

Untersuchung von Umweltproben aus Fukushima in Bezug auf Plutonium und Uran mittels AMS

Der Fakultät für Mathematik und Physik
der Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover
zur Erlangung des Grades

DOKTORIN DER NATURWISSENSCHAFTEN

Dr. rer. nat.

genehmigte Dissertation

von

M. Sc. Stephanie Schneider

2016

Referent: Prof. Dr. Clemens Walther
Korreferent: Prof. Dr. Georg Steinhauser
Tag der Promotion: 01.02.2017

Kurzzusammenfassung

Im März 2011 kam es in Folge eines Erdbebens zu einem Tsunami, durch den das Kernkraftwerk Fukushima Dai-ichi an der japanischen Ostküste stark beschädigt wurde. Während des Unfallverlaufs wurden erhebliche Mengen radioaktiver Isotope der leichtflüchtigen Elemente Caesium und Iod in die Umwelt freigesetzt. Zusätzlich wurden auch schwerflüchtige Radionuklide wie Plutonium und Uran in kleinen Mengen freigesetzt.

Plutonium und das Uranisotop ^{236}U wurden hauptsächlich durch den Menschen in die Umwelt gebracht. Der größte Anteil stammt dabei aus den atmosphärischen Kernwaffentests. Zusätzlich wurden sie auch durch Unfälle in Kernkraftwerken, wie in Tschernobyl, freigesetzt. Jede Quelle hat dabei eine charakteristische Isotopenzusammensetzung. So ist es möglich, anhand der Isotopenverhältnisse $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ und $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ den Ursprung der Kontamination bestimmen zu können.

Mit Hilfe der Beschleunigermassenspektrometrie ist es möglich, diese Verhältnisse zu bestimmen, da diese über eine besonders gute Sensitivität verfügt, mit der man bereits geringe Mengen an Plutonium und speziell ^{236}U nachweisen kann. Diese Messungen wurden an der kompakten 500 kV-Anlage „TANDY“ der ETH Zürich durchgeführt.

In den Jahren 2013 und 2015 wurden in dem kontaminierten Gebiet in der Provinz Fukushima Bewuchs-, Oberflächen- und Bodenproben genommen. 2015 wurde dabei versucht, an den gleichen Stellen wie in 2013 die Proben zu nehmen. Diese Proben wurden chemisch aufgearbeitet sowie mittels Extraktionsmethoden Plutonium und Uran voneinander getrennt und separate Messtargets hergestellt.

Es hat sich gezeigt, dass die meisten Proben Werte aufweisen, die auf eine Kontamination durch globalen Fallout zurückzuführen ist. Plutonium aus den Reaktoren Fukushima Dai-ichi konnte hauptsächlich in Bewuchs- oder Oberflächenproben nachgewiesen werden. Eine genaue Aussage über den Austritt von ^{236}U aus dem Reaktor konnte nicht getroffen werden. Die Aktivitätskonzentrationen des Plutoniums überstieg in keiner der Proben signifikant die durch globalen Fallout bedingten Werte, auch nicht in den Proben, in denen anhand der Isotopenverhältnisse aus dem Reaktor stammendes Plutonium klar nachgewiesen werden konnte. Diese Tatsache und starke Unterschiede zwischen benachbarten Proben lassen darauf schließen, dass es zu einem insgesamt geringen Austritt Plutoniums und dieser mutmaßlich in partikulärer Form gekommen ist.

Schlagwörter: *Fukushima, Plutonium, Uran-236*

Abstract

In March 2011, the nuclear power plant Fukushima Dai-ichi was seriously damaged by a tsunami caused by an earthquake. During the accident large quantities of radionuclides, mainly of the volatile elements cesium and iodine, were released to the environment. In small amounts refractory elements such as plutonium and uranium have also been released.

Plutonium and the uranium isotope ^{236}U have primarily been delivered by human activities in the environment. Large amounts were released during the atmospheric nuclear weapons tests. Additional sources are accidents in nuclear facilities, like Chernobyl. Every source has its own characteristic isotopic composition. It is therefore possible to determine the origin of the contamination by measuring the isotopic ratios of $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ and $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$. These ratios can be determined by using accelerator mass spectrometry. Due to its high sensitivity, it is possible to measure even small amounts of plutonium and especially of ^{236}U . These measurements were performed using the compact 500 kV facility „TANDY“ of ETH Zurich.

In 2013 and 2015 vegetation, litter and soil drill core samples were taken in the contaminated area in Fukushima prefecture. In 2015 samples were taken as close to the sampling locations of the 2013 campaign as possible. After isolation of plutonium and uranium by chemical extraction, separate targets were prepared for the measurement.

The $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ ratios indicate global fallout as the plutonium source for most samples. The plutonium of the reactors of Fukushima Dai-ichi is located in the upper layers like in vegetation or litter. From the uranium ratios alone the reactors could not unambiguously be identified as the source of ^{236}U . However, this is plausible in the cases where reactor plutonium was detected. None of the samples contained higher plutonium activity concentrations than in the rest of Japan, caused by global fallout. This holds even for the samples where the reactors were identified as the source from the isotope ratios. This and the strong localization, even for neighboring sampling sites, indicate that the overall small quantities of plutonium were most likely released as particulate matter.

Keywords: *Fukushima, Plutonium, Uranium-236*

Inhaltsverzeichnis

| | |
|--|-----------|
| Abkürzungsverzeichnis | ix |
| 1. Einleitung | 1 |
| 1.1. Reaktorunfall in Fukushima Dai-ichi | 1 |
| 1.1.1. Aufbau der Anlage | 1 |
| 1.1.2. Unfallablauf | 3 |
| 1.1.3. Kernschäden | 6 |
| 1.1.4. Radiologische Folgen des Unfalls | 7 |
| 1.2. Plutonium | 9 |
| 1.2.1. Entdeckung des Plutoniums | 9 |
| 1.2.2. Vorkommen in der Umwelt | 10 |
| 1.2.3. Chemische Eigenschaften von Plutonium | 10 |
| 1.2.4. Bildung von Plutonium in Kernreaktoren | 11 |
| 1.2.5. Isotopenverhältnisse von Plutonium | 12 |
| 1.2.6. Radioaktive Partikel | 14 |
| 1.3. Uran | 14 |
| 1.3.1. Entdeckung des Urans | 14 |
| 1.3.2. Natürliches Uran | 15 |
| 1.3.3. Bildung von U-236 | 15 |
| 1.3.4. Chemische Eigenschaften von Uran | 16 |
| 1.3.5. Isotopenverhältnisse von ^{236}U | 16 |
| 2. Messmethoden und Auswertung | 19 |
| 2.1. Accelerator Mass Spectrometry (AMS) | 19 |
| 2.1.1. Interferenzen während der Messung | 22 |
| 2.1.2. Auswertung | 22 |
| 2.2. Gammaskpektrometrie | 25 |
| 2.2.1. Wechselwirkung mit Materie | 25 |
| 2.2.2. Detektion und Aufbau eines Spektrums | 26 |
| 2.2.3. Zu untersuchende Nuklide | 27 |
| 2.2.4. Auswertung | 28 |

| | |
|---|-----------|
| 3. Probenübersicht | 31 |
| 3.1. Probennahme aus 2013 | 32 |
| 3.1.1. Probenvorbereitung | 34 |
| 3.2. Probennahme aus 2015 | 35 |
| 3.2.1. Probenvorbereitung | 36 |
| 3.2.2. Herstellung der Gammapräparate | 36 |
| 3.3. IAEA-Referenzproben | 37 |
| | |
| 4. Chemische Probenaufbereitung von Plutonium und Uran | 39 |
| 4.1. Aufschluss der Proben | 39 |
| 4.2. Chemische Abtrennung von Plutonium und Uran | 40 |
| 4.3. Herstellung des AMS-Messpräparats | 43 |
| | |
| 5. Ergebnisse | 47 |
| 5.1. IAEA-Referenzmaterial | 47 |
| 5.1.1. Konformitätsprüfung | 47 |
| 5.1.2. Validierung | 47 |
| 5.2. Proben aus 2013 | 49 |
| 5.2.1. Plutonium | 49 |
| 5.2.2. Uran | 54 |
| 5.3. Proben aus 2015 | 60 |
| 5.3.1. Plutonium | 60 |
| 5.3.2. Uran | 62 |
| 5.3.3. Gammaspektrometrische Untersuchungen | 63 |
| 5.4. Vergleichswerte aus Tschernobyl | 67 |
| | |
| 6. Diskussion | 71 |
| 6.1. Diskussion der Proben aus 2013 | 71 |
| 6.1.1. Plutonium | 71 |
| 6.1.2. Uran | 75 |
| 6.2. Diskussion der Proben aus 2015 | 77 |
| 6.2.1. Plutonium | 77 |
| 6.2.2. Uran | 78 |
| 6.2.3. Caesium | 80 |
| 6.3. Vergleich von 2013 mit 2015 | 82 |
| 6.4. Diskussion der Proben aus Tschernobyl | 82 |
| 6.4.1. Vergleich zu Fukushima | 84 |
| 6.5. Weitere Untersuchungen aus Japan | 85 |
| | |
| 7. Zusammenfassung | 93 |

| | |
|--|------------|
| A. Anhang | 97 |
| A.1. Weitere Berechnungen für ^{236}U | 97 |
| Abbildungsverzeichnis | 97 |
| Tabellenverzeichnis | 101 |
| Literaturverzeichnis | 104 |

Abkürzungsverzeichnis

| | |
|-------|--|
| ac/ac | Aktivitätsverhältnis |
| AMS | Accelerator Mass Spectrometry |
| at/at | Atomverhältnis |
| BELB | Brennelementlagerbecken |
| Bq | Becquerel, Zerfälle pro Sekunde |
| ESA | Elektrostatischer Analysator |
| GRS | Gesellschaft für Reaktorsicherheit |
| HPGe | High Purity Germanium |
| INES | Internationale Bewertungsskala für nukleare Ereignisse |
| KKW | Kernkraftwerk |
| MEXT | Ministry of Education, Culture, Space, Science and Technology) |
| n.b. | nicht bestimmt |
| SF | Spontaneous Fission, Spontanspaltung |
| SNAP | Space Nuclear Auxiliary Power |
| TEVA | Tetra Valent Actinides |
| UTEVA | Uranium and Tetra Valent Actinides |

1. Einleitung

Im Rahmen dieser Arbeit sollen Umweltproben wie Bewuchs- und Bodenproben aus der Region des havarierten Kernkraftwerks Fukushima Dai-ichi untersucht werden. Dabei wird ein besonderer Fokus auf Plutonium und Uran gelegt. Mit Hilfe der Beschleunigermassenspektrometrie sollen von diesen die jeweiligen Isotopenverhältnisse ermittelt werden. Mit diesen Verhältnissen kann eine Aussage über die Herkunft des Plutoniums bzw. des Urans getroffen werden. Durch diese Informationen ist es möglich, Rückschlüsse über den Unfallhergang ziehen zu können. Auch dienen diese Ergebnisse einer besseren Einschätzung über das Risiko durch die Kontamination bei einer potenziellen Rückkehr der Bevölkerung in die evakuierten Gebiete.

Daher wird in diesem Kapitel zunächst der Unfall des Kernkraftwerks Fukushima Dai-ichi beschrieben. Außerdem werden die Elemente Plutonium und Uran mit einigen Eigenschaften näher beschrieben und erläutert.

1.1. Reaktorunfall in Fukushima Dai-ichi

In diesem Abschnitt wird der bekannte Unfallhergang beschrieben, dazu ist es erforderlich, zunächst den Aufbau der Anlage zu betrachten. Hauptsächlich diente als Quelle dafür der Untersuchungsbericht der GRS [GRS16], daher wird im Folgenden diese Quelle nicht mehr explizit genannt.

1.1.1. Aufbau der Anlage

Auf der Anlage von Fukushima Dai-ichi stehen sechs Reaktorblöcke. Hierbei handelt es sich um Siedewasserreaktoren. Die Blöcke 1 - 5 sind vom Typ GE Mark I, während der Reaktorblock 6 vom Typ GE Mark II ist. Als Brennstoff wurde in den meisten Fällen Urandioxid verwendet, nur in Block 3 wurden auch Mischoxid Brennstäbe verwendet, bei denen Pu als Brennstoff dient.

Bei allen Blöcken befindet sich der Reaktorkern im Reaktordruckbehälter. Dieser hat an der Wand an verschiedenen Stellen Durchführungen, speziell auch am Boden,

was ihn anfälliger für den Austritt von Kernschmelze macht, als das für Druckwasserreaktoren der Fall ist. Das Containment oder auch Sicherheitsbehälter genannt, besteht hier aus der Druckkammer und einer ringförmigen Kondensationskammer. Der Reaktordruckbehälter befindet sich in der Druckkammer. Über Sicherheits- und Entlastungsventile kann im Störfall durch Dampfabgabe Druck aus dem Reaktordruckbehälter in die Kondensationskammer abgeleitet werden, dadurch kann der Druck im Reaktordruckbehälter reguliert werden. Die Kondensationskammer ist teilweise mit Wasser als Kühlmittel gefüllt. Dieses muss ebenfalls gekühlt werden, da es sich durch den eingeleiteten Dampf aufheizt. Das Containment ist mit Stickstoff gefüllt, damit es im Fall einer Bildung von Wasserstoff im Störfall nicht zu einer Knallgasreaktion mit Sauerstoff kommen kann. Eine schematische Darstellung des Aufbaus der Reaktoren findet sich in Abbildung 1.1.

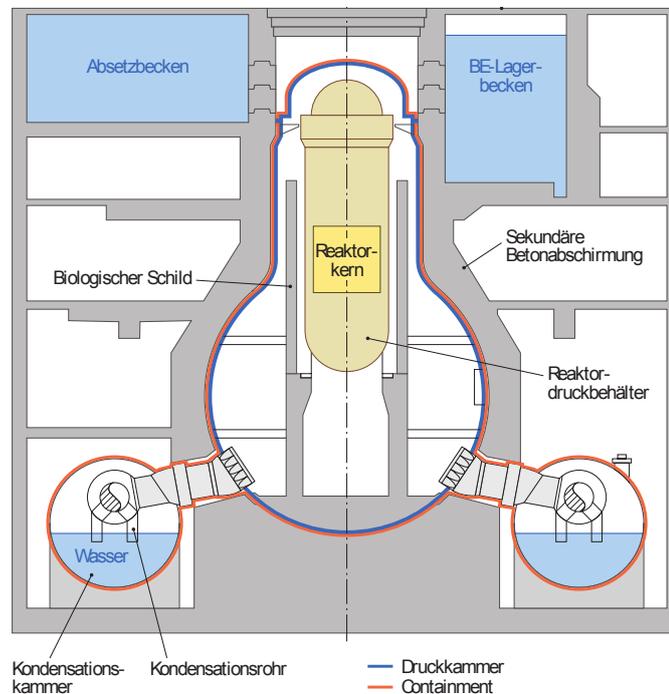


Abbildung 1.1.: Schematische Darstellung des Aufbaus des Reaktors in Fukushima [GRS16]

Zur Steuerung der Reaktoren wird Strom benötigt. Dieser muss auch im Fall einer Abschaltung, insbesondere um die Kühlung mittels elektrisch betriebener Pumpen zu gewährleisten, zur Verfügung stehen. Daher werden neben dem Netzstrom auch Notstromdieselgeneratoren und Batterien bereitgehalten. Die Notstromdieselgeneratoren befinden sich im Untergeschoss des Maschinenhauses, welches sich seitlich

an das Reaktorgebäude anschließt. In den Blöcken 2 - 4 steht noch ein weiterer Notstromdieselgenerator im Gebäude für abgebrannte Brennelemente nahe den Blöcken 3 und 4 zur Verfügung. Weiterhin stehen bei Komplettausfall der Stromversorgung für jeden Block noch Batterien bereit, die eine weitere Kühlung des Reaktors für acht Stunden gewährleisten können.

Kommt es zu einer Reaktorschnellabschaltung, wird allerdings noch lange Wärme durch den weiter bestehenden radioaktiven Zerfall der Spaltprodukte erzeugt. Diese Nachzerfallswärme muss abgeführt werden, da sonst der Stand des Wassers, welches als Kühlmittel fungiert immer weiter sinken würde, währenddessen sich die Brennstäbe immer weiter aufheizen. Ab 900 °C kommt es bereits zu Kernschäden und ab circa 2700 °C kommt es zur Kernschmelze. Durch die hohen Temperaturen im Kern, können dabei große Mengen an Wasserstoff durch die folgende Zirkonium-Wasser-Reaktion gebildet werden, das Zirkonium stammt dabei aus der Ummantelung der Brennstäbe [Mic11]:



Alle Blöcke verfügen daher über mehrere Systeme zur Nachkühlung und Bespeisung. Mit den Systemen der Nachkühlung wird die Nachzerfallswärme aus dem Reaktor-druckbehälter abgeführt. Die Bespeisung dient dafür das Kühlmittel wieder in den Reaktordruckbehälter zuzuführen. Diese funktionieren über Pumpen und Ventile, die elektrisch betrieben werden müssen. Die Systeme des Blocks 1 unterscheiden sich von denen der Blöcke 2 - 4.

1.1.2. Unfallablauf

Am 11.03.2011 kam es vor der japanischen Küste um 14:46 Uhr Ortszeit mit einer Stärke von 9,0 zum schwersten bis dahin verzeichneten Seebeben in Japan. Das Zentrum des Bebens lag in 25 km Tiefe und etwa 130 km östlich der japanischen Stadt Sendai. Das Beben hatte einen Tsunami zur Folge, der bereits nach 10 min Teile der japanischen Ostküste erreichte. Um 15:27 Uhr trafen die ersten Wellen auf das Gelände des Kernkraftwerks Fukushima Dai-ichi, die Hauptwelle mit einer Höhe von 14 m traf um 15:41, etwa einer Stunde nach dem Erdbeben, ein.

Die Blöcke 1 - 3 befanden sich zum Zeitpunkt des Erdbebens im Leistungsbetrieb, es erfolgte bei allen eine automatische Abschaltung. Die Blöcke 4 - 6 befanden sich in Revision, wobei bei Block 4 das komplette Kernmaterial im Brennelementlager-becken aufbewahrt wurde. Durch das Erdbeben kam es zu erheblichen Schäden in der Umgebung des Kraftwerks, wodurch die externe Stromversorgung zusammenbrach. Die Notstromdieselgeneratoren starteten auslegungsgemäß. Durch den kurzen Spannungsabfall kam es zu einem automatischen Durchdringungsabschluss

im Frischdampfsystem. Dieser verhindert, dass der im Reaktordruckbehälter erzeugte Frischdampf ins Containment gelangt, dadurch kam es zu einem Druckanstieg. Beim Eintreffen der Hauptwelle des Tsunamis wurden die Maschinenhäuser, in denen sich die Notstromdieselgeneratoren befanden, überflutet und die Generatoren dabei zerstört. Auch die meisten Notbatterien wurden dabei zerstört. Nur in Block 3 standen die Batterien noch zur Verfügung, wodurch eine Bespeisung des Reaktors manuell eingestellt werden konnte. In Block 2 konnte noch kurz vor dem Ausfall der kompletten Stromversorgung ein dampfbetriebenes Nachspeisesystem gestartet werden. Nur in Block 1 stand kein System zur Bespeisung und Kühlung zur Verfügung.

Ohne weitere Kühlung erzeugte die Nachzerfallswärme weiterhin Dampf, der ab einem gewissen Druck automatisch in die Kondensationskammer abgeleitet wurde. Dadurch sank das Kühlmittel im Reaktordruckbehälter, die Temperatur und der Druck in der Kondensationskammer stiegen dabei an. Bereits um 18:00 Uhr soll nach Berechnungen das Kühlmittel bis zur Oberkante der Brennelemente in Block 1 gesunken sein und ab 18:40 Uhr soll es zu den ersten Kernschäden gekommen sein. Erste Versuche ein Bespeisungssystem zum Laufen zu bringen waren bis dahin gescheitert. Ab 23:50 Uhr lag der Druck im Containment über dem Auslegungsdruck, daher wurden die Vorbereitungen für eine Druckentlastung vorgenommen und eine Evakuierung der Umgebung der Anlage durchgeführt.

Früh morgens am Folgetag des Erdbebens wurde ein relativ niedriger Druck im Reaktordruckbehälter und Containment von Block 1 beobachtet, welches vermuten ließ, dass es wahrscheinlich zu Schäden an Dichtungen gekommen war. Auch konnte ein Anstieg der Ortsdosisleistung zu diesem Zeitpunkt auf dem Gelände festgestellt werden, was den Verdacht auf Dichtungsschäden erhärtete.

Ab 04:00 Uhr konnte über eine mobile Pumpe eines Feuerlöschwagens Frischwasser in den Reaktordruckbehälter eingespeist werden. Bis zu diesem Zeitpunkt wurde der Reaktor seit 14 h nicht mehr bespeist. Um 09:00 Uhr war die Evakuierung so weit fortgeschritten, dass mit einer Druckentlastung begonnen werden konnte. Allerdings mussten dafür Ventile manuell geöffnet werden, was durch die hohe Strahlenbelastung nicht mehr möglich war. Um 14:00 Uhr wurden diese Ventile mit mobilen Druckluftkompressoren geöffnet, was einen Druckabfall im Containment zur Folge hatte.

Um 15:36 Uhr kam es im oberen Teil des Reaktorgebäudes von Block 1 zu einer Explosion. Hier wird vermutet, dass es zu einer Wasserstoffexplosion gekommen ist. Der Wasserstoff soll sich dabei durch die vorne beschriebene Zirkonium-Wasser-Reaktion gebildet haben (s. Reaktion 1.1). Die Explosion hat Vorbereitungen auf eine alternative Bespeisung des Reaktordruckbehälters mit Meerwasser aus dem Kraftschlussbecken von Block 3 unterbrochen und verzögert. Diese alternative Bespeisung konnte erst in den Abendstunden erfolgen.

Währenddessen fiel zeitweise das Nachspeisesystem in Block 3 aus, obwohl die Batterie noch nicht erschöpft war. Dieses konnte nicht neu gestartet werden. Bei Erreichen eines zu niedrigen Füllstandes des Kühlmittels im Reaktordruckbehälter, startete hier dennoch das Hochdruckeinspeisesystem automatisch. Mit diesem System kann auch bei hohen Drücken Kühlmittel in den Reaktordruckbehälter eingespeist werden. Dadurch konnte der Füllstand des Kühlmittels wieder erhöht und der Druck im Reaktordruckbehälter gesenkt werden.

Der Füllstand des Kühlmittels in Block 2 war bis zu diesem Zeitpunkt konstant, was darauf schließen lässt, dass das Nachspeisesystem seit dem Tsunami in Betrieb war. Auch wurde vermutet, dass durch die Explosion von Block 1 eine Öffnung in Block 2 entstand, wodurch eine Anreicherung von brennbaren Gasen verhindert wurde.

Am 13.03.2011 wurde um 02:42 Uhr die laufende Bespeisung des Block 3 manuell gestoppt, da die weitere Bespeisung über eine Feuerlöschpumpe realisiert werden sollte. Durch die Abschaltung stieg der Druck allerdings erneut so hoch an, dass eine Bespeisung über die Pumpe nicht möglich war. Die Sicherheits- und Entlastungsventile konnten durch fehlenden Strom nicht geöffnet werden. Eine erneute Aktivierung des zuvor abgeschalteten Hochdruckeinspeisesystems schlug fehl. Im Folgenden wurden die Vorbereitungen zur Druckentlastung des Containments begonnen. Um 09:25 Uhr war der Druck im Reaktordruckbehälter so weit gesenkt, dass Frischwasser über die Pumpe eingespeist werden konnte. Bis zu diesem Zeitpunkt wurde der Reaktor für 6,5 h nicht bespeist. Zu ersten Kernschäden soll es bereits um 07:10 Uhr gekommen sein.

Zur Druckentlastung der Druckkammer sollte in Block 2 ein Venting durchgeführt werden, dafür wurden ab 08:10 Uhr zugehörige Ventile geöffnet. Ein Druckabfall blieb allerdings aus. Ab 12:05 Uhr liefen Vorbereitungen für eine alternative Bespeisung und es wurden Schläuche zum Kraftschlussbecken von Block 3 gelegt.

Am 14.03.2011 erfolgte um 11:01 Uhr eine weitere Explosion, dieses Mal im oberen Teil des Reaktorgebäudes von Block 3. Bei dieser Explosion wurden Feuerlöschpumpen und bereits verlegte Schläuche stark beschädigt. Erst 4 Stunden später konnte eine weitere Bespeisung mit Meerwasser direkt aus dem Pazifik erfolgen.

Durch die Explosion wurde auch die alternative Bespeisung von Block 2 zerstört. Der Druck im Reaktordruckbehälter war allerdings bereits zu hoch, als dass eine Bespeisung über mobile Pumpen wieder erfolgen konnte. Der Druck konnte erst gegen 18:00 Uhr über die Sicherheits- und Entlastungsventile gesenkt werden. Erst um 19:54 Uhr wurde ebenfalls mit der Bespeisung mit Meerwasser aus dem Pazifik begonnen. Der Reaktor wurde bis zu diesem Zeitpunkt vermutlich für 11 Stunden nicht mehr bespeist und ab 18:00 Uhr soll es zu einer Kernfreilegung gekommen sein. Ein erneuter Druckanstieg machte ein erneutes Venting erforderlich. Weitere Versuche zur Druckabsenkung blieben erfolglos. Erst am Folgetag kam es zu einer

Druckentlastung der Druckkammer, wodurch diese erfolgte ist unklar.

Am 15.03.2011 kam es zu einer Explosion im oberen Teil des Gebäudes von Block 4. Hier wurde vermutet, dass der Wasserstoff durch das gemeinsam genutzte Lüftungssystem aus Block 3 in das Gebäude gelangen konnte und dort mit dem Sauerstoff reagierte. Durch das nun zerstörte Dach konnte das Becken zunächst mit Frischwasser mittels Wasserwerfern und schließlich mit Autobetonpumpen bespeist werden.

Die Blöcke 5 und 6 befanden sich in Revision, allerdings befand sich hier der Kern im Reaktordruckbehälter. Nach dem Tsunami wurden die Notstromdiesel von Block 5 zerstört, allerdings blieb ein Aggregat von Block 6 funktionsfähig. Der sich aufbauende Druck in Block 5 konnte am Folgetag des Unfalls entlastet werden und es konnte mit einer Bespeisung durch Niederdrucksysteme begonnen werden. Am nächsten Tag wurde Block 5 mit dem Notstromdiesel aus Block 6 mit versorgt. Der Druck konnte hier über die Sicherheits- und Entlastungsventile geregelt werden. Ab dem 19.03.2011 konnte eine provisorische Pumpe installiert werden mit der bei beiden Blöcken der Kern und das Brennelementlagerbecken alternierend gekühlt wurde.

Ab dem 20.03.2011 konnte für Block 1 und Block 2 eine externe Stromversorgung wieder hergestellt werden. Dasselbe erfolgte für Block 3 zwei Tage später.

1.1.3. Kernschäden

Der genaue Zustand der Reaktorkerne in den Blöcken 1 - 3 ist bis heute noch unklar. Die Erkenntnisse diesbezüglich können bisher hauptsächlich durch indirekte Beobachtungen, wie den Wasserstoffexplosionen, die ohne massive Kernschäden nicht zu erklären sind, und Simulationsrechnungen abgeschätzt werden. Auch bereits veröffentlichte Fotos und Videosequenzen aus Roboterbefahrungen aus dem Inneren der Sicherheitsbehälter der Blöcke 1-3 erlauben noch keine gesicherten Aussagen über den tatsächlichen Zustand der Reaktorkerne [GRS16]. Bei den Simulationen wurden viele verschiedene Parameter berücksichtigt, da für alle Blöcke nicht genau bekannt ist, wie lange die verschiedenen Bespeisungen gelaufen sind und wie hoch der Reaktorfüllstand tatsächlich war. Daher sind die Berechnungen auch mit großen Unsicherheiten behaftet.

Dennoch bestätigen die Berechnungen, dass es in allen drei Blöcken zu starken Kernschäden gekommen ist. Während davon ausgegangen wird, dass es in Block 2 nur zu einer lokalen Kernzerstörung kam, kann man in den Blöcken 3 und 1 von deutlich stärkeren Kernschäden sprechen, für Block 1 sogar von einer vollständigen Kernzerstörung. Hier soll es auch zu einer massiven Beschädigung des Reaktordruckbehälters gekommen sein und die Kernschmelze in den Sicherheitsbehälter gelangt sein.

Um zusätzlichen Aufschluss über die Verteilung des Kernmaterials in den Blöcken 1 - 3 zu erhalten, wurde die Myonen-Tomographie zunächst bei Block 1 angewendet. Mit dieser Technik entsteht eine Art „Röntgenbild“ vom Inneren des Reaktors. Die gemachten Aufnahmen von Block 1 haben gezeigt, dass sich im Reaktordruckbehälter keine größeren Bestandteile des Brennstoffmaterials befinden die größer sind als 1 m, was dafür sprechen würde, dass sich der Brennstoff in den Sicherheitsbehälter verlagert hat. Weitere Aufnahmen mittels Myonen-Tomographie der Blöcke 2 und 3 sind bereits geplant.

Den tatsächlichen Zustand der Reaktorkerne wird man aber erst durch weitere Bildaufnahmen oder Probennahmen vor Ort ermitteln können.

1.1.4. Radiologische Folgen des Unfalls

Während der Explosionen und Druckentlastungen kam es zu einer erheblichen Freisetzung von Radionukliden in die Umwelt. Hierbei handelt es sich hauptsächlich um radioaktive Isotope der leichtflüchtigen Elemente Caesium und Iod. Aufgrund einer günstigen Wetterlage wurde der Großteil der Emissionen aufs offene Meer getragen (etwa 80 %) und nur ein vergleichsweise kleiner Teil der freigesetzten Aktivität gelangte aufs japanische Festland [Yam14], [Ste14]. Die Radionuklide wurden hauptsächlich in nordwestliche Richtung des Geländes getragen. In Abbildung 1.2 ist die geschätzte totale Deposition des Radiocaesiums nach dem Unfall dargestellt, an der man die Verteilung über das Land gut erkennen kann. Neben den leichtflüchtigen Radionukliden wurden auch sehr geringe Mengen an schwerflüchtigen Nukliden der Elemente Strontium, Plutonium und Uran freigesetzt. In Tabelle 1.1 sind die geschätzten Werte, wie viel Aktivität der aufgelisteten Nuklide während des Unfalls in die Atmosphäre freigesetzt wurde, aufgeführt. Die aus Simulationsberechnungen ermittelten Werte der Isotopenverhältnisse des Plutoniums sind in Tabelle 6.2 aufgeführt. Diese liegen in einem Bereich von 0,27 - 0,45 für das atombezogene $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ -Verhältnis und 1,77 - 2,97 für das aktivitätsbezogene $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ -Verhältnis. Diese Verhältnisse werden später noch genauer erläutert.

Aufgrund der Freisetzungen und des Unfallhergangs wurde der Unfall von Fukushima Dai-ichi auf der internationalen Bewertungsskala für nukleare Ereignisse (INES) auf der höchsten Stufe eingeordnet, genauso wie der 1986 stattgefundenen Unfall in Tschernobyl. Dennoch bestehen einige wesentliche Unterschiede zwischen diesen beiden Unfällen. In Tschernobyl kam es zu einem unkontrollierten Leistungsanstieg und zur Explosion des Reaktorgebäudes, bei dem unter anderem Kernbrennstoff in die Luft geschleudert wurde. So wurden, neben den leichtflüchtigen Nukliden, die schwerflüchtigen Elemente in erheblichen Mengen direkt in die Umwelt freigesetzt. Durch den mehrere Tage andauernden Brand des Graphitmoderators, der wie ein Schlot wirkte, wurden die Radionuklide zusätzlich in große Höhen getragen. Diese

1. Einleitung

kontaminierten ein deutlich größeres Gebiet als in Japan, was wohl hauptsächlich auch daran liegt, dass der Reaktor von Tschernobyl nicht am Meer sondern mittig in Europa liegt. Auch betrug die in Fukushima freigesetzte Aktivität nur etwa 10 % des Wertes in Tschernobyl, wenn man den Austrag der Edelgase nicht berücksichtigt [Ste14].

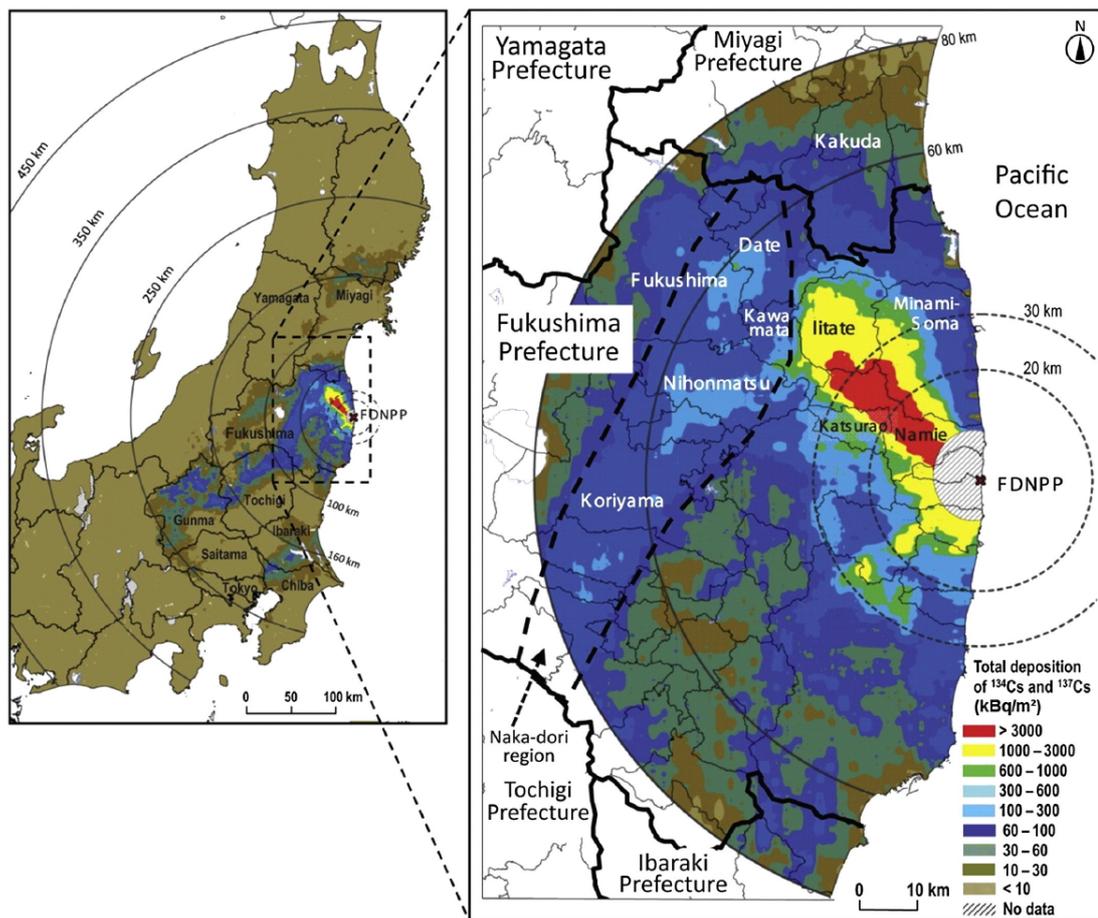


Abbildung 1.2.: Abschätzung der totalen Deposition des Radiocaesiums (^{134}Cs und ^{137}Cs) in Folge des Reaktorunfalls in der Präfektur Fukushima gemäß [Ste14]

Tabelle 1.1.: Geschätzte Freisetzung von Fukushima in die Atmosphäre [Xu16], [Zhe13], [Sak14], [Ste14]

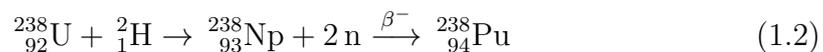
| Nuklid | Aktivität |
|---------------------------------------|--------------------|
| ^{131}I | 153 - 160 PBq |
| ^{129}I | 5,71 GBq |
| ^{137}Cs , ^{134}Cs | 13 - 15 PBq |
| ^{90}Sr | $\approx 0,02$ PBq |
| $^{239,240}\text{Pu}$ | 1,0 - 2,4 GBq |
| ^{241}Pu | 1,1 - 2,6 TBq |
| ^{238}Pu | 2,9 - 6,9 GBq |
| ^{236}U | 1,2 MBq |

1.2. Plutonium

Im folgenden Abschnitt wird näher auf das Element Plutonium eingegangen und die relevanten Eigenschaften werden beschrieben.

1.2.1. Entdeckung des Plutoniums

Plutonium wurde zum ersten Mal 1940 von Seaborg, McMillan, Kennedy und Wahl entdeckt und produziert. Hier wurde ^{238}U mit Deuteronen beschossen, wodurch sich das relativ kurzlebige ^{238}Np bildet, welches über einen β -Zerfall zum ^{238}Pu übergeht:



Im Folgejahr konnte durch den Beschuss von ^{238}U mit Neutronen das Isotop ^{239}Pu entdeckt werden. Im gleichen Jahr wurde auch die Spaltbarkeit dieses Isotops mit langsamen Neutronen entdeckt.

Im Jahr 1942 gelang es Cunningham und Werner 1 μg ^{239}Pu herzustellen. Dies machte Plutonium zum ersten künstlichen Element, das vom Menschen in wägbaren Mengen erzeugt werden konnte.

Bisher konnten zwanzig Isotope des Plutoniums erzeugt werden, die alle radioaktiv sind. Als letztes gelang die Erzeugung des Isotops ^{231}Pu im Jahre 1999 [Cla08].

1.2.2. Vorkommen in der Umwelt

Weltweit existieren etwa 2000 t Plutonium in Form von Kernbrennstoff, Kernwaffen oder radioaktivem Abfall. Dieser Anteil wächst jährlich um etwa 70 t durch die Nutzung von Uran als Kernbrennstoff [Cla08].

Allerdings existiert Plutonium auch in vergleichsweise geringen Mengen natürlichen Ursprungs. Vor der Entstehung unseres Sonnensystems wurde Plutonium durch Supernovae gebildet. Von diesem ursprünglichen Plutonium sind nur noch geringe Mengen des Isotops ^{244}Pu auf der Erde zu finden, da die anderen Isotope eine zu kurze Halbwertszeit haben (vergleiche Tabelle 1.2) und bereits zerfallen sind [Neu10]. Allerdings konnte auch nachgewiesen werden, dass das Isotop ^{239}Pu ebenfalls natürlich in der Umwelt vorliegt. Dies wurde bereits 1942 von Seaborg und Perlman unter anderem in kanadischer Pechblende nachgewiesen. Hier bildet sich das ^{239}Pu durch Neutroneneinfang des ^{238}U [Cla08]. Es liegen schätzungsweise einige Kilogramm des natürlichen ^{239}Pu in der oberen Erdkruste vor. Auch wurde vor zwei Milliarden Jahren über 1 t ^{239}Pu im Naturreaktor Oklo in Gabun (Afrika) gebildet [Neu10].

Der größte Anteil des Plutoniums, das in der Umwelt vorliegt, ist anthropogenen Ursprungs und stammt aus verschiedenen Quellen. Während der atmosphärischen Kernwaffentests in den 1950ern und 1960ern wurden erhebliche Mengen Plutonium in die Umwelt freigesetzt, welches sich über die Atmosphäre global verteilt hat. Dabei wurden etwa 13 PBq auf der Erdoberfläche inklusive der Ozeane verteilt. Zu einer weiteren atmosphärischen Freisetzung von Plutonium kam es unter anderem durch den Unfall eines Navigationssatelliten, der mit einer SNAP-9A (Space Nuclear Auxiliary Power) Isotopenbatterie ausgestattet war. Beim Wiedereintritt in die Atmosphäre verglühte der Satellit und setzte circa 6300 GBq ^{238}Pu frei [Neu10]. Neben den atmosphärischen Freisetzungen kam es ebenfalls zu mehreren lokalen Freisetzungen von Plutonium. Dazu zählt unter anderem der Unfall eines B52-Bombers in Palomares, zu dem es während eines Auftankmanövers kam. Der Brennstoff zweier Wasserstoffbomben, die in dem B-52 Bomber transportiert wurden, hat sich dabei in der Umgebung verteilt [Cha06]. Die Unfälle in den Kernreaktoren in Tschernobyl und Fukushima haben ebenfalls zu einer Freisetzung von Plutonium in die Umwelt beigetragen. In Fukushima allerdings in einem deutlich geringeren Ausmaß als in Tschernobyl.

1.2.3. Chemische Eigenschaften von Plutonium

Plutonium gehört zu der Gruppe der Actinide und hat eine Ordnungszahl von 94. Es handelt sich dabei um ein giftiges Schwermetall, welches bei Inhalation

Gesundheitsrisiken hervorruft. Die bekannten Isotope sind alle radioaktiv und hauptsächlich Alphastrahler [Neu10].

In wässrigen Lösungen kann Plutonium in bis zu 4 verschiedenen Oxidationszuständen gleichzeitig vorliegen. Da die Oxidationszustände +III, +IV, +V und +VI ein nahezu gleiches Redoxpotential, welches kleiner als 1,0 V ist, aufweisen, existieren in der Regel mehr als ein Oxidationszustand gleichzeitig in der Lösung [Neu10]. Durch Verwendung von Oxidations- bzw. Reduktionsmitteln ist es aber möglich, über Redoxreaktionen die verschiedenen Zustände in einen zu überführen.

In Tabelle 1.2 sind relevante Eigenschaften der für diese Arbeit wichtigsten Isotope von Plutonium aufgeführt.

Tabelle 1.2.: Eigenschaften relevanter Plutoniumisotope [Cla08], [Hou08],[Mag12], SF steht für Spontanspaltung

| Isotop | Halbwertszeit [a] | Spez. Aktivität [Bq/g] | Zerfallsart | Energie [MeV] |
|-------------------|--------------------|------------------------|---------------|---|
| ^{238}Pu | 87,7 | $6,34 \cdot 10^{11}$ | α , SF | 5,499 (70,9 %) 5,456 (29,0 %) |
| ^{239}Pu | $2,411 \cdot 10^4$ | $2,3 \cdot 10^9$ | α , SF | 5,157 (70,77 %) 5,144 (17,11 %) 5,106 (11,94 %) |
| ^{240}Pu | $6,561 \cdot 10^3$ | $8,40 \cdot 10^9$ | α , SF | 5,168 (72,8 %) 5,124 (27,1 %) |
| ^{241}Pu | 14,41 | $3,82 \cdot 10^{12}$ | β | |
| ^{242}Pu | $3,75 \cdot 10^5$ | $1,46 \cdot 10^8$ | α , SF | 4,902 (76,49 %) 4,856 (23,48 %) |
| ^{244}Pu | $8,00 \cdot 10^7$ | $6,77 \cdot 10^5$ | α , SF | 4,589 (80,05 %) 4,546 (19,38 %) |

1.2.4. Bildung von Plutonium in Kernreaktoren

Plutoniumisotope werden als Nebenprodukt in Kernreaktoren zur Stromerzeugung über den Neutroneneinfang des ^{238}U erzeugt. In Abbildung 1.3 ist der Brutstoffzyklus von Plutonium in einem Reaktor schematisch aufgeführt (aus [Sch13a])

nach [Lie91]). Auf Nebenreaktionen und Zerfälle, die auftreten und für die Erzeugung keine Relevanz haben, wurde hier der Übersichtlichkeit halber verzichtet.

Ungefähr ein Drittel der erzeugten Energie in einem typisch kommerziellen Reaktor stammt aus der Spaltung von ^{239}Pu . Noch mehr Energie kann erzeugt werden, wenn man MOX-Brennelemente verwendet, bei denen der Anteil des ^{239}Pu höher ist [Neu10].

Nach längerer Bestrahlungszeit können durch Neutroneneinfang des ^{239}Pu weitere Plutoniumisotope höherer Massen erbrütet werden. Diese Bildungsreaktionen stehen in Konkurrenz zur Spaltung des ^{239}Pu , die ebenfalls durch Neutronen ausgelöst wird.

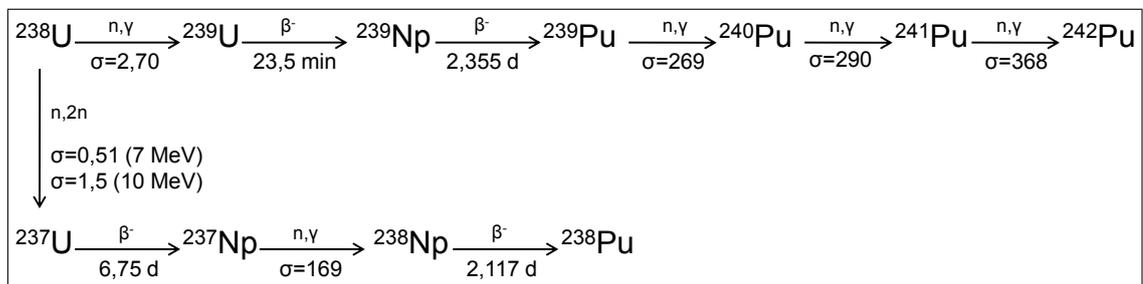


Abbildung 1.3.: Brutstoffzyklus von Plutonium im Reaktor (σ in barn für thermische Neutronen) (aus [Sch13a])

1.2.5. Isotopenverhältnisse von Plutonium

Jedes Ereignis, bei dem Plutonium freigesetzt wurde, hat eine charakteristische Isotopenzusammensetzung. Anhand des Isotopenverhältnisses kann man also Rückschlüsse ziehen, woher das Plutonium stammt.

Bisher wurde dafür hauptsächlich das Isotopenverhältnis von $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ verwendet, da dieses über Alphaspektrometrie bestimmt werden kann. Allerdings ist dieses Verhältnis anfälliger für Störungen, einerseits durch die vergleichsweise kurze Halbwertszeit des ^{238}Pu und die direkte Nachbildung des ^{238}Pu durch den Alpha-Zerfall des ^{242}Cm . Über Massenspektrometrie kann das weniger störanfällige Verhältnis von $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ ermittelt werden. Dieses ist nicht über Alphaspektrometrie bestimmbar, da die Emissionsenergien dieser beiden Isotope zu ähnlich sind und nicht getrennt voneinander aufgelöst werden können (s. Tabelle 1.2).

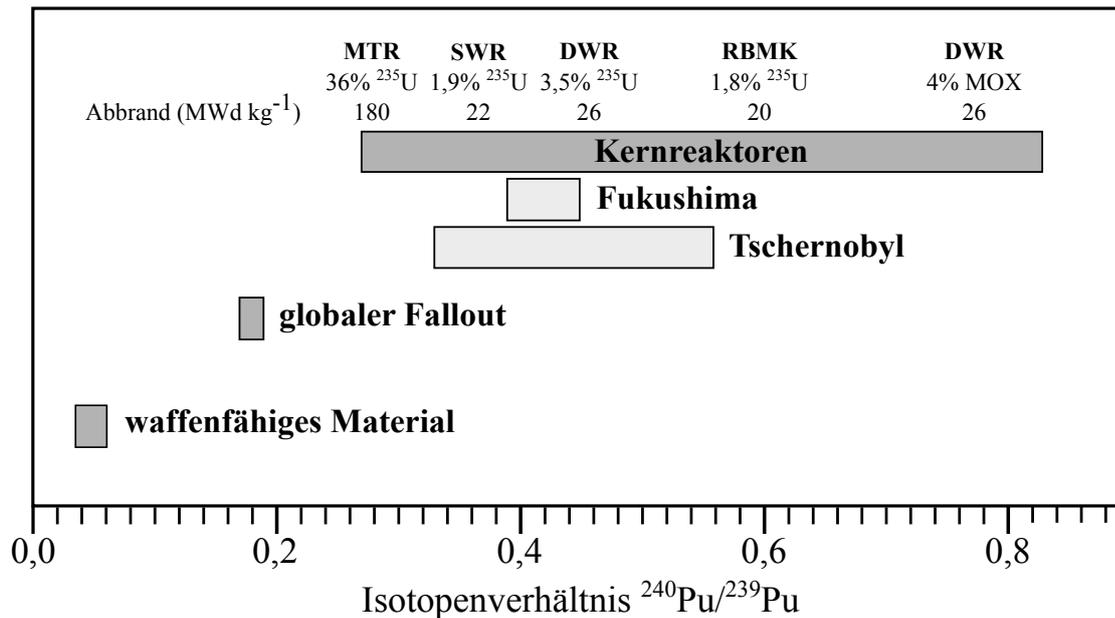


Abbildung 1.4.: Plutoniumisotopenverhältnisse für verschiedene Quellen, angepasst und abgeändert aus [Bis09]

Plutonium wurde durch viele verschiedene Ereignisse in die Umwelt freigesetzt, in Abbildung 1.4 sind die Verhältnisse $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ für die für diese Arbeit wichtigsten Quellen graphisch dargestellt.

Die Isotopenzusammensetzung von Plutonium in einem Kernreaktor ist von vielen Faktoren abhängig und daher auch sehr variabel. Dies erkennt man ebenfalls an Abbildung 1.4, hier sind die Verhältnisse für verschiedene Reaktortypen dargestellt. Die Zusammensetzung hängt unter anderem von dem Neutronenfluss und der Dauer des Abbrandes ab. Zusätzliche Faktoren sind zudem der Reaktortyp, die Höhe des Abbrandes und das Brennstoffmaterial [Cla08].

In waffenfähigem Material sollte das $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ Verhältnis eher klein sein, da hier ein großer Anteil des spaltbaren ^{239}Pu benötigt wird. Nach der Zündung der Bombe ist dieses Verhältnis im Fallout allerdings variabel und hängt vom spezifischen Waffendesign und den Testbedingungen ab. Bei einem höheren Neutronenfluss können auch deutlich höhere Isotopenverhältnisse erzeugt werden [Bue97].

Der gemittelte Wert für das Verhältnis $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ im globalen Fallout ist daher auch deutlich höher als für waffenfähiges Material und beträgt $0,18 \pm 0,01$ [Neu10].

1.2.6. Radioaktive Partikel

Während vieler Ereignisse, bei denen Plutonium in die Umwelt freigesetzt wurde, wie zum Beispiel die atmosphärischen Kernwaffentests oder Unfälle von Kernkraftwerken, wurden die Radionuklide ebenfalls in Form von radioaktiven Partikeln freigesetzt.

Radioaktive Partikel sind definiert als lokalisierte Aggregate radioaktiver Atome, die einen Anstieg zu einer inhomogenen Verteilung der Radionuklide geben, die sich sichtlich von der Matrix des Hintergrunds unterscheidet [IAE11].

Die jeweiligen Partikel unterscheiden sich untereinander stark und sind abhängig davon, durch welches Ereignis sie gebildet wurden. Durch die vielen atmosphärischen Kernwaffentests wurden viele verschiedene Partikel geformt und auch weltweit verteilt. Diese gebildeten Partikel können eine Größe von μm bis zu mehreren mm erreichen. Die größeren Partikel finden sich hauptsächlich in der Nähe der Quelle wieder.

Auch bei einem einzigen Ereignis können sich verschiedene Formen radioaktiver Partikel bilden. Bei dem Unfall von Tschernobyl wurden die gefundenen Partikel in drei wesentliche Gruppen aufgeteilt, in monoelementare Partikel, Brennstoffpartikel und kondensierte Partikel. Bei den Brennstoffpartikeln handelt es sich um Uranoxid Brennstofffragmente die Spalt- und Aktivierungsprodukte wie Plutonium enthalten. Bei den kondensierten Partikeln handelt es sich um leichtflüchtige Elemente die an anderen Teilchen wie Aerosolen kondensieren. Die monoelementaren Partikel bestehen hauptsächlich aus Ruthenium. Erst mit geeigneteren Messmethoden konnte im Nachhinein festgestellt werden, dass sich in diesen Partikeln auch andere Elemente befinden, die aber hauptsächlich nicht radioaktiv sind und zu den Übergangsmetallen gehören. Zudem findet sich in diesen Partikeln kein bis nur sehr wenig Uran [IAE11].

1.3. Uran

Im folgenden Abschnitt wird näher auf das Element Uran eingegangen und die relevanten Eigenschaften beschrieben.

1.3.1. Entdeckung des Urans

Uran wurde bereits 1798 von Martin Heinrich Klaproth als chemisches Element in einer Probe Pechblende entdeckt. Während des 19. Jahrhunderts wurden Uranver-

bindungen zum Färben von Glas und Keramiken verwendet. Die Radioaktivität des Urans wurde zuerst 1896 von Henri Becquerel entdeckt.

Über Massenspektrometrie konnte 1935 ^{235}U entdeckt werden.

Die wesentliche Bedeutung wurde Uran erst zu Teil, nachdem Hahn und Strassmann 1939 die Möglichkeit entdeckten, den ^{235}U -Kern mit Neutronen zu spalten [Gre08] und es dadurch zum wesentlichen Bestandteil von Kernbrennstoff wurde.

Die erste Beobachtung des Isotops ^{236}U wurde 1951 von Ghiorso et al. berichtet [Ghi51]. Hierfür wurde angereichertes Uran ^{235}U mit langsamen Neutronen bestrahlt, der Alphazerfall gemessen und die Halbwertszeit bestimmt.

1.3.2. Natürliches Uran

Natürliches Uran besteht aus drei Isotopen ^{238}U , ^{235}U und ^{234}U , wobei das ^{234}U direkt durch den radioaktiven Zerfall des ^{238}U entsteht. Bei ^{238}U und ^{235}U handelt es sich um sogenannte primordiale Isotope. Uran besteht in der Natur zu 99,3% aus ^{238}U und zu 0,7% aus ^{235}U . Dem ^{235}U kommt dabei besondere Bedeutung zu, da es spaltbar ist.

In äußerst geringen Mengen kommt auch ^{236}U natürlich vor. Hier wird es durch Neutroneneinfang des ^{235}U gebildet. Die Neutronen werden dabei durch (α, n) -Reaktionen leichter Nuklide wie Natrium oder Magnesium, spontaner und induzierter Spaltung des ^{238}U und durch die kosmische Strahlung in den Mineralen erzeugt [Hot00], [Eig13]. Es wird angenommen, dass sich in den oberen Erdschichten nur 30 kg natürliches ^{236}U befinden und weniger als 0,5 kg in den Meeren. Dagegen soll das Inventar des künstlich erzeugten ^{236}U in der Größenordnung von 10^6 kg liegen [Ste08].

1.3.3. Bildung von U-236

^{236}U kann auf verschiedenen Wegen produziert werden. In der Natur bildet es sich durch den Einfang thermischer Neutronen des ^{235}U .

Auch bildet sich ^{236}U aus dem Alphazerfall des ^{240}Pu , dieser Prozess ist vergleichsweise vernachlässigbar.

Desweiteren kann durch $^{238}\text{U}(n, 3n)^{236}\text{U}$ -Reaktionen mit schnellen Neutronen weiteres ^{236}U gebildet werden. In der Natur spielt diese Reaktion eine eher untergeordnete Rolle bei der Bildung. Im Gegensatz dazu wird die Bildung des ^{236}U in Nuklearen- bzw. Thermonuklearen Bomben hauptsächlich durch diese Reaktion gebildet. Daher stammt der größte Beitrag des ^{236}U aus dem globalen Fallout aus eben dieser Reaktion [Sak09].

Die größte Menge an ^{236}U wird allerdings in Kernreaktoren gebildet, hier jedoch wieder über den Einfang thermischer Neutronen des ^{235}U [Mir02].

1.3.4. Chemische Eigenschaften von Uran

Uran gehört zu der Gruppe der Actinide und hat eine Ordnungszahl von 92. Es ist radioaktiv und besitzt somit kein stabiles Isotop. Diese sind primär Alphastrahler und haben eine Massenzahl von 217 bis 242.

Uran ist ein unedles Schwermetall und bildet als solches in praktisch allen Oxidationsstufen schwerlösliche Hydroxide. Höhere Oxidationsstufen werden durch die Bindung mit Sauerstoff stabilisiert. In der Natur bzw. in aquatischen Systemen sind die bedeutendsten Oxidationsstufen des Urans +IV und +VI. Die wichtigste +IV-Verbindung ist in der Natur das unlösliche UO_2 und ist weitgehend immobil. Die wichtigsten +VI-Verbindungen sind Uranylkationen, welche löslich und mobil sind und in der Natur allgegenwärtig.

In Tabelle 1.3 sind relevante Eigenschaften der für diese Arbeit entscheidenden Isotope aufgeführt.

Tabelle 1.3.: Eigenschaften relevanter Uranisotope [Gre08],[Mag12], SF steht für Spontanspaltung

| Isotop | Halbwertszeit [a] | Spez. Aktivität [Bq/g] | Zerfallsart | Energie [MeV] |
|------------------|-------------------|------------------------|---------------|----------------------------------|
| ^{233}U | $1,59 \cdot 10^5$ | $3,56 \cdot 10^8$ | α , SF | 4,824 (82,7 %) 4,783 (14,9 %) |
| ^{236}U | $2,34 \cdot 10^7$ | $2,39 \cdot 10^6$ | α , SF | 4,494 (74 %) 4,445 (26 %) |
| ^{238}U | $4,47 \cdot 10^9$ | $1,24 \cdot 10^4$ | α , SF | 4,196 (77 %) 4,149 (23 %) |

1.3.5. Isotopenverhältnisse von ^{236}U

^{236}U liegt sowohl natürlich als auch anthropogen in der Umwelt vor. Die Verteilung des ^{236}U ist bisher noch nicht so gut untersucht wie für Plutonium. Das liegt hauptsächlich daran, dass es lange schwierig war ^{236}U in natürlichen Erzen zu ermitteln, da durch seine hohe Halbwertszeit und geringes natürliches Vorkommen die Messung über seinen radioaktiven Zerfall ungeeignet ist [Qui09]. Erst die

Beschleuniger-Massenspektrometrie hat eine so niedrige Nachweisgrenze, dass man natürliches ^{236}U zuverlässig nachweisen kann.

Einfacher zu ermitteln wären dagegen die Verhältnisse des $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$, zum Beispiel via Alphaspektrometrie. Allerdings verändert sich das Verhältnis bei einer Kontamination einer natürlichen Probe mit zum Beispiel Brennstoffmaterial nur geringfügig. Daher findet ^{236}U als „Fingerabdruck“ einer Kontamination durch U eine deutlich bessere Verwendung [Sak12].

In natürlichen Uranerzen wurden vielfach Isotopenverhältnisse des $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ von $10^{-11} - 10^{-9}$ ermittelt. Man geht allerdings davon aus, dass in Gesteinen aus tieferen Schichten, in denen ein geringerer Neutronenfluss herrscht, auch Verhältnisse bis zu 10^{-14} erreicht werden können [Ste08].

In abgebranntem Kernbrennstoff werden dagegen Verhältnisse von $10^{-2} - 10^{-4}$ erreicht. Daher kann selbst eine kleine Menge U aus einem Reaktor das natürliche Verhältnis $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ signifikant erhöhen [Qui09].

Die Verteilung des anthropogenen ^{236}U ist bislang noch nicht so gut bekannt und die Verhältnisse variieren über mehrere Größenordnungen je nach Kontaminationsquelle. Mögliche Quellen sind die Wiederaufarbeitungsanlagen, atmosphärische Bombentests, die eine globale Oberflächenkontamination wie beim Plutonium hervorgerufen haben und Kernkraftwerke, sowohl im Normalbetrieb als auch bei Unfällen wie in Tschernobyl oder Fukushima [Ste08], [Sak09].

In Untersuchungen in der Nähe zu Tschernobyl wurden Verhältnisse von $10^{-6} - 10^{-3}$ gemessen, in circa 200 km Entfernung sogar noch Verhältnisse von 10^{-7} [Ste08].

2. Messmethoden und Auswertung

In diesem Kapitel wird auf die verschiedenen Messverfahren, die für diese Arbeit verwendet wurden, sowie auf die Auswertungsmodelle zu den entsprechenden Verfahren eingegangen.

2.1. Accelerator Mass Spectrometry (AMS)

In der Massenspektrometrie wird das zu untersuchende Isotop bezüglich seines Masse-zu-Ladung-Verhältnisses analysiert. Anhand dieses Verhältnisses wird das gesuchte Isotop von anderen Isotopen isoliert und einzeln vermessen. In der Beschleunigermassenspektrometrie (AMS) werden die Isotope zusätzlich durch einen Beschleuniger gelenkt, wodurch molekulare Interferenzen unterdrückt werden können.

Die AMS hat sich bewährt, Radionuklide, die eine besonders lange Halbwertszeit aufweisen, in äußerst geringen Mengen in Umweltproben nachzuweisen, wie zum Beispiel die Actinide [Fif08].

Für die Messungen in dieser Arbeit wurde das kompakte 0,6 MV System TANDY der ETH Zürich genutzt. Der TANDY wird routinemäßig für Messungen von ^{10}Be , ^{41}Ca , ^{129}I und für die Actinide verwendet [Chr13b].

Ein schematischer Aufbau des Geräts ist in Abbildung 2.1 dargestellt. Die Anlage besteht aus einer Caesiumionen-Sputterquelle (1), einem Niederenergiemagneten (3a), einem Tandem-Beschleuniger mit Stripper (4, 5), einem Hochenergiemagneten (3b), einem elektrostatischen Analysator (ESA) (6), einem weiteren Magneten (7) und einem Gasionisationsdetektor (8).

In der Sputterquelle werden positiv geladene Caesiumionen erzeugt, die auf die Probe beschleunigt werden. Die Cs^+ -Ionen schlagen aus der Probenmatrix Atome und Moleküle mit unterschiedlichen Ladungszuständen heraus. Diese können daher neutral, positiv oder negativ geladen sein. Ausschließlich die negativ geladenen Ionen werden vorbeschleunigt und im Niederenergiemagneten nach ihrem Masse-zu-Ladung-Verhältnis separiert und um 90° in den Beschleuniger abgelenkt. Hier

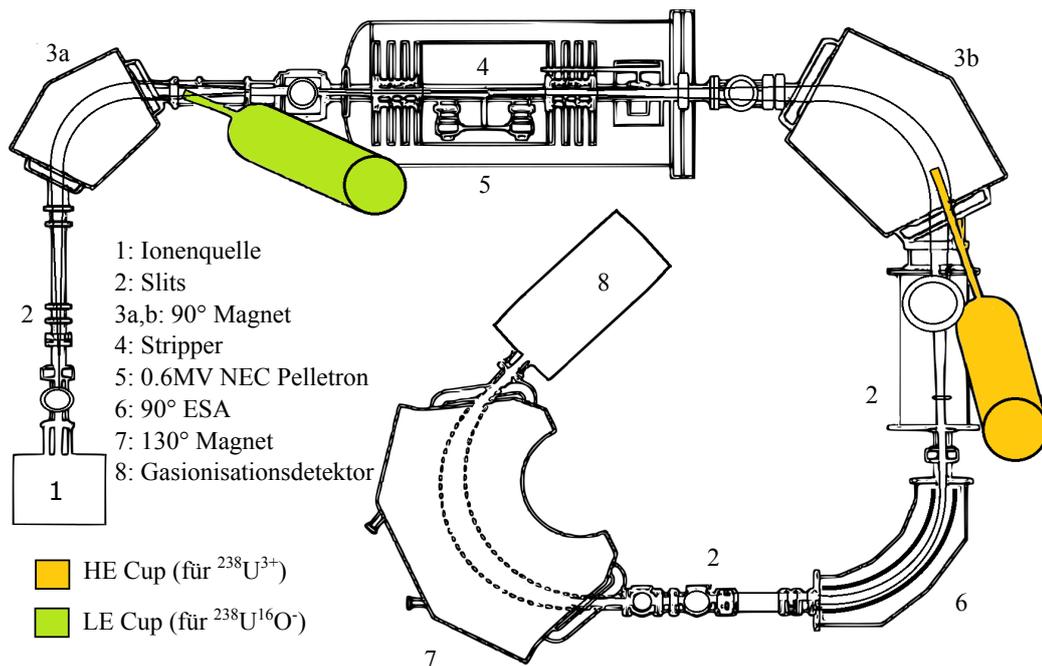


Abbildung 2.1.: Schematischer Aufbau des TANDY der ETH Zürich, bearbeitet und angepasst aus [Chr13a]

kommt den einfach negativ geladenen Oxid-Ionen von Plutonium und Uran die größte Bedeutung zu.

Aufgrund des kompakten Designs wurde auf eine Linse vor dem Beschleuniger verzichtet. Um aber dennoch einen gut fokussierten Strahl zu erhalten, muss ein konstantes Verhältnis der Vorbeschleunigung und der Terminalspegnung im Beschleuniger herrschen, welches in diesem Fall 10 % beträgt [Wac05].

Im Tandem-Beschleuniger befindet sich Heliumgas als Stripper. Daher werden die negativ geladenen Ionen nicht nur beschleunigt, sondern es werden durch Stoßprozesse zusätzlich auch Moleküle aufgebrochen und äußere Elektronen abgestreift, um mehrfach positiv geladene Ionen zu erzeugen. Für die Messung von Uran und Plutonium werden dreifach positiv geladene Ionen benötigt.

Auf der Hochenergieseite werden die Ionen zunächst in einem Magneten nach ihrem Masse- zu Ladungsverhältnis selektiert und um 90° abgelenkt in den ESA. Hier werden die Ionen anhand ihres Energie- zu Ladungsverhältnisses, aber unabhängig zur Masse, getrennt. In einem weiteren Magnetfeld werden die Ionen um 130° abgelenkt, wodurch weitere Störionen vor der Detektion entfernt werden können [Mue10].

Für die Detektion wird ein Gasionisationsdetektor verwendet. Da die Ionen hier im Vergleich zu größeren AMS-Anlagen relativ kleine Energien aufweisen und sie in

dem üblichen Fenster eines Gasionisationsdetektors komplett absorbiert werden würden, wurde der Detektor für den TANDY mit einem ultra dünnen Siliciumnitrid Fenster ausgestattet [Wac05]. Am Eintrittsfenster werden die verschieden geladenen Ionen voneinander getrennt und schließlich nur die dreifach positiv geladenen Ionen detektiert.

Normalerweise wird bei AMS Geräten das gesuchte Isotop im Verhältnis zu einem seiner stabilen Isotope gemessen. Hier wird das gesuchte Isotop mit dem Gasionisationsdetektor gemessen, während der Strom des stabilen Isotops in einem Farady-Cup gemessen wird. Der Strom wird entweder in einem Faraday-Cup vor dem Beschleuniger oder in einem hinter dem Beschleuniger detektiert (s. Abb. 2.1 LE Cup bzw. HE Cup).

Dieses ist für die Messung des Isotops ^{236}U möglich, da ^{238}U ein natürliches, langlebiges und im Überschuss vorkommendes Isotop ist. So werden die verschiedenen Isotopenverhältnisse durch die abwechselnde Verwendung zweier Einstellungen ermittelt. Zunächst wird das als Tracer benutzte Isotop ^{233}U in den Beschleuniger geleitet, während ^{238}U entweder in den Farady Cup auf der Hochenergie- oder den auf der Niederenergieseite geleitet wird. Das ^{233}U wird im Gasionisationsdetektor gemessen. Durch diese Einstellung erhält man das Isotopenverhältnis von $^{233}\text{U}/^{238}\text{U}$. In der zweiten Einstellung wird das gesuchte Isotop ^{236}U in den Beschleuniger geleitet, während der Strom des ^{238}U nur im Faraday-Cup auf der Niederenergieseite gemessen werden kann, da die Einstellungen der Terminalspannung eine Messung auf der Hochenergieseite nicht möglich machen [Chr13b].

Eine solche Messung von Plutonium ist nicht möglich, da hier kein Äquivalent zum ^{238}U existiert. Daher müssen die gesuchten Isotope der Reihe nach gemessen werden. Hierfür müssen die Einstellungen während einer Messung variiert werden. Die Magnetfelder werden dabei allerdings konstant gehalten und nur die Parameter der elektrostatischen Geräte abgeändert. Dazu zählt die Gleichspannung der Kammer am Niederenergiemagneten, damit die unterschiedlichen Ionen in den Beschleuniger geleitet werden können. Zusätzlich muss auch die Terminalspannung am Beschleuniger dem jeweiligen Isotop angepasst werden, damit die dreifach geladenen Ionen das richtige Impuls-zu-Ladungsverhältnis aufweisen. Zuletzt müssen die Parameter des elektrostatischen Analysators angepasst werden, damit die Ionen mit der richtigen Energie transmittiert werden. Diese Umstellung für die einzelnen Isotope dauert nur wenige Sekunden. Dieses Verfahren geht schneller und ist reproduzierbarer als die Anpassung der Magnete [Wac05], [Chr13b].

2.1.1. Interferenzen während der Messung

Während der Messung von Uran und Plutonium kommt es unter anderem auch zu Interferenzen mit anderen Isotopen.

Bei der Messung von Plutonium kann es zu Interferenzen mit ^{238}U -Ionen kommen. Es besteht die Möglichkeit, dass gestreute ^{238}U -Ionen den Detektor erreichen können. Durch diese Interferenzen ist es nicht möglich, ^{238}Pu mittels AMS zu bestimmen, da dieses in Umweltproben nur in sehr geringen Mengen vorkommt während das Störisotop ^{238}U in deutlich größeren Mengen vorliegt und die Separation zwischen diesen beiden Isotopen schwierig ist. Auch die Messung von ^{239}Pu ist von den Interferenzen der ^{238}U -Ionen betroffen. Durch Streuprozesse kann es passieren, dass dreifach positiv geladene ^{238}U -Ionen einen ähnlichen Impuls aufweisen wie die gesuchten ^{239}Pu -Ionen und daher eine ähnliche Flugbahn durchlaufen und fälschlicherweise detektiert werden und dadurch ein höheres Messergebnis für ^{239}Pu vortäuschen [Fif08]. Um diese Störungen weitestgehend zu unterdrücken, kann Uran vor der Targetherstellung chemisch von Plutonium abgetrennt werden.

Auch bei der Messung von ^{236}U kann es zu Interferenzen kommen. Hier spielen hauptsächlich ^{235}U -Ionen eine Rolle. Durch Ladungsaustausch an verbliebenen Gasatomen oder durch Streuprozesse ist es $^{235}\text{U}^{3+}$ -Ionen ebenfalls möglich, den Detektor zu erreichen und fälschlicherweise als ^{236}U gemessen zu werden [Chr15]. Da ^{235}U einen deutlich höheren Anteil in Umweltproben ausmacht als ^{236}U , können auch nur wenige Prozent die fälschlicherweise gemessen werden einen signifikanten Unterschied ausmachen. Im Gegensatz zu Plutonium ist es hier nicht möglich, die störenden Isotope chemisch abzutrennen, was die Unterdrückung deutlich erschwert. Durch eine optimale Einstellung der Spalte zwischen den einzelnen Komponenten der Anlage ist es möglich, einen Großteil der Störionen zu unterdrücken [Voc11].

2.1.2. Auswertung

Die gerätespezifischen Korrekturen der AMS Messungen erfolgten an der ETH Zürich. Die Auswertung für die Plutonium-Messungen wurde bereits in [Sch13a] erläutert, daher werden hier nur die wesentlichen Aspekte dargestellt. Im Folgenden steht die Auswertung des Urans im Fokus.

Uran

Als Ausgangsdaten lagen die Teilchenanzahl des ^{236}U und die Konzentration des ^{238}U in der Probe vor. Da in dem zugegebenen Tracer auch Anteile von ^{236}U

vorliegen, muss für diesen Wert eine Blindwertkorrektur durchgeführt werden. Dazu wird aus den einzelnen Werten $x_{B,i}$ aller gemessenen Blindproben der gewichtete Mittelwert x_B und die dazugehörige Unsicherheit $u(x_B)$ mittels

$$x_B = \frac{\sum_{i=1}^n (x_{B,i}/u^2(x_{B,i}))}{\sum_{i=1}^n (1/u^2(x_{B,i}))} \quad (2.1)$$

$$u(x_B) = \frac{1}{\sqrt{\sum_{i=1}^n (1/u^2(x_{B,i}))}} \quad (2.2)$$

gebildet (nach [Bir09]). Dieser so ermittelte Faktor wird dann von den Ausgangsdaten des ^{236}U abgezogen.

Die Masse des ^{238}U muss nun ebenfalls, mit Hilfe der Molmasse und der Avogadro Konstanten N_A , in die Teilchenanzahl umgerechnet werden.

Aus dem umgerechneten Wert des ^{238}U und dem korrigierten Wert des ^{236}U , kann nun das atombezogene Verhältnis $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ bestimmt werden.

Die Berechnung der Unsicherheiten erfolgte in dieser Arbeit gemäß [GUM95]. So gilt für die Unsicherheit einer Modellfunktion Y mit den Eingangsgrößen X_i , die untereinander nicht korrelieren, folgende Beziehung für die Unsicherheit:

$$Y = f(X_1 X_2 \dots X_n), \quad (2.3)$$

$$u^2(y) = \sum_{i=1}^n \left(\frac{\partial Y}{\partial X_i} \right)^2 \cdot u^2(x_i). \quad (2.4)$$

Plutonium

Für die Auswertung der Plutonium-Messwerte lagen jeweils die atombezogenen Verhältnisse der gesuchten Isotope bezüglich des Tracers vor. In diesem Fall entsprach das den Verhältnissen $^{240}\text{Pu}/^{242}\text{Pu}$ und $^{239}\text{Pu}/^{242}\text{Pu}$.

Auch im ^{242}Pu -Tracer liegen Anteile der gesuchten Isotope vor, wodurch eine Blindwertkorrektur unerlässlich wird. Dazu wird zunächst, analog zum Uran, der gewichtete Mittelwert der einzelnen Blindproben, jeweils für die Isotope ^{240}Pu und ^{239}Pu , ermittelt (siehe Formel 2.1). Diese werden anschließend von dem jeweiligen Ausgangsverhältnis abgezogen.

Um das interessante Isotopenverhältnis $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ zu erhalten, müssen beide korrigierten Ausgangsverhältnisse durcheinander geteilt werden.

Charakteristische Grenzen

Zur Qualitätssicherung der Messungen ist es notwendig, weitere Grenzen einzuführen, anhand derer entschieden werden kann, ob ein Messwert einen Beitrag der Probe enthält oder ob dieser Wert zum Untergrundrauschen gehört, beziehungsweise einen kleinsten Messwert anzugeben, der noch zuverlässig mit der jeweiligen Messmethode nachgewiesen werden kann. Dazu dienen die charakteristischen Grenzen.

Die Erkennungsgrenze gibt an, ob der durch die Messgröße quantifizierte physikalische Effekt, den es zu messen gilt, vorliegt oder nicht. Die Nachweisgrenze gibt an, welcher kleinste Wert mit dem gewählten Messverfahren noch zuverlässig nachgewiesen werden kann [Mic99].

Die Berechnung der charakteristischen Grenzen erfolgte gemäß DIN ISO 11929 [DIN11].

Im Folgenden wird die Berechnung der Erkennungs- und Nachweisgrenze für Uran vorgestellt. Diese mussten nur für das Isotop ^{236}U bestimmt werden, da ^{238}U in deutlich größeren Mengen und daher weit über der Nachweisgrenze vorlag. Die Berechnung für Plutonium erfolgte analog.

Die Erkennungsgrenze N^* wird mit Hilfe der Unsicherheit des wahren Wertes an der Stelle Null $\tilde{u}(0)$ ermittelt. Für diese Unsicherheit kann im vorliegenden Fall vereinfacht angenommen werden, dass folgende Gleichung gilt:

$$\tilde{u}^2(0) = 2 \cdot u^2(x_B), \quad (2.5)$$

mit der Unsicherheit des gewichteten Mittelwerts der Blindproben $u(x_B)$. Die Erkennungsgrenze N^* wird daraus folgendermaßen ermittelt:

$$N^* = k_{1-\alpha} \cdot \tilde{u}(0), \quad (2.6)$$

$k_{1-\alpha}$ beträgt in dieser Arbeit 1,645, wenn ein Fehler von $\alpha = 5\%$ angenommen wird.

Sind lediglich $\tilde{u}(0)$ und $u(N)$ bekannt, so reicht, für die Bestimmung der Unsicherheit der Nachweisgrenze $N^\#$, für $N > 0$ oft die folgende lineare Interpolation aus [Mic99]:

$$\tilde{u}^2(N^\#) = \tilde{u}^2(0) \cdot \left(1 - \frac{N^\#}{N_{236,korr}}\right) + u^2(x_B) \cdot \frac{N^\#}{N_{236,korr}}, \quad (2.7)$$

mit dem blindkorrigierten Wert der Teilchenanzahl des ^{236}U $N_{236,korr}$.

Daraus kann die Nachweisgrenze $N^\#$ über folgende implizite Gleichung ermittelt werden:

$$N^\# = N^* + k_{1-\beta} \cdot \tilde{u}(N^\#), \quad (2.8)$$

$k_{1-\beta}$ beträgt in dieser Arbeit 1,645, wenn ein Fehler von $\beta = 5\%$ angenommen wird.

2.2. Gammaspektrometrie

Im folgenden Abschnitt werden die grundlegenden Prinzipien für die Gammaspektrometrie erläutert. Dazu wird zunächst auf die Wechselwirkung der Gammastrahlung mit Materie eingegangen, dem prinzipiellen Aufbau eines Detektors und eines Spektrums. Zum Schluss wird noch kurz auf die Auswertungsmethoden eingegangen.

2.2.1. Wechselwirkung mit Materie

Bei Gammastrahlung handelt es sich um energiereiche elektromagnetische Strahlung. Sie entsteht durch die Aussendung eines Photons aus einem Atomkern beim Übergang aus einem angeregten Zustand in einen Zustand niedrigerer Energie. Sie tritt auf verschiedene Arten in Wechselwirkung mit Materie, wie zum Beispiel bei der Messung mit dem Kristall eines Halbleiterdetektors, welche sich auch im Spektrum widerspiegeln. Daher wird im Folgenden auf die drei wesentlichen Wechselwirkungen der Gammastrahlung näher eingegangen.

Photoeffekt

Beim Photoeffekt trifft ein Photon auf ein gebundenes Elektron eines Atoms, mit dem es in Wechselwirkung tritt. Das Photon wird dabei vollständig absorbiert und gibt seine komplette Energie ab. Das Elektron wird aus der Hülle herausgeschlagen und das Atom ionisiert. Die kinetische Energie des herausgeschlagenen Photoelektrons ergibt sich aus der Differenz der Energie des Photons E_γ und der Bindungsenergie E_{Bind} des Elektrons [Lie91]

$$E_{\text{kin}} = E_\gamma - E_{\text{Bind}}. \quad (2.9)$$

Comptoneffekt

Beim Comptoneffekt handelt es sich um einen elastischen Stoß des Photons mit einem Hüllenelektron. Das Elektron wird dabei herausgeschlagen und das Photon abgelenkt. Es findet keine vollständige Energieabgabe statt. Die kinetische Energie des Elektrons ist dabei stark abhängig vom Streuwinkel θ und ist maximal bei einem Winkel von 180° . Sie wird nach folgender Gleichung bestimmt [Lie91]:

$$E_{\text{kin}} = E_\gamma - E_\gamma \frac{1}{1 + \frac{E_\gamma}{m_0 c^2} (1 - \cos(\theta))}, \quad (2.10)$$

wobei m_0 die Ruhemasse eines Elektrons und c die Lichtgeschwindigkeit ist.

Paarbildungseffekt

Der Paarbildungseffekt tritt im elektrischen Feld eines Atomkerns auf, bei dem sich aus einem Photon ein Elektron und ein Positron bilden. Wichtig ist dabei, dass die Energie des Photons mindestens so groß sein muss wie die Summe der Ruhemassen beider Teilchen. Dieser Effekt kann ab einer Energie von 1,02 MeV auftreten, wird aber erst bei höheren Energien relevant.

2.2.2. Detektion und Aufbau eines Spektrums

Die verschiedenen Wechselwirkungen der Photonen mit dem Kristall des Detektors führen zu einem charakteristischen Spektrum. In Abbildung 2.2 ist ein solches Spektrum beispielhaft für ^{40}K dargestellt, an dem man die verschiedenen Wechselwirkungen gut erkennen kann. Der Full-Energy Peak (oder auch Photopeak) von ^{40}K liegt bei 1461 keV, welcher bei der charakteristischen Energie dieses Isotops auftritt, bei der die gesamte Energie des Photons im Detektor deponiert wird. Durch den Comptoneffekt kommt es zu Streuprozessen, bei denen die übertragene Energie kontinuierlich in Abhängigkeit vom Streuwinkel verläuft. Dieser Effekt macht sich durch das Compton Kontinuum bemerkbar. Bei einem Streuwinkel von 180° kommt es zu einem maximalen Energieübertrag des Photons auf das Elektron, was sich durch die Compton-Kante im Spektrum bemerkbar macht.

Auch die beim Paarbildungseffekt erzeugten Positronen haben eine Auswirkung auf das Spektrum. Durch die Annihilation des Positrons mit einem Elektron werden zwei Photonen erzeugt, die beide die charakteristische Energie von 511 keV aufweisen, welche sich ebenfalls in einem Peak im Spektrum zeigen (Annihilationspeak). Falls eines dieser erzeugten Photonen entkommt, zeigt sich dieses in einem single escape Peak, dieser Peak hat eine Energie von $E_\gamma - 511 \text{ keV}$ in Bezug zum Full-Energy Peak. Entkommen sogar beide Photonen, zeigt sich das in einem double escape Peak, der bei einer Energie von $E_\gamma - 1022 \text{ keV}$ liegt [Kno00].

Für diese Arbeit wurde ein HPGe-Detektor (High Purity Germanium) der Firma Canberra verwendet. Es handelt sich hierbei um einen Halbleiterdetektor. Hier besteht der Germaniumkristall aus einem n- und p-dotierten Bereich, an der Kontaktstelle kommt es zu einem p-n-Übergang wie bei einer Halbleiterdiode. An dem Übergang bildet sich eine ladungsträgerarme Zone oder auch Sperrschicht genannt aus. Diese Sperrschicht kann durch Anlegen einer äußeren Spannung in Sperrrichtung vergrößert werden. Ziel ist es, dass sich die Sperrschicht möglichst über den ganzen Kristall ausweitet, da dieses das aktive Detektorvolumen repräsentiert. Beim Eintritt ionisierender Strahlung werden in der Sperrschicht Elektronen-Loch-Paare entlang des Weges erzeugt. Je höher die Energie der einfallenden Strahlung

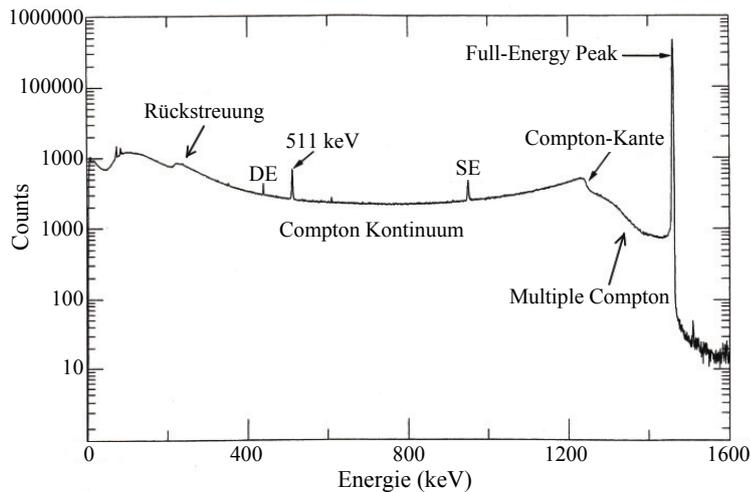


Abbildung 2.2.: Schematische Darstellung eines ^{40}K Spektrums, mit charakteristischem Full-Energy Peak (DE: double escape, SE: single escape) (nach [Taw12])

und der somit im Kristall deponierten Energie ist, desto mehr Elektronen-Loch-Paare werden erzeugt. Durch die angelegte Spannung werden die Elektronen und Defektelektronen an den Kontakten gesammelt und erzeugen dort einen Impuls, der gemessen wird.

Der Detektor wird mit einer dicken Bleischicht abgeschirmt, um das Eindringen von Gammastrahlung von außen, wie zum Beispiel der kosmischen Strahlung, zu minimieren.

2.2.3. Zu untersuchende Nuklide

In dieser Arbeit werden hauptsächlich die Nuklide ^{137}Cs und ^{134}Cs gammaspektrometrisch untersucht. ^{137}Cs entsteht im Reaktor als Spaltprodukt des ^{235}U und ^{134}Cs durch Neutronenaktivierung des Isotops ^{133}Cs .

^{137}Cs wird in der Gammaspektrometrie dabei nicht direkt gemessen. Dieses zerfällt nämlich über einen β -Zerfall zu 94 % zu ^{137m}Ba . Hierbei handelt es sich um einen angeregten Zustand, der unter Aussendung eines Gammaquants mit der Energie 661,66 keV in den Grundzustand übergeht. Dieses Zerfallsschema ist in Abbildung 2.3 dargestellt [Taw12].

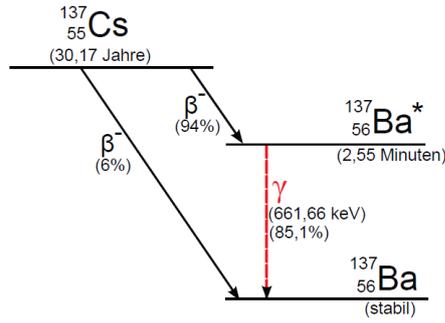


Abbildung 2.3.: Zerfallsschema des ^{137}Cs [Taw12]

2.2.4. Auswertung

Das Auswertungsmodell der Gammaspектrometrie wird hier nur grundsätzlich vorgestellt. In [Taw12] ist eine ausführlich Beschreibung zu finden.

Aus dem erhaltenen Spektrum können mit Hilfe einer geeigneten Software (Fitz-peaks) die Anzahl der Counts eines Nuklids bestimmt werden. Diese Bruttocounts setzen sich aus dem Probenbeitrag und dem vorliegenden Untergrund (Nulleffekt) zusammen. Die Rate der Nettocounts r_n wird über folgende Formel bestimmt

$$r_n = r_b - r_0 = \frac{n_b}{t_m} - \frac{n_0}{t_0}, \quad (2.11)$$

mit der Bruttozählrate r_b , der Nullrate r_0 , den Bruttocounts n_b , den Counts des Nulleffektes n_0 und den Messzeiten der Probe t_m und des Nulleffektes t_0 .

Aus der Zählrate r_n kann die Aktivität A ermittelt werden gemäß

$$A = \frac{k_s}{\varepsilon \cdot p_\gamma} \cdot r_n, \quad (2.12)$$

mit k_s dem Summationskorrekturfaktor, der abhängig vom Nuklid ist, p_γ der Emissionswahrscheinlichkeit, die angibt wie wahrscheinlich die Emission eines Nuklids einer bestimmten Energie ist während des Zerfalls und der Efficiency ε .

Mit der Efficiency wird berücksichtigt, dass nicht jedes Gammaquant detektiert wird, das auch emittiert wird. Sie gibt das Verhältnis von detektierter zu emittierter Impulsrate an

$$\varepsilon = \frac{r_{\text{detektiert}}}{r_{\text{emittiert}}}. \quad (2.13)$$

Die Efficiency ist von mehreren Faktoren abhängig, unter anderem vom verwendeten Detektor, der Messgeometrie und der Probedichte.

Die Efficiency wurde mit Hilfe von Flächenstandards bestimmt, die mit einer festgelegten Menge einer zertifizierten Multinuklidlösung (QCY48) mit bekannter

Aktivität hergestellt wurden. Der Durchmesser des Flächenstandards entspricht dabei jeweils dem der gewählten Messpräparate. Der Flächenstandard wird zweimal mit der Probe gemessen, um daraus individuell für jede Probe die Efficiency zu bestimmen. Dazu wird der Flächenstandard einmal oberhalb und einmal unterhalb der Probe gemessen und auf diese Weise, unter Berücksichtigung der mittleren Selbstabsorption der Probe, die Efficiency wie folgt bestimmt [Bro16]:

$$\varepsilon = \frac{\varepsilon_{oben} - \varepsilon_{unten}}{\ln(\varepsilon_{oben}) - \ln(\varepsilon_{unten})}. \quad (2.14)$$

Die jeweiligen Unsicherheiten wurden gemäß der Formel 2.4 bestimmt.

3. Probenübersicht

Die neben den Referenzproben in dieser Arbeit untersuchten Proben wurden in den Jahren 2013 und 2015 in bis zu 30 km Entfernung zum Kernkraftwerk Fukushima Dai-ichi genommen. Eine Übersichtskarte zu den einzelnen Probennahmestellen findet sich in Abbildung 3.1. Im folgenden Kapitel werden die jeweiligen Probennahmekampagnen erläutert und die verwendeten Proben vorgestellt.

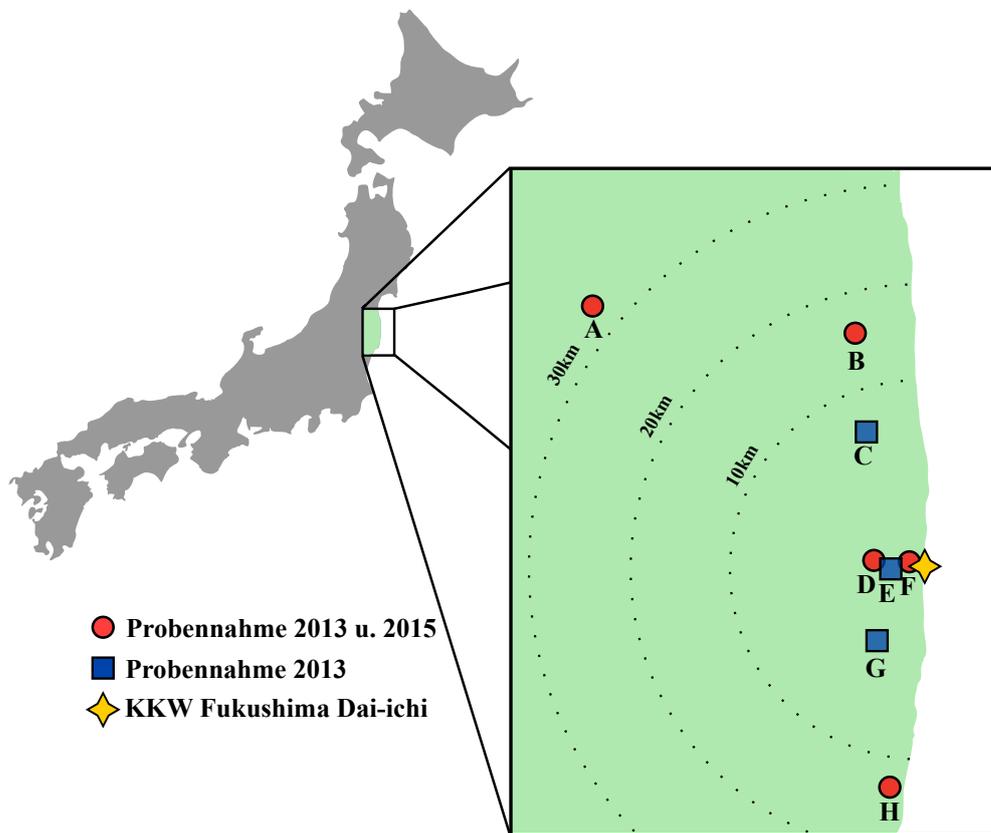


Abbildung 3.1.: Probennahmestellen von 2013 und 2015

3.1. Probennahme aus 2013

Das Probenmaterial wurde am 04.06.2013 aus dem evakuierten Gebiet, speziell auch in unmittelbarer Nähe zu dem havarierten Kernkraftwerk, genommen. Die einzelnen Probennahmeorte sind in Abbildung 3.1 markiert. In Tabelle 3.1 sind die dazugehörigen Koordinaten mit der jeweiligen Entfernung zum Gelände des Kernkraftwerks aufgeführt.

Tabelle 3.1.: Probennahmestellen der Japan-Proben aus 2013

| Bezeichnung | Probennahmeort | Koordinaten | Entfernung zum Reaktor in km |
|-------------|------------------|--------------------------|------------------------------|
| Spot A | Iitate Village | 37°36'45" N, 140°44'56"E | 32,84 |
| Spot B | Odaka | 37°33'56" N, 140°59'31"E | 16,45 |
| Spot C | Chimeiji | 37°29'44" N, 141°00'05"E | 8,72 |
| Spot D | Okuma 1 | 37°25'02" N, 141°00'36"E | 2,06 |
| Spot E | Okuma 2 | 37°25'03" N, 141°00'54"E | 1,62 |
| Spot F | Maingate | 37°25'02" N, 141°01'23"E | 0,95 |
| Spot G | Okuma 3 | 37°23'18" N, 141°00'29"E | 4,24 |
| Spot H | Fukushima Dai-ni | 37°18'53" N, 141°00'47"E | 11,97 |

An jedem Probennahmeort wurde eine Bewuchsprobe, eine Oberflächenprobe und ein Bohrkern des Bodens genommen. Der Bohrkern hat eine Länge von 151 mm und einen Innendurchmesser von 46 mm. Für die Oberflächenprobe wurden circa die obersten 2 cm des Bodens auf einer Fläche von etwa 10 x 10 cm entnommen. Für die Pflanzenprobe wurden je nach Verfügbarkeit Gras, Blätter oder Nadelbaumzweige aus der unmittelbaren Umgebung des jeweiligen Spots genommen. Ein Beispiel einer Bewuchsprobe ist in Abbildung 3.2 dargestellt. Die Proben wurden von Prof. Georg Steinhauser vom Institut für Radioökologie und Strahlenschutz der Leibniz Universität Hannover und Dr. Katsumi Shozugawa der Graduate School of Art and Sciences der Universität Tokio genommen und zur weiteren Aufarbeitung zur Verfügung gestellt.

Die Bohrkernproben wurden mit einem Bohrwerkzeug mit sogenanntem Inliner-System aus dem Boden entnommen. Diese Methode ist in Abbildung 3.3 graphisch dargestellt. Bei dieser Methode wird die Plastikhülse, in der die Probe aufgefangen werden soll, in dem Bohrstock befestigt. Der Bohrkopf wird vor die Hülse geschraubt um diese zu fixieren (1). Der Bohrstock wird der Länge nach komplett in den Boden geschlagen (2), sodass beim Herausnehmen des Bohrstocks die Plastikhülse und der



Abbildung 3.2.: Bewuchsprobe am Maingate (2013), Spot F

Bohrkopf komplett mit Erde gefüllt sind (3). Die Plastikhülse kann dann, nachdem der Bohrkopf abgeschraubt wurde, aus dem Bohrstock entnommen und mit Kappen verschlossen werden (4). In Abbildung 3.4 ist ein solch verschlossener Bohrkern dargestellt.

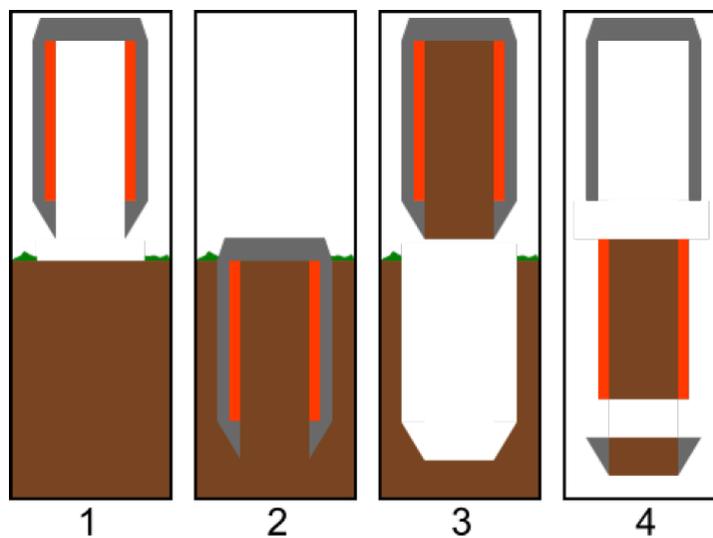


Abbildung 3.3.: Schematische Darstellung der Probennahme der Bodenproben mit einem Bohrwerkzeug mit Inliner-System [Bro16]



Abbildung 3.4.: Bohrkernprobe aus 2015, Iitate, Spot A

3.1.1. Probenvorbereitung

Aufgrund unerwarteter Verzögerungen beim Transport waren Zersetzungsprozesse, der zunächst frischen Proben, bereits fortgeschritten. Besonders die Bewuchsproben waren davon betroffen. Es ist jedoch nicht davon auszugehen, dass es hierdurch zu einem Verlust der hier untersuchten Radionuklide gekommen ist. Nach Erhalt wurde das komplette Probenmaterial zunächst eingefroren.

Zur weiteren Verarbeitung wurden die Bohrkern im gefrorenen Zustand in sechs gleich große Scheiben zersägt, jede Scheibe ist dabei 1 Zoll dick. Die einzelnen Schichten wurden aufgetaut und gut durchmischt, um das Material zu homogenisieren. Die Hälfte jeder Schicht wurde zur weiteren Verarbeitung bei 105 °C massenkonstant getrocknet, während das restliche Material als Rückstellprobe wieder eingefroren wurde.

Bei den Bewuchs- und Oberflächenproben wurde jeweils immer nur so viel Material aus den gefrorenen Proben entnommen wie benötigt wurde. Eine Homogenisierung hat daher nicht stattgefunden. Das Material wurde ebenfalls bei 105 °C massenkonstant getrocknet. Diese Masse ist die Bezugsgröße bei ermittelten Konzentrationen oder spezifischen Aktivitäten.

Für die weitere Verarbeitung wurden noch vorhandene organische Verbindungen im Probenmaterial zerstört. Dazu wurden die Proben in einem Muffelofen verascht. Die Boden- und Oberflächenproben wurden dabei nach dem Temperatur-Zeit-

Programm, welches in Tabelle 3.2 dargestellt ist, verascht. Die Bewuchsproben nach dem Programm in Tabelle 3.3.

Tabelle 3.2.: Veraschungsprogramm des Ofens für Bodenproben nach [Sch13a]

| Stufe | Aufheizen | Zeit zum Aufheizen | Halten der Temperatur |
|-------|-----------|--------------------|-----------------------|
| 1 | 260 °C | 24 h | 12 h |
| 2 | 300 °C | 4 h | 12 h |
| 3 | 350 °C | 5 h | 12 h |
| 4 | 410 °C | 6 h | 12 h |
| 5 | 450 °C | 4 h | 12 h |

Tabelle 3.3.: Veraschungsprogramm des Ofens für Bewuchsproben nach [Sch13a]

| Stufe | Aufheizen | Zeit zum Aufheizen | Halten der Temperatur |
|-------|-----------|--------------------|-----------------------|
| 1 | 350 °C | 0,5 h | 0,5 h |
| 2 | 400 °C | 0,5 h | 12 h |
| 3 | 600 °C | 0,5 h | 6 h |

3.2. Probennahme aus 2015

Am 14.05.2015 fand eine erneute Probennahme statt, die wieder mit Hilfe von Dr. Katsumi Shozugawa durchgeführt werden konnte. Es sollten die Stellen der Probennahme aus 2013 erneut beprobt werden, die von den erzielten Ergebnissen am auffälligsten waren. Die einzelnen Orte sind in Abbildung 3.1 dargestellt. Die genauen Koordinaten und Entfernungen zum Kraftwerksgelände sind in Tabelle 3.4 aufgeführt.

Tabelle 3.4.: Probennahmestellen der Japan-Proben

| Bezeichnung | Probennahmeort | Koordinaten | Entfernung zum Reaktor in km |
|-------------|------------------|--------------------------|------------------------------|
| Spot A | Iitate Village | 37°36'06" N, 140°45'13"E | 31,67 |
| Spot B | Odaka | 37°33'57" N, 140°59'32"E | 16,39 |
| Spot D | Okuma 1 | 37°25'02" N, 141°00'40"E | 1,91 |
| Spot F | Maingate | 37°24'55" N, 141°01'34"E | 0,793 |
| Spot H | Fukushima Dai-ni | 37°18'52" N, 141°00'46"E | 12,04 |

Es wurden, wie bei der ersten Probennahme, an den einzelnen Probennahmeorten jeweils eine Bohrkernprobe und Oberflächenproben genommen. Der Bohrkern wurde wie bei der ersten Probennahme entnommen. Bei den Oberflächenproben wurden wie zuvor die obersten 1 - 2 cm auf einer Fläche von 10 x 10 cm genommen.

3.2.1. Probenvorbereitung

Die Proben wurden direkt nach dem Transport bis zur Weiterverarbeitung eingefroren. Dieses Mal verlief der Transport erwartungsgemäß, sodass die Zersetzungsprozesse noch nicht eingesetzt hatten.

Bei den Bewuchsproben wurde das komplette Material verwendet und bei 105 °C für die anschließende Probenaufbereitung für die AMS Messungen massenkonstant getrocknet und nach dem Temperaturprogramm aus Tabelle 3.3 verascht.

Die Bohrkernproben wurden auf die gleiche Art wie 2013 im gefrorenen Zustand in sechs Teile zersägt und bis zur Weiterverarbeitung der einzelnen Schichten gefroren gehalten.

Das komplette Material der einzelnen Bohrkernschichten und der Oberflächenproben wurde für die Herstellung der Gammaproben bei 60 °C massenkonstant getrocknet. Im Hinblick auf mögliche Folgeuntersuchungen sollte eine möglichst schonende Trocknung erfolgen.

3.2.2. Herstellung der Gammapräparate

Bei der Herstellung der Gammapräparate wurden für die Oberflächen- und Bohrkernproben zwei unterschiedliche Verfahren angewendet, die im Folgenden näher beschrieben werden.

Bohrkernproben

Das komplette getrocknete Material einer einzelnen Schicht wurde mit Mörser und Pistill zerkleinert, homogenisiert und anschließend mit einer Maschenweite von 2 mm gesiebt, um größere Steine und organische Bestandteile aus der Probe zu entfernen. Das homogenisierte Material wurde in Plastikpetrischalen mit einem Durchmesser von 5,5 cm gepresst und mit Montagekleber verschlossen. Bei Proben, bei denen weniger Material zur Verfügung stand, wurden die Petrischalen in der Höhe angepasst um eine homogen gepackte Probe zu gewährleisten. Die Petrischalen

wurden anschließend noch zum Schutz des Detektors in Plastiktüten verschweißt. Eine so fertig gepackte Probe ist in Abbildung 3.5 dargestellt.

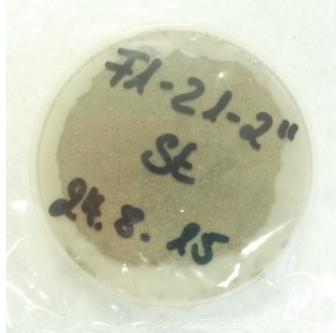


Abbildung 3.5.: Beispiel eines Gammamesspräparats

Oberflächenproben

Zunächst müssen größere Steine vor der Weiterverarbeitung aus dem Probenmaterial entfernt werden, da die Oberflächenproben zum Homogenisieren klein gehäckselt wurden, da hier auch das organische Material berücksichtigt werden soll. Bei diesen Proben stand eine erheblich größere Menge als bei den Bodenproben zur Verfügung, daher wurde das Material in Plastikpetrischalen mit einem Durchmesser von 8,5 cm gepresst und wie bei den Bohrkernen mit Montagekleber verschlossen und in einer Plastiktüte verschweißt.

War hinreichend Probenmaterial übrig, konnte dies zur weiteren Analyse von Plutonium und Uran genutzt werden. In den anderen Fällen wurde nach der Gammamessung das Probenmaterial der Gammaprobe hierfür verwendet. Für diese Analysen wurde das Probenmaterial zunächst auf 105 °C getrocknet.

3.3. IAEA-Referenzproben

Es wurden für diese Arbeit zwei verschiedene IAEA-Referenzproben zur Methodenvalidierung untersucht. Es handelt sich dabei um die IAEA-375 und die IAEA-Soil-6.

3. Probenübersicht

Die Probe IAEA-375 wurde im Juli 1990 auf dem Staatsgut „Staryi Viskov“ in Novozybkov, Brjansk, Russland genommen. Das Material wurde durch den Unfall des Kernkraftwerks in Tschernobyl kontaminiert und enthält Plutonium sowie Uran. Die Material lag luftgetrocknet, gesiebt und homogenisiert vor und wurde erst auf 105 °C massenkonstant getrocknet und anschließend verascht.

Für die Bodenprobe IAEA-Soil-6 wurden in der Nähe von Ebensee in Österreich die obersten Bodenschichten bis zu einer Tiefe von 10 cm entnommen. Das Material lag bereits gesiebt und verascht vor. Die Asche wurde anschließend gemahlen, gesiebt und homogenisiert. Die Probe enthält nur Plutonium, das aus dem globalen Fallout stammt.

4. Chemische Probenaufbereitung von Plutonium und Uran

Als Vorlage zur Aufbereitung der Plutoniumproben dienten Vorschriften aus [Bis09] und [Sch13a]. Diese wurden teilweise modifiziert. Für die Bearbeitung der Bewuchsproben und Uranabtrennung dienten Vorschriften aus [Bis12].

4.1. Aufschluss der Proben

Alle Proben wurden einem Säureaufschluss mit konzentrierter Salpeter- und Flusssäure unterzogen. Salpetersäure hat eine stark oxidierende Wirkung und wird verwendet, um den Großteil der Probe aufzuschließen. Die Flusssäure wird zusätzlich verwendet, um einerseits die Silikatmatrix aufzubrechen und andererseits um möglicherweise vorliegende Partikel des Kernbrennstoffs in Lösung zu bringen [Cha06].

Dazu wurden in der Regel etwa 10 g Asche in Teflongefäße eingewogen und mit wenig destilliertem Wasser angefeuchtet. Zur Prüfung auf Carbonatverbindungen in der Probe wird zunächst schwach konzentrierte Salpetersäure ($c = 3 \text{ mol/L}$) hinzugegeben, um ein zu starkes Aufschäumen bei der Zugabe von konzentrierter Salpetersäure zu vermeiden. Sobald dieser Prozess nachlässt, kann die vorsichtige Zugabe der konzentrierten Salpetersäure erfolgen.

Des Weiteren wurden nun je etwa 4 pg der Tracer ^{242}Pu und ^{233}U hinzugegeben. Der Aufschluss teilt sich in fünf wesentliche Phasen ein, bei dem die Menge an zugegebener Flusssäure variiert. Das Gesamtvolumen an Säure bleibt dabei immer gleich. Im ersten Schritt wurde ausschließlich 30 mL konzentrierte Salpetersäure hinzugegeben. Im zweiten Schritt wurden 15 mL konz. Salpetersäure mit 15 mL konz. Flusssäure zum Probenmaterial gegeben. Der dritte Schritt bestand aus reinen 30 mL konz. Flusssäure. Im vierten Schritt wurden wieder zur Hälfte Salpeter- und Flusssäure verwendet. Der fünfte und letzte Schritt bestand wieder aus 30 mL konz. Salpetersäure.

Nach jeder Zugabe der Säure wurden die Proben mit Hilfe von Heizlampen unter ständigem Rühren bis zur Trockene eingengt. Nachdem der letzte Schritt vollständig abgeraucht wurde, wurde der Probenrückstand in 30 mL einer Lösung aus Aluminiumnitrat ($c = 1 \text{ mol/L}$) in verdünnter Salpetersäure ($c = 3 \text{ mol/L}$) aufgenommen, das Aluminiumnitrat bindet die hier noch verbliebenen Fluoridreste in der Lösung. Bei diesem Verfahren handelt es sich nicht um einen Vollaufschluss.

Um das Restmaterial der Probe aus der Lösung zu entfernen, wird die Probe in ein Zentrifugenröhrchen überführt und bei 3500 Umdrehungen pro Minute für 10 min zentrifugiert. Dies entspricht bei der verwendeten Zentrifuge (Sigma 2k15) einer Zentrifugalbeschleunigung von $1054 g$. Die Lösung wurde in einen Faltenfilter dekantiert. Der Rückstand im Zentrifugenröhrchen wird noch mit 5 mL Salpetersäure ($c = 3 \text{ mol/L}$) gespült und erneut zentrifugiert. Die Spüllösung wurde ebenfalls auf den Faltenfilter gegeben und der Rückstand verworfen.

Anschließend wurde die Probenlösung noch ein zweites Mal, durch einen Blaubandfilter mit einer geringeren Porengröße, filtriert. Das Becherglas wurde in zwei Schritten mit Salpetersäure ($c = 3 \text{ mol/L}$) gespült und ebenfalls auf den Blaubandfilter gegeben.

4.2. Chemische Abtrennung von Plutonium und Uran

Im nächsten Schritt wurden Uran und Plutonium voneinander separiert. Dafür wurden in dieser Arbeit die Extraktionssäulen TEVA Resin (Tetra Valent Actinides) und UTEVA Resin (Uranium and Tetra Valent Actinides) der Firma „Triskem International“ verwendet.

Im ersten Schritt wurde die Extraktionssäule TEVA resin verwendet, welche für die Extraktion von vierwertigen Actiniden optimiert ist. Da Plutonium in sauren Lösungen in mehreren Oxidationsstufen vorliegen kann, ist es wichtig, dass vor der Extraktion die Oxidationsstufe richtig eingestellt wird. Durch die stark oxidierende Wirkung der verwendeten konzentrierten Salpetersäure während des Aufschlusses ist davon auszugehen, dass sich höhere Oxidationszustände gebildet haben. Durch die Zugabe von 2 mL Eisensulfamat ($c = 0,6 \text{ mol/L}$) werden alle höheren Oxidationszustände des Plutoniums auf ein dreiwertiges Niveau reduziert. Nach 5 Minuten wurden 0,5 mL Natriumnitrit ($c = 3,5 \text{ mol/L}$) hinzugegeben, um die Oxidationsstufe auf IV zu erhöhen. Bei diesem Schritt entstehen giftige, nitrose Gase. Daher wurden die Proben für 20 min bei etwa 90°C in ein Wasserbad gestellt, um restliche nitrose Gase aus der Lösung zu entfernen.

Nach dem Erhitzen und anschließenden Abkühlen auf Raumtemperatur hat sich bei vielen Proben ein gelartiger Niederschlag gebildet, der eine weitere Filtration durch einen Blaubandfilter nötig machte.

Die TEVA-Säule wurde, wie in Abbildung 4.1 dargestellt, auf einer Vakuumbbox montiert und mit 5 mL Salpetersäure ($c = 3 \text{ mol/L}$) konditioniert. Bei dieser Säurekonzentration wird vierwertiges Plutonium am besten auf der Säule zurückgehalten, während Uran einen deutlich geringeren Kapazitätsfaktor aufweist, wie in Abbildung 4.2 gut zu erkennen ist.



Abbildung 4.1.: Aufbau für die chemische Trennung mit Vakuumbbox, TEVA-Säule, Spritzenkörper als Vorratsgefäß und Becherglas für das Eluat [Bis09]

Die Durchflussgeschwindigkeit der Probenlösung wurde auf $0,5 \text{ mL/min}$ eingestellt und die Fraktion, in der sich das Uran befindet, in einem separaten Becherglas aufgefangen. Nachdem die Probelösung durchgelaufen ist, wurde die TEVA-Säule noch mit 15 mL Salpetersäure ($c = 3 \text{ mol/L}$) gespült, um noch zurückgebliebenes Uran von der Säule zu entfernen. Nach diesem Schritt wurde das Auffanggefäß gewechselt und diese uranhaltige Fraktion für die Weiterverarbeitung aufbewahrt. Die TEVA-Säule wurde anschließend mit Salzsäure ($c = 9 \text{ mol/L}$) gespült. Dieser Wechsel ins Chloridsystem entfernt Thorium von der Säule.

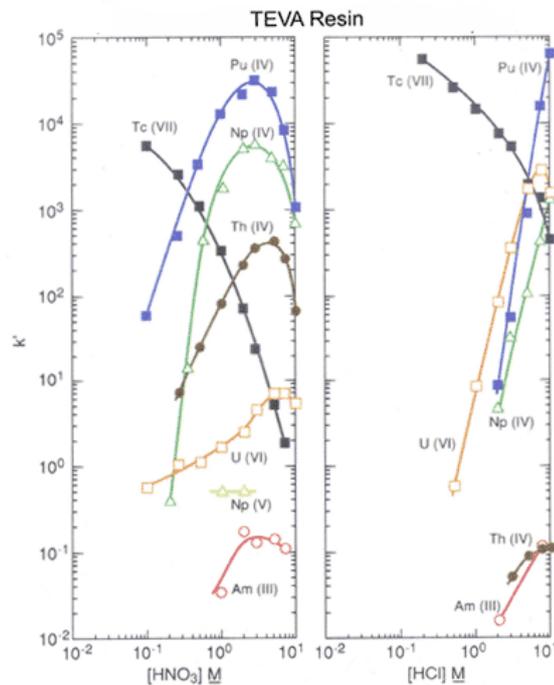


Abbildung 4.2.: Kapazitätsfaktoren für TEVA Resin, für Salz- und Salpetersäure, abhängig von der Säurekonzentration [Hor95]

Nach einem weiteren Wechsel des Auffanggefäßes wurde durch Zugabe von 5 mL Hydroxylamin ($c = 0,1\%$) das Plutonium auf den Oxidationszustand III reduziert und von der Säule gelöst.

Da sich in vorherigen Messungen gezeigt hatte, dass sich nach einer Trennung immer noch eine geringe Restmenge an störendem ^{238}U in der Pu-Fraktion befand, wurde eine erneute Trennung durchgeführt. Dazu musste die Pu-Fraktion zunächst komplett eingengt und der Rückstand in 10 mL Salpetersäure ($c = 3 \text{ mol/L}$) aufgenommen werden. Anschließend konnte wieder mit dem Einstellen der Oxidationszustände begonnen werden. Nach einem zweiten Durchlauf durch die Säule wurde die Plutonium-Fraktion in einem Zentrifugenröhrchen aufgefangen.

Für die Reinigung der Uran-Fraktion wurde eine UTEVA-Säule verwendet und analog zur TEVA-Säule auf der Vakuumbbox montiert und ebenfalls mit Salpetersäure ($c = 3 \text{ mol/L}$) konditioniert. An Abbildung 4.3 erkennt man, dass sechswertiges Uran in diesem Milieu einen relativ hohen Kapazitätsfaktor aufweist und daher gut an der Säule haftet. Für das Durchlaufen der Uran-Fraktion wird ebenfalls

eine Durchflussgeschwindigkeit von 0,5 mL/min eingestellt. Anschließend wird die Säule mit 5 mL Salzsäure ($c = 9 \text{ mol/L}$) gespült. Verbliebene Reste von Thorium und Neptunium wurden anschließend mit 20 mL Salzsäure ($c = 5 \text{ mol/L}$) und Oxalsäure ($c = 0,01 \text{ mol/L}$) von der Säule entfernt. Anschließend wurde das Uran mit 15 mL Salzsäure ($c = 0,01 \text{ mol/L}$) von der Säule gelöst und ebenfalls in einem Zentrifugenröhrchen aufgefangen.

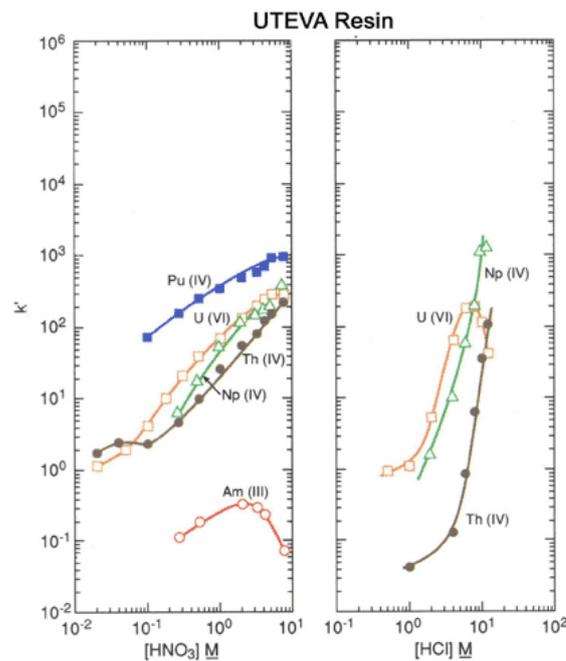


Abbildung 4.3.: Kapazitätsfaktoren für UTEVA Resin, für Salz- und Salpetersäure, abhängig von der Säurekonzentration [Hor95]

4.3. Herstellung des AMS-Messpräparats

Die weitere Verarbeitung der einzelnen Plutonium- und Uranproben läuft analog zueinander ab und wird hier daher nicht mehr getrennt voneinander dargestellt. In die Zentrifugenröhrchen wurden 0,5 mL einer Eisen(III)-Nitrat-Lösung (5 mg Fe/mL) hinzugegeben und mit 1 mL Ammoniaklösung (25 %) wurde Eisenhydroxid aus der Lösung gefällt. Das Plutonium bzw. Uran werden in diesem Schritt mit dem Eisen ebenfalls aus der Lösung gefällt.

In den vorhergehenden Arbeiten [Bis09] und [Sch13a] wurde diese Lösung sofort unter einer Heizlampe eingengt und weiter verarbeitet, hier hat sich allerdings

4. Chemische Probenaufbereitung von Plutonium und Uran

immer eine starke Salzkruste gebildet, die die Weiterverarbeitung sehr erschwert hat. In Abbildung 4.4 ist die Salzkruste deutlich zu erkennen.



Abbildung 4.4.: getrocknetes Eisenhydroxid ohne Vorreinigung (aus [Sch13a])

Bessere Resultate zeigten sich, wenn ein zusätzlicher Reinigungsschritt durchgeführt wurde. Dazu wurde die Probe zunächst für 10 min bei 12500 Umdrehungen pro Minute, was einer Zentrifugalbeschleunigung von 13454 g entspricht, zentrifugiert. Der Niederschlag wurde nun in mehreren Schritten mit Methanol gewaschen und jeweils auf die gleiche Weise zentrifugiert. Zuletzt wurde der Niederschlag in einen Schmelztiegel überführt und dort unter einer Heizlampe getrocknet. Das Ergebnis ist in Abbildung 4.5 dargestellt. In diesem Fall entsteht keine Salzkruste und auch haftet das Eisen nicht an der Wandung des Schmelztiegels. So ist es im Folgeschritt besser verarbeitbar.



Abbildung 4.5.: Gereinigtes Eisenhydroxid



Abbildung 4.6.: Gereinigtes Eisenoxid

Im Muffelofen wurde das Eisenhydroxid bei 800 °C innerhalb von vier Stunden in das stabilere Eisenoxid umgeformt. Anschließend konnte das Eisenoxid aus dem Tiegel herausgekratzt werden, um in das Messpräparat für die AMS gepresst zu werden. In diesem Schritt lag das eigentliche Problem mit der Salzkruste, da sich das Eisenoxid hauptsächlich am Rand des Schmelztiegels als dünne Schicht gebildet hatte, die sich kaum abkratzen ließ. Durch die Vorreinigung wurde dieses Problem umgangen und das Eisenoxid lag hauptsächlich gut ablösbar am Boden des Schmelztiegels, wie in Abbildung 4.6 gut zu erkennen ist. Das Eisenoxid wurde abgewogen und ungefähr mit der gleichen Menge Niobpulver vermengt und mit einem Stößel homogenisiert. Die Proben wurden mit Hilfe eines Presswerkzeugs in Aluminiumtargets gepresst, davon ist eins in Abbildung 4.7 dargestellt.



Abbildung 4.7.: Aluminium-Target

5. Ergebnisse

In diesem Kapitel werden die im Rahmen der Arbeit gewonnenen Ergebnisse dargestellt. Zunächst werden jedoch anhand von IAEA-Referenzmaterialien die verwendeten Messmethoden validiert. Anschließend werden die Ergebnisse der Japan-Proben sortiert nach dem Probennahmedatum, getrennt für Plutonium und Uran dargestellt. Zuletzt werden zu Vergleichszwecken noch Ergebnisse von Bodenproben aus der Ukraine, welche in Folge des Reaktorunfalls von Tschernobyl kontaminiert wurden, aus der Masterarbeit [Bro16] herangezogen und den ermittelten Caesium- und Plutoniumergebnissen aus Fukushima gegenüber gestellt.

5.1. IAEA-Referenzmaterial

5.1.1. Konformitätsprüfung

Mit Hilfe einer Konformitätsprüfung kann überprüft werden, ob zwei Messwerte miteinander verträglich sind. Diese Prüfung wird hier nach Weise [Wei94] anhand folgender Formel durchgeführt

$$\beta \leq \frac{|x_1 - x_2|}{\sqrt{u(x_1)^2 + u(x_2)^2}}, \quad (5.1)$$

mit x_i für die Messwerte und $u(x_i)$ für die dazugehörigen Unsicherheiten. Ergibt sich ein β größer als drei, gelten die beiden Messwerte nicht mehr als miteinander verträglich.

5.1.2. Validierung

Zur Validierung der angewandten Verfahren wurden Referenzmaterialien der IAEA herangezogen, die in gleicher Weise wie die Proben untersucht wurden. Es wurden die Referenzproben IAEA-375 und IAEA-Soil-6 genutzt. Dabei repräsentiert die Probe IAEA-375 eine mit Reaktorplutonium kontaminierte Probe, hier in Folge des

Tschernobyl-Unfalls und IAEA-Soil-6 eine Probe mit Plutonium aus dem globalen Fallout der Kernwaffentests.

Als Referenzwert für die Isotopenverhältnisse $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ werden entsprechende Messungen vorangehender Arbeiten herangezogen, da keine Referenzwerte der IAEA vorliegen. Die Materialien sind originär für alphaspektrometrische Untersuchungen vorgesehen.

Tabelle 5.1 zeigt die für beide Referenzmaterialien bestimmten Isotopenverhältnisse $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ und stellt die Messungen von 2009 [Bis09] und 2013 [Sch13a] gegenüber. Dazu wird der Konformitätsparameter β als Maß der Übereinstimmung angegeben.

Tabelle 5.1.: Mess- und Referenzwerte der Bodenprobe IAEA-375 und IAEA-Soil-6, at/at steht für das Atomverhältnis

| | IAEA-375 | | IAEA-Soil-6 | |
|----------|---|---------|---|---------|
| | Isotopenverhältnis $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ at/at | β | Isotopenverhältnis $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ at/at | β |
| Messwert | $0,29 \pm 0,012$ | | $0,21 \pm 0,01$ | |
| [Bis09] | $0,26 \pm 0,018$ | 1,28 | $0,185 \pm 0,007$ | 2,06 |
| [Sch13a] | $0,26 \pm 0,023$ | 1,10 | $0,193 \pm 0,013$ | 0,86 |

Die für die Referenzwerte ermittelten Isotopenverhältnisse sind in beiden Fällen mit beiden Vergleichswerten gut verträglich. Die ermittelten Isotopenverhältnisse geben deutlich die unterschiedlichen Plutonium-Kontaminationen wieder.

In Tabelle 5.2 ist die für IAEA-375 ermittelte spezifische Aktivität für $^{239+240}\text{Pu}$, dem IAEA-Referenzwert sowie den Werten vorangegangener Arbeiten gegenübergestellt. Der angegebene Konformitätsparameter β dient als Maß der Übereinstimmung und ist stets bezogen auf den IAEA-Referenzwert angegeben. Es ist durchgehend eine sehr gute Übereinstimmung festzustellen.

Tabelle 5.2.: Mess- und Referenzwerte der spezifischen Aktivität der Bodenprobe IAEA-375, bezogen auf den IAEA Referenzwert

| | Spez. Aktivität $^{239+240}\text{Pu}$ Bq/kg | |
|----------|--|---------|
| | | β |
| Messwert | $0,25 \pm 0,07$ | 0,62 |
| IAEA | $0,3 \pm 0,04$ | |
| [Bis09] | $0,34 \pm 0,02$ | 0,90 |
| [Sch13a] | $0,32 \pm 0,04$ | 0,35 |

Für ^{236}U standen leider keine geeigneten Referenzmaterialien zur Verfügung. Für die Proben von 2015 wird im Folgenden nur das Isotopenverhältnis $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ angegeben und diskutiert. Auf die Angabe der spezifischen Aktivitäten wird verzichtet, da es in Folge eines Tracerfehlers zu einer starken Überschätzung der spezifischen Aktivitäten gekommen ist. Der Fehler hat keine Auswirkungen auf die Bestimmung des Isotopenverhältnisses, da sich der Effekt bei der Bildung des Verhältnisses herauskürzt.

5.2. Proben aus 2013

Die Proben der Probennahmekampagne von 2013 wurden auf Plutonium und ^{236}U mittels AMS untersucht. Die Ergebnisse sind im Folgenden aufgeführt.

5.2.1. Plutonium

Die Tabellen 5.3 bis 5.10 zeigen, nach Probennahmestellen sortiert, die Isotopenverhältnisse $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ sowie die daraus ermittelten spezifischen Aktivitäten für $^{239+240}\text{Pu}$. Die Bezeichnung Veg-XX steht dabei für die an der jeweiligen Probennahmestelle genommene Bewuchsprobe (Vegetation) und Lit-XX für die dazugehörige litterhaltige Oberflächenprobe. F1-XX Y" bezeichnet Bohrkernproben. Diese wurden in sechs Schichten unterteilt, wobei Y die Schichttiefe in Zoll angibt und XX eine Nummerierung während der Probennahme bezeichnet. So beschreibt zum Beispiel die Probe F1-02 1" die oberste Bodenschicht bis zu 1 Zoll Tiefe. Aufgrund von Vergleichbarkeit mit anderen Arbeiten wurde die Bezeichnung der Probennahme beibehalten.

Für Messwerte die unterhalb der Nachweisgrenze aber oberhalb der Erkennungsgrenze liegen, konnte nur eine obere Grenze angegeben werden, dieses war bei den meisten Bewuchsproben der Fall. So wird die Nachweisgrenze als obere Grenze angegeben. Wenn im Isotopenverhältnis nur eine obere Grenze ermittelt werden konnte, dann wurde auf die Berechnung der spezifischen Aktivität für diese Probe verzichtet. Diese Werte sind mit „n.b.“ (nicht bestimmt) dargestellt. Das Isotopenverhältnis $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ wird hier immer als Atomverhältnis angegeben, welches als Kennzeichnung mit at/at abgekürzt wird.

Spot A gehört zu den wenigen Stellen bei denen die ermittelten Werte der Bewuchsprobe oberhalb der Nachweisgrenze lagen. Die Bewuchsprobe ist auch deshalb besonders auffällig, da der Wert des Isotopenverhältnisses $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ von $0,27 \pm$

Tabelle 5.3.: Spot A: Ergebnisse der Plutonium-Isotopenverhältnisse und spezifischen Aktivitäten

| Probenbezeichnung | Isotopenverhältnis $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ at/at | spez. Aktivität $^{239+240}\text{Pu}$ Bq/kg |
|--------------------------|---|--|
| Veg-a2 | $0,27 \pm 0,077$ | $0,006 \pm 0,001$ |
| Lit-a2 | $0,19 \pm 0,01$ | $0,043 \pm 0,001$ |
| F1-02 1'' | $0,17 \pm 0,014$ | $0,051 \pm 0,002$ |
| F1-02 2'' | $0,12 \pm 0,017$ | $0,043 \pm 0,002$ |
| F1-02 3'' | $0,15 \pm 0,015$ | $0,045 \pm 0,002$ |
| F1-02 4'' | $0,19 \pm 0,042$ | $0,049 \pm 0,005$ |
| F1-02 5'' | $0,19 \pm 0,028$ | $0,048 \pm 0,003$ |
| F1-02 6'' | $0,15 \pm 0,026$ | $0,046 \pm 0,003$ |

0,077 deutlich über dem des globalen Fallouts liegt (0,17 - 0,19). Eine Kontamination in Folge des Reaktorunfalls ist daher nicht auszuschließen. Aufgrund der hohen Unsicherheit kann jedoch auch nicht von einem Nachweis gesprochen werden. Das restliche Tiefenprofil verhält sich relativ unauffällig und weist nur Werte auf, die für Plutonium aus dem globalen Fallout sprechen. Die spezifische Aktivität weist insgesamt nur relativ kleine Werte auf.

Tabelle 5.4.: Spot B: Ergebnisse der Plutonium-Isotopenverhältnisse und spezifischen Aktivitäten

| Probenbezeichnung | Isotopenverhältnis $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ at/at | spez. Aktivität $^{239+240}\text{Pu}$ Bq/kg |
|--------------------------|---|--|
| Veg-b2 | $0,24 \pm 0,042$ | $0,007 \pm 0,0006$ |
| Lit-b2 | $0,21 \pm 0,033$ | $0,011 \pm 0,001$ |
| F1-06 1'' | $0,21 \pm 0,042$ | $0,016 \pm 0,003$ |
| F1-06 2'' | $0,19 \pm 0,033$ | $0,015 \pm 0,001$ |
| F1-06 3'' | <0,45 | n.b. |
| F1-06 4'' | <0,72 | n.b. |
| F1-06 5'' | <0,13 | n.b. |
| F1-06 6'' | <12,34 | n.b. |

Bei Spot B deutet sich ein ähnliches Bild wie bei Spot A an, der Wert der Bewuchprobe ist wieder leicht erhöht, aber im Rahmen der Unsicherheit deutet sich bei allen Proben des Profils nur eine Kontamination mit Plutonium aus dem globalen

Fallout an. Für die untersten Schichten konnten hier nur obere Grenzen ermittelt werden. Auch weisen die spezifischen Aktivitäten wieder nur sehr kleine Werte auf.

Tabelle 5.5.: Spot C: Ergebnisse der Plutonium-Isotopenverhältnisse und spezifischen Aktivitäten

| Probenbezeichnung | Isotopenverhältnis $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ at/at | spez. Aktivität $^{239+240}\text{Pu}$ Bq/kg |
|-------------------|--|---|
| Veg-c2 | <0,492 | n.b. |
| Lit-c2 | $0,29 \pm 0,036$ | $0,030 \pm 0,002$ |
| F1-10 1" | $0,12 \pm 0,026$ | $0,048 \pm 0,004$ |
| F1-10 2" | $0,12 \pm 0,025$ | $0,089 \pm 0,006$ |
| F1-10 3" | $0,15 \pm 0,006$ | $0,181 \pm 0,003$ |
| F1-10 4" | $0,16 \pm 0,007$ | $0,195 \pm 0,004$ |
| F1-10 5" | $0,16 \pm 0,010$ | $0,200 \pm 0,006$ |
| F1-10 6" | $0,11 \pm 0,008$ | $0,113 \pm 0,003$ |

Die auffälligste Probe des Profils an Spot C ist die Oberflächenprobe. Hier beträgt das Isotopenverhältnis $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ $0,29 \pm 0,036$. Hier kann schon von einem Einfluss von Plutonium, das aus einem Reaktor stammt, gesprochen werden. Trotz hoher Unsicherheit ist zumindest von einer Mischung mit Plutonium aus dem globalen Fallout auszugehen, was auch mit dem relativ kleinen Wert im Einklang stehen würde. Das restliche Bodenprofil ist wieder relativ unauffällig und weist Werte im Bereich des globalen Fallouts auf. Bei den spezifischen Aktivitäten sind in diesem Profil höhere Werte ermittelt worden, als in den vorherigen.

An Spot D wurden zwei Oberflächenproben genommen, da die zweite Stelle mit Lit-d4 durch eine hohe Ortsdosisleistung besonders auffällig war während der Probennahme. Auch das Isotopenverhältnis $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ weist hier mit einem Wert von $0,29 \pm 0,015$ einen höheren Wert auf, mit dieser vergleichsweise kleinen Unsicherheit kann man hier ebenfalls von einer Kontamination mit Reaktorplutonium sprechen. Ähnlich wie bei Spot C wird es sich hier um eine Mischung mit Plutonium aus dem globalen Fallout handeln. Das restliche Bodenprofil weist ansonsten nur auf eine Kontamination durch globalen Fallout hin. Die spezifischen Aktivitäten sind auch hier wieder höher als an den ersten beiden Probennahmestellen, aber insgesamt immer noch niedrig.

Spot E liegt wenige 100 Meter neben Spot D und zeigt im kompletten Profil keine erhöhten Werte im Isotopenverhältnis auf, sondern ausschließlich Werte die auf eine Kontamination mit globalen Fallout zurückzuführen sind. Die spezifischen Aktivitäten sind hier leicht höher als an Spot D.

Tabelle 5.6.: Spot D: Ergebnisse der Plutonium-Isotopenverhältnisse und spezifischen Aktivitäten

| Probenbezeichnung | Isotopenverhältnis $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ at/at | spez. Aktivität $^{239+240}\text{Pu}$ Bq/kg |
|--------------------------|---|--|
| Veg-d2 | <0,89 | n.b. |
| Lit-d2 | $0,21 \pm 0,009$ | $0,264 \pm 0,006$ |
| Lit-d4 | $0,29 \pm 0,015$ | $0,077 \pm 0,002$ |
| F1-14 1'' | $0,20 \pm 0,006$ | $0,162 \pm 0,003$ |
| F1-14 2'' | $0,16 \pm 0,007$ | $0,239 \pm 0,005$ |
| F1-14 3'' | $0,18 \pm 0,007$ | $0,288 \pm 0,005$ |
| F1-14 4'' | $0,18 \pm 0,010$ | $0,374 \pm 0,009$ |
| F1-14 5'' | $0,17 \pm 0,008$ | $0,271 \pm 0,006$ |
| F1-14 6'' | $0,18 \pm 0,007$ | $0,266 \pm 0,006$ |

Tabelle 5.7.: Spot E: Ergebnisse der Plutonium-Isotopenverhältnisse und spezifischen Aktivitäten

| Probenbezeichnung | Isotopenverhältnis $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ at/at | spez. Aktivität $^{239+240}\text{Pu}$ Bq/kg |
|--------------------------|---|--|
| Veg-e2 | <0,93 | n.b. |
| Lit-e2 | $0,18 \pm 0,005$ | $0,431 \pm 0,009$ |
| F1-18 1'' | $0,17 \pm 0,007$ | $0,408 \pm 0,008$ |
| F1-18 2'' | $0,17 \pm 0,006$ | $0,436 \pm 0,008$ |
| F1-18 3'' | $0,18 \pm 0,007$ | $0,368 \pm 0,007$ |
| F1-18 4'' | $0,17 \pm 0,005$ | $0,394 \pm 0,007$ |
| F1-18 5'' | $0,17 \pm 0,006$ | $0,423 \pm 0,008$ |
| F1-18 6'' | $0,18 \pm 0,012$ | $0,873 \pm 0,015$ |

Tabelle 5.8.: Spot F: Ergebnisse der Plutonium-Isotopenverhältnisse und spezifischen Aktivitäten

| Probenbezeichnung | Isotopenverhältnis $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ at/at | spez. Aktivität $^{239+240}\text{Pu}$ Bq/kg |
|--------------------------|---|--|
| Veg-f2 | $0,32 \pm 0,051$ | $0,011 \pm 0,001$ |
| Lit-f2 | $0,22 \pm 0,010$ | $0,031 \pm 0,001$ |
| F1-21 1" | $0,17 \pm 0,005$ | $1,388 \pm 0,023$ |
| F1-21 2" | $0,15 \pm 0,004$ | $2,341 \pm 0,037$ |
| F1-21 3" | $0,17 \pm 0,007$ | $0,978 \pm 0,021$ |
| F1-21 4" | $0,20 \pm 0,011$ | $0,195 \pm 0,005$ |
| F1-21 5" | $0,21 \pm 0,045$ | $0,066 \pm 0,006$ |
| F1-21 6" | $0,24 \pm 0,077$ | $0,039 \pm 0,006$ |

Direkt am Gelände des Kraftwerks an Spot F wurde in der Bewuchsprobe ein erhöhtes Isotopenverhältnis $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ von $0,32 \pm 0,051$ ermittelt. Auch hier kann man von einer Kontamination mit Reaktorplutonium sprechen. Durch die relativ große Unsicherheit, ist es nicht auszuschließen, dass es sich hier wieder um eine Mischung mit Plutonium aus dem globalen Fallout handelt. Das Tiefenprofil zeigt keine weiteren erhöhten Werte für das Isotopenverhältnis. Dagegen wurden für die obersten Bodenschichten die höchsten spezifischen Aktivitäten ermittelt.

Tabelle 5.9.: Spot G: Ergebnisse der Plutonium-Isotopenverhältnisse und spezifischen Aktivitäten

| Probenbezeichnung | Isotopenverhältnis $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ at/at | spez. Aktivität $^{239+240}\text{Pu}$ Bq/kg |
|--------------------------|---|--|
| Veg-g2 | $<0,28$ | n.b. |
| Lit-g2 | $0,18 \pm 0,012$ | $0,027 \pm 0,001$ |
| F1-28 1" | $0,19 \pm 0,030$ | $0,027 \pm 0,002$ |
| F1-28 2" | $0,18 \pm 0,018$ | $0,049 \pm 0,002$ |
| F1-28 3" | $0,18 \pm 0,017$ | $0,066 \pm 0,003$ |
| F1-28 4" | $0,16 \pm 0,020$ | $0,058 \pm 0,003$ |
| F1-28 5" | $0,17 \pm 0,011$ | $0,077 \pm 0,002$ |
| F1-28 6" | $0,17 \pm 0,014$ | $0,094 \pm 0,003$ |

Bei Spot G zeigen sich ebenfalls keine auffälligen Werte. Die Isotopenverhältnisse sprechen für Plutonium aus globalem Fallout und auch die spezifischen Aktivitäten weisen wieder nur sehr niedrige Werte auf.

Tabelle 5.10.: Spot H: Ergebnisse der Plutonium-Isotopenverhältnisse und spezifischen Aktivitäten

| Probenbezeichnung | Isotopenverhältnis $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ at/at | spez. Aktivität $^{239+240}\text{Pu}$ Bq/kg |
|-------------------|--|---|
| Veg-h2 | <0,89 | n.b. |
| Lit-h2 | $0,19 \pm 0,019$ | $0,013 \pm 0,001$ |
| F1-31 1'' | $0,26 \pm 0,087$ | $0,014 \pm 0,002$ |
| F1-31 2'' | n.b. | n.b. |
| F1-31 3'' | $0,48 \pm 0,151$ | $0,011 \pm 0,002$ |
| F1-31 4'' | $0,21 \pm 0,045$ | $0,031 \pm 0,003$ |
| F1-31 5'' | $0,19 \pm 0,012$ | $0,056 \pm 0,002$ |
| F1-31 6'' | $0,17 \pm 0,015$ | $0,055 \pm 0,002$ |

Spot H wurde in der Nähe des nicht havarierten Kernkraftwerks Fukushima Dai-ni genommen. Hier zeigen sich im Bodenprofil sehr ungewöhnliche Werte im Isotopenverhältnis, während die spezifischen Aktivitäten wieder relativ niedrig sind. Im Bodenprofil zeigen sich in den oberen Schichten überraschend hohe Werte des Isotopenverhältnisses $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$. Während die oberste Schicht im Rahmen ihrer Unsicherheit nicht eindeutig einer Kontamination mit Reaktorplutonium zuzuordnen ist, kann dies für die dritte Schicht nicht behauptet werden. Die Interpretation wird weiterhin dadurch erschwert, dass für die zweite Schicht kein Wert bestimmt werden konnte, da das gemessene Ausgangssignal von $^{240}\text{Pu}/^{242}\text{Pu}$ einen Wert, der deutlich unterhalb der Erkennungsgrenze lag, ergeben hatte.

5.2.2. Uran

Die im Folgenden dargestellten Tabellen 5.11 bis 5.18 zeigen die ermittelten Konzentrationen von ^{236}U in 10^9 Atomen pro Kilogramm Boden sowie das Isotopenverhältnis $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ als Atomverhältnis (at/at) für jede Probennahmestelle. Für die Bewuchsproben war es nicht möglich, das Isotopenverhältnis zu bestimmen, da die als Basiskonstante verwendete ^{238}U -Konzentration zu gering war und nicht gemessen werden konnte.

Die Probenbezeichnung ist analog zu den Plutoniumproben. Werte die nicht bestimmt werden konnten sind mit „n.b.“ dargestellt.

Die Ergebnisse von Spot A sind in Tabelle 5.11 aufgeführt. Die Werte der Konzentration des ^{236}U schwanken stark und zeigen keinen klaren Trend innerhalb des

Tabelle 5.11.: Spot A: Ergebnisse der Konzentration des ^{236}U und des Isotopenverhältnisses $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$

| Probenbezeichnung | Konzentration ^{236}U | Isotopenverhältnis $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ |
|-------------------|-----------------------------------|---|
| | 10^9 Atome/kg | 10^{-9} at/at |
| Veg-a2 | $1,31 \pm 0,334$ | n.b. |
| Lit-a2 | $8,42 \pm 0,333$ | $1,88 \pm 0,083$ |
| F1-02 1" | $20,59 \pm 1,139$ | $5,44 \pm 0,328$ |
| F1-02 2" | $17,37 \pm 1,755$ | $4,88 \pm 0,506$ |
| F1-02 3" | $12,89 \pm 0,903$ | $3,40 \pm 0,252$ |
| F1-02 4" | $62,09 \pm 1,987$ | $17,72 \pm 0,707$ |
| F1-02 5" | $6,48 \pm 0,555$ | $5,09 \pm 0,457$ |
| F1-02 6" | $13,21 \pm 2,218$ | $3,49 \pm 0,597$ |

Bodenprofils. In der vierten Schicht des Bodens wird das Maximum mit einem dreifach so hohen Wert wie in der ersten Schicht erreicht. Das Isotopenverhältnis $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ hat einen ähnlichen Verlauf. Auch hier liegt der höchste Wert des Bodenprofils in der vierten Schicht und ist sogar um das Vierfache höher als in der ersten Schicht.

Auch in Spot B (siehe Tabelle 5.12) hat sowohl die Konzentration als auch das Isotopenverhältnis in einer tieferen Schicht des Bodenprofils den höchsten Wert. Hier ist dieser in der dritten Schicht zu finden. Die Konzentration ist hier um das Sechsfache höher als in der ersten Schicht, beim Isotopenverhältnis ist der Wert sogar um das Achtfache höher.

Tabelle 5.12.: Spot B: Ergebnisse der Konzentration des ^{236}U und des Isotopenverhältnisses $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$

| Probenbezeichnung | Konzentration ^{236}U | Isotopenverhältnis $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ |
|-------------------|-----------------------------------|---|
| | 10^9 Atome/kg | 10^{-9} at/at |
| Veg-b2 | $1,31 \pm 0,229$ | n.b. |
| Lit-b2 | $1,18 \pm 0,115$ | $0,65 \pm 0,064$ |
| F1-06 1" | $31,47 \pm 9,447$ | $17,19 \pm 5,24$ |
| F1-06 2" | $18,24 \pm 3,067$ | $9,22 \pm 1,57$ |
| F1-06 3" | $195,51 \pm 6,091$ | $137,40 \pm 6,45$ |
| F1-06 4" | $5,56 \pm 0,578$ | $6,90 \pm 0,807$ |
| F1-06 5" | $10,16 \pm 1,236$ | $14,90 \pm 2,70$ |
| F1-06 6" | $8,10 \pm 0,647$ | $8,48 \pm 1,00$ |

Tabelle 5.13.: Spot C: Ergebnisse der Konzentration des ^{236}U und des Isotopenverhältnisses $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$, „<EG“: Wert liegt unterhalb der Erkennungsgrenze

| Proben- bezeichnung | Konzentration ^{236}U 10^9 Atome/kg | Isotopenverhältnis $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ 10^{-9} at/at |
|------------------------|--|--|
| Veg-c2 | <EG | n.b. |
| Lit-c2 | $2,38 \pm 0,208$ | $2,19 \pm 0,204$ |
| F1-10 1'' | $14,52 \pm 5,367$ | $14,50 \pm 5,38$ |
| F1-10 2'' | $19,40 \pm 0,807$ | $5,95 \pm 2,85$ |
| F1-10 3'' | $21,25 \pm 2,483$ | $4,48 \pm 0,565$ |
| F1-10 4'' | $66,39 \pm 2,057$ | $15,69 \pm 0,613$ |
| F1-10 5'' | $8,93 \pm 0,421$ | $1,91 \pm 0,101$ |
| F1-10 6'' | $24,10 \pm 1,334$ | $7,75 \pm 0,467$ |

Das gleiche Verhalten des ^{236}U kann auch bei Spot C beobachtet werden (siehe Tabelle 5.13). Während es in den oberen Bodenschichten nur zu geringfügigen Schwankungen kommt, gibt es wieder in der vierten Schicht den maximalen Wert in der Konzentration. Die Werte des Isotopenverhältnisses sind hier weniger auffällig und der Wert der vierten Schicht ist hier im Rahmen der Unsicherheit mit dem aus der ersten Schicht verträglich.

Tabelle 5.14.: Spot D: Ergebnisse der Konzentration des ^{236}U und des Isotopenverhältnisses $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$

| Proben- bezeichnung | Konzentration ^{236}U 10^9 Atome/kg | Isotopenverhältnis $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ 10^{-9} at/at |
|------------------------|--|--|
| Veg-d2 | $5,93 \pm 2,385$ | n.b. |
| Lit-d2 | $52,97 \pm 1,764$ | $14,34 \pm 0,557$ |
| F1-14 1'' | $54,16 \pm 2,485$ | $17,75 \pm 1,59$ |
| F1-14 2'' | $18,90 \pm 0,647$ | $5,15 \pm 0,204$ |
| F1-14 3'' | $23,11 \pm 0,652$ | $5,52 \pm 0,191$ |
| F1-14 4'' | $33,11 \pm 1,051$ | $8,03 \pm 0,303$ |
| F1-14 5'' | $21,84 \pm 0,682$ | $5,86 \pm 0,217$ |
| F1-14 6'' | $18,65 \pm 0,835$ | $5,10 \pm 0,250$ |

Dieses Verhalten ist hingegen bei Spot D nicht zu beobachten, siehe Tabelle 5.14. Hier steigt die Konzentration bereits von der Bewuchs- zur Oberflächenprobe stark

an und hält sich relativ konstant in der ersten Bodenschicht. Im weiteren Verlauf des Bodenprofils sinkt die Konzentration wieder ab und hat in der vierten Schicht erneut ein lokales Maximum. Auch beim Isotopenverhältnis sind die Werte der Oberflächenprobe und der obersten Bodenschicht miteinander vergleichbar und deutlich größer als im Rest des Bodenprofils. In den tieferen Schichten verhält es sich analog zur Konzentration.

Tabelle 5.15.: Spot E: Ergebnisse der Konzentration des ^{236}U und des Isotopenverhältnisses $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$

| Probenbezeichnung | Konzentration | Isotopenverhältnis |
|-------------------|-------------------------------------|--|
| | ^{236}U 10^9 Atome/kg | $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ 10^{-9} at/at |
| Veg-e2 | $0,56 \pm 0,330$ | n.b. |
| Lit-e2 | $39,35 \pm 1,204$ | $9,10 \pm 0,333$ |
| F1-18 1" | $78,94 \pm 2,102$ | $15,08 \pm 0,502$ |
| F1-18 2" | $38,84 \pm 1,002$ | $6,97 \pm 0,228$ |
| F1-18 3" | $28,48 \pm 1,369$ | $5,72 \pm 0,301$ |
| F1-18 4" | $30,41 \pm 0,952$ | $5,60 \pm 0,221$ |
| F1-18 5" | $33,21 \pm 0,885$ | $6,09 \pm 0,205$ |
| F1-18 6" | $14,54 \pm 0,545$ | $4,59 \pm 0,195$ |

Ein ähnlicher Verlauf zeigt sich auch in den Ergebnissen von Spot E, diese sind in Tabelle 5.15 dargestellt. Hier kommt es wieder zu einem starken Anstieg der Konzentration zur Oberflächenprobe hin. Die Konzentration erhöht sich jedoch um das Doppelte in der obersten Bodenschicht. Im weiteren Verlauf sinkt die Konzentration wieder auf ein vergleichbares Niveau wie die Oberflächenprobe und sinkt danach weiter ab. Beim Isotopenverhältnis liegt in der obersten Bodenschicht wieder das höchste Verhältnis vor. In den übrigen Schichten ist es relativ konstant. Die insgesamt größte Konzentration des ^{236}U ist im kompletten Bodenprofil von Spot F (siehe Tabelle 5.16). Dabei liegen die höchsten Werte in den beiden obersten Bodenschichten vor, das Maximum liegt in der zweiten Schicht. Im weiteren Verlauf sinkt die Konzentration wieder auf ein Niveau, das mit den anderen Bohrkernen zu vergleichen ist. Auch das Isotopenverhältnis verhält sich analog zu diesem Verlauf, auch wenn der Unterschied der Faktoren unter den Werten weniger stark ausgeprägt ist.

In Spot G liegt das Hauptmaximum der Konzentration des ^{236}U und des Isotopenverhältnisses in der fünften Bodenschicht vor. Während sich beide Werte im restlichen Bodenprofil relativ konstant halten, ist die Konzentration in der fünften Schicht etwa dreifach so groß und im Isotopenverhältnis nur doppelt so groß.

Tabelle 5.16.: Spot F: Ergebnisse der Konzentration des ^{236}U und des Isotopenverhältnisses $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$

| Probenbezeichnung | Konzentration ^{236}U | Isotopenverhältnis $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ |
|-------------------|-----------------------------------|---|
| | 10^9 Atome/kg | 10^{-9} at/at |
| Veg-f2 | $6,66 \pm 0,626$ | n.b. |
| F1-21 1" | $118,64 \pm 4,098$ | $48,08 \pm 1,92$ |
| F1-21 2" | $187,34 \pm 4,983$ | $55,78 \pm 1,86$ |
| F1-21 3" | $73,97 \pm 2,024$ | $23,22 \pm 0,787$ |
| F1-21 4" | $15,75 \pm 0,568$ | $4,46 \pm 0,184$ |
| F1-21 5" | $5,24 \pm 0,301$ | $1,57 \pm 0,097$ |
| F1-21 6" | $3,79 \pm 0,310$ | $1,08 \pm 0,091$ |

Tabelle 5.17.: Spot G: Ergebnisse der Konzentration des ^{236}U und des Isotopenverhältnisses $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$

| Probenbezeichnung | Konzentration ^{236}U | Isotopenverhältnis $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ |
|-------------------|-----------------------------------|---|
| | 10^9 Atome/kg | 10^{-9} at/at |
| Veg-g2 | $0,62 \pm 0,300$ | n.b. |
| Lit-g2 | $3,58 \pm 0,226$ | $2,19 \pm 0,148$ |
| F1-28 1" | $4,64 \pm 0,274$ | $2,99 \pm 0,193$ |
| F1-28 2" | $7,75 \pm 0,624$ | $3,03 \pm 0,254$ |
| F1-28 3" | $9,16 \pm 0,586$ | $2,35 \pm 0,160$ |
| F1-28 4" | $7,27 \pm 0,319$ | $1,97 \pm 0,095$ |
| F1-28 5" | $23,88 \pm 0,780$ | $6,67 \pm 0,256$ |
| F1-28 6" | $9,04 \pm 0,396$ | $2,47 \pm 0,119$ |

Bei Spot H liegt kein deutlich ausgeprägtes Maximum vor, siehe Tabelle 5.18. In der obersten Bodenschicht liegt sowohl die höchste Konzentration als auch das höchste Isotopenverhältnis vor, während diese sich in den übrigen Schichten relativ konstant halten. Auffällig ist hier noch, dass die Konzentration in der Bewuchsprobe fast doppelt so groß ist wie in der Oberflächenprobe.

Tabelle 5.18.: Spot H: Ergebnisse der Konzentration des ^{236}U und des Isotopenverhältnisses $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$

| Proben- bezeichnung | Konzentration ^{236}U 10^9 Atome/kg | Isotopenverhältnis $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ 10^{-9} at/at |
|--------------------------------|---|---|
| Veg-h2 | $4,10 \pm 0,619$ | n.b. |
| Lit-h2 | $2,13 \pm 0,189$ | $1,70 \pm 0,157$ |
| F1-31 1" | $19,89 \pm 1,685$ | $21,31 \pm 2,11$ |
| F1-31 2" | $12,02 \pm 1,231$ | $13,93 \pm 1,60$ |
| F1-31 3" | $9,08 \pm 3,250$ | $11,13 \pm 4,03$ |
| F1-31 4" | $14,83 \pm 4,735$ | $9,49 \pm 3,04$ |
| F1-31 5" | $7,47 \pm 0,686$ | $5,11 \pm 0,498$ |
| F1-31 6" | $13,84 \pm 0,744$ | $5,77 \pm 0,340$ |

5.3. Proben aus 2015

Die Proben der Probennahmekampagne aus 2015 wurden zusätzlich zur Bestimmung von Plutonium und ^{236}U mittels AMS auch gammaspektrometrisch untersucht. Die ermittelten Ergebnisse sind im folgenden Abschnitt dargestellt.

5.3.1. Plutonium

Die folgenden Tabellen 5.19 bis 5.21 zeigen die $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ -Isotopenverhältnisse der 2015 beprobten Probennahmeorte. Auf eine Betrachtung der spezifischen Aktivitäten muss aufgrund der im Abschnitt 5.1 erläuterten Problematik verzichtet werden.

Desweiteren lag aufgrund notwendiger Wiederholungen in einigen Fällen nicht hinreichend Probenmaterial vor, sodass für Spot A, F und H für die oberste Bodenschicht kein Wert angegeben werden konnte.

Tabelle 5.19.: Spot A und B: Ergebnisse des Isotopenverhältnisses $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$

| Spot A | Isotopenverhältnis $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ at/at | Spot B | Isotopenverhältnis $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ at/at |
|----------|--|----------|--|
| Lit-a3 | $0,21 \pm 0,01$ | Lit-b3 | $0,21 \pm 0,01$ |
| F3-31 2" | $0,17 \pm 0,01$ | F3-05 1" | $0,27 \pm 0,02$ |
| F3-31 3" | $0,19 \pm 0,01$ | F3-05 2" | $0,27 \pm 0,09$ |
| F3-31 4" | $0,12 \pm 0,03$ | F3-05 3" | $0,29 \pm 0,12$ |
| F3-31 5" | $0,22 \pm 0,02$ | F3-05 4" | < EG |
| F3-31 6" | $0,23 \pm 0,04$ | F3-05 5" | < 0,21 |
| | | F3-05 6" | $0,20 \pm 0,06$ |

In Tabelle 5.19 sind die Isotopenverhältnisse für Spot A und B aufgeführt. Spot A weist keine Auffälligkeiten auf und zeigt im Rahmen der Unsicherheit Werte auf, die für eine Kontamination aus dem globalen Fallout sprechen.

Anders sieht das bei Spot B aus. Dort zeigen speziell die obersten Bodenschichten ein hohes Isotopenverhältnis. Während die Unsicherheit für die zweite und dritte Schicht sehr groß ist und eine eindeutige Zuordnung daher nicht möglich ist, da es sowohl für eine Kontamination aus dem globalen Fallout als auch für eine Kontamination aus dem Reaktor sprechen könnte, ist die Unsicherheit der ersten Schicht zu klein, um hier noch von Plutonium aus dem globalen Fallout sprechen zu

können. In der vierten und fünften Schicht lag eine geringe Zählrate vor, wodurch das Verhältnis nicht genau bestimmt werden konnte und im Falle der fünften Schicht nur eine obere Grenze angegeben werden kann.

Tabelle 5.20.: Spot D und F: Ergebnisse des Isotopenverhältnisses $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$

| Spot D | Isotopenverhältnis $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ at/at | Spot F | Isotopenverhältnis $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ at/at |
|-----------|--|-----------|--|
| Lit-d5 | $0,18 \pm 0,01$ | Lit-f3 | $0,23 \pm 0,01$ |
| Lit-d6 | $0,21 \pm 0,01$ | | |
| F3-03 1'' | $0,19 \pm 0,01$ | | |
| F3-03 2'' | $0,18 \pm 0,01$ | F3-19 2'' | $0,19 \pm 0,01$ |
| F3-03 3'' | $0,19 \pm 0,01$ | F3-19 3'' | $0,16 \pm 0,01$ |
| F3-03 4'' | $0,19 \pm 0,01$ | F3-19 4'' | $0,19 \pm 0,01$ |
| F3-03 5'' | $0,19 \pm 0,01$ | F3-19 5'' | $0,18 \pm 0,01$ |
| F3-03 6'' | $0,19 \pm 0,01$ | F3-19 6'' | $0,18 \pm 0,01$ |

In Tabelle 5.20 sind die Isotopenverhältnisse von Spot D und Spot F aufgeführt. Hier gibt es in beiden Profilen keine erhöhten Isotopenverhältnisse. Die Werte sprechen im Rahmen ihrer Unsicherheiten alle für eine Kontamination aus dem globalen Fallout.

Das gleiche gilt auch für die in Tabelle 5.21 gezeigten Isotopenverhältnisse von Spot H.

Tabelle 5.21.: Spot H: Ergebnisse des Isotopenverhältnisses $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$

| Spot H | Isotopenverhältnis $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ at/at |
|-----------|--|
| Lit-h3 | $0,22 \pm 0,01$ |
| F3-21 2'' | $0,19 \pm 0,02$ |
| F3-21 3'' | $0,18 \pm 0,01$ |
| F3-21 4'' | $0,18 \pm 0,01$ |
| F3-21 5'' | $0,20 \pm 0,02$ |
| F3-21 6'' | $0,21 \pm 0,01$ |

5.3.2. Uran

Aufgrund von Messproblemen infolge ungeklärter Ausgasung war es nicht möglich, alle Proben zu messen. Da nicht für alle Proben Messwerte vorliegen, sind die Ergebnisse diesmal nicht nach Probennahmestellen sortiert, sondern nach der Art der Probe. Die Ergebnisse der Bodenprofilproben sind in Tabelle 5.22 und die der Oberflächenproben in Tabelle 5.23 dargestellt. Bei den Oberflächenproben gibt der Buchstabe vor der Zahl die Spot-Kennung wieder.

Sowohl die Konzentration des ^{236}U als auch das Isotopenverhältnis $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ der Bodenproben, liegen in einer vergleichbaren Größenordnung. Innerhalb des Bodenprofils F3-05 (Spot B) schwanken beide Werte zwischen den einzelnen Schichten deutlich.

Insgesamt deuten weder die Konzentration noch das Isotopenverhältnis aller Bodenproben auf eine Kontamination aus dem Reaktor hin.

Tabelle 5.22.: Boden: Ergebnisse der Konzentration des ^{236}U und des Isotopenverhältnisses $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$

| Proben- nahmestelle | Proben- bezeichnung | Konzentration | Isotopenverhältnis |
|------------------------|------------------------|--|---|
| | | ^{236}U 10 ⁹ Atome/kg | $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ 10 ⁻⁹ at/at |
| Spot F | F3-19 6" | 31,37 ± 1,13 | 4,22 ± 0,25 |
| Spot A | F3-31 3" | 25,88 ± 1,22 | 12,26 ± 1,52 |
| Spot D | F3-03 2" | 39,39 ± 1,23 | 5,13 ± 0,26 |
| Spot D | F3-03 4" | 29,01 ± 1,08 | 3,98 ± 0,25 |
| Spot B | F3-05 1" | 4,35 ± 0,61 | 1,82 ± 0,30 |
| Spot B | F3-05 3" | 32,80 ± 1,02 | 24,81 ± 3,30 |
| Spot B | F3-05 4" | 7,23 ± 0,76 | 5,32 ± 0,91 |
| Spot B | F3-05 5" | 27,39 ± 1,12 | 20,41 ± 2,74 |

Für die Oberflächenproben gibt es teilweise lokal große Unterschiede zwischen der Konzentration und dem Isotopenverhältnis. Aber an den Stellen B und H stimmen die Ergebnisse der Konzentration und des Isotopenverhältnisses relativ gut miteinander überein und weisen vergleichbare Werte auf, die in der gleichen Größenordnung liegen.

Dieses kann man für die Werte an den Stellen A und D nicht beobachten. Während Lit-d6 und Lit-d7 noch relativ vergleichbare Werte aufweisen, liegen die Werte für Lit-d5 bei der Konzentration mehr als doppelt so hoch und beim Isotopenverhältnis wird auch ein knapp doppelt so hoher Wert erreicht.

Das gleiche kann man auch an der Stelle A beobachten. Die Konzentration ist hier bei Lit-a4 doppelt so hoch wie bei Lit-a3 während das Isotopenverhältnis sogar fast fünf mal so hoch ist.

Die Konzentration von Lit-f4 liegt hier relativ mittig im Vergleich zu den anderen Probennahmestellen. Allerdings ist hier das Isotopenverhältnis deutlich höher als bei den meisten anderen, nur Lit-a4 weist einen noch höheren Wert auf.

Die beiden hohen Isotopenverhältnisse (Lit-a4 und Lit-f4) sind nicht mehr eindeutig natürlichen Ursprungs, aber auch nicht hoch genug, um auf Uran aus einem Reaktor hinzudeuten.

Tabelle 5.23.: Oberflächenproben: Ergebnisse der Konzentration des ^{236}U und des Isotopenverhältnisses $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$

| Proben- nahmestelle | Proben- bezeichnung | Konzentration ^{236}U 10^9 Atome/kg | Isotopenverhältnis $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ 10^{-9} at/at |
|------------------------|------------------------|--|--|
| Spot A | Lit-a3 | $54,23 \pm 1,60$ | $25,95 \pm 3,29$ |
| Spot A | Lit-a4 | $111,09 \pm 2,09$ | $131,87 \pm 13,9$ |
| Spot B | Lit-b3 | $4,29 \pm 0,62$ | $1,30 \pm 0,20$ |
| Spot B | Lit-b4 | $5,33 \pm 0,68$ | $1,73 \pm 0,24$ |
| Spot D | Lit-d5 | $84,97 \pm 1,78$ | $11,88 \pm 0,41$ |
| Spot D | Lit-d6 | $30,77 \pm 1,12$ | $5,90 \pm 0,30$ |
| Spot D | Lit-d7 | $32,16 \pm 0,92$ | $6,31 \pm 0,33$ |
| Spot F | Lit-f4 | $56,51 \pm 1,14$ | $95,77 \pm 11,1$ |
| Spot H | Lit-h3 | $9,25 \pm 0,64$ | $3,30 \pm 0,34$ |
| Spot H | Lit-h4 | $5,54 \pm 0,56$ | $1,83 \pm 0,22$ |

5.3.3. Gammaskopmetrische Untersuchungen

In allen Proben konnte Caesium gefunden werden. Neben dem langlebigen ^{137}Cs (Halbwertszeit: 30,2 a) ist auch das relativ dazu kurzlebige ^{134}Cs mit einer Halbwertszeit von 2 Jahren noch deutlich erkennbar. In Abbildung 5.1 ist dazu ein Gammaskopmetrisches Spektrum beispielhaft für die Probe Lit-d5 dargestellt. Die verschiedenen Caesium Peaks des ^{134}Cs und des ^{137}Cs sind darin markiert.

Das ebenfalls gammastrahlende ^{241}Am , welches als Tochter des β -zerfallenden ^{241}Pu gebildet wird, ist erwartungsgemäß nicht zu identifizieren. Weiterhin liegt aufgrund der hohen Caesiumaktivität im Bereich der ^{241}Am -Linie bei 60 keV ein deutlich erhöhter Compton-Untergrund vor, wie im angeführten Spektrum zu sehen ist.

Die spezifischen Aktivitäten der Caesiumisotope sind in den folgenden Tabellen, sortiert nach der Probennahmestelle, aufgeführt. Die Aktivitäten sind dabei auf den Zeitpunkt des Unfalls (11.03.2011) zerfallskorrigiert. Die Aktivitätsverhältnisse $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ sollten zum Unfallzeitpunkt ungefähr einen Wert von 1 aufweisen [Ste14].

5. Ergebnisse

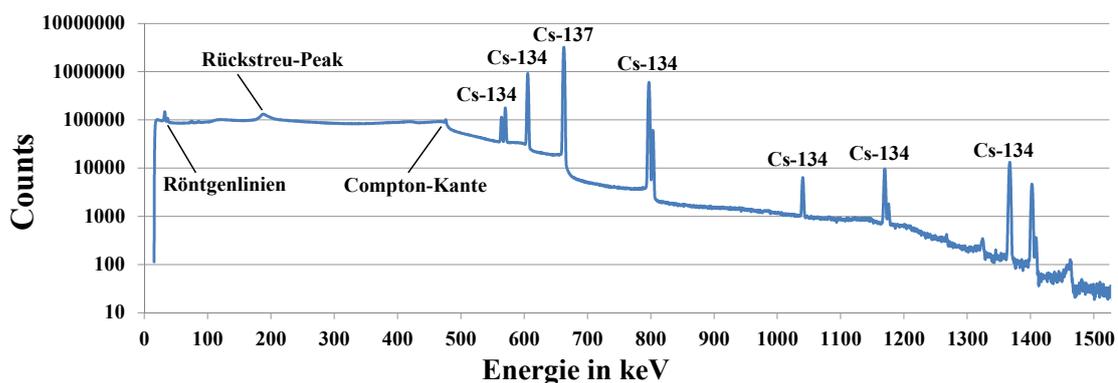


Abbildung 5.1.: Gammaspektrum der Oberflächenprobe „Lit-d5“ an der Proben-
nahmestelle D

Die spezifischen Aktivitäten von ^{137}Cs und ^{134}Cs von Spot A sowie deren Aktivitätsverhältnis sind in 5.24 tabellarisch dargestellt. Innerhalb des Bodenprofils zeigen beide Isotope erwartungsgemäß ein analoges Verhalten, was sich in den nahezu identischen Verhältnissen widerspiegelt.

Die Aktivität nimmt von der obersten Bodenschicht zur obersten Bodenprobe zunächst zu und wird im weiteren Tiefenverlauf des Bodens wieder kleiner, nur in der fünften Schicht nimmt sie wieder zu und sinkt in der letzten Schicht wieder auf ein erwartetes Niveau ab. Im Boden schwanken die Werte des Aktivitätsverhältnisses $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ rund um 0,9 und schließen im Rahmen der Unsicherheit die 1 mit ein.

Tabelle 5.24.: Spot A: Aktivitätskonzentrationen in [Bq/g] von ^{137}Cs und ^{134}Cs , zerfallskorrigiert auf den Unfallzeitpunkt, ac/ac steht für das Aktivitätsverhältnis

| Proben- bezeichnung | spez. Aktivität ^{137}Cs [Bq/g] | spez. Aktivität ^{134}Cs [Bq/g] | Verhältnis $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ ac/ac |
|------------------------|--|--|--|
| Lit-a3 | 228,05 ± 11,56 | 240,98 ± 19,11 | 1,06 ± 0,10 |
| F3-31-1" | 857,84 ± 57,98 | 777,18 ± 66,36 | 0,91 ± 0,10 |
| F3-31 2" | 59,89 ± 3,23 | 57,48 ± 4,38 | 0,91 ± 0,09 |
| F3-31 3" | 16,95 ± 0,91 | 15,55 ± 1,25 | 0,92 ± 0,09 |
| F3-31 4" | 9,59 ± 0,52 | 8,61 ± 0,69 | 0,90 ± 0,09 |
| F3-31 5" | 23,24 ± 1,24 | 21,01 ± 1,69 | 0,90 ± 0,09 |
| F3-31 6" | 6,24 ± 0,33 | 5,80 ± 0,47 | 0,93 ± 0,09 |

Tabelle 5.25 zeigt die spezifischen Aktivitäten von Spot B. Die beiden Oberflächenproben weisen nahezu die gleichen Aktivitätswerte auf. Hier nimmt die Aktivität

zur ersten Bodenschicht ab und sinkt auch im weiteren Verlauf. In den untersten Schichten konnte ^{134}Cs auch nicht mehr sicher nachgewiesen werden, hier liegt der Messwert unterhalb der Nachweisgrenze, weswegen diese als obere Grenze angegeben wurde. Auch hier liegen die Aktivitätsverhältnisse mit circa 0,9 nahezu an dem erwarteten Wert von 1.

Tabelle 5.25.: Spot B: Aktivitätskonzentrationen in [Bq/g] von ^{137}Cs und ^{134}Cs , zerfallskorrigiert auf den Unfallzeitpunkt, ac/ac steht für das Aktivitätsverhältnis

| Proben- bezeichnung | spez. Aktivität ^{137}Cs [Bq/g] | spez. Aktivität ^{134}Cs [Bq/g] | Verhältnis $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ ac/ac |
|------------------------|--|--|--|
| Lit-b3 | $7,32 \pm 0,37$ | $6,81 \pm 0,54$ | $0,93 \pm 0,09$ |
| Lit-b4 | $8,20 \pm 0,41$ | $7,56 \pm 0,60$ | $0,92 \pm 0,09$ |
| F3-05 1" | $4,16 \pm 0,21$ | $3,65 \pm 0,30$ | $0,88 \pm 0,08$ |
| F3-05 2" | $0,086 \pm 0,005$ | $0,08 \pm 0,007$ | $0,91 \pm 0,09$ |
| F3-05 3" | $0,011 \pm 0,001$ | $0,01 \pm 0,002$ | $0,93 \pm 0,16$ |
| F3-05 4" | $0,005 \pm 0,001$ | $< 0,009$ | n.b. |
| F3-05 5" | $0,003 \pm 0,0004$ | $< 0,007$ | n.b. |
| F3-05 6" | $0,003 \pm 0,001$ | $< 0,008$ | n.b. |

Auch für die spezifischen Aktivitäten im Tiefenprofil an Spot D, siehe Tabelle 5.26, zeichnet sich ein ähnlicher Verlauf wie bei Spot A ab. Von der Oberflächenprobe nimmt die Aktivität hier stark zu und sinkt im weiteren Verlauf des Bodenprofils wieder. Bereits ab der vierten Schicht herrschen in den unteren Schichten ähnliche Aktivitätskonzentrationen. Auch die Aktivitätsverhältnisse ähneln denen aus den zuvor dargestellten Tiefenprofilen.

Auch für Spot F zeichnet sich ein ähnlicher Trend wie für Spot D ab. Die Aktivität steigt zunächst wieder zur obersten Bodenschicht sehr stark an und ist hier vom Betrag her ungefähr vier mal so groß wie an Spot D und sinkt danach wieder schnell ab. Auch die Aktivitätsverhältnisse weichen hier nicht vom bisher dargestellten ab.

Die Aktivitätskonzentrationen des Caesiums an Spot H sind in Tabelle 5.28 dargestellt. Hier unterscheiden sich schon die spezifischen Aktivitäten der beiden Oberflächenproben circa um einen Faktor fünf. Innerhalb des Bodenprofils nimmt die Aktivität zur zweiten Schicht ganz leicht zu und nimmt dann im weiteren Tiefenverlauf immer weiter ab. Das Aktivitätsverhältnis liegt wieder bei circa 0,9.

Tabelle 5.26.: Spot D: Aktivitätskonzentrationen in [Bq/g] von ^{137}Cs und ^{134}Cs , zerfallskorrigiert auf den Unfallzeitpunkt, ac/ac steht für das Aktivitätsverhältnis

| Probenbezeichnung | spez. Aktivität ^{137}Cs [Bq/g] | spez. Aktivität ^{134}Cs [Bq/g] | Verhältnis $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ ac/ac |
|-------------------|--|--|--|
| Lit-d5 | 333,73 ± 16,95 | 362,84 ± 28,78 | 1,09 ± 0,1 |
| F3-03 1" | 1154,53 ± 71,02 | 1043,60 ± 38,26 | 0,90 ± 0,06 |
| F3-03 2" | 194,95 ± 10,40 | 178,87 ± 14,34 | 0,92 ± 0,09 |
| F3-03 3" | 19,78 ± 1,05 | 18,17 ± 1,46 | 0,92 ± 0,09 |
| F3-03 4" | 3,80 ± 0,20 | 3,45 ± 0,28 | 0,91 ± 0,09 |
| F3-03 5" | 3,25 ± 0,17 | 2,97 ± 0,24 | 0,91 ± 0,09 |
| F3-03 6" | 3,68 ± 0,20 | 3,41 ± 0,27 | 0,93 ± 0,09 |

Tabelle 5.27.: Spot F: Aktivitätskonzentrationen in [Bq/g] von ^{137}Cs und ^{134}Cs , zerfallskorrigiert auf den Unfallzeitpunkt, ac/ac steht für das Aktivitätsverhältnis

| Probenbezeichnung | spez. Aktivität ^{137}Cs [Bq/g] | spez. Aktivität ^{134}Cs [Bq/g] | Verhältnis $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ ac/ac |
|-------------------|--|--|--|
| Lit-f3 | 531,13 ± 26,92 | 579,05 ± 45,92 | 1,09 ± 0,1 |
| F3-19 1" | 4462,95 ± 469,91 | 4003,18 ± 411,17 | 0,90 ± 0,13 |
| F3-19 2" | 363,62 ± 21,47 | 331,25 ± 27,22 | 0,91 ± 0,09 |
| F3-19 3" | 47,79 ± 2,53 | 44,99 ± 3,61 | 0,94 ± 0,09 |
| F3-19 4" | 21,90 ± 1,21 | 19,87 ± 1,61 | 0,91 ± 0,09 |
| F3-19 5" | 15,16 ± 0,83 | 14,13 ± 1,14 | 0,93 ± 0,09 |
| F3-19 6" | 5,48 ± 0,29 | 5,03 ± 0,40 | 0,92 ± 0,09 |

Tabelle 5.28.: Spot H: Aktivitätskonzentrationen in [Bq/g] von ^{137}Cs und ^{134}Cs , zerfallskorrigiert auf den Unfallzeitpunkt, ac/ac steht für das Aktivitätsverhältnis

| Proben- bezeichnung | spez. Aktivität ^{137}Cs [Bq/g] | spez. Aktivität ^{134}Cs [Bq/g] | Verhältnis $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ ac/ac |
|------------------------|--|--|--|
| Lit-h3 | $30,89 \pm 1,56$ | $29,20 \pm 2,32$ | $0,95 \pm 0,09$ |
| Lit-h4 | $5,94 \pm 0,30$ | $5,76 \pm 0,46$ | $0,97 \pm 0,09$ |
| F3-21 1" | $13,55 \pm 0,96$ | $11,84 \pm 1,03$ | $0,87 \pm 0,10$ |
| F3-21 2" | $16,97 \pm 0,92$ | $15,35 \pm 1,24$ | $0,90 \pm 0,09$ |
| F3-21 3" | $6,79 \pm 0,36$ | $6,13 \pm 0,49$ | $0,90 \pm 0,09$ |
| F3-21 4" | $1,21 \pm 0,06$ | $1,11 \pm 0,09$ | $0,92 \pm 0,09$ |
| F3-21 5" | $0,36 \pm 0,02$ | $0,33 \pm 0,03$ | $0,92 \pm 0,09$ |
| F3-21 6" | $0,18 \pm 0,01$ | $0,17 \pm 0,01$ | $0,93 \pm 0,09$ |

5.4. Vergleichswerte aus Tschernobyl

Den Proben aus Fukushima sollen zum Vergleich Proben aus Tschernobyl gegenüber gestellt werden. Hierzu wurden zwei Bodenprofile aus der Stadt Prypjat, welche in unmittelbarer Nähe zum zerstörten Kernkraftwerk Tschernobyl liegt, untersucht. Die Entfernung des Probenahmeortes zum havarierten Reaktorblock 4 beträgt in etwa 3,5 km Luftlinie. Die Proben wurden in etwa 50 cm Abstand zueinander in analoger Weise wie die Proben aus Fukushima genommen (siehe Abschnitt 3.1). Die Bohrkerne von 30 cm Tiefe wurden in zehn Schichten unterteilt.

Die Proben wurden nach demselben Vorgehen gammaspektrometrisch untersucht. Auch die Aufarbeitung zur Plutonium-Bestimmung erfolgte analog. Allerdings wurde zur Messung die Alphaspektrometrie anstatt der AMS genutzt. Die spezifischen Aktivitäten von ^{137}Cs und ^{241}Am wurden mittels Gammaskpektrometrie und die von $^{239+240}\text{Pu}$ und ^{238}Pu mittels Alphaspektrometrie bestimmt. Die Bearbeitung der Proben erfolgte durch Herrn Peter Brozynski in seiner, im Rahmen dieser Arbeit betreuten, Masterarbeit [Bro16]. Die Darstellung der Ergebnisse beschränkt sich hier auf das für den Vergleich notwendige. Detaillierte Ausführungen können der Masterarbeit [Bro16] sowie [Wal16] entnommen werden.

Die Ergebnisse der Bohrkerne „Prypjat-3“ und „Prypjat-4“ sind in den Abbildungen 5.2 und 5.3 graphisch dargestellt.

Die generellen Aktivitätsverläufe ähneln sich für beide Bohrkerne. Die Caesium- und Americium-Verläufe sind prinzipiell recht ähnlich und weisen für beide Bohrkerne in der Tiefe von 6 - 9 cm ein lokales Maximum auf. Die Aktivität nimmt im weiteren

5. Ergebnisse

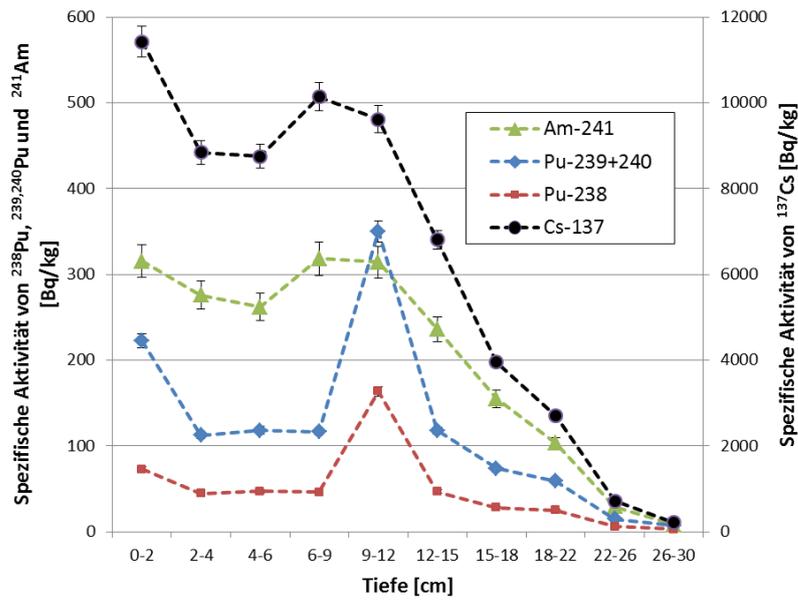


Abbildung 5.2.: Bohrkern Prypjat-3: Spezifische Aktivität von ^{137}Cs , ^{241}Am , $^{239+240}\text{Pu}$ und ^{238}Pu , aus [Bro16]

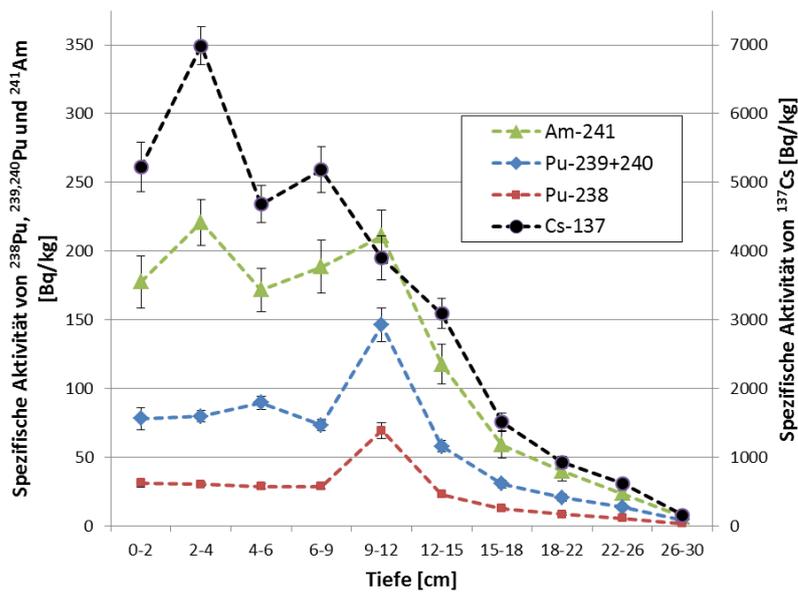


Abbildung 5.3.: Bohrkern Prypjat-4: Spezifische Aktivität von ^{137}Cs , ^{241}Am , $^{239+240}\text{Pu}$ und ^{238}Pu , aus [Bro16]

Verlauf ab. Auch die Aktivitätsverläufe der Plutoniumisotope sind relativ ähnlich zwischen den einzelnen Bohrkernen. In beiden Profilen gibt es in der Schicht von 9 - 12 cm einen starken Anstieg in der Aktivität auf mehr als das Doppelte als im Vergleich zur vorherigen Schicht. Danach sinkt auch im Plutonium die Aktivität kontinuierlich ab. Nur in den obersten zwei Schichten weichen die Verläufe der beiden Bohrkern am meisten voneinander ab. In Prypjat-3 ist in der ersten Schicht die höchste Aktivität ermittelt worden, während in Prypjat 4 das Hauptmaximum der Aktivität in der zweiten Schicht liegt. Auch ist die Gesamtaktivität in Prypjat-3 fast doppelt so hoch wie in Prypjat-4, dieses gilt für alle gemessenen Nuklide.

In Abbildung 5.4 sind die Aktivitätsverhältnisse $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ der einzelnen Schichten beider Bohrkern graphisch dargestellt. Auch dieses Verhältnis kann zur Identifizierung der Quelle herangezogen werden. In den unteren Schichten sind die Verhältnisse relativ konstant und liegen in etwa in einem Bereich von 0,4, welches einem typischen Wert dieses Verhältnisses für Tschernobyl entspricht. Der starke Aktivitätsanstieg in der Schicht 9 - 12 cm macht sich auch bei den Verhältnissen bemerkbar, hier steigt das Verhältnis auf 0,47 - 0,48 an. In den oberen Schichten kommt es ebenfalls zu ein paar Abweichungen vom Wert 0,4. In Prypjat-3 liegt das Aktivitätsverhältnis in der ersten Schicht unter 0,35. Dieses tritt auch bei Prypjat-4 in der dritten Schicht auf.

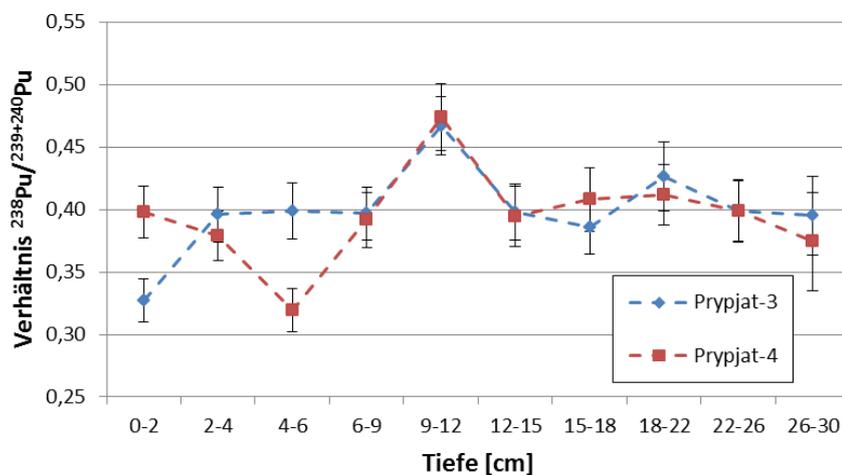


Abbildung 5.4.: Aktivitätsverhältnis $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ beider Bohrkern, aus [Bro16]

6. Diskussion

In diesem Kapitel werden die vorgestellten Ergebnisse zunächst innerhalb der verschiedenen Probennahmekampagnen und anschließend miteinander verglichen und diskutiert. Weiterhin werden die Fukushima-Ergebnisse den Ergebnissen aus Tschernobyl gegenübergestellt, um die sich darin widerspiegelnden Parallelen und Unterschiede im Unfallhergang zu betrachten. Zum Schluss werden die Fukushima-Daten mit Ergebnissen aus anderen Untersuchungen verglichen und eingeordnet.

6.1. Diskussion der Proben aus 2013

6.1.1. Plutonium

In Abbildung 6.1 sind die ermittelten Isotopenverhältnisse $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ aller Proben aus 2013 als Tiefenprofil dargestellt, allerdings aus Gründen der Übersichtlichkeit ohne Unsicherheiten. Anhand dieser Grafik sieht man deutlich, dass sich die meisten Werte im Bereich des globalen Fallouts befinden, die Verhältnisse in den meisten Profilen relativ konstant verlaufen und sich hauptsächlich in den oberen Schichten die größten Verhältnisse befinden. Eine Ausnahme bildet hier das Profil an Spot H, in dem sich in der dritten Schicht des Bodenprofils ein plötzlicher Anstieg des Verhältnisses zeigt.

In Abbildung 6.2 sind die spezifischen Aktivitäten in analoger Weise dargestellt. In der Regel verlaufen die spezifischen Aktivitäten in die Tiefe relativ konstant. Nur in Spot F bildet sich in den obersten Bodenschichten ein deutlicher Peak aus, während in der Bewuchs- und Oberflächenprobe keine Erhöhung festzustellen ist. Im weiteren Verlauf sinken die Aktivitätskonzentrationen wieder in den Bereich der übrigen Werte. Auch in Spot E und D wurden durchgehend leicht höhere Werte ermittelt.

Zwischen den Tiefenverläufen der spezifischen Aktivität und des Isotopenverhältnisses ist keine Korrelation erkennbar. Proben mit hohen Verhältnissen zeigen nur unauffällig niedrige spezifische Aktivitäten. Um zu überprüfen, ob sich in dieser

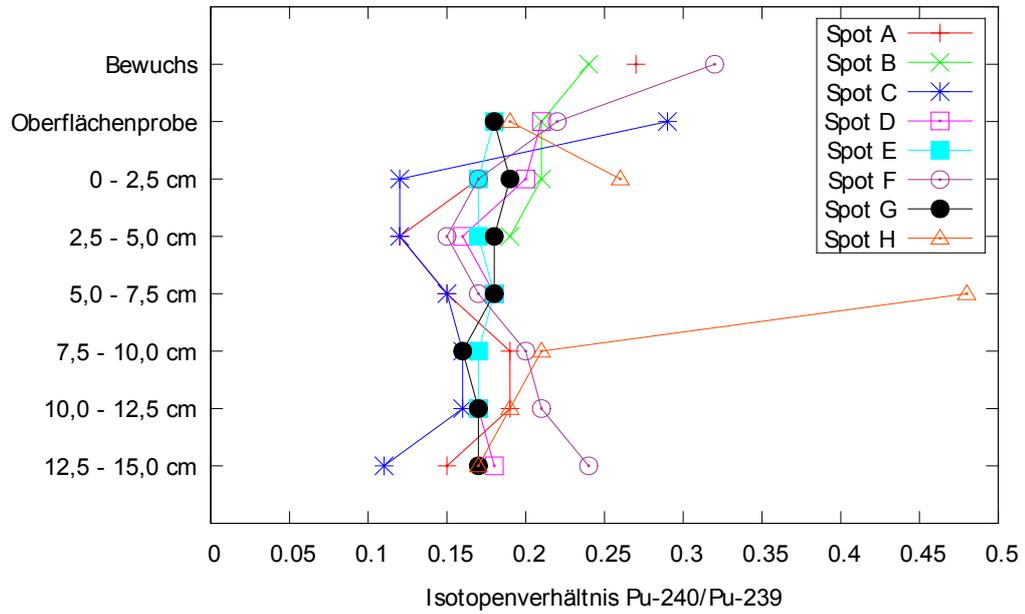


Abbildung 6.1.: Tiefenprofil des Isotopenverhältnisses $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ für alle Probenahmestellen aus 2013

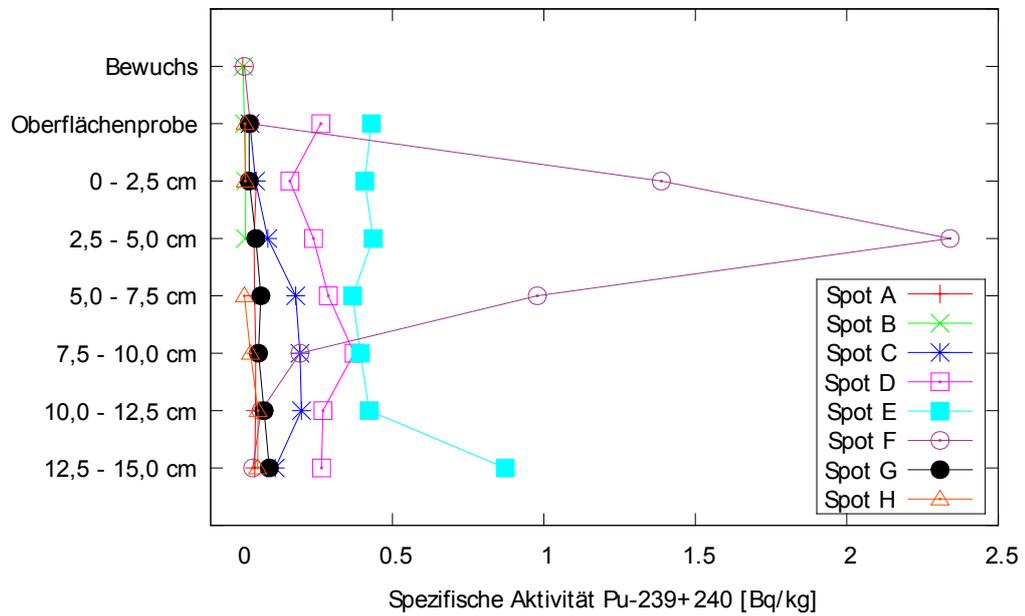


Abbildung 6.2.: Tiefenprofil der spezifischen Aktivität $^{239+240}\text{Pu}$ für alle Probenahmestellen aus 2013

Beziehung ein Trend abzeichnet, wurde in Abbildung 6.3 das Isotopenverhältnis $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ gegen die spezifische Aktivität aufgetragen. Man erkennt daran zwar, dass sich die höchsten Aktivitäten eher bei niedrigen Isotopenverhältnissen befinden und dass tatsächlich die höheren Isotopenverhältnisse immer eine kleine Aktivität aufweisen. Hingegen ist ein Trend nicht zu erkennen.

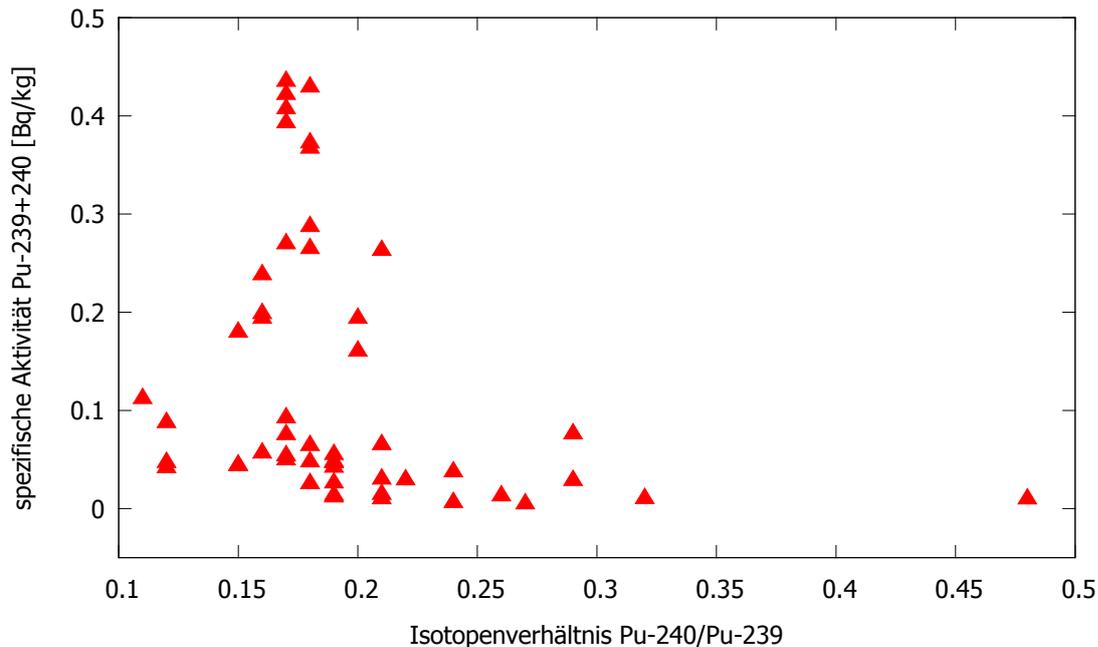


Abbildung 6.3.: Spezifische Aktivität $^{239+240}\text{Pu}$ aufgetragen gegen das Isotopenverhältnis $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ aller Proben aus 2013

Zusammenfassend zeigen die meisten Proben Isotopenverhältnisse im Bereich des globalen Fallouts. Speziell in den Bodenproben konnten nur an Spot H (am nicht havarierten Kernkraftwerk Fukushima Dai-ni) auffällige Werte erzielt werden. Die Isotopenverhältnisse, die nicht klar für eine Kontamination aus dem globalen Fallout sprechen, sind in Tabelle 6.1 noch einmal zusammengefasst.

Das Isotopenverhältnis für Lit-c2 hat einen deutlich erhöhten Wert, der mit Reaktorplutonium im Einklang steht. Allerdings erlaubt die hohe Unsicherheit keine eindeutige Aussage. In diesem Fall würde man eher davon ausgehen, dass es sich um eine Mischung des Plutoniums aus dem globalen Fallout handelt mit welchem, das aus dem Kernkraftwerk stammt. Die meisten anderen Oberflächenproben weisen Isotopenverhältnisse auf, die auf globalen Fallout hindeuten. Bei Lit-d4 handelt es sich um eine Probe die während der Probennahme durch ihre hohe Ortsdosisleistung

Tabelle 6.1.: Zusammenfassung der erhöhten Isotopenverhältnisse des Plutoniums der Proben aus 2013

| | Proben- bezeichnung | Isotopenverhältnis $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ at/at | Proben- nahmestelle |
|-----------------------------|--------------------------------|---|--------------------------------|
| Oberflächenprobe Bewuchs | Lit-c2 | $0,29 \pm 0,036$ | Spot C |
| | Lit-d4 | $0,29 \pm 0,015$ | Spot D |
| | Veg-f2 | $0,32 \pm 0,051$ | Spot F |
| Boden | F1-31 1" | $0,26 \pm 0,087$ | Spot H |
| | F1-31 3" | $0,48 \pm 0,151$ | |

aufgefallen ist. Auch das Isotopenverhältnis ist hier erhöht und deutet klar auf eine Kontamination aus dem Reaktor hin. Veg-f2 ist eine der wenigen Bewuchsproben, bei denen das Isotopenverhältnis bestimmt werden konnte. Obwohl das ermittelte Verhältnis ebenfalls eine hohe Unsicherheit aufweist, was an der vergleichsweise geringen Probenmenge liegt, erkennt man in dieser Bewuchsprobe deutlich eine Kontamination durch Reaktorplutonium.

Das Bodenprofil von Spot H verdient eine besondere Aufmerksamkeit. Hier hat sich in der obersten Bodenschicht ein hoher Wert für das Isotopenverhältnis ergeben. Dieser deutet auf eine Mischung hin, ist aber aufgrund der hohen Unsicherheit nicht klar vom globalen Fallout abzugrenzen. Für die zweite Schicht konnte kein Wert ermittelt werden, da hier eine zu geringe Zählrate im ^{240}Pu Signal vorlag. Dies deutet auf eine sehr geringe spezifische Aktivität hin. Für die dritte Bodenschicht wurde der höchste Wert des Isotopenverhältnisses aller untersuchten Proben ermittelt. Trotz sehr hoher Unsicherheit ist das Verhältnis als stark erhöht anzusehen. Dies deutet auf eine Kontamination aus dem Reaktor hin. Hier ist es interessant, wie stark das Isotopenverhältnis zwischen den einzelnen Schichten schwankt. Die spezifische Aktivität bleibt allerdings nahezu konstant. Dies verdeutlicht noch mal die fehlende Korrelation der spezifischen Aktivität mit dem Isotopenverhältnis. Ein gelöster oder reiner Porentransport des Plutoniums in die 5 - 7,5 cm Bodenschicht innerhalb von zwei Jahren erscheint äußerst unwahrscheinlich. Die starken Schwankungen und die Tiefe im Boden lassen vermuten, dass es sich hier um ein kleines Partikel aus dem Reaktor handeln könnte, welches zum Beispiel durch Tiere im Boden nach unten getragen wurde.

Allerdings ist dieser Wert auch für Plutonium aus dem Reaktor von Fukushima sehr hoch. Die höchsten Werte dieses Verhältnisses wurden für das Material in den Brennelementlagerbecken ermittelt, siehe dafür Tabelle 6.3. Selbst für diese ist der Wert immer noch hoch, sodass auch andere Quellen nicht ausgeschlossen werden sollten.

Keine der ermittelten spezifischen Aktivitäten sind auffällig erhöht, wobei diese zunimmt je weiter man sich dem Reaktor nähert. Dennoch liegen alle Werte innerhalb des Bereichs, wie er bereits vor dem Unfall in Japan vorzufinden war (bis zu 4,31 Bq/kg [Zhe13]). In Kombination mit den erhöhten Isotopenverhältnissen lässt dies auf eine Freisetzung des Plutoniums in partikulärer Form hindeuten, welches so ausgetragen wurde, dass das Isotopenverhältnis erhöht, aber die Gesamtaktivität in den Proben kaum beeinflusst wurde.

6.1.2. Uran

Die Tiefenverläufe der Konzentration und des Isotopenverhältnisses für alle Beprobungsorte sind in den Abbildungen 6.5 und 6.4 graphisch dargestellt.

Hier erkennt man sehr gut, dass die Isotopenverhältnisse in der Tiefe weitgehend konstant sind. Es gibt kleinere Anstiege, wie in der vierten Bodenschicht, die aber nur wenig ausgeprägt sind. Eine deutliche Abweichung zeigt sich dagegen in den Proben von Spot B und Spot F. In Spot F ist in den oberen Bodenschichten im Vergleich ein deutlich höheres Verhältnis zu beobachten, dass danach wieder absinkt. In Spot B ist das höchste Isotopenverhältnis ermittelt worden, welches sich bis zu zwei Größenordnungen von den übrigen Verhältnissen unterscheidet.

Für die Konzentration des ^{236}U in den untersuchten Proben ist auffällig, dass sich hier keine gleichmäßige Verteilung zeigt. Gerade in den unteren Bodenschichten steigt die Konzentration in einzelnen Schichten abrupt an, welches in vielen Fällen auch die Schicht mit der höchsten Konzentration im Profil darstellt. Dies ist in den Probennahmestellen, die näher am Unfallort lagen (Spot D, E und F), anders. Hier wurden die höchsten Konzentrationen in den obersten Bodenschichten ermittelt. Auch hier ist die dritte Bodenschicht von Spot B besonders auffällig, da sie neben dem höchsten Isotopenverhältnis auch die höchste Konzentration aller gemessenen Proben aufweist. Allerdings ist die Konzentration des ^{236}U auch in der zweiten Bodenschicht von Spot F vergleichbar hoch, hier äußert sich das allerdings nicht in einem vergleichbar hohen Verhältnis zum ^{238}U . Dies macht deutlich, dass eine hohe Konzentration allein nicht aussagekräftig genug ist, um über das Vorliegen einer Kontamination aus dem Unfall urteilen zu können. Insgesamt fällt auf, dass sich, im Gegensatz zum Plutonium, die Tiefenverläufe der ^{236}U -Konzentration mit denen des Isotopenverhältnisses relativ ähnlich verhalten.

Ein natürliches Isotopenverhältnis von $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ kann in der Größenordnung bis zu 10^{-9} oder kleiner liegen. In dieser Arbeit wurden hauptsächlich Verhältnisse in diesem Bereich gefunden. Deutliche Ausnahmen liegen für Spot F und B vor. In Spot F liegt das Isotopenverhältnis in den obersten Bodenschichten in einem Größenbereich

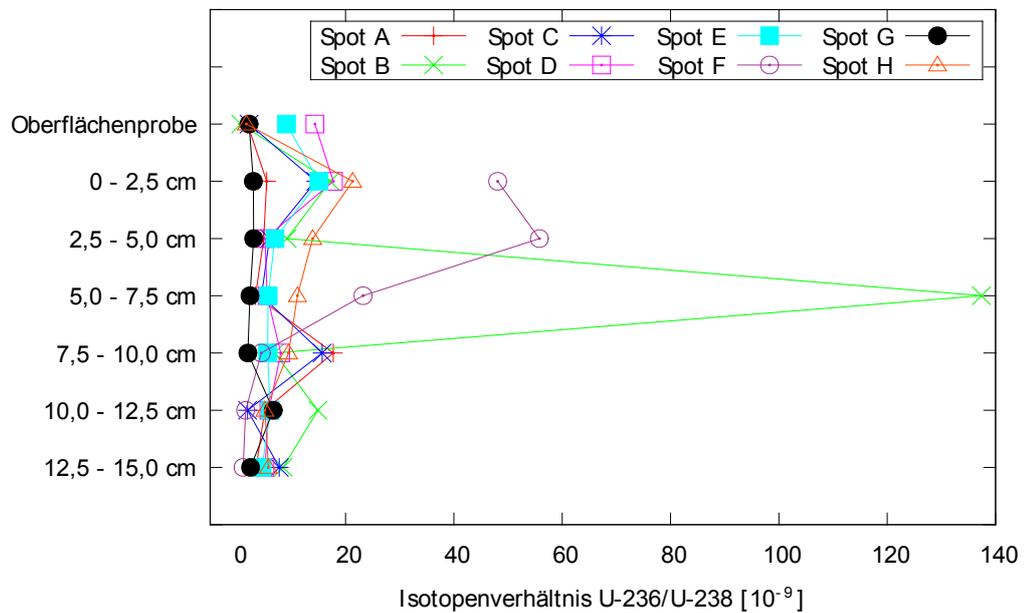


Abbildung 6.4.: Isotopenverhältnis $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ in 10^{-9} als Tiefenprofil aller Proben aus 2013

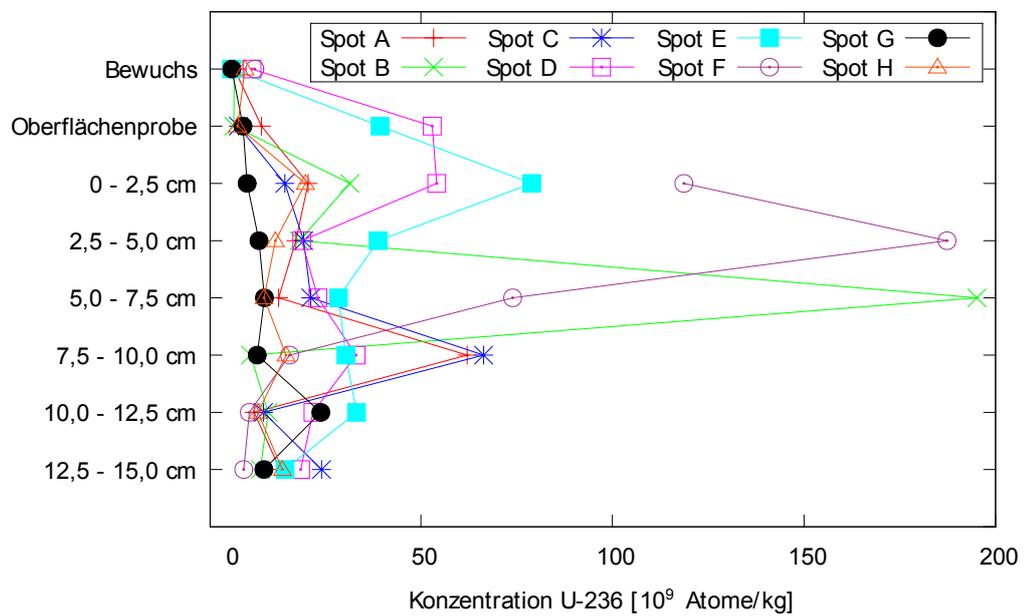


Abbildung 6.5.: Konzentration ^{236}U in 10^9 Atome/kg als Tiefenprofil aller Proben aus 2013

von 10^{-8} und in Spot B steigt das Verhältnis sogar um eine weitere Größenordnung an. Üblicherweise spricht man ab einem Isotopenverhältnis $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ von 10^{-7} von einem anthropogenen Einfluss. Dies wäre demnach für die dritte Bodenschicht von Spot B der Fall. Besonders auffällig ist in diesem Bodenprofil der abrupte Anstieg in dieser Schicht im Vergleich zu der zweiten und der vierten, in denen sich das Verhältnis wieder in einem natürlichen Bereich befindet.

Auch hier könnte man von einer Kontamination mit ^{236}U aus dem Reaktor sprechen. Der Anstieg in der dritten Schicht lässt vermuten, dass es sich hier ebenfalls um ein Partikel handeln könnte, welches zum Beispiel durch Kriechtiere im Boden in diese Schicht transportiert worden ist. Auch für Uran ist ein Transport im Boden in gelöster Form äußerst unwahrscheinlich.

In Spot F ist weiterhin auffällig, dass nicht nur die Urankonzentration in der zweiten Schicht maximal ist, sondern die spezifische Aktivität des Plutoniums den gleichen Verlauf aufweist. Was darauf hindeutet, dass hier zwischen Uran und Plutonium eine Korrelation bestehen könnte.

6.2. Diskussion der Proben aus 2015

6.2.1. Plutonium

In Abbildung 6.6 sind die ermittelten Isotopenverhältnisse $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ der Proben aus 2015 graphisch dargestellt. Die Isotopenverhältnisse sind weitgehend konstant und schwanken nur geringfügig um 0,18, was einer Kontamination durch globalen Fallout entspricht. Spot B fällt aus dieser Schematik deutlich heraus. Die oberen Bodenschichten weisen relativ hohe Isotopenverhältnisse auf und verlaufen quasi konstant, während es in der vierten und fünften Schicht zu einem Bruch kommt, da für diese Schichten kein Wert oder nur eine obere Grenze für das Verhältnis gebildet werden konnte. In der untersten Schicht kann man dagegen wieder von globalem Fallout sprechen.

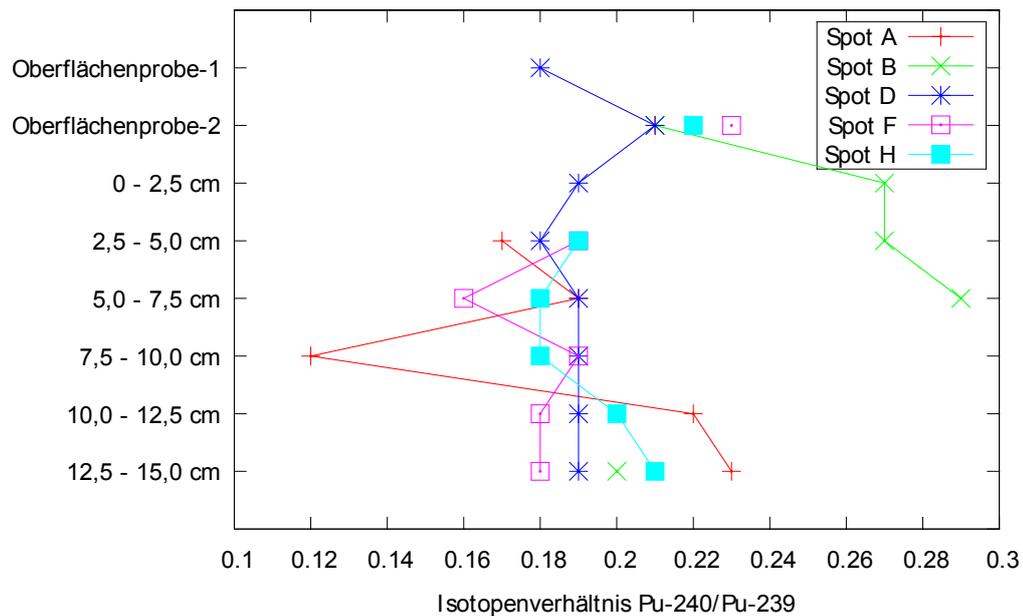


Abbildung 6.6.: Tiefenprofil des Isotopenverhältnisses $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ der Proben aus 2015

6.2.2. Uran

Für alle gemessenen Oberflächen- und Bodenproben ist das Isotopenverhältnis $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ in Abbildung 6.7 und die Konzentration des ^{236}U in Abbildung 6.8 dargestellt.

Bei den gemessenen Bodenproben konnten erhöhte Werte des ^{236}U weder in der Konzentration, noch in dem Isotopenverhältnis ermittelt werden. Dagegen konnten bei den Oberflächenproben von Spot A und F erhöhte Isotopenverhältnisse von $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ im Bereich von 10^{-7} ermittelt werden, welche deutlich über denen der restlichen Oberflächenproben liegen, die natürliche Verhältnisse aufweisen. Obwohl die Isotopenverhältnisse beide im gleichen Bereich liegen, unterscheiden sich die jeweiligen Konzentrationen des ^{236}U deutlich voneinander.

An Spot A fällt weiterhin auf, dass sich sowohl die Konzentration als auch das Verhältnis beider Oberflächenproben stark voneinander unterscheidet, obwohl sie in wenigen cm Abstand genommen wurden.

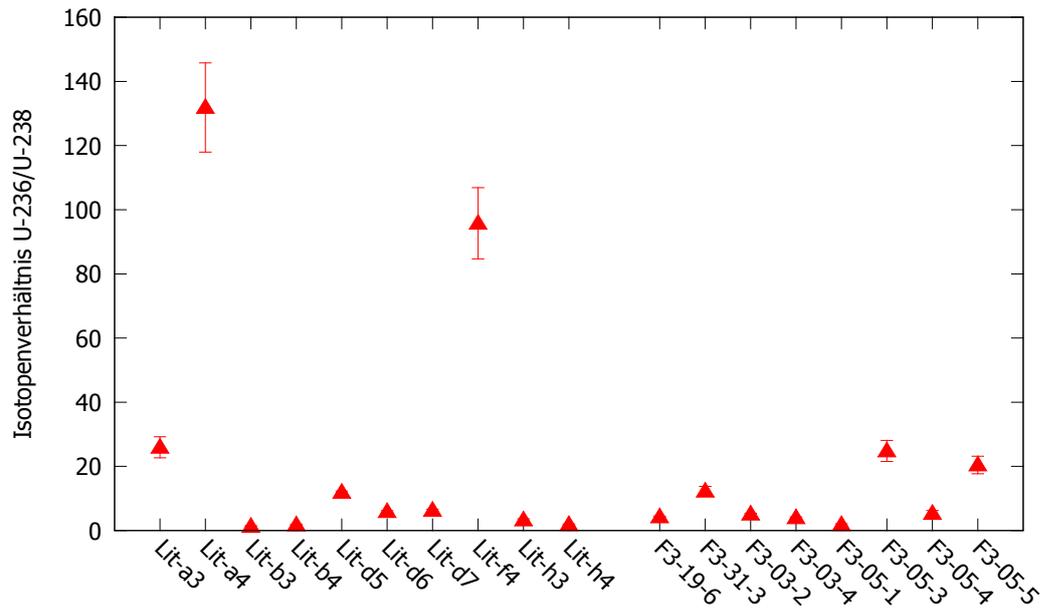


Abbildung 6.7.: $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ -Isotopenverhältnis der Oberflächen- und Bodenproben aus 2015

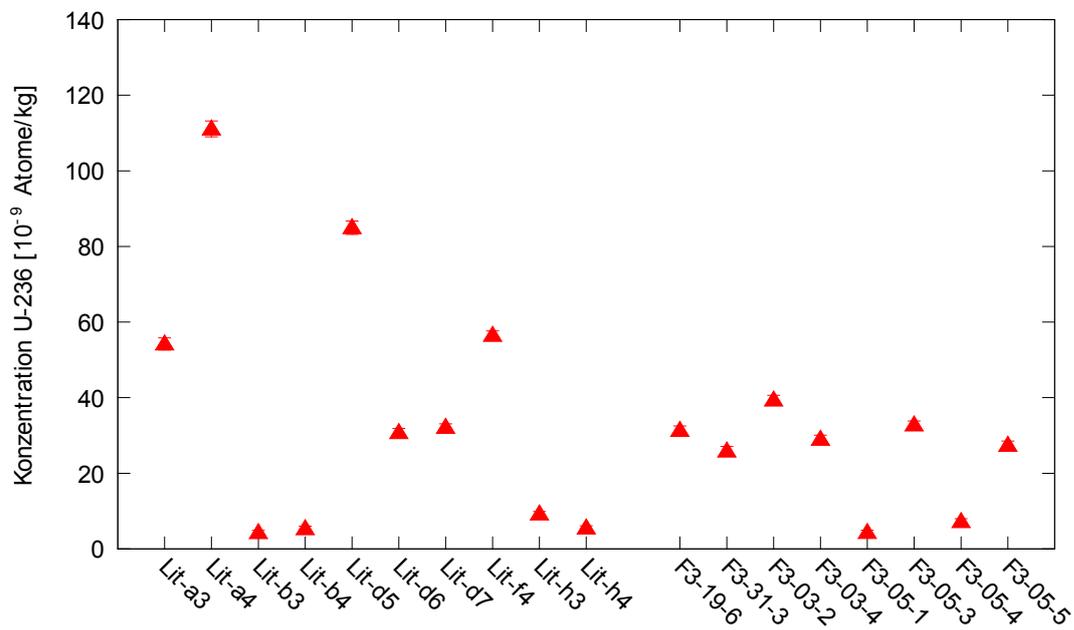


Abbildung 6.8.: ^{236}U -Konzentration in Atome/kg der Oberflächen- und Bodenproben aus 2015

6.2.3. Caesium

Die Werte der spezifischen Aktivität des ^{137}Cs sind in den Abbildungen 6.9 und 6.10 als Tiefenprofil dargestellt. Auf die Darstellung des ^{134}Cs wurde hier verzichtet, da sich die Werte beider Isotope gleich verhalten und vom Betrag fast identisch sind, wie anhand der Verhältnisse bereits gezeigt wurde. Die Tiefenprofile wurden nicht in einer Abbildung dargestellt, da die Aktivitäten an den Probennahmestellen Spot B und H um einen Faktor 100 geringer liegen als bei den restlichen Probennahmeorten. Der generelle Verlauf der spezifischen Aktivität an den Stellen A, D und F (Abb. 6.9) ist praktisch identisch. Die höchste Aktivität ist in der obersten Bodenschicht zu finden. In den weiteren Bodenschichten nimmt diese immer weiter ab.

Spot B und H unterscheiden sich nicht nur in den Aktivitätsniveaus von den übrigen Proben, auch die Aktivitätsverläufe weichen deutlich ab, siehe Abbildung 6.10. Die Hauptaktivität liegt noch in der Oberflächenprobe. Hier ist auffällig, dass die beiden Oberflächenproben bei Spot H unterschiedlich stark kontaminiert sind. Diese Beobachtung unterstreicht, dass nur Stichproben genommen wurden und es lokal nicht nur bei den schwerflüchtigen Nukliden, sondern auch bei den leichtflüchtigen Nukliden wie Caesium zu größeren Unterschieden kommen kann. Während bei Spot B die Aktivität im Boden rasch abfällt, ist in Spot H in der zweiten Bodenschicht noch ein lokales Maximum zu erkennen. Vom Betrag her sind in diesen beiden Proben die kleinsten Aktivitäten ermittelt worden.

Vier Jahre nach dem Unfall liegt die Hauptaktivität des Caesiums in der obersten Bodenschicht vor. Den größten Einfluss des Caesiums erkennt man bei Spot F, also direkt am Kraftwerksgelände und an den Probennahmestellen A und D. Spot D liegt nur wenige Kilometer vom Gelände des Kernkraftwerks entfernt und Spot A in nordwestlicher Richtung dazu, also entlang des Pfades, an dem die Hauptaktivität kurz nach dem Unfall durch die vorherrschenden Wetterlagen getragen wurde. Spot B liegt dagegen deutlich nördlicher und Spot H in südlicher Richtung. Erwartungsgemäß ist hier die Aktivität kleiner.

Die Aktivitätsverhältnisse des $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ lagen erstaunlicherweise für fast alle Proben bei 0,9 und nicht beim erwarteten Sollwert von 1. Dagegen ist auffällig, dass die ermittelten Verhältnisse der Oberflächenproben an den Stellen mit der größten Aktivität (Spot A, D und F) mit 1,1 einen genau gegenteiligen Trend aufweisen. Der Wert 1 wird von nahezu allen Proben im Rahmen ihrer Unsicherheit mit einbezogen. Dennoch ist hier eine systematische Abweichung vom Sollwert erkennbar. Es ist allerdings nicht davon auszugehen, dass es hier zu einem zusätzlichen Eintrag des ^{137}Cs aus dem globalen Fallout gekommen ist, welcher zudem im Vergleich zu den hier ermittelten Aktivitäten vernachlässigbar klein wäre.

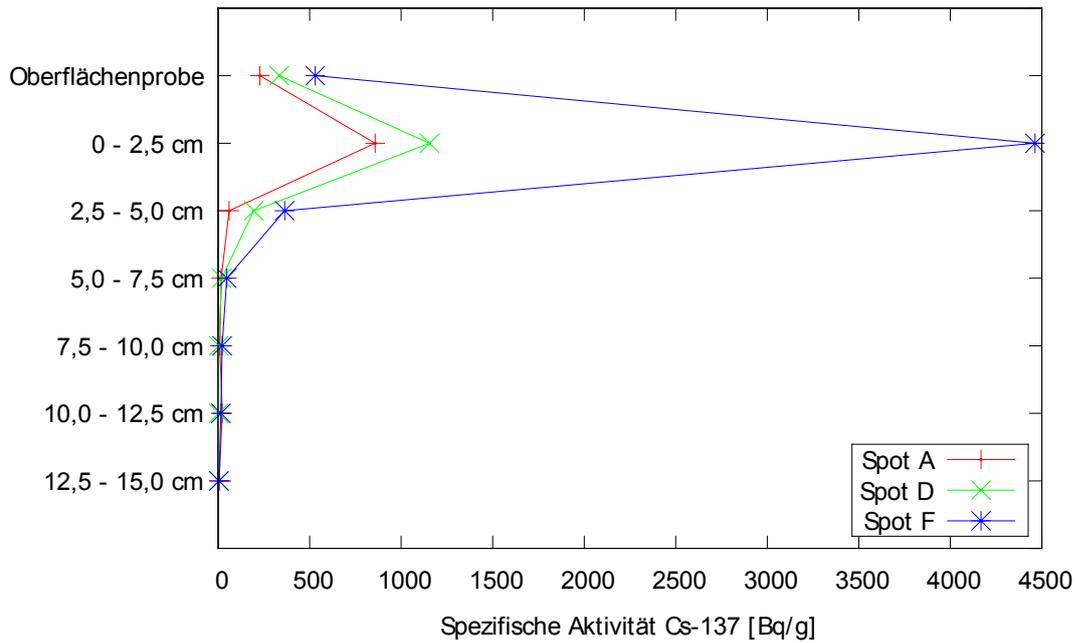


Abbildung 6.9.: Spezifische Aktivität in Bq/g des ^{137}Cs als Tiefenprofil der Probenahmestellen A, D und F

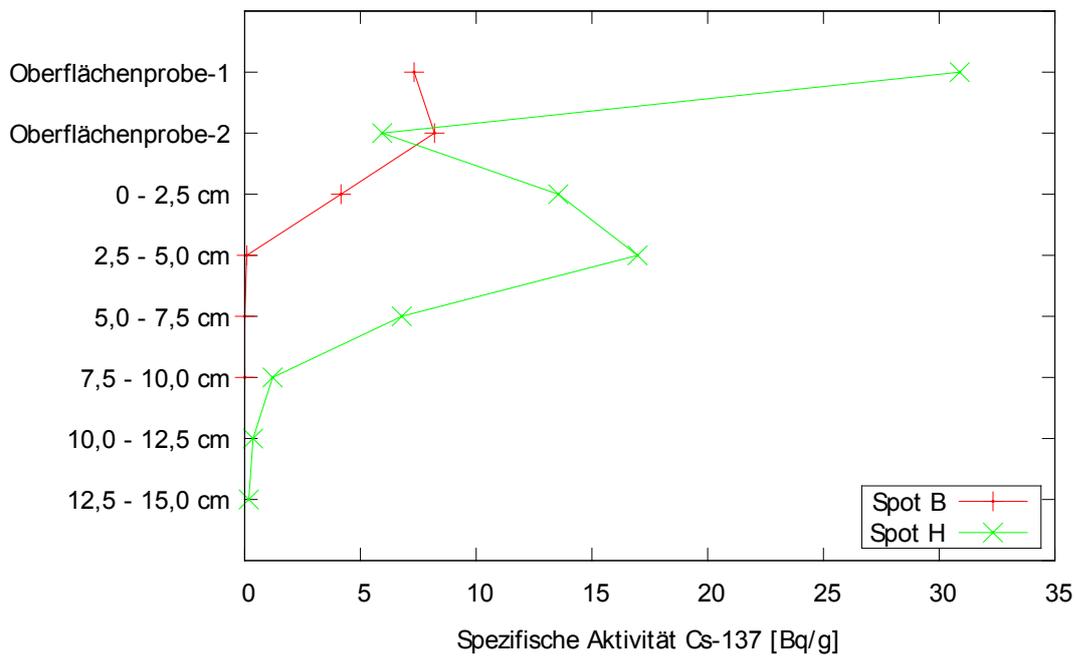


Abbildung 6.10.: Spezifische Aktivität in Bq/g des ^{137}Cs als Tiefenprofil der Probenahmestellen B und H

6.3. Vergleich von 2013 mit 2015

Es wurde versucht, 2015 näherungsweise an den gleichen Stellen zu beproben wie 2013. Der Vergleich beider Probennahmen ist daher naheliegend, wobei zu bedenken ist, dass es sich um Stichproben handelt.

In den Proben beider Jahre hat sich gezeigt, dass 2011 Plutonium aus dem Reaktor freigesetzt wurde und sehr lokalisiert vorliegt. Jedoch in den meisten Proben, besonders in den Bodenproben, konnte in beiden Jahren hauptsächlich Plutonium aus dem globalen Fallout ermittelt werden. Dass sich Plutonium aus Fukushima hauptsächlich in den Oberflächenproben oder Bewuchsproben befindet, konnte 2015 im Gegensatz zu 2013 nicht gezeigt werden. Gerade das hohe Isotopenverhältnis bei Spot H aus 2013 hat sich in dem Bodenprofil von 2015 nicht wiederholt, was für das Vorkommen eines Partikels sprechen würde.

Bei Uran wurden die höchsten Isotopenverhältnisse aus 2015 in den Oberflächenproben ermittelt und nicht wie in 2013 in den Bodenproben. Die Vergleichsmöglichkeiten sind aufgrund der geringen Probenzahl stark eingeschränkt. Glücklicherweise konnten die meisten Bodenschichten von Spot B untersucht werden, welches der auffälligste Bohrkern aus der Probennahmekampagne aus 2013 war. Das hohe Isotopenverhältnis in der dritten Schicht hat sich 2015 nicht wiederholt. Die Konzentration und das Verhältnis in den übrigen Schichten liegt in beiden Jahren etwa im gleichen Bereich.

Die beobachteten Ergebnisse des Caesiums entsprechen den Erwartungen, was die Höhe der Aktivität entlang der Ausbreitungstrajektorien betrifft. Plutonium und Uran zeigen da ein anderes Verhalten. Dies lässt auf unterschiedliche Austragungswege aus dem Reaktor schließen.

6.4. Diskussion der Proben aus Tschernobyl

Der Großteil der Caesiumaktivität ist in den Tschernobylproben innerhalb der ersten 25 cm zu finden.

In beiden Bohrkernen wurde die maximale Plutoniumaktivität in der „9 - 12 cm-Schicht“ ermittelt. In dem Bohrkern Prypjat-4 zeigt auch das Americium einen Anstieg in dieser Schicht, dieser konnte bei Prypjat-3 nicht beobachtet werden. Für die Plutoniumuntersuchung von Prypjat-4 wurde das Probenmaterial aus der Gammauntersuchung verwendet. Dies war bei Prypjat-3 nicht der Fall, da genügend Material zur Verfügung stand, um beide Untersuchungen parallel laufen zu lassen. Daher wurde das Material aus der Gammaprobe für diese Schicht auch

auf Plutonium untersucht. In dieser Teilprobe ergaben sich Aktivitäten die um den Faktor 2 kleiner waren. Auch das Aktivitätsverhältnis ergab in der zweiten Untersuchung einen Wert von 0,39, was auch besser zum restlichen Verlauf passt. Dies spricht dafür, dass das Plutonium sehr inhomogen in der Probe vorliegt. Da das Material vorher homogenisiert wurde, spricht dies für die Anwesenheit eines Brennstoffpartikels. Von dem homogenisierten Material dieser Probe wurden 27 g für das Gammapräparat verwendet und nur 10 g für das Alphapräparat. Dies bedeutet, dass der Großteil der Plutoniumaktivität in einem Viertel des gesamten Probenmaterials vorliegt, was die Präsenz eines Partikels noch verdeutlicht [Bro16]. In einer vorangegangenen Arbeit aus 2009 wurden ebenfalls Bodenprofile aus der Ukraine auf Plutonium untersucht. Diese wurden in der ebenfalls hochkontaminierten zweiten Zone unter anderem in Christinowka und Nove Scharno genommen, siehe dazu [Bis09]. Die Probennahmeorte liegen im Vergleich zu Prypjat deutlich weiter vom Reaktor entfernt. Die Aktivitätskonzentrationen unterscheiden sich erwartungsgemäß stark von den hier ermittelten Werten und sind deutlich kleiner. In Christinowka wurde in der Schicht mit der Hauptaktivität etwa 17 Bq/kg des $^{239+240}\text{Pu}$ ermittelt. In Nove Scharno wurde ebenfalls in der untersuchten Schicht in 3 - 5 cm Tiefe ein Brennstoffpartikel vermutet, da die $^{239+240}\text{Pu}$ Aktivität mit 72 Bq/kg sich deutlich von den restlichen Schichten abhebt, welche Aktivitäten von etwa 3 Bq/kg oder weniger aufweisen. Daher wurde auch hier diese Probe ein zweites Mal untersucht, mit einem weiteren Aliquot des Bodens. In der zweiten Analyse ergaben sich deutlich niedrigere Aktivitätskonzentrationen, die mit denen der umliegenden Bodenschichten vergleichbar sind. In beiden Bodenuntersuchungen lag der größte Teil des Plutoniums in den obersten 5 cm vor. Für Nove Scharno konnte trotz der geringen Konzentrationen anhand des Isotopenverhältnisses $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ auch bis in eine Tiefe von 40 cm ein Einfluss des Reaktorplutoniums nachgewiesen werden.

Auch das Aktivitätsverhältnis $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ konnte für Nove Scharno angegeben werden. Dieses liegt in einem Bereich von 0,38 - 0,48. Die Schicht mit dem Partikel verhält sich allerdings anders im Vergleich zu den in dieser Arbeit vorgestellten Werten. Während das Aktivitätsverhältnis in der Probe mit Partikel einen Wert von 0,48 aufweist, hat die Probe ohne Partikel ein Verhältnis von 0,54. Für dieses Bodenprofil wurde auch das $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ -Verhältnis bestimmt. Dieses verhält sich in Bezug auf das Brennstoffpartikel erwartungsgemäß, sodass die Probe mit Partikel ein deutlich höheres Verhältnis aufweist. Ohne Partikel sinkt das Verhältnis in dieser Schicht wieder auf einen Wert, der vergleichbar zu den darauffolgenden Bodenschichten ist, was man auch erwarten würde.

Am Auffälligsten ist es, dass die Hauptaktivität des Plutoniums in Prypjat in der Tiefe von 9 - 12 cm liegt, was den Untersuchungen aus [Bis09] widerspricht. Ein Pflügen des Bodens kann aufgrund der Lage der Probennahmestellen praktisch

ausgeschlossen werden. Es besteht die Möglichkeit, dass dieser Horizont zum Unfallzeitpunkt an der Oberfläche lag und mit weniger kontaminierten Material bedeckt wurde. Hier könnten bodenkundliche Untersuchungen Auskunft drüber geben. Auch stellt sich die Frage, ob auch Kleinstlebewesen die Bodenschichten verlagert haben könnten [Wal16].

6.4.1. Vergleich zu Fukushima

Insgesamt wurde in den Prypjat-Bohrkernen eine deutlich höhere spezifische Aktivität des Plutoniums ermittelt als in den in dieser Arbeit untersuchten Fukushimaproben. Die in den Böden der weiter entfernt liegenden Orten wie Nove Scharno und Christinovka ermittelten Plutoniumaktivitäten aus [Bis09] sind zwar deutlich geringer als in Prypjat, dennoch liegen sie immer noch über den Werten aus Fukushima. Erst in den tieferen Bodenschichten aus Christinowka erhält man vergleichbare Werte, die auch in Fukushima ermittelt wurden.

Die beobachteten Aktivitätsverhältnisse aus Tschernobyl zeigen in jeder untersuchten Bodenschicht deutlich, dass es sich hier um Reaktorplutonium handelt. In Fukushima konnte man nur in Bewuchs- oder Oberflächenproben Reaktorplutonium finden, hier handelte es sich dagegen oft um Mischungen mit Plutonium aus dem globalen Fallout. Dies macht deutlich, dass während des Unfalls von Fukushima nur ein sehr kleiner Anteil Plutoniums entwichen ist, welcher sich kaum vom Hintergrund des globalen Fallouts abhebt (siehe Tabelle 1.1, Gesamtaustrag nur einiger GBq). Im Gegensatz zu Tschernobyl, wo nur eindeutige Verhältnisse ermittelt wurden und sich die Menge des Plutoniums deutlich vom Hintergrund abhebt.

Die Caesiumaktivitäten des ^{137}Cs sind in den Fukushimaproben, die nah am Kraftwerk beziehungsweise in nordwestlicher Richtung genommen wurden, deutlich höher als in den hier untersuchten Prypjatproben. Dies ist wohl darauf zurück zu führen, dass die Caesiumverteilung in Fukushima örtlich deutlich konzentrierter vorliegt und es sich in Tschernobyl großflächiger und über einen deutlich größeren Zeitraum verteilt hat. Die Proben außerhalb des Hauptkontaminationskorridors weisen vergleichbare Werte zu den Prypjatproben auf. Der Großteil des Caesiums liegt in Fukushima innerhalb der obersten 10 cm vor, während es in Tschernobyl in den obersten 20 cm vorliegt. Erwartungsgemäß liegt in den Proben aus Prypjat aufgrund der kurzen Halbwertszeit von zwei Jahren kein ^{134}Cs mehr vor.

In Fukushima liegt im Vergleich zu Tschernobyl wenig ^{241}Am vor, da dies aus dem Zerfall des ^{241}Pu hervorgeht. Davon wurde während des Unfalls von Fukushima wenig ausgebracht und in der Zeit zwischen Unfall und Probennahme konnte noch nicht so viel in ^{241}Am zerfallen. Zusätzlich konnte ^{241}Am in Fukushima nicht nachgewiesen werden, da dieses vergleichsweise kleine Signal in dem großen Untergrund

des Caesiums im Gammaskpektrum überlagert wird. Dies gilt für die Proben aus Tschernobyl nicht mehr, da zum Messzeitpunkt zum einen das ^{134}Cs bereits zerfallen ist und für das ^{137}Cs zum anderen nahezu eine Halbwertszeit vergangen ist. Zusätzlich wurde hier deutlich mehr ^{241}Pu freigesetzt, für das bis zum Messzeitpunkt schon zwei Halbwertszeiten vorüber sind. So konnte auch deutlich mehr ^{241}Am gebildet werden, was den Nachweis im Spektrum erleichtert.

Diese Unterschiede machen die verschiedenen Unfallhergänge deutlich. Durch die nukleare Leistungsexkursion und nachfolgenden Graphitbrand in Tschernobyl wurden erhebliche Mengen an Kernmaterial freigesetzt, so dass man auch in tiefen Bodenschichten Plutonium aus dem Reaktor eindeutig nachweisen kann. Auch in größerer Entfernung können vereinzelt sogar Brennstoffteilchen nachgewiesen werden. In Fukushima wo es zu einer Kernschmelze aufgrund der Nachwärme kam, finden sich nur vereinzelt Hinweise auf die Anwesenheit von den schwerflüchtigen Nukliden aus dem Brennmaterial, zu denen neben den Actiniden auch Strontium zählt. Der Nachweis dieser Nuklide ist zudem auch vergleichsweise aufwendig, da eine chemische Bearbeitung des Probenmaterials notwendig ist und durch den geringen Austrag zusätzlich eine geringe Nachweisgrenze erforderlich ist.

6.5. Weitere Untersuchungen aus Japan

Die Plutoniumisotopenverhältnisse erlauben Rückschlüsse auf die Plutoniumquelle, wobei die Isotopenverhältnisse auch vom Abbrand und weiteren Faktoren abhängen. Somit wäre es sogar theoretisch möglich, Plutonium einzelnen Reaktoren zuzuordnen, was bei der Rekonstruktion des Austrittspfades sehr hilfreich wäre. Daher wurden hierzu unterschiedliche Modellkalkulationen und Untersuchungen durchgeführt. Diese Ergebnisse werden im Folgenden zunächst auszugsweise aufgeführt und zum Schluss mit den in dieser Arbeit ermittelten Ergebnissen verglichen und diskutiert.

Zum Inventar verschiedener Isotope im Reaktor wurden bereits unterschiedliche Modellberechnungen durchgeführt. Die Ergebnisse dieser Kalkulationen sowie die dazugehörigen Referenzen für die Plutoniumisotopenverhältnisse sind in Tabelle 6.2 aufgeführt.

Tabelle 6.2.: Modellkalkulationen der Plutoniumisotopenverhältnisse aus den Reaktoren von Fukushima, at/at steht für das Atomverhältnis und ac/ac für das Aktivitätsverhältnis

| Referenz | $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ at/at | $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ ac/ac |
|-----------------|--|--|
| METI ([Zhe13]) | 0,273 | 2,97 |
| [Kir12] | 0,395 | 1,77 |
| [Sch12] | 0,447 | 1,92 |
| [Nis12]: | | |
| Reaktoren | 0,32 - 0,36 | 2,3 - 2,92 |
| Lagerbecken | 0,39 - 0,47 | 4,12 - 5,14 |

In [Nis12] wurde zwischen den Reaktoren und den Brennelementlagerbecken unterschieden, welche daher einzeln aufgeführt sind. Hier wurde zusätzlich die Zusammensetzung des Plutoniums für die einzelnen Reaktorblöcke und Brennelementlagerbecken aufgestellt, diese Werte sind in Tabelle 6.3 aufgeführt.

Tabelle 6.3.: Modellkalkulationen der Plutoniumzusammensetzung für die einzelnen Reaktorblöcke und Brennelementlagerbecken (BELB) [Zhe13]

| | $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ at/at | $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ ac/ac |
|---------|--|--|
| Block 1 | 0,344 | 2,92 |
| Block 2 | 0,320 | 2,38 |
| Block 3 | 0,356 | 2,30 |
| BELB 1 | 0,394 | 4,69 |
| BELB 2 | 0,442 | 5,14 |
| BELB 3 | 0,468 | 4,28 |
| BELB 4 | 0,417 | 4,12 |

In [Sch13b] wurden Boden- und Bewuchsproben auf Plutonium mittels AMS untersucht. In sämtlichen Bodenproben wurden nur Isotopenverhältnisse ermittelt, die mit denen aus dem globalen Fallout verträglich sind. In einer Bewuchsprobe wurde ein Isotopenverhältnis von $0,381 \pm 0,046$ bestimmt, das darauf hindeutet, dass das Plutonium aus dem Reaktor stammt. Die Aktivitätskonzentration des $^{239+240}\text{Pu}$ in dieser Probe ist mit 0,49 Bq/kg relativ klein. In einer weiteren Bewuchsprobe konnte ein Isotopenverhältnis von $0,64 \pm 0,37$ ermittelt werden, das ebenfalls einen Eintrag von Reaktorplutonium vermuten lässt. Auch hat diese Probe ein

vergleichsweise hohes ^{90}Sr -Signal ergeben (siehe dafür [Ste13]), welches zumindest auf eine Mischung mit Strontium aus dem Reaktor und dem aus dem globalen Fallout hindeutet. Die Anwesenheit von Strontium aus dem Reaktor verstärkt die Annahme, dass auch das Plutonium aus dem Reaktor stammt. Zusätzlich hat das Strontium- zu Caesiumverhältnis für diese Probe relativ kleine Werte ergeben. Dass die Plutoniumkonzentration und die Isotopenverhältnisse erheblich variieren, selbst für sehr nahegelegene Probenahmestellen (zum Beispiel Boden und darauf wachsende Pflanzen), lässt darauf schließen, dass das Plutonium während des Unfalls partikulär freigesetzt wurde. Weiterhin wird vermutet, dass die Freisetzung des Plutoniums und Strontiums ein einmaliges Ereignis war, während die leichtflüchtigen Nuklide wie Caesium über die Druckentlastungen über mehrere Tage freigesetzt wurden, da keine Korrelation zwischen der Höhe der Caesiumkontamination und der Anwesenheit von Reaktorplutonium in den Umweltproben festgestellt werden kann.

Untersuchungen vom japanischen Ministerium MEXT (Ministry of Education, Culture, Space, Science, and Technology) an Oberflächenböden in der Präfektur Fukushima mittels Alphaspektrometrie, haben keine deutlich erhöhten Plutoniumaktivitäten $^{239+240}\text{Pu}$ ergeben. Allerdings konnten zumindest in fünf Proben Aktivitätsverhältnisse $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ von 0,33 - 2,2 ermittelt werden, die deutlich über dem Wert des globalen Fallouts (0,026) liegen [Zhe13].

In [Yam12a] und [Ima12] wurden Ende März 2011 Bodenproben außerhalb der 20 km Sperrzone genommen und ebenfalls mittels Alphaspektrometrie untersucht. Auch hier zeigte sich, dass keine Erhöhung der $^{239+240}\text{Pu}$ -Aktivität gemessen werden konnte und für die Proben Werte des $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ -Verhältnisses, die dem des globalen Fallouts entsprechen, ermittelt wurden. Zusätzlich wurden in dem stark kontaminierten Gebiet in Iitate Village und Okuma Town, welches an das Gelände des Kernkraftwerks anschließt, weitere Proben genommen. Hier konnten in einigen Proben ebenfalls erhöhte Aktivitätsverhältnisse ermittelt werden, die auf eine Mischung von Reaktorplutonium und dem des globalen Fallouts hindeuten. Ermittelte ^{137}Cs -Aktivitäten liegen im Bereich 13 - 175 Bq/g. Die höchsten Werte wurden in Okuma Town ermittelt. Im Nordwesten waren die Werte in der Regel höher als im Süden oder Westen. Die Hauptaktivität lag in der Bodenschicht 0 - 5 cm, in der darauffolgenden Schicht waren die Aktivitätswerte nur noch 1/10 so groß. Die $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ - Aktivitätsverhältnisse sind nahezu konstant und liegen um 0,95.

In [Zhe12] wurden an verschiedenen Stellen der Präfektur Fukushima Proben der Bodenstreu und obersten Bodenschichten mittels Sektorfeld-ICP-MS untersucht. So war es möglich, neben den spezifischen Aktivitäten auch das Isotopenverhältnis $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ zu bestimmen. In nur drei Proben konnten erhöhte Isotopenverhältnisse

zwischen 0,30 - 0,33 ermittelt werden, die auf einen Austrag von Plutonium aus dem Kernkraftwerk hindeuten. Zwei dieser Bodenstreuungen wurden in etwa 30 km in nordwestlicher Richtung zum Kraftwerk genommen. In der obersten Bodenschicht, direkt unter der Bodenstreu, wurden dagegen nur Verhältnisse ermittelt, die auf globalen Fallout hindeuten. Daraus wurde geschlossen, dass das Plutonium zum Zeitpunkt der Probenahme (Mai 2011) noch nicht in den Boden übergegangen ist. Bei der dritten Probe mit erhöhtem $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ -Isotopenverhältnis handelt es sich um eine Oberflächenbodenprobe (0 - 2 cm), die in etwa 20 km südlich zum Kraftwerk liegt. Auch in dieser Untersuchung konnten nur kleine spezifische Aktivitäten im Bereich 0,019 - 1,4 mBq/g ermittelt werden, die keine Erhöhung des Untergrunds feststellen lassen.

Aus den Ergebnissen der Untersuchungen von MEXT bezüglich der Aktivitätsverhältnisse von $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ wurde in [Sch12] gefolgert, dass diese Verhältnisse mit höherem Abstand zum Kernkraftwerk abnehmen und dass die hauptsächlichste Kontamination mit Plutonium in mehreren 10 km von der Unfallstelle aus lokalisiert ist.

Entgegen dieser Annahme wurden in [Luj12b] und [Luj12a] ein möglicher Langstreckentransport des Plutoniums aus Fukushima angenommen. In diesen Untersuchungen wurden im April 2011 in Luftproben aus Vilnius (Litauen) erhöhte Werte für die Verhältnisse $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ und $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ gefunden. Diese Werte haben weder für Plutonium aus dem globalen Fallout gesprochen, noch einem typischen Wert des Unfalls von Tschernobyl entsprochen, wodurch die Annahme aufgestellt wurde, dass es sich um Plutonium aus Fukushima handelt.

In [Xu16] wurden Boden- und Oberflächenproben aus 2012 und 2013 innerhalb eines 75 km Radius um das Kraftwerk in nordwestlicher Richtung untersucht. Für die spezifischen Aktivitäten wurden Werte zwischen 0,02 - 1,31 Bq/kg mittels Alphaspektrometrie ermittelt. Auch hier konnte nur in den Oberflächenproben ein erhöhtes Isotopenverhältnis $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ von 0,34 mittels ICP-MS ermittelt werden. Hier wurde ebenfalls beobachtet, dass das Plutonium noch nicht in den Boden vorgedrungen ist. Im Gegensatz zum Caesium, das bis zu einer Tiefe von 15 - 22 cm zu finden war. Auch konnte ein unterschiedliches Verhalten zwischen Plutonium und Caesium in den Oberflächenproben ausgemacht werden. Hieraus wurde gefolgert, dass Plutonium und Caesium nicht dem gleichen Depositions- und Migrationsmechanismus folgen. Die ermittelten Aktivitäten von ^{137}Cs liegen im Bereich von $10^3 - 10^5$ Bq/kg.

In [Yam14] wurden zu den Oberflächen- und Bodenproben noch schwarze Staubproben von Straßenrändern untersucht. Diese Staubproben machten sich durch ihre hohe Ortsdosisleistung bemerkbar. Alle Proben wurden für die Aktivitätsbestimmung mittels Alphaspektrometrie untersucht und einige Staubproben anschließend mit ICP-MS, um deren Verhältnis $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ zu bestimmen. Die Bodenproben wie-

sen ebenfalls sehr geringe Aktivitäten in einem Bereich von 0,005 - 1,714 Bq/kg auf, in wenigen Fällen ergaben sich erhöhte Aktivitätsverhältnisse von $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$, die auf einen Einfluss von Plutonium aus dem Reaktor hindeuten. Auch wurden die ^{137}Cs -Aktivitäten ermittelt, diese lagen für die Bodenproben in einem Bereich von 0,01 - 340 Bq/g. Die Plutoniumaktivität in den Staubproben ergab zum Teil höhere Werte in einem Bereich von 0,013 - 3,92 Bq/kg, gelten jedoch immer noch nicht erhöht im Vergleich zur Aktivität in den Böden vor dem Unfall. Für diese Proben wurden vergleichsweise hohe Aktivitätsverhältnisse bis zu 3,19 ermittelt. Allerdings scheinen diese unabhängig von der Entfernung und Richtung zum Unfallort zu sein. Alle Staubproben, die zusätzlich mittels ICP-MS untersucht wurden, zeigten ein deutlich erhöhtes $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ -Verhältnis. Die Werte lagen im Bereich von 0,31 - 0,37. Die Caesium-Aktivität in den Staubproben lag sogar bei bis zu 30.000 Bq/g und bei den Oberflächenproben bis zu 20.000 Bq/g (bezogen auf die Masse der Asche). Bei den Staub- und Oberflächenproben wurde davon ausgegangen, dass der Anteil des globalen Fallouts vernachlässigbar ist und daher nur Reaktorplutonium gemessen wurde. Die Werte liegen in guter Übereinstimmung mit den Werten, die mittels Simulationsrechnungen für die einzelnen Blöcke bestimmt wurden. Hier wird davon ausgegangen, dass die Transurane als feine Partikel freigesetzt wurden. Auch auf dem Reaktorgelände wurden Bodenproben genommen und untersucht [Yam12b]. Bei diesen Untersuchungen wurden ebenfalls nur kleine Aktivitäten von $^{239+240}\text{Pu}$ ermittelt, obwohl das Aktivitätsverhältnis $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ einen durchschnittlichen Wert von 2,23 betrug, was ein deutliches Indiz für die Anwesenheit von Reaktorplutonium ist. Die Gammauntersuchungen lieferten ^{137}Cs -Aktivitäten im Bereich von 10 - 10^3 Bq/g mit einem Aktivitätsverhältnis $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ zwischen 1,0 und 1,05.

In [Tan14] wurden zudem Schutt- und Baumproben vom Reaktorgelände untersucht. In diesen Proben konnte für keins der Plutoniumisotope Aktivitäten ermittelt werden, da diese alle unter der Nachweisgrenze von 10^{-2} Bq/g lagen. Die ^{137}Cs -Aktivitäten konnte in allen Proben bestimmt werden und lag in einem Bereich von $3,2 - 1,9 \cdot 10^5$ Bq/g, diese Aktivitäten beziehen sich auf das Probennahmedatum vom 26.10.2012.

In [Sak14] wurden ebenfalls die schwarzen Staubproben vom Straßenrand auf Plutonium, Uran und Caesium untersucht. Die ^{137}Cs -Aktivitäten liegen im Bereich von 582 - 17.670 Bq/g. Diese zum Teil sehr hohen Aktivitäten reflektieren die Abwesenheit von Bodenkomponenten und den Fakt, dass das Probengebiet mit Radiocaesium stark kontaminiert ist, sogar noch in weiterer Entfernung zum Kernkraftwerk. Die zerfallskorrigierten Aktivitätsverhältnisse $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ sind ungefähr eins und sprechen für die Kontamination mit Caesium aus dem Reaktor. Die Aktivitätskonzentration von $^{239+240}\text{Pu}$ liegen in einem Bereich von 0,15 - 1,14 Bq/kg. Die ermittelten Aktivitätsverhältnisse $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ liegen in einem Bereich von 1,64

- 2,64, welches typischen Werten des Reaktorplutoniums aus Fukushima entspricht. Daher stammt das gesamte Plutonium in den Staubproben wohl aus dem Reaktor. Die ^{236}U -Konzentrationen in den Staubproben liegen in einem Bereich von $0,28 - 6,74 \cdot 10^{-4}$ Bq/kg und die Atomverhältnisse $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ in einem Bereich $0,25 - 2,6 \cdot 10^{-7}$. Dieses Verhältnis ist durch den unterschiedlichen Anteil des ^{238}U in Böden und in dem hier vorliegenden Staub sowie durch das Fehlen von Vergleichswerten, für diese Art von Proben wahrscheinlich nicht besonders aussagekräftig. Jedoch stimmen die berechneten Aktivitätsverhältnisse $^{236}\text{U}/^{239+240}\text{Pu}$ mit den theoretischen Werten der einzelnen Reaktoren überein. Dies deutet darauf hin, dass geringe Mengen des Urans aus dem Reaktorkern in Verbindung mit Plutonium, ohne große Fraktionierung, freigesetzt wurden.

In [Shi14] wurden Aerosolproben in circa 120 km in südwestlicher Richtung zum Kernkraftwerk mittels ICP-MS untersucht. Das $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ -Verhältnis ist nach den ersten Wasserstoffexplosionen auf Werte zwischen 10^{-7} und 10^{-6} angestiegen, welches einem Bereich, der deutlich über dem des globalen Fallouts liegt, entspricht. Die in den Luftfiltern ermittelten erhöhten $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ -Verhältnisse ähneln denen, die in den Oberflächenproben aus [Zhe12] ermittelt wurden. Da diese Verhältnisse nicht bis zum 14.03.2011 detektiert wurden, wurde die Vermutung aufgestellt, dass Plutonium und Uran mit dem Wind am 15.03. und 16.03.2011 aus dem Reaktor transportiert wurde, wie die Fahne der Wasserstoffexplosion aus Block 3.

In [Yan16] wurden Bodenproben aus der Region Fukushima auf ^{236}U untersucht. Hier konnten Atomverhältnisse von $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ in einem Bereich zwischen 10^{-7} und 10^{-8} ermittelt werden. Die ^{236}U -Aktivitätskonzentration in den untersuchten Proben haben denen geähnelt, die in den Staubproben aus [Sak14] erzielt wurden. Hier wird davon ausgegangen, dass die Verhältnisse für Werte aus dem globalen Fallout sprechen und ^{236}U aus dem Unfall von Fukushima nur in äußerst geringen Mengen vorliegt.

In [End12] wurden Bodenproben direkt nach dem Unfall (März 2011) in nordwestlicher Richtung zum Unfallort genommen. Diese Proben wurden ausschließlich gammaspektrometrisch untersucht. Im 4 km zum Kraftwerk entfernten Ort Futaba, wurden die höchsten ^{137}Cs -Aktivitäten mit 193 Bq/g ermittelt. Die Aktivitätsverhältnisse $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ haben hier in den meisten Proben Werte um 0,9 ergeben.

In [Ste15] wurden im August 2013, also zwei Jahre nach dem Unfall, in Luftfiltern nördlich zum Reaktorgelände signifikante und plötzliche Freisetzungen luftgetragener Radionuklide nachgewiesen. Zusätzlich wurde in einer Bodenprobe eine hohe ^{90}Sr -Konzentration (78 ± 8 Bq/kg) ermittelt, mit einem hohen $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ -Verhältnis (0,04). Solche Beobachtungen wurden vorher nur in der direkten Umgebung um das Gelände des Reaktors Fukushima Dai-ichi beobachtet. Daher wurde hier vermutet, dass es zu einer Resuspension bereits deponierter Radionuklide vom Kraftwerksgelände durch Aufräumarbeiten gekommen sei. Die daraus resultierende Verteilung

und Deposition des ^{137}Cs wurde für den Zeitpunkt dieser erneuten Freisetzung simuliert. Die auf Caesium basierte Simulation steht mit dem Strontium-Fund im Einklang, welcher im Zentrum des neuen Kontaminationsbereiches liegt.

Zusammenfassend wurde in diesen Untersuchungen gezeigt, dass neben den leichtflüchtigen Radionukliden wie Caesium auch Kernmaterial wie Uran und Plutonium während des Unfalls aus dem Reaktor entwichen ist.

Caesium konnte bereits in Bodenschichten bis zu 22 cm Tiefe nachgewiesen werden. Die Aktivitätskonzentrationen schwanken stark, je nach Probenmaterial und Lage zum Kernkraftwerk. Hauptsächlich wurden Werte um mehrere 100 Bq/g ermittelt. Die höchsten Werte wurden direkt auf dem Kraftwerksgelände mit bis zu 10^5 Bq/g erzielt. Die ermittelten Aktivitätsverhältnisse von $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ sind in untersuchten Bodenprofilen nahezu konstant in der Tiefe und ergaben Werte zwischen 0,9 und 1. Plutonium aus dem Reaktor hat sich hauptsächlich in oberflächennahen Proben gezeigt, dazu zählen Bewuchsproben, Bodenstreu und auch die schwarzen Staubproben. In Bodenproben wurde hauptsächlich Plutonium aus dem globalen Fallout gefunden. In der Regel wurden für solche Proben erhöhte Isotopenverhältnisse ermittelt. Die Aktivitätskonzentrationen haben dennoch in keiner Untersuchung erhöhte Werte im Vergleich zu den in Japan üblicherweise herrschenden Konzentrationen ergeben. Die höchsten $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ -Werte wurden mit 3,92 Bq/kg in den Staubproben nachgewiesen. Hohe Isotopenverhältnisse wurden hauptsächlich in nordwestlicher Richtung zum Kernkraftwerk ermittelt, in einzelnen Fällen auch in südlicher Richtung. Die erhöhten Verhältnisse sprechen von den Werten her für einen Austrag aus den Reaktorkernen und nicht aus den Brennelementlagerbecken (siehe Tabelle 6.3).

In diesen Untersuchungen wurden ^{236}U -Konzentrationen bis zu 6,74 Bq/kg ermittelt. Die Isotopenverhältnisse $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ liegen in der Regel in einem Bereich von 10^{-8} bis 10^{-7} , im Fall der Aerosolfilter sogar noch um eine Größenordnung größer. Hauptsächlich liegen diese Verhältnisse in einem Bereich des globalen Fallouts für Japan.

Anhand dieser Untersuchungen wird vermutet, dass Uran und Plutonium während des Unfalls gemeinsam freigesetzt wurden. Durch die deutliche Erhöhung des Isotopenverhältnisses, aber der geringen Konzentration wird davon ausgegangen, dass Plutonium als Brennstoffpartikel freigesetzt wurde. Sowohl Plutonium als auch Uran wurden nur in sehr geringen Mengen freigesetzt.

Diese Ergebnisse stehen durchaus im Einklang mit denen die in dieser Arbeit ermittelt wurden.

Bis zu einer Schichttiefe von 15 cm konnte Caesium aus dem Reaktor nachgewiesen werden. Die höchsten Aktivitäten liegen dabei in den obersten 5 cm vor. Auch die

ermittelten Aktivitätskonzentrationen sind mit diesen Untersuchungen vergleichbar. Die höchsten Konzentrationen wurden ebenfalls in unmittelbarer Umgebung zum Kraftwerk ermittelt. Auch war erkennbar, dass die Probennahmestellen in nordwestlicher Richtung höhere Aktivitätskonzentrationen aufweisen, als die, die in nördlicher und südlicher Richtung zum Kraftwerk liegen.

Die Verhältnisse des ^{236}U liegen in dieser Arbeit in einem ähnlichen Bereich wie in den Bodenproben aus [Yan16]. Solche Verhältnisse konnten vereinzelt schon vor dem Unfall an der Westküste Japans in Untersuchungen von [Sak09] und [Sak10] nachgewiesen werden, in denen gefolgert wurde, dass solche Werte durchaus für einen globalen Fallout sprechen. In diesen Untersuchungen hat die ^{236}U -Konzentration aber stets einen kontinuierlichen Verlauf in den Bodenprofilen gezeigt und mit der Tiefe abgenommen. Vom Betrag her sind die in dieser Arbeit ermittelten Aktivitäten des ^{236}U mit $10^{-4} - 10^{-5}$ Bq/kg vergleichbar mit denen aus den Staubproben [Sak14] und den Bodenproben aus [Yan16]. Allerdings liegen sie auch in einem vergleichbaren Bereich wie die aus [Sak10], in denen nur global Fallout bestimmt wurde. Zusätzlich wurden die Aktivitätsverhältnisse $^{236}\text{U}/^{239+240}\text{Pu}$ für die Proben aus 2013 ermittelt und sind im Anhang zu finden. Für diese Verhältnisse wurden in [Sak10] in den Tiefenprofilen relativ konstante Verhältnisse ermittelt. Dieses konnte in den hier untersuchten Proben nicht für alle Profile gezeigt werden. Allerdings liegen die Werte in einem vergleichbaren Bereich wie in [Sak14] und [Sak10]. Auch wenn der Betrag in diesem Verhältnis vergleichbar mit den Staubproben ist, so besteht dennoch der Unterschied, dass in den Proben, in denen sich höhere Werte als in [Sak10] (die für globalen Fallout stehen) ergeben haben, das Plutoniumsignal für globalen Fallout spricht, was bei den Staubproben nicht der Fall ist. Daher geht aus diesen Untersuchungen nicht eindeutig hervor, ob es zu einem Austrag von ^{236}U aus dem Reaktor gekommen ist. Auch wenn die starken Schwankungen innerhalb mancher Bodenprofile darauf hindeuten.

In dieser Arbeit hat sich gezeigt, dass die Aktivitätskonzentration des Plutoniums in der Umwelt durch den Unfall nicht signifikant erhöht wurde, obwohl auch erhöhte Isotopenverhältnisse nachgewiesen wurden, die für einen Austrag aus dem Reaktor sprechen. Dieses Bild hat sich auch in den hier vorgestellten Untersuchungen gezeigt. Die erhöhten Verhältnisse wurden ebenfalls hauptsächlich in Oberflächenproben nachgewiesen. In dieser Arbeit haben sich auch Verhältnisse gezeigt, die für eine Mischung mit Plutonium aus dem globalen Fallout sprechen, da die Oberflächenproben einen höheren Bodenanteil enthielten. Die starke Lokalisierung des Plutoniums aus dem Reaktor legt auch nahe, dass das Plutonium in partikulärer Form entwichen ist.

7. Zusammenfassung

Durch den Unfall vom Kernkraftwerk Fukushima Dai-ichi im März 2011 wurden erhebliche Mengen an Radionukliden in die Umwelt freigesetzt. Neben großen Mengen an leichtflüchtigen Nukliden wurden dabei auch geringe Anteile an schwerflüchtigen Nukliden wie Plutonium und Uran freigesetzt. Speziell Plutonium ist dabei von großem Interesse, da es aufgrund seiner hohen Chemo- und Radiotoxizität ein erhebliches Risiko in der Umwelt darstellt und bei Ingestion und Inhalation zu erheblichen gesundheitlichen Schädigungen kommen kann.

Plutonium sowie das Uranisotop ^{236}U sind im Wesentlichen anthropogenen Ursprungs. Das natürliche Vorkommen beschränkt sich auf kleinste Spuren. Insbesondere im Rahmen der oberirdischen Kernwaffentests in der Mitte des 20. Jahrhunderts wurden erhebliche Mengen freigesetzt. Aber auch bei Unfällen von Kernkraftwerken ist es zur Freisetzung gekommen, wie zum Beispiel in Tschernobyl oder eben in Fukushima. Dabei sind die Isotopenverhältnisse $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ und $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ von besonderem Interesse, da sie Rückschlüsse auf die Herkunft des Plutoniums bzw. Urans zulassen. Jede Quelle besitzt eine einzigartige Isotopenzusammensetzung. Diese Verhältnisse wurden daher in dieser Arbeit herangezogen um Plutonium bzw. Uran, welches durch den Reaktorunfall freigesetzt wurde, vom globalen Fallout zu unterscheiden.

Um zu bestimmen, inwiefern und in welchem Umfang es im Rahmen des Unfalls zur Freisetzung von Plutonium und Uran gekommen ist, wurden, nach einer ersten Untersuchung aus 2012 [Sch13b], [Sch13a], in 2013 und 2015 zwei weitere Probenahmeaktionen durchgeführt. In 2015 wurde dabei versucht, möglichst genau an den gleichen Stellen wie 2013 zu beproben. Es wurden Bewuchs-, Oberflächen- und Bodenproben genommen. Die Bodenproben wurden als Bohrkern von 15 cm Tiefe genommen. Dieser Bohrkern wurde in sechs gleich große Scheiben zerteilt, sodass dieser als Bodenprofil untersucht werden konnte. Alle Proben wurden auf Plutonium und Uran untersucht und die Proben aus 2015 zusätzlich auf Caesium. Nach einem chemischen Aufschluss der Proben wurden mittels der Extraktionsäulen TEVA und UTEVA Resin Plutonium und Uran isoliert. Beide wurden anschließend mittels Eisenhydroxid-Mitfällung aus der Probelösung gefällt und der Niederschlag nach dem Waschen bei 800 °C in Oxide umgewandelt. Zusammen mit dem so gebildeten Eisenoxid wurden Plutonium und Uran jeweils in Aluminiumtargets gepresst und mittels AMS gemessen. Die Messungen erfolgten an der

kompakten AMS-Anlage TANDY der ETH Zürich. Durch die besonders niedrigen Nachweisgrenzen ist es auch mit dieser kompakten Anlage möglich, die Actinide, die in sehr geringen Anteilen enthalten sind (wie das ^{236}U), in Umweltproben nachzuweisen.

Das Messverfahren konnte anhand von IAEA-Referenzmaterialien validiert werden. Die Ergebnisse zeigen gute Übereinstimmungen.

Neben den Isotopenverhältnissen $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ und $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ wurde auch die spezifische Aktivität des Plutoniums bzw. die Konzentration des Urans in den Proben ermittelt.

In den untersuchten Proben konnte Plutonium aus dem Reaktor identifiziert werden. Der Großteil der untersuchten Proben lässt lediglich Plutonium und Uran aus dem globalen Fallout erkennen. In einigen Proben zeigt sich jedoch ein deutlicher Einfluss von Material, welches bei dem Reaktorunfall freigesetzt wurde, direkt oder in Mischung mit dem globalen Fallout. Für Plutonium ist dabei auffällig, dass Proben, in welchen das Isotopenverhältnis einen Einfluss von Reaktorplutonium indiziert, keine erhöhten Aktivitäten zeigen. Das sporadische und stark lokalisierte Auffinden von Reaktormaterial steht im Einklang mit der erwarteten partikulären Freisetzung der schwerflüchtigen Radionuklide. Das freigesetzte Material scheint das Isotopenverhältnis dabei deutlich stärker zu beeinflussen als die Plutoniumaktivität. Dies spricht für sehr feine Partikel, die die Aktivität kaum erhöhen.

In den Bodenproben sind insbesondere Spot H von 2013 und Spot B aus 2015 auffällig. Das Bodenprofil von Spot H zeigt in der dritten Schicht einen plötzlichen Anstieg des Isotopenverhältnisses $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$. Der Wert liegt mit $0,48 \pm 0,15$ deutlich über dem Wert des globalen Fallouts. Die Verhältnisse bei Spot B weisen dagegen in den drei obersten Bodenschichten kontinuierlich erhöhte Werte auf. Mit einem Wert von $0,27 \pm 0,02$ kann man in der obersten Schicht bei Spot B noch deutlicher von einer Beeinflussung durch Plutonium aus dem Reaktor sprechen, als in den darauf folgenden Schichten in denen der erhöhte Wert durch die hohe Unsicherheit nicht sicher vom globalen Fallouts zu unterscheiden ist.

In 2013 konnte Plutonium aus dem Reaktor hauptsächlich in den Bewuchs- und Oberflächenproben nachgewiesen werden. Hier haben die Verhältnisse auch Werte gezeigt, die auf Mischungen zwischen Plutonium aus dem globalen Fallout und aus dem Reaktor schließen lassen. Bei den Bewuchsproben konnte Plutonium aus dem Reaktor in der Probe vom Maingate nachgewiesen werden mit einem Verhältnis von $0,32 \pm 0,05$. Die ermittelten spezifischen Aktivitäten des Plutoniums waren in der Regel sehr klein und lagen jeweils in einem Bereich der für Proben aus Japan üblich ist.

In allen Proben aus 2015 konnte erwartungsgemäß Caesium aus dem Reaktor nachgewiesen werden. Der Hauptanteil des Caesiums befindet sich dabei noch in

den obersten 5 cm des Bodens, ist aber bis zu einer Tiefe von 15 cm nachweisbar. Auch bei diesen Proben konnten mitunter starke Unterschiede der Aktivität bei benachbarten Oberflächenproben beobachtet werden.

Auch in den Isotopenverhältnissen des Urans konnten hauptsächlich Werte ermittelt werden, die auf eine natürliche Herkunft oder globalen Fallout schließen lassen. Allerdings zeigen sowohl Proben aus 2013 als auch in 2015 $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ -Verhältnisse die um zwei Größenordnungen, über den sonst gemessenen Werten liegen. Wenn gleich Verhältnisse dieser Größenordnungen schon vor dem Unfall in unbelasteten Gebieten von Japan gefunden wurden und somit nicht als eindeutiger Nachweis betrachtet werden können, ist der plötzliche Anstieg von Konzentration und Isotopenverhältnis innerhalb eines Bohrkerns zumindest als auffällig zu bezeichnen. Zudem konnten auch in den Uranuntersuchungen in benachbarten Oberflächenproben große Schwankungen ermittelt werden. Durch diese Ergebnisse kann zumindest nicht ausgeschlossen werden, dass es während des Unfalls auch zu einer Freisetzung des Urans gekommen ist.

Die Messungen zeigen ein sporadisches, plötzliches Auftreten von Reaktorplutonium, das sich in den Isotopenverhältnissen widerspiegelt, jedoch nicht in der spezifischen Aktivität. Auch ^{236}U zeigt starke plötzliche Schwankungen in den Isotopenverhältnissen, die sich auch in der Konzentration widerspiegeln. Diese Beobachtungen stehen im Einklang mit Untersuchungen anderer Gruppen und sprechen für eine partikuläre Freisetzung sehr feiner Partikel.

Die Datenbasis ist aufgrund nur sporadischer Funde jedoch recht klein. Dies gilt insbesondere für ^{236}U , das nur von wenigen Gruppen untersucht wurde. Eine weitergehende Betrachtung der Verteilung bei der Freisetzung oder der Migration im Boden bedarf einer deutlichen größeren Datenbasis, so dass eine intensivere und möglichst systematische Erforschung des Untersuchungsgebietes hilfreich wäre.

A. Anhang

A.1. Weitere Berechnungen für ^{236}U

Für eine bessere Einschätzung und Vergleiche wurden zusätzlich die Aktivitätsverhältnisse von $^{236}\text{U}/^{239+240}\text{Pu}$ für die Proben aus 2013 gebildet. Diese sind in den folgenden Tabellen dargestellt.

Tabelle A.1.: Spot A und B: Ermitteltes Aktivitätsverhältnis $^{236}\text{U}/^{239+240}\text{Pu}$

| Spot A | Isotopenverhältnis $^{236}\text{U}/^{239+240}\text{Pu}$ 10^{-4} ac/ac | Spot B | Isotopenverhältnis $^{236}\text{U}/^{239+240}\text{Pu}$ 10^{-4} ac/ac |
|----------|--|----------|--|
| Veg-a2 | $2,06 \pm 0,60$ | Veg-b2 | $1,66 \pm 0,32$ |
| Lit-a2 | $1,66 \pm 0,32$ | Lit-b2 | $1,00 \pm 0,12$ |
| F1-02 1" | $3,80 \pm 0,25$ | F1-06 1" | $18,81 \pm 6,45$ |
| F1-02 2" | $3,80 \pm 0,43$ | F1-06 2" | $11,65 \pm 2,25$ |
| F1-02 3" | $2,70 \pm 0,22$ | F1-06 3" | n.b. |
| F1-02 4" | $11,87 \pm 1,20$ | F1-06 4" | n.b. |
| F1-02 5" | $1,27 \pm 0,14$ | F1-06 5" | n.b. |
| F1-02 6" | $2,73 \pm 0,49$ | F1-06 6" | n.b. |

Tabelle A.2.: Spot C und D: Ermitteltes Aktivitätsverhältnis $^{236}\text{U}/^{239+240}\text{Pu}$

| Spot C | Isotopenverhältnis $^{236}\text{U}/^{239+240}\text{Pu}$ 10^{-4} ac/ac | Spot D | Isotopenverhältnis $^{236}\text{U}/^{239+240}\text{Pu}$ 10^{-4} ac/ac |
|-----------|--|-----------|--|
| Veg-c2 | n.b. | Veg-d2 | n.b. |
| Lit-c2 | $0,75 \pm 0,08$ | Lit-d2 | $1,88 \pm 0,08$ |
| F1-10 1'' | $2,83 \pm 1,07$ | F1-14 1'' | $3,15 \pm 0,15$ |
| F1-10 2'' | $2,05 \pm 0,17$ | F1-14 2'' | $0,74 \pm 0,03$ |
| F1-10 3'' | $1,10 \pm 0,13$ | F1-14 3'' | $0,75 \pm 0,03$ |
| F1-10 4'' | $3,20 \pm 0,12$ | F1-14 4'' | $0,83 \pm 0,03$ |
| F1-10 5'' | $0,42 \pm 0,02$ | F1-14 5'' | $0,76 \pm 0,03$ |
| F1-10 6'' | $2,00 \pm 0,12$ | F1-14 6'' | $0,66 \pm 0,03$ |

Tabelle A.3.: Spot E und F: Ermitteltes Aktivitätsverhältnis $^{236}\text{U}/^{239+240}\text{Pu}$

| Spot E | Isotopenverhältnis $^{236}\text{U}/^{239+240}\text{Pu}$ 10^{-4} ac/ac | Spot F | Isotopenverhältnis $^{236}\text{U}/^{239+240}\text{Pu}$ 10^{-4} ac/ac |
|-----------|--|-----------|--|
| Veg-e2 | n.b. | Veg-f2 | $5,47 \pm 0,69$ |
| Lit-e2 | $0,86 \pm 0,03$ | Lit-f2 | n.b. |
| F1-18 1'' | $1,81 \pm 0,06$ | F1-21 1'' | $0,80 \pm 0,03$ |
| F1-18 2'' | $0,84 \pm 0,03$ | F1-21 2'' | $0,75 \pm 0,02$ |
| F1-18 3'' | $0,73 \pm 0,04$ | F1-21 3'' | $0,71 \pm 0,02$ |
| F1-18 4'' | $0,72 \pm 0,03$ | F1-21 4'' | $0,76 \pm 0,03$ |
| F1-18 5'' | $0,74 \pm 0,02$ | F1-21 5'' | $0,74 \pm 0,08$ |
| F1-18 6'' | $0,16 \pm 0,01$ | F1-21 6'' | $0,92 \pm 0,16$ |

Tabelle A.4.: Spot G und H: Ermitteltes Aktivitätsverhältnis $^{236}\text{U}/^{239+240}\text{Pu}$

| Spot G | Isotopenverhältnis $^{236}\text{U}/^{239+240}\text{Pu}$ 10^{-4} ac/ac | Spot H | Isotopenverhältnis $^{236}\text{U}/^{239+240}\text{Pu}$ 10^{-4} ac/ac |
|-----------|--|-----------|--|
| Veg-g2 | n.b. | Veg-h2 | n.b. |
| Lit-g2 | $1,26 \pm 0,09$ | Lit-h2 | $1,52 \pm 0,15$ |
| F1-28 1'' | $1,60 \pm 0,14$ | F1-31 1'' | $13,24 \pm 2,52$ |
| F1-28 2'' | $1,49 \pm 0,14$ | F1-31 2'' | n.b. |
| F1-28 3'' | $1,31 \pm 0,10$ | F1-31 3'' | $7,75 \pm 3,11$ |
| F1-28 4'' | $1,18 \pm 0,08$ | F1-31 4'' | $4,45 \pm 1,49$ |
| F1-28 5'' | $2,93 \pm 0,13$ | F1-31 5'' | $1,25 \pm 0,12$ |
| F1-28 6'' | $0,91 \pm 0,05$ | F1-31 6'' | $2,36 \pm 0,15$ |

Abbildungsverzeichnis

| | | |
|------|---|----|
| 1.1. | Schematische Darstellung des Aufbaus des Reaktors in Fukushima [GRS16] | 2 |
| 1.2. | Geschätzte totale Deposition des Radiocaesiums [Ste14] | 8 |
| 1.3. | Brutstoffzyklus von Plutonium im Reaktor (σ in barn für thermische Neutronen) (aus [Sch13a]) | 12 |
| 1.4. | Plutoniumisotopenverhältnisse für verschiedene Quellen, angepasst und abgeändert aus [Bis09] | 13 |
| 2.1. | Schematischer Aufbau des TANDY der ETH Zürich, bearbeitet und angepasst aus [Chr13a] | 20 |
| 2.2. | Schematische Darstellung eines ^{40}K Spektrums, mit charakteristischem Full-Energy Peak (DE: double escape, SE: single escape) (nach [Taw12]) | 27 |
| 2.3. | Zerfallsschema des ^{137}Cs [Taw12] | 28 |
| 3.1. | Probennahmestellen von 2013 und 2015 | 31 |
| 3.2. | Bewuchsprobe am Maingate (2013), Spot F | 33 |
| 3.3. | Schematische Darstellung der Probennahme | 33 |
| 3.4. | Bohrkernprobe aus 2015, Iitate, Spot A | 34 |
| 3.5. | Beispiel eines Gammamesspräparats | 37 |
| 4.1. | Aufbau für die chemische Trennung | 41 |
| 4.2. | Kapazitätsfaktoren für TEVA Resin, für Salz- und Salpetersäure, abhängig von der Säurekonzentration [Hor95] | 42 |
| 4.3. | Kapazitätsfaktoren für UTEVA Resin, für Salz- und Salpetersäure, abhängig von der Säurekonzentration [Hor95] | 43 |
| 4.4. | getrocknetes Eisenhydroxid ohne Vorreinigung (aus [Sch13a]) | 44 |
| 4.5. | Gereinigtes Eisenhydroxid | 44 |
| 4.6. | Gereinigtes Eisenoxid | 44 |
| 4.7. | Aluminium-Target | 45 |
| 5.1. | Gammaspektrum der Oberflächenprobe Lit-d5 | 64 |
| 5.2. | Bohrkern Prypjat-3: Spezifische Aktivität von ^{137}Cs , ^{241}Am , $^{239+240}\text{Pu}$ und ^{238}Pu , aus [Bro16] | 68 |

| | | |
|-------|---|----|
| 5.3. | Bohrkern Prypjat-4: Spezifische Aktivität von ^{137}Cs , ^{241}Am , $^{239+240}\text{Pu}$ und ^{238}Pu , aus [Bro16] | 68 |
| 5.4. | Aktivitätsverhältnis $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ beider Bohrkerne, aus [Bro16] | 69 |
| 6.1. | Tiefenprofil des Isotopenverhältnisses $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ für alle Probenahmestellen aus 2013 | 72 |
| 6.2. | Tiefenprofil der spezifischen Aktivität $^{239+240}\text{Pu}$ für alle Probenahmestellen aus 2013 | 72 |
| 6.3. | Spezifische Aktivität $^{239+240}\text{Pu}$ aufgetragen gegen das Isotopenverhältnis $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ aller Proben aus 2013 | 73 |
| 6.4. | Isotopenverhältnis $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ in 10^{-9} als Tiefenprofil aller Proben aus 2013 | 76 |
| 6.5. | Konzentration ^{236}U in 10^9 Atome/kg als Tiefenprofil aller Proben aus 2013 | 76 |
| 6.6. | Tiefenprofil des Isotopenverhältnisses $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ der Proben aus 2015 | 78 |
| 6.7. | $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ -Isotopenverhältnis der Oberflächen- und Bodenproben aus 2015 | 79 |
| 6.8. | ^{236}U -Konzentration in Atome/kg der Oberflächen- und Bodenproben aus 2015 | 79 |
| 6.9. | Spezifische Aktivität in Bq/g des ^{137}Cs als Tiefenprofil der Probenahmestellen A, D und F | 81 |
| 6.10. | Spezifische Aktivität in Bq/g des ^{137}Cs als Tiefenprofil der Probenahmestellen B und H | 81 |

Tabellenverzeichnis

| | |
|---|----|
| 1.1. Geschätzte Freisetzung von Fukushima in die Atmosphäre [Xu16], [Zhe13], [Sak14], [Ste14] | 9 |
| 1.2. Eigenschaften relevanter Plutoniumisotope [Cla08], [Hou08],[Mag12], SF steht für Spontanspaltung | 11 |
| 1.3. Eigenschaften relevanter Uranisotope [Gre08],[Mag12], SF steht für Spontanspaltung | 16 |
| 3.1. Probennahmestellen der Japan-Proben aus 2013 | 32 |
| 3.2. Veraschungsprogramm des Ofens für Bodenproben nach [Sch13a] . . | 35 |
| 3.3. Veraschungsprogramm des Ofens für Bewuchsproben nach [Sch13a] | 35 |
| 3.4. Probennahmestellen der Japan-Proben | 35 |
| 5.1. Mess- und Referenzwerte der Bodenprobe IAEA-375 und IAEA-Soil-6, at/at steht für das Atomverhältnis | 48 |
| 5.2. Mess- und Referenzwerte der spezifischen Aktivität der Bodenprobe IAEA-375, bezogen auf den IAEA Referenzwert | 48 |
| 5.3. Spot A: Ergebnisse der Plutonium-Isotopenverhältnisse und spezifischen Aktivitäten | 50 |
| 5.4. Spot B: Ergebnisse der Plutonium-Isotopenverhältnisse und spezifischen Aktivitäten | 50 |
| 5.5. Spot C: Ergebnisse der Plutonium-Isotopenverhältnisse und spezifischen Aktivitäten | 51 |
| 5.6. Spot D: Ergebnisse der Plutonium-Isotopenverhältnisse und spezifischen Aktivitäten | 52 |
| 5.7. Spot E: Ergebnisse der Plutonium-Isotopenverhältnisse und spezifischen Aktivitäten | 52 |
| 5.8. Spot F: Ergebnisse der Plutonium-Isotopenverhältnisse und spezifischen Aktivitäten | 53 |
| 5.9. Spot G: Ergebnisse der Plutonium-Isotopenverhältnisse und spezifischen Aktivitäten | 53 |
| 5.10. Spot H | 54 |
| 5.11. Spot A: Ergebnisse der Konzentration des ^{236}U und des Isotopenverhältnisses $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ | 55 |

| | |
|--|----|
| 5.12. Spot B: Ergebnisse der Konzentration des ^{236}U und des Isotopenverhältnisses $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ | 55 |
| 5.13. Spot C: Ergebnisse der Konzentration des ^{236}U und des Isotopenverhältnisses $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$, „<EG“: Wert liegt unterhalb der Erkennungsgrenze | 56 |
| 5.14. Spot D: Ergebnisse der Konzentration des ^{236}U und des Isotopenverhältnisses $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ | 56 |
| 5.15. Spot E: Ergebnisse der Konzentration des ^{236}U und des Isotopenverhältnisses $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ | 57 |
| 5.16. Spot F: Ergebnisse der Konzentration des ^{236}U und des Isotopenverhältnisses $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ | 58 |
| 5.17. Spot G: Ergebnisse der Konzentration des ^{236}U und des Isotopenverhältnisses $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ | 58 |
| 5.18. Spot H: Ergebnisse der Konzentration des ^{236}U und des Isotopenverhältnisses $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ | 59 |
| 5.19. Spot A und B: Ergebnisse des Isotopenverhältnisses $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ | 60 |
| 5.20. Spot D und F: Ergebnisse des Isotopenverhältnisses $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ | 61 |
| 5.21. Spot H: Ergebnisse des Isotopenverhältnisses $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ | 61 |
| 5.22. Boden: Ergebnisse der Konzentration des ^{236}U und des Isotopenverhältnisses $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ | 62 |
| 5.23. Oberflächenproben: Ergebnisse der Konzentration des ^{236}U und des Isotopenverhältnisses $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ | 63 |
| 5.24. Spot A: Aktivitätskonzentrationen in [Bq/g] von ^{137}Cs und ^{134}Cs , zerfallskorrigiert auf den Unfallzeitpunkt, ac/ac steht für das Aktivitätsverhältnis | 64 |
| 5.25. Spot B: Aktivitätskonzentrationen in [Bq/g] von ^{137}Cs und ^{134}Cs , zerfallskorrigiert auf den Unfallzeitpunkt, ac/ac steht für das Aktivitätsverhältnis | 65 |
| 5.26. Spot D: Aktivitätskonzentrationen in [Bq/g] von ^{137}Cs und ^{134}Cs , zerfallskorrigiert auf den Unfallzeitpunkt, ac/ac steht für das Aktivitätsverhältnis | 66 |
| 5.27. Spot F: Aktivitätskonzentrationen in [Bq/g] von ^{137}Cs und ^{134}Cs , zerfallskorrigiert auf den Unfallzeitpunkt, ac/ac steht für das Aktivitätsverhältnis | 66 |
| 5.28. Spot H: Aktivitätskonzentrationen in [Bq/g] von ^{137}Cs und ^{134}Cs , zerfallskorrigiert auf den Unfallzeitpunkt, ac/ac steht für das Aktivitätsverhältnis | 67 |
| 6.1. Zusammenfassung der erhöhten Isotopenverhältnisse des Plutoniums der Proben aus 2013 | 74 |

| | |
|---|----|
| 6.2. Modellkalkulationen der Plutoniumisotopenverhältnisse aus den Reaktoren von Fukushima, at/at steht für das Atomverhältnis und ac/ac für das Aktivitätsverhältnis | 86 |
| 6.3. Modellkalkulationen der Plutoniumzusammensetzung für die einzelnen Reaktorblöcke und Brennelementlagerbecken (BELB) [Zhe13] | 86 |
| A.1. Spot A und B: Ermitteltes Aktivitätsverhältnis $^{236}\text{U}/^{239+240}\text{Pu}$ | 97 |
| A.2. Spot C und D: Ermitteltes Aktivitätsverhältnis $^{236}\text{U}/^{239+240}\text{Pu}$ | 98 |
| A.3. Spot E und F: Ermitteltes Aktivitätsverhältnis $^{236}\text{U}/^{239+240}\text{Pu}$ | 98 |
| A.4. Spot G und H: Ermitteltes Aktivitätsverhältnis $^{236}\text{U}/^{239+240}\text{Pu}$ | 98 |

Literaturverzeichnis

- [Bir09] Birkhan, J. Gamma-Spektrometrie an Bodenproben von als Grünland genutzten Auenflächen der Zwickauer und Vereinigten Mulde. *Diplomarbeit am Zentrum für Strahlenschutz und Radioökologie, Leibniz Universität Hannover*, 2009.
- [Bis09] Bisinger, T. Bestimmung von Plutonium-Isotopen in der Umwelt mittels Alphaspektrometrie und AMS. *Doktorarbeit am Zentrum für Strahlenschutz und Radioökologie, Leibniz Universität Hannover*, 2009.
- [Bis12] Bister, S. Radioökologische Untersuchungen landwirtschaftlich genutzter Auen der Mulde zu den Folgen des ehemaligen Uranbergbaus. *Doktorarbeit am Institut für Radioökologie und Strahlenschutz, Leibniz Universität Hannover*, 2012.
- [Bro16] Brozynski, P. Migration von Radionukliden in Bodenproben aus der nördlichen Ukraine. *Masterarbeit am Institut für Radioökologie und Strahlenschutz, Leibniz Universität Hannover*, 2016.
- [Bue97] Buesseler, K. O. The Isotopic Signature of Fallout Plutonium in the North Pacific. *Journal of Environmental Radioactivity*, 36:69 – 83, 1997.
- [Cha06] Chamizo, E., Garcia-Leon, M., Synal, H. A., Suter, M. und Wacker, L. Determination of the Pu-240/Pu-239 atomic ratio in soils from Palomares (Spain) by low-energy accelerator mass spectrometry. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 249:768–771, AUG 2006. 17th International Conference on Ion Beam Analysis, Seville, SPAIN, JUN 26-JUL 01, 2005.
- [Chr13a] Christl, M., Lachner, J., Vockenhuber, C., Goroncy, I., Herrmann, J. und Synal, H.-A. First data of uranium-236 in the north sea. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 294:530 – 536, 2013. Proceedings of the Twelfth International Conference on Accelerator Mass Spectrometry, Wellington, New Zealand, 20-25 March 2011.

- [Chr13b] Christl, M., Vockenhuber, C., Kubik, P. W., Wacker, L., Lachner, J., Alfimov, V. und Synal, H. A. The ETH Zurich AMS facilities: Performance parameters and reference materials. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 294:29–38, 2013.
- [Chr15] Christl, M., Casacuberta, N., Lachner, J., Maxeiner, S., Vockenhuber, C., Synal, H.-A., Goroncy, I., Herrmann, J., Daraoui, A., Walther, C. und Michel, R. Status of U-236 analyses at ETH Zurich and the distribution of U-236 and I-129 in the North Sea in 2009. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 361:510 – 516, 2015. The Thirteenth Accelerator Mass Spectrometry Conference.
- [Cla08] Clark, D. L., Hecker, S. S., Jarvine, G. D. und Neu, M. P. *The Chemistry of the Actinide and Transactinide Elements Volume 2*. L.R. Morss, Norman M. Edelstein, Jean Fuger, Joseph J. Katz, 2008.
- [DIN11] DIN ISO 11929. *Bestimmung der charakteristischen Grenzen (Erkennungsgrenze, Nachweisgrenze und Grenzen des Vertrauensbereichs) bei Messungen ionisierender Strahlung - Grundlagen und Anwendungen (ISO 11929:2010)*. Beuth Verlag, Berlin, Köln, 2011.
- [Eig13] Eigl, R., Srncik, M., Steier, P. und Wanner, G. U-236/U-238 and Pu-240/Pu-239 isotopic ratios in small (2 L) sea and river water samples. *Journal of Environmental Radioactivity*, 116:54–58, FEB 2013.
- [End12] Endo, S., Kimura, S., Takatsuji, T., Nanasawa, K., Imanaka, T. und Shizuma, K. Measurement of soil contamination by radionuclides due to the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident and associated estimated cumulative external dose estimation. *Journal of Environmental Radioactivity*, 111(SI):18–27, SEP 2012.
- [Fif08] Fifield, L. Accelerator mass spectrometry of long-lived heavy radionuclides. In Povinec, P. P., Herausgeber, *Analysis of Environmental Radionuclides*, Band 11 von *Radioactivity in the Environment*, Seiten 263 – 293. Elsevier, 2008.
- [Ghi51] Ghiorso, A., Brittain, J., Manning, W. und Seaborg, G. The Uranium isotope U-236. *Physical Review*, 82(4):558, 1951.
- [Gre08] Grenthe, I., Drozdzyński, J., Fujino, T., Buck, E. C., Albrecht-Schmitt, T. E. und Wolf, S. F. *The Chemistry of the Actinide and Transactinide Elements Volume 1*. L.R. Morss, Norman M. Edelstein, Jean Fuger, Joseph J. Katz, 2008.

- [GRS16] GRS. *Fukushima Daiichi 11.März 2011 Unfallablauf, Radiologische Untersuchungen*. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit, 5. Auflage, 2016.
- [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.
- [Hor95] Horwitz, E., Dietz, M., Chiarizia, R., Diamond, H., Maxwell, S. und Nelson, M. Separation and preconcentration of actinides by extraction chromatography using a supported liquid anion exchanger: application to the characterization of high-level nuclear waste solutions. *Analytica Chimica Acta* 310, Seiten 63 – 78, 1995.
- [Hot00] Hotchkis, M., Child, D., Fink, D., Jacobsen, G., Lee, P., Mino, N., Smith, A. und Tuniz, C. Measurement of U-236 in environmental media. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 172:659 – 665, 2000. 8th International Conference on Accelerator Mass Spectrometry.
- [Hou08] Hou, X. und Ross, P. Critical comparison of radiometric and mass spectrometric methods for the determination of radionuclides in environmental, biological and nuclear waste samples. *Analytica Chimica Acta*, 608:105–139, 2008.
- [IAE11] IAEA. Radioactive particles in the environment: Sources, particle characterization and analytical techniques. *IAEA-TECDOC-1663*, 2011.
- [Ima12] Imanaka, T., Endo, S., Sugai, M., Ozawa, S., Shizuma, K. und Yamamoto, M. Early radiation survey of Iitate Village, which was heavily contaminated by the Fukushima Daiichi accident, conducted on 28 and 29 march 2011. *Health Physics*, 102:680–686, 2012.
- [Kir12] Kirchner, G., Bossew, P. und De Cort, M. Radioactivity from Fukushima Dai-ichi in air over Europe; part 2: what can it tell us about the accident? *Journal of Environmental Radioactivity*, 114:35–40, 2012.
- [Kno00] Knoll, G. F. *Radiation Detection and Measurement*. Jon Wiley & Sons, Inc., 3. Auflage, 2000.
- [Lie91] Lieser, K. *Einführung in die Kernchemie*. VCH Verlagsgesellschaft GmbH, 3. Auflage, 1991.
- [Luj12a] Lujanienė, G., Bycenkienė, S., Povinec, P. P. und Gera, M. Radionuclides from the Fukushima accident in the air over Lithuania: measurement and

- modelling approaches. *Journal Of Environmental Radioactivity*, 114:71–80, 2012.
- [Luj12b] Lujaniene, G., Valiulis, D., Bycenkiene, S., Sakalys, J. und Povinec, P. P. Plutonium isotopes and Am-241 in the atmosphere of Lithuania: A comparison of different source terms. *Atmospheric Environment*, 61:419–427, 2012.
- [Mag12] Magill, J., Pfennig, G. und Galy, J. Karlsruher Nuklidkarte. *Forschungszentrum Karlsruhe*, 8. Auflage, 2012.
- [Mic99] Michel, R. und K.Kirchhoff. *Nachweis-, Erkennungs- und Vertrauensgrenzen bei Kernstrahlungsmessungen*. Fachverband für Strahlenschutz e.V.; TÜV-Verlag, 1999.
- [Mic11] Michel, R. Fukushima: eine vorläufige Bilanz im Juli 2011. *Institut für Radioökologie und Strahlenschutz, Leibniz Universität Hannover*, 2011.
- [Mir02] Mironov, V., Matusevich, J., Kudrjashov, V., Boulyga, S. und Becker, J. Determination of irradiated reactor uranium in soil samples in Belarus using U-236 as irradiated uranium tracer. *Journal of Environmental Monitoring*, 4(6):997–1002, DEC 2002.
- [Mue10] Mueller, A. M., Christl, M., Doebeli, M., Kubik, P. W., Suter, M. und Synal, H. A. Boron suppression with a gas ionization chamber at very low energies ($E < 1$ MeV). *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 268:843–846, 2010. 11th International Conference on Accelerator Mass Spectrometry, Rome, ITALY, SEP 14-19, 2008.
- [Neu10] Neu, M. P., Goff, G. S. und Runde, W. *Radionuclides in the Environment*. John Wiley & Sons, 2010.
- [Nis12] Nishihara, K., Iwamoto, H. und Suyama, K. Estimation of fuel compositions in Fukushima-Daiichi nuclear power plant. *JAEA-Data/ Code 2012*, No. 2012-018, 2012.
- [Qui09] Quinto, F., Steier, P., Wallner, G., Wallner, A., Srncik, M., Bichler, M., Kutschera, W., Terrasi, F., Petraglia, A. und Sabbarese, C. The first use of U-236 in the general environment and near a shutdown nuclear power plant. *Applied Radiation and Isotopes*, 67(10):1775–1780, OCT 2009.
- [Sak09] Sakaguchi, A., Kawai, K., Steier, P., Quinto, F., Mino, K., Tomita, J., Hoshi, M., Whitehead, N. und Yamamoto, M. First results on U-236 levels in global fallout. *Science of The Total Environment*, 407(14):4238–4242, JUL 1 2009.

- [Sak10] Sakaguchi, A., Kawai, K., Steier, P., Imanaka, T., Hoshi, M., Endo, S., Zhumadilov, K. und Yamamoto, M. Feasibility of using U-236 to reconstruct close-in fallout deposition from the Hiroshima atomic bomb. *Science of The Total Environment*, 408(22):5392–5398, OCT 15 2010.
- [Sak12] Sakaguchi, A., Kadokura, A., Steier, P., Tanaka, K., Takahashi, Y., Chiga, H., Matsushima, A., Nakashima, S. und Onda, Y. Isotopic determination of U, Pu and Cs in environmental waters following the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident. *Geochemical Journal*, 46:355–360, 2012.
- [Sak14] Sakaguchi, A., Steier, P., Takahashi, Y. und Yamamoto, M. Isotopic Compositions of U-236 and Pu Isotopes in "Black Substances" Collected from Roadsides in Fukushima Prefecture: Fallout from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant Accident. *Environmental Science & Technology*, 48(7):3691–3697, April 2014.
- [Sch12] Schwantes, J. M., Orton, C. R. und Clark, R. A. Analysis of a Nuclear Accident: Fission and Activation Product Releases from the Fukushima Daiichi Nuclear Facility as Remote Indicators of Source Identification, Extent of Release, and State of Damaged Spent Nuclear Fuel. *Environmental Science & Technology*, 46:8621–8627, 2012.
- [Sch13a] Schneider, S. Untersuchung von Bodenproben aus Fukushima in Bezug auf Pu Isotopenverteilung mittels AMS. *Masterarbeit am Institut für Radioökologie und Strahlenschutz, Leibniz Universität Hannover*, 2013.
- [Sch13b] Schneider, S., Walther, C., Bister, S., Schauer, V., Christl, M., Synal, H.-A., Shozugawa, K. und Steinhauser, G. Plutonium release from Fukushima Daiichi fosters the need for more detailed investigations. *Scientific Reports*, 3, OCT 18 2013.
- [Shi14] Shinonaga, T., Steier, P., Lagos, M. und Ohkura, T. Airborne Plutonium and Non-Natural Uranium from the Fukushima DNPP Found at 120 km Distance a Few Days after Reactor Hydrogen Explosions. *Environmental Science & Technology*, 48(7):3808–3814, April 2014.
- [Ste08] Steier, P., Bichler, M., Fifield, L. K., Golser, R., Kutschera, W., Priller, A., Quinto, F., Richter, S., Srncikf, M., Terrasi, P., Wacker, L., Wallner, A., Wallner, G., Wilcken, K. M. und Wild, E. M. Natural and anthropogenic U-236 in environmental samples. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 266(10):2246–2250, MAY 2008. 9th European Conference on Accelerators in Applied Research and Technology, Florence, ITALY, SEP 03-07, 2007.

- [Ste13] Steinhauser, G., Schauer, V. und Shozugawa, K. Concentration of Strontium-90 at Selected Hot Spots in Japan. *PLoS ONE*, 8:1–5, 2013.
- [Ste14] Steinhauser, G., Brandl, A. und Johnson, T. E. Comparison of the Chernobyl and Fukushima nuclear accidents: A review of the environmental impacts (vol 470, pg 800, 2014). *Science of The Total Environment*, 487:575, JUL 15 2014.
- [Ste15] Steinhauser, G., Niisoe, T., Harada, K. H., Shozugawa, K., Schneider, S., Synal, H.-A., Walther, C., Christl, M., Nanba, K., Ishikawa, H. und Koizumi, A. Post-Accident Sporadic Releases of Airborne Radionuclides from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant Site. *Environmental Science & Technology*, 49(24):14028–14035, DEC 15 2015.
- [Tan14] Tanaka, K., Shimada, A., Hoshi, A., Yasuda, M., Ozawa, M. und Kameo, Y. Radiochemical analysis of rubble and trees collected from Fukushima Daiichi Nuclear Power Station. *Journal of Environmental Radioactivity*, 51(7-8, SI):1032–1043, JUL-AUG 2014.
- [Taw12] Tawussi, F. Gammaskopmetrische Untersuchung von Umweltproben - Von der natürlichen Radioaktivität bis zum Fallout von Fukushima. *Masterarbeit am Institut für Radioökologie und Strahlenschutz, Leibniz Universität Hannover*, 2012.
- [Voc11] Vockenhuber, C., Christl, M., Hofmann, C., Lachner, J., Müller, A. M. und Synal, H.-A. Accelerator mass spectrometry of U-236 at low energies . *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 269(24):3199 – 3203, 2011. Proceedings of the 10th European Conference on Accelerators in Applied Research and Technology (ECAART10).
- [Wac05] Wacker, L., Chamizo, E., Fifield, L., Stocker, M., Suter, A. und Synal, H. Measurement of actinides on a compact AMS system working at 300 kV. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 240:452–457, 2005.
- [Wal16] Walther, C., Brozynski, P. und Dubchak, S. Tschernobyl - 30 Jahre danach. *Physik Journal*, 3:31 – 37, März 2016.
- [Wei94] Weise, K. und Wöger, W. Comparison of two measurement results using the Bayesian theory of measurement uncertainty. *Measurement Science and Technology*, 5:879–882, 1994.
- [Xu16] Xu, C., Zhang, S., Sugiyama, Y., Ohte, N., Ho, Y.-F., Fujitake, N., Kaplan, D. I., Yeager, C. M., Schwehr, K. und Santschi, P. H. Role of natural

- organic matter on iodine and Pu-239,240 distribution and mobility in environmental samples from the northwestern Fukushima Prefecture, Japan. *Journal of Environmental Radioactivity*, 153:156–166, MAR 2016.
- [Yam12a] Yamamoto, M., Takada, T., Nagao, S., Koike, T., Shimada, K., Hoshi, M., Zhumadilov, K., Shima, T., Fukuoka, M., Imanaka, T., Endo, S., Sakaguchi, A. und Kimura, S. An early survey of the radioactive contamination of soil due to the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident, with emphasis on plutonium analysis. *Geochemical Journal*, 46:341–353, 2012.
- [Yam12b] Yamamoto, T. Radioactivity of fission product and heavy nuclides deposited on soil in Fukushima Dai-Ichi Nuclear Power Plant accident. *Journal of Nuclear Science and Technology*, 49(12):1116–1133, DEC 2012.
- [Yam14] Yamamoto, M., Sakaguchi, A., Ochiai, S., Takada, T., Hamataka, K., Murakami, T. und Nagao, S. Isotopic Pu, Am and Cm signatures in environmental samples contaminated by the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. *Journal of Environmental Radioactivity*, 132:31–46, JUN 2014.
- [Yan16] Yang, G., Tazoe, H. und Yamada, M. Determination of U-236 in environmental samples by single extraction chromatography coupled to triple-quadrupole inductively coupled plasma-mass spectrometry. *Analytica Chimica Acta*, 944:44 – 50, 2016.
- [Zhe12] Zheng, J., Tagami, K., Watanabe, Y., Uchida, S., Aono, T., Ishii, N., Yoshida, S., Kubota, Y., Fuma, S. und Ihara, S. Isotopic evidence of plutonium release into the environment from the Fukushima DNPP accident. *Scientific Reports*, 2:1–8, 2012.
- [Zhe13] Zheng, J., Tagami, K. und Uchida, S. Release of Plutonium Isotopes into the Environment from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant Accident: What Is Known and What Needs to Be Known. *Environmental Science & Technology*, 47(17):9584–9595, SEP 3 2013.

Danksagung

Diese Arbeit wäre ohne die Hilfe und Unterstützung vieler Menschen so nicht möglich gewesen, daher möchte ich ihnen an dieser Stelle danken.

Mein Dank gilt vor allem Herrn Prof. Dr. Clemens Walther für das Ermöglichen dieser Arbeit und die stets hilfsbereite Unterstützung.

Herrn Prof. Dr. Georg Steinhauser danke ich für die freundliche Übernahme des Korreferats und für die Hilfe bei der Beschaffung des Probenmaterials.

Ganz besonders möchte ich mich bei Dr. Stefan Bister bedanken für seine immerwährende Hilfsbereitschaft bei vielen Fragen und Problemen.

Dr. Marcus Christl möchte ich danken für die Durchführung der vielen Messungen am Tandy, speziell für das Ermöglichen der letzten Messungen, die viele Probleme verursacht haben!

Weiterhin möchte ich mich bei Frank Tawussi bedanken für die große Hilfe bei der Auswertung der γ -Messungen und für die stets gute Stimmung im Büro.

Bei Linda Hamann möchte ich mich für die große Unterstützung und die harmonische Begleitung auf den vielen Dienstreisen bedanken.

Ich danke allen Mitgliedern des Institut für Radioökologie und Strahlenschutz für ihre Freundlichkeit, Hilfsbereitschaft und Unterstützung.

Ingmar möchte ich für den starken Rückhalt und die erstellten Grafiken bedanken!

Weiterhin danke ich meinen Kommilitonen Sebastian, Meister, Joni und René, für die schöne Zeit und die Begleitung durchs Studium!

Schließlich möchte ich mich noch bei meiner Familie von ganzem Herzen bedanken, die mir alles ermöglicht haben.

Wissenschaftlicher Werdegang

Studium

- 10/2007 - 12/2010 Bachelor of Science Physik
Bachelorarbeit am Laser-Zentrum-Hannover
Titel: *Charakterisierung der Laserstrahlabbildung und der optischen Abbildung durch ein GRIN-Objektiv für die Multiphotonenmikroskopie*
- 10/2010 - 05/2013 Master of Science Physik
Masterarbeit am Institut für Radioökologie und Strahlenschutz
Titel: *Untersuchung von Bodenproben aus Fukushima in Bezug auf Pu Isotopenverhältnis mittels AMS*
- seit 06/2016 Promotion Physik

Veröffentlichungen

- 2013 St. Schneider, C.Walther, St. Bister, V. Schauer, M. Christl, H.-A. Synal, K. Shozugawa, G. Steinhauser, *Plutonium release from Fukushima Daiichi fosters the need for more detailed investigations*, Scientific Reports 3 , Oct 2013
- 2015 G. Steinhauser, T. Niisoe, K.H. Harada, K. Shozugawa, St. Schneider, H.-A. Synal, C. Walther, M. Christl, K. Nanba, H. Ishikawa, A. Koizumi, *Post-Accident Sporadic Releases of Airborne Radionuclides from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant Site*, Environ. Sci. Technol. 49, Dec 2015

Vorträge/Poster

- 2013 Vortrag, DPG Frühjahrstagung Hannover,
St. Schneider: *Investigation of samples from Fukushima with regard to Pu-isotope ratios by AMS*
- 2014 Poster, WE-Heraeus Physics School,
St. Schneider, St. Bister, C. Walther: *The accident of Fukushima: Determination of plutonium isotopes in environmental samples*
- 2015 Vortrag, DPG Frühjahrstagung Heidelberg,
St. Schneider, M. Christl, G. Steinhauser, C. Walther: *Determination of plutonium and uranium in environmental samples from Fukushima*
- 2015 Vortrag, MARC X Kailua Kona,
St. Schneider, M. Christl, G. Steinhauser, C. Walther: *Determination of plutonium and uranium in environmental samples from Fukushima*

Sonstiges

- 10/2012 - 03/2013 Studentische Hilfskraft
Bearbeitung von Vorlesungsfolien und des Vorlesungsskripts

Erklärung

Hiermit versichere ich, die vorliegende Arbeit selbstständig verfasst und keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel benutzt sowie die Zitate kenntlich gemacht zu haben.

Hannover, den 09.02.2017

Stephanie Schneider