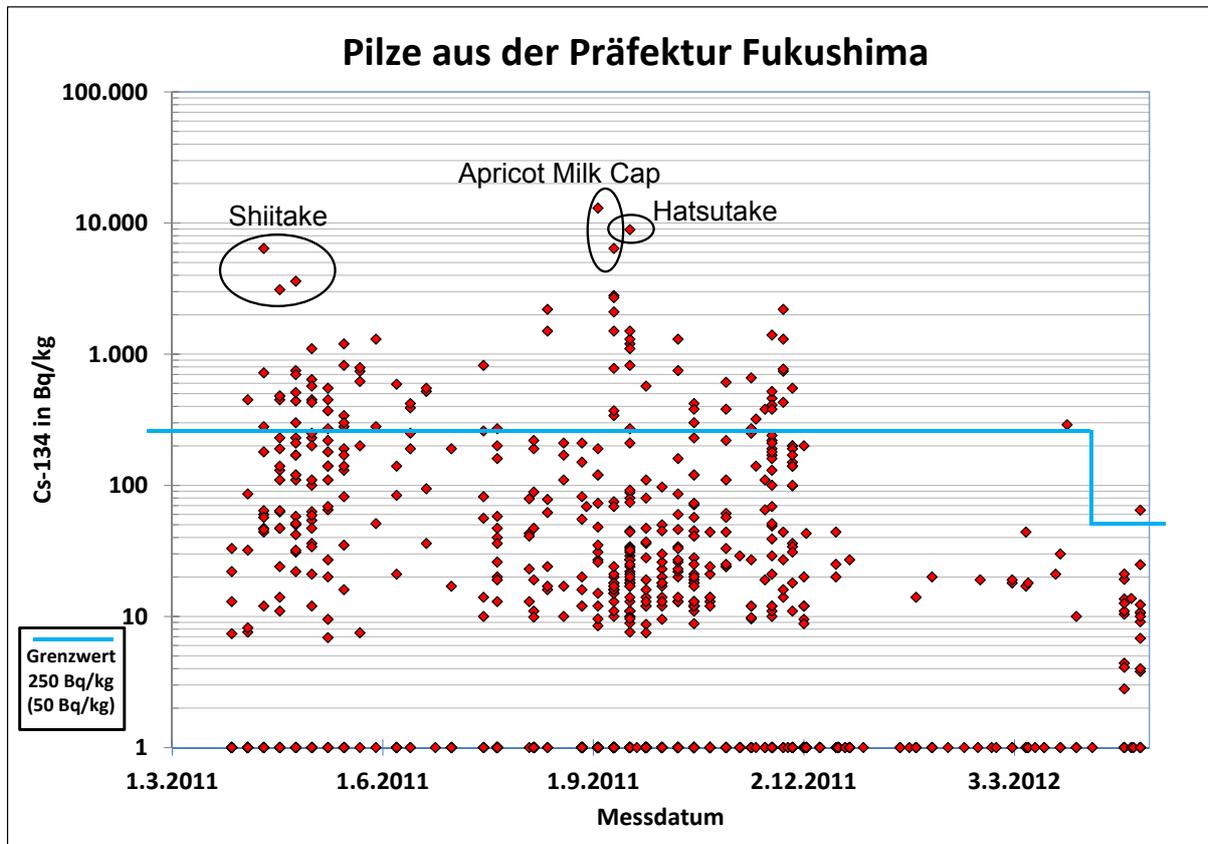


Abbildung 4.6.: Spezifische Aktivität von ^{134}Cs in Pilzen aus der Präfektur Fukushima

Pilze

Nach dem Unfall von Tschernobyl wurde radioaktives Caesium in besonders großen Mengen in Pilzen gefunden (bis zu $200.000 \text{ Bq kg}^{-1}$ ^{137}Cs [Bel98]). Die untersuchten Pilzsorten aus Fukushima sind in Diagramm 4.6 dargestellt.

Die höchsten ^{134}Cs -Werte wurden im September 2011 im Apricot Milk Cap (*Lactarius volemus*) und im Hatsutake gemessen: 13000 Bq kg^{-1} , 8900 Bq kg^{-1} , 6400 Bq kg^{-1} . Auch bei dem in Japan sehr beliebten Shiitake-Pilz (*Lentinula edodes*) wurden hohe Werte bis zu 6400 Bq kg^{-1} im April 2011 detektiert.

Eine deutliche Abnahme der Aktivität in Pilzen ist im ersten Jahr nicht zu erkennen; Frühlingspilze und Herbstpilze weisen ähnlich hohe Aktivitäten auf. Dies liegt daran, dass sich das Pilzgeflecht bei der Kontamination bereits im Boden befindet, die Radionuklide aufnimmt und erst später den Fruchtkörper bildet.

4. Proben aus Japan nach dem Unfall von Fukushima

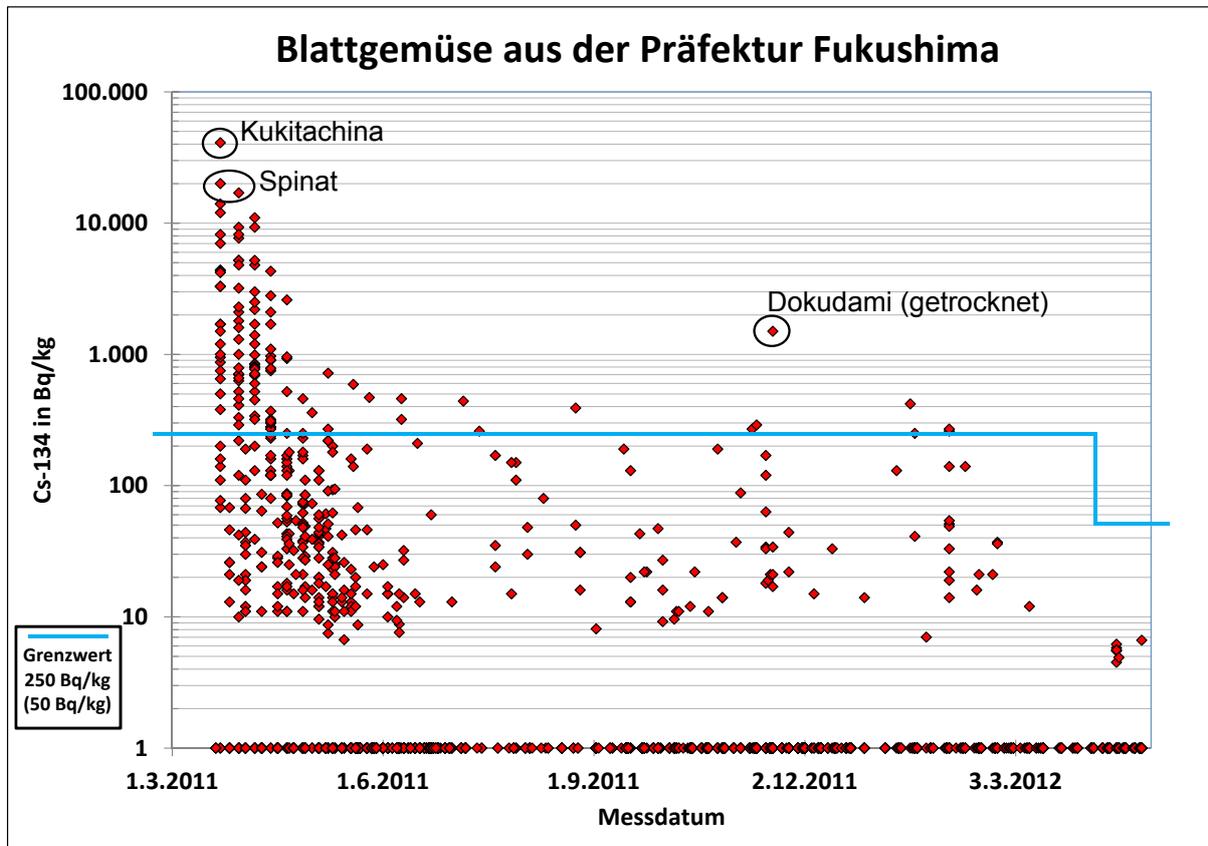


Abbildung 4.7.: Spezifische Aktivität von ^{134}Cs in Blattgemüse aus der Präfektur Fukushima

Blattgemüse und Nichtblattgemüse

Das Gemüse wurde in *Blattgemüse* und *Nichtblattgemüse* eingeteilt. Das Blattgemüse (wie zum Beispiel Spinat) kann einer direkten Kontamination mit Radionukliden aus der Luft ausgesetzt sein. Zum Nichtblattgemüse gehören Gemüsesorten, bei denen vor allem der Fruchtkörper (zum Beispiel Paprika) oder die Wurzel (zum Beispiel Karotten) zum Verzehr geeignet sind. Die Radionuklide werden hier hauptsächlich indirekt vom Boden durch die Pflanze aufgenommen und in den entsprechenden Stellen eingelagert. In den Abbildungen 4.7 und 4.8 sind die Messwerte der Blatt- und Nichtblattgemüsesorten dargestellt.

Die höchsten gemessenen Werte für Blattgemüse wurden kurz nach dem Unfall im März 2011 im Kukitachina-Salat (41000 Bq kg^{-1}) und im Spinat (20000 Bq kg^{-1} und 17000 Bq kg^{-1}) gemessen.

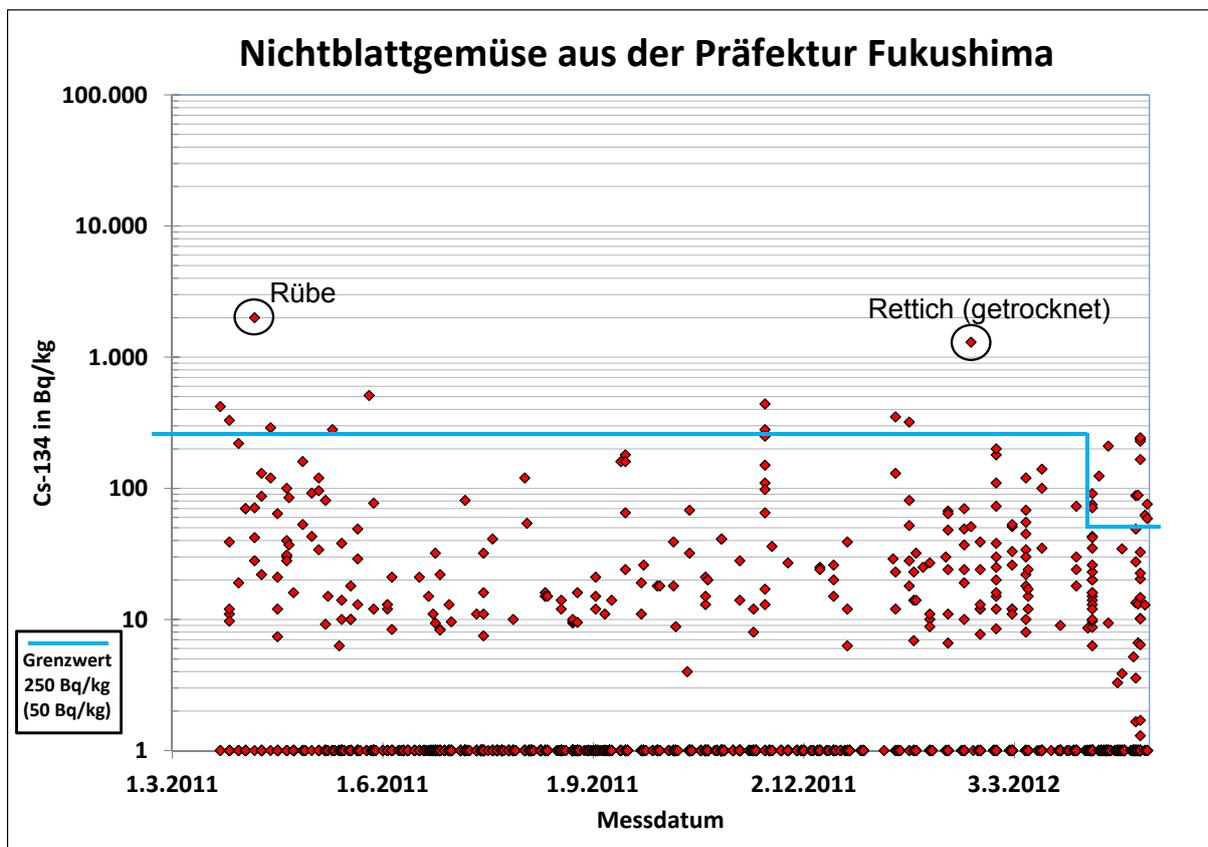


Abbildung 4.8.: Spezifische Aktivität von ^{134}Cs in Nichtblattgemüse aus der Präfektur Fukushima

Bei den höheren Messwerten, die sich in den späteren Monaten von den restlichen abheben (Dezember 2011 beim Blattgemüse, Februar 2012 beim Nichtblattgemüse), handelt es sich um *getrockneten* Dokudami beziehungsweise *getrockneten* Rettich. Die getrockneten Nahrungsmittel sind für den jeweiligen Monat nicht repräsentativ, da sie bereits früher geerntet wurden und damit zum Teil einen höheren Caesiumgehalt besitzen.

Ingestionsdosis

Die Ingestionsdosis beschreibt die interne Strahlenexposition durch Radionuklide, die durch Nahrungsaufnahme in den Körper gelangen. Für ihre Berechnung werden die mittlere Verzehrsmenge verschiedener Nahrungsmittel sowie verschiedene Altersgruppen berücksichtigt. Diese Werte sind zum Beispiel in der *Strahlenschutzverordnung* aufgelistet [Str12].

Das japanische Gesundheitsministerium (MHLW) ermittelte auf Grundlage seiner gammaspektrometrischen Nahrungsmittelmessungen im September und November 2011 eine mittlere Ingestionsdosisrate von $0,2 \text{ mSv a}^{-1}$ durch die Radionuklide ^{134}Cs , ^{137}Cs und ^{40}K für die Präfektur Fukushima [MHL12b]. Weitere Analysen der internen Strahlenexposition belegen für die Präfektur Fukushima, dass die Ingestionsdosis im 1. Jahr nach dem Unfall deutlich unter 1 mSv liegt [Mic12].

Die verhältnismäßig geringe Ingestionsdosis ist vor allem darauf zurückzuführen, dass Nahrungsmittel mit einer spezifischen Radiocaesium-Aktivität (^{134}Cs und ^{137}Cs in der Summe) oberhalb des Grenzwertes von 500 Bq kg^{-1} direkt vom Markt genommen wurden und nicht als Nahrung in Umlauf gelangten.

Zusammenfassung

In dieser Arbeit wurden verschiedene Umweltproben gammaspektrometrisch untersucht. Es handelte sich um Bodenproben aus sechs Orten in Deutschland, eine Partikelsammlung aus der Luft, eine Salzlauge aus einer Tiefenbohrung und ein Immobilisat aus einer Wasserbehandlungsanlage in einer Uranerzbergbauregion. Desweiteren wurden zwei Bodenproben aus der Präfektur Fukushima (Japan) untersucht, die nach dem Unfall des Kernkraftwerks im März 2011 von besonderer radiologischer Bedeutung sind. Es wurden zudem die Nahrungsmittelmessungen des japanischen Gesundheitsministeriums (MHLW) ausgewertet und diskutiert [MHL12a].

Bodenproben aus Deutschland

In den Bodenproben aus sechs Orten und je fünf Tiefenschichten konnten Radionuklide der natürlichen Zerfallsreihen sowie ^{40}K und das künstliche Nuklid ^{137}Cs nachgewiesen werden. Die spezifische Aktivität des ^{40}K weist in allen Proben jeweils den höchsten Wert auf; dieser ist über das jeweilige Tiefenprofil relativ konstant, er hängt jedoch stark von der Bodenbeschaffenheit ab: Böden mit einem hohen Sandanteil weisen eine geringe ^{40}K -Aktivität auf (Beispiel: Potsdam $(235 \pm 3) \text{ Bq kg}^{-1}$ im Durchschnitt); Böden, die einen hohen Tonanteil besitzen, weisen eine hohe ^{40}K -Aktivität auf (Beispiel: Nürnberg $(962 \pm 8) \text{ Bq kg}^{-1}$ im Durchschnitt).

Desweiteren wurden die Depositionsdichten von ^{137}Cs ermittelt. Diese liegen zwischen $(3,7 \pm 0,5) \text{ kBq m}^{-2}$ (Nürnberg) und $(5,8 \pm 0,8) \text{ kBq m}^{-2}$ (Görlitz). Die höchste spezifische Aktivität des ^{137}Cs wurde in der obersten Schicht der Potsdamer Probe detektiert $((41,8 \pm 2,1) \text{ Bq kg}^{-1})$. Dies lässt sich mit dem hohen Anteil von organischer Substanz in dieser Schicht erklären.

Abschließende Abschätzungen der effektiven Dosisrate ergaben Werte zwischen 20 nSv h^{-1} (Potsdam) und 61 nSv h^{-1} (Nürnberg).

Partikelsammlung in bodennaher Luft

Die Partikelsammlung wurde mit einem Pumpensystem durchgeführt, durch das pro Woche 10.000 m³ Außenluft gesogen wurden. Der interne Glasfaserfilter wurde wöchentlich gewechselt und gammaspektrometrisch untersucht.

Es konnten auf den Filtern die Radionuklide ⁷Be, ²¹⁰Pb, ¹³⁷Cs und ⁴⁰K nachgewiesen werden. Diese wurden mit Messreihen der letzten Jahrzehnte der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt (PTB) verglichen.

Die Aktivitätskonzentration von ⁷Be weist in jeder Messung den höchsten nachgewiesenen Wert auf und liegt im gemessenen Zeitraum relativ konstant zwischen 1 mBq m⁻³ und 3 mBq m⁻³.

Die Aktivitätskonzentration von ²¹⁰Pb zeigt große Schwankungen zwischen 60 µBq m⁻³ und 1 mBq m⁻³. Dieses Verhalten begründet sich mit der unterschiedlich starken atmosphärischen Auswaschung durch Niederschläge.

Mit durchschnittlich 8 µBq m⁻³ liegt die ¹³⁷Cs-Aktivitätskonzentration leicht über den Durchschnittswerten der letzten Jahre der PTB. Sie zeigt jedoch ein ähnliches Verhalten wie das ²¹⁰Pb, was ein Hinweis auf Auswaschung des Radionuklids aus Fukushima sein kann.

Salzlauge aus einer Tiefenbohrung

Bei der gammaspektrometrischen Untersuchung der Salzlauge aus einer Tiefenbohrung von 4000 m Teufe liegen die höchsten spezifischen Aktivitäten beim ⁴⁰K ((213 ± 26) Bq kg⁻¹) und beim ²¹⁰Pb ((197 ± 36) Bq kg⁻¹). Die Radionuklide gelangen aus gelösten Salzverbindungen der tiefen Gesteinsschichten in die Flüssigkeit. Auch die Radium-Isotope ²²⁶Ra und ²²⁸Ra konnten mit jeweils (31 ± 3) Bq kg⁻¹ in der Lauge nachgewiesen werden.

Eine Einzelprobe der das Bohrloch verstopfenden Salzbrücke weist hingegen 80-mal höhere Radiumaktivitäten auf (²²⁶Ra: (2404 ± 77) Bq kg⁻¹, ²²⁸Ra: (2325 ± 115) Bq kg⁻¹). Der hohe Radiumgehalt der Salzbrücke resultiert mit großer Wahrscheinlichkeit aus der Vergesellschaftung mit dem bariumhaltigen Baryt.

Im Vergleich zu Messungen in der Geothermieanlage Neustadt-Glewe [Deg10] betragen die Aktivitäten der Salzlauge ungefähr das Dreifache. Ein großer Teil der Scalemessungen von Neustadt-Glewe weist jedoch bis zu 100-fach höhere Aktivitäten als die Salzbrücke auf.

Immobilisat aus einer Uranerzbergbauregion

Im Fällungsrückstand der Wasserbehandlungsanlage Schlema-Alberoda in der Uranerzbergbauregion des Erzgebirges ließ sich bei der gamma-spektrometrischen Untersuchung ein sehr hoher Urananteil nachweisen. Die spezifische Aktivität von ^{238}U liegt bei $(133680 \pm 5050) \text{ Bq kg}^{-1}$, die von ^{235}U bei $(5325 \pm 276) \text{ Bq kg}^{-1}$. Die Probe ist aus diesem Grund ein gutes Beispiel für den anthropogenen Eingriff in die Umwelt.

Bodenproben und Nahrungsmittelbelastung in Fukushima

In den zwei untersuchten Bodenproben aus der Präfektur Fukushima konnten sehr stark erhöhte ^{137}Cs -Konzentrationen nachgewiesen werden, die beim Unfall des Kraftwerks Fukushima Dai-ichi im März 2011 freigesetzt wurden. Eine Rückrechnung der Messwerte zum 14.03.2011 ergibt eine spezifische ^{137}Cs -Aktivität von $(6581 \pm 323) \text{ Bq kg}^{-1}$. Mit ^{134}Cs und $^{110\text{m}}\text{Ag}$ konnten zwei weitere künstliche Radionuklide in den Proben detektiert werden. Die spezifische Aktivität liegt zum Referenzdatum für ^{134}Cs bei $(6547 \pm 160) \text{ Bq kg}^{-1}$ und für $^{110\text{m}}\text{Ag}$ bei $(54,3 \pm 1,4) \text{ Bq kg}^{-1}$.

Die Auswertung der Nahrungsmittelbelastung in Fukushima in den ersten 13 Monaten nach dem Unfall zeigt für Zuchtfleisch und Blattgemüse eine deutliche Abnahme mit Höchstwerten von 4350 Bq kg^{-1} (Rindfleisch, Juli 2011) beziehungsweise $41.000 \text{ Bq kg}^{-1}$ (Kukitachina-Salat, März 2011) und $20.000 \text{ Bq kg}^{-1}$ (Spinat, März 2011) bis deutlich unter 50 Bq kg^{-1} im April 2012.

Bei Wildfleisch, Fisch und Meeresfrüchten ist dagegen über den gemessenen Zeitraum keine signifikante Aktivitätsabnahme des ^{134}Cs zu erkennen. Der Grund hierfür ist die kontinuierliche Aufnahme von Aktivität durch kontaminierte Nahrung. Die Messwerte von Wildfleisch und Fisch liegen zu einem großen Teil auch ein Jahr nach dem Unfall deutlich über dem gesetzlichen Höchstwert von 250 Bq kg^{-1} (Wildschweinfleisch: 1730 Bq kg^{-1} , Lachs aus Binnengewässer: 7700 Bq kg^{-1} in Einzelproben im März 2012).

Abschätzungen vom MHLW zur Ingestionsdosis in der Präfektur Fukushima im 1. Jahr nach dem Unfall ergeben Werte deutlich unter 1 mSv [MHL12b]. Diese relativ geringe Ingestionsdosis ist darauf zurückzuführen, dass belastete Nahrungsmittel direkt vom Markt genommen wurden.

ANHANG A

Angaben zu Software und Detektor; Dosiswerte

Tabelle A.1.: Verwendete Software

Anwendung	Software
Textverarbeitung	T _E XnicCenter mit MiK _T E _X 2.9
Tabellenkalkulation & Messdatenplot	Microsoft Excel 2010 QtiPlot 2010
Bildbearbeitung	Inkscape 0.48 GIMP 2.6.11
Auswertung der Gammaspektren	FitzPeaks32 – Gamma Analysis and Calibration software (3.66) (Jim Fitzgerald)

Tabelle A.2.: Daten des verwendeten Gamma-Detektors

Detektortyp	P-Typ, koaxial
Hersteller	Canberra
Modellbezeichnung	GX3018
Seriennummer	b 99154
Betriebsspannung	+4500 V
Kristalldurchmesser	60 mm
Kristalllänge	53,5 mm
Material des Fensters	Carbon-Epoxy
Abstand Fenster - Kristall	5 mm
Relative Efficiency	35 %
Peak-Compton-Verhältnis	58:1
FWHM (122 keV)	0,875 keV
FWHM (1332 keV)	1,8 keV

A. Angaben zu Software und Detektor; Dosiswerte

Dosis	
0,01 mSv pro Jahr	Höchste jährliche Dosis einer Person im Umkreis eines Kernkraftwerks unter Normalbedingungen
0,01-0,03 mSv	Dosis bei einer Röntgenaufnahme des Brustkorbs (Thorax)
Bis zu 0,1 mSv	Dosis durch Höhenstrahlung bei einem Flug von München nach Japan
1 mSv pro Jahr	Grenzwert (maximal zulässige Dosis) für die jährliche Strahlenexposition einer Person der Normalbevölkerung aus Tätigkeiten, u.a. aus dem Betrieb kerntechnischer Anlagen in Deutschland
2 mSv pro Jahr	Durchschnittliche jährliche Dosis einer Person in Deutschland aus künstlichen Quellen, vornehmlich Medizin (Wert für 2009 = 1,8 mSv)
2 mSv in 50 Jahren	Gesamte Dosis für eine Person im Voralpengebiet auf Grund des Reaktorunfalls von Tschernobyl für den Zeitraum 1986-2036
2-3 mSv pro Jahr	Durchschnittliche jährliche Strahlenexposition der Bevölkerung in Deutschland aus natürlichen Quellen
10-20 mSv	Ungefährte Dosis für eine Ganzkörper-Computertomographie eines Erwachsenen
20 mSv pro Jahr	Grenzwert (maximal zulässige Dosis) der jährlichen Strahlenexposition für beruflich strahlenexponierte Personen in Deutschland
100 mSv	Schwellendosis für angebotene Fehlbildungen oder Tod des Fetus
100 mSv	Bei dieser Dosis treten in einer Bevölkerungsgruppe etwa 1% zusätzliche Krebs- und Leukämiefälle auf
250 mSv	Grenzwert (maximal zulässige Dosis) für eine Person beim Einsatz lebensrettender Maßnahmen oder zur Vermeidung großer Katastrophen in Deutschland
400 mSv	Grenzwert (maximal zulässige Dosis) für die Berufslebensdosis bei beruflich strahlenexponierten Personen in Deutschland
500 mSv*	Bei akuter Exposition treten ab dieser Schwellendosis Hautrötungen auf
1000 mSv*	Bei akuter Exposition treten ab dieser Schwellendosis akute Strahleneffekte auf (zum Beispiel Übelkeit, Erbrechen)
1000 mSv	Bei dieser Dosis treten in einer Bevölkerungsgruppe etwa 10% zusätzliche Krebs- und Leukämiefälle auf
3000 – 4000 mSv	Ohne medizinische Eingreifen sterben bei dieser Dosis 50% der exponierten Personen nach 3-6 Wochen, wenn es sich um eine in kurzer Zeit erhaltene Strahlenbelastung handelt
> 8.000 mSv	Ohne entsprechende medizinische Behandlung bestehen nur geringe Überlebenschancen, wenn es sich um eine in kurzer Zeit erhaltene Strahlenbelastung handelt

* Um die Vergleichbarkeit mit den ansonsten in Sievert (Sv) angegebenen Messwerten zu ermöglichen, ist der Wert hier ebenfalls in Sievert angegeben; wissenschaftlich präziser wäre die Angabe in Gray (Gy).

Tabelle A.3.: Übersicht von Dosis- und Grenzwerten (Quelle: BfS, [Bun12]).

ANHANG B

Tabellen mit Messergebnissen

Tabelle B.1.: Ergebnisse der Bodenproben aus Schleswig. Werte mit „<“ geben die Erkennungsgrenze an.

Tiefe	Uran-Radium-Reihe					
	U-238		Ra-226		Pb-210	
	<i>a</i> (Bq kg ⁻¹)	<i>u(a)</i> (Bq kg ⁻¹)	<i>a</i> (Bq kg ⁻¹)	<i>u(a)</i> (Bq kg ⁻¹)	<i>a</i> (Bq kg ⁻¹)	<i>u(a)</i> (Bq kg ⁻¹)
00 - 05 cm	12,8	4,7	22,0	0,8	35,5	7,5
05 - 10 cm	14,3	3,8	21,1	0,7	23,5	4,4
10 - 20 cm	15,0	4,6	21,4	0,7	15,8	5,0
20 - 30 cm	17,2	4,8	24,3	0,7	17,3	4,5

Tiefe	U-Ac-Reihe		Thorium-Reihe			
	Ac-227		Ra-228		Th-228	
	<i>a</i> (Bq kg ⁻¹)	<i>u(a)</i> (Bq kg ⁻¹)	<i>a</i> (Bq kg ⁻¹)	<i>u(a)</i> (Bq kg ⁻¹)	<i>a</i> (Bq kg ⁻¹)	<i>u(a)</i> (Bq kg ⁻¹)
00 - 05 cm	< 1,9	—	19,8	1,3	20,3	0,9
05 - 10 cm	< 1,7	—	19,5	1,1	20,3	0,9
10 - 20 cm	< 1,8	—	20,5	1,3	21,1	1,0
20 - 30 cm	< 1,9	—	22,3	1,3	23,9	1,0

Tiefe	Cs-137		K-40		Schleswig Referenzdatum: 05.05.2012
	<i>a</i> (Bq kg ⁻¹)	<i>u(a)</i> (Bq kg ⁻¹)	<i>a</i> (Bq kg ⁻¹)	<i>u(a)</i> (Bq kg ⁻¹)	
00 - 05 cm	20,2	1,1	469	5	
05 - 10 cm	18,2	0,9	480	4	
10 - 20 cm	8,9	0,5	498	5	
20 - 30 cm	2,8	0,2	528	5	

Tabelle B.2.: Ergebnisse der **Bodenproben aus Hannover (Langenhagen)**. Werte mit „<“ geben die Erkennungsgrenze an.

Tiefe	Uran-Radium-Reihe					
	U-238		Ra-226		Pb-210	
	<i>a</i> (Bq kg ⁻¹)	<i>u(a)</i> (Bq kg ⁻¹)	<i>a</i> (Bq kg ⁻¹)	<i>u(a)</i> (Bq kg ⁻¹)	<i>a</i> (Bq kg ⁻¹)	<i>u(a)</i> (Bq kg ⁻¹)
00 - 05 cm	17,9	6,3	20,4	0,7	33,9	11,1
05 - 10 cm	22,2	7,1	20,2	0,7	26,8	8,8
10 - 20 cm	21,1	7,0	22,3	0,8	24,4	12,9
20 - 30 cm	19,6	6,8	22,6	0,8	25,3	11,6
30 - 50 cm	19,9	6,6	23,3	0,8	18,3	7,5

Tiefe	U-Ac-Reihe		Thorium-Reihe			
	Ac-227		Ra-228		Th-228	
	<i>a</i> (Bq kg ⁻¹)	<i>u(a)</i> (Bq kg ⁻¹)	<i>a</i> (Bq kg ⁻¹)	<i>u(a)</i> (Bq kg ⁻¹)	<i>a</i> (Bq kg ⁻¹)	<i>u(a)</i> (Bq kg ⁻¹)
00 - 05 cm	< 1,6	—	18,8	1,3	18,8	0,9
05 - 10 cm	< 1,7	—	20,1	1,3	19,2	0,9
10 - 20 cm	< 1,7	—	21,1	1,4	20,9	1,0
20 - 30 cm	< 1,6	—	21,6	1,4	21,5	1,0
30 - 50 cm	< 1,8	—	21,1	1,4	21,2	1,0

Tiefe	Cs-137		K-40		Hannover Referenzdatum: 14.12.2011
	<i>a</i> (Bq kg ⁻¹)	<i>u(a)</i> (Bq kg ⁻¹)	<i>a</i> (Bq kg ⁻¹)	<i>u(a)</i> (Bq kg ⁻¹)	
00 - 05 cm	14,4	0,8	374	5	
05 - 10 cm	13,9	0,8	368	5	
10 - 20 cm	8,6	0,5	391	5	
20 - 30 cm	3,5	0,3	404	5	
30 - 50 cm	1,8	0,2	392	5	

Tabelle B.3.: Ergebnisse der **Bodenproben aus Potsdam**. Werte mit „<“ geben die Erkennungsgrenze an.

Tiefe	Uran-Radium-Reihe					
	U-238		Ra-226		Pb-210	
	<i>a</i> (Bq kg ⁻¹)	<i>u(a)</i> (Bq kg ⁻¹)	<i>a</i> (Bq kg ⁻¹)	<i>u(a)</i> (Bq kg ⁻¹)	<i>a</i> (Bq kg ⁻¹)	<i>u(a)</i> (Bq kg ⁻¹)
00 - 05 cm	8,7	3,5	9,2	0,3	43,3	5,8
05 - 10 cm	10,0	4,6	9,7	0,4	14,7	5,1
10 - 20 cm	10,4	4,2	9,5	0,4	8,9	5,0
20 - 30 cm	7,2	4,1	9,0	0,4	< 10,0	—
30 - 50 cm	8,0	3,8	8,2	0,3	< 8,9	—

Tiefe	U-Ac-Reihe		Thorium-Reihe			
	Ac-227		Ra-228		Th-228	
	<i>a</i> (Bq kg ⁻¹)	<i>u(a)</i> (Bq kg ⁻¹)	<i>a</i> (Bq kg ⁻¹)	<i>u(a)</i> (Bq kg ⁻¹)	<i>a</i> (Bq kg ⁻¹)	<i>u(a)</i> (Bq kg ⁻¹)
00 - 05 cm	< 1,2	—	9,4	0,7	9,3	0,4
05 - 10 cm	< 1,3	—	9,7	0,7	9,5	0,5
10 - 20 cm	< 1,4	—	9,7	0,7	9,7	0,5
20 - 30 cm	< 1,4	—	9,0	0,7	8,9	0,5
30 - 50 cm	< 0,9	—	8,5	0,6	8,3	0,4

Tiefe	Cs-137		K-40		Potsdam Referenzdatum: 06.12.2011
	<i>a</i> (Bq kg ⁻¹)	<i>u(a)</i> (Bq kg ⁻¹)	<i>a</i> (Bq kg ⁻¹)	<i>u(a)</i> (Bq kg ⁻¹)	
00 - 05 cm	41,8	2,1	235	2	
05 - 10 cm	8,9	0,5	240	3	
10 - 20 cm	2,2	0,2	247	3	
20 - 30 cm	0,6	0,1	230	3	
30 - 50 cm	< 0,3	—	222	2	

Tabelle B.4.: Ergebnisse der **Bodenproben aus Görlitz**. Werte mit „<“ geben die Erkennungsgrenze an.

Tiefe	Uran-Radium-Reihe					
	U-238		Ra-226		Pb-210	
	a (Bq kg ⁻¹)	$u(a)$ (Bq kg ⁻¹)	a (Bq kg ⁻¹)	$u(a)$ (Bq kg ⁻¹)	a (Bq kg ⁻¹)	$u(a)$ (Bq kg ⁻¹)
00 - 05 cm	23,3	7,8	27,6	0,9	44,1	11,2
05 - 10 cm	25,8	8,1	30,1	1,0	37,3	9,4
10 - 20 cm	24,9	7,4	30,3	1,0	27,2	7,4
20 - 30 cm	22,1	6,8	26,2	0,9	25,0	7,4
30 - 50 cm	20,2	5,8	20,9	0,7	23,6	7,2

Tiefe	U-Ac-Reihe		Thorium-Reihe			
	Ac-227		Ra-228		Th-228	
	a (Bq kg ⁻¹)	$u(a)$ (Bq kg ⁻¹)	a (Bq kg ⁻¹)	$u(a)$ (Bq kg ⁻¹)	a (Bq kg ⁻¹)	$u(a)$ (Bq kg ⁻¹)
00 - 05 cm	< 2,5	—	28,9	1,8	28,5	1,3
05 - 10 cm	< 2,7	—	30,7	1,9	30,3	1,6
10 - 20 cm	< 2,7	—	30,6	1,9	30,4	1,4
20 - 30 cm	< 2,3	—	26,0	1,6	26,1	1,2
30 - 50 cm	< 2,2	—	21,7	1,3	22,3	1,0

Tiefe	Cs-137		K-40		Görlitz Referenzdatum: 26.01.2012
	a (Bq kg ⁻¹)	$u(a)$ (Bq kg ⁻¹)	a (Bq kg ⁻¹)	$u(a)$ (Bq kg ⁻¹)	
00 - 05 cm	13,3	0,7	527	7	
05 - 10 cm	15,1	0,9	553	7	
10 - 20 cm	13,9	0,8	563	7	
20 - 30 cm	7,5	0,4	463	6	
30 - 50 cm	1,4	0,2	420	5	

Tabelle B.5.: Ergebnisse der **Bodenproben aus Nürnberg**. Werte mit „<“ geben die Erkennungsgrenze an.

Tiefe	Uran-Radium-Reihe					
	U-238		Ra-226		Pb-210	
	a (Bq kg ⁻¹)	$u(a)$ (Bq kg ⁻¹)	a (Bq kg ⁻¹)	$u(a)$ (Bq kg ⁻¹)	a (Bq kg ⁻¹)	$u(a)$ (Bq kg ⁻¹)
00 - 05 cm	37,5	9,4	32,8	1,1	54,2	11,9
05 - 10 cm	35,5	9,5	35,1	1,1	29,1	8,7
10 - 20 cm	25,5	7,5	34,3	1,1	26,7	8,5
20 - 30 cm	28,9	9,1	40,5	1,3	29,2	10,4
30 - 50 cm	29,0	8,6	45,4	1,4	38,5	11,2

Tiefe	U-Ac-Reihe		Thorium-Reihe			
	Ac-227		Ra-228		Th-228	
	a (Bq kg ⁻¹)	$u(a)$ (Bq kg ⁻¹)	a (Bq kg ⁻¹)	$u(a)$ (Bq kg ⁻¹)	a (Bq kg ⁻¹)	$u(a)$ (Bq kg ⁻¹)
00 - 05 cm	< 2,6	—	30,5	1,9	31,0	1,4
05 - 10 cm	< 2,4	—	33,5	2,1	33,5	1,5
10 - 20 cm	< 2,8	—	34,9	2,1	35,7	1,6
20 - 30 cm	< 2,9	—	41,4	2,5	40,8	1,8
30 - 50 cm	< 2,9	—	40,8	2,4	41,1	1,9

Tiefe	Cs-137		K-40		Nürnberg Referenzdatum: 01.03.2012
	a (Bq kg ⁻¹)	$u(a)$ (Bq kg ⁻¹)	a (Bq kg ⁻¹)	$u(a)$ (Bq kg ⁻¹)	
00 - 05 cm	13,7	0,8	825	7	
05 - 10 cm	11,6	0,7	892	8	
10 - 20 cm	9,4	0,6	925	8	
20 - 30 cm	6,3	0,4	1092	9	
30 - 50 cm	2,1	0,2	1076	9	

Tabelle B.6.: Ergebnisse der **Bodenproben aus Lahr**. Werte mit „<“ geben die Erkennungsgrenze an.

Tiefe	Uran-Radium-Reihe					
	U-238		Ra-226		Pb-210	
	<i>a</i> (Bq kg ⁻¹)	<i>u(a)</i> (Bq kg ⁻¹)	<i>a</i> (Bq kg ⁻¹)	<i>u(a)</i> (Bq kg ⁻¹)	<i>a</i> (Bq kg ⁻¹)	<i>u(a)</i> (Bq kg ⁻¹)
00 - 05 cm	42,4	11,2	47,5	1,5	57,5	11,5
05 - 10 cm	41,0	10,4	46,3	1,4	48,4	10,5
10 - 20 cm	44,8	11,0	49,3	1,5	45,9	11,1
20 - 30 cm	41,2	10,5	52,1	1,6	39,0	10,0
30 - 50 cm	45,2	11,3	54,4	1,7	39,7	11,7

Tiefe	U-Ac-Reihe		Thorium-Reihe			
	Ac-227		Ra-228		Th-228	
	<i>a</i> (Bq kg ⁻¹)	<i>u(a)</i> (Bq kg ⁻¹)	<i>a</i> (Bq kg ⁻¹)	<i>u(a)</i> (Bq kg ⁻¹)	<i>a</i> (Bq kg ⁻¹)	<i>u(a)</i> (Bq kg ⁻¹)
00 - 05 cm	< 3,3	—	49,0	2,8	49,6	2,2
05 - 10 cm	< 3,1	—	46,3	2,7	47,9	2,1
10 - 20 cm	< 3,4	—	50,3	2,8	50,5	2,2
20 - 30 cm	< 3,4	—	51,3	2,9	51,1	2,2
30 - 50 cm	< 3,5	—	53,2	3,5	54,3	2,4

Tiefe	Cs-137		K-40		Lahr Referenzdatum: 08.03.2012
	<i>a</i> (Bq kg ⁻¹)	<i>u(a)</i> (Bq kg ⁻¹)	<i>a</i> (Bq kg ⁻¹)	<i>u(a)</i> (Bq kg ⁻¹)	
00 - 05 cm	7,9	0,5	533	11	
05 - 10 cm	8,5	0,5	522	10	
10 - 20 cm	10,3	0,6	542	11	
20 - 30 cm	10,9	0,6	542	11	
30 - 50 cm	4,2	0,3	551	12	

Tabelle B.7.: Spezifische Aktivität von ^{137}Cs in den Bodenproben aus den Tabellen B.1 bis B.6 auf einen Blick. Für die Probe „Schleswig 30-50cm“ liegt aus Materialmangel kein Wert vor. Werte mit „<“ geben die Erkennungsgrenze an.

Tiefe	Schleswig		Hannover		Potsdam	
	Cs-137		Cs-137		Cs-137	
	a (Bq kg ⁻¹)	$u(a)$ (Bq kg ⁻¹)	a (Bq kg ⁻¹)	$u(a)$ (Bq kg ⁻¹)	a (Bq kg ⁻¹)	$u(a)$ (Bq kg ⁻¹)
00 - 05 cm	20,2	1,1	14,4	0,8	41,8	2,1
05 - 10 cm	18,2	0,9	13,9	0,8	8,9	0,5
10 - 20 cm	8,9	0,5	8,6	0,5	2,2	0,2
20 - 30 cm	2,8	0,2	3,5	0,3	0,6	0,1
30 - 50 cm	—	—	1,8	0,2	< 0,3	—

Tiefe	Görlitz		Nürnberg		Lahr	
	Cs-137		Cs-137		Cs-137	
	a (Bq kg ⁻¹)	$u(a)$ (Bq kg ⁻¹)	a (Bq kg ⁻¹)	$u(a)$ (Bq kg ⁻¹)	a (Bq kg ⁻¹)	$u(a)$ (Bq kg ⁻¹)
00 - 05 cm	13,3	0,7	13,7	0,8	7,9	0,5
05 - 10 cm	15,1	0,9	11,6	0,7	8,5	0,5
10 - 20 cm	13,9	0,8	9,4	0,6	10,3	0,6
20 - 30 cm	7,5	0,4	6,3	0,4	10,9	0,6
30 - 50 cm	1,4	0,2	2,1	0,2	4,2	0,3

Tabelle B.8.: Organischer Anteil in den Bodenproben und pH-Wert. Der Eintrag „k.A.“ steht für „keine Angabe“; in diesem Fall ist der pH-Wert größer als 6,8 und der Carbonatanteil kann nicht vernachlässigt werden.

Ort	Tiefe	Anteil organischer Substanz (%)	pH-Wert
Schleswig	0-5 cm	3,4	4,7
	5-10 cm	1,9	5,0
	10-20 cm	1,4	5,4
	20-30 cm	1,1	6,1
Hannover	0-5 cm	2,8	4,9
	5-10 cm	2,0	5,0
	10-20 cm	1,5	5,5
	20-30 cm	1,0	6,3
	30-50 cm	k.A.	7,2
Potsdam	0-5 cm	3,3	5,1
	5-10 cm	1,5	5,3
	10-20 cm	0,9	5,6
	20-30 cm	0,5	6,7
	30-50 cm	k.A.	7,0
Görlitz	0-5 cm	2,1	5,5
	5-10 cm	1,7	5,9
	10-20 cm	1,7	6,8
	20-30 cm	1,3	6,5
	30-50 cm	k.A.	6,9
Nürnberg	0-5 cm	3,2	6,8
	5-10 cm	1,9	6,8
	10-20 cm	k.A.	6,9
	20-30 cm	k.A.	7,0
	30-50 cm	k.A.	7,1
Lahr	0-5 cm	2,5	6,7
	5-10 cm	1,9	6,8
	10-20 cm	1,5	6,8
	20-30 cm	k.A.	6,9
	30-50 cm	k.A.	6,9

Tabelle B.9.: Ergebnisse der Partikelsammlung in bodennaher Luft. Werte mit „<“ geben die Erkennungsgrenze an. *Der gekennzeichnete ⁴⁰K-Wert ist eventuell fehlerhaft und wird in der Auswertung nicht berücksichtigt.

Datum der Filter- entnahme	K-40 <i>a</i> ($\mu\text{Bq m}^{-3}$)	Be-7 <i>a</i> (mBq m^{-3})	Cs-137 <i>a</i> ($\mu\text{Bq m}^{-3}$)	Pb-210 <i>a</i> ($\mu\text{Bq m}^{-3}$)
17.10.2011	84 ± 23	1,9 ± 0,1	7,0 ± 1,3	100 ± 30
24.10.2011	73 ± 21	2,7 ± 0,2	4,4 ± 1,2	340 ± 40
31.10.2011	87 ± 17	2,6 ± 0,1	4,8 ± 0,8	760 ± 80
07.11.2011	93 ± 22	3,0 ± 0,2	20 ± 2	1200 ± 100
21.11.2011	87 ± 21	2,5 ± 0,1	7,8 ± 1,3	1000 ± 100
28.11.2011	120 ± 20	2,6 ± 0,1	5,5 ± 1,2	830 ± 90
05.12.2011	80 ± 19	2,9 ± 0,2	6,4 ± 1,1	280 ± 40
19.12.2011	63 ± 19	1,5 ± 0,1	< 1,4	63 ± 13
02.01.2012	(< 30)*	1,3 ± 0,1	< 0,6	72 ± 10
09.01.2012	170 ± 20	1,3 ± 0,1	< 1,3	46 ± 12
16.01.2012	70 ± 24	1,3 ± 0,1	< 1,5	60 ± 16
30.01.2012	41 ± 20	1,8 ± 0,1	< 1,5	600 ± 60

Tabelle B.10.: Ergebnisse der gammaspektrometrischen Untersuchung der **Proben aus einer Tiefenbohrung**. Werte mit „<“ geben die Erkennungsgrenze an.

Probe	Uran-Radium-Reihe				
	U-238	Ra-226		Pb-210	
	<i>a</i> (Bq kg ⁻¹)	<i>a</i> (Bq kg ⁻¹)	<i>u(a)</i> (Bq kg ⁻¹)	<i>a</i> (Bq kg ⁻¹)	<i>u(a)</i> (Bq kg ⁻¹)
Salzpulver	< 3,7	20,3	0,6	676	69
Salzteig	< 6,0	187	5	580	60
Salz, gesamt	< 5,0	108	4	642	54
Salzlauge, berechnet	< 1,5	33,1	2,2	197	36
Salzlauge, direkt	< 2,8	28,9	0,9	109	18
Salzbrücke	—	2404	77	1902	231

Probe	U-Ac-Reihe	Thorium-Reihe			
	Ac-227	Ra-228		Th-228	
	<i>a</i> (Bq kg ⁻¹)	<i>a</i> (Bq kg ⁻¹)	<i>u(a)</i> (Bq kg ⁻¹)	<i>a</i> (Bq kg ⁻¹)	<i>u(a)</i> (Bq kg ⁻¹)
Salzpulver	< 2,8	21,1	1,1	3,2	0,2
Salzteig	< 3,1	175	8	14,6	0,7
Salz, gesamt	< 3,0	102	6	9,3	0,6
Salzlauge, berechnet	< 1,0	31,2	3,2	2,8	0,3
Salzlauge, direkt	< 1,8	30,8	1,9	4,6	0,3
Salzbrücke	—	2325	115	292	16

Probe	Cs-137	K-40		BGR Proben Referenzdatum:
	<i>a</i> (Bq kg ⁻¹)	<i>a</i> (Bq kg ⁻¹)	<i>u(a)</i> (Bq kg ⁻¹)	
Salzpulver	< 0,1	102	6	25.02.2012
Salzteig	< 0,1	1232	65	27.02.2012
Salz, gesamt	< 0,1	696	47	26.02.2012
Salzlauge, berechnet	< 0,1	213	26	26.02.2012
Salzlauge, direkt	< 0,1	214	13	12.04.2012
Salzbrücke	< 0,1	218	51	13.03.2012

Tabelle B.11.: Ergebnisse der gammaspektrometrischen Untersuchung der **Bodenproben aus der Präfektur Fukushima** (Referenzdatum: **14.02.2012**). Werte mit „<“ geben die Erkennungsgrenze an.

Probe	Uran-Radium-Reihe			
	U-238		Ra-226	
	a (Bq kg ⁻¹)	$u(a)$ (Bq kg ⁻¹)	a (Bq kg ⁻¹)	$u(a)$ (Bq kg ⁻¹)
Probe 01	< 1,5	—	8,7	0,7
Probe 02	< 2,1	—	28,7	1,8

Probe	U-Ac-Reihe		Thorium-Reihe			
	Ac-227		Ra-228		Th-228	
	a (Bq kg ⁻¹)	$u(a)$ (Bq kg ⁻¹)	a (Bq kg ⁻¹)	$u(a)$ (Bq kg ⁻¹)	a (Bq kg ⁻¹)	$u(a)$ (Bq kg ⁻¹)
Japan 01	< 0,7	—	9,5	1,2	8,4	0,8
Japan 02	< 2,3	—	34,1	3,6	32,7	2,3

Probe	K-40	
	a (Bq kg ⁻¹)	$u(a)$ (Bq kg ⁻¹)
	Japan 01	325
Japan 02	491	27

Probe	Künstliche Radionuklide					
	Cs-137		Cs-134		Ag-110m	
	a (Bq kg ⁻¹)	$u(a)$ (Bq kg ⁻¹)	a (Bq kg ⁻¹)	$u(a)$ (Bq kg ⁻¹)	a (Bq kg ⁻¹)	$u(a)$ (Bq kg ⁻¹)
Japan 01	665	33	488	19	2,2	0,4
Japan 02	6443	323	4803	160	21,3	1,4

B.1. Nahrungsmittel aus Fukushima

Einteilung der Lebensmittel in die verschiedenen Kategorien

Zuchtfleisch: Eier, Hähnchenfleisch, Rindfleisch, Schafffleisch, Schweinefleisch

Wildfleisch: Ente, Fasan, Hase, Rotwild, Asiatischer Schwarzbär, Wildschwein

Fisch und Meeresfrüchte: Aal, Abalone, Ayu, Barbe, Barsch, Flunder, Forelle, Garnele, Grünling, Hasel, Heilbutt, Hundszunge, Kabeljau, Kalmar, Karpfen, Knurrhahn, Kugelfisch, Lachs, Makrele, Manta, Meerbrasse, Muscheln, Oktopus, Plattkopf, Pelamide, Petersfisch, Saibling, Sandaal, Seegurke, Seeigel, Seezunge, Sepie, Stachelkopf, Tiefseedorsch, u.a

Pilze: Apricot Milkcap, Bunaharitake, Chicken Mushroom, Coral Fungi, Enokitake, Garden Giant, Giant Leucopax, Grifola Frondosa, Hatsutake, Horn-like Pleurotus, Judas' Ear Fungus, Oyster Mushroom, Pleurotus Eryngii, Purplish Waxgill, Shiitake, u.a.

Blattgemüse¹: Bitamina, Blattwasabi, Blumenkohl, Broccoli, Chicorée, Chijirena, Chinakohl, Komatsuna, Kopfsalat, Koshiabura, Kousaitai, Kukitachina, Mitsuba, Momijigase, Mulukhiyya, Petersilie, Pteridium Aquilinum, Salzkaut, Schnittlauch, Schwarznessel, Sellerie, Spinat, Uwabamisou, Wasabina, Wasserspinat, Weißkohl, Yacon (Blatt), u.a

Nichtblattgemüse: Bohne, Erbse, Gurke, Ingwer, Karotte, Kartoffel, Knoblauch, Mais, Myoga, Paprika, Pfeffer, Radieschen, Rübe, Schalotte, Shimauri, Sojabohne, Tomate, Wasabi, Wurzeln, Zucchini, Zwiebel, u.a

Obst, Beeren, Nüsse: Apfel, Aprikose, Birne, Blaubeere, Dattel, Erdbeere, Erdnuss, Feige, Gamazumi, Granatapfel, Guave, Himbeere, Kastanie, Kirsche, Kiwi, Kürbis, Kirsche, Nektarine, Papaya, Pfirsich, Pflaume, Quitte, Sudachi, Ume, Wassermelone, Weintraube, Yuzu, u.a.

¹Zum Blattgemüse wurden auch einige Gemüsesorten eingeteilt, deren essbarer Teil frei an der Luft liegt und so leicht Radionuklide aufnehmen kann

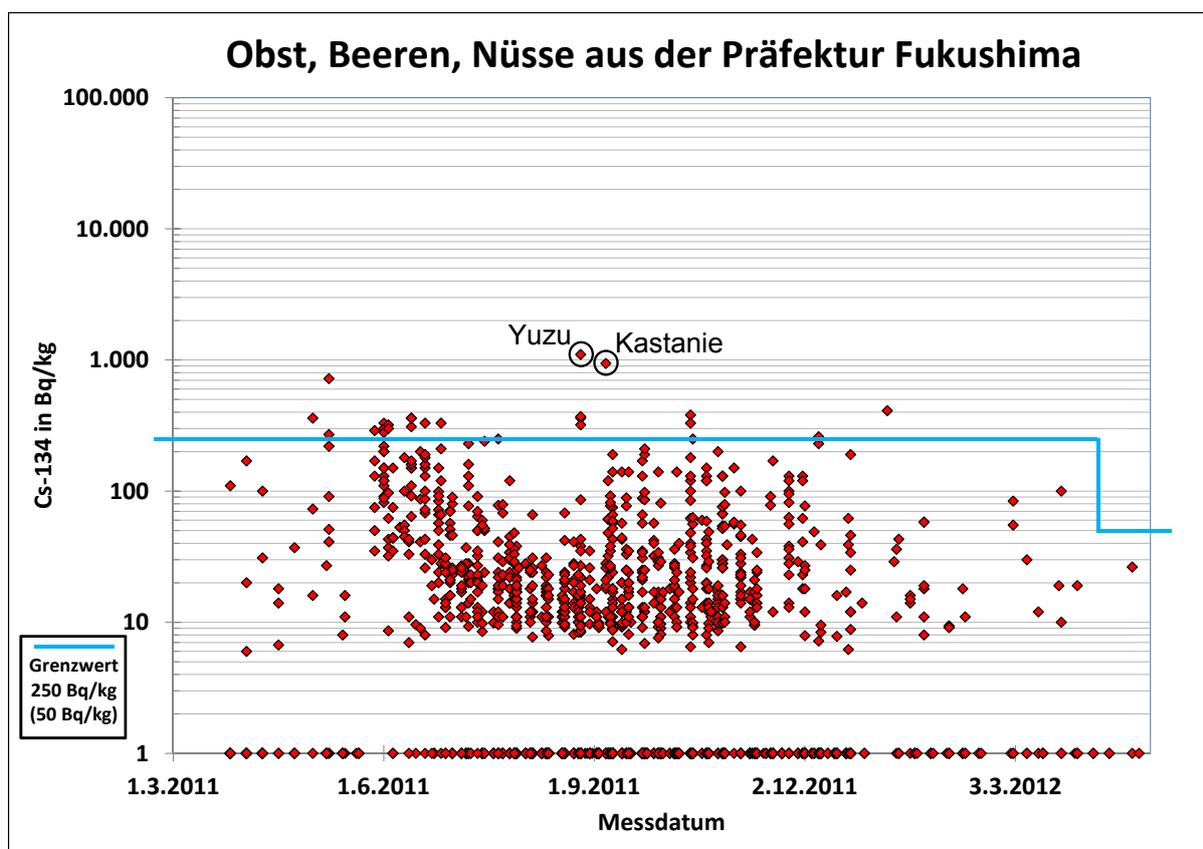


Abbildung B.1.: Spezifische Aktivität von ^{134}Cs in Obst, Beeren und Nüssen aus der Präfektur Fukushima

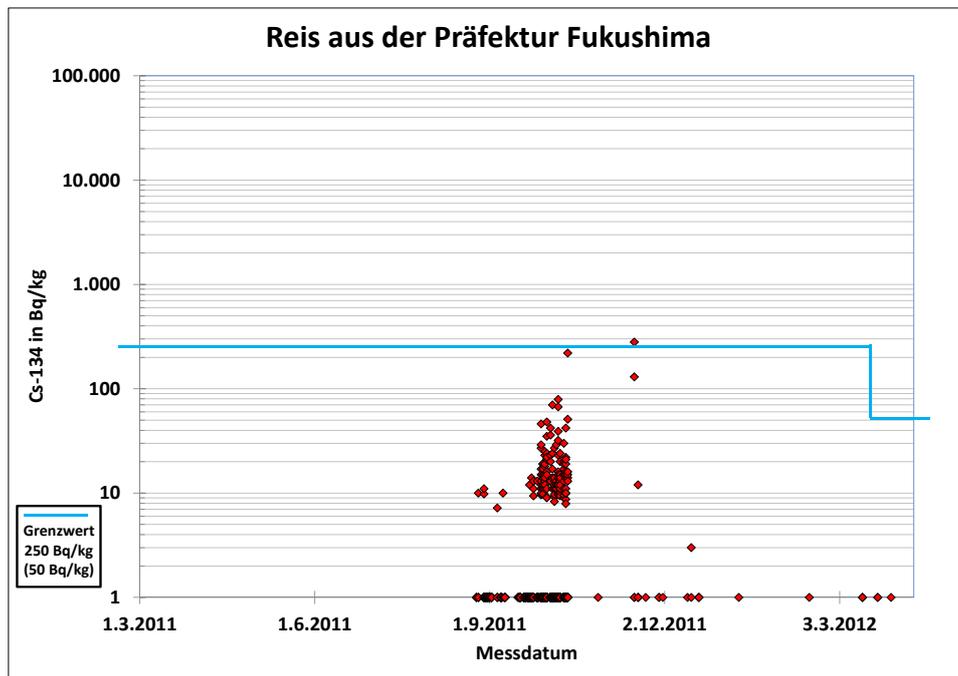


Abbildung B.2.: Spezifische Aktivität von ^{134}Cs in Reis aus der Präfektur Fukushima

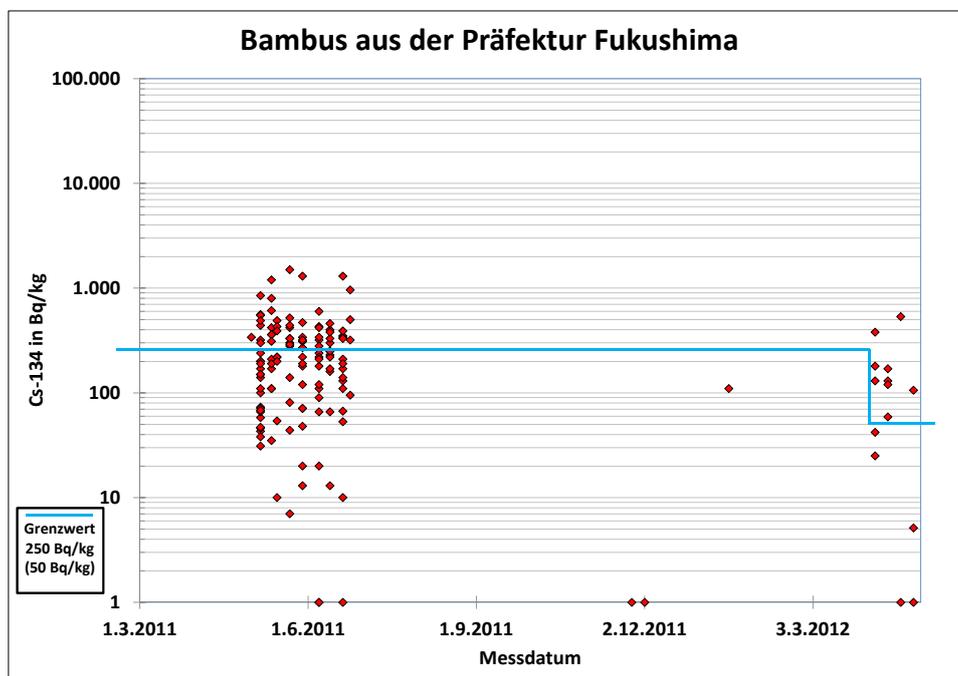


Abbildung B.3.: Spezifische Aktivität von ^{134}Cs in Bambus aus der Präfektur Fukushima

Herstellung von Kalibrierstandards



Abbildung C.1.: Ringschale (Marinellibecher) von unten. Die Messgeometrie dieser Schale bietet eine große Probenoberfläche und damit eine effiziente Messung.

Bodenproben

Die Herstellung der Standards der Bodenproben zur Dichtekalibrierung und Berechnung der Efficiency erfolgte nach Anleitung aus [Bir09].

Die Ringschalen (Marinellibecher) werden zunächst mit Wasser gefüllt und gewogen. Da die Dichte des Wassers temperaturabhängig ist, wird die Temperatur des Wassers bestimmt und hieraus die Dichte ermittelt [KT93]. Aus bekannter Dichte ρ und Masse m lässt sich das Volumen V der Ringschale bestimmen: $V = m \cdot \rho^{-1}$.

In einem kleinen Becherglas werden 5 g Aluminiumoxid-Pulver eingewogen und mit 5 ml QCY48-Multinuklidlösung und 1 ml ^{210}Pb -Lösung versetzt (siehe Tabellen C.1 und C.2). Das Pulver wird über mehrere Tage getrocknet, um eine Klümpchenbildung zu vermeiden.

Die Einwaage der Dichtematrix (z.B. Vogelsand) erfolgt in einer Kautexflasche. Das getrocknete Aluminiumoxid-Pulver wird dazugegeben, die Flasche verschlossen und zur

Homogenisierung des Inhalts für mindestens drei Tage in eine entsprechende Rotationsvorrichtung gespannt. Danach kann die so erhaltene Standardmatrix in eine Ringschale verfüllt werden.

Um einen Vergleich zur Aktivität einer nicht mit Radionukliden versetzten Dichtematrix zu erhalten, wird eine weitere Ringschale mit derselben Matrix präpariert, jedoch ohne Zugabe von QCY48- und ^{210}Pb -Lösung. Nach der gammaspektrometrischen Messung beider Matrizen werden die Full-Energy-Peaks der nicht versetzten Matrix von der mit QCY48 und ^{210}Pb versetzten Matrix wie eine Nullmessung subtrahiert, um lediglich die Aktivität der hinzugegebenen Radionuklide zu erhalten.

Partikelfilter

Da die zu vermessenen Partikelfilter lediglich Staubpartikel sammeln, deren Gesamtmasse sehr gering ist und deren Selbstabsorption vernachlässigbar ist, bedarf es bei ihrer gammaspektrometrischen Vermessung keiner Dichtekalibrierung. Die Herstellung eines Standards gestaltet sich daher einfach: Es reicht aus, einen unbenutzten Filter gleichmäßig mit 4 ml QCY48-Lösung und einen zweiten mit 1 ml ^{210}Pb -Lösung zu versetzen und beide einige Tage trocknen zu lassen. Diese Partikelfilter-Standards können nun zur Bestimmung der Efficiency verwendet werden.

Folienmethode für die Messung in einer Petrischale

Wenn zu wenig Probenmatrix vorhanden ist, um eine Ringschale zu füllen, kann die Probe in einer kleinen Petrischale gemessen werden. Für die Efficiencybestimmung wird in diesem Fall die Folienmethode mit einem Flächenstandard verwendet [Wic04]. Die Probe wird einmal mit dem Standard *unter* der Probe und einmal mit dem Standard *über* der Probe gemessen. Man erhält für jede Gammaenergie i zwei Efficiencywerte: $\varepsilon_{u,i}$ (Standard „unten“) und $\varepsilon_{o,i}$ (Standard „oben“).

Die durchschnittliche Efficiency aus den beiden Messungen berechnet sich wie folgt:

$$\varepsilon_i = \frac{\varepsilon_{u,i} - \varepsilon_{o,i}}{\ln(\varepsilon_{u,i}) - \ln(\varepsilon_{o,i})} \quad (\text{C.1})$$

Die Messung in Petrischalen wurde in dieser Arbeit lediglich für die Feststoffprobe Salzbrücke und das Immobilisat aus der Wasserbehandlungsanlage verwendet.

Tabelle C.1.: Daten zur Multinuklidlösung QCY48 (2010)

Bezeichnung: QCY48
Vertrieb: QSA Global GmbH
Zertifiziert durch: GE Healthcare
Referenzzeit: 1. Februar 2010 um 12:00 Uhr GMT
Masse der Lösung in 4M HCl: 5,3734 g
Verdünnung: Auf 260,35 g verdünnt
(Verdünnungsfaktor: $K = 0,02063887 \pm 0,0000007$)

Radio-nuklid	Halb-werts-zeit	Energie E_γ in keV	γ-Emissionen in $\frac{1}{g \cdot s}$	Erweiterte Standard- unsicherheit
Am-241	432,2 a	59,54	1132	$\pm 1,5\%$
Cd-109	462,6 d	88,03	656	$\pm 5,7\%$
Co-57	271,79 d	122,1	624	$\pm 1,4\%$
Ce-139	32,501 d	165,9	714	$\pm 1,4\%$
Hg-203	46,612 d	279,2	2073	$\pm 1,6\%$
Sn-113	115,09 d	391,7	2191	$\pm 4,0\%$
Sr-85	64,84 d	514,0	4105	$\pm 1,6\%$
Cs-137	30,17 a	661,7	2601	$\pm 1,6\%$
Y-88	106,65 d	898,0	6639	$\pm 1,5\%$
Co-60	5,2714 a	1173	3468	$\pm 1,5\%$
Co-60	5,2714 a	1332	3472	$\pm 1,5\%$
Y-88	106,65 d	1836	7023	$\pm 1,4\%$

Tabelle C.2.: Daten zur ^{210}Pb -Lösung (2008)

Bezeichnung: ^{210}Pb

Zertifiziert durch: Physikalisch-Technische Bundesanstalt

Referenzzeit: 1. Februar 2008 um 00:00 Uhr MEZ

Masse der Lösung in 1,5M HNO_3 : $(2,0921 \pm 0,0017)$ g

Verdünnung: Auf $(90,710 \pm 0,004)$ g verdünnt

(Verdünnungsfaktor: $K = 0,023064 \pm 0,000025$)

Radio-nuklid	Halb-werts-zeit	Energie E_γ in keV	Spezifische Aktivität (kBq g⁻¹)	Emissions- wahrscheinlich- keit p_γ (%)
Pb-210	22,3 a	46,45	$137,5 \pm 2,1$	4,24

Abkürzungsverzeichnis

a	Spezifische Aktivität
a	Jahr
A	Aktivität
a^*	Erkennungsgrenze
$a^\#$	Nachweisgrenze
$a^\triangleleft, a^\triangleright$	Vertrauensgrenzen
A_0	Anfangsaktivität
\tilde{a}	Wahrer Wert der Messgröße a
α	Irrtumswahrscheinlichkeit für den Fehler 1. Art
AtG	Atomgesetz
b	Barn ($1 \text{ b} = 10^{-24} \text{ cm}^2$)
BfS	Bundesamt für Strahlenschutz
BGR	Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe
BMBF	Bundesministerium für Bildung und Forschung
Bq	Becquerel
β	Irrtumswahrscheinlichkeit für den Fehler 2. Art
c	Lichtgeschwindigkeit ($c = 2,99792458 \cdot 10^8 \text{ m s}^{-1}$)
C_i	Konstante Koeffizienten
d	Tag
D	Energiedosis
d_{BS}	Depositionsdichte einer Bodensäule
DE	Double Escape
DWD	Deutscher Wetterdienst
e^-, e^+	Elektron, Positron
\dot{E}	Effektive Dosisrate
E_{abs}	Absorptionsenergie
E_{Bind}	Bindungsenergie
E_γ	Energie eines Gammaquants
E_{kin}	Kinetische Energie
EC	Elektroneneinfang
ϵ	Energie zur Elektron-Loch-Paar-Erzeugung

D. Abkürzungsverzeichnis

ε	Efficiency
EU	Europäische Union
eV	Elektronenvolt
$F(x)$	Funktion F mit dem Argument x
FWHM	Halbwertsbreite (Full Width at Half Maximum)
$g_{b,r}^{EF}$	Dosisratenkoeffizient für externe Strahlung von kontaminiertem Boden
Gy	Gray (1 Gy = 1 J kg ⁻¹)
H_T	Äquivalentdosis des Organs T
h_i	Schichtdicke
HPGe	Hochreines Germanium (High Purity Germanium)
IRS	Institut für Radioökologie und Strahlenschutz
IRSN	Französisches Institut für Strahlenschutz und nukleare Sicherheit (Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire)
K	Kelvin
K	Kanalzahl
k_S	Summationskorrekturfaktor
$k_{1-\alpha}, k_{1-\beta}, k_{1-\frac{\gamma}{2}}$	Quantile der Standardnormalverteilung
λ	Zerfallskonstante
L, l	Liter
m	Masse
m_0	Ruhemasse eines Elektrons
MCA	Vielkanalanalysator (Multi Channel Analyzer)
MEXT	Japanisches Wissenschaftsministerium (Ministry of Education, Culture, Sports, Science and Technology)
MHLW	Japanisches Gesundheitsministerium (Ministry of Health, Labour and Welfare)
n	Anzahl
n_b	Bruttocounts
N_0	Anfangsanzahl
n_0	Nullcounts
p_γ	Emissionswahrscheinlichkeit eines Gammaquants
PTB	Physikalisch-Technische Bundesanstalt
QCY48	Multinuklidlösung
r_b	Bruttozählrate
r_{det}	Rate der detektierten Gammastrahlung
r_{emit}	Rate der emittierten Gammastrahlung
r_n	Nettozählrate
r_0	Nullrate
ρ_{Lag}	Lagerungsdichte

ρ_{Sch}	Schüttdichte
RöV	Röntgenverordnung
s	Standardabweichung
SE	Single Escape
SSK	Strahlenschutzkommission
StrlSchV	Strahlenschutzverordnung
StrVG	Strahlenschutzvorsorgegesetz
Sv	Sievert
t_m	Messzeit der Probenmessung
t_0	Messzeit der Nullmessung
τ	Halbwertszeit
θ	Winkel
$u_{\text{rel}}(x)$	Relative Unsicherheit des Messwertes x
$u(x)$	Unsicherheit des Messwertes x
V	Volumen
w	Konstante $w = \frac{k_s}{m\epsilon p_\gamma}$
w_R	Strahlungswichtungsfaktor der Strahlenart R
w_T	Gewebe-Wichtungsfaktoren des Gewebes T
X	Messgröße
\bar{x}	Arithmetischer Mittelwert
x_i	Messwerte der Messgröße X
Z	Kernladungszahl

Literaturverzeichnis

- [AtG12] Gesetz über die friedliche Verwendung der Kernenergie und den Schutz gegen ihre Gefahren (Atomgesetz - AtG). (24. Februar 2012). <http://www.gesetze-im-internet.de/bundesrecht/atg/gesamt.pdf>
- [Bel98] BELTZ, D.: Spaltprodukte in der Umgebung von Tschernobyl und die Strahlenexposition der dortigen Bevölkerung. In: *Diplomarbeit am Zentrum für Strahlenschutz und Radioökologie, Leibniz Universität Hannover* (Juli 1998)
- [Bir09] BIRKHAN, J. H.: Gamma-Spektrometrie an Bodenproben von als Grünland genutzten Auenflächen der Zwickauer und Vereinigten Mulde. In: *Diplomarbeit am Zentrum für Strahlenschutz und Radioökologie, Leibniz Universität Hannover* (März 2009)
- [BK04] BOSSEW, P. ; KIRCHNER, G.: Modelling the vertical distribution of radionuclides in soil. Part 1: the convection–dispersion equation revisited. In: *Journal of Environmental Radioactivity* 73 (2004), S. 127–150
- [Bot00] BOTSCH, W.: Untersuchungen zur Strahlenexposition von Einwohnern kontaminierter Ortschaften der nördlichen Ukraine. In: *Dissertation an der Leibniz Universität Hannover* (2000)
- [Bun99] BUNDESAMT FÜR STRAHLENSCHUTZ: Verfahren zur Bestimmung von natürlichen Radionukliden in der Umwelt zur Erfüllung der Richtlinie zur Emissions- und Immissionsüberwachung bei bergbaulichen Tätigkeiten (REI Bergbau). In: *Fachbereich Strahlenschutz* (Berlin, Juli 1999)
- [Bun06] BUNDESMINISTERIUM FÜR UMWELT, NATURSCHUTZ UND REAKTORSICHERHEIT: Messanleitungen für die Überwachung der Radioaktivität in der Umwelt und zur Erfassung radioaktiver Emissionen aus kerntechnischen Anlagen. (Stand: 01.03.2006)
- [Bun10] BUNDESMINISTERIUM FÜR UMWELT, NATURSCHUTZ UND REAKTORSICHERHEIT: Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung, Jahresbericht 2009. (Dezember 2010)
- [Bun12] BUNDESAMT FÜR STRAHLENSCHUTZ: Einige wichtige Dosis- und Grenzwerte. (Stand: 24.02.2012). http://www.bfs.de/de/kerntechnik/unfaelle/fukushima/strahlenschutz_japan.html/
- [Deg10] DEGERING ET AL.: Natürliche Radionuklide im Aquifer, im Fluid und in den Ablagerungen der Geothermieanlage Neustadt-Glewe. (2010)

- [DIN96] DIN 1319-3: *Grundlagen der Messtechnik – Teil 3: Auswertung von Messungen einer einzelnen Messgröße, Messunsicherheit*. Deutsches Institut für Normung e.V., 1996
- [DIN02] DIN ISO 11277: *Bodenbeschaffenheit - Bestimmung der Partikelgrößenverteilung in Mineralböden - Verfahren mittels Siebung und Sedimentation*. Deutsches Institut für Normung e.V., 2002
- [DIN03] DIN 25482-12: *Nachweisgrenze und Erkennungsgrenze bei Kernstrahlungsmessungen – Teil 12: Entfaltung von Spektren*. Deutsches Institut für Normung e.V., 2003
- [DIN05] DIN 25702: *Abschirmung von Detektoren für nuklidspezifische Aktivitätsmessungen – Standardsysteme mit Germaniumdetektoren*. Deutsches Institut für Normung e.V., 2005
- [DIN07] DIN ISO 18589-3: *Ermittlung der Radioaktivität in der Umwelt – Erdboden – Teil 3: Messung von Gammastrahlung emittierenden Radionukliden*. Deutsches Institut für Normung e.V., 2007
- [DN06] DURNER ; NIEDER: Bodenkundliches Praktikum I. In: *Institut für Geoökologie der Technischen Universität Braunschweig, Abteilung Bodenkunde und Bodenphysik* (2006), S. 37–38
- [DS90] DEBERTIN, K. ; SCHÖTZIG, U.: *Bedeutung von Summationskorrekturen bei der Gammastrahlen-Spektrometrie mit Germaniumdetektoren*. Physikalisch-Technische Bundesanstalt, PTB-Bericht PTB-Ra-24, ISSN 0341-6747, 1990
- [EU11] EU, Europäische Kommission der EU: Durchführungsverordnung (EU) Nr. 351/2011 zur Änderung der Verordnung (EU) Nr. 297/2011 zum Erlass von Sondervorschriften für die Einfuhr von Lebens- und Futtermitteln, deren Ursprung oder Herkunft Japan ist, nach dem Unfall im Kernkraftwerk Fukushima. In: *Amtsblatt der Europäischen Union* (11. April 2011)
- [Gar01] GARCIA ET AL.: Coincidence summing corrections for the natural decay series in γ -ray spectrometry. In: *Journal of Radiation and Isotopes* 54 (2001), S. 769–776
- [Gil08] GILMORE, G.: *Practical Gamma-ray Spectrometry*. John Wiley & Sons, Ltd, Oct. 2008
- [Glo03] GLOBAL ATMOSPHERE WATCH: Natürliche Radionuklide – ein Beitrag zur Interpretation luftchemischer Messungen. In: *GAW Brief des Deutschen Wetterdienstes* Nr. 15 (März 2003)

- [GS08] GIANI ; SÄNGERLAUB: Bodenkundliches Grundpraktikum. In: *Institut Biologie und Umweltwissenschaften der Carl von Ossietzky Universität Oldenburg, AG Bodenkunde* (2007/2008), S. 15
- [GUM95] *Guide to the expression of uncertainty in measurement (corrected and reprinted, 1995)*. BIPM: International Bureau of Weights and Measures, IEC, IFCC, ISO, IUPAC, IUPAP, OIML, 1995
- [HW95] HOLLEMAN ; WIBERG: *Lehrbuch der Anorganischen Chemie*. de Gruyter, 101. Auflage, 1995
- [IRS12] IRSN, Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire: Fukushima, one year later – Initial analyses of the accident and its consequences. In: *Report IRSN/DG/2012-003* (12. März 2012)
- [ISO95] ISO/DIS 11929: *Determination of the characteristic limits (decision threshold, detection threshold, and limits of the confidence interval) for ionizing radiation measurements – Fundamentals and applications*. International Organization for Standardisation (ISO), Genf (1995)
- [JWP87] JÄCKEL, B. ; WESTMEIER, W. ; PATZELT, P.: On the photopeak efficiency of germanium gamma-ray detectors. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* 261(3) (1987), S. 543–548
- [Kno99] KNOLL, G. F.: *Radiation Detection and Measurement*. John Wiley & Sons, New York, 3. Auflage, 1999
- [KT93] KÜSTER, F. W. ; THIEL, A.: *Rechentafeln für die Chemische Analytik*. de Gruyter, 104. Auflage, 1993
- [L'A03] L'ANNUNZIATA, Michael: *Handbook of radioactivity analysis*. Academic Press, 2. Auflage, 2003
- [Lie91] LIESER, K.H.: *Einführung in die Kernchemie*. VCH Verlagsgesellschaft mbH, 3. Auflage, 1991
- [Lül09] LÜLLAU, T.: *Gammaspectrometrische Untersuchungen von anthropogen beeinflussten Umweltproben*. In: *Diplomarbeit am Zentrum für Strahlenschutz und Radioökologie, Leibniz Universität Hannover* (2009)
- [MEX11a] MEXT, Ministry of Education, Culture, Sports, Science and Technology: Readings of environmental monitoring samples. (23. März 2011). http://eq.wide.ad.jp/files_en/110324dust_1000_en.pdf
- [MEX11b] MEXT, Ministry of Education, Culture, Sports, Science and Technology: Re-

- sults of Airborne Monitoring by the Ministry of Education, Culture, Sports, Science and Technology and the U.S. Department of Energy. Annex 2 (6. Mai 2011). http://www.mext.go.jp/component/english/_icsFiles/afieldfile/2011/05/10/1304797_0506.pdf
- [MHL12a] MHLW, Ministry of Health, Labour and Welfare: Information on the Great East Japan Earthquake. (13.07.2012). <http://www.mhlw.go.jp/english/topics/2011eq/index.html>
- [MHL12b] MHLW, Ministry of Health, Labour and Welfare: New Standard limits for Radionuclides in Foods. In: *Department of Food Safety Pharmaceutical & Food Safety Bureau* (Februar 2012). http://www.mhlw.go.jp/english/topics/2011eq/dl/new_standard.pdf
- [Mic05] MICHEL ET AL.: Radionuclides in the Mulde River System after the August-2002 Flood. In: *Acta hydrochim. hydrobiol.* 33 (2005), S. 492 – 506. <http://dx.doi.org/10.1002/aheh.200400593>. – DOI 10.1002/aheh.200400593
- [Mic11] MICHEL, R.: Fukushima: eine vorläufige Bilanz im Juli 2011. In: *Institut für Radioökologie und Strahlenschutz, Leibniz Universität Hannover* (Juli 2011)
- [Mic12] MICHEL, R.: Der Reaktorunfall von Fukushima Dai-ichi und seine Folgen für Mensch und Umwelt. In: *SSK Klausurtagung, Abendvortrag, Hamburg* (14.03.2012). http://www.irs.uni-hannover.de/index.php?eID=tx_nawsecured1&u=0&file=uploads/tx_tkpublikationen/duvfsk12.pdf&t=1346924483&hash=1f553d902e95260dd0b1955079187cb8ec3a0bad
- [MK99] MICHEL, R. ; KIRCHHOFF, K.: *Nachweis-, Erkennungs- und Vertrauensgrenzen bei Kernstrahlungsmessungen*. Fachverband für Strahlenschutz e.V.; TÜV-Verlag, 1999
- [PTB12a] PTB, Physikalisch-Technische Bundesanstalt: Be-7 und Cs-137 in der bodennahen Luft in Braunschweig seit 1963. In: *www.ptb.de* (01.08.2012). http://www.ptb.de/de/org/6/61/612/kurve/be7cs137_de.pdf
- [PTB12b] PTB, Physikalisch-Technische Bundesanstalt: Natürliche gammastrahlende Radionuklide in der bodennahen Luft in Braunschweig seit 1963. In: *www.ptb.de* (01.08.2012). http://www.ptb.de/de/org/6/61/612/kurve/natnu_de.pdf
- [RBB03] ROCHER, A. ; BRETTELLE, J.L. ; BERGER, M.: Impact of Main Radiological Pollutants on Contamination Risks (ALARA) Optimisation of Physico Chemical Environment and Retention Technics during Operation and Shutdown. In: *Portoroz Workshop - Session 2* (2003)

- [RoV11] Verordnung über den Schutz vor Schäden durch Röntgenstrahlen (Röntgenverordnung - RöV). (4. Oktober 2011). http://www.gesetze-im-internet.de/bundesrecht/r_v_1987/gesamt.pdf
- [Sac11] SACHSE, R.: Praktikum Gamma-Spektroskopie. In: *Institut für Radioökologie und Strahlenschutz, Leibniz Universität Hannover* (2011)
- [Sie96] SIEHL, A.: *Umweltradioaktivität*. Ernst & Sohn Verlag, 1996
- [SM66] SQUIRE, H. M. ; MIDDLETON, L. J.: Behaviour of Cs-137 in soils and pastures – A long term experiment. In: *Radiation Botany, Pergamon Press Ltd. Printed in Great Britain* 6 (1966), S. 413 to 423
- [SS98] SCHÖTZIG, Ulrich ; SCHRADER, Heinrich: Halbwertszeiten und Photonenemissionswahrscheinlichkeiten von häufig verwendeten Radionukliden. In: *PTB-Bericht Ra-16/5, Physikalisch-Technische Bundesanstalt* 5. erweiterte Auflage (1998)
- [SS10] SCHEFFER ; SCHACHTSCHABEL: *Lehrbuch der Bodenkunde*. Spektrum Akademischer Verlag, 16. Auflage, 2010
- [SSK91] SSK, Strahlenschutzkommission: Strahlenschutzgrundsätze für die Nutzung von durch den Uranbergbau kontaminierten Flächen zu forst- und landwirtschaftlichen Zwecken sowie als Grünanlage (Parkanlage) und Wohngebiet. In: *Bundesanzeiger Nr. 227* (1991)
- [SSK04] SSK, Strahlenschutzkommission: Leitfaden für den Fachberater Strahlenschutz der Katastrophenschutzleitung. In: *Berichte der Strahlenschutzkommission* Heft 37, 3.5 Dosisleistungs- und Dosiskoeffizienten (2004)
- [Str08] Gesetz zum vorsorgenden Schutz der Bevölkerung gegen Strahlenbelastung (Strahlenschutzvorsorgegesetz - StrVG). (8. April 2008). <http://www.gesetze-im-internet.de/bundesrecht/strvg/gesamt.pdf>
- [Str12] Verordnung über den Schutz vor Schäden durch ionisierende Strahlen (Strahlenschutzverordnung - StrlSchV). (24. Februar 2012). http://www.gesetze-im-internet.de/bundesrecht/strlschv_2001/gesamt.pdf
- [SV04] SCHULZ, H. ; VOGT, H.G.: *Grundzüge des praktischen Strahlenschutzes*. Hanser Verlag München Wien, 2004
- [tag11a] TAGESSCHAU.DE: Verstrahltes Rindfleisch schreckt Japaner auf. (18.07.2011). <http://www.tagesschau.de/ausland/japanfleisch100.html>

- [tag11b] TAGESSCHAU.DE: Der Atomausstieg ist beschlossen. (30.06.2011). <http://www.tagesschau.de/inland/energiewende140.html>
- [UNS00] UNSCEAR: Sources and Effects of Ionizing Radiation. In: *UNSCEAR 2000 Report to the General Assembly, Annex B: Exposures from natural radiation sources. United Nations Scientific Committee in the Effects of Atomic Radiation. United Nations, New York* (2000)
- [Wic04] WICKE, J.-H.: Untersuchungen zur internen Strahlenexposition durch Cäsium-137 in der nördlichen Ukraine. In: *Diplomarbeit am Zentrum für Strahlenschutz und Radioökologie, Leibniz Universität Hannover* (2004)
- [WW94] WEISE, K. ; WÖGER, W.: Comparison of two measurement results using the Bayesian theory of measurement uncertainty. In: *Meas. Sci. Technol.* 5 (1994), S. 879–882

Danksagung

Abschließend möchte ich mich bei einigen Menschen bedanken:

Vielen Dank an Prof. Dr. Rolf Michel und Prof. Dr. Clemens Walther für die Ermöglichung dieser Arbeit und die vielen guten Ratschläge.

Mein Dank gilt Dr. Beate Riebe für die Bereitstellung der Bodenproben und den fachlichen Rat zur Radioökologie.

Mein besonderer Dank geht an Stefan Bister für die intensive Betreuung, den fachlichen Rat und die Hilfe bei Fragen und Problemen.

Vielen Dank an Rüdiger Sachse für die Unterstützung bei den Germaniumdetektoren.

Mein Dank gilt Gabriele Erb-Bunnenberg für die gute Zusammenarbeit bei der Analyse der Bodenproben.

Vielen Dank an Dr. Dieter Jakob, Karl-Heinz Iwannek, Dr. Jan Vahlbruch und an alle weiteren Mitarbeiter des Instituts für Radioökologie und Strahlenschutz für die Hilfsbereitschaft und Unterstützung.

Abschließend bedanke mich an dieser Stelle bei allen meinen Kommilitonen, besonders Freddie, Dani, Kais, Michael, Vitali, Olaf und Dennis, die mich durch das gesamte Studium begleitet haben.

Mein besonderer Dank gilt zudem meiner Familie und Angelika für den starken Rückhalt und die große Unterstützung.

Selbstständigkeitserklärung

Hiermit versichere ich, dass ich die vorliegende Arbeit selbstständig verfasst und keine anderen als die zitierten Quellen und Hilfsmittel benutzt habe.

Hannover, den 24.09.2012

Frank Tawussi