

Vertikale Migration von Radionukliden in Böden der
kontaminierten Gebiete um Tschernobyl

Masterarbeit

am
Institut für Radioökologie und Strahlenschutz
der Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover,
Fakultät für Mathematik und Physik

von

Daniel Heine

Abgabedatum: 17.10.2017

Erstprüfer: Prof. Dr. Clemens Walther

Zweitprüfer: Prof. Dr. Georg Steinhauser

Selbstständigkeitserklärung

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

Hannover, den 17.10.2017

Daniel Heine

Inhaltsverzeichnis

1. Einleitung	5
1.1. Der Reaktorunfall von Tschernobyl	5
1.1.1. RBMK-Reaktoren	5
1.1.2. Unfallhergang	6
1.2. Freigesetzte Radionuklide	7
1.3. Eigenschaften der untersuchten Radionuklide	8
1.3.1. Cäsium und Strontium	8
1.3.2. Säkulares Gleichgewicht	10
1.3.3. Plutonium und Americium	11
2. Verwendete Messverfahren	14
2.1. γ -Spektrometrie	14
2.1.1. Wechselwirkungen mit Materie	14
2.1.2. Aktivitätsbestimmung	16
2.2. α -Spektrometrie	17
2.2.1. Prinzip der Messungen und Vergleich mit der γ -Spektrometrie	17
2.2.2. Messung und Auflösung von Alpha-Spektren	19
2.2.3. Aktivitätsbestimmung	19
2.3. Liquid Scintillation Counting (LSC)	21
2.3.1. Prinzip der LSC-Messung	21
2.3.2. Quench-Korrektur	22
2.3.3. 2-Fenster Methode	23
2.3.4. Kalibrierung	25
2.4. Messunsicherheiten und charakteristische Grenzen	25
3. Probenaufbereitung	26
3.1. Probenahme und Einteilung	26
3.2. Präparation für die Gamma-Spektrometrie	28
3.3. Veraschung und Aufschluss der Proben	28
3.4. Vorbereitung für die Alphaspektrometrie	29
3.4.1. Plutonium-Trennung	29
3.4.2. Elektrodeposition	31
3.5. Verarbeitung der Strontium-Fractionen	33
3.5.1. Strontium-Trennung	33
3.5.2. Herstellung der LSC-Präparate	34
4. Ergebnisse	35
4.1. Validierung der Messverfahren	35
4.2. Ergebnisse für Cs-137 und Am-241	35
4.3. Ergebnisse für Plutonium	38
4.4. Ergebnisse für Sr-90	40

5. Diskussion	41
5.1. Vergleich der Bohrkerne miteinander	41
5.2. Vergleich der Tiefenprofile unterschiedlicher Nuklide	42
5.3. Bodenbeschaffenheit	45
5.4. Aktivitätsverhältnisse	47
5.4.1. Plutoniumisotope	47
5.5. Mathematische Modellierung von Aktivitätsverteilungen	51
5.5.1. Modell zur Migration von Plutonium	51
5.5.2. Modellierung der Verteilung von Americium	52
5.5.3. Ergebnisse und Vergleich mit Messungen	53
5.6. Vergleich mit anderen Arbeiten	56
5.7. Zusammenfassung und Ausblick	57
A. Versuchsvorschriften	63
B. Messdaten	68
C. Danksagung	71

1. Einleitung

1.1. Der Reaktorunfall von Tschernobyl

Der Reaktorunfall von Tschernobyl ist allgemein als der drastischste und folgenschwerste Zwischenfall im Zusammenhang mit der zivilen Nutzung der Kernenergie bekannt. Dieser Unfall führte zu einer erheblichen Freisetzung von Radionukliden und einer großräumigen Verteilung der freigesetzten Aktivität über weite Teile Europas. Die heutigen Staatsgebiete der Ukraine und Weißrussland sind dabei am stärksten von der resultierenden Kontamination der freigesetzten Radionuklide betroffen. Auf der INES-Skala, die internationale Bewertungsskala für nukleare Zwischenfälle, wurde der Unfall von Tschernobyl als katastrophaler Unfall in der höchsten möglichen Stufe (7) eingeordnet. Die Stadt Pripjat befindet sich in mitten der sogenannten Chernobyl Exclusion Zone (CEZ), welche die am stärksten kontaminierte Region in der direkten Umgebung des havarierten Kernreaktors darstellt und ein insgesamt 3500km² großes Gebiet umfasst. [20] Das Zentrum der Stadt Pripjat befindet sich in einem Abstand von ca. 4km Luftlinie zum Reaktor. Auf Grund dieser relativen Nähe wurde sie in Folge des Unfalls vollständig evakuiert und ist bis heute nicht bewohnt.

Zum Zeitpunkt des Unfalls Ende April 1986 lebten etwa 49360 Menschen in Pripjat. Die Stadt wurde im Februar 1970 gebaut, um als Wohnort für die Arbeiter des Tschernobyl Kernkraftwerks und deren Familien zu dienen.[20]

In dieser Arbeit wurden Bodenprofile untersucht, welche am Stadtrand von Pripjat in einer Entfernung von etwa 3,2km Luftlinie zum havarierten Reaktor entnommen wurden. Diese Proben wurden auf die vertikale Aktivitätsverteilung von Cs-137, Sr-90, Am-241 und der Plutoniumisotope Pu-238, Pu-239 und Pu-240 untersucht, um Informationen über das Migrationsverhalten dieser Radionuklide in Böden zu erhalten, deren Vorhandensein auf die Kontamination in Folge des Reaktorunfalls zurückzuführen ist.

1.1.1. RBMK-Reaktoren

Bei allen 6 Reaktoren des Kernkraftwerks von Tschernobyl handelte es sich um RBMK-Reaktoren. Bei diesem sowjetischen Reaktortyp handelt es sich um graphitmoderierte Siedewasser-Druckröhren-Reaktoren. Der Reaktorkern besteht dabei aus einem Graphitblock, in welchem sich 1700 Druckröhren befinden. In den Druckröhren sind die Brennelemente eingelassen, welche von Wasser umströmt werden. Das Wasser sorgt für den Wärmetransport im Reaktorkern und treibt als Dampf die Turbinen für die Stromerzeugung an. Desweiteren fungierte das Wasser im Reaktor als Neutronenabsorber, sorgt also für eine Reduktion der für die Spaltung zur Verfügung stehenden thermischen Neutronen. Verdampft im Reaktor durch einen Leistungsanstieg mehr Wasser, so werden auch weniger Neutronen vom Wasser eingefangen, wodurch der Neutronenmultiplikationsfaktor ansteigt und somit zur einem weiteren Anstieg in der Leistung des Reaktors führt. Dieser Effekt wird als positiver Dampfblasenkoeffizient bezeichnet und zählt zu den Ursachen für den Reaktorunfall in Tschernobyl. Neben der zivilen Nutzung zur Stromerzeugung hatten RBMK-Reaktoren vor allem auch eine militärische Bedeutung, da sie auf das Erbrüten von Plutonium ausgelegt waren. Dieser Reaktor-Typ hat dabei



Abbildung 1: Der havarierte Reaktorblock 4 des Kernkraftwerks von Tschernobyl [2]

den großen Vorteil, dass der Austausch von Brennelementen auch während des Betriebs erfolgen kann ([1],[2], [3], [4]).

1.1.2. Unfallhergang

Der Unfall ereignete sich in der Nacht vom 25. auf den 26. April 1986 in Folge eines Tests zur Notstromversorgung. Ziel war es zu untersuchen, ob nach der automatischen Abschaltung des Reaktors bei einem Stromausfall die Rotationsenergie in den Turbinen-Generator-Sätzen genutzt werden könnte, um die Hauptspeisepumpe lange genug mit Strom zu versorgen, bis die Notstromaggregate zu voller Leistung hochgefahren sind. Dieser Vorgang nimmt 40-50 Sekunden in Anspruch, welche zu überbrücken sind. Zur Vorbereitung des Versuchs wurde die Reaktorleistung seit den frühen Morgenstunden des 25. April systematisch herabgefahren und anschließend das Notkühlsystem isoliert. Kurz darauf musste der Versuch abgebrochen werden, da aus Kiew der Weiterbetrieb angefordert wurde, um den Bedarf des Stromnetzes zu decken. Das Notkühlsystem wurde jedoch nicht wieder aktiviert. Nachdem der Bedarf gedeckt war, wurde die Reaktorleistung erneut herabgefahren, mit dem Ziel, 25 Prozent einzustellen. Jedoch fiel die Leistung weiter ab, als erwartet wurde, und sank bis auf 1 Prozent der Nennleistung des Reaktors. Da ein Betrieb im Leistungsbereich unter 20 Prozent unzulässig war, wurden die Regelstäbe aus dem Reaktor heraus gefahren, um die Leistung wieder anzuheben. Am 26. April um 1:23 Uhr begann dann der vorgesehene Versuch mit dem Schließen der

Turbinenschnellschlussventile. Anschließend wurden 2 von 3 Gruppen an Regelstäben wieder in den Reaktor gefahren, um für eine Kompensierung des verringerten Durchsatzes und der Erwärmung des Wassers zu sorgen. Jedoch kam es 30 Sekunden nach Beginn des Tests zu einem rapiden Leistungsanstieg im Reaktor, sodass der Schichtleiter nur wenige Sekunden darauf die sofortige Abschaltung des Reaktors befahl. Dies begünstigte jedoch entgegen den Erwartungen den bereits laufenden Leistungsanstieg sogar. Da die aus Graphit bestehenden Spitzen der Abschaltstäbe keine Neutronen absorbieren, jedoch beim Einfahren Neutronen-absorbierendes Wasser verdrängen, entstand ein Zuwachs in der Neutronenzahl, welcher die Leistung binnen Sekunden bis auf das 100-fache der Nennleistung des Reaktors ansteigen lies. Der rapide Leistungsanstieg führte zu zwei Explosionen, in deren Folge Teile des Reaktorblock und das Dach des Reaktorgebäudes zerstört wurden. Außerdem wurde ein Graphitbrand im beschädigten und nun auch frei liegenden Reaktorblock durch die Explosionen hervorgerufen, welcher erst nach 10 Tage gelöscht werden konnte ([2], [4],[11], [13]).

1.2. Freigesetzte Radionuklide

In Folge der Explosionen und des daraufhin über einen Zeitraum von 10 Tagen andauernden Graphitbrandes wurden große Mengen an radioaktivem Material freigesetzt. Durch thermischen Auftrieb gelangten einige leichtflüchtige Radionuklide wie die Cäsiumisotope Cs-134 und Cs-137 sowie I-131 in Höhen von bis zu 1500m und wurden so über weite Teile Europas verteilt. Schwerer flüchtige Radionuklide wie Sr-89, Sr-90 und Plutonium hingegen wurden zu größten Teilen in Form von einige μm bis mm großen Partikeln aus dem Reaktor in der direkten Umgebung des Kraftwerks innerhalb eines 30km-Radius deponiert. Die durch den Unfall insgesamt freigesetzte Aktivität aller Radionuklide beläuft sich auf etwa 5000 PBq. Hinzu kommt eine Aktivität von etwa 6500 PBq an Edelgasen (wie Xe-133), welche jedoch nur unwesentlichen Einfluss auf die Strahlenexposition der Bevölkerung haben, da sie auf Grund ihrer chemischen Eigenschaften nicht im Körper aufgenommen werden und des weiteren relativ kurze Halbwertszeiten aufweisen ([2],[4]).

Nuklid	Halbwertszeit	Freigesetzte Aktivität [PBq]
Cs-134	2,1 a	47
Cs-137	30,0 a	85
Pu-238	87,7 a	0,015
Pu-239	24061 a	0,013
Pu-240	6561 a	0,018
Pu-241	14,35	2,6
Pu-242	375000 a	0,0004
Sr-89	50,5 d	115
Sr-90	29,1 a	10

Tabelle 1: Auszug der zum Zeitpunkt des Unfalls freigesetzten Aktivitäten der Isotope von Cäsium, Plutonium und Strontium mit den zugehörigen Halbwertszeiten [21].

Auf Grund der Zeit, die seit dem Unfall vergangen ist, haben sich die Aktivitäten von relativ kurzlebigen Nukliden wie Cs-134 bereits um mehrere Größenordnungen reduziert. Nuklide mit noch kürzeren Halbwertszeiten im Bereich von einigen Tagen (beispielsweise I-131) können trotz der erheblichen Mengen, die freigesetzt wurden, inzwischen als praktisch vollständig zerfallen betrachtet werden. Ausschlaggebend für die Kontamination im direkten Umfeld des Reaktors sind heute, über 30 Jahre nach dem Unfall vor allem das Cs-137 und das Sr-90. Des weiteren sind, auf Grund ihrer vergleichsweise langen Halbwertszeiten die Plutoniumisotope Pu-238, Pu-239 und Pu-240 interessant. Zudem ist in der Umwelt vorkommendes Plutonium fast ausschließlich anthropogenen Ursprungs und weist eine hohe Radiotoxizität auf.

Zusätzlich wird auch Am-241 in dieser Arbeit betrachtet, da dieses als Tochternuklid des Pu-241 gebildet wird und auf Grund der gegenüber dem Pu-241 vergleichsweise langen Halbwertszeit eine größere langzeitliche Relevanz für die Kontamination besitzt. In den folgenden Abschnitten wird auf die Eigenschaften und Zerfallsschemata der in dieser Arbeit untersuchten Nuklide im Detail eingegangen.

1.3. Eigenschaften der untersuchten Radionuklide

1.3.1. Cäsium und Strontium

Cs-137 und Sr-90 sind Produkte, die aus der Spaltung von U-235 und Pu-239 entstehen. Mit Halbwertszeiten von 30,2 bzw. 28,8 Jahren sind beide relativ langlebig. Das bedeutet, dass heute noch etwa die Hälfte des beim Unfall freigesetzten Inventars an Cs-137 und Sr-90 in der Umwelt vorhanden ist. Somit sind diese beiden Nuklide im Bezug auf die aktuell vorhandene Kontamination im direkten Umfeld des Tschernobyl Kernkraftwerks von größter Relevanz.

Bei beiden Nukliden handelt es sich um Beta-Minus-Strahler, bei deren Zerfall ein Elektron und ein Anti-Elektronen-Neutrino emittiert wird. Gleichung (1) zeigt den schema-

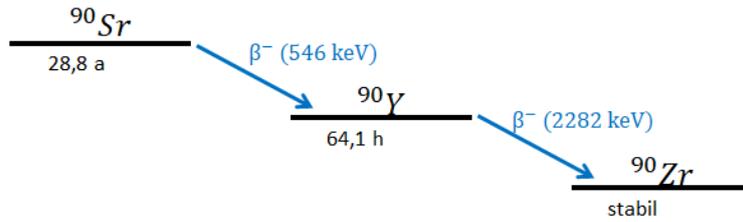


Abbildung 2: Zerfallsschema von Sr-90.

tischen Ablauf des Beta-Minus Zerfalls:



Abbildung 2 zeigt die Zerfallskette des Sr-90. Dieses zerfällt über einen Beta-Minus-Zerfall zum Y-90. Das β^- -Teilchen kann dabei eine maximale Energie von 546 keV aufweisen. Das Y-90 ist ebenfalls ein Beta-Minus-Strahler und zerfällt zum stabilen Y-90. Die maximale Energie des β^- -Partikels ist bei diesem Zerfall mit 2282 keV jedoch deutlich höher und kann somit als zusätzlicher Peak in einem Spektrum identifiziert werden (siehe Kap. 2.3, Abb. 10). Des Weiteren weist Y-90 mit 64,1 h eine deutlich kürzere Halbwertszeit als das Sr-90 auf. Daher ist für die Aktivitätsberechnung von Sr-90 auch das säkulare Gleichgewicht von Relevanz (siehe Kap. 1.3.2).

In Abbildung 3 ist das Zerfallsschema von Cs-137 zu sehen. Für den Zerfall zum stabilen Isotop Ba-137 gibt es zwei mögliche Wege. Mit einer Wahrscheinlichkeit von 5,4 Prozent vollzieht sich ein direkter Übergang mit einer maximalen β^- -Energie von 1174 keV in den Grundzustand des Ba-137. Der mit einer Wahrscheinlichkeit von 94,6 Prozent weitaus häufigere Zerfallsweg ist jedoch mit einer Energie von maximal 512 keV in den metastabilen Zustand Ba-137m. Hierbei befindet sich der entstandene Kern in einem energetisch angeregten Zustand. Dieser ist mit 2,55 Minuten relativ kurzlebig. Der Übergang in den Grundzustand des Kerns wird durch die Emission von γ -Quanten erreicht, wobei der wahrscheinlichste Übergang (85,1 Prozent) durch die Emission eines einzelnen γ -Quants mit einer Energie von 661 keV einhergeht. Die hohe Wahrscheinlichkeit für einen Zerfall zum kurzlebigen Ba-137m ist der Grund dafür, dass sich die Gamma-Spektrometrie gut zum Nachweis des Cs-137 eignet.

Cäsium gehört zu den Alkalimetallen und ist somit als Homolog dem Kalium chemisch sehr ähnlich. Aufgrund dieser chemischen Ähnlichkeit zum für alle bekannten Lebewesen essentiellen Kalium, In der Natur tritt Cäsium praktisch ausschließlich als einwertig positives Kation auf und kann stark durch Bodenminerale sorbiert werden. Dies führt dazu, dass es allgemein eine relativ geringe Mobilität in Böden besitzt.

Strontium gehört zu den Erdalkimetallen und ist somit den Homologen Calcium und Barium chemisch ähnlich. Analog dem Cäsium kann in den Körper aufgenommen werden

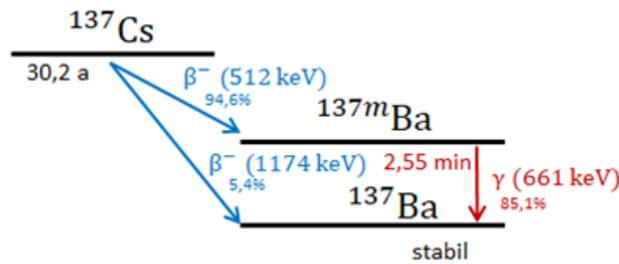


Abbildung 3: Zerfallsschema von Cs-137

und ist damit für die Ingestionsdosis von großer Bedeutung. In der Natur tritt Strontium als zweiwertig positives Kation auf und bildet insbesondere mit Carbonaten und Sulfaten schwerlösliche Verbindungen. In Böden hingegen wird es weniger stark als Cäsium gebunden und weist daher generell eine höhere Mobilität als dieses auf ([4], [6], [17]).

1.3.2. Säkulares Gleichgewicht

Mutter- und Tochternuklid weisen in der Regel unterschiedliche Halbwertszeiten auf. In Abhängigkeit vom Verhältnis der beiden Halbwertszeiten zueinander kann sich für die Aktivität der beiden Nuklide eine von drei verschiedenen Gleichgewichtssituationen einstellen:

- **Transientes Gleichgewicht**
- **Säkulares Gleichgewicht**
- **Kein Gleichgewicht**

In dieser Arbeit ist insbesondere das säkulare Gleichgewicht relevant. Dieses ergibt sich, wenn das Mutternuklid (1) eine deutlich längere Halbwertszeit aufweist als das zugehörige Tochternuklid (2) ($\tau_1 \gg \tau_2$). Für die Zerfallskonstanten folgt somit $\lambda_2 \gg \lambda_1$. Das Aktivitätsverhältnis beider Nuklide ergibt sich zu:

$$A_2(t) = A_1(t) \cdot (1 - \exp(-\lambda_2 t)) \quad (2)$$

$A_2(t)$ entspricht dabei der Aktivität des Tochternuklids und $A_1(t)$ der Aktivität des Mutternuklids in Abhängigkeit von der Zeit t . Für sehr lange Zeiträume ($t \rightarrow \infty$) ergibt sich auf Grund des Verhaltens der Exponentialfunktion mit $\lim_{x \rightarrow \infty} \exp(-\lambda_2 t) = 0$ für (2):

$$A_2(t) = A_1(t) \quad (3)$$

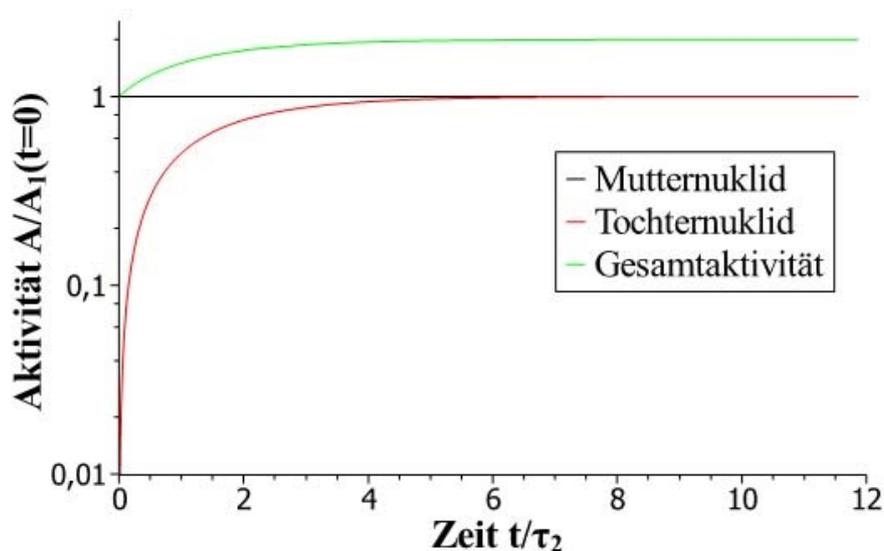


Abbildung 4: Darstellung des Säkularen Gleichgewichts für die Aktivität des Mutternuklids A_1 und der Halbwertszeit des Tochternuklids τ_2 [7]

Die Aktivität des Tochternuklids nähert sich mit der Zeit asymptotisch an die Aktivität des Mutternuklids an. Abbildung 4 zeigt eine grafische Darstellung dieser Gleichgewichtssituation.

Auch wenn es sich in der Theorie um eine asymptotische Annäherung der handelt, so können Mutter- und Tochternuklid in der Praxis nach 10 Halbwertszeiten der Tochter in einem abgeschlossenen System als „im säkularen Gleichgewicht befindlich“ angesehen werden. Für das Verhältnis der Aktivitäten im säkularen Gleichgewicht folgt aus (3) direkt:

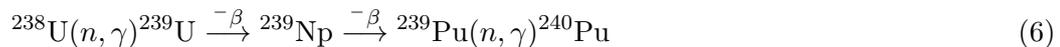
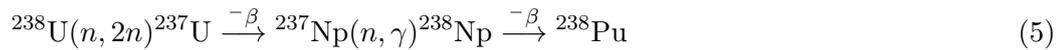
$$\frac{A_2(t)}{A_1(t)} = 1 \quad (4)$$

Das Säkulare Gleichgewicht ist bei der Betrachtung von Cs-137 und Sr-90 relevant. Im Fall des Sr-90 vergehen etwa 3 Wochen bis ein Gleichgewicht mit Y-90 angenommen werden kann. Auf Grund des sehr kurzlebigen Ba-137m kann dieses bereits nach weniger als 30 Minuten als mit Cs-137 im Gleichgewicht befindlich angenommen werden ([7],[19]).

1.3.3. Plutonium und Americium

Im Gegensatz zu Strontium und Cäsium handelt es sich bei Plutonium um kein Spalt-, sondern um ein Brutprodukt. Ausgangspunkt für die Entstehung von Plutonium in

Kernreaktoren ist der Neutroneneinfang von U-238. Hieraus ergeben sich unterschiedliche Reaktionswege, die zur Bildung der verschiedenen Plutoniumisotope führen. Gleichung (5) zeigt den Weg zur Bildung von Pu-238. Hierbei gibt das durch Neutroneneinfang aus U-238 entstandene U-239 zwei Neutronen ab ((n, 2n)-Reaktion) und wird zu U-237. Über einen Beta-Minus-Zerfall entsteht zunächst Np-237, welches durch einen weiteren Neutroneneinfang, eine (n, γ)-Reaktion, zu Np-238 wird. Durch einen zweiten Beta-Minus-Zerfall entsteht hieraus Pu-238. Beim zweiten Weg (Gleichung (6)) entsteht U-239 im ersten Schritt durch eine (n, γ)-Reaktion. Über Beta-Minus-Zerfälle entstehen im folgenden Np-239 und Pu-239. Durch weitere (n, γ)-Reaktionen der so entstandenen Plutoniumisotope können auch schwerere Isotope gebildet werden.



Bei den Plutoniumisotopen Pu-238, Pu-239 und Pu-240 handelt es sich um α -Strahler für deren Zerfall die folgende Reaktionsgleichung gilt:



Das Mutternuklid X zerfällt hierbei unter Emission eines Heliumkerns (α -Teilchen) in das Tochternuklid Y. Die Energie des emittierten α -Partikels ist dabei charakteristisch für das jeweilige Nuklid. Zum Nachweis von Pu-238 eignet sich die α -Spektrometrie. Auf Grund der sehr ähnlichen α -Energien von Pu-239 und Pu-240 können diese beiden Nuklide mit der α -Spektrometrie nur zusammen gemessen werden.

Nuklid	Halbwertszeit [a]	Energie [MeV]	Wahrscheinlichkeit in Prozent
Pu-238	87,7	5499	70,9
		5456	29,0
Pu-239	$2,411 \cdot 10^4$	5157	70,8
		5144	17,1
		5106	11,9
Pu-240	$6,561 \cdot 10^3$	5168	72,8
		5124	27,1

Tabelle 2: Untersuchte Plutoniumisotope, die einen α -Zerfall vollziehen mit Halbwertszeiten und Zerfallsenergien [3].

Im Gegensatz zu den oben genannten Isotopen handelt es sich bei Pu-241 um einen Beta-Minus-Strahler mit einer Halbwertszeit von 14,35 Jahren. In dieser Arbeit wird Pu-241 nicht explizit bestimmt. Durch den Zerfall von Pu-241 wird jedoch das deutlich langlebigere Am-241 (Halbwertszeit: 432,6 Jahre) gebildet. Bei Am-241 handelt es sich

wiederum um einen α -Strahler, der auch über eine charakteristische γ -Linie bei 59,54 keV verfügt. Zur Bestimmung von Am-241 wurde in dieser Arbeit die γ -Spektrometrie verwendet.

Plutonium und Americium gehören zu den Actiniden, deren chemisches Verhalten deutlich komplexer als das von Alkali- und Erdalkalimetallen wie Cäsium und Strontium ist. In wässriger Lösung kann Plutonium in den Oxidationszuständen +3, +4, +5, und +6 vorkommen. Unter Umweltbedingungen kommt es jedoch am häufigsten im vierfach positiven Zustand vor. Americium hingegen befindet sich in dem meisten Fällen im dreifach positiven Zustand und verfügt verglichen mit Plutonium über eine größere Mobilität. Der Transport in Böden hängt jedoch stark von zahlreichen physikalischen und chemischen Eigenschaften des jeweiligen Bodens wie Dichte, pH-Wert und Zusammensetzung des Bodens (beispielsweise Sand-, oder Tongehalt) ab. Die Mobilität verschiedener Elemente und somit auch von deren Radionukliden können durch den unterschiedlichen Einfluss dieser Bodenparameter stark variieren ([1],[3], [4], [8]).

2. Verwendete Messverfahren

Im folgenden Kapitel werden die Grundlagen der in dieser Arbeit verwendeten radio-metrischen Messverfahren dargestellt und erläutert. Begonnen wird mit einer kurzen Beschreibung der Gamma-Spektrometrie. Die Darstellung hier basiert im wesentlichen auf der ausführlicheren Beschreibung des Verfahrens, welche in der Arbeit [19] zu finden ist.

Im Anschluss daran folgen die Beschreibung der Alpha-Spektrometrie und des Verfahrens der Flüssigzintillations-Messung (LSC). Im letzten Abschnitt wird auf die Ermittlung von Messunsicherheiten und charakteristischen Grenzen eingegangen.

Zur Auswertung der Messergebnisse wird in dieser Arbeit für alle Verfahren die spezifische Aktivität a der Proben betrachtet. Die spezifische Aktivität a entspricht der Aktivität A einer Probe in Bezug auf deren Masse. Die Einheit für a ist Bq/kg und liefert die für die Auswertung benötigte Unabhängigkeit von der Probenmasse.

2.1. γ -Spektrometrie

2.1.1. Wechselwirkungen mit Materie

Für die Wechselwirkung von Gamma-Strahlung mit Materie sind im Wesentlichen drei fundamentale Prozesse von Bedeutung. Diese werden im Folgenden kurz beschrieben.

Photoeffekt

Beim Photoeffekt trifft ein einfallendes Gamma-Photon auf ein Hüllenelektron und wird dabei von diesem vollständig absorbiert. Das Elektron gewinnt dabei genügend Energie, um die Bindungsenergie des Atoms zu überwinden und die Hülle zu verlassen. Die Differenz zwischen der Energie des Photons E_γ und der Bindungsenergie E_{bind} bekommt das Elektron dabei als kinetische Energie $E_{\text{e,kin}}$ gemäß (8) mit auf seinen Weg:

$$E_{\text{e,kin}} = E_\gamma - E_{\text{bind}} \quad (8)$$

Elektronen mit ausreichender kinetischer Energie können durch Wechselwirkung mit dem Detektormaterial auch Sekundärelektronen erzeugen, wobei die Anzahl der so erzeugten Elektronen proportional zur ursprünglichen kinetischen Energie des primären Elektrons ist.

Wird ein Elektron aus einer tieferen Schale ausgelöst, wird die so entstandene Lücke durch ein Elektron aus einer höheren Schale aufgefüllt werden. Die Energiedifferenz der beiden Zustände wird dabei in Form von für diesen Übergang charakteristischer Röntgenstrahlung abgestrahlt, welche wiederum andere Atome ionisieren kann [7].

Comptoneffekt

Beim Comptoneffekt findet eine inelastische Streuung eines Gamma-Photons an Elektronen der Atomhülle statt. Das einfallende Photon überträgt dabei nur einen Teil seiner

Energie auf das Elektron mit dem es in Wechselwirkung tritt. Nach der Streuung bewegen sich das Photon und das Elektron in einem Winkel θ zueinander weiter. Die Energie, die das Elektron dabei erhält, ist abhängig vom Streuwinkel θ , was dazu führt, dass sich der Comptoneffekt in einem Spektrum als Kontinuum darstellt. Für die Energie des Elektrons E_e gilt dabei:

$$E_e = E_\gamma - E_{\gamma'} \quad (9)$$

E_γ ist die Energie des einfallenden, $E_{\gamma'}$ die des gestreuten Photons. Für die Energie des gestreuten Photons gilt in diesem Fall:

$$E_{\gamma'} = \frac{E_\gamma}{1 + \frac{E_\gamma}{m_0 c^2} (1 - \cos(\theta))} \quad (10)$$

Dabei ist m_0 die Ruhemasse eines Elektrons und c die Lichtgeschwindigkeit im Vakuum. Bei einer Rückstreuung ($\theta = 180^\circ$) wird der größte Energiebetrag an das Elektron übertragen und stellt sich im Gamma-Spektrum als die sogenannte Comptonkante dar. Ab diesem Punkt fällt die Anzahl der registrierten Ereignisse mit zunehmender Energie ab, bis beim sogenannten Full-Energy-Peak die gesamte Energie eines einfallenden Photons im Detektor deponiert wird (siehe Abbildung 5) [15].

Paarbildung

Bei Photonenenergien von mehr als 1022 keV kann der Effekt der Paarbildung auftreten. Tritt ein Photon mit einer Energie von mehr als 1022 keV in Wechselwirkung mit dem Coulomb-Feld eines Atomkerns, so kann es in ein Elektron-Positron-Paar umgewandelt werden. Da die Ruhemasse eines Elektrons (oder auch Positrons) einer Energie von 511keV äquivalent ist, stellt 1022 keV den Grenzwert dar, ab dem die Paarbildung prinzipiell einsetzen kann, jedoch erst ab etwa 1800 keV an Bedeutung gewinnt. Bei höheren Photonenenergien als 1022 keV wird die Restenergie in kinetische Energie E_{kin} der beiden Partikel e^- und e^+ umgesetzt:

$$E_{e^-,kin} + E_{e^+,kin} = E_\gamma - 2m_0c^2 \quad (11)$$

Hierbei entspricht m_0 der Ruhemasse eines Elektrons bzw. Positrons und c der Vakuumlichtgeschwindigkeit. Das auf diesem Weg entstandene Elektron kann, sofern es eine hinreichende kinetische Energie aufweist, wiederum Sekundärelektronen erzeugen. Zudem kann das entstandene Positron bei Wechselwirkung mit einem Elektron mit diesem annihilieren. Dabei entstehen zwei Gamma-Quanten mit der charakteristischen Energie von 511keV. Diese "Vernichtungsstrahlung" kann im Spektrum als Annihilationspeak erkannt werden (siehe Abbildung 5). Verlassen eines oder beide Photonen den Detektor, so tritt im Spektrum ein weiterer Single Escape (SE) beziehungsweise Double Escape (DE) Peak bei den Energien $E_\gamma - 511\text{keV}$ beziehungsweise $E_\gamma - 1022\text{keV}$ auf ([7], [19]).

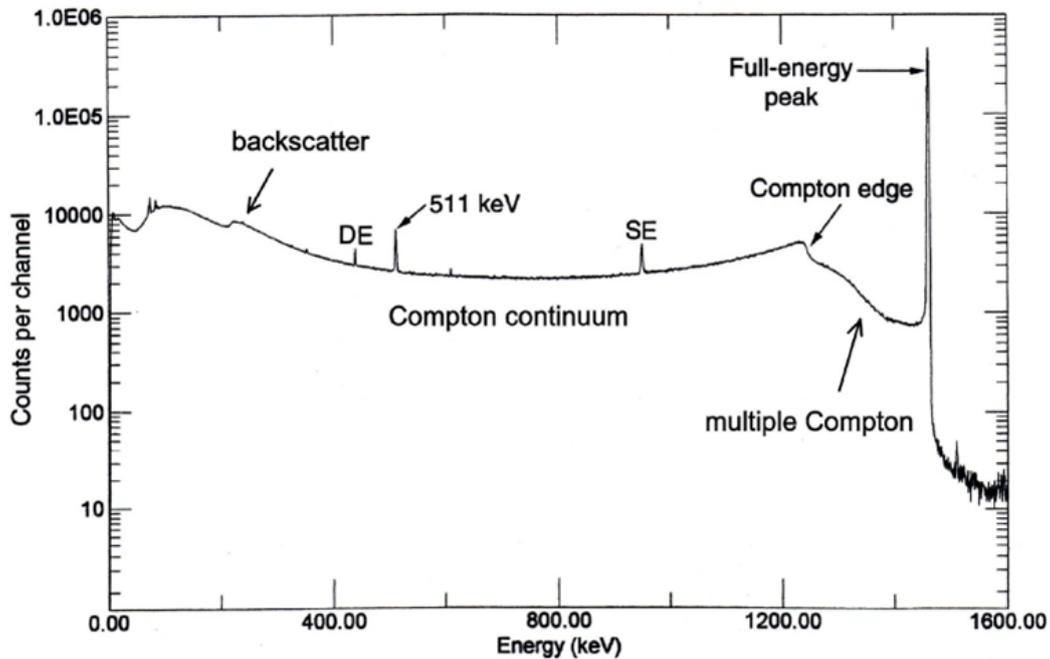


Abbildung 5: Darstellung der charakteristischen Linien eines γ -Spektrums am Beispiel von K-40 [15].

2.1.2. Aktivitätsbestimmung

Zur Abschätzung der spezifischen Aktivität der Proben werden die Nettopeakflächen mit den dazugehörigen Unsicherheiten der einzelnen Gamma-Peaks im Spektrum ermittelt. Dies wurde mit dem Programm "GENIE-2000: Gamma Messung und Analyse" durchgeführt.

Die Nettozählrate eines Peaks r_n ergibt sich dabei aus der Subtraktion des Nulleffekts r_0 von der Bruttozählrate r_b :

$$r_n = r_b - r_0 = \frac{n_b}{t_m} - \frac{n_0}{t_0} \quad (12)$$

Die n_b und t_m stehen dabei für die Anzahl der registrierten Impulse und für die Messzeit. n_0 und t_0 stehen für die entsprechenden Werte bei der Messung des Nulleffekts.

Die spezifische Aktivität wird zusammen mit der Emissionswahrscheinlichkeit p_γ für die jeweilige Gamma-Linie, der Ansprechwahrscheinlichkeit des Detektors ϵ und der Masse der Probe m bestimmt:

$$a = \frac{1}{m \cdot \epsilon \cdot p_\gamma} \cdot r_n \quad (13)$$

Die Ansprech- oder Nachweiswahrscheinlichkeit eines Detektors wird auch als dessen Efficiency bezeichnet. Diese stellt das Verhältnis von dem durch den Detektor registrierten Photonen und den von der Probe emittierten Photonen dar. Hierbei werden die Impulse betrachtet, die zum Full-Energy-Peak des jeweiligen Nuklids gezählt werden.

$$\epsilon = \frac{r_{det}}{r_{emit}} \quad (14)$$

Die Efficiency ist sowohl von der Geometrie der zu messenden Probe als auch von der Dichte des Probenmaterials abhängig. Außerdem besteht eine Energieabhängigkeit, d.h. dass zu jedem Peak im Spektrum eine eigene Efficiency gehört.

Als Probengeometrie für die Gammaspektrometrie werden in dieser Arbeit Petrischalen verwendet. Die Bestimmung der Efficiency erfolgt dabei für jede Probe einzeln mittels zweier Messungen jeder Probe mit einem Flächenstandard. Die Proben werden dabei jeweils einmal mit dem Standard auf der Probe und mit dem Standard unter der Probe gemessen. Damit werden zwei Efficiencies für jedes betrachtete Nuklid bestimmt. Die Gesamtefficiency liefert dann der folgende mathematische Ansatz:

$$\epsilon_{gesamt} = \frac{\epsilon_{oben} - \epsilon_{unten}}{\ln(\epsilon_{oben}) - \ln(\epsilon_{unten})} \quad (15)$$

Mit diesem wird die Gesamtefficiency unter der Annahme, dass Gamma-Strahlung in der Probe exponentiell abgeschwächt wird, ermittelt ([4], [9]).

2.2. α -Spektrometrie

2.2.1. Prinzip der Messungen und Vergleich mit der γ -Spektrometrie

Wie bei der γ -Spektrometrie werden auch bei der α -Spektrometrie Radionuklide durch die für sie charakteristische Energie der emittierten α -Strahlung identifiziert. Die Funktionsweise von Detektoren für α - und γ -Spektrometrie ist ebenfalls identisch. Kernstück ist in beiden Fällen eine Halbleiterdiode. Diese besteht aus einem positiv und einem negativ dotierten Halbleiterkristall, welche zusammengefügt werden und so einen p-n-Übergang bilden. An diesem Übergang entsteht durch den Diffusionsstrom von überschüssigen Elektronen aus der n-dotierten Schicht in den p-dotierten Bereich und der dort stattfindenden Rekombination mit den in der p-dotierten Schicht vorhandenen Löchern ein ladungsträgerarmer Bereich, der Sperrschicht genannt wird. Durch Anlegen einer Spannung in Sperrrichtung kann diese Sperrschicht zusätzlich vergrößert werden. Durch den Eintritt von ionisierender Strahlung in den ladungsträgerarmen Bereich werden entlang des Weges der alpha-Partikel Elektron-Loch-Paare erzeugt. Die freigesetzten Ladungsträger werden durch das angelegte elektrische Feld voneinander getrennt und an den

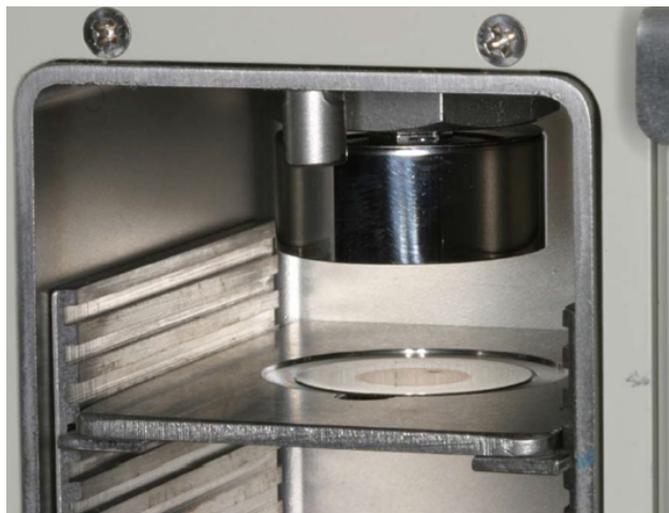


Abbildung 6: Messpräparat für die α -Spektrometrie in der Detektor-Kammer [3].

Kontakten gesammelt. Die entstandene Ladung wird anschließend als ein Spannungsimpuls registriert. Da die Anzahl der freigesetzten Ladungsträger proportional zur Energie des einfallenden Teilchens ist, wird über die Höhe des entstehenden Spannungsimpulses eine energieaufgelöste Detektion ermöglicht.

Für die Messungen wurde in dieser Arbeit ein kommerziell erhältliches Alphaspektrometer (Canberra Model 7200 Alpha Analyst Integrated Alpha Spectrometer) mit passivierten, implantierten, planaren Silizium-Detektoren (passivated implanted planar silicon, PIPS-detectors) verwendet.

Im Unterschied zur γ -Strahlung wechselwirken α -Teilchen deutlich stärker mit Materie. Diese Wechselwirkungen der Strahlung führen zu Energieverlusten bei den α -Partikeln und stören somit die Messungen. Entlang ihres Weges verlieren α -Teilchen durch Ionisationsprozesse schnell an Energie, was zu einer Verschiebung der Linien im Spektrum zu niedrigeren Energien hin führt. Des Weiteren können sie bereits durch Wechselwirkung mit Luft oder dem Probenmaterial an sich auch zur kompletten Absorption der Strahlung führen bevor der Detektor erreicht wird. Aus diesem Grund müssen bei der α -Spektrometrie spezielle Anforderungen an das Messpräparat gestellt werden (Abb. 6). Um Selbstabsorption zu vermeiden, werden die zu untersuchenden Nuklide daher zunächst auf einem Metallplättchen deponiert, wobei im Idealfall eine einatomige Schicht hergestellt werden sollte. Darüber hinaus wird die Messung im Vakuum durchgeführt, um störende Einflüsse der Wechselwirkung mit Luft zu vermeiden ([1], [4]).

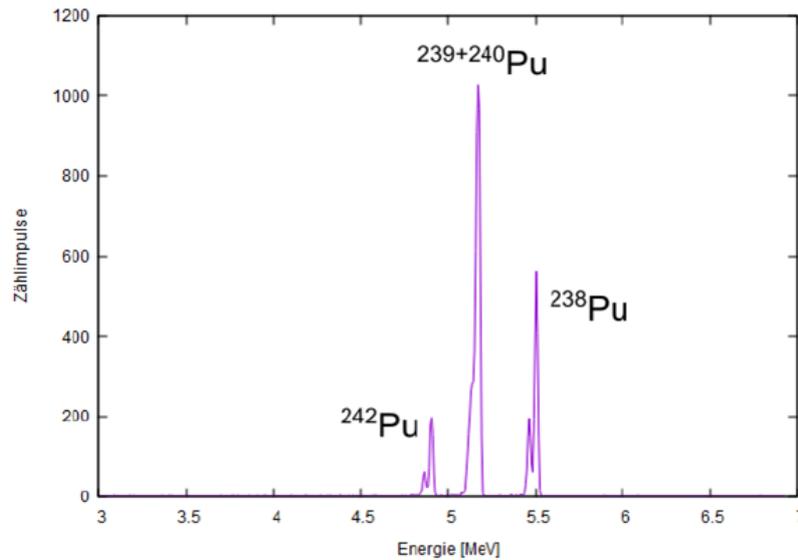


Abbildung 7: Beispiel eines α -Spektrums für die untersuchten Plutoniumisotope und den Ausbeutetracer [2].

2.2.2. Messung und Auflösung von Alpha-Spektren

Als Ergebnis von α -spektrometrischen Messungen erhält man ein Spektrum in welchem Counts gegen Energien aufgetragen sind (Abb. 7). Auf Grund ihrer charakteristischen α -Energien können die Peaks im Spektrum Nukliden zugeordnet werden. Die Auflösung der verwendeten PIPS-Detektoren liegt unter optimalen Bedingungen im Bereich von 15-17keV. Das bedeutet, dass Signale von Nukliden, deren α -Energien näher zusammen liegen nicht getrennt aufgenommen werden können sondern einen gemeinsamen Summenpeak im Spektrum darstellen. Aus diesem Grund können auch Pu-239 und Pu-240 mit α -Spektrometrie nicht separat betrachtet werden.

Auch die α -Energien von Pu-238 und Am-241 liegen unterhalb des Auflösungsvermögens der Detektoren. Um die Aktivität Pu-238 bestimmen zu können ist eine chemische Trennung des Plutoniums im Rahmen der Probenvorbereitung für die α -Spektrometrie notwendig ([3], [4]).

2.2.3. Aktivitätsbestimmung

Zur Herstellung von Messpräparaten für die α -Spektrometrie müssen alle Proben ein chemisches Aufbereitungsverfahren durchlaufen (siehe Kap. 3.4). Durch diese chemische Bearbeitung der Bodenproben treten Verluste auf, die quantifiziert werden müssen, damit die ursprünglich in den Proben vorhandenen Aktivitäten berechnet werden können. Hierfür wird jeder Probe im Vorfeld der chemischen Bearbeitung eine bekannte Aktivität an Pu-242 als Ausbeutetracer zugefügt. Bei Pu-242 handelt es sich um einen α -Strahler dessen Zerfallsenergie deutlich unterhalb derer, der zu untersuchenden Plutoniumisoto-

pe liegt und somit keinen Einfluss auf deren Peakhöhen im α -Spektrum hat. Da unterschiedliche Isotope eines Elements chemisch identische Eigenschaften haben und sich somit auch Verluste bei der Aufarbeitung auf alle Isotope gleich auswirken. Es kann also angenommen werden, dass das Verhältnis der gemessenen Impulse des Tracers (Pu-242) und eines anderen Plutoniumisotops (X) gleich dem Verhältnis der ursprünglich in der Probe vorhandenen Aktivitäten (A) beider Isotope ist:

$$\frac{A(^{242}\text{Pu})}{A(X)} = \frac{n(^{242}\text{Pu})}{n(X)} \quad (16)$$

$$n = n_{\text{gesamt}} - n_0 \frac{t}{t_0}$$

Dabei entspricht die Nettoimpulszahl n der Differenz aller registrierten Impulse n_{gesamt} und dem Beitrag n_0 , der auf den Nulleffekt zurückzuführen ist.

Da in der Tracerlösung neben Pu-242 auch Spuren anderen Pu-Isotope enthalten sind, die auch im Spektrum zu einem Beitrag der zu untersuchenden Isotope führen, muss dieser Beitrag ebenfalls quantifiziert und die berechnete Aktivität um den entsprechenden Betrag korrigiert werden. Dies erfolgt über die Herstellung und Messung von Blindproben, welche kein Probenmaterial enthalten, denen jedoch dieselbe Menge Tracer hinzugefügt wurde. Die Blindproben durchlaufen ansonsten denselben chemischen Bearbeitungsprozess wie realen Bodenproben. Durch Abzug der gemessenen Beträge in den Blindproben $A_{\text{blind}}(X)$ zur Aktivität $A(X)$ der zu untersuchenden Isotope X , kann nun die korrigierte Aktivität bestimmt werden ([1], [4]):

$$A_{\text{korrr}}(X) = A(X) - A_{\text{blind}}(X) = A(^{242}\text{Pu}) \frac{n(X)}{n(^{242}\text{Pu})} - A_{\text{blind}}(X) \quad (17)$$

2.3. Liquid Scintillation Counting (LSC)

2.3.1. Prinzip der LSC-Messung

Zur Untersuchung von Sr-90, welches einen β -Zerfall zu Y-90 durchläuft, wurde in dieser Arbeit die Flüssigkeitsszintillation, kurz LSC (liquid scintillation counting), verwendet. Bei dieser Methode wird die Probe mit einem Szintillationscocktail gemischt. Dessen Moleküle werden durch die Wechselwirkung mit ionisierender Strahlung angeregt und emittieren Photonen. Diese werden über Photomultiplier in Stromimpulse umgewandelt und detektiert. Die Höhe eines Stromimpulses ist dabei proportional zur Anzahl der Photonen, die durch Wechselwirkung mit einem β -Teilchen entstanden sind. Somit ist die Impulshöhe auch direkt proportional zur Energie des β -Teilchens und kann über einen Vielkanalanalysator ausgewertet werden. In Abb. 7 ist das Prinzip einer LSC-Messung zu sehen.

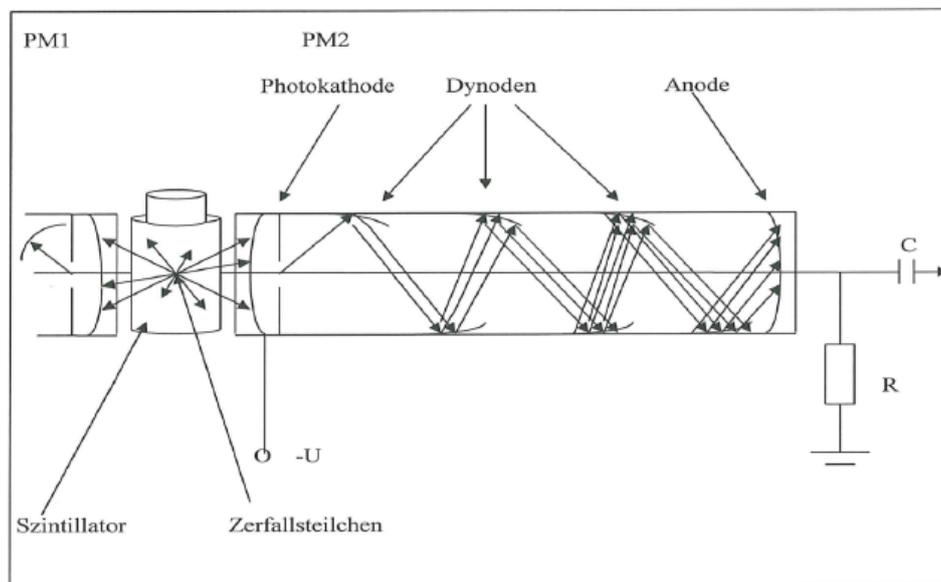


Abbildung 8: Schematische Darstellung der Funktionsweise einer LSC-Messung [22].

Bei dem in dieser Arbeit verwendeten Szintillationscocktail handelt es sich um Ultima Gold AB von Perkin Elmer. Die Umwandlung der Energie eines einfallenden β -Teilchens in Photonen erfolgt über mehrere Schritte. Im ersten Schritt wird das organische Lösungsmittel des Cocktails (L) angeregt. Dieses überträgt die Energie ($h\nu_0$) auf primäre Szintillatormoleküle (S_{prim}), welche die Energie ($h\nu_1$) durch Fluoreszenz abgeben und in ihren Grundzustand zurückkehren. Durch diese primäre Fluoreszenz werden sekundäre Szintillatormoleküle (S_{sek}), welche anschließend ebenfalls durch Fluoreszenz einer anderen, etwas größeren Wellenlänge ($h\nu_2$) in den Grundzustand relaxieren. Da die Wellenlänge der Photonen im primären Szintillationsvorgang deutlich unterhalb von 400nm liegt, ist dieser zweite Schritt notwendig, um die Lichtimpulse auf die Charakteris-

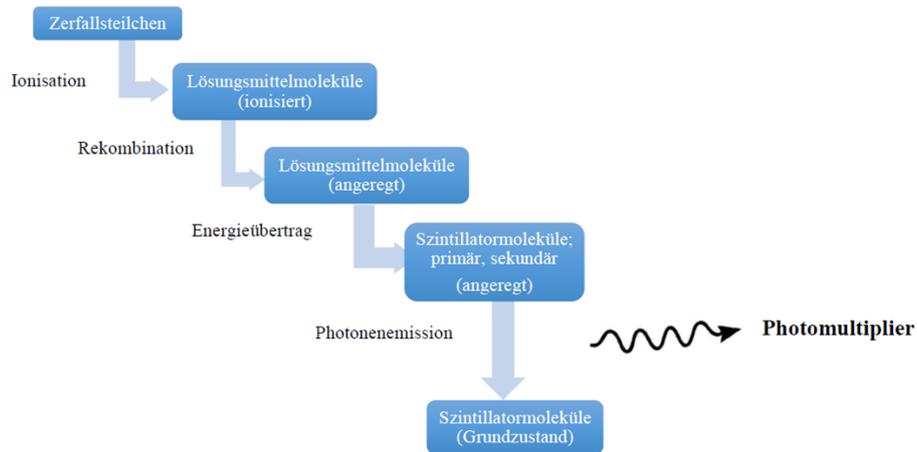
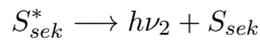
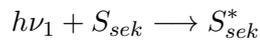
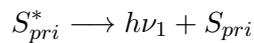
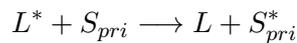


Abbildung 9: Schematische Darstellung der Energieübertragung im Szintillationscocktail [27].

Die Wellenlänge des detektierenden Photomultipliers von 420nm anzupassen und somit die Efficiency zu optimieren ([14], [23], [27]).



2.3.2. Quench-Korrektur

Als Quenching bezeichnet man die Abschwächung der Intensität bei der Szintillation, die durch die Anwesenheit von bestimmten Stoffen im Probe-Cocktail-Gemisch verursacht wird.

Diese verringerte Intensität sorgt für eine Verschiebung des gesamten Spektrums zu kleineren Energien. Dabei unterscheidet man zwischen verschiedenen Mechanismen, die die Ursachen von Quenching darstellen können. Beim chemischen Quench ist die Verringerung der Intensität durch chemische Reaktion oder die Übertragung von Energie aus einfallender ionisierender Strahlung auf andere Moleküle als die des Szintillationscocktails. Ausserdem kann es dazu kommen, dass Photonen aus dem Szintillationsprozess in der Probe absorbiert werden. Dieser Effekt wird Farbquenching genannt. Ebenso kann es zu einem physikalischen Quenching kommen, dass durch Inhomogenitäten in der Probe bedingt sein kann.

Um das Quenching bei einer Messung korrigieren zu können, wird eine sogenannte Quenchkurve aufgenommen. Beim in dieser Arbeit verwendeten Gerät (Quantulus) wird diese mit Hilfe einer integrierten γ -Quelle mit bekannter Aktivität aufgenommen. Die Probe wird dabei 15 Sekunden zusammen mit dem Standard gemessen. Die Photonen des γ -Strahlers erzeugen in der Probe Compton-Elektronen, die wie β -Teilchen registriert werden können, und dem Quenching in der Probe in gleicher Weise unterliegen. Auf Grund der hohen Aktivität des Standards kann der Beitrag der Probe selbst während der Aufnahme der Quenchkurve vernachlässigt werden. Aus dieser gemeinsamen Messung von Standard und Probe generiert die Software des Quantulus einen Parameter (genannt SQP: Standard Quench Parameter) der ein Maß für das Quenching in der Probe darstellt. Über eine Quenchreihe, bei der mehrere Proben mit gleicher, bekannter Aktivität aber unterschiedlich stark ausgeprägten Quench gemessen werden, kann die Efficiency der Messung in Abhängigkeit von dem SQP-Wert ermittelt und bei der Aktivitätsberechnung für Proben unbekannter Aktivität mit einbezogen werden ([14], [22], [27]).

2.3.3. 2-Fenster Methode

Da die zu messenden Proben auch für diese Messungen einen chemischen Aufbereitungsprozess durchlaufen (siehe Kapitel 3.5), muss die chemische Ausbeute für Strontium in den Proben bestimmt werden, um die ursprünglich enthaltenen Aktivitäten für Sr-90 berechnen zu können. Hierzu wurde eine bekannte Aktivität Sr-85 als Ausbeute-Tracer im Vorfeld der chemischen Trennungen zu den Proben hinzugegeben. Zur Aktivitätsbestimmung wurde die 2-Fenster-Methode verwendet. Hierbei werden zwei Energiebereiche (genannt Fenster) im Spektrum der Probe so gewählt, dass beide Nuklide einen Beitrag zu der Zählrate in jedem der beiden Fenster liefern (siehe Abb. 10). Mit dieser Voraussetzung gilt für die Zählraten in den beiden Fenstern:

$$c_1 = r_{Sr-85,1} \cdot n_{Sr-85} + r_{Sr-90,1} \cdot n_{Sr-90} \quad (19)$$

$$c_2 = r_{Sr-85,2} \cdot n_{Sr-85} + r_{Sr-90,2} \cdot n_{Sr-90}$$

Die c_i entsprechen dabei den Nettozählraten in den beiden Fenstern. n_X ist die Nettozählrate des Nuklids X in beiden Fenstern und $r_{X,i}$ der Anteil von n_X im zugehörigen Fenster i. Durch Umstellen der beiden Gleichungen nach n_X und gegenseitiges ineinander einsetzen folgt für die Zählraten der beiden Nuklide:

$$n_{Sr-85} = \frac{r_{Sr-90,2}}{r_{Sr-90,2} \cdot r_{Sr-85,1} - r_{Sr-90,1} \cdot r_{Sr-85,2}} \cdot c_1 - \frac{r_{Sr-90,1}}{r_{Sr-90,2} \cdot r_{Sr-85,1} - r_{Sr-90,1} \cdot r_{Sr-85,2}} \cdot c_2 \quad (20)$$

$$n_{Sr-90} = \frac{r_{Sr-85,2}}{r_{Sr-90,2} \cdot r_{Sr-85,1} - r_{Sr-90,1} \cdot r_{Sr-85,2}} \cdot c_1 - \frac{r_{Sr-85,1}}{r_{Sr-90,2} \cdot r_{Sr-85,1} - r_{Sr-90,1} \cdot r_{Sr-85,2}} \cdot c_2$$

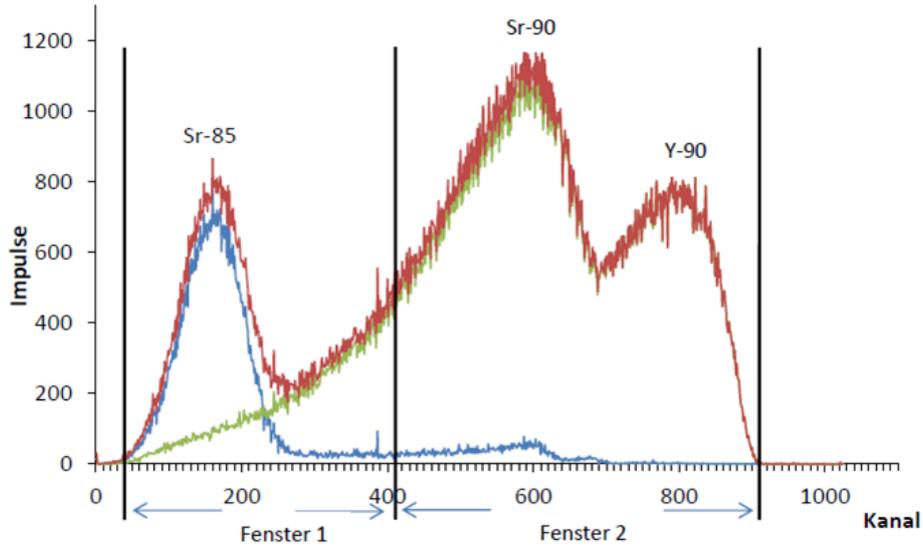


Abbildung 10: Resultierendes Spektrum (rot) einer LSC-Messung mit der 2-Fenstermethode zusammen mit den beiden Einzelspektren für Sr-85 (blau), sowie Sr-90+Y-90 (grün) [14].

Die Aktivität für Sr-90 ergibt sich über eine Kalibriergerade mit $y = a + b_X \cdot x$ und der Bedingung $a = 0$, da die Gerade durch den Ursprung verlaufen soll, zu:

$$A_{Sr-90} = \frac{1}{b_{Sr-90} \cdot y_{Sr-85} \cdot m} \quad (21)$$

Wobei m der Probenmasse und y_{Sr-85} der Ausbeute des Sr-85-Tracers entsprechen. Für die Strontiumausbeute ergibt sich mit der gemessenen Aktivität des Tracers:

$$A_{Sr-85} = \frac{k_{Sr-85}}{b_{Sr-85}} \cdot n_{Sr-85} \quad (22)$$

und der ursprünglich zugefügten Traceraktivität $A_{Sr-85,0}$, sowie $\frac{k_{Sr-85}}{b_{Sr-85}} = w_{Sr-85}$:

$$y = \frac{w_{Sr-85} \cdot n_{Sr-85}}{A_{Sr-85,0}} = \frac{A_{Sr-85}}{A_{Sr-85,0}} \quad (23)$$

Der Faktor $k_{Sr-85} = 2^{\frac{T_{mess}-T_0}{64,84d}}$ den Zerfall des Tracers ($HWZ = 64,84$ Tage) in dem Zeitraum vom Zeitpunkt der Tracerzugabe T_0 und dem Beginn der Messung an sich T_{mess} [14].

2.3.4. Kalibrierung

Der Messbereich des Quantulus enthält insgesamt 1024 Kanäle wobei in der Auswertung nur die Kanäle 50-900 betrachtet wurden. Die beiden Fenster umfassten die Kanäle 50-410 und 411-900. Für die Kalibrierung des Quantulus wurden sowohl für Sr-90 als auch für Sr-85 jeweils eine Kalibrierreihe mit Standardlösungen unterschiedlicher Aktivitäten erstellt, um konzentrationsabhängige Unsicherheiten in der Efficiency zu auszugleichen. Die verwendeten Messzeiten und Aktivitätskonzentrationen der beiden Standardreihen sind in Anhang B aufgeführt.

Die Steigung der Kalibriergeraden wurde mittels der Methode der kleinsten Quadrate gemäß Gl. 19 bestimmt:

$$b_j = \frac{\sum_{n=1}^k ((A_{j,n} - A_{mitt.,j}) \cdot (n_{j,n} - n_{mitt.,j}))}{\sum_{n=1}^k (A_{j,n} - A_{mitt.,j})^2} \quad (24)$$

Wobei $A_{mitt.,j} = \frac{1}{k} \sum_{n=1}^k A_j$ und $n_{mitt.,j} = \frac{1}{k} \sum_{n=1}^k n_j$ sind ([14]).

2.4. Messunsicherheiten und charakteristische Grenzen

Für die Bestimmung der Unsicherheiten wurde in dieser Arbeit gemäß des ISO/BIPM-Leitfadens „Guide to the Expression of Uncertainty in Measurement“ (GUM) nach DIN-ISO-11929 vorgegangen. Zur Bestimmung der Unsicherheiten wird davon ausgegangen, dass Kernzerfälle statistisch als Poisson-Prozess beschrieben werden können. Dies gilt solange die Messzeit klein gegenüber der Halbwertszeit der zu messenden Nuklide ist. Da dies bei allen Messungen in dieser Arbeit der Fall ist, gilt für die Messungssicherheit der Zählimpulse n :

$$u^2(n) = n \quad (25)$$

Für die Unsicherheit $u(y)$ des Wertes y einer Modellfunktion Y mit den voneinander unabhängigen Eingangsgrößen X_i gilt allgemein:

$$Y = f(X_1, \dots, X_n) \quad (26)$$

$$u^2(y) = \sum_{i=1}^n \left(\frac{\partial Y}{\partial X_i} \right)^2 u^2(x_i) \quad (27)$$

Die Unsicherheit in der Messdauer $u(t)$ wird für alle verwendeten Geräte und Messungen als vernachlässigbar angesehen ([4], [12]).

Um bei der Messung von geringen Aktivitäten entscheiden zu können, ob ein vorhandenes Signal auf die Aktivität der Probe selbst oder auf den natürlichen Untergrund zurückzuführen ist, sind zwei Arten von charakteristischen Grenzen definiert. Als Erkennungsgrenze versteht man einen Wert für die spezifische Aktivität eines Nuklids

oberhalb dessen angenommen werden kann, dass dieses in der Probe vorhanden ist. Als Nachweisgrenze ist der Wert definiert, unterhalb dessen ein Nuklid mit der verwendeten Messmethode nicht mehr zuverlässig nachgewiesen werden kann. Die charakteristischen Grenzen wurden in dieser Arbeit für die γ -Spektrometrie gemäß [7], bei der α -Spektrometrie gemäß [1] und für die LSC-Messungen gemäß [16] berechnet.

3. Probenaufbereitung

3.1. Probenahme und Einteilung

Im Rahmen dieser Arbeit wurden 3 Bodenprofile untersucht. Die Proben wurden während einer Exkursion in die Chernobyl Exclusion Zone (CEZ) im Juli 2015 am nord-östlichen Rand der Stadt Pripjat gesammelt (Abbildung 11). Um Tiefenprofile für die spezifischen Aktivitäten der zu untersuchenden Radionuklide zu erhalten, wurden sie als Bohrkern mit einer Tiefe von jeweils 30cm, und einem Abstand von 50cm zueinander, aus dem Boden entnommen. Hierzu wurde zunächst der Oberflächenbewuchs von den zu beprobenden Stellen entfernt und anschließend die Proben mittels des sogenannten In-Liner-Systems gesammelt. Bei dieser Methode befindet sich ein Plastikrohr (In-Liner) in einem Bohrkopf, welcher in den Boden gerammt wird. Dabei wird das innen befindliche Plastikrohr mit Boden gefüllt, welcher bei Herausziehen der Apparatur im Rohr verbleibt und so der Stelle entnommen wird. Dem aufschraubbaren Bohrkopf wird anschließend das Plastikrohr entnommen und die beiden Enden des Rohres zum Transport bis zur weiteren Verarbeitung mit passenden Endstücken versiegelt [4].

Die so erhaltenen Bohrkern wurden im Labor eingefroren, um die Festigkeit des Bodenmaterials zu erhöhen. Dies ist notwendig, da die Bohrkern für die Erstellung der Tiefenprofile in Schichten zersägt werden müssen.

Jeder Kern wurde in insgesamt 10 Schichten zersägt. Dabei wurden die obersten 3 Schichten in 2 cm-Intervalle, die mittleren 4 Proben in 3cm-Intervalle und die 3 tiefsten Schichten in 4 cm-Intervalle eingeteilt.

Die insgesamt 30 so erhaltenen Proben wurden in Porzellanschalen gefüllt, und im zunächst bei 35°C über Nacht in einen Trockenschrank gestellt. Anschließend wurden die Plastikteile des Bohrkerns vom Bodenmaterial der Proben getrennt und die Proben eingewogen. Im nächsten Schritt wurden die Proben erneut in den Trockenschrank gestellt und bei 105°C getrocknet bis sie die Massenkonstanz erreicht haben.

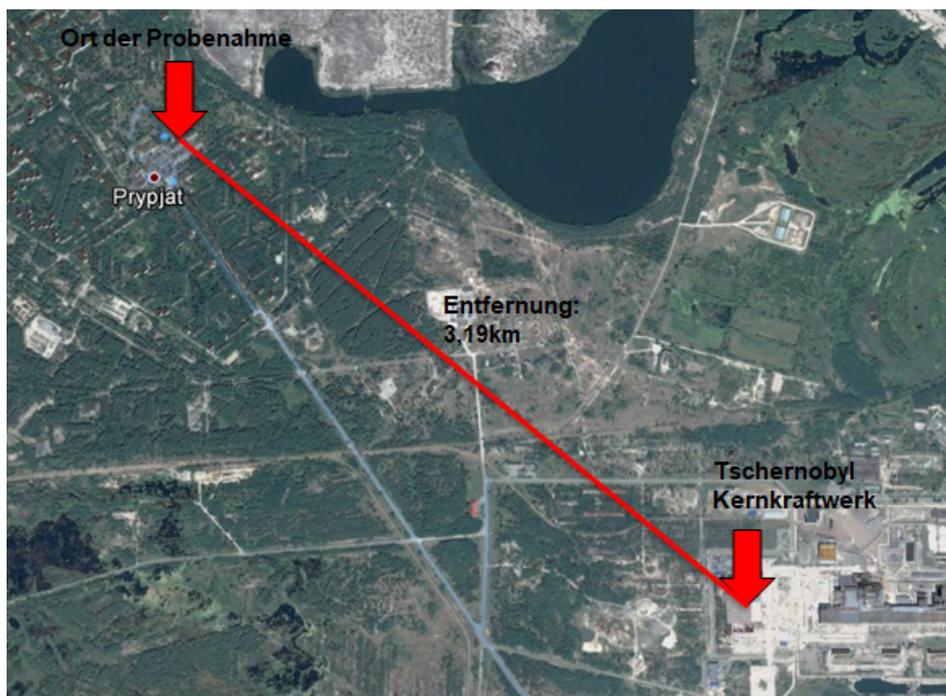


Abbildung 11: Google Earth Ansicht der Region um die Stadt Pripyat mit dem Ort der Probenahme und der Entfernung zum Tschernobyl Kernkraftwerk.

3.2. Präparation für die Gamma-Spektrometrie

Zur Herstellung der Präparate für die γ -spektrometrische Untersuchung wurden die massenkonstanten Proben mit Hilfe eines Mörsers homogenisiert und durch ein Sieb mit einer Maschenweite von 2mm gesiebt. Organik- und Skelettbestandteile, wie Wurzeln oder Steine, die nicht durch das Sieb passten, wurden mittels einer Pinzette weitgehend entfernt. Anschließend wurden auch die mit durchgesiebten, feineren Organikbestandteilen aus den Proben entfernt.

Für die Gammaskpektrometrie wurden auf Grund der relativ geringen Menge an Probenmaterial Petrischalen als Messgeometrie ausgewählt. Die homogenisierten Proben wurden in die aus Polystyrol bestehenden Petrischalen (Durchmesser: 60mm) gefüllt, verdichtet und die Deckel mittels eines Montageklebers auf die Schalen geklebt. Die verschlossenen Schalen wurden bei Raumtemperatur bis zur Trocknung des Klebers gelagert und anschließend in Plastikfolien eingeschweißt.

3.3. Veraschung und Aufschluss der Proben

Zur Herstellung der Messpräparate für α -Spektrometrie und LSC ist eine chemische Abtrennung von Plutonium und Strontium notwendig. Um die Bodenproben den chemischen Trennungen zugänglich zu machen, müssen diese zunächst einem mehrschrittigen Säureaufschluss unterzogen werden. Um im Probenmaterial verbliebene Organik zu entfernen, die einen negativen Einfluss auf den im weiteren Verlauf durchzuführenden Aufschluss haben können, wurde das aufzuschließende Probenmaterial zunächst verascht. Hierzu wurden die Petrischalen nach der gammaskpektrometrischen Untersuchung aufgebrochen und 10g bis 15g jeder Probe in Porzellanschalen eingewogen.

In einem insgesamt 103 Stunden dauernden Programm wurden die Proben über 5 Temperaturstufen in einem Muffelofen verascht, wobei die Proben über mehrere Stufen sehr langsam bis auf 450°C erhitzt werden. Die detaillierte Aufschlüsselung des Veraschungsvorgangs ist in Tabelle 3 aufgeführt. Nach jedem Heizschritt wurde die Temperatur 12 Stunden lang konstant gehalten bevor die nächste Aufheizung einsetzte.

Heizzeit [h]	Temperatur [°C]
24	260
4	300
5	350
6	410
4	450

Tabelle 3: Temperaturstufen beim Veraschungsvorgang der Bodenproben.

Nach der Veraschung wurden die Proben zur Abkühlung in einen Exsikkator gestellt um zu verhindern, dass Luftfeuchtigkeit gebunden wird.

Für den folgenden Aufschluss wurden zwischen 6g und 12g jeder veraschten Probe in Bechergläser aus Perfluoralkoxy-Copolymer (PFA) eingewogen, mit destilliertem Wasser angefeuchtet und 1mL 0,1 molare Salpetersäure tropfenweise hinzugegeben.

Anschließend wurden 50mBq Pu-242 als Tracer für Plutoniummessungen mittels Alpha-spektrometrie, sowie 10 Bq Sr-85 als Tracer für die LSC-Messungen des Sr-90 hinzugegeben.

Danach wurde ein in 5 Schritte unterteilter Säureaufschluss an den Proben durchgeführt, bei dem in konzentrierter Salpeter- und Flusssäure aufgenommen und nach jedem Schritt bis zur Trocknung gleichzeitig auf einer Heizplatte bei ca. 80°C und unter einer Heizlampe eingengt wurden. Während dieses Vorgang sorgte ein Rührfisch im Becherglas für eine ständige Durchmischung der Proben. Die einzelnen Schritte des Säureaufschlusses mit den verwendeten Anteilen und Konzentrationen sind in Anhang C detailliert aufgeschlüsselt.

Im Anschluss daran wurden die Rückstände in einer Mischung aus 3 molarer Salpetersäure und 1 molarem Aluminiumnitrat aufgenommen um Fluoride auszutreiben. Anschließend wurde die Probe über Nacht auf eine Rührleiste gestellt.

Am nächsten Tag folgte die Filtration der Proben über einen Faltenfilten um ungelöste Bestandteile aus der Lösung zu entfernen, sowie als weiterer Filtrationsschritt eine Vakuumfiltration durch Filterpapier über eine Nutsche.

3.4. Vorbereitung für die Alphaspektrometrie

3.4.1. Plutonium-Trennung

Für die chemische Trennung des Plutoniums wurden spezielle Extraktionssäulen verwendet, welche vierwertige Actinide zurückhalten. In dieser Arbeit wurden "TEVA resin"(Tetra Valent Actinides) der Firma EICHRON verwendet. Da Plutonium in den Oxidationsstufen +III, +IV, +V und +VI vorkommt, war es nötig, die Oxidationsstufe vor der Trennung einzustellen. Hierzu wurden zunächst durch die Zugabe von 2mL einer Eisensulfamat-Lösung ($c=0,6\text{mol/L}$) alle vorkommenden Oxidationsstufen auf das dreiwertige Niveau reduziert. Die anschließende Oxidation auf den vierwertigen Zustand erfolgte nach einer Wartezeit von etwa 5 Minuten durch Zugabe von 0,5mL Natriumnitrit-Lösung ($c=3,5\text{mol/L}$). Anschließend wurden die Proben für 20 Minuten in einem Wasserbad bei 85°C aufbewahrt um giftige nitrose Gase, welche bei der Zugabe von Natrium-Nitrit entstehen, vollständig auszutreiben. Nach dem Herausnehmen der Proben aus dem Wasserbad und Abkühlen auf Raumtemperatur, wurde die Festphasenextraktion über TEVA-Säulen vorgenommen.

Die TEVA-Säule wird dabei mit einer Pipettenspitze auf einer Vakuumbox montiert. Unter der Pipettenspitze wird in der Box ein Becherglas als Auffanggefäß positioniert. Die flüssige Probe wird in eine leere Spritze mit 20mL Volumeninhalt gegeben, welche auf der Säule befestigt ist (siehe Abbildung 13).

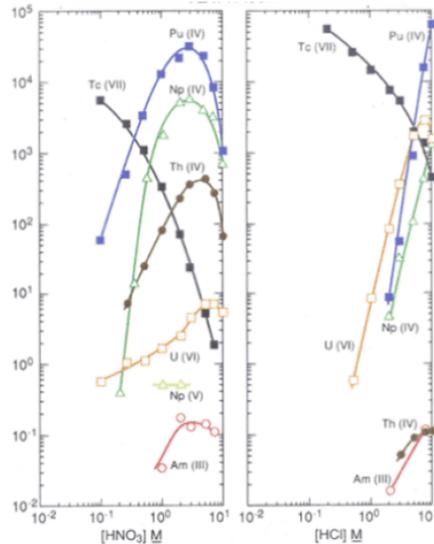


Abbildung 12: Abhängigkeit des Retentionsvermögens von TEVA-Säulen im Bezug auf Säurekonzentrationen [24].

Das Retentionsvermögen der Säulen für vierwertiges Plutonium ist dabei stark von der Säurekonzentration abhängig (Abbildung 12). Die Säule wird zunächst mit 3M-Salpetersäure konditioniert um eine maximale Retention zu erreichen. Anschließend wurde die Probelösung auf die Säule gegeben und eine Durchflussgeschwindigkeit von maximal 0,5mL pro Minute eingestellt. Das Becherglas in dem sich die Probelösung befand, wurde anschließend zweimal mit je 2,5mL 3M-Salpetersäure gespült und ebenfalls auf die Säule gegeben. Um sechswertiges Uran von der Säule zu entfernen, wurde diese im nächsten Schritt mit 15mL 3M-Salpetersäure bei einer Durchflussgeschwindigkeit von 3mL pro Minute gespült. Der danach im Auffanggefäß befindliche Teil der Probelösung wurde im weiteren Verlauf für die Sr-90-Bestimmung benötigt. Daher wurde an dieser Stelle das Auffanggefäß gewechselt. Anschließend wurden 5mL 9M-Salzsäure auf die Säule gegeben, um eventuell vorhandenes vierwertiges Thorium zu eluieren. Anschließend wurde erneut das Auffanggefäß gewechselt und die so von der Säule gelöste Fraktion wurde verworfen. Im letzten Schritt wurde das Plutonium von der Säule eluiert, indem 5mL Hydroxylamin ($c=0,1$ mol/L) mit einer Durchflussgeschwindigkeit von 0,5mL pro Minute auf die Säule gegeben wurde. Dies sorgt für eine Reduktion des Plutoniums in Pu-III, wodurch es von der Säule gelöst wurde.

Der Lösung, die das Plutonium enthält, wurde 1mL Elektrodepositionslösung hinzugefügt und unter einer Heizlampe vollständig eingengt. Der Probenrückstand wurde in 10mL Elektrodepositionslösung aufgenommen und unter einer Heizlampe leicht erhitzt bis der Rückstand vollständig gelöst war.

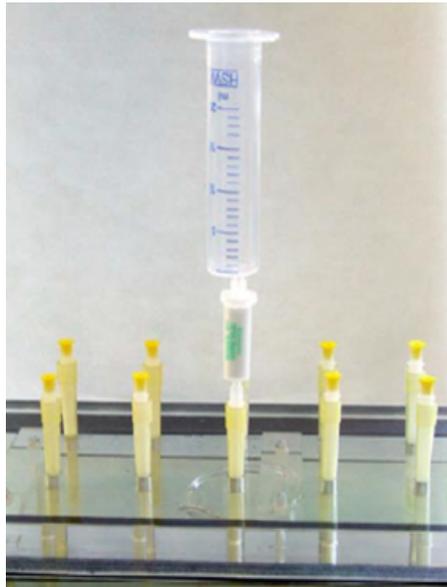


Abbildung 13: Aufbau für die chemische Trennung des Plutoniums [3].

3.4.2. Elektrodeposition

Für die Herstellung eines alphaspektrometrisch messbaren Präparates wurde eine Elektrodepositionszelle verwendet (Abbildung 14). Bei der Elektrodeposition wurde Plutonium auf einem Edelstahlplättchen abgeschieden, sodass eine möglichst dünne Schicht entsteht. Dies soll Störungen in der Energie der α -Partikel während der Messung minimieren.

Das Edelstahlplättchen dient als Kathode und wurde am Boden der Apparatur platziert. In den trichterförmigen Körper der Apparatur wurde ein PP-Trichter eingesetzt und mit Dichtungsringen versehen. Der Körper wurde anschließend mit der Bodenplatte verschraubt. Um ein Austreten der Probelösung aus der Zelle zu vermeiden, wurde diese mit destilliertem Wasser einige Minuten auf Dichtheit geprüft. Das Wasser wurde verworfen, die Probelösung in die Zelle gegeben, das Probengefäß zweimal mit 2mL Elektrodepositionslösung gespült und der Zelle ebenfalls zugeführt. Im Deckel der Zelle wurde ein Platindraht als Anode einige Millimeter über dem Edelstahlplättchen platziert und die Zelle an eine Stromquelle mit einer Stromstärke von 950mA angeschlossen.

Durch das Fließen des Stroms wird eine Reduktion von H^+ -Ionen an der Kathode bewirkt und somit die Ausbildung eines pH-Gradienten zwischen den Elektroden erreicht. Durch das alkalische Milieu im Bereich der Edelstahlkathode werden an dieser Stelle Metallhydroxide bevorzugt angereichert.

Nach 2 Stunden Elektrolysezeit wurde der Lösung 1mL 25-prozentige Ammoniaklösung hinzugegeben, um das Auflösen der an der Kathode entstandenen Hydroxyde beim Abschalten der Spannung zu verhindern. Nach einer Minute wurde die Spannung abgeschaltet. Die in der Zelle befindliche Lösung wird verworfen und das Edelstahlplättchen mit 5-prozentiger Ammoniaklösung, Ethanol und Aceton gereinigt. Anschließend wurde

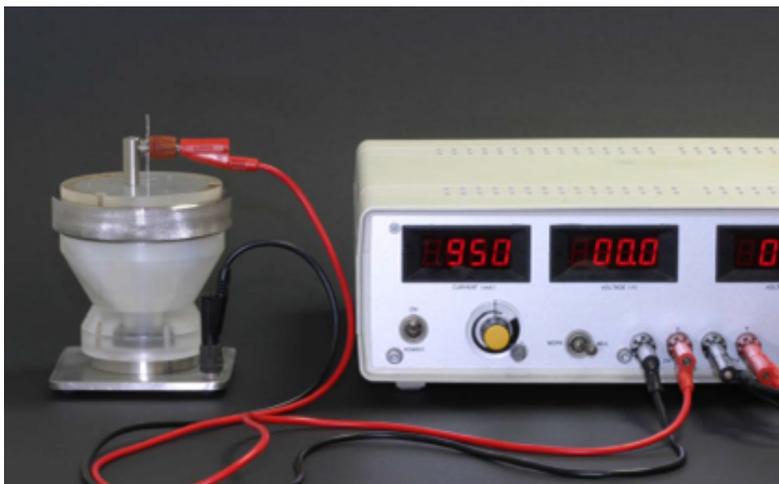


Abbildung 14: Bild einer Elektrodepositionszelle [3].

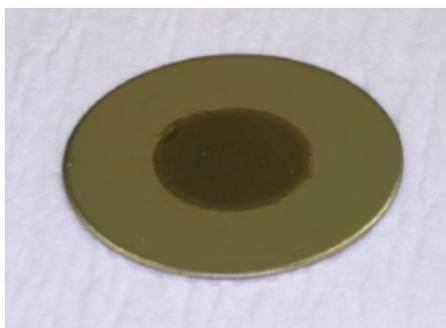


Abbildung 15: Edelstahl-Plättchen als Präparat für die α -Spektrometrie [3].

das Plättchen für 30 Minuten auf einer Heizplatte ausgeheizt. Dabei werden Hydroxyde in stabilere Oxide umgewandelt, wodurch verhindert wird, dass die Hydroxyde während der Messung im Vakuum evaporieren. Nach Abkühlung des Plättchens wurde es bis zur α -spektrometrischen Messung in einer Petrischale aufbewahrt.

3.5. Verarbeitung der Strontium-Fractionen

3.5.1. Strontium-Trennung

Für die chemische Trennung des Strontiums wurden ebenfalls Extraktionssäulen verwendet. Hierbei wurden die für Strontium spezifischen Sr-Resin Säulen der Firma EICHROM verwendet. Das Retentionsvermögen der Säulen ist auch hier von der Säurekonzentration abhängig (siehe Abbildung 16), jedoch ist in diesem Fall keine Einstellung der Oxidationsstufe erforderlich. Die in 3M-Salpetersäure vorliegende Probe wurde im Vorfeld zunächst vollständig eingengt und die Rückstände anschließend in 10mL 8M-Salpetersäure gelöst.

Der Aufbau zur Trennung des Strontiums ist, abgesehen von der Säule, identisch zu dem der Plutonium-Trennung in Abschnitt 3.4.1. Im ersten Schritt wird die Säule mit 5mL 8-M-Salpetersäure konditioniert. Anschließend wird die Probelösung auf die Säule gegeben und eine Durchflussgeschwindigkeit von 0,5mL pro Minute eingestellt. Durch anschließende Zugabe von 3M-Salpetersäure, in der Oxalsäure ($c=0,05\text{mol/L}$) gelöst ist, werden vierwertige Elemente von der Säule eluiert. Der Durchfluss erfolgt mit 1mL pro Minute. Daraufhin wird die Säule bei derselben Geschwindigkeit mit 5mL 8M-Salpetersäure gespült, um Reste der Oxalsäure zu entfernen.

Das Eluieren des Strontiums erfolgt nach Wechseln des Auffanggefäßes durch die Zugabe von 10mL 0,05-M-Salpetersäure, gefolgt von 5mL 0,01M-Salpetersäure auf die Säule. Die Durchlaufgeschwindigkeit beträgt jeweils 0,5mL pro Minute.

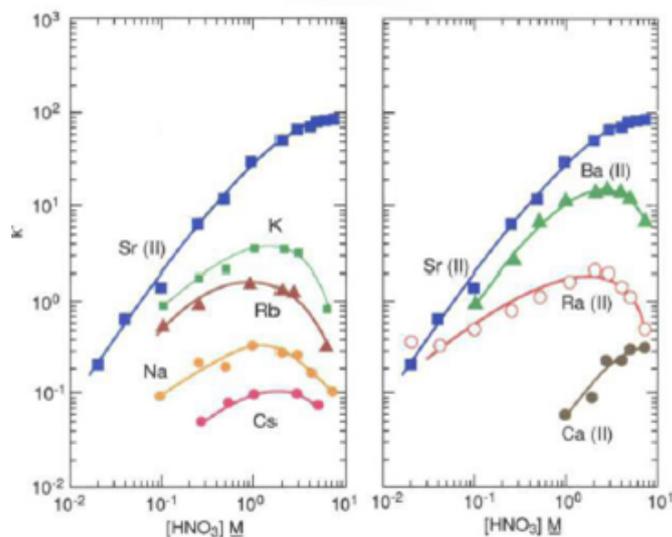


Abbildung 16: Retentionsvermögens von Sr-Resin in Abhängigkeit von Säurekonzentrationen [25].

3.5.2. Herstellung der LSC-Präparate

Die Probelösung wird unter einer Heizlampe auf ein Volumen von 5mL eingeeengt und in ein LSC-Vial überführt. Anschließend wird der Probe 15mL des LSC-Cocktails Ultima Gold AB der Firma Perkin Elmer zugefügt, das Vial verschlossen und 2 Minuten lang geschüttelt.

Das hergestellte LSC-Präparat wurde vor Start der Messung 2 Stunden im Messgerät ruhen gelassen. Dies geschah, damit die beim Schütteln der Proben entstandenen Blasen vor Beginn der Messung aufgelöst sind, da diese sonst einen Einfluss auf die Efficiency bei der Messung haben würden.

4. Ergebnisse

4.1. Validierung der Messverfahren

Zur Validierung der Messverfahren wurden Referenzproben der IAEA mit LSC, α - und γ -Spektrometrie untersucht. Die Aktivität der Referenzproben a_{soll} ist im Vorfeld bekannt und wird mit der gemessenen Aktivität a_{mess} verglichen. Der Vergleich der Werte erfolgt gemäß des Konformitätskriteriums nach [2]:

$$\beta \leq \frac{|a_{mess} - a_{soll}|}{\sqrt{u(a_{mess})^2 + u(a_{soll})^2}} \quad (28)$$

Als Kriterium wird festgelegt, dass 2 Werte als verträglich miteinander betrachtet werden können wenn $\beta \leq 3$ gilt. $u(a_i)$ bezeichnet hierbei die Unsicherheiten der jeweiligen Werte a_i .

Probe	Nuklid	A [Bq/kg] (gemessen)	A [Bq/kg] (Sollwert)	β -Wert
IAEA-TEL Nr.4	Cs-137	683,67±34,95	719,3±21,18	0,872
IAEA-375	Pu-239+240	0,3±0,04	0,47±0,21	0,795
	Sr-90	62,54±8,78	58,84±3,81	0,387
IAEA-Soil-6	Pu-239+240	1,07±0,08	1,15±0,51	0,06
	Sr-90	13,80±2,86	13,80±2,86	0,118

Tabelle 4: Gegenüberstellung von Soll- und Messwerten für die zur Validierung der Messverfahren herangezogenen IAEA-Proben.

Zur Validierung der γ -Spektrometrie wurde die Probe IAEA-TEL-2012-03 Nr. 4 auf Cs-137 untersucht. Zur Validierung der α -Spektrometrie und der LSC-Messungen wurden die Bodenproben IAEA-375 und IAEA-Soil-6 untersucht. Beide Proben durchliefen dabei denselben Aufbereitungsprozess wie die Bodenproben aus Pripyat. Die Ergebnisse zur Validierung der Messverfahren sind in Tabelle 4 dargestellt. In allen Fällen ist das oben genannte Konformitätskriterium erfüllt. Damit können alle Verfahren als validiert betrachtet werden.

4.2. Ergebnisse für Cs-137 und Am-241

Durch die Gamma-Spektrometrische Untersuchung der Proben lassen sich Tiefenprofile der spezifischen Aktivitäten von Cs-137 und Am-241 für die drei untersuchten Bohrkerne erstellen. Abbildung 17 zeigt den Verlauf der spezifischen Aktivität von Cs-137 in allen drei Bohrkerne. Die Werte sind dabei den mittleren Tiefen der einzelnen Horizonte zugeordnet. Die Verläufe der Aktivitätsverteilung als auch die Aktivitätshöhen unterscheiden sich in allen drei Kernen deutlich voneinander. In Kern 4 sind insgesamt die niedrigsten

Aktivitäten zu erkennen. In den obersten drei Schichten bis zu einer Tiefe von 6 cm findet man eine gleichmäßige Verteilung der Cs-137-Aktivität, die sich dort im Bereich von 500Bq/kg befindet. In der vierten Schicht (6-9cm) dieses Kerns ist mit ca. 750Bq/kg ein Maximum zu finden. Ab einer Tiefe von 9cm liegt dann eine stetige Abnahme der Cs-137-Aktivität mit der Tiefe vor. In Kern 5 liegt eine andere Aktivitätsverteilung vor. Hier ist bereits von der obersten Schicht an eine stetige Abnahme der Aktivität mit der Tiefe zu beobachten. Des Weiteren sind die Aktivitäten deutlich höher als in Kern 4. In der obersten Schicht unterscheiden sich die Aktivitäten etwa um einen Faktor 5. Auch in Kern 6 finden sich im obersten Drittel deutlich höhere Aktivitäten als in Kern 4. Mit zunehmender Tiefe nehmen diese jedoch ähnlich wie bei Kern 5 auch stetig ab und unterscheiden sich ab einer Tiefe von 12cm im Rahmen der Messunsicherheit nicht mehr von den entsprechenden Aktivitäten in Kern 4. Allgemein liegen die Aktivitäten auch in Kern 6 deutlich unter denen in Kern 5. Eine Ausnahme stellt jedoch die Schicht von 2-4cm dar. Von allen 30 untersuchten Proben ist dort mit 2500 Bq/kg die höchste Cs-137 Aktivität gemessen worden. Dieser Punkt stellt eine Besonderheit im Aktivitätsverlauf von Kern 6 dar, welcher sich ansonsten mit dem von Kern 5 deckt.

Betrachtet man den Verlauf in der Am-241-Aktivität (Abb. 18) von Kern 4 so stimmt dieser qualitativ gut mit dem des Cs-137 überein. Beide Nuklide zeigen ein Plateau in der Aktivitätsverteilung oberhalb einer Tiefe von 9cm gefolgt von einer stetigen Abnahme in den tieferen Schichten. In Kern 6 ist auch beim Am-241 eine Aktivitätsüberhöhung im Bereich von 2-4cm zu sehen. Diese ist sogar noch deutlicher als beim Cs-137 ausgeprägt. Für das Am-241 steigt die Aktivität verglichen mit der obersten untersuchten Schicht um einen Faktor 3 an. Damit stellt diese Probe auch im Bezug auf Am-241 die aktivste dar.

Abgesehen von diesem Maximum zeigen sich auch für dieses Nuklid deutliche Parallelen zwischen den Verläufen in Kern 5 und 6, welche sich jedoch anders als bei Kern 4 deutlich von den Verläufen für Cs-137 unterscheiden. So ist in Kern 6 im Bereich von 4-12 cm und in Kern 5 bei 4-15 cm ein Plateau in der Aktivitätsverteilung zu erkennen. In den Bereichen unterhalb dieser Plateaus ist dazu eine deutlich stärkere Abnahme der Aktivitäten als beim Cs-137 zu verzeichnen.

Generell unterscheiden sich auch die Aktivitätsbereiche für beide Nuklide. So ist die Aktivität des Cs-137 verglichen mit der des Am-241 um etwa einen Faktor 10 höher. Für beide Nuklide ist jedoch die höchste Gesamtaktivität in Kern 5 zu finden, während Kern 4 allgemein die niedrigsten Aktivitäten aufweist.

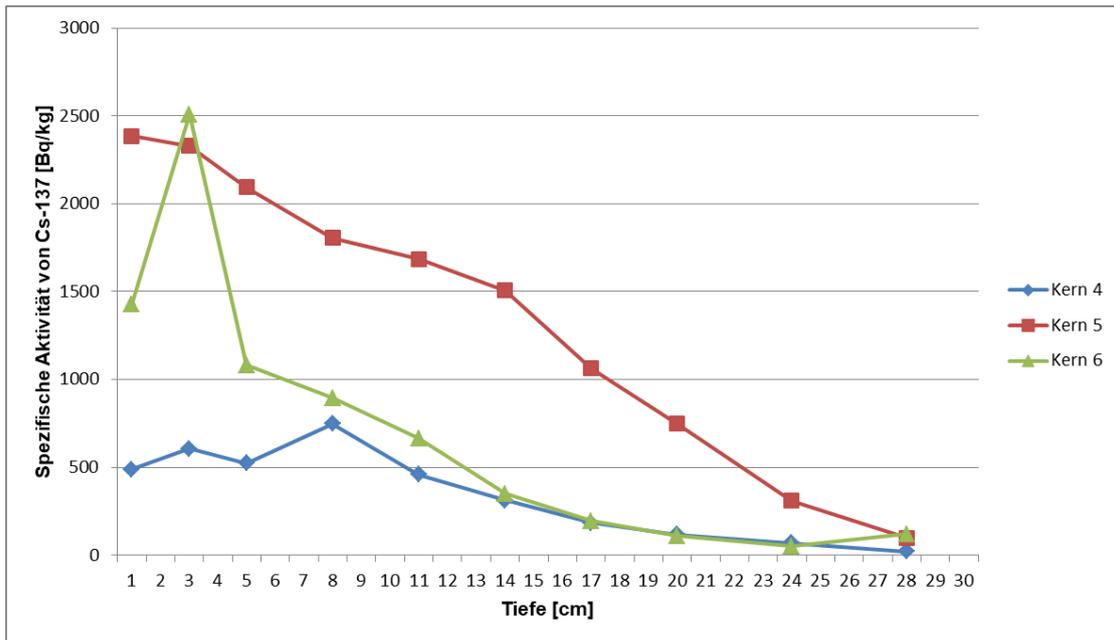


Abbildung 17: Spezifische Aktivitäten von Cs-137.

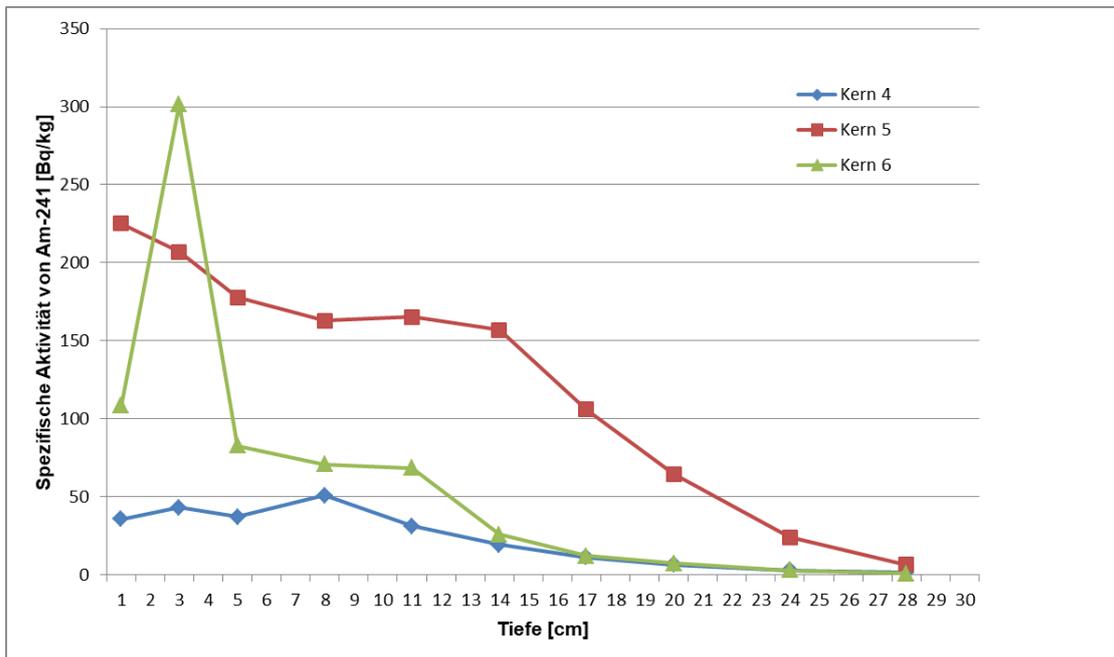


Abbildung 18: Spezifische Aktivitäten von Am-241

4.3. Ergebnisse für Plutonium

Mit der Alpha-Spektrometrie wurden alle Proben auf die Plutoniumisotope Pu-238 und Pu-239+240 untersucht. Auf Grund des beschränkten Auflösungsvermögens bei dieser Methode wird ein gemeinsames Signal für Pu-239 und Pu-240 gemessen. Die Aktivitäten für Pu-238 im Tiefenprofil der Kerne ist in Abb. 20 dargestellt, Abb. 19 zeigt die Verläufe für Pu-239/240. Da sich die unterschiedlichen Isotope des Plutoniums chemisch identisch verhalten, ähneln sich erwartungsgemäß auch die Verläufe für beide Nuklide in dem jeweiligen Kern. Die Verteilung der Aktivitätsmengen in den Kernen relativ zueinander ist vergleichbar mit den Ergebnissen für Cs-137 und Am-241. Wie auch bei den Messungen von Cs-137 und Am-241 sind jedoch auch hier Unterschiede zwischen den Kernen festzustellen. In Kern 4 sind die höchsten Aktivitäten in den obersten 3 Schichten zu finden. Bis zu einer Tiefe von 6 cm liegt das Aktivitätsniveau für Pu-238 im Bereich von 18 Bq/kg. Für Pu-239/240 liegt das Plateau im Bereich von 45 Bq/kg. Unterhalb der 6 cm sinkt die Aktivität aller Plutonium-Nuklide in diesem Kern stark ab.

In Kern 5 ist bis in die dritte Schicht (4-6 cm) sogar eine leichte Zunahme der Aktivität aller Plutonium-Nuklide zu erkennen. Auf Grund der höheren Aktivitäten von Pu-239/240 ist das Maximum hier stärker ausgeprägt als bei Pu-238. Im Bereich bis 12 cm Tiefe ist im Gegensatz zu Kern 4 nur eine geringe Abnahme in den Aktivitäten zu beobachten. Eine deutlichere Abnahme der Aktivitäten ist erst in der unteren Hälfte des Kerns (unter 15 cm) zu sehen.

Ebenso ist für Kern 6 auch erst unterhalb der 12 cm eine deutliche Abnahme der Aktivitäten festzustellen, während sich zwischen 4 und 12 cm Tiefe Plateaus im Bereich von 16 Bq/kg für Pu-238 und 40 Bq/kg für Pu-239/240 ausbilden. Ebenso wie beim Cs-137 und Am-241 kann in der zweiten Schicht von Kern 6 eine Überhöhung der Aktivität gegenüber den benachbarten Schichten festgestellt werden. Relativ zur obersten Schicht sind die Aktivitäten für Pu-238 hier etwa um einen Faktor 5 und für Pu-239/240 um einen Faktor 4 erhöht.

Für Kern 5 und 6 sind die Plutonium-Verteilungen generell mit denen des Am-241 vergleichbar, auch wenn sich die Aktivitäten der Plutonium-Isotope in einem niedrigeren Bereich befinden.

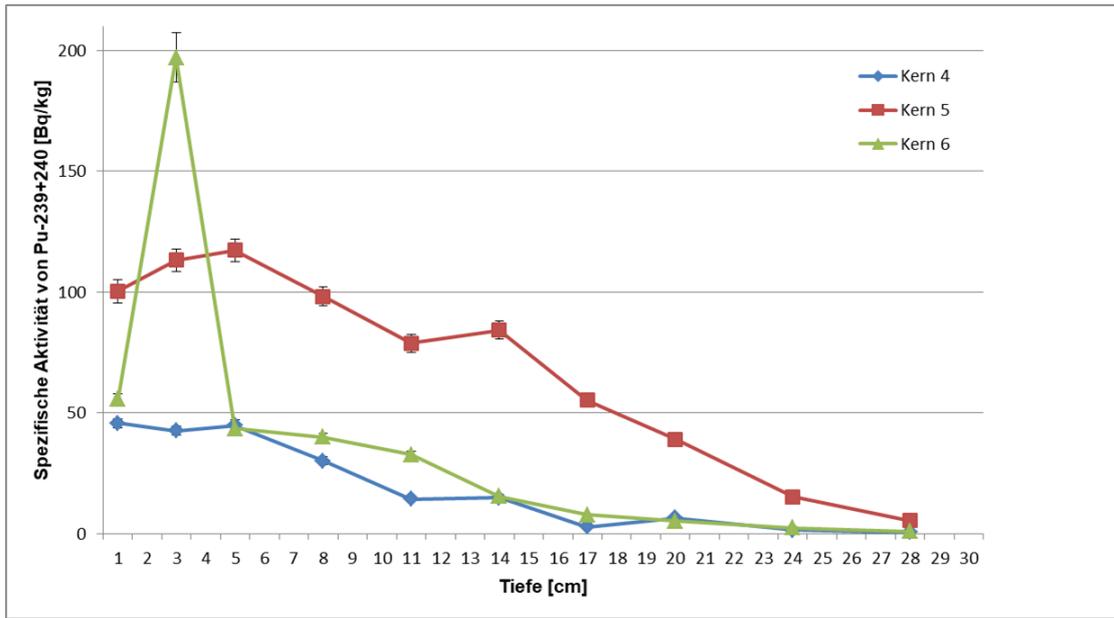


Abbildung 19: Spezifische Aktivitäten von Pu-239/240

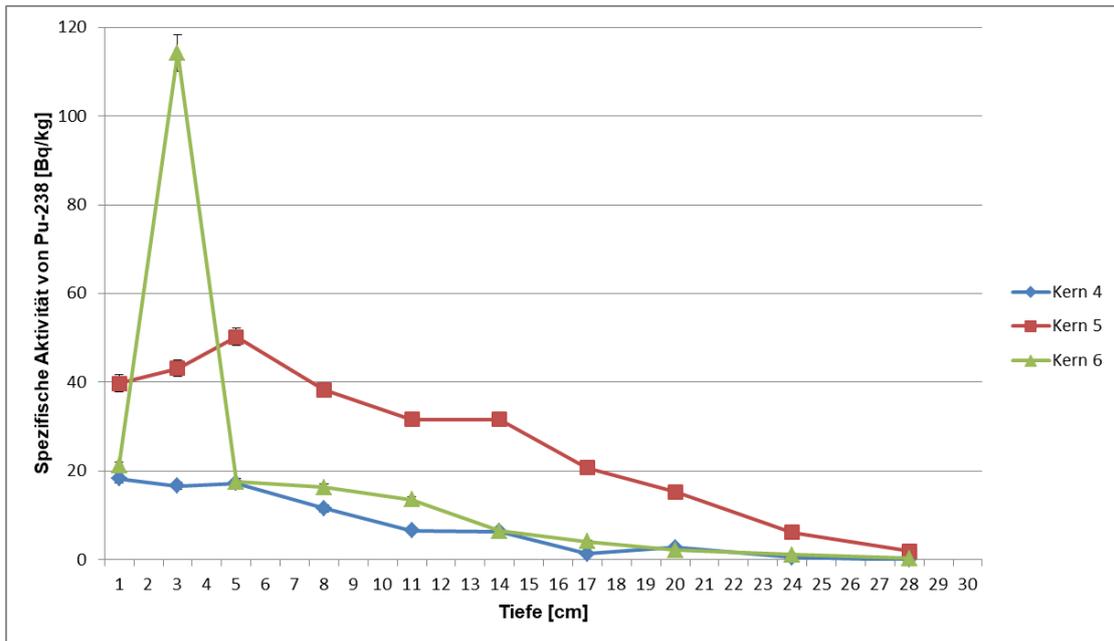


Abbildung 20: Spezifische Aktivitäten von Pu-238

4.4. Ergebnisse für Sr-90

Die Ergebnisse der LSC-Messungen für Sr-90 aller Kerne sind in Abb. 21 dargestellt. Die Tiefenprofile der Sr-90-Verteilungen in den 3 untersuchten Kernen zeigen deutliche Unterschiede im Vergleich zu den anderen Nukliden.

Für alle Kerne ist zu beobachten, dass die Sr-90-Verteilung deutlich homogener ist als im Fall der anderen Nuklide.

Demnach ist das Strontium in allen drei Kernen verglichen mit den anderen Nukliden schneller migriert. In Kern 4 ist eine relativ homogene Verteilung der Sr-90-Aktivität bis zu einer Tiefe von 9cm zu erkennen. In diesen Horizonten liegt die Aktivität im Bereich von 100-130Bq/kg. Das Maximum der Aktivität liegt in der Schicht bei 2-4cm. Abgesehen von den obersten Schichten deckt sich der Verlauf im Wesentlichen mit der Verteilung in Kern 6. Auch die Werte der Aktivitäten stimmen größtenteils überein. In den obersten beiden Schichten ist eine höhere Aktivität zu erkennen, das Maximum ist wie auch bei den anderen Nukliden in der zweiten Schicht vorhanden. Für Sr-90 ist dieses jedoch deutlich weniger ausgeprägt. Die Aktivität in der obersten Schicht ist verglichen mit den Verläufen in den vorangegangenen Messungen der anderen Nuklide ebenfalls erhöht. Die vergleichsweise großen Messunsicherheiten in den obersten beiden Schichten ergeben sich hierbei Verfahrensbedingt auf Grund der großen Probenaktivitäten. Dadurch, dass die Signale des Sr-85-Ausbeute-Tracers und des Sr-90 aus der Probe im Spektrum teilweise überlappen kommt es bei hohen Sr-90-Aktivitäten zu einer größeren Unsicherheit in der Bestimmung der Traceraktivität, was auch zu einer größeren Unsicherheit bei der Bestimmung der Sr-90-Aktivität führt.

Betrachtet man Kern 5, so ist wie bei den anderen Nukliden das Aktivitätsniveau hier von allen drei Kernen am höchsten. Das Maximum der Aktivität für Sr-90 liegt in diesem Kern im Bereich von 170Bq/kg und ist in der Schicht von 15-18cm zu sehen. Das Maximum ist hier auf Grund der insgesamt deutlich höheren Aktivität als in den anderen Kernen auch vergleichsweise stark ausgeprägt. Dazu liegt es in einer tieferen Schicht als die lokalen Maxima, die in den anderen zwei Kernen zu finden sind.

Insgesamt weist die Verteilung der Aktivität von Sr-90 darauf hin, dass Strontium insgesamt eine höhere Mobilität im Boden besitzt als die anderen untersuchten Elemente. Die Migrationsgeschwindigkeit ist höher und führt zu einer deutlich anderen Verteilung der Sr-90-Aktivität. Da sich die Verteilung in an vielen signifikanten Punkten von der Aktivitätsverteilung der anderen Nuklide unterscheidet, scheint das Migrationsverhalten von Strontium bei den vorliegenden Proben auch deutlich weniger durch die Bodenbeschaffenheit beeinflusst zu sein.

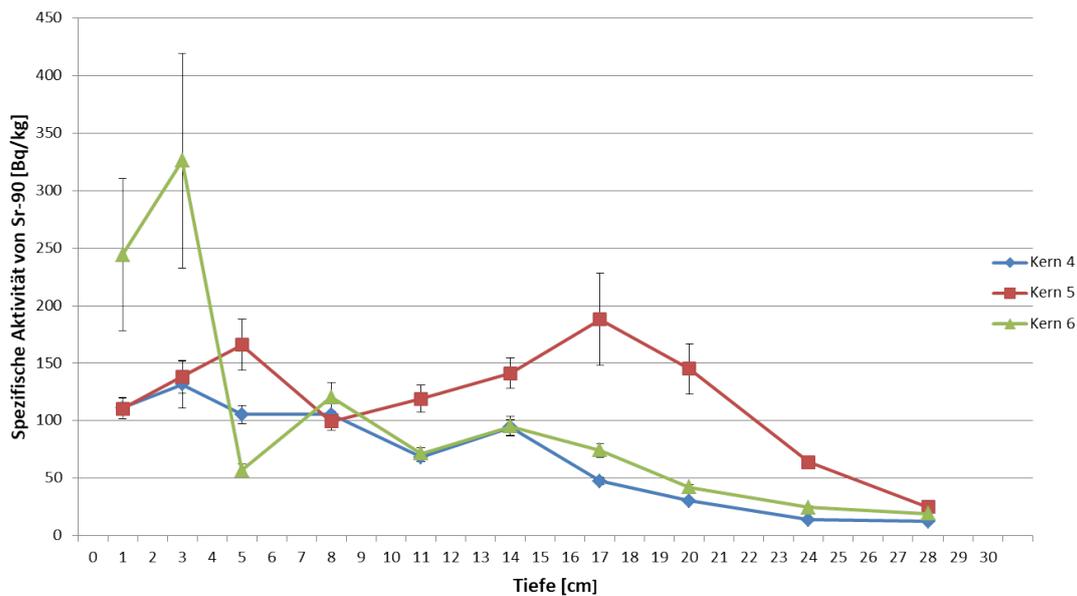


Abbildung 21: Spezifische Aktivitäten von Sr-90

5. Diskussion

5.1. Vergleich der Bohrkerne miteinander

Alle drei Bohrkerne weisen in den oberflächennahen Schichten deutlich voneinander verschiedene Aktivitätsniveaus auf. Dies spricht dafür, dass in Folge des Reaktorunfalls die oberflächliche Verteilung von Radionukliden auch auf kleinen Raum, gemäß den Erwartungen, sehr inhomogen ist. Kern 5 weist im Vergleich der Kerne bei allen untersuchten Nukliden die höchste Aktivität auf. Im Bezug auf Cs-137 und Am-241 ist bis zu einer Tiefe von 12cm auch ein deutlicher Unterschied zwischen Kern 4 und Kern 6 zu erkennen, wobei Kern 4 für alle untersuchten Nukliden stets die niedrigsten Aktivitäten enthält. Unterhalb des 12cm-Horizontes gleichen sich die Aktivitätsverläufe von Kern 4 und Kern 6. Beide Kerne weisen ab dieser Tiefe auch stark übereinstimmende Aktivitätsniveaus auf.

In Bezug auf die Plutoniumisotope befinden sich die Aktivitäten in der 0-2cm-Schicht und der 4-6cm-Schicht in demselben Bereich. Die darunter liegenden Schichten oberhalb einer Tiefe von 13cm zeigen jedoch unterschiedliche Verläufe. Die Aktivität in Kern 4 nimmt unterhalb der 6cm Tiefe bereits deutlich ab, während in Kern 6 bis zu einer Tiefe von 12cm nur eine geringe Abnahme zu erkennen ist.

5.2. Vergleich der Tiefenprofile unterschiedlicher Nuklide

Bohrkern 4

Abbildung 22 zeigt eine Gegenüberstellung der Aktivitätsprofile aller Nuklide für Kern 4. Hierbei ist auffällig, dass die Verläufe von Am-241 und Cs-137 in allen Punkten hohe Übereinstimmungen zeigen. Jedoch unterscheiden sich die Aktivitätsniveaus der beiden Nuklide deutlich voneinander. Des Weiteren zeigt sich im vierten Horizont ein deutlich ausgeprägtes Maximum gefolgt von einem stetigen, exponentiellen Abfall der Aktivitäten mit zunehmender Tiefe. Dies weist darauf hin, dass im Boden auf Höhe des vierten Horizonts die Retention von Americium und Cäsium vergleichsweise hoch ist. Für alle Plutoniumisotope zeigt sich ein Rückgang der Aktivität bereits unterhalb des dritten Horizonts. In den oberen drei Schichten sowie in den Schichten 5 und 6 bilden sich Plateaus im Tiefenprofil aus, was ebenfalls auf Schichten mit hoher Plutonium-Retention im dritten und sechsten Horizont hinweist. Das Aktivitätsminimum in 18cm Tiefe weist darauf hin, dass eine sehr geringe Retention des Plutoniums in dieser Schicht vorliegt. Plutonium aus höheren Schichten migriert nahezu ungehindert durch diese Schicht hindurch und führt so zu einem lokalen Minimum in der Aktivitätsverteilung. Dieses Minimum ist nur bei den Plutonium-Isotopen zu erkennen, die dort vorliegende Bodenschicht weist somit für alle anderen untersuchten Nuklide keine erhöhte Durchlässigkeit auf. Für Strontium ist unterhalb von 15cm ebenfalls eine stetige Verringerung der Aktivität zu erkennen. In der oberen Hälfte des Kerns ist neben dem globalen Maximum in der zweiten Schicht auch ein lokales Maximum bei 15cm zu sehen. Verglichen mit den anderen untersuchten Nukliden ist die Verteilung im oberen Teil des Kerns sehr gleichmäßig. Die Mobilität von Strontium scheint in diesem Kern größer als die der anderen Nuklide zu sein.

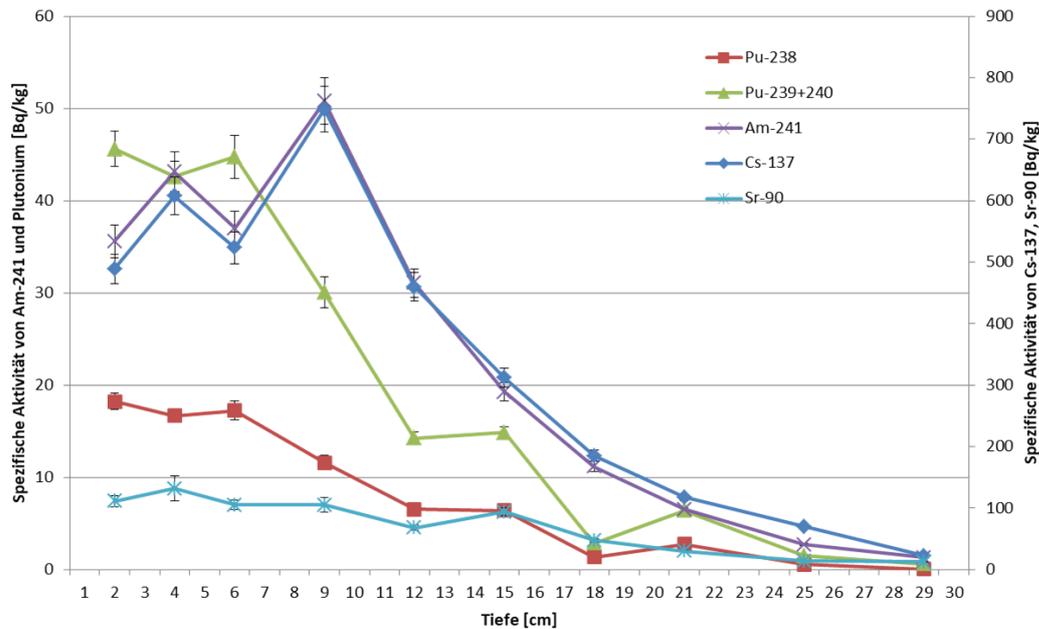


Abbildung 22: Aktivitätsprofile aller Nuklide für Kern 4.

Bohrkern 5

Abbildung 23 zeigt die Aktivitätsverläufe in Kern 5. Die Aktivitäten der unterschiedlichen Plutoniumisotope zeigen auch hier erwartungsgemäß ähnliche Verläufe. Das Maximum der Aktivität ist im Bezug auf Plutonium in der 4-6cm-Schicht zu finden. Unterhalb des Maximums nimmt die Aktivität zunächst ab. In der Tiefe von 12-15cm zeigt sich ein Bereich gleicher Aktivität. Unterhalb von 15cm Tiefe geht die Plutoniumaktivität stetig zurück. Americium zeigt in den obersten drei Horizonten einen stetigen Rückgang. Ab dem 6-9cm-Horizont ist die Aktivität bis zu einer Tiefe von 15cm nahezu konstant und weist im Folgenden einen ähnlichen Verlauf wie die Plutoniumaktivitäten auf. Auch die Kante im Plateau der Verteilung fällt mit den Kanten in den Plutoniumaktivitäten zusammen. Im Gegensatz zu Kern 4 zeigt die Aktivität von Cs-137 in diesem Kern eine stetige, nahezu lineare Abnahme mit der Tiefe und unterscheidet sich abgesehen von den untersten drei Proben deutlich vom Verlauf der Am-241-Aktivität. Für Sr-90 zeigen sich im 4-6cm-Horizont ein lokales und in dem 15-18cm-Horizont das globale Aktivitätsmaximum in diesem Kern. Diese Verteilung unterscheidet sich deutlich von denen der anderen Nuklide und weist auf eine größere Mobilität des Strontiums hin.

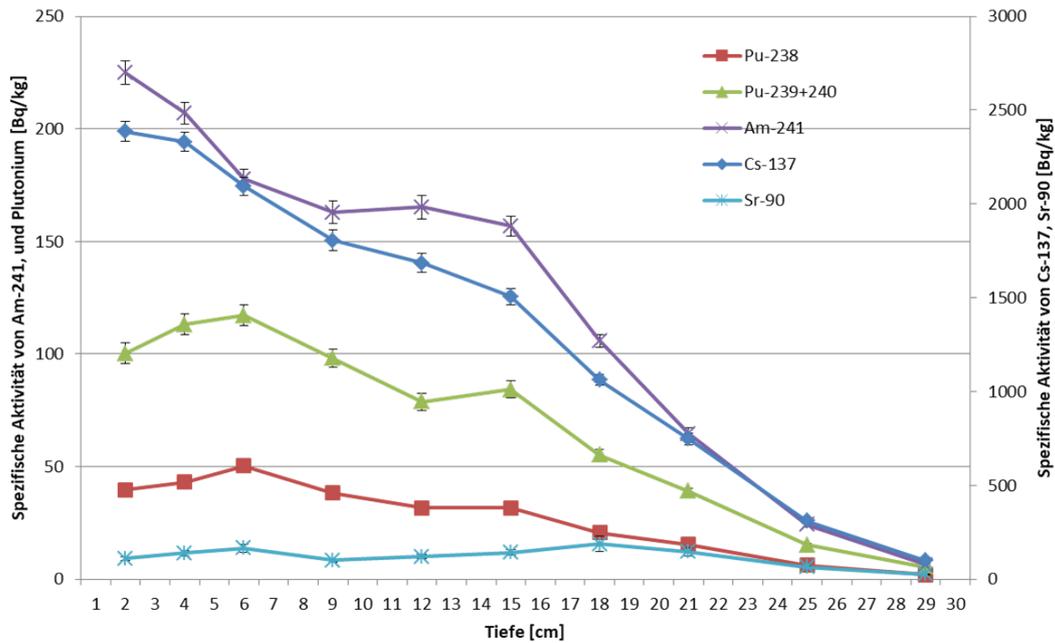


Abbildung 23: Aktivitätsprofile aller Nuklide für Kern 5.

Bohrkern 6

In Abbildung 24 sind die Verläufe der Aktivitäten für Kern 6 dargestellt. Der auffälligste Unterschied zu den anderen Kernen ist der Peak in der Aktivitätsverteilung im 2-4cm-Horizont. Die Aktivitäten von Cs-137 und Am-241 sind in dieser Schicht gegenüber den benachbarten Horizonten um einen Faktor 2 beziehungsweise 3 überhöht. Eine noch deutlichere Überhöhung zeigt sich für die Plutoniumaktivitäten, welche in dieser Schicht sogar um einen Faktor 4 größer sind. Da die Überhöhungen in den Verteilungen auf diese Schicht begrenzt und für alle Nuklide erkennbar sind, kann davon ausgegangen werden, dass ein Hot Particle in dieser Schicht vorhanden war, welches zu einem Anstieg der Aktivitäten bei allen Nukliden trotz unterschiedlicher Migrationsverhalten geführt hat. In der Sr-90-Aktivität ist gegenüber der nächst tieferen Schicht ebenfalls eine deutlich erhöhte Aktivität vorhanden. Auf Grund der großen Unsicherheiten ist jedoch keine signifikante Abweichung im Vergleich mit der 0-2cm-Schicht zu erkennen.

Unterhalb des 2-4cm-Horizonts ähneln die Verteilungen den Verläufen in Kern 5. Auch hier zeigen sich weitgehende Übereinstimmungen in den Aktivitätsverläufen von Plutonium und Americium, wobei Plateaus in den Verteilungen zwischen dem 4-6cm- und dem 9-12cm-Horizont vorliegen. Cs-137 zeigt hingegen unterhalb des zweiten Horizontes eine stetige Abnahme bis zum 22-26cm-Horizont. Für Sr-90 sind auch in diesem Kern deutliche Unterschiede im Vergleich mit den Verteilungen aller anderen Nuklide zu sehen. Die Aktivität zeigt sowohl in der 6-9cm- als auch in der 12-15cm-Schicht zwei lokale Maxima und unterschreitet erst in der 18-21cm-Schicht den Wert im dritten Horizont.

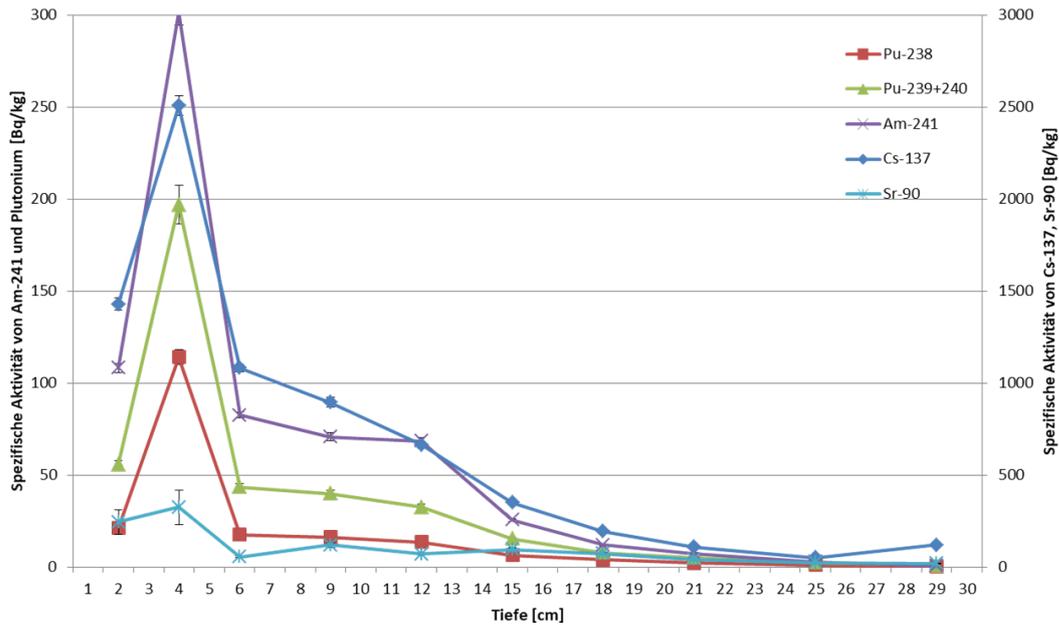


Abbildung 24: Aktivitätsprofile aller Nuklide für Kern 6.

5.3. Bodenbeschaffenheit

Beim Vergleich der Kerne 5 und 6 mit Kern 4 sind die unterschiedlichen Entwicklungen der Aktivitätsverhältnisse von Americium zu Plutonium auffällig. Da das Migrationsverhalten stark von der Bodenbeschaffenheit beeinflusst wird ist anzunehmen, dass Unterschiede in der Zusammensetzung des Bodens einen Beitrag dazu liefern, dass sich unterschiedliche Migrationsverhalten in den Bohrkernen zeigen.

Bereits beim optischen Vergleich von Kern 4 mit Kern 5 und 6 zeigten sich während der Bearbeitung der Proben signifikante Unterschiede. Bei Kern 4 handelt es sich um eine relativ homogene Probe. Mit zunehmender Tiefe sind keine abrupten Änderungen in der Zusammensetzung zu erkennen. Mit zunehmender Tiefe zeigt sich dennoch eine kontinuierliche Zunahme des Sandgehalts in den Horizonten.

Kern 5 weist im Vergleich zu 4 einige Unterschiede auf. In den oberen Horizonten bis zu einer Tiefe von ca. 15cm ist die optische Beschaffenheit der von Kern 4 sehr ähnlich. Im Bereich von 15cm bis 22cm weicht die Zusammensetzung jedoch deutlich von der in Kern 4 ab. Während in den oberen Horizonten relativ sandreiche Proben vorliegen, liegt von 15cm bis 22cm eine deutlich sand-ärmere, bindigere Bodenschicht vor. Unterhalb dieser Schicht ist Zusammensetzung und Verlauf wieder mit den oberen Horizonten in guter Übereinstimmung.

Auch in Kern 6 zeigt sich ein ähnliches Bild im Bezug auf die optischen Bodenmerkmale. Die Zusammensetzung ist der in Kern 5 im allgemeinen ähnlich. Auch hier ist eine bindigere Zwischenschicht zu erkennen, welche sich hier jedoch im Horizont von 12cm bis 18cm befindet. Ober- und unterhalb dieser Schicht liegen wie in Kern 4 und 5 relativ

sand-reiche Schichten mit einem nach unten hin leicht zunehmenden Sandanteil vor. Vergleicht man die Aktivitätsverläufe mit der Bodenzusammensetzung so ist auffällig, dass die Kanten der Plateaus in den Verläufen von Plutonium und Am-241 in den Kernen 5 und 6 in den Tiefen liegen, in denen sich die Bodenzusammensetzung abrupt ändert. Die stärkere Abnahme in den Aktivitätsverteilungen scheinen in direkter Korrelation mit der Bodenschichtung zu stehen. Diese Beobachtung wird für die Interpretation der Ergebnisse in den folgenden Abschnitten von entscheidender Bedeutung sein.

5.4. Aktivitätsverhältnisse

5.4.1. Plutoniumisotope

Die Zusammensetzung der Plutoniumisotope kann Aufschluss über den Ursprung beziehungsweise die Quelle des Plutoniums liefern. Alle in der Umwelt vorkommenden Plutoniumisotope sind anthropogenen Ursprungs und können durch verschiedene Umstände in die Biosphäre gelangt sein.

Von zentraler Bedeutung ist hierbei Plutonium, welches dem globalen Fallout in Folge von Kernwaffentests zuzuordnen ist. Bei Plutonium, welches aus Kernwaffen stammt, handelt es sich im wesentlichen um hoch-angereichertes Pu-239, da dieses spaltbar und daher zentraler Bestandteil einer auf Plutonium basierenden Kernwaffe ist. Auf Grund des hohen Pu-239-Anteils ist das Verhältnis von Pu-238 zu Pu-239+240 im globalen Fallout daher sehr klein (s. Abb. 25). Plutonium aus Kernreaktoren zeigt eine deutlich vom Fallout verschiedene Isotopenzusammensetzung. In Kernreaktoren die Plutonium erbrüten werden neben Pu-239 auch alle anderen Plutoniumisotope in unterschiedlichen Anteilen gebildet. Die daraus resultierende Isotopenzusammensetzung hängt dabei sowohl vom Reaktortyp als auch vom Abbrand des Kernmaterials ab ([4], [26]). Für das Isotopenverhältnis von Pu-238 zu Pu-239+240 aus Kernreaktoren sind Werte im Bereich von 0,2 bis 0,6 zu erwarten.

Das Aktivitätsverhältnis von Pu-238 zu Pu-239+240 ist für alle drei Kerne in Abbildung 26 aufgetragen. Bei Kern 5 liegt das Verhältnis unter Einbeziehung der Unsicherheiten in allen Tiefen im Bereich von 0,4. Auch für Kern 6 ist für die Proben aus der oberen Hälfte (bis 15cm) und in Kern 4 in den 4 obersten Proben (bis 9cm) ein sehr konstantes Verhältnis im Bereich von 0,4 zu erkennen. In den Proben 4.5, 4.7 und 6.9 liegt das Verhältnis der Aktivitäten zwischen 0,4 und 0,5. Für Probe 6.7 ist sogar ein Verhältnis von über 0,5 zu erkennen und somit deutlich gegenüber den restlichen Proben erhöht. In der tiefsten Probe von Kern 6 (6.10) liegt gegenüber den anderen Proben ein niedrigeres Verhältnis vor. Damit zeigt sich in den Proben von Kern 6 eine vergleichsweise große Varianz in den Aktivitätsverhältnissen. Im Rahmen der Unsicherheiten zeigen sich dennoch große Übereinstimmungen der Aktivitätsverhältnisse für alle untersuchten Proben.

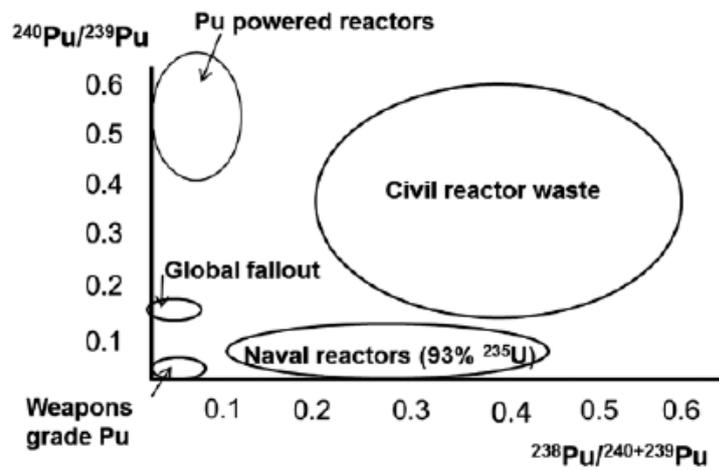


Abbildung 25: Isotopenverhältnisse von Plutonium aus unterschiedlichen Quellen [26].

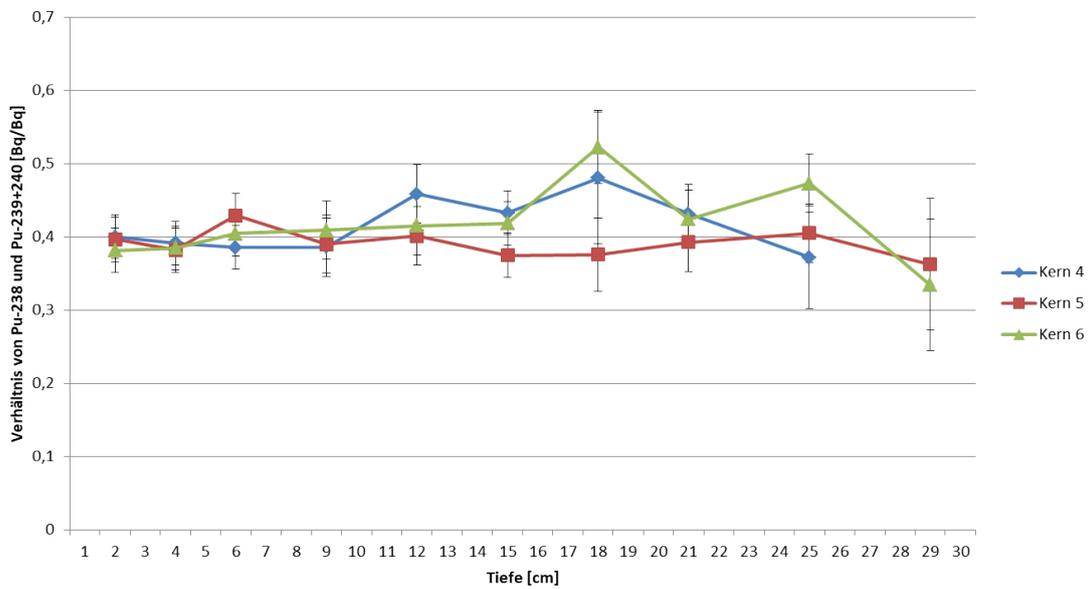


Abbildung 26: Plutoniumverhältnisse im Tiefenprofil aller drei untersuchten Bohrkern.

Am-241 zu Pu-239+240

Bei den Aktivitäten von Cs-137, Sr-90 und Plutonium in den untersuchten Proben handelt es sich um Verteilungen, die durch eine anfänglich oberflächliche Kontamination in Folge des Unfalls im Tschernobyl Kernkraftwerks zustande gekommen ist. Aus der anfänglich nur oberflächlichen Deposition der Radionuklide ist durch vertikale Migration in der Zeit seit dem Unfall die gemessenen Verteilungen in den Tiefenprofilen zustande gekommen.

Die aktuelle Verteilung von Am-241 hat jedoch eine andere Ursache. Bei Am-241 liegt anfänglich keine wesentliche Deposition an der Oberfläche vor, da dieses Nuklid zu größten Anteilen erst in der Zeit nach dem Unfall durch den Zerfall von Pu-241 gebildet wurde. Die Verteilung hängt somit zum einen von dem Migrationsverhalten des Pu-241 im Boden und zum anderen auch von der Mobilität des Am-241 an sich ab.

Abbildung 27 zeigt das Verhältnis der Aktivitäten von Am-241 und Pu-239+240 in Kern 5 und 6. Für beide Kerne sind zusätzlich Trendlinien eingezeichnet. Beide Linien verlaufen nahezu parallel mit negativer Steigung. Dies zeigt an, dass das Aktivitätsverhältnis über die gesamte Tiefe der beiden Kerne tendenziell und im vergleichbaren Maße abnimmt. Aus dieser Abnahme kann geschlossen werden, dass das Vorkommen des Am-241 in den tieferen Schichten überwiegend durch den Zerfall von Pu-241 bedingt ist. Dadurch, dass die Migration des Americiums für die Verteilung in der Tiefe eine untergeordnete Rolle einnimmt kann angenommen werden, dass das Plutonium tendenziell schneller in diesen Kernen migriert ist als das Americium.

In Abbildung 28 ist das Tiefenprofil des selben Aktivitätsverhältnisses für Kern 4 dargestellt. Im Unterschied zu den anderen beiden Kernen nimmt das Verhältnis mit der Tiefe tendenziell zu. Demnach ist in diesem Kern die Americium-Verteilung stärker durch die Migration des Americiums und nicht durch den Zerfall von bereits migriertem Pu-241 bedingt. In der Probe 4.7 (15-18cm) ist das Aktivitätsverhältnis im Bereich von 4 und damit gegenüber allen anderen Proben deutlich überhöht. Die Ursache darin liegt in der Verteilung von Pu-239+240 deren Aktivität in dieser Schicht ein lokales Minimum zeigt (Abb. 19) während die Am-241-Aktivität mit der Tiefe auch unterhalb dieses Horizontes weiter stetig abnimmt. Das Minimum in der Pu-239+240-Aktivität deutet darauf hin, dass das Plutonium durch diese Schicht deutlich schneller hindurch migriert als das Americium.

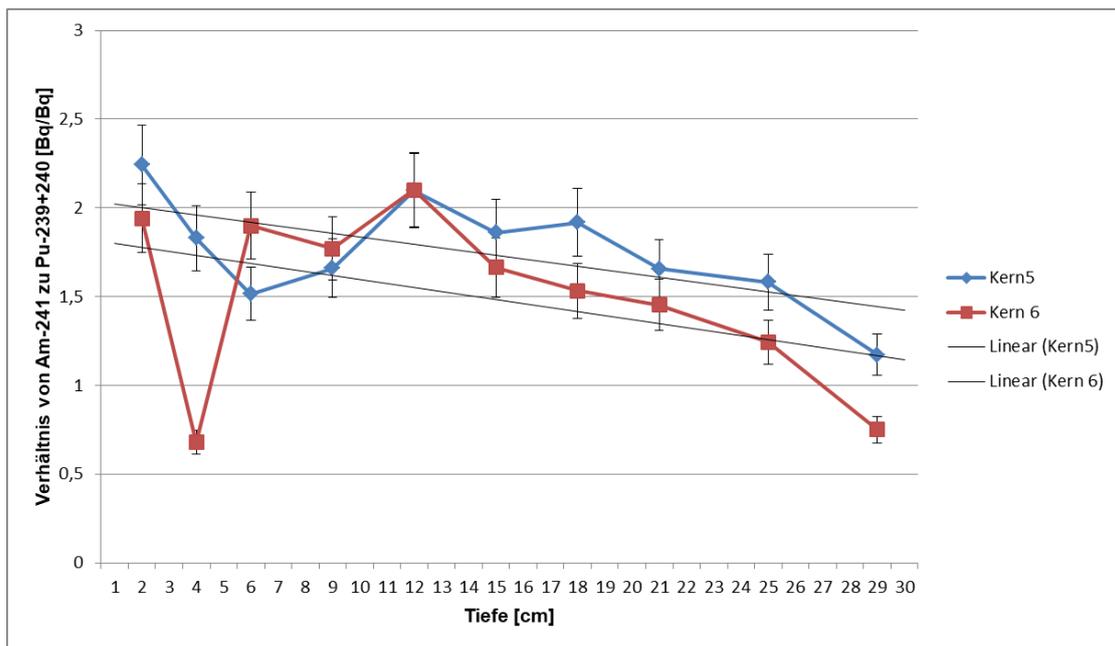


Abbildung 27: Aktivitätsverhältnisse von Am-241 zu Pu-239+240 für Kern 5 und 6.

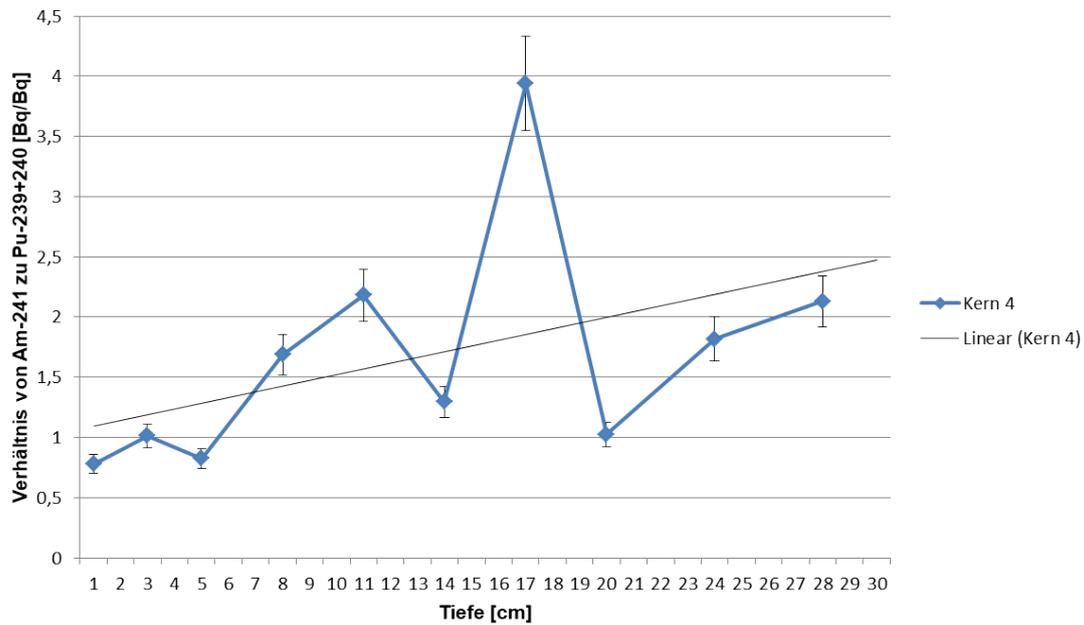


Abbildung 28: Aktivitätsverhältnisse von Am-241 zu Pu-239+240 für Kern 4.

5.5. Mathematische Modellierung von Aktivitätsverteilungen

In den vorhergegangenen Abschnitten wurde auf den Zusammenhang der Aktivitätsverteilungen mit der Bodenbeschaffenheit eingegangen und des Weiteren die Verringerung des Aktivitätsverhältnisses von Plutonium zu Americium als Indiz für eine höhere Migrationsgeschwindigkeit des Plutoniums gegenüber dem Americium gewertet.

Um diese Hypothesen zu untermauern, wurde eine mathematische Modellierung für die Aktivitätsverteilungen der Nuklide und deren Aktivitätsverhältnisses in Abhängigkeit von der Zeit und variablen Transferfaktoren für beide Nuklide in jeder Bodenschicht vorgenommen.

5.5.1. Modell zur Migration von Plutonium

Als Ausgangspunkt für die mathematische Modellierung wird die zeitliche Entwicklung der Verteilung von Pu-239/240 im Tiefenprofil des Bodens erstellt. Auf Grund der langen Halbwertszeiten kann in diesem Schritt die Verringerung der Menge beider Nuklide durch deren Zerfall vernachlässigt werden. Es wird also davon ausgegangen, dass im betrachteten Zeitraum zwischen der Deposition des Plutoniums an der Oberfläche und dem Zeitpunkt der Messung die Menge an Pu-239/240 konstant bleibt. In der Modellrechnung wird von der oberflächlichen Deposition z_0 einer Menge $M_{Pu}(t_0, z_0)$ an Plutonium zum Zeitpunkt t_0 ausgegangen. Nach einem Zeitintervall t_n soll nun ein gewisser Anteil des deponierten Plutoniums in die oberste Bodenschicht gelangt sein.

$$M_{Pu}(t_x, z_0) = M_{Pu}(t_{x-1}, z_0) - (M_{Pu}(t_{x-1}, z_0) \cdot T_{Pu}(z_1)) \quad (29)$$

Im nächsten Zeitintervall migriert ein Anteil des bereits im Boden vorhandenen Plutoniums $M_{Pu}(t_1, z_1)$ in den zweiten, tieferen Bodenhorizont während wiederum Plutonium von der Oberfläche z_0 in die erste Schicht z_1 gelangt.

$$M_{Pu}(t_x, z_y) = M_{Pu}(t_{x-1}, z_y) + M_{Pu}(t_{x-1}, z_{y-1}) \cdot T_{Pu}(z_y) - (M_{Pu}(t_{x-1}, z_y) \cdot T_{Pu}(z_{y+1})) \quad (30)$$

Für alle Berechnungen werden die Zeitintervalle t_n in Jahren und die Dicke der Bodenschichten z_m in Zentimetern dargestellt. Die Größe des Anteils an Plutonium der in eine Schicht migriert, wird durch einen Plutonium-Transferfaktor $T_{Pu}(z)$ bestimmt. Dieser Faktor kann in der Berechnung für jede Schicht mit 5 cm Dicke variiert werden. Damit kann eine Anpassung der Transferfaktoren entsprechend der Erwartungen auf Grund von Unterschieden in der Bodenbeschaffenheit erfolgen. Durch die Variation der Transferfaktoren lässt sich der qualitative Verlauf des Aktivitätsprofils von Pu-239/240 für Kern 5 rekonstruieren. Dabei muss beachtet werden, dass für die Umrechnung einer

Stoffmenge $N(t)$ in eine Aktivität $A(t)$ gilt

$$A(t) = \lambda \cdot N(t) = \frac{\ln(2)}{HWZ} \cdot N(t) \quad (31)$$

5.5.2. Modellierung der Verteilung von Americium

Um die Aktivitätsverteilung von Am-241 im Boden zu modellieren, wurde davon ausgegangen, dass alles im Boden vorhandene Am-241 durch den Zerfall von Pu-241 entstanden ist. Da unterschiedliche Isotope von Plutonium gleiche chemische Eigenschaften aufweisen, wird für dessen Migrationsverhalten das im letzten Abschnitt entwickelte Modell verwendet. Jedoch wird in diesem Fall die Halbwertszeit des Pu-241 mit in die Berechnung einbezogen. Somit folgt für die Verteilung von Pu-241 zum Zeitpunkt t_x im Horizont z_y

$$M_{Pu-241}(t_x, z_y) = M_{Pu}(t_x, z_y) \cdot e^{-i\lambda t} \quad (32)$$

Eine Verteilung des mit der Zeit in jedem Horizont gebildeten Am-241 erhält man nun durch die Summe des zum einem früheren Zeitpunkt bereits vorhandenen Am-241 und des im vergangenen Zeitintervall aus Pu-241 neu gebildeten Am-241

$$M_{Am}(t_x, z_y) = M_{Pu-241}(t_{x-1}, z_y) \cdot b_{Am} + M_{Am}(t_{x-1}, z_y) \quad (33)$$

b_{Am} ist dabei der Anteil an Pu-241, welcher in einem Zeitintervall zu Am-241 zerfallen ist.

Um eine realistische Verteilung des Americiums zu erhalten, muss auch die Migration mit in der Berechnung berücksichtigt werden. Dabei wird analog zum vorhergegangenen Abschnitt davon ausgegangen, dass in einem Zeitintervall ein Teil des Americiums aus einer höheren Schicht in eine tiefere migriert, welcher von einem der jeweiligen Schicht angepassten Transferfaktor $T_{Am}(z_m)$ bestimmt wird.

Damit folgt die Verteilung des Americiums im Boden folgender Modellrechnung

$$\begin{aligned} M_{Am}(t_x, z_y) = & M_{Am}(t_{x-1}, z_y) + M_{Am}(t_{x-1}, z_{y-1}) \cdot T_{Am}(z_y) \\ & - M_{Am}(t_{x-1}, z_y) \cdot T_{Am}(z_{y+1}) \\ & + (M_{Am,ohneMig.}(t_x, z_y) - M_{Am,ohneMig.}(t_{x-1}, z_y)) \end{aligned} \quad (34)$$

Durch Variation der $T_{Am}(z_m)$ kann die Verteilung ebenfalls Qualitativ an das Aktivitätsprofil in Kern 5 angepasst werden.

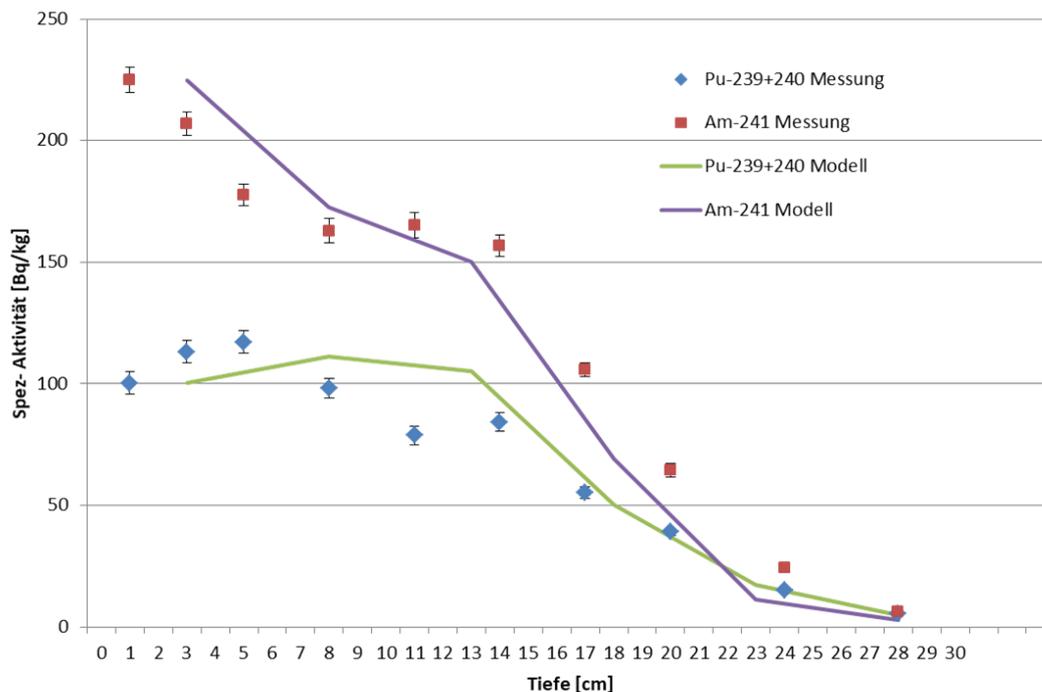


Abbildung 29: Vergleich der gemessenen Aktivitäten aus Kern 5 mit den modellierten Werten.

5.5.3. Ergebnisse und Vergleich mit Messungen

Durch Anpassungen der Transferfaktoren für Americium und Plutonium in den unterschiedlichen Horizonten der Modellrechnungen wurde versucht, eine möglichst gute Übereinstimmung mit den gemessenen Werten aus Kern 5 zu erhalten. Die Verläufe der Aktivitäten in Kern 5 sind in Abbildung 29 dem modellierten Aktivitätsprofilen gegenübergestellt. In Anbetracht der Vereinfachungen, welche in den Annahmen des Modells gemacht wurden, lässt sich eine gute Übereinstimmung mit den Messwerten erkennen. So stimmen die Verläufe der Aktivitäten im Rahmen des Auflösungsvermögens durch die Einteilung der einzelnen Horizonte gut miteinander überein. Auch eine Abnahme im Aktivitätsverhältnis von Am-241 zu Pu-239/240 mit der Tiefe konnte durch das Modell reproduziert werden (Abb. 29 und 30).

In Tabelle 4 sind die im Modell verwendeten Transferfaktoren für Plutonium und Americium in den einzelnen Horizonten gegenüber gestellt. Für das Plutonium wurde die Änderung der Bodenbeschaffenheit im Bereich von 15 bis 22cm in Kern 5 durch einen kleineren Faktor berücksichtigt. Es zeigt sich, dass eine Verringerung des Transferfaktors von 25 Prozent verglichen mit dem Faktor des darüber liegenden Horizontes notwendig ist, um das Tiefenprofil von Kern 5 in guter Näherung rekonstruieren zu können. Dazu muss auch ein Anstieg des Transferfaktors vom ersten bis zum dritten Ho-

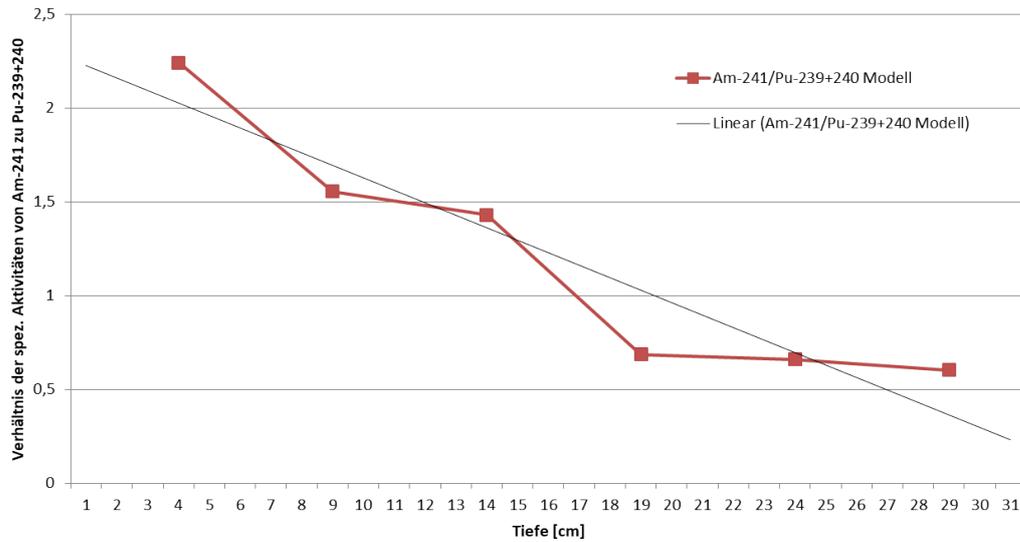


Abbildung 30: Aus dem Modell resultierendes Tiefenprofil des Aktivitätsverhältnisses von Am-241 zu Pu-239+240.

Horizont angenommen werden, um ein Plateau in der Aktivitätsverteilung zu modellieren. Diese Ergebnisse aus der Modellierung zeigen, dass die Annahmen, welche bezüglich des Einflusses der Bodenbeschaffenheit auf das Migrationsverhalten des Plutoniums in den vorhergegangenen Abschnitten getroffen wurden, eine Erklärung für die in den Proben vorliegenden Verteilungen liefern können.

Verglichen mit Plutonium mussten für Americium in allen Horizonten geringere Transferfaktoren angenommen werden um eine gute Näherung an die realen Messwerte zu erhalten. In den obersten 3 Horizonten müsste die Migrationsgeschwindigkeit des Ame-

Tiefe in [cm]	$T_{Pu}(z)$	$T_{Am}(z)$
0-5	0,07	0,056
5-10	0,077	0,0616
10-15	0,084	0,0672
15-20	0,063	0,0252
20-25	0,063	0,0378
25-30	0,07	0,056

Tabelle 5: Im Modell verwendete Transferfaktoren für Plutonium und Americium im Vergleich.

riciums hiernach um 20 Prozent geringer sein als die des Plutoniums. Die sandarme Bodenschicht (15 bis 22cm) von Kern 5 scheint zudem einen deutlich stärkeren Einfluss auf die Migration des Americiums als auf die des Plutoniums zu haben. Um eine mit Kern 5 vereinbare Verteilung zu modellieren muss im vierten und fünften Horizont ein deutlich geringerer Transferfaktor angenommen werden, als es für Plutonium der Fall ist. Dies ist auch von entscheidender Bedeutung für die Abnahme des Aktivitätsverhältnisses von Am-241 zu Pu-239/240 mit der Tiefe.

Insgesamt konnte durch die Modellierung so auch gezeigt werden, dass eine Abnahme des Aktivitätsverhältnisses im Tiefenprofil auf eine höhere Migrationsgeschwindigkeit von Plutonium im Vergleich zu Americium zurückgeführt werden kann (Abbildung 30).

5.6. Vergleich mit anderen Arbeiten

In der Arbeit [4] aus dem Jahr 2016 wurden ebenfalls 2 Bohrkern aus Pripyat untersucht, die im Rahmen derselben Exkursion genommen wurden. Beide Kerne zeigen höhere Aktivitäten im Bezug auf Cs-137, Am-241 und Plutonium als die Kerne in dieser Arbeit. Sowohl die in dieser Arbeit als auch die in [4] betrachteten Proben zeigen ähnliche Verläufe in den Tiefenprofilen von Cäsium, Americium und Plutonium unterhalb der 15cm-Grenze. So sind auch in den beiden Proben aus [4] Plateaus der Aktivitätsverteilungen von Americium und Plutonium in den oberen Schichten zu erkennen. Eine stetige Abnahme der Aktivität mit der Tiefe liegt ebenfalls erst unterhalb des 12cm-Horizontes vor. Des Weiteren ist in der Probe Pripyat-3 aus [4] eine vergleichbar gute Übereinstimmung in den Verläufen von Cs-137 und Am-241 gezeigt worden wie es auch in Kern 4 in dieser Arbeit der Fall ist. Im Unterschied zu den hier untersuchten Proben sind jedoch deutliche Maxima für Plutonium in den Tiefen von 9-12cm in beiden Proben bei [4] gezeigt worden. Die in dieser Arbeit ermittelten Verhältnisse von Am-241 zu Pu-239+240 (Abb. 24 und 25) sind im Allgemeinen unter den Werten aus [4]. Da die Untersuchung der Proben in dieser Arbeit später stattgefunden hat, wäre auf Grund des Einwachsens von Am-241 jedoch ein eher größeres Verhältnis zu erwarten. Diese Diskrepanz kann dadurch erklärt werden, dass die Kontamination der Bodenproben in dieser Arbeit auf Material aus einem Bereich des Reaktors zurückzuführen ist, welches anderen Neutronenflüssen ausgesetzt war und so einen geringeren Anteil an Pu-241 zum Zeitpunkt des Unfalls aufgewiesen hat.

Verglichen mit früheren Arbeiten zeigen sich weitere Unterschiede bezüglich der Plutoniumverteilungen. In [3] aus dem Jahr 2009 wurden ebenfalls Tiefenprofile für Plutonium in Bodenproben aus der nördlichen Ukraine untersucht. Im Gegensatz zu den Ergebnissen in dieser Arbeit wurde dort der überwiegende Anteil des Plutoniums in den obersten 5cm der Bodenprofile gefunden. Auch die Analysen von Böden aus Kupetsch in [10] aus dem Jahr 2006 zeigen vergleichbare Ergebnisse im Bezug auf Tiefenprofile von Plutonium und auch Americium. Die Untersuchungen der Proben aus [4] und dieser Arbeit zeigen hingegen, dass Plutonium und Americium in allen Fällen auch in tiefere Schichten bis 30cm migriert ist.

In [6] aus 2004 wurde das Migrationsverhalten von Sr-90 in Böden untersucht. Dabei wurden auch Tiefenprofile für Bodenproben aus Christinowka in der nördlichen Ukraine erstellt. Diese zeigen eine stetige Verringerung der Aktivitäten mit der Tiefe bereits ab der obersten Bodenschicht. Bei den Proben Kern 4 und Kern 6 in dieser Arbeit ist dies erst unterhalb des 15cm-Horizonts der Fall. In Kern 5 ist sogar erst unterhalb von 21cm eine deutliche Verringerung erkennbar. Diese deutlich homogenere Verteilung kann zum Teil durch die längere Zeit erklärt werden in der das Sr-90 in tiefere Schichten migriert sein kann. Da jedoch weder für die Proben in dieser Arbeit noch die in [6] nähere bodenkundliche Informationen zur Verfügung stehen ist eine direkte Vergleichbarkeit der Daten nicht möglich.

5.7. Zusammenfassung und Ausblick

Insgesamt wurde gezeigt, dass sich die Aktivitäten in den unterschiedlichen Kernen trotz ihrer Nähe zueinander (Entfernung 50cm), im Bezug auf alle untersuchten Nuklide deutlich unterscheiden. Dieses Ergebnis bestätigt die erwartete inhomogene Verteilung in Folge des Unfalls, welche auch in [4] beobachtet wurde. Die in dieser Arbeit gefundenen Aktivitäten sind dabei generell unter den Werten, welche in den beiden Kernen aus [4] ermittelt wurden.

Jedoch konnten alle untersuchten Radionuklide bis zu einer Tiefe von 30cm in dieser Arbeit nachgewiesen werden, wobei auch heute noch der größte Anteil der Aktivitäten in den oberen 15cm der Böden zu finden war. Als einzige Ausnahme ist dabei Kern 5 in Bezug auf die Sr-90-Verteilung zu nennen, wo sich das Aktivitätsmaximum in der 15-18cm-Schicht befindet. Auch in den anderen Kernen ist die Sr-90-Verteilung verglichen mit den anderen Nukliden über die Tiefe deutlich homogener, was auf eine vergleichsweise große Mobilität des Strontiums hinweist.

Die Tiefenprofile der anderen Nuklide weisen innerhalb eines Kerns zum Teil große Übereinstimmungen in ihren Verläufen auf. Insbesondere sind in Kern 5 und 6 signifikante Punkte zu erkennen bei denen sich sowohl die Verläufe der Am-241-Aktivität als auch die Plutonium-Aktivitäten gemeinsam ändern. Diese Punkte konnten mit optisch erkennbaren Änderungen in der Bodenbeschaffenheit in Verbindung gebracht werden. Eine mathematische Modellierung der Aktivitätsverteilungen beider Nuklide unter Einbeziehung des Einwachsens der Am-241-Aktivität und der erwarteten Änderung der Migrationsgeschwindigkeiten in Abhängigkeit von der Bodenzusammensetzung lieferte eine qualitativ gute Übereinstimmung mit den beobachteten Verläufen. Des Weiteren zeigte die Modellierung auch, dass die beobachteten Verläufe der Aktivitäten und Abnahmen im Nuklidverhältnis von Am-241 und Pu-239+240 dadurch zustande kommen können, dass Plutonium über die gesamte Tiefe eines Kerns eine größere Migrationsgeschwindigkeit als Americium aufweist.

Während die Verläufe aller Aktivitäten in den Kernen 5 und 6 im Allgemeinen ähnlich sind, zeigen sich beim Vergleich mit Kern 4 deutliche Unterschiede. Im Gegensatz zu den anderen Kernen liegt hier der weitaus größte Teil der Plutoniumaktivität in den obersten drei Schichten vor, während die Am-241-Aktivität eine Schicht tiefer ihr Maximum erreicht. Des Weiteren wurde eine auffällig große Übereinstimmung der Verläufe von Am-241 und Cs-137 festgestellt, welche in dieser Ausprägung nicht in den anderen Kernen vorlag.

Allgemein konnten in einigen Punkten Migrationsverhalten und Bodenbeschaffen miteinander in Verbindung gebracht werden. Um die Ursachen für die Gemeinsamkeiten und Unterschiede in den Aktivitätsverläufen in Bodenprofilen, sowie Einflüsse der Bodenbeschaffenheit auf das Migrationsverhalten unterschiedlicher Radionuklide noch besser verstehen zu können, ist jedoch eine umfassendere bodenkundliche Untersuchung von Bodenproben im Vorfeld der radiometrischen Untersuchungen notwendig.

Anhang

Literatur

- [1] S. Schneider. Untersuchung von Bodenproben aus Fukushima in Bezug auf Pu Isotopenverteilung mittels AMS. Masterarbeit, Leibniz Universität Hannover, 2013.
- [2] Der Reaktorunfall in Tschernobyl - Unfallursachen Unfallfolgen und deren Bewältigung Sicherung und Entsorgung des Kernkraftwerks Tschernobyl. Deutsches Atomforum e.V., 2011.
- [3] T. Bisinger. Bestimmung von Plutonium-Isotopen in der Umwelt mittels Alphaspektrometrie und AMS. Doktorarbeit, Leibniz Universität Hannover, 2009.
- [4] P. Brozynski. Migration von Radionukliden in Bodenproben aus der Nördlichen Ukraine. Masterarbeit, Institut für Radioökologie und Strahlenschutz, Leibniz Universität Hannover, 2016.
- [5] Report to the General Assembly with Scientific Annexes. United Nations Scientific Community on the Effects of Atomic Radiation, 2008.
- [6] A. Mewis Strontium-90 in der Umwelt - Migrationsverhalten im Boden, Transfer in die Nahrungskette und Strahlenexposition in der nördlichen Ukraine. Dissertation, Institut für Radioökologie und Strahlenschutz, Leibniz Universität Hannover, 2004.
- [7] F. Tawussi. Gammaspektrometrische Untersuchung von Umweltproben - Von der natürlichen Radioaktivität bis zum Fallout von Fukushima. Masterarbeit, Leibniz Universität Hannover, 2012.
- [8] C. Walther, P. Brozynski, and S. Dubchak. Tschernobyl - 30 Jahre danach. In: Physik Journal, 2016.
- [9] J.-H. Wicke. Untersuchungen zur internen Strahlenexposition durch Cäsium-137 in der nördlichen Ukraine. Diplomarbeit, Leibniz Universität Hannover, 2004.
- [10] S. Hippler. Strahlenexposition durch anthropogene Actinoide in der nördlichen Ukraine. Doktorarbeit, Leibniz Universität Hannover, 2006.
- [11] M. Mandel. Plutoniumverteilung in Böden der nördlichen Ukraine. Bericht Forschungspraktikum, Institut für Radioökologie und Strahlenschutz, Leibniz Universität Hannover, 2016.
- [12] L. Peters. Charakteristische Grenzen nach DIN ISO 11929. Diplomarbeit, Leibniz Universität Hannover, 2012.

- [13] S. Pottgiesser. Plutoniumverteilung in Böden der nördlichen Ukraine. Bericht Forschungspraktikum, Institut für Radioökologie und Strahlenschutz, Leibniz Universität Hannover, 2016.
- [14] S. Faßbender. Nachweis von Radionukliden in norddeutschen Trinkwasserreservoirs. Masterarbeit, Institut für Radioökologie und Strahlenschutz, Leibniz Universität Hannover, 2016.
- [15] Birkhan, J. H.: γ -Spektrometrie an Bodenproben von als Grünland genutzten Auenflächen der Zwickauer und Vereinigten Mulde (2009), Diplomarbeit
- [16] S. Faßbender. Anreicherung von Strontium-90 aus großvolumigen Trinkwasserproben. Bericht Forschungspraktikum, Institut für Radioökologie und Strahlenschutz, Leibniz Universität Hannover, 2015.
- [17] W. Botsch. Aufbau eines integrierten Gammaskpektrometriesystems und Anwendung auf Untersuchungen zum Migrationsverhalten von Radionukliden im Boden. Diplomarbeit, Leibniz Universität Hannover, 1997.
- [18] Hans-Gerrit Vogt and Heinrich Schulz. Grundzüge des praktischen Strahlenschutzes. Carl Hanser Verlag GmbH, 6. Auflage, 2011.
- [19] D. Heine. Hochwasserfolgen im Muldegebiet - Radiometrischer Nachweis von Uran und Folgeprodukten. Bachelorarbeit, Institut für Radioökologie und Strahlenschutz, Leibniz Universität Hannover, 2014.
- [20] [https://de.wikipedia.org/wiki/Prypjat\(Stadt\)](https://de.wikipedia.org/wiki/Prypjat(Stadt)) - Aufgerufen am 17.05.2017.
- [21] Report to the General Assembly with Scientific Annexes. United Nations Scientific Community on the Effects of Atomic Radiation, 2008.
- [22] Möbius, S.-S. und Möbius, T.L. (2008) Flüssigszintillation - Stand der Technik und neuere Entwicklungen zur Bestimmung natürlicher Radionuklide. Forschungszentrum Karlsruhe, Eggenstein-Leopoldshafen.
- [23] L'Annunziata, M.F. und Kessler, M.J. (2012) Liquid Scintillation Analysis: Principles and Practice. In: Michael F. L'Annunziata (Hg.) Handbook of radioactivity analysis. 3. Aufl., Elsevier, Amsterdam, Boston, S. 423–573.
- [24] E. P. Horwitz, M. L. Dietz, R. Chiarizia, H. Diamond, S. L. Maxwell, and M. Nelson. Separation and preconcentration of actinides by extraction chromatography using a supported liquid anion exchanger: Application to the characterization of high-level nuclear waste solutions. In: *Analytica Chimica Acta*, 310:63–78, 1995.
- [25] Horwitz, E.P., Dietz, M.L. et al. (1995) 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, S. 63–78.

- [26] Sergei F Boulyga and J Sabine Becker. Isotopic analysis of uranium and plutonium using icp-ms and estimation of burn-up of spent uranium in contaminated environmental samples. In: *Journal of Analytical Atomic Spectrometry*, 17(9):1143–1147, 2002.
- [27] K. Stiewe. Ausarbeitung eines Praktikumsversuchs zur gleichzeitigen Bestimmung von K-40 und Rb-87 mittels LSC. Masterarbeit, Institut für Radioökologie und Strahlenschutz, Leibniz Universität Hannover, 2016.

Abbildungsverzeichnis

1.	Der havarierte Reaktorblock 4 des Kernkraftwerks von Tschernobyl [2] . . .	6
2.	Zerfallsschema von Sr-90.	9
3.	Zerfallsschema von Cs-137	10
4.	Darstellung des Säkularen Gleichgewichts für die Aktivität des Mutter- nuklids A_1 und der Halbwertszeit des Tochternuklids τ_2 [7]	11
5.	Darstellung der charakteristischen Linien eines γ -Spektrums am Beispiel von K-40 [15].	16
6.	Messpräparat für die α -Spektrometrie in der Detektor-Kammer [3].	18
7.	Beispiel eines α -Spektrums für die untersuchten Plutoniumisotope und den Ausbeutetracer [2].	19
8.	Schematische Darstellung der Funktionsweise einer LSC-Messung [22].	21
9.	Schematische Darstellung der Energieübertragung im Szintillationscock- tail [27].	22
10.	Resultierendes Spektrum (rot) einer LSC-Messung mit der 2-Fenstermethode zusammen mit den beiden Einzelspektren für Sr-85 (blau), sowie Sr-90+Y- 90 (grün) [14].	24
11.	Google Earth Ansicht der Region um die Stadt Pripyat mit dem Ort der Probenahme und der Entfernung zum Tschernobyl Kernkraftwerk.	27
12.	Abhängigkeit des Retentionsvermögens von TEVA-Säulen im Bezug auf Säurekonzentrationen [24].	30
13.	Aufbau für die chemische Trennung des Plutoniums [3].	31
14.	Bild einer Elektrodepositionszelle [3].	32
15.	Edelstahl-Plättchen als Präparat für die α -Spektrometrie [3].	32
16.	Retentionsvermögens von Sr-Resin in Abhängigkeit von Säurekonzentrationen [25].	33
17.	Spezifische Aktivitäten von Cs-137.	37
18.	Spezifische Aktivitäten von Am-241	37
19.	Spezifische Aktivitäten von Pu-239/240	39
20.	Spezifische Aktivitäten von Pu-238	39
21.	Spezifische Aktivitäten von Sr-90	41
22.	Aktivitätsprofile aller Nuklide für Kern 4.	43
23.	Aktivitätsprofile aller Nuklide für Kern 5.	44
24.	Aktivitätsprofile aller Nuklide für Kern 6.	45
25.	Isotopenverhältnisse von Plutonium aus unterschiedlichen Quellen [26].	48
26.	Plutoniumverhältnisse im Tiefenprofil aller drei untersuchten Bohrkerne.	48
27.	Aktivitätsverhältnisse von Am-241 zu Pu-239+240 für Kern 5 und 6.	50
28.	Aktivitätsverhältnisse von Am-241 zu Pu-239+240 für Kern 4.	50
29.	Vergleich der gemessenen Aktivitäten aus Kern 5 mit den modellierten Werten.	53
30.	Aus dem Modell resultierendes Tiefenprofil des Aktivitätsverhältnisses von Am-241 zu Pu-239+240.	54

Tabellenverzeichnis

1.	Auszug der zum Zeitpunkt des Unfalls freigesetzten Aktivitäten der Isotope von Cäsium, Plutonium und Strontium mit den zugehörigen Halbwertszeiten [21].	8
2.	Untersuchte Plutoniumisotope, die einen α -Zerfall vollziehen mit Halbwertszeiten und Zerfallsenergien [3].	12
3.	Temperaturstufen beim Veraschungsvorgang der Bodenproben.	28
4.	Gegenüberstellung von Soll- und Messwerten für die zur Validierung der Messverfahren herangezogenen IAEA-Proben.	35
5.	Im Modell verwendete Transferfaktoren für Plutonium und Americium im Vergleich.	54
6.	Aktivitäten und Unsicherheiten von Pu-238 sowie Pu-239+240 für alle Proben.	69
7.	Aktivitäten und Unsicherheiten von Sr-90, Cs-137 und Am-241 für alle Proben.	70

A. Versuchsvorschriften

Aufschluss

Verwendete Chemikalien:

- Verdünnte Salpetersäure ($c=3 \text{ mol/L}$)
- Konzentrierte Salpetersäure (65 %)
- 3 M Salpetersäure
- Tracer: Pu-242, Sr-85
- Konzentrierte Flusssäure (48 %)
- Aluminiumnitrat ($c = 0,1 \text{ mol/L}$)

Durchführung:

- 5 -15 g Asche in Teflon- Becherglas einwiegen
- Mit wenig destilliertem Wasser anfeuchten
- Vorsichtig mit 1 mL Salpetersäure $c=3 \text{ mol/L}$ versetzen
(mögliche Gasentwicklung, solange Säure hinzugeben, bis die Gasentwicklung nachgelassen hat)
- Vorsichtig 20 ml konzentrierte Salpetersäure zugeben;
Eventuell Ansatz mit 30 mL; (Probe gut bedeckt sein)
- Pu-242 / Sr-85 als Tracer hinzugeben: Pu-242: $\sim 50 \text{ mBq}$; Sr-85: $\sim 10 \text{ Bq}$
- Unter Heizlampe Einengen bis zur Trockne

Flusssäureaufschluss:

Bei 30 mL –Ansatz zugegebene Säurevolumina entsprechend erhöhen; dass sie sich zu 30 mL ergänzen

- Eindampfrückstand mit 10 mL konz. Salpetersäure und 10 mL konz. Flusssäure versetzen
- Unter Heizlampe zur Trockne einengen
- 20 mL konz. Flusssäure zugeben
- Zur Trockne einengen
- 10 mL konz. Salpetersäure und 10 ml konz. Flusssäure zugeben
- Zur Trockne einengen
- 20 mL konz. Salpetersäure zugeben
- Zur Trockne einengen

Nach Aufschluss:

- Rückstand in 20 mL (30 mL) einer Lösung aus Aluminiumnitrat ($c=1 \text{ mol/L}$) in verdünnter Salpetersäure ($c=3 \text{ mol/L}$) aufnehmen
- Über Nacht rühren lassen
- Filtration über Faltenfilter; Becherglas 2* mit je 2,5 mL Salpetersäure ($c=3 \text{ mol/L}$) ausspülen; soweit nicht sauber mit je 2 mL weiter ausspülen; Vorlage 100 mL –Becherglas
Bei gelartiger Erscheinung der Probe sollte diese vor der Filtration bei 3500 U/min für 10 min zentrifugiert werden.

Pu-Festphasenextraktion

(Stand 26.09.2016)

Verwendete Chemikalien:

- Salpetersäure (c = 3 mol/L)
- Salzsäure (c = 9 mol/L)
- Salzsäure (c = 0,01 mol/L)
- Eisensulfamat- Lösung (c = ~ 0,6 mol/L)
- Natriumnitrit (c = 3,5 mol/L)
- Hydroxylamin (c = 0,1 %)
- Oxalsäure (c=0,5 mol/L)

Chemische Trennung:

1. Proben liegen in Lösung aus Aluminiumnitrat (c = 1 mol/L) in Salpetersäure (c = 3 mol/L) vor.
2. 2 ml Eisensulfamat- Lösung zugeben (Pu-Ionen höherer Oxidationsstufe zu Pu(III) reduzieren)
3. 5 Minuten warten.
4. Zugabe von 0,5 ml Natriumnitrit (c = 3,5 mol/l) (Oxidation auf Pu(IV))
5. Probelösung bei 90°C für 20 min im Wasserbad erhitzen (um verbliebene Gase zu entfernen)
6. Auf Raumtemperatur abkühlen lassen
7. Filtration über Blaubandfilter (Vakuumfiltration; Nutsche); Becherglas 2-mal mit je 2,5 mL Salpetersäure (3 mol/L) ausspülen
8. Vakuum-Box vorbereiten (TEVA-Säule); gelbe äußere Spitze, weißer innerer Aufsatz, TEVA-Säule, Spritzenkörper als Vorratsgefäß
9. TEVA- Säule mit 5 ml Salpetersäure (3 mol/L) konditionieren, Vorlage verwerfen

Abtrennung von Strontium:

10. Probelösung auf Säule geben, Durchflussgeschwindigkeit: 0,5 mL/min
11. Becherglas mit 2* mit je 2,5 mL Salpetersäure (3 mol/L) spülen und auf Säule geben
12. Säule mit 15 mL Salpetersäure (3 mol/L) eluieren, Durchflussgeschwindigkeit: 3 mL/min
 - Sr-Fraktion aufbewahren, Auffanggefäß wechseln
 - Sr-Fraktion bis zur Trockne einengen und
 - In 20 mL Salpetersäure (8 mol/L) aufnehmen
13. Zugabe von 5 ml 9 M Salzsäure, Durchflussgeschwindigkeit: 3mL/min
(Überführung in Chloridsystem und Thoriumreste werden eluiert)
14. Auffanggefäß wechseln; Zwischenfraktion verwerfen

Abtrennung von Plutonium:

15. Plutonium mit 5 mL Hydroxylamin (c= 0,1%) eluieren, Durchflussgeschwindigkeit: 0,5 mL/min
16. 1 ml Elektrodepositionslösung hinzugeben
17. Unter der Heizlampe bis zur Trockne einengen und
18. In 10 mL Elektrodepositionslösung aufnehmen für 10 bis 15 min auf der Heizplatte mit Heizlampe belassen um den Rückstand besser zu lösen

Rekonditionierung:

Soll die Säule erneut eingesetzt werden, wird sie rekonditioniert;
Ansonsten kann auf diesen Schritt verzichtet werden.

1. Mit 10 mL Salpetersäure (3 mol/L) eluieren Durchflussgeschwindigkeit: kleiner 3 mL/min
2. Beschriften der Säule mit:
 - Name der Probe
 - Operator
 - Datum

Elektrodeposition

Verwendete Chemikalien:

- Ethanol
- Aceton
- Elektrodepositionslösung für Pu
- Ammoniaklösung (25%)
- Ammoniaklösung (5%)

Durchführung:

1. Vorbereitung der Edelstahl-Scheibe:
 - a. Folie einer Edelstahl- Scheibe abziehen (Handschuhe tragen) und diese mit dest. Wasser, Ethanol und Aceton reinigen
 - b. Mit einem weichen, fuselfreiem Tuch vorsichtig nachreiben
2. Depositionszelle mit Edelstahlscheibe aufbauen und auf Dichtigkeit prüfen
3. Probelösung in Elektrodepositionszelle einfügen
4. Becherglas mit 2* mit je 1 mL Elektrodepositionslösung ausspülen und in Zelle geben
5. Deckel auf Apparatur legen und Platin- Elektrode so platzieren, dass sie nur wenige mm über dem Edelstahlplättchen endet
6. Apparatur an Spannungsquelle anschließen
Stromstärke: 950 mA , Spannung: $\sim 7,5$ V
7. Zwei Stunden elektrolysieren
8. ~ 1 Minute vor Abschaltung, 1 mL konzentrierte Ammoniaklösung (25%) hinzugeben (Verhindert ein Auflösen der Hydroxide an der Kathode)
9. Apparatur demontieren
10. Elektrodepositionslösung verwerfen
11. Edelstahlplättchen mit 5%iger Ammoniaklösung, Ethanol und Aceton abspülen
12. Auf Heizplatte bei 300 °C für 30 min ausheizen
(abgeschiedene Hydroxide werden in Oxide umgewandelt)

Elektrodepositionslösung:

1. 43g Ammoniumoxalat, 53 g Ammoniumsulfat, 18 g Hydroxylaminsulfat, 2 g Diethylentriaminpentaessigsäure (DTPA) in 1 L Wasser lösen
2. pH- Wert auf exakt 1,8 einstellen mit konz. Schwefelsäure

Sr-Festphasenextraktion

Stand 01.02.2017

Verwendete Chemikalien:

- 0,01 M // 0,05 M // 3 M // 8 M Salpetersäure
- 0,05 M Oxalsäure

Chemische Trennung:

1. Proben liegen in Lösung in 3 M Salpetersäure vor
2. Bis zur Trocknung eindampfen
3. Probenrückstand in 10 ml 8 M Salpetersäure aufnehmen
4. gelbe Pipettenspitzen in die Öffnungen der Vakuumbox stecken, die weißen Pipettenspitzen in die gelben stecken, auf die weißen wird eine Sr-Säule gesteckt, Spritze als Vorratsgefäß aufsetzen.
5. Sr-Säule mit 5 ml 8 M Salpetersäure „vorkonditionieren“ (max. $v=0,5\text{ml/min.}$) und ca. 30 min. ruhen lassen.
6. Sr-Säule mit 5 ml 8 M Salpetersäure konditionieren, $v= 0,5\text{ml/min.}$, Vorlage verwerfen

Abtrennung von Strontium:

7. Probelösung auf Säule geben, $v=0,5\text{ml/min.}$
8. Becherglas mit 2 mal 2,5 ml 8 M Salpetersäure spülen und auf Säule geben, $v= 0,5\text{ml/min.}$
9. Wenn Pu(+IV), Np(+IV) oder Ce(+IV) vorhanden,
 - 5 ml 3 M Salpetersäure – 0,05 M Oxalsäure zum Eluieren jener vierwertigen Elemente auf Säule geben, $v= 1\text{ml/min.}$
10. 5 ml 8 M Salpetersäure auf Säule geben, $v=1\text{ml/min.}$
11. Auffanggefäß wechseln
12. 10 ml 0,05 M Salpetersäure zum Eluieren des Strontiums auf Säule geben, $v= 0,5\text{ml/min}$
13. 5 ml 0,01 M Salpetersäure auf die Säule geben, $v= 0,5\text{ml/min}$

Gegebenenfalls Beschriftung der Säule, falls Wiederverwendung vorgesehen:

Beschriften der Säule mit:

- Name der Probe
- Operator
- Datum

B. Messdaten

Tabelle 6: Aktivitäten und Unsicherheiten von Pu-238 sowie Pu-239+240 für alle Proben.

Nuklid		Pu-238		Pu-239/240	
Probe	Tiefe	A [Bq/kg]	u [Bq/kg]	A [Bq/kg]	u [Bq/kg]
1.1	0 - 2 cm	18,241	0,864	45,620	1,937
1.2	2 - 4 cm	16,665	0,751	42,593	1,712
1.3	4 - 6 cm	17,259	1,024	44,772	2,335
1.4	6 - 9 cm	11,599	0,769	30,064	1,670
1.5	9 - 12 cm	6,526	0,418	14,243	0,716
1.6	12 - 15 cm	6,419	0,346	14,845	0,635
1.7	15 - 18 cm	1,363	0,194	2,838	0,249
1.8	18 - 22 cm	2,757	0,183	6,394	0,308
1.9	22 - 26 cm	0,558	0,091	1,499	0,115
1.10	26 - 30 cm	0,035	0,068	0,607	0,071
2.1	0 - 2 cm	39,761	2,005	100,321	4,766
2.2	2 - 4 cm	43,158	1,886	113,084	4,694
2.3	4 - 6 cm	50,239	2,015	117,152	4,526
2.4	6 - 9 cm	38,251	1,652	98,094	4,008
2.5	9 - 12 cm	31,584	1,592	78,788	3,731
2.6	12 - 15 cm	31,569	1,504	84,221	3,714
2.7	15 - 18 cm	20,699	0,943	55,133	2,290
2.8	18 - 22 cm	15,292	0,626	38,971	1,422
2.9	22 - 26 cm	6,174	0,322	15,249	0,639
2.10	26 - 30 cm	1,958	0,183	5,404	0,317
3.1	0 - 2 cm	21,256	0,864	55,738	2,080
3.2	2 - 4 cm	114,190	4,052	297,016	10,370
3.3	4 - 6 cm	17,564	0,862	43,449	1,943
3.4	6 - 9 cm	16,345	0,749	39,991	1,649
3.5	9 - 12 cm	13,523	0,693	32,591	1,500
3.6	12 - 15 cm	6,446	0,326	15,415	0,640
3.7	15 - 18 cm	4,091	0,230	7,828	0,352
3.8	18 - 22 cm	2,164	0,189	5,102	0,293
3.9	22 - 26 cm	1,133	0,107	2,394	0,137
3.10	26 - 30 cm	0,272	0,058	0,813	0,063

Tabelle 7: Aktivitäten und Unsicherheiten von Sr-90, Cs-137 und Am-241 für alle Proben.

		LSC		Gamma-Spektrometrie			
<u>Nuklid</u>		<u>Sr-90</u>		<u>Cs-137</u>		<u>Am-241</u>	
<u>Probe</u>	<u>Tiefe</u>	A [Bq/kg]	u [Bq/kg]	A [Bq/kg]	u [Bq/kg]	A [Bq/kg]	u [Bq/kg]
1.1	0 - 2 cm	111,225	9,254	488,841	4,395	35,600	1,791
1.2	2 - 4 cm	131,469	20,308	607,848	4,624	43,111	2,099
1.3	4 - 6 cm	105,458	7,856	523,427	4,963	37,001	1,805
1.4	6 - 9 cm	105,355	11,750	748,558	7,105	50,789	1,683
1.5	9 - 12 cm	68,320	3,581	459,951	6,732	31,067	1,030
1.6	12 - 15 cm	94,237	6,833	311,711	3,308	19,260	0,622
1.7	15 - 18 cm	47,578	2,971	185,265	3,894	11,180	0,361
1.8	18 - 22 cm	30,354	1,327	117,570	3,873	6,549	0,179
1.9	22 - 26 cm	13,741	0,484	69,823	5,081	2,727	0,077
1.10	26 - 30 cm	12,428	0,448	22,288	1,793	1,293	0,031
2.1	0 - 2 cm	110,429	9,107	2384,516	21,593	224,946	5,197
2.2	2 - 4 cm	138,489	14,300	2329,530	16,821	206,983	4,705
2.3	4 - 6 cm	166,059	22,105	2093,231	12,605	177,624	4,351
2.4	6 - 9 cm	99,324	8,028	1806,102	18,184	162,893	5,064
2.5	9 - 12 cm	119,197	12,079	1685,767	14,143	165,312	5,226
2.6	12 - 15 cm	141,340	13,504	1505,638	10,653	156,765	4,569
2.7	15 - 18 cm	188,178	40,122	1062,145	5,644	105,781	2,851
2.8	18 - 22 cm	144,987	21,635	747,054	5,153	64,579	2,758
2.9	22 - 26 cm	63,741	5,009	310,226	4,867	24,121	1,175
2.10	26 - 30 cm	24,762	0,979	98,748	3,988	6,336	0,315
3.1	0 - 2 cm	244,395	66,435	1429,066	5,847	108,225	2,497
3.2	2 - 4 cm	326,169	93,464	2508,664	7,691	301,575	6,923
3.3	4 - 6 cm	56,631	5,650	1082,490	19,115	82,584	1,560
3.4	6 - 9 cm	120,435	12,671	895,852	7,438	70,869	2,227
3.5	9 - 12 cm	71,452	5,407	664,683	9,303	68,480	1,965
3.6	12 - 15 cm	95,088	8,627	350,708	3,688	25,662	0,743
3.7	15 - 18 cm	74,184	5,982	194,798	2,626	11,997	0,340
3.8	18 - 22 cm	41,973	2,362	109,515	2,609	7,420	0,321
3.9	22 - 26 cm	24,480	1,010	51,483	2,103	2,977	0,151
3.10	26 - 30 cm	19,331	0,737	120,421	6,229	0,611	0,032

C. Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich bei allen bedanken, ohne deren Hilfe und Unterstützung diese Arbeit nicht möglich gewesen wäre.

Als erstes danke ich Prof. Dr. Clemens Walther dafür, dass ich diese Arbeit am Institut für Radioökologie und Strahlenschutz durchführen konnte. Des Weiteren danke ich auch Prof. Dr. Georg Steinhauser für die Übernahme des Korreferats.

Mein besonderer Dank gilt außerdem Dr. Stefan Bister für seine umfangreiche und engagierte Betreuung während meiner Arbeit.

Ich bedanke mich auch bei allen Mitarbeitern des IRS für ihre Hilfsbereitschaft und Unterstützung in allen Bereichen.

Zum Schluss möchte ich meinen Eltern dafür danken, dass sie mir alles ermöglicht haben und mich bei allen Bereichen stets unterstützt haben.