

**Untersuchung des Migrationsverhaltens von
Radionukliden in Umweltkompartimenten mit
spektroskopischen und massenspektrometrischen
Methoden**

Von der Fakultät für Mathematik und Physik
der Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover

zur Erlangung des akademischen Grades
Doktor der Naturwissenschaften
Dr. rer. nat.

genehmigte Dissertation von

M.Sc. Wolfgang Schulz

2020

Referent: Prof. Dr. Clemens Walther

Korreferent: Prof. Dr. Georg Steinhauser

Korreferent: Prof. Dr. Thorsten Stumpf

Tag der Promotion: 19.11.2020

Diese Arbeit widme ich meinen Eltern,
Gundula und Dietrich Manfred Schulz.

Hannover, den 4. Dezember 2020

Erklärung

Hiermit erkläre ich,

1. - die geltenden Regeln der gemeinsamen Ordnung für die Promotion Doktor der Naturwissenschaften (Dr. rer. nat.) an der Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover zu kennen und eingehalten zu haben, sowie mit einer Prüfung nach den Bestimmungen der Promotionsordnung einverstanden zu sein.

2. - dass die vorliegende Dissertation von mir selbstständig verfasst wurde, wobei keine Textabschnitte von Dritten oder eigene Prüfungsarbeiten ohne Kennzeichnung übernommen wurden. Alle benutzten Hilfsmittel und Quellen wurden in der Arbeit angegeben.

3. - Dritten, weder unmittelbar noch mittelbar, geldwerte Leistungen für Vermittlungstätigkeiten oder die inhaltliche Ausarbeitung der Dissertation erbracht zu haben.

4. - die Dissertation noch nicht als Prüfungsarbeit für eine andere Prüfung eingereicht zu haben.

5. - weder die Gleiche, noch eine in wesentlichen Teilen ähnliche, noch eine andere Abhandlung dieser Arbeit bei einer anderen Fakultät oder bei einer anderen Hochschule als Dissertation eingereicht zu haben.

6. - dass ich damit einverstanden bin, dass die Dissertation einer Überprüfung der Einhaltung allgemein geltender wissenschaftlicher Standards unterzogen wird.

Kurzzusammenfassung

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurde der Einfluss der Pilzarten *Leucoagaricus naucinus* und *Schizophyllum commune* auf den Transfer von Radionukliden in Pflanzen auf radioaktiv kontaminierten Böden untersucht. Ziel der Untersuchungen war es, geeignete Kandidaten für ein Strahlenschutzkonzept zu identifizieren, welches auf die Fixierung der potentiell gesundheitsschädigenden Radionuklide im Boden durch ein dort zu etablierendes Pilz-Myzel abzielt (Myko-Fixierung). Hierzu wurden Pflanzenaufzucht-Experimente von Kartoffeln (*Solanum tuberosum*) und Winterroggen (*Secale cereale*) unter Laborbedingungen, sowie Feldexperimente auf einem Testfeld 5 km südlich des ehemaligen Kernreaktors von Tschernobyl durchgeführt, bei denen der Boden gezielt durch die Pilzkulturen beimpft wurde. Im Rahmen der, ausführlich in der Arbeit diskutierten, Unsicherheiten, konnten hierbei Hinweise auf einen reduzierenden Effekt von *Leucoagaricus naucinus* auf die Aufnahme von ^{137}Cs in Pflanzen, auf bis zu 55 % verglichen mit der Kontrollgruppe, identifiziert werden. Der Pilz *Schizophyllum commune* zeigte eher einen mobilisierenden Effekt des ^{137}Cs , und erhöhte die Aufnahme in Pflanzen auf bis zu 128 % weshalb dieser für ein Strahlenschutzkonzept zur Myko-Fixierung als ungeeignet befunden wurde.

Im Rahmen der Bodenanalytik auf dem Testfeld nahe Tschernobyl wurden umfangreiche Daten zur lokalen Aktivitätsverteilung und zur chemischen Speziation der Nuklidbelastung gewonnen. Diese deuten im Fall des ^{90}Sr darauf hin, dass noch bis zu 13 % des ursprünglich deponierten Inventars refraktär im Boden gebunden vorliegt und damit noch nicht in die Bodenlösung freigesetzt wurde. Im Rahmen einer umfangreichen Durchsuchung der zur Transferfaktorbestimmung genommenen Bodenproben, konnten 12 Reaktorpartikel aus dem Boden des Testfeldes isoliert und mittels Rasterelektronenmikroskopie und Gamma-spektrometrie charakterisiert werden. Hierbei zeigte sich, dass der überwiegende Anteil (6 von 12) der gefundenen Partikel der Klasse der nicht-oxidierten UO_2 -Partikel zuzuordnen war. Neben den aus der Literatur bekannten Partikeln der Sperrzone wurden auch weitere, bisher nicht dokumentierte, Partikeltypen gefunden. So konnte mittels energiedispersiver Röntgenanalyse in der Matrix eines der gefundenen Uranpartikel eine phosphorhaltige, in einem anderen Partikel eine schwefelhaltige Uran-Mischphase nachgewiesen werden. Bei einem weiteren Partikel aus dem Boden des Testfeldes handelt es sich vermutlich um ein Bruchstück der erkalteten Reaktor-„Lava“. Dieser Partikeltyp wurde in dieser Arbeit erstmalig außerhalb des Reaktorgebäudes nachgewiesen, woraus sich neue Fragestellungen bezüglich Quellterm und Kontaminationssituation der Sperrzone von Tschernobyl ergeben.

Schlagwörter

Myko-Remediation, Tschernobyl, Brennstoffpartikel

Abstract

The impact of the fungal species *Leucoagaricus naucinus* and *Schizophyllum commune* on the soil-to-plant radionuclide transfer was investigated. The study aims at the potential of soil-dwelling fungal mycelia for the retention and fixation of radionuclides in soils (myco-fixation) and the minimization of radionuclide uptake by crops cultivated on contaminated lands. For this purpose, we grew potatoe (*Solanum tuberosum*) and winter rye (*Secale cereale*) plants on soils inoculated with fungal biomass. Parallel to labwork which was carried out in growth chambers at the institute of radioecology and radiation protection, Hannover, we also examined the effect of fungal treatment on a testfield in the Chernobyl exclusion zone, located 5 km south of the former nuclear power plant. Within the boundaries of the given uncertainties - which are adressed in detail in the manuscript - we were able to show a reduction of ^{137}Cs transfer to the leaves of winter rye by *Leucoagaricus naucinus* down to 55 % as compared to the control group. Treatment with *Schizophyllum commune* induced a slight increase in radionuclide uptake in the majority of experiments, resulting in a transfer of up to 128 % of ^{137}Cs in potatoe tubers as compared to the control group.

Extensive analytical work was conducted aiming at the status of radionuclide contamination of the testfield. Here, we found roughly 13 % of the ^{90}Sr inventory to be associated with the refractory fraction of soil. We performed a systematical screening of soil samples collected for the determination of transfer factors to identify and isolate a total of 12 reactor particles from the soil matrix. These were characterized using electron microscopy and single particle gamma spectroscopy. Most frequently we identified the reactor particles as non-oxidized UO_2 -particles (6 out of 12). We also identified a number of particles that we interpreted as secondary phases of reactor-borne fuel. Using energy dispersive X-ray analysis we found that one of these particles consisted of a matrix of uranium and phosphorous, while another particle showed a strong signal of sulphur intermingled with the uranium-phase. Another particle found exhibited distinctive features of so called „Lava“ -borne particles reported in the literature to be derived from the cooling of nuclear core melt and to exist within the safe confinement of the reactor building. It is for the first time, however, that the existence of these particles was demonstrated within the environmental soils of the Chernobyl exclusion zone. This finding raises questions concerning the source term and dispersion of the particulate inventory in the aftermath of the Chernobyl nuclear accident.

Keywords

Myco remediation, Chernobyl, Hot particles

Inhaltsverzeichnis

1	Motivation - Das BioVeStRa-Projekt	8
2	Theoretischer Hintergrund	10
2.1	Einführung - Bedeutung des Ingestionspfades zur Folgenabschätzung kontaminierter Böden	10
2.2	Aufnahme von Radionukliden in Pflanzen	11
2.2.1	Transferfaktoren zur empirischen Quantifizierung des Radionuklidtransfers Boden - Pflanze	11
2.2.2	Pflanzenphysiologie und Aufnahmemechanismen	13
2.2.3	Bioverfügbarkeit	15
2.3	Der Einfluss bodenlebender Pilze auf den Radionuklidtransfer	19
2.4	Kontaminationssituation in der Sperrzone von Tschernobyl	21
2.4.1	Der Unfall	21
2.4.2	Der Quellterm	22
2.4.3	Lokale Verteilung der Kontamination	26
2.4.4	Kontaminationssituation nahe des Testfeldes - 32 Jahre nach dem Unfall	28
3	Material und Methoden	31
3.1	Verwendete Chemikalien und Reinheiten	31
3.2	Unsicherheiten der Meßgrößen	31
3.3	Gammaskopie	32
3.3.1	Zusammenfassung	32
3.3.2	Detektoren	32
3.3.3	Ausgewertete Linien	33
3.3.4	Verwendete Radionuklidstandards	33
3.3.5	Verwendete Kalibrationsmethoden	34
3.4	Flüssigszintillationsspektrometrie	36
3.5	Elektronenmikroskopie	36
3.6	Bodenkundliche Charakterisierung der verwendeten Böden	37
3.7	Verwendete Geiger Müller Zählrohre zur Identifizierung von Hot spots	39
3.8	Exkursionen in die Sperrzone von Tschernobyl	40
4	Experimenteller Teil I Untersuchungen zur Radionuklidmigration in Böden	41
4.1	Radionuklidkontamination auf einem Testfeld in der Sperrzone von Tschernobyl	41
4.1.1	Das Testfeld	41
4.1.2	Vertikale und horizontale Verteilung von ^{137}Cs , ^{241}Am und ^{154}Eu	43
4.1.3	Sequentielle Extraktionen nach Zeien und Brümmer	48
4.1.4	Bindungsstärke von ^{137}Cs	50
4.1.5	Vertikale Migration und Bindungsform von Radiostrontium	53
4.2	Ausmaß von noch immer partikulär gebundenem Radionuklidinventar	58
4.2.1	Isolierung von Reaktorpartikeln aus der Bodenmatrix	58
4.2.2	Analyse der gefundenen Reaktorpartikel	62
4.3	Sequentielle Extraktion von einzelnen Reaktorpartikeln nach einem modifizierten Zeien und Brümmer-Schema	77
4.4	Zusammenfassung der Ergebnisse zur Radionuklidmigration	80
5	Experimenteller Teil II Untersuchungen zum Einfluss der Pilzarten <i>Schizophyllum commune</i> und <i>Leucoagaricus naucinus</i> auf die Radionuklidaufnahme in Pflanzen	83
5.1	Sorptionsgeschwindigkeit von Radiostrontium im Boden	83
5.2	Einfluss von <i>Schizophyllum commune</i> und <i>Leucoagaricus naucinus</i> auf den Transfer von ^{137}Cs und ^{90}Sr in Kartoffeln und Winterroggen unter Laborbedingungen	87
5.3	Einfluss von <i>Schizophyllum commune</i> und <i>Leucoagaricus naucinus</i> auf den Transfer von ^{137}Cs in Kartoffeln und Winterroggen unter Feldbedingungen	97

5.4	Zusammenfassung der Ergebnisse zum Einfluss der Pilzkulturen <i>Schizophyllum commune</i> und <i>Leucoagaricus naucinus</i>	106
6	Ausblick	108
A	Anhang	122

Abkürzungsverzeichnis

Ac - Acetat
BSE - Back Scattered Electron (detector) - Rückstreucontrast in der Elektronenmikroskopie
BfS - Bundesamt für Strahlenschutz
CEZ - Chernobyl Exclusion Zone - Sperrzone von Tschernobyl
ctrl - Kontrollprobe
DIN - Deutsche Industrie Norm
D. I. f. N. e. V. - DIN Deutsches Institut für Normung. e.V.
DNA - Desoxyribonukleinsäure
EDX - Energy dispersive x-ray (detector) - Detektor zur Erfassung charakteristischer Röntgenstrahlung
FES - Frayed edge sites - etwa: ausgefranste Randpositionen (des Silikatgitters)
FSU - Friedrich Schiller Universität, Jena
GMZ - Geiger Müller Zählrohr
HZDR - Helmholtz Zentrum Dresden Rossendorf
HWZ - Halbwertszeit
IME - Fraunhofer-Institut für Molekularbiologie und Angewandte Oekologie
ips - Impulse pro Sekunde
IRS - Institut für Radioökologie und Strahlenschutz, Leibniz Universität Hannover
ISO - International Organization for Standardization
L.N. - *Leucoagaricus naucinus*
NWG - Nachweisgrenze
PCR - Polymerase Kettenreaktion
PSE - Periodensystem der Elemente
RBMK - Reaktor Bolschoi Moschtschnosti Kanalny. Etwa: Reaktor mit großer Leistung vom Kanaltyp
REM - Rasterelektronenmikroskop
Ref01 - Refesol- 01A
Ref04- Refesol- 04A
ROI - Region of Interest
S.C. - *Schizophyllum commune*
SE - Secondary Electron (detector) - Sekundärelektronencontrast in der Elektronenmikroskopie
SEAPGEM - State Ecological Academy of Postgraduate Education and Management (SEAP-GEM), Kyiv
SEM - Standardfehler des Mittelwertes (standard error of the mean)
Tf - Transferfaktor
VKTA - Strahlenschutz, Analytik & Entsorgung Rossendorf e.V. (VKTA)
Z& B - Zeien und Brümmer (Extraktionsschema)

1 Motivation - Das BioVeStRa-Projekt

Die radioaktive Kontamination von Böden hat - in Abhängigkeit ihrer Schwere - mitunter drastische Auswirkungen auf eine betroffene Gesellschaft. Aus der primären Gefährdung, die sich für den Menschen aus der gesundheitsschädlichen Wirkung ionisierender Strahlung ergibt, entwickelt sich durch die flächendeckende, teilweise partikuläre, radioaktive Kontamination von Böden ein großer Problemkomplex[1-3]. Dieser bringt, neben der direkten gesundheitlichen Gefährdung, immer auch eine Reihe sehr tiefgreifender gesellschaftlicher und ökonomischer Verwerfungen mit sich, die ihrerseits negative Auswirkungen auf die betroffene Bevölkerung haben[4, 5].

Hierbei hat die Vergangenheit - insbesondere die beiden großen Reaktorunfälle von Fukushima und Tschernobyl - gezeigt, dass die sozialen und ökonomischen Folgen der radioaktiven Kontamination weiträumiger Landstriche auf der Zeitskala von Jahren und Jahrzehnten wiederum zu erheblichen gesundheitlichen Schäden führen, wodurch sie die Folgen eines, bereits in seinem Ursprung katastrophalen Ereignisses, noch drastisch verstärken. So hat, neben den enormen ökonomischen Folgen, die Umsiedlungen der Bevölkerung ganzer Landstriche - die in Abwägung einer existierenden Gefährdung für Leib und Leben Unfallgeschehen im Einzelfall zu rechtfertigen ist[6, 7] - für die betroffenen Menschen und letztlich auch für eine Gesellschaft als Ganzes gravierende Folgen. Diese Auswirkungen werden durch ungünstige und teilweise schlichtweg nicht existierende Prognosen zur Wiederkehr der umgesiedelten Bevölkerung in Gegenden mit radioaktiv kontaminierten Böden enorm verstärkt. So stellen beispielsweise die bis heute andauernde Umsiedlung zehntausender japanischer Bürger aus der Sperrzone von Fukushima und die permanente Auflösung ganzer Dorfgemeinschaften der Sperrzone von Tschernobyl eine Kumulation persönlicher Katastrophen dar, deren Tragik sich auch durch die nicht-existent Perspektive auf eine Rückkehr dieser Menschen in ihre ehemalige Heimat ergibt[8-11].

Von Kontaminationen dieses Ausmaßes blieb die Bundesrepublik Deutschland in der Vergangenheit weitgehend verschont. So führten zwar die atmosphärischen Atombombentest in den sechziger Jahren und der Reaktorunfall von Tschernobyl tatsächlich zur Kontamination der Böden des gesamten Bundesgebietes mit bis heute messbaren Aktivitäten insbesondere von ^{137}Cs [12, 13], diese Kontamination befindet sich allerdings auf einem Aktivitätslevel bei dem mit sehr wenigen Ausnahmen¹ von keiner Gefährdung der Gesundheit ausgegangen werden kann [16, 17]. Das Beispiel zeigt jedoch, dass die Abwägung der gesundheitlichen Gefährdung gegenüber der Nutzung von Böden durch die Gesellschaft ein auch für Deutschland relevantes und aktuelles Thema ist.

Neben den großflächigen Kontaminationen aus den Nuklearwaffentests und dem Reaktorunfall von Tschernobyl gibt es auch in Deutschland kleinere Fälle von lokaler radioaktiver Kontamination der Böden, die beispielsweise aus dem Rückbau kerntechnischer Anlagen[18], dem Uranbergbau[19], oder der Industrie[20] herrühren und für die individuell Entscheidungen zur zukünftigen Nutzung getroffen werden müssen. Abwägung und Rechtfertigung solcher - ökonomisch wie sozial - weitreichender Entscheidungen kann nur die Politik treffen. Es ist in Ihrem Sinne aber Auftrag an die Wissenschaft, Methoden zu entwickeln, welche es erlauben bestehende Kontaminationen von Böden zu verringern bzw. einzugrenzen, um der Gesellschaft eine Perspektive zur Wiedernutzung anzubieten.

Das naheliegendste und bis heute wohl auch praktikabelste Verfahren zur Kontaminationsbeseitigung in Böden ist das Auskoffern der kontaminierten Schichten und deren Entsorgung als Sondermüll, wie es beispielsweise in der Präfektur Fukushima in bis dahin ungekanntem Ausmaß geschieht. Der Vorteil dieses Verfahrens liegt vor allem in dem vergleichsweise hohen Maß an Konfidenz, dass von einer nachfolgenden Nutzung des verbliebenen Bodens keinerlei gesundheitliche Gefährdung mehr ausgeht, was ein sehr wichtiges Argument bezogen auf die politische Entscheidungsfindung ist.

Allerdings sind solche radikalen Maßnahmen ebenfalls mit großen Nachteilen verbunden und daher nicht in jedem Fall die bestmögliche - und in einigen Fällen überhaupt keine praktikable - Alternative. Zum Einen wird durch das Auskoffern und die Entsorgung als Sondermüll die

¹Von der nicht-Gefährdung des Menschen durch die Kontamination der heimischen Böden gibt es in den Leitlinien zum Strahlenschutz der Bevölkerung nach wie vor auch Ausnahmen, wie etwa die Empfehlungen zum begrenzten Verzehr von Pilzen und Wild aus Wäldern der südlichen Bundesrepublik[14, 15].

Ressource Boden nachhaltig geschädigt, was insbesondere im Fall potentiell landwirtschaftlich genutzter Böden wiederum mit langfristigen ökonomischen und sozialen Schäden einhergeht [21, 22]. Zum Anderen bedarf es für den ausgekofferten und als radioaktiv zu behandelnden Sondermüll großer Volumina an Lagerkapazitäten, welche - in Abhängigkeit von der konkreten Kontamination - über lange Zeiträume auszulegen sind und ihrerseits der Rechtfertigung bedürfen[23]. Diese vorzuhalten ist, wie die Vergangenheit gezeigt hat, ein großes gesellschaftliches Problem, nicht nur, aber auch und besonders in der Bundesrepublik Deutschland. Aus diesem Grund besteht seit längerem das Interesse an der Erforschung von alternativen Methoden zur Dekontamination radioaktiv belasteter Böden, welche die wertvolle Ressource Boden schonen und der Gesellschaft perspektivisch eine Wiedernutzung der betroffenen Gebiete eröffnen sollen.

Vor diesem Hintergrund versucht das vom Bundesministerium für Bildung und Forschung geförderte Verbundprojekt **BioVeStRa**², neue Wege zu beschreiten. So ist für einige Schwermetalle wie etwa Cäsium, seit längerem eine Hyperakkumulation durch diverse Pilzarten bekannt. Unter diesen finden sich aufgrund ihrer Wachstumseigenschaften einige bodenbesiedelnde Pilzkulturen, die - wie in vorangehenden Forschungsvorhaben gezeigt werden konnte[24] - für eine Fixierung des Radionuklidinventars im Boden interessant sein könnten. Durch eine solche Fixierung ließe sich sowohl der Austrag von Radionukliden ins Grundwasser, als auch die Aufnahme in Pflanzen begrenzen, was zu einer wesentlich günstigeren Prognose für einen leicht- bis mittelschwer kontaminierten Boden führen würde.



Abbildung 1 – Projektpartner im BioVeStRa Projekt.

Das BioVestRa Projekt (siehe Abb. 1) vereint hierzu unter der Leitung des breit aufgestellten Institutes für Ressourcenökologie des Helmholtz-Zentrums Dresden-Rossendorf **HZDR** die mikrobiologische Kompetenz und Erfahrung des Institutes für Mikrobiologie der Friedrich-Schiller Universität Jena, **FSU** mit der radioökologischen Expertise des Institutes für Radioökologie und Strahlenschutz **IRS** der Leibniz Universität Hannover und der Erfahrung in Rückbau und Sanierung des **VKTA** – Strahlenschutz, Analytik & Entsorgung Rossendorf e. V, um geeignete Pilze für ein solches Vorhaben zu identifizieren und ihren Einfluss auf die Radionuklidmobilität zu untersuchen.

Als assoziierter Kooperationspartner konnte die State Ecological Academy of Postgraduate Education and Management (**SEAPGEM**) in Kiev gewonnen werden, über welche die Errich-

²Förderkennzeichen 15S9276D

tung und Pflege eines Testfeldes innerhalb der Sperrzone von Tschernobyl ermöglicht wird.

Mitarbeiter des IRS führten im Rahmen des Projektes in den Jahren 2016-2019 umfangreiche Anbauexperimente von Nutzpflanzen unter Laborbedingungen sowie unter Feldbedingungen in der Sperrzone von Tschernobyl durch. In diesen wurde der Einfluss der - durch unsere Projektpartner bereitgestellten - Pilz-Biomasse auf die Mobilität von Radionukliden im Boden getestet, sowie umfangreiche radioanalytische Untersuchungen zur Charakterisierung der Kontaminationssituation in der Sperrzone durchgeführt.

2 Theoretischer Hintergrund

Im Zusammenhang mit der in Kapitel 1 erwähnten notwendigen Handhabung von kontaminierten Böden sind in der Radioökologie in den vergangenen Jahrzehnten biologische und sogenannte biologisch-verstärkte Remediationskonzepte (engl. bioremediation und bio-enhanced remediation) in den Forschungsfokus gelangt[25–27]. Solche Verfahren wurden in der Vergangenheit bereits im Falle von nicht-radioaktiven Schwermetallen wie Arsen, Quecksilber oder Blei erfolgreich eingesetzt [28, 29]. Die zur Zeit am stärksten beforschte Methode der Phytoextraktion versucht über die Wahl und den Anbau geeigneter hyper-akkumulierender Pflanzen die Schwermetalle aus dem Boden zu extrahieren. Bei entsprechend hoher Aufnahme durch die Pflanze (siehe hierzu Kapitel 2.2) ließe sich diese anschließend veraschen und es fällt nur ein Bruchteil des ursprünglich für den Boden benötigten Entsorgungsvolumens an, während der Boden im Anschluss an die Remediationsphase wieder genutzt werden kann.

Zum Einen ist das Verfahren der Phytoextraktion jedoch auf oberflächennahe Kontaminationen beschränkt, zum Anderen ist die Übertragung dieses Konzeptes auf typische radioaktive Schwermetallspezies, wie ^{137}Cs und ^{90}Sr kaum möglich, da sich für diese - maßgeblich auf Grund ihrer Homologie zu den ubiquitär vorhandenen Ionen Kalium und Calcium - keine geeigneten Hyperakkumulatoren finden lassen.

In Voruntersuchungen zu dem Projekt konnten durch die Projektpartner des Institutes für Ressourcenökologie des Helmholtz-Zentrums Dresden-Rossendorf (HZDR) und des Institutes für Mikrobiologie der Friedrich-Schiller-Universität Jena insbesondere zwei vielversprechende Kandidaten aus dem Reich der Pilze identifiziert werden.

2.1 Einführung - Bedeutung des Ingestionspfades zur Folgenabschätzung kontaminierter Böden

Aufgabe der Radioökologie ist der Kenntnisgewinn über Quellen und Migration von Radionukliden in der Umwelt, mit dem Ziel einer soliden Folgenabschätzung für Mensch und Natur. Nur auf einer solchen Abschätzung können wiederum angemessene strahlenschutztechnische Empfehlungen und Maßnahmen im Sinne des ALARA³-Prinzips begründet werden[30].

Wenn es um die Bewertung einer Gesundheitsgefährdung des Menschen durch radioaktiv kontaminierte Böden geht, sind grundsätzlich drei Expositionspfade zu betrachten: Die **externe Exposition**, der eine Person ausgesetzt ist, die sich im unmittelbaren (Gamma-)Strahlenfeld der Kontamination aufhält. Die **Inhalation** von Radioaktivität, die in unmittelbarer Umgebung der Kontamination sowohl in chemisch flüchtiger Form, als auch in Form von Stäuben und Aerosolen auftreten kann, sowie die **Ingestion**, welche durch die Aufnahme von kontaminierten Nahrungsmitteln und Trinkwasser geschieht[31].

Wesentliche Maßeinheit für die Bewertung einer Gefährdung des Menschen durch ionisierende Strahlung ist die **effektive Dosis** E , für deren Abschätzung grundsätzlich alle drei Pfade der Exposition in Betracht gezogen werden müssen. Die Relevanz der unterschiedlichen Expositionspfade hängt jedoch maßgeblich von der konkreten Kontaminationssituation ab.

Im Fall kontaminierter Böden resultiert aus den beiden Expositionspfaden der Inkorporation (Inhalation und Ingestion) gegenüber der externen Exposition in den allermeisten Szenarien der größere Anteil an effektiver Dosis[32]. Dies liegt in erster Linie daran, dass durch die Aufnahme radioaktiver Stoffe in den Körper Abstand und Abschirmung gegenüber der ionisierenden

³As Low As Reasonably Achievable - Prinzip der Dosisminimierung unter Berücksichtigung vernünftigerweise zu beachtender Einschränkungen

Strahlung minimiert und zugleich die Einwirkdauer derselben über den konkreten Aufenthalt auf dem kontaminierten Boden hinaus verlängert wird. Die Verlängerung dieser Einwirkdauer kann aufgrund des menschlichen Metabolismus (biologische Halbwertszeit) je nach Element und chemischer Speziation zwischen wenigen Stunden und vielen Jahren betragen (siehe z.B [31])

Während externe Exposition und Exposition durch Inhalation auf die unmittelbare Nähe zum kontaminierten Boden beschränkt sind und folglich durch Verminderung der Aufenthaltszeit reguliert und minimiert werden können, ist die Exposition durch Ingestion bedingt durch Lagerung und Transport von kontaminierter Nahrung und Wasser von der lokalen Dimension der Bodenkontamination gewissermaßen entkoppelt. Sie entzieht sich außerdem aufgrund der individuellen und im Privaten stattfindenden Ernährungsgewohnheiten der Menschen relativ stark der behördlichen Regulation und eine konservative Abschätzung resultierender Dosen fällt hier besonders schwer und es bedarf großer Anstrengungen, um eine nicht-Gefährdung der Menschen durch radioaktiv kontaminierte Nahrung sicherzustellen[33].

Zudem ist es in erster Linie die Gefährdung durch Ingestion, die einer landwirtschaftlichen Nutzung - und damit der primären wirtschaftlichen Nutzung - radioaktiv kontaminierter Böden entgegensteht. Ein wesentlicher Fokus der radioökologischen Forschung im Allgemeinen, sowie dieser Arbeit im Speziellen, liegt daher auf der Betrachtung der Transportkette, welche von der radioaktiven Belastung eines Bodens über die Aufnahme dieser Aktivität in essbare Pflanzen zu einer effektiven Dosis durch Ingestion führt.

Zur (konservativen) Abschätzung der effektiven Ingestionsdosis E_g (in Sv) stehen im praktischen Strahlenschutz umfangreiche Datensätze von Ingestions-Dosiskoeffizienten $g_{g,E}(X_i)$ (in Sv/Bq) für alle relevanten Radionuklide zur Verfügung, welche es erlauben, aus der ingestierten Aktivität $A_g(X_i)$ (in Bq) eines oder mehrerer (n) Radionuklide X_i eine effektive Folgedosis für eine exponierte Person abzuschätzen [31].

$$E_g = \sum_{i=1}^n g_{g,E}(X_i) \cdot A_g(X_i) \quad (1)$$

Neben den tabellierten Dosiskoeffizienten benötigt man zur Dosisberechnung zusätzlich eine Abschätzung der ingestierten Aktivität, welche sich beispielsweise aus der Multiplikation der (geschätzten) Aufnahmemenge eines Lebensmittels m_{ingest} (in g) mit der (gemessenen oder abgeschätzten) Aktivitätskonzentration des betreffenden Radionuklides $A_m(X)$ (in Bq/g) in der Pflanze ergibt:

$$A_g(X_i) = A_m(X_i) \cdot m_{ingest} \quad (2)$$

Das Bindeglied zwischen der Abschätzung der Aktivitätskonzentration einer Pflanze und der radioaktiven Kontamination eines Bodens, auf dem diese gewachsen ist, stellen die sogenannten Transferfaktoren dar[34], die daher im folgenden Kapitel näher erläutert werden.

2.2 Aufnahme von Radionukliden in Pflanzen

2.2.1 Transferfaktoren zur empirischen Quantifizierung des Radionuklidtransfers Boden - Pflanze

Der Transfer von Radionukliden aus dem Boden in Pflanzen kann empirisch über den so genannten Transferfaktor T_f quantifiziert werden⁴. Der Transferfaktor beschreibt das Verhältnis von Aktivitätskonzentration im Boden, zur Aktivitätskonzentration in der Pflanze gemäß Gl. 3.

$$T_f = \frac{\text{Aktivitätskonzentration in der Pflanze in Bq kg}^{-1}(\text{Trockenmasse})}{\text{Aktivitätskonzentration im Boden in Bq kg}^{-1}(\text{Trockenmasse})} \quad (3)$$

Transferfaktoren werden aus messtechnischen Gründen üblicherweise für die (zumeist ofentrocknete) Trockenmasse von Boden und Pflanze ermittelt und in der Literatur angegeben.

⁴In der internationalen Literatur tauchen diverse weitere Abkürzungen für den Transferfaktor auf, so etwa cr für concentration ratio oder F_v in Publikationen der IAEA. In dieser Arbeit wird durchgehend die im deutschen Sprachraum und Teilen der internationalen Literatur übliche Abkürzung T_f verwendet.

Für die Verwendung im Strahlenschutz ist es hingegen üblich, auf Aktivitätskonzentrationen des meist als Frischmasse abgeschätzten Verzehrs umzurechnen, weshalb hierfür umfangreiche Tabellen zur Umrechnung in der Literatur zur Verfügung stehen (Siehe z.B. [35]).

Transferfaktoren werden üblicherweise nicht für eine Pflanze als Gesamtheit, sondern spezifisch für bestimmte Pflanzenkompartimente (Wurzeln, Spross, Frucht etc.) angegeben, da sich diese mitunter deutlich unterscheiden und je nach Verwendungszweck zum Beispiel nur der Transfer in die essbaren Teile einer Pflanze von Interesse ist. Zur Abschätzung der Aktivitätskonzentration der radioökologisch bedeutsamsten Nuklide in Pflanzen, die auf kontaminierten Böden wachsen, finden sich in der Literatur umfangreiche Tabellenwerke. Die für diese Arbeit wichtigsten Vergleichswerte aus Literatur-Kompendien der IAEA sind in Tabelle 1 zusammengefasst.

Die IAEA versucht hierbei - sofern die Datenlage in der Literatur dies zulässt - die Bandbreite an Transferfaktoren bereits durch die grobe Einteilung der zu Grunde liegenden Böden in vier Klassen einzugrenzen. Die vorgeschlagenen Kategorien der Bodenklassifizierung orientieren sich am Gehalt organischer Substanz im Boden („Organische Böden“), sowie an bodenkundlichen Parametern und sind wie folgt definiert: **Organische Böden** (Organische Substanz $\geq 20\%$), ansonsten mineralisch: **Sandboden** (Sandgehalt $\geq 65\%$, Tonfraktion $< 18\%$), **Tonboden** (Tongehalt $\geq 35\%$) und **Lehmboden** (alle anderen).

Tabelle 1 – Literaturübersicht von im Rahmen dieser Arbeit relevanten Transferfaktoren. Quelle [35]. Im Rahmen dieser Dissertationsschrift werden nur Arbeiten an Sand- und Lehmböden (nach IAEA-Definition) behandelt, weshalb auch nur diese hier dargestellt sind. Für die Zuordnung der in dieser Arbeit untersuchten Böden in die beiden Kategorien, siehe Material und Methoden. Kompart. = Kompartiment. N = Stichprobenmenge. MW = Mittelwert. Stabw = (geometrische) Standardabweichung.

Element	Planze	Kompart.	Boden	N	MW	Stabw	Min	Max	
Cs	Getreide	Körner	Alle	470	$2,9 \cdot 10^{-2}$	4,1	$2,0 \cdot 10^{-4}$	$9,0 \cdot 10^{-1}$	
			Sand	156	$3,9 \cdot 10^{-2}$	3,3	$2,0 \cdot 10^{-3}$	$6,6 \cdot 10^{-1}$	
			Lehm	158	$2,0 \cdot 10^{-2}$	4,1	$8,0 \cdot 10^{-4}$	$2,0 \cdot 10^{-1}$	
		Stängel & Blätter	Alle	130	$1,5 \cdot 10^{-1}$	5,0	$4,3 \cdot 10^{-3}$	3,7	
			Sand	35	$2,1 \cdot 10^{-1}$	3,3	$4,1 \cdot 10^{-2}$	1,9	
			Lehm	36	$1,1 \cdot 10^{-1}$	4,5	$6,5 \cdot 10^{-3}$	1,5	
	Knollen-Pflanzen	Knollen	Alle	138	$5,6 \cdot 10^{-2}$	3,0	$4,0 \cdot 10^{-3}$	$6,0 \cdot 10^{-1}$	
			Sand	69	$9,3 \cdot 10^{-2}$	3,0	$4,0 \cdot 10^{-3}$	$6,0 \cdot 10^{-1}$	
			Lehm	40	$3,5 \cdot 10^{-2}$	2,3	$4,8 \cdot 10^{-3}$	$1,4 \cdot 10^{-1}$	
	Sr	Getreide	Körner	Alle	282	$1,1 \cdot 10^{-1}$	2,7	$3,6 \cdot 10^{-3}$	1,0
				Sand	123	$1,4 \cdot 10^{-1}$	3,0	$3,6 \cdot 10^{-3}$	1,0
				Lehm	71	$1,1 \cdot 10^{-2}$	2,4	$1,6 \cdot 10^{-2}$	$7,2 \cdot 10^{-1}$
Stängel & Blätter			Alle	37	1,1	2,5	$1,5 \cdot 10^{-1}$	9,8	
			Sand	11	2,1	2,3	$9,3 \cdot 10^{-1}$	9,8	
			Lehm	3	1,8	2,3	$7,2 \cdot 10^{-1}$	3,6	
Knollen-Pflanzen		Knollen	Alle	106	$1,6 \cdot 10^{-1}$	3,0	$7,4 \cdot 10^{-3}$	1,6	
			Sand	39	$2,2 \cdot 10^{-1}$	2,6	$2,6 \cdot 10^{-2}$	1,6	
			Lehm	41	$1,3 \cdot 10^{-1}$	3,0	$7,4 \cdot 10^{-3}$	$4,5 \cdot 10^{-1}$	

Bei Betrachtung der enormen - sich teilweise über drei Größenordnungen erstreckenden - Bandbreite an Transferfaktoren für Cs und Sr wird deutlich, wo die Grenzen der Verwendung von Transferfaktoren im Speziellen, sowie vom Modell, das hinter der Angabe von Transferfaktoren im Allgemeinen steckt, liegen. So muss die Gefährdungsabschätzung einer Bevölkerung eher konservativ ausgerichtet sein, was durch die Verwendung hoher, aus der Literatur entnommener, Transferfaktoren dazu führen kann, dass die Abschätzung der Dosis unrealistisch

ausfällt und diese im schlimmsten Fall um Größenordnungen zu hoch ist.

Grund für die enorme Bandbreite an Transferfaktoren ist zum Einen die komplexe Natur der Radionuklidaufnahme. So geht die Berechnung des Transferfaktors, gemäß Gl. 3 implizit für sämtliche Radionuklide von einem statischen und proportionalen Zusammenhang zwischen Aktivitätskonzentration im Boden und Aktivitätskonzentration in den korrespondierenden Pflanzenkompartimenten aus. Dass es sich hierbei um eine drastische Vereinfachung des - in hohem Maße dynamischen - Zusammenspiels biologischer, klimatischer und geowissenschaftlicher Zusammenhänge handeln muss ist einleuchtend und wird durch die gefundene Bandbreite an Transferfaktoren evident.

Zum Anderen sind die Unterschiede in der Verfügbarkeit der Radionuklide aufgrund der Bodeneigenschaften wesentlich größer, als durch die Einteilung in vier Kategorien abbildbar wäre. Abb. 2 zeigt die große Bandbreite an Transferfaktoren die unter identischen Untersuchungsbedingungen, bei sehr ähnlichen Vegetationsbedingungen und auf - nach Gruppierung der IAEA - teilweise ähnlichen Böden gefunden werden.

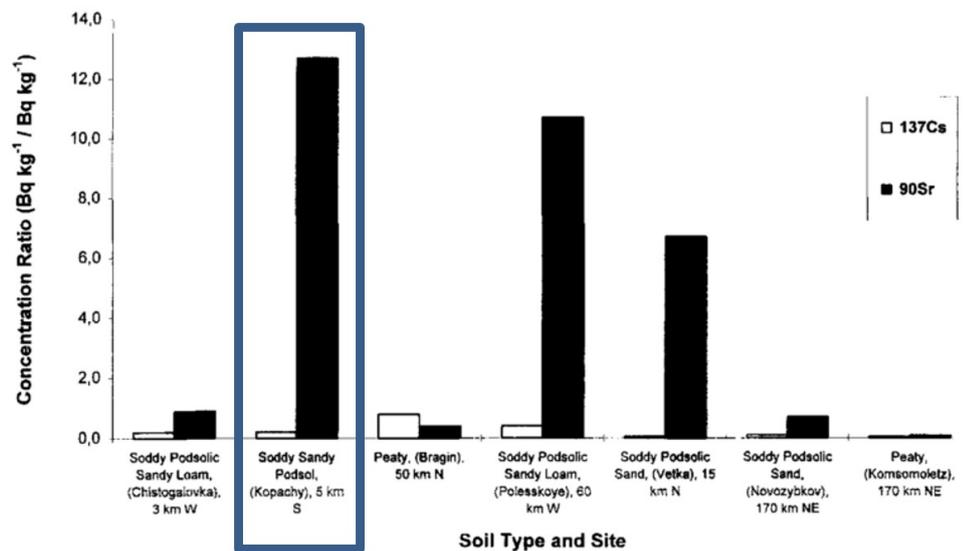


Abbildung 2 – Transferfaktoren (Concentration Ratio) für ¹³⁷Cs und ⁹⁰Sr in Weidelgras (*Lolium*) auf verschiedenen Böden der Reaktor Umgebung im Jahr 1992. Umrandet Ergebnisse aus der unmittelbaren Umgebung des BioVeStRa Testfeldes. Quelle: [36].

Das Verfahren, welches im Rahmen des BioVeStRa Projektes untersucht wird, setzt genau an der Schnittstelle des Radionuklidtransports zwischen Pflanze und Boden an, indem es diesen durch das zusätzliche Einbringen nuklid-affiner Pilze zu unterbinden versucht. Die (empirischen) Transferfaktoren, die insbesondere im zweiten experimentellen Teil dieser Arbeit gewonnen werden, dienen als Maß für die Bewertung des qualitativen und quantitativen Einflusses der eingebrachten Pilzkulturen weshalb die Vergleichbarkeit der ermittelten Transferfaktoren innerhalb der durchgeführten Messkampagnen fundamental für die Qualität der Ergebnisse ist. Die folgenden Kapitel geben daher eine sehr knappe Übersicht über die wichtigsten Faktoren, die den Radionuklidtransfer Boden-Pflanze beeinflussen.

2.2.2 Pflanzenphysiologie und Aufnahmemechanismen

Im Fall der Radionuklidaufnahme von höheren Pflanzen existieren zwei grundsätzlich voneinander zu unterscheidende Kontaminationspfade. Dies ist zum Einen die **Resorption** über Cuticula und Epidermis und zum Anderen die **Aufnahme über die Wurzel**. Während der erste Aufnahmepfad nur im Fall einer akuten wettergetragenen Kontamination, sowie in Fällen von luftgetragener Resuspension eine Rolle spielt, ist die Aufnahme über die Wurzel während der gesamten Vegetationsphase einer Pflanze und auch außerhalb von akutem Kontaminationsgeschehen von Bedeutung.

Die Aufnahme von Radionukliden in Pflanzen geschieht innerhalb der Rhizosphäre - einem Bodenvolumen, das von den feingliedrigen Endständen der Pflanzenwurzeln durchdrungen und dessen Chemie maßgeblich von den Exsudaten der Pflanze beeinflusst wird. Die Pflanze nutzt hierbei sowohl mobilisierende Werkzeuge, wie die gezielte Senkung des pH-Werts durch Exsudation von Protonen, als auch immobilisierende Werkzeuge, wie die gezielte Förderung der lokalen Präzipitation von Biomineralien, um Verfügbarkeit und Aufnahme von Nährstoffen gezielt zu regulieren [37]. Im räumlichen Nahfeld der Rhizosphäre ist die Pflanze daher grundsätzlich in der Lage, Mobilität und Verfügbarkeit von Radionukliden direkt zu beeinflussen.

Aufgrund der fehlenden chemischen Unterschiede hat die Pflanze keine effektive Möglichkeit zwischen radioaktiven und nicht-radioaktiven Isotopen zu differenzieren und die Aufnahme von Radionukliden durch Pflanzenwurzeln erfolgt grundsätzlich ungezielt. Es sind für die Pflanze im Hinblick auf ihre Regulationsmöglichkeiten dennoch zwei Fälle zu unterscheiden: Die Aufnahme radioaktiver Isotope von Elementen die für die Pflanze essentiell sind (Beispielsweise ^{40}K gemeinsam mit stabilem Kalium), welche grundsätzlich in bestimmtem Rahmen durch die Pflanze toleriert werden müssen, sowie die Aufnahme von Radionukliden eines nicht für die Pflanze essentiellen Elementes, welche prinzipiell durch die Pflanze verringert werden kann, sofern sich für diese daraus ein ausreichender Vorteil ergibt.

Zu letzterem Fall zählt - mit einigen Ausnahmen insbesondere aus den Übergangsmetallen der vierten Periode des PSE - die Aufnahme fast aller Schwermetalle und damit auch die Aufnahme der radioökologisch äußerst relevanten Elemente Cs, Sr, Uran (+ radioaktive Zerfallsprodukte), sowie sämtliche F-Gruppen-Elemente. Die Aufnahme dieser Elemente erfolgt entweder über unspezifische Aufnahmemechanismen, oder aber aufgrund einer chemischen Homologie zu einem essentiellen Element. In letzterem Fall geschieht die Aufnahme gemeinsam über die spezifischen Aufnahmemechanismen für das essentielle Element (Ko-Aufnahme) [37].

Im Anschluss an die Aufnahme der Radionuklide in die Wurzeln werden diese in den höheren Pflanzen zunächst radial ins Xylem transportiert und steigen mit diesem transpirationsinduziert in die höher liegenden Pflanzenkompartimente auf, wo sie letztlich im Gewebe immobilisiert werden (siehe Abb. 3). In dieser Arbeit liegt der Fokus auf der Aufnahme von Radiocäsium und Radiostrontium, weshalb die zugrundeliegenden Mechanismen für diese beiden Elemente im folgenden genauer beschrieben sind.

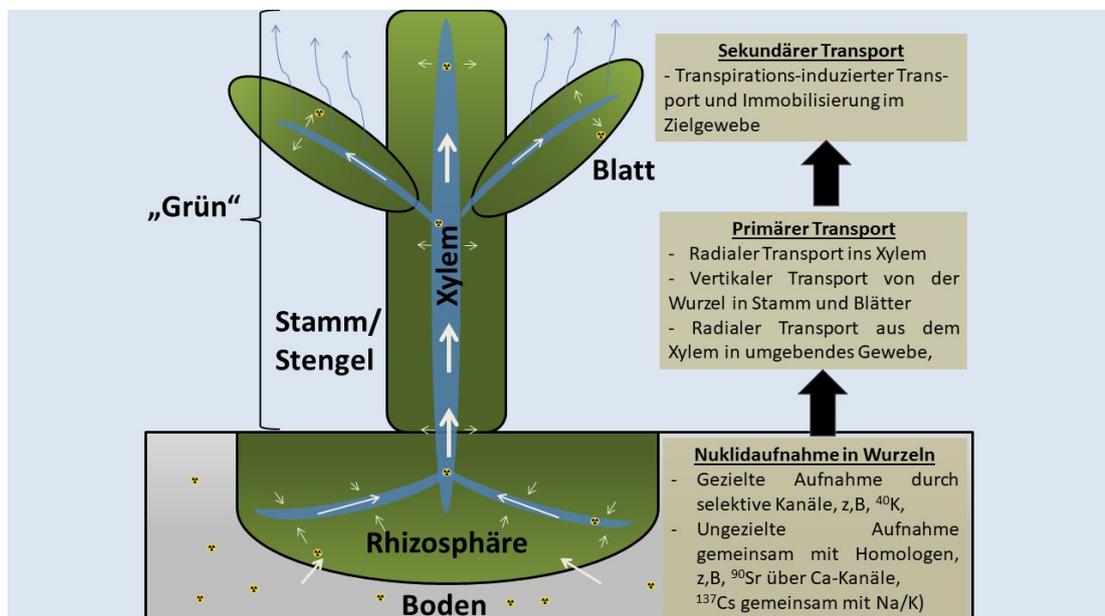


Abbildung 3 – Schema des Radionuklidtransportes über die Wurzeln in die höher liegenden Pflanzenkompartimente. Die oberirdischen Pflanzenteile von Stengel und Blatt sind pflanzenphysiologisch eng verwandt und werden in dieser Arbeit unter dem Begriff „Grün“ zusammengefasst, auch wenn sich die Stengel und Blätter mancher Pflanzen bei der Probenahme bereits verfärbt hatten.

Die Ko-Aufnahme von Cs (und mit ihm ^{137}Cs) findet - in abnehmendem Ausmaß - gemeinsam mit Kalium, Ammonium und Natrium statt [38, 39], wobei insbesondere die ersten beiden Homologe des Cs wichtige Wachstumsfaktoren für Pflanzen sind, deren aktive Aufnahme hochreguliert stattfindet. Während insbesondere Natrium (Massenanteil an der Erdkruste = 2,64 %) und Kalium (2,4 %) [40] ubiquitär in vergleichsweise hohen Konzentrationen im Boden vorliegen, ist das Inventar an stabilem Cs im Boden verglichen damit verschwindend gering. Dieses kommt mit einem Anteil von $6 \cdot 10^{-4}\%$ [40] in der Erdkruste in einem natürlichen Verhältnis von größenordnungsmäßig 1/10000 verglichen mit Kalium vor.

Die **Ko-Aufnahme von Sr** (und mit ihm ^{90}Sr) geschieht vornehmlich gemeinsam mit Calcium und zu einem geringeren Anteil gemeinsam mit Magnesium [41]. Alle drei Homologe kommen ubiquitär in Böden vor, wobei das Inventar an natürlichem Sr (0,01 Massenprozent der Erdkruste) jedoch größenordnungsmäßig nur etwa ein Hundertstel der Gehalte an Mg (1,94 %) und Calcium (3,39 %) [40] ausmacht. Grundsätzlich stehen einer Pflanze im Fall der Ko-Aufnahme chemische Unterschiede zur Verfügung, anhand derer sie in der Lage ist, zwischen der Aufnahme des essentiellen und des nicht-essentiellen Elementes zu diskriminieren.

Im Fall von chemischen Homologen sind die Unterschiede zwischen den Spezies jedoch gering und es stellt für die Pflanze im Normalfall (in dem keine radioaktive Kontamination vorliegt) evolutionär offensichtlich keinen ausreichenden Vorteil dar, ihre Regulationsmechanismen im Sinne einer Minimierung der Ko-Aufnahme von Cs und Sr zu optimieren.

Dies hat weitreichende Folgen für Ansätze im Bereich der Bioremediation. So ist es - anders als im Fall einiger Schwermetalle, wie Arsen oder Blei, die nicht über große Mengen essentieller Homologe im Boden verfügen - schwer, Pflanzen zu finden, die zu ausreichend hohen Akkumulationen von Sr und Cs führen. Aufgrund der natürlichen Häufigkeit der essentiellen Homologe bräuchte man extrem hohe Selektivitäten, oder aber einen sehr langfristigen Extraktionsplan, der die schrittweise Reduzierung des Nuklidgehaltes über viele Wachstumsperioden verfolgt, wobei zur Aufrechterhaltung des Pflanzenwachstums wiederum Düngungen mit den essentiellen Homologen notwendig würden, die Ihrerseits die Aufnahme der Radionuklide verringern. Für Cs und Sr sind bisher weder Pflanzen mit extrem hohen Selektivitäten (sogenannte Hyperakkumulatoren) gegenüber ihren essentiellen Homologen bekannt, noch scheint es besonders effizient in Bezug auf Material- und Zeiteinsatz, ein solches Vorhaben über sehr viele Wachstumsperioden auszudehnen.

Neben der pflanzenphysiologischen Aufnahmeselektivität, welche im Fall der Aufnahme von Radiocäsium und Radiostrontium nur begrenztes Potential zu einer entscheidenden biologischen Diskriminierung bietet, spielen auch Bodenprozesse, welche zur Fixierung und Freisetzung von Radionukliden führen können, eine wichtige Rolle. Dieses Prozesse - an denen auch die Mikrobiologie des Bodens beteiligt ist - lassen sich unter dem Themenkomplex Bioverfügbarkeit zusammenfassen, welcher im folgenden Kapitel diskutiert wird.

2.2.3 Bioverfügbarkeit

Das Konzept der Bioverfügbarkeit geht davon aus, dass ein Teil des im Boden befindlichen Gesamtinventars aufgrund der Bodenchemie zeitweise oder dauerhaft für die Pflanze unzugänglich ist. Bioverfügbar, also für die Pflanze zugänglich, ist hingegen jenes Inventar, das entweder mobil vorliegt oder aber durch die Pflanze für eine Aufnahme mobilisiert werden kann [42–45].

In Folge der primären Kontamination eines Bodens mit Radionukliden wird deren Verbleib und Transport durch die sehr komplexe Chemie (und Biologie) des Bodens bestimmt. Im Boden treten eingebrachte Radionuklide zunächst in Wechselwirkung mit dem dynamischen Zusammenspiel von Wasser, Luft, unterschiedlichen Mineralen, sowie makroskopischem und mikroskopischem Leben, welche das Kompartiment Boden ausmachen. Um die Bioverfügbarkeit von Radionukliden zu verstehen ist es unumgänglich, die wichtigsten regulierenden Prozesse im Boden zu identifizieren und die Komplexität des Systems Boden modellhaft auf diese Prozesse herunterzubrechen, was im Folgenden versucht wird.

Für den atmosphärischen Eintrag von Radionukliden in Böden sind grundsätzlich drei Kontaminationspfade zu unterscheiden, deren Bedeutung vom jeweiligen Freisetzungsszenario⁵ der

⁵Der für diese Arbeit wesentliche Quellterm der Reaktorhavarie von Tschernobyl und die folgende Verbreitung ist in den Abschnitten 2.4.2 und folgende näher beschrieben

ursprünglichen Emission abhängen. Dies sind die **Nasse Deposition**, in Form von in Regentropfen gelösten Radionukliden, die **Trockene Deposition** von an Staubpartikel adsorbierten Radionukliden, sowie die Deposition von Kernbrennstoffpartikeln, welche Radionuklide in ihrem Inneren mit sich führen (**Partikuläre Deposition**).

Während nass deponiertes Inventar sofort und trocken deponiertes Inventar nach kurzem Kontakt mit der Bodenlösung den Gleichgewichtsprozessen des Bodens unterliegen, wird das partikulär eingetragene Inventar erst durch Auflösung oder Auslaugung mit einem zeitlichem Verzug in den Boden abgegeben (Siehe hierzu Kapitel 2.4.3).

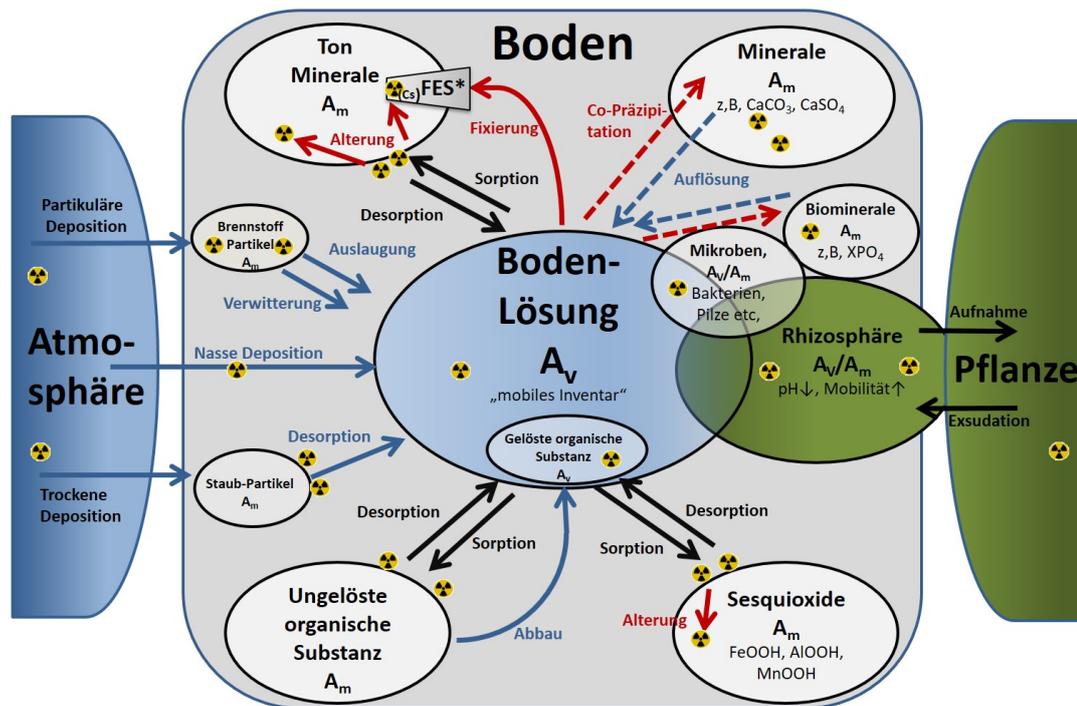


Abbildung 4 – Modellhafte Zusammenfassung der wichtigsten Bodenkompimente (Ellipsen) welche an den Gleichgewichtsprozessen von Immobilisierung und Mobilisierung von Radionukliden mitwirken. Einige der ablaufenden Transportprozesse (Pfeile) sind vollständig reversibel (schwarz), während andere zu einer verstärkten und unter bestimmten Bedingungen unumkehrbaren Mobilisierung (blau) oder Immobilisierung (rot) führen. *FES = Frayed edge sites, siehe Text.

Im Zentrum aller (Gleichgewichts-) Reaktionen im Boden steht die Bodenlösung, welche als mobiles Kompartiment die Transportreaktionen zwischen allen weiteren Kompartimenten vermittelt. In Bodenlösung gelöste Substanzen werden auch als „mobiles Inventar“ A_v (Bq l^{-1}) bezeichnet. Das mobile Inventar bewegt sich über Diffusion und Konvektion durch die Bodenmatrix und steht dabei grundsätzlich Pflanzen, Mikroben und mineralischen Phasen zur Verfügung. Durch die Aufnahme von mobilem Inventar in eine dieser Phasen (also beispielsweise die Nährstoffaufnahme durch eine Pflanze) entsteht ein lokaler Konzentrationsgradient, welcher diffusionsbedingt zum weiteren Transport des aufgenommenen Stoffes hin zu dem aufnehmenden Kompartiment führt. Während einige dieser Aufnahmereaktionen - insbesondere die Sorption an mineralischen Phasen - vollständig und im Sinne eines thermodynamischen Gleichgewichtes reversibel sind, ist für andere Aufnahmeprozesse die Reversibilität eingeschränkt.

Das mobile Inventar eines Bodens lässt sich experimentell durch Extraktion der Bodenlösung bestimmen. Das Verhältnis von extrahiertem (mobilem) und nicht extrahiertem (immobilen) Inventar A_m (Bq kg^{-1}) wird als K_d -Wert bezeichnet und ist eine wichtige Kenngröße für Mobilität und Verfügbarkeit im Boden befindlicher Stoffe.

$$K_d = \frac{A_m}{A_v} (\text{kg}^{-1}) \quad (4)$$

Der K_d -Wert fasst somit die Verteilung eines Analyten zwischen den verschiedenen Phasen zusammen. Streng genommen gilt dieser hierbei für einen stabilen thermodynamischen Gleichgewichtsfall [46]. In der bodenkundlichen Praxis im Allgemeinen und in der Radioökologie im Speziellen ist das Vorhandensein eines thermodynamisch equilibrierten Systems jedoch eher die Ausnahme als die Regel und auch als „Endpunkte“ einer Equilibrierung angegebene K_d -Werte sollten eher als eine Momentaufnahme der Verteilung zu einem spezifischen Beobachtungszeitpunkt aufgefasst werden.

Die Einstellung eines radionuklidspezifischen K_d -Wertes hängt - neben den chemischen Eigenschaften des Nuklids - maßgeblich von den bodenkundlichen Parametern des kontaminierten Bodens ab. Die wichtigste bodenkundliche Kenngröße zur Sorption von kationischen Spezies stellt die Kationenaustauschkapazität KAK_{eff} dar, welche über standardisierte Verfahren experimentell zugänglich ist. Die Kationenaustauschkapazität stellt einen Summenparameter der Austauschplätze aller im Boden vorliegender Kompartimente dar. Stehen KAK-Werte zu einem Boden nicht zur Verfügung, so ist es möglich, über die Körnung des Bodens zumindest eine Eingrenzung des resultierenden K_d -Wertes gemäß Literaturdaten zu erhalten (siehe Tabelle 2).

Tabelle 2 – Literaturübersicht von im Rahmen dieser Arbeit relevanten K_d -Werten. Quelle [46]. Für die Zuordnung der in dieser Arbeit untersuchten Böden in die IAEA-Kategorien Sand- und Lehmböden, siehe Material und Methoden. N = Stichprobenmenge. MW = Mittelwert. Stabw = Standardabweichung.

Element	Boden	N	MW	Stabw	Min	Max
Sr	Alle	255	$2,0 \cdot 10^2$	$5,4 \cdot 10^2$	$4,0 \cdot 10^{-1}$	$6,5 \cdot 10^3$
	Sand	65	$1,1 \cdot 10^2$	$3,2 \cdot 10^2$	$4,0 \cdot 10^{-1}$	$2,4 \cdot 10^3$
	Lehm	120	$1,6 \cdot 10^2$	$2,9 \cdot 10^2$	2,0	$2,5 \cdot 10^3$
Cs	Alle	469	$6,1 \cdot 10^3$	$2,1 \cdot 10^4$	4,3	$3,8 \cdot 10^5$
	Sand	114	$2,2 \cdot 10^3$	$5,0 \cdot 10^3$	$1,0 \cdot 10^1$	$3,5 \cdot 10^4$
	Lehm	191	$7,2 \cdot 10^3$	$9,9 \cdot 10^3$	$3,9 \cdot 10^1$	$5,5 \cdot 10^4$

Die Schwankungsbreite der gefundenen K_D -Werte ist auch nach Klassifizierung in die von der IAEA vorgeschlagenen Bodengruppen, ähnlich wie bei den Transferfaktoren, enorm. Auch hier zeigt sich, dass die einfache Gruppierung anhand der vorgeschlagenen Bodengruppe die zugrunde liegenden Prozesse nur sehr unzureichend abbildet. Für eine genauere Vorhersage ist es notwendig, die dominierenden Bodenprozesse elementspezifisch zu identifizieren, um daraus ein letztlich nuklidspezifisches Modell der jeweiligen Mobilitätsvorhersage zu entwickeln.

Im Fall des Radiostrontiums ist der dominierende Sorptionsmechanismus auf mineralischen Böden eine Sorption des vollständig von einer Hydrathülle umgebenen $Sr^{2+}(aq)$ -Ions an Austauscherplätze der Mineraloberflächen (so genannte „outer shell sorption“) [47, 48]. Für die meisten mineralischen Böden dominiert hierbei die Sorption an Tonminerale [49], während Sorptionsprozesse an organische Materie und Sesquioxide nur in Ausnahmefällen und für Böden mit hohem Anteil dieser Phasen bedeutend sind [50–53].

Die Dauer bis zur Einstellung eines Sorptionsgleichgewichtes liegt unter Laborbedingungen üblicherweise im Bereich von Stunden [54, 55], kann aber, abhängig von der Bodenart, auch bis zu einige Tage betragen [56]. Ein relativ uneinheitliches Bild ergibt sich in der Literatur zu der Frage, ob und in welchem Maß die Reversibilität der Sorption im Laufe der Zeit abnimmt (sogenannte Alterung). Während einige Studien einen signifikanten Alterungseffekt im Laufe einiger Jahre angeben [57–59], wird die Sorption in anderen Literaturquellen, insbesondere auf Zeitskalen von nur wenigen Jahren, als vollständig reversibel angegeben [60–63].

Strontiumionen stehen im Boden mit anderen Kationen in Konkurrenz um die Besetzung der vorhandenen Kationenaustauscherplätze. Die wichtigsten Konkurrenten des Strontiums sind dabei in erster Linie Calcium [64, 65], sowie mit etwas geringerer Bedeutung Magnesium [41]. Beide Konkurrenten des Strontiums liegen im Boden selbst im Vergleich zu stabilem Strontium im großen Überschuss vor ($\approx 100/1$). Gil-Garcia et. al. [66] konnten zeigen, dass aufgrund der Sorptionseigenschaften des Strontiums und seiner Konkurrenz Calcium und Magnesium in der Bodenlösung ($[Mg]_{SS} + [Ca]_{SS}$) eine Vorhersage des Strontium- K_d anhand des so genannten

Ko-Kriterium Konzeptes gemäß folgender, sehr reduzierter, Formel möglich ist:

$$K_d(Sr) = \frac{KAK_{eff}}{[Mg]_{SS} + [Ca]_{SS}} \quad (5)$$

Aus der Literatur sind neben den drei in Gl. 5 verwendeten Parametern noch eine ganze Reihe weiterer $K_d(Sr)$ beeinflussender Parameter bekannt, so zum Beispiel Strontiumgehalt, Tongehalt [56], pH [67], Konzentration organischer Materie [51] und Ionenstärke [68]. Das Ko-Kriterium Konzept berücksichtigt diese jedoch indirekt, durch Verwendung des Summenparameters KAK für die potentielle Aufnahme und die Reduzierung der Betrachtung auf die beiden dominierenden Konkurrenten um die Besetzung dieser Plätze ($[Mg]_{SS} + [Ca]_{SS}$).

Die Bodenchemie des Cs ist im Vergleich zur Chemie des Sr insofern komplexer, als dass für das Cäsium, neben dem (reversiblen) Kationenaustausch auch die sehr starke Fixierung an teilverwitterte quellfähige Tonmineralien von Bedeutung ist. Vor allem 2:1 Schichtsilikate, wie Illite oder Glimmer verfügen an den Schichträndern über nicht abgesättigte Valenzen, die von kristallfremden Ionen besetzt werden können. Beim Quellen und bei der Verwitterung dieser Minerale weiten sich die Schichten an den Rändern auf und es entstehen die charakteristischen „Frayed edge sites“ (FES. Etwa: ausgefrante Randpositionen). Aufgrund ihrer passenden Ioneneigenschaften (Radius und Ionenhärte) binden Cs^+ -Ionen sehr stark an den FES. Hierbei kommt es im Anschluss an die primäre Fixierung des Cs häufig zur Kollabierung der randständigen Schichtstruktur um das Cäsium-Atom herum, womit dieses einem Sorptionsgleichgewicht effektiv entzogen wird.

Das vergleichsweise geringe Vorkommen von natürlichem Cs in der Erdkruste, zusammen mit der großen spezifischen Oberfläche von Tonmineralen, bedingt, dass diese extrem starken spezifischen Sorptionspositionen in tonreichen Böden nicht vollständig durch stabiles Cs abgesättigt sind. So konnten Rigol et. al [69] zwar zeigen, dass auf sehr tonarmen Böden auch andere, nicht-spezifische Sorptionsplätze durch Cs besetzt werden, dass in der Mehrzahl der mineralischen Böden die (kaum reversible) Sorption von Cs an FES jedoch der dominierende Aufnahmeprozess ist [70] [71] [72].

Wauters et al. [73] konnten zeigen, dass sich der K_d Wert von Cäsium unter Zuhilfenahme des sogenannten „Radiocesium Interception Potential“ RIP und der Kaliumkonzentration in der Bodenlösung $[K]_{SS}$ abschätzen lässt. Das RIP stellt ein Maß dafür dar, wie hoch das Potential eines Bodens zur starken Fixierung von Cs ist. Es wird experimentell bestimmt, indem ein Boden zunächst mit einer Ca und K-haltigen Lösung equilibriert wird. Anschließend wird Radiocäsium als Tracer zugegeben und die Suspension weiter equilibriert. Das RIP ist dann definiert als Produkt aus verwendeter Kaliumkonzentration (in mmol/l) und $K_d(Cs)$ (in l/kg) [38], welcher sich aus der in Lösung verbleibenden Aktivität berechnen lässt.

Unter Kenntnis des RIP und der Kaliumkonzentration in der Bodenlösung $[K]_{SS}$, lässt sich der $K_d(Cs)$ gemäß Gl. 6 abschätzen, wobei das Konzept eher zur Über- als zur Unterschätzung des tatsächlichen K_d -Wertes neigt [73].

$$K_d(Cs) = \frac{RIP}{[K]_{SS}} \quad (6)$$

Zwar ist die Kenntnis des mobilen Inventars und die Ermittlung von K_d -Werten ein wichtiges Kriterium für die Bewertung der Bioverfügbarkeit von Radionukliden und korreliert mit dem Transfer in Pflanzen [74], allerdings lässt sich das Konzept der Bioverfügbarkeit nur dynamisch, und nicht im Sinne eines statischen Verhältnisses von mobiler und immobilisierter Phase verstehen. So gibt es zum Einen mobile Spezies welche beispielsweise durch Komplexbildung oder Sorption an gelöste organische Materie für die Pflanzenaufnahme (zeitweise) weiterhin maskiert vorliegen, da diese zur Aufnahme in der Regel die freie ionische Spezies benötigen [75]. Zum Anderen stellen insbesondere die reversibel sorbierten Inventare der verschiedenen Bodenkompimente eine Art Reservoir dar. Diese Reservoirs reagieren auf die Entnahme von Nukliden aus der Bodenlösung und geben entsprechend des Satzes von Le Chatelier in der Folge, zuvor immobilisiertes Inventar wieder in die mobile Bodenlösung ab.

Um dem dynamischen Aspekt der Bioverfügbarkeit Rechnung zu tragen, wurden verschiedene Verfahren der sequentiellen Extraktion entwickelt [76]. Ziel dieser Extraktionsschemata ist es, neben dem sofort verfügbaren Inventar auch jenes Inventar zu erfassen, welches Pflanzen

aufgrund Ihres Wachstums aktiv oder passiv in der Bodenmatrix mobilisieren können, sowie im Fall partikulär kontaminierter Böden die Freigabe weiterer Radionuklide aus sich auflösendem Brennstoffmaterial berücksichtigen zu können [77]. Hierfür kommen diverse Salzlösungen, wie etwa 1M NH_4OAc , 0,1M NaNO_3 oder 0,01M CaCl_2 zum Einsatz [78] [79] [80].

Durch die sequentielle Extraktion mit Salzlösungen werden an reguläre Austauschplätze gebundene Ionen im Boden schrittweise ausgetauscht und mobilisiert. Dieser Prozess bildet die Fähigkeit von Pflanzen, über die Ausschüttung von Protonen Kationen von den Austauscherplätzen des Bodens zu verdrängen, nach, wobei die Extraktionskraft der gewählten Extraktionssequenzen in etwa der Extraktionskraft typischer Pflanzen entsprechen sollte. Basierend auf dem bioverfügbaren Gehalt lassen sich Transferfaktoren ermitteln, welche die (zeitweise) Maskierung von Radionukliden im Boden berücksichtigen und folglich besser das Potential der Pflanze zur Radionuklidaufnahme abbilden. Diese AT_f (von englisch „Available“) bezeichneten Transferfaktoren berechnen sich gemäß Gl. 7:

$$AT_f = \frac{\text{Aktivitätskonzentration in der Pflanze in Bq kg}^{-1}(\text{Troockenmasse})}{\text{Bioverfügbare Aktivitätskonzentration im Boden in Bq kg}^{-1}(\text{Troockenmasse})} \quad (7)$$

Die sequentielle Extraktion der „bioverfügbaren Fraktion“ mittels Salzlösungen berücksichtigt nur unspezifische Mobilisierungs- und Immobilisierungsprozesse, wodurch sich beispielsweise die Bioverfügbarkeit des - größtenteils unspezifisch sorbierten - Sr relativ gut abschätzen lässt. Im Fall der Bioverfügbarkeit des Cäsiums stellt sich hingegen eher die Frage, ob und in wieweit Pflanzen (oder andere Lebewesen im Boden) durch die lokale Beeinflussung der Bodenchemie in der Lage sind, Tonminerale und insbesondere FES chemisch anzugreifen und dadurch zuvor fixierte Radionuklide wieder bioverfügbar zu machen.

Der folgende Abschnitt beschäftigt sich im Hinblick dieser Frage mit dem Einfluss bodenlebender Pilze auf Bioverfügbarkeit und Radionuklidtransfer.

2.3 Der Einfluss bodenlebender Pilze auf den Radionuklidtransfer

Aus der Literatur sind für diverse Pilzarten, zum Teil sehr hohe Transferfaktoren Boden-Pilz bekannt. Vergleichsweise gut erforscht ist die Aufnahme von Schwermetallkationen, wie Cadmium, Kupfer, Zink, Eisen, Blei und Nickel durch diverse Pilzarten wie beispielsweise *Agaricus bisporus*, *Flammulina velutipes* oder verschiedene Arten der Gattung *Pleurotus* [28], um nur einige zu nennen.

Ergebnisse zur Hyperakkumulation von Radiocäsium in Pilzen gibt es in der Literatur in großer Zahl [81, 82] und es werden beispielsweise Transferfaktoren bis zu $T_f(^{137}\text{Cs}) = 24$ in *Lactarius viestus* beschrieben, wobei sich überraschenderweise kaum Quellen auffinden lassen, welche die Bioverfügbarkeit des Cs berücksichtigen. Bei anderen relevanten Radionukliden ist die Datenlage wesentlich schlechter als beim Radiocäsium. Baeza et al. [83] geben als beispielhafte Transferfaktoren relativ stark akkumulierender Spezies einen $AT_f(^{90}\text{Sr}) = 4,8 \pm 0,6$ durch *Clitocybe sp.*, sowie $AT_f(^{239+240}\text{Pu}) = 2,3 \pm 0,4$ und $AT_f(^{241}\text{Am}) = 1,6 \pm 0,4$ durch *Hebeloma cylindrosporum* an.

Für eine Anwendung zur Bodensanierung sind insbesondere langlebige mycel-bildene Pilzarten interessant, die in Böden ein weitverzweigtes Myzelgeflecht mit einer großen Kontaktfläche ausbilden können [84]. Durch das Pilzmyzel aufgenommene Schwermetalle werden von diesem in der Folge zurückgehalten sowie in einigen Fällen auch verstärkt zum sich bildenden Fruchtkörper des Pilzes weiter transportiert.

Durch die Exsudation von organischen Säuren, Siderophoren und Enzymen sind Pilze in der Lage, Nährstoffe im Boden wesentlich effizienter aufzuschließen als Pflanzen dies können [85]. Dabei ermöglicht die Extraktionskraft einiger Pilze beispielsweise die Zersetzung und Mobilisierung organischer Materie [86], sowie den Aufschluss thermodynamisch sehr stabiler Schwermetallspezies [87]. Ihre effizienten Aufschlussmechanismen führen des Weiteren dazu, dass Pilze in der Lage sind, ansonsten sehr stabile Boden- und Gesteinsphasen an- und aufzulösen, was als bio-weathering („biologische Verwitterung“) bezeichnet wird [88].

Kirtzel et al. [85] konnten 2020 zeigen, dass der Weißfäulepilz *Schizophyllum commune* in der Lage ist, selbst Quartz-Strukturen im Boden anzugreifen und umzuformen. Dieser, im Fall

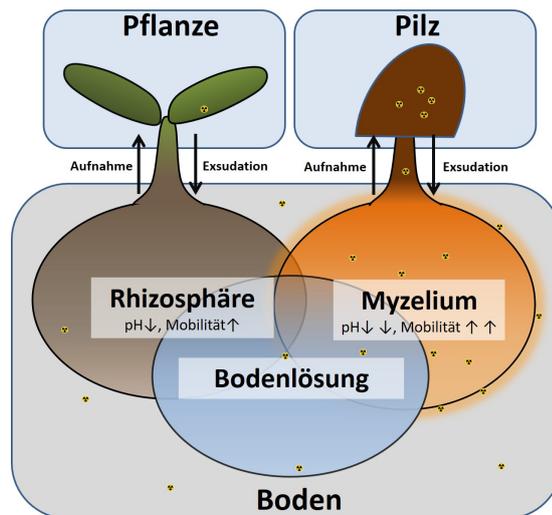


Abbildung 5 – Schematische Darstellung des Interface Boden - Pilz - Pflanze. Für das Konzept der Myko-Stabilisierung von Böden sind insbesondere solche Spezies interessant, die in der Lage sind, wesentliche Teile des Radionuklidinventars dauerhaft in ihrem Myzelium zu fixieren und damit der Verfügbarkeit von Bodenlösung und Pflanze zu entziehen.

von *Schizophyllum commune* vergleichsweise gut erforschte Effekt (siehe z.B. [89]), der teilweise durch die Lokale Senkung des pH-Wertes, teilweise durch Exsudation von Enzymen hervorgerufen wird [90], ist insbesondere in Bezug auf die Bioverfügbarkeit des Cs von großem Interesse, da hierdurch eine Freisetzung von FES-gebundenem Inventar zumindest möglich scheint. Bis heute liegen zur Effektivität eines solchen Mechanismus im Fall von Radiocäsium jedoch keine detaillierten Kenntnisse vor.

Einige Pilzarten eignen sich aufgrund ihrer Anforderungen an ihre Umweltbedingungen für den Einsatz in kontaminierten Böden. So berichten Schindler et al. [29] von der grundsätzlichen Eignung der Modellspezies *Leucoagaricus leucothites* für den Einsatz in Feldversuchen, da dieser Pilz aufgrund seines schnellen Wachstums und der saprobiontischen Lebensweise in der Lage ist, sich in einem bestehenden mikrobiologischen Ökosystem zu etablieren und zugleich hohe Aufnahmekapazitäten für Schwermetalle zeigt.

Auch für Weißfäulepilze wie den bereits genannten *Schizophyllum commune* konnte gezeigt werden, dass er zum expansiven Wachstum in Böden fähig ist, solange dieser über ausreichend Nahrung in Form von organischem Kohlenstoff verfügt [85]. Zugleich zeigten Günther et al. 2014 [91], dass der Pilz ein hohes Aufnahmevermögen für Uran aufweist.

Aus den Eigenschaften der Pilze ergeben sich verschiedene Anwendungsmöglichkeiten in der Bodensanierung. So werden Pilze zum Einen eingesetzt um aktiv Schwermetalle aus Böden zu extrahieren (fungal-extraction) [92, 93]. Hierbei wird der verstärkte Transfer der Radionuklide in die Fruchtkörper ausgenutzt, um die schwermetall-angereicherten Fruchtkörper im Anschluss zu ernten. Ein anderer Ansatz versucht die mobilisierenden Eigenschaften der Pilze auszunutzen, um die Bioverfügbarkeit von Schwermetallen gezielt zu erhöhen, damit diese im Anschluss beispielsweise durch hyper-akkumulierende Pflanzen aufgenommen und extrahiert werden können (myco-assisted phytoremediation) [94].

Im Rahmen dieser Arbeit soll primär ein weiterer Ansatz untersucht werden der darin besteht, Pilzkulturen auszubringen, welche die Bioverfügbarkeit der untersuchten Radionuklide senken, indem sie diese gegenüber den Pflanzen bevorzugt akkumulieren. Hierdurch wird sowohl die Migration von Radionukliden im Boden verringert - ein Aspekt der insbesondere bei relativ mobilen Radionukliden wie ^{90}Sr von Interesse ist - als auch die Aufnahme durch Pflanzen gesenkt.

Als vielversprechende Kandidaten wurden durch unsere Partner von FSU und HZDR hierfür im BioVeStRa-Projekt die beiden Pilze *Leucoagaricus naucinus* und *Schizophyllum commune* ausgewählt, die in Vorversuchen vielversprechende Wachstums- und Sorptionseigenschaften ge-

zeigt haben.

2.4 Kontaminationssituation in der Sperrzone von Tschernobyl

2.4.1 Der Unfall

Der folgende Abschnitt gibt eine sehr knappe Zusammenfassung des Unfallherganges wieder. Für eine ausführlichere Beschreibung sei auf die Literatur, insbesondere von IAEA[95], MIT[96], und Kurchatov Institut[97], sowie die Zusammenfassungen von UNSCEAR[4] und Adamov et al.[98] verwiesen, denen die folgende Kurzfassung weitgehend folgt.

Am 26. April 1986 um 01:23 Uhr Ortszeit ereignete sich eine Explosion⁶ in Reaktorblock 4 des Kernkraftwerkes von Tschernobyl. Grund für die Explosion war eine Leistungsexkursion des graphitmoderierten leichtwassergekühlten Siedewasser-Druckröhrenreaktors der zweiten Generation vom Typ RBMK⁷. Die Explosion wurde durch Designfehler des Reaktors und eine Verkettung von Operationsfehlern bei der Durchführung eines Sicherheitstests verursacht.

Im Zuge dieses Sicherheitstest sollte demonstriert werden, dass die Kühlpumpen des Reaktors im Fall eines Stromausfalls und gleichzeitigem Reaktorausfall kurzzeitig durch die noch laufenden Turbinen des Reaktors betrieben werden konnten. Dieser Test war ursprünglich im Rahmen der Testphase vor Inbetriebnahme des Reaktors vorgesehen, sollte aber nun im Rahmen einer revisionsbedingten geplanten Abschaltung des Reaktors nachgeholt werden.

Im Vorfeld der Komplettabschaltung sollte der Reaktor hierzu zunächst auf eine Leistung von 700-1000 MW_{th} gedrosselt werden, was dem minimal zulässigen Leistungsbereich bei stationärem Betrieb entspricht. Am 25. April ab 01:06 Uhr, also einen Tag vor der Explosion, wurde damit begonnen, die Leistung des Reaktors von seiner Nennleistung von 3100 MW_{th} zunächst auf 1600 MW_{th} zu drosseln. Als Folge der verringerten Leistung und dem damit einhergehenden verringerten Neutronenfluss stieg die Konzentration von Neutronenabsorbem, insbesondere ¹³⁵Xe in den kommenden Stunden stetig an (Xenonvergiftung), was einen Reaktivitätsverlust zur Folge hatte, der kontinuierlich durch die Verringerung der im Reaktor verbliebenen Steuerstäbe (operative Reaktivitätsreserve) ausgeglichen werden musste.

Dieser Zustand war im Rahmen der Testvorbereitungen zwar grundsätzlich vorgesehen, führte aber bereits gegen 07:00 Uhr zu einer Situation, in der zur Aufrechterhaltung des thermischen Leistungsniveaus mehr Steuerstäbe aus dem Reaktorkern herausgefahren werden mussten, als betrieblich zugelassen waren. Um die Durchführung des Tests nicht zu gefährden, wurde auf eine betrieblich vorgeschriebene Abschaltung des Reaktors verzichtet.

Die Reaktivität konnte in der Folge wieder auf ein Niveau oberhalb der kritischen operativen Reaktivitätsreserve angehoben werden, gegen 14:00 Uhr forderte die Lastverteilerstation in Kiev jedoch unplanmäßig die Aufrechterhaltung des Leistungsniveaus von 1600 MW_{th} an, um den hohen Strombedarf der Stadt zu decken. Dies führte zu einer Verschiebung des Versuchsbeginns um 9 Stunden, in denen der Reaktor unterhalb der vorgesehenen Leistungsstufe betrieben wurde, was zum weiteren Aufbau von Reaktorgiften im Reaktor führte.

Gegen 23:00 Uhr erhielt das Kraftwerk die Genehmigung zur geplanten Leistungssenkung und der Reaktor wurde auf das geplante Leistungsniveau von 700 MW_{th} gedrosselt. Hierbei sank die Leistung jedoch gegen 0:30 Uhr (26. April 1986) in Folge eines technischen Defektes oder eines Bedienfehlers innerhalb kürzester Zeit drastisch ab.

Ein Wiederaufbau auf diesem Leistungsniveau war wiederum nicht zulässig. Um den Test dennoch durchführen zu können, wurde ein Reaktorabschaltsignal des Systems unwirksam gemacht. Um 01:23 wurde der geplante Versuch eingeleitet, wobei die Kühlung der Haupt-Umwälzpumpen (die zuvor oberhalb der betrieblich zulässigen Höchstleistung betrieben werden mussten) auslief. Dies erhöhte wiederum die Zutrittstemperatur des Kühlwassers im Reaktor und damit den Dampfanteil im Reaktor. Aufgrund des hohen positiven Dampfblasenkoeffizienten erhöhte sich hierdurch die Reaktivität wiederum stark.

Innerhalb einer halben Minute stieg die Reaktorleistung wieder auf etwa 10 % der Nennleistung an, weshalb die Notabschaltung des Systems betätigt wurde. Die Schnelleinfahrung aller

⁶Augenzeugenberichten zu Folge waren es möglicherweise auch zwei Explosionen, im Abstand von etwa 2-3 Sekunden.

⁷Reaktor Bolschoi Moschtschnosti Kanalny, etwa: Reaktor mit großer Leistung vom Kanaltyp.

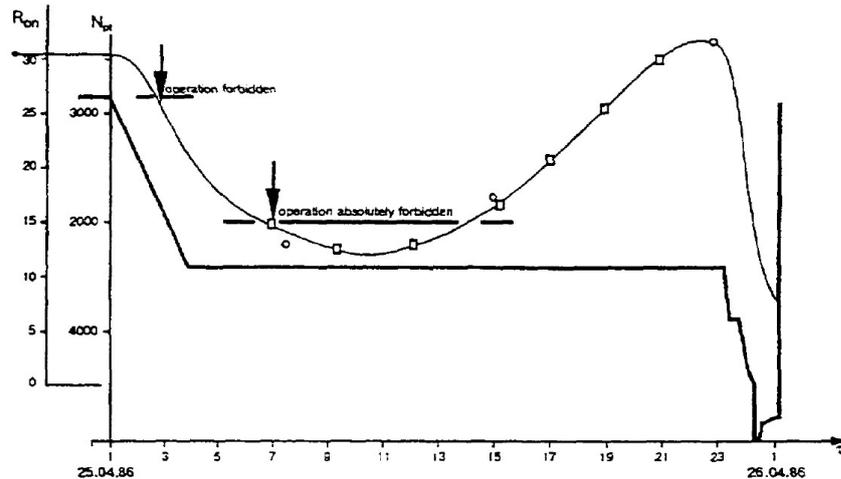


Abbildung 6 – Entwicklung von thermischer Leistung (untere schwarze Linie) und operativer Reaktivitätsreserve (obere schwarze Kurve). Die beiden aus dem russischen Original mit „operation forbidden“ und „operation absolutely forbidden“ übersetzten Pfeile beziehen sich auf das Absenken der operativen Leistungsreserve unter die Werte von 26 (untere Grenze der betrieblichen Vorschriften für den Leistungsbetrieb) und 15 (minimal zugelassene Reaktivitätsreserve). Quelle: [98].

Steuerstäbe bewirkte aufgrund des Einbaus von Graphitkappen an den Enden der Stäbe für einen kurzen Moment den gegenteiligen vorgesehenen Effekt und erhöhte die Reaktivität durch zusätzliche Moderation lokal drastisch.

Hierbei kam es zu einer Leistungsexkursion in dessen Folge die Abdeckung des Reaktors weggeschleudert und das Reaktorgebäude praktisch vollständig zerstört wurde (siehe Abb. 7).

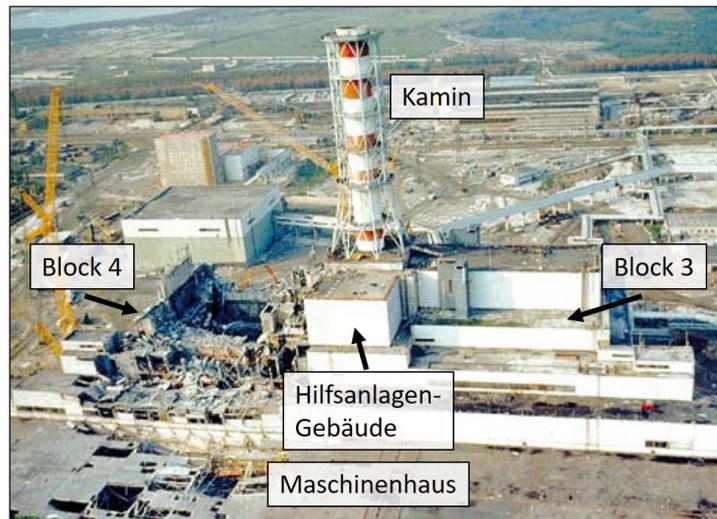


Abbildung 7 – Zustand des Reaktors nach der Explosion. Quelle: [98](Beschriftung hinzugefügt).

Im Anschluss an die primäre Explosion geriet die Anlage in Brand, wobei ca 250 t Graphit aus dem Reaktorkern verbrannt wurden. Die Löscharbeiten zogen sich bis in die Morgenstunden des 26. April.

2.4.2 Der Quellterm

Zum Zeitpunkt des Unfalls befanden sich insgesamt etwa 190 t Urandioxid mit einem ursprünglichen Anreicherungsgrad von 2 % und einem mittleren Abbrand von etwa 10 MWd/kg[99]

im Reaktorblock 4. Victorova et al. [100] schätzten 1990, dass etwa 6 bis 8 Tonnen Urandioxid, also etwa 3-4 % des Gesamtinventars, aus dem Reaktor in die Umwelt freigesetzt wurden, wobei der Brennstoff-Staub innerhalb des Sarkophages nicht mit eingerechnet wurde. Spätere Schätzungen auf Basis des Umweltmonitoring gingen von einem etwas kleineren Anteil aus, welcher tatsächlich in die Umwelt gelangt ist⁸. Kashparov et al. [101] schätzten den in die Umwelt entlassenen Kernbrennstoffanteil 2003 mit $1,5\% \pm 0,5\%$ des Gesamtinventars ab, wobei insgesamt etwa 0,4 - 0,5 % auf den umgebenden Böden abgelagert wurden, während sich der restliche Anteil in ausgehobenen Lager-Gruben, sowie Sedimenten des Kühlteiches verteilt. Der Wert von 1,5 % entspricht dem heute durch die vereinten Nationen allgemein anerkannten Schätzwert [102].

Während der Leistungsexkursion, oder einer möglichen direkt nachfolgenden Wasserstoffexplosion, wurde ein Teil des Brennstoffmaterials pulverisiert [103]. Dieser partikuläre Staub wurde durch die große Wärmeentwicklung der Leistungsexkursion und nachfolgenden Graphitbrand in Höhen von bis zu 1200 m oberhalb des Reaktors getragen, wobei eine Fraktionierung entsprechend der Partikelgröße stattfand. Gemeinsam mit diesen Partikeln des Kernbrennstoffs wurden die im Inneren der Urandioxid-Matrix eingeschlossenen Spalt- und Aktivierungsprodukte ebenfalls in die Umwelt freigesetzt.

Die direkt bei der Explosion entstandenen Uranpartikel können in zwei unterschiedliche Gruppen eingeteilt werden. Während ein Großteil der emittierten Partikel chemisch unverändert als Uran-Dioxid Partikel (UO_2) den Reaktor verließen, verschmolz in einem Teil des Reaktors (schätzungsweise nicht mehr als 30 % [104]) Reaktorbrandstoff bei Temperaturen über 2600°C mit dem Zirkon der Hüllstäbe und bildete die Klasse der Uran-Zirkon-Mischoxid-Partikel (ZrU_yO_x).

Im Nachgang der primären Explosion lag der Reaktorkern für weitere zehn Tage weitgehend frei. Aufgrund der hohen Temperaturen durch Graphitbrand und Nachzerfallswärme wurde in dieser Phase zum Einen offenliegendes Reaktormaterial teilweise oxidiert, wobei die sehr heterogene Partikelgruppe von Uranmischoxid-Partikeln (UO_{2+x}) entstand. Desweiteren begann das verbliebene Volumen des Reaktormaterials in den sechs auf die Explosion folgenden Tagen mit den Strukturmaterialien des Reaktors - insbesondere Beton und Stahl - der unmittelbaren Umgebung zu verschmelzen [96]. Nach etwa sechs Tagen führte die weitere Aufheizung zur weitgehenden Verflüssigung des Strukturmaterials. Dieses teilverflüssigte Gemisch aus (vermutlich größtenteils festem, teilweise partikulärem) Kernbrennstoff und (verflüssigtem) Strukturmaterial wird in der Literatur häufig als Tschernobyl- „Lava“ bezeichnet.

Die thermischen Belastungen, denen das Material aufgrund der Temperaturgradienten zwischen innerem und äußeren Lava-Volumen ausgesetzt war, waren enorm und es kann davon ausgegangen werden, dass es kontinuierlich zu Auflösungs- und Rekristallisationsprozessen innerhalb des Gemisches kam. Die gebildete „Lava“, deren Matrix zum Großteil silikatischen Ursprungs (Beton) ist, begann sich im Anschluss zu bewegen und brach 11 Tage nach der Explosion durch den Boden des Reaktorstockwerks [104].

Die anschließende Wanderung des Gemisches führte zu einer weiträumigen Verteilung des Kernbrennstoffs über das Reaktorgebäude und damit zu einer langsamen Abkühlung. Abbildung 8 gibt einen Überblick über die Verteilung der Reaktorschmelze im Reaktorgebäude im Anschluss an die weitgehende Erstarrung der Gesteinsmatrix.

Von der Oberfläche dieser erstarrten Matrix lösen sich aufgrund thermischer und radiologischer Belastung der Materialien bis heute kleine Bruchstücke ab, welche in Aerosolen innerhalb des Reaktorverschlusses in großer Zahl gefunden werden können [106]. Auch die Bildung sekundärer Uranphasen wie beispielsweise $\text{Na}_4(\text{UO}_2)(\text{CO}_3)_3$ und $\text{Na}_3\text{H}(\text{CO}_3)_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ [107] oder auch nicht näher spezifizierte Na-S-U-O-Phasen an den Rändern der erkalteten Lava [106] sind in der Literatur beschrieben. Abb. 9 zeigt zwei Vertreter dieser sehr heterogenen Gruppe von sekundären Partikeln.

Trotz zahlreicher Beschreibungen sekundärer Verbindungen innerhalb des Reaktorverschlusses in der (teilweise russischen) Literatur insbesondere der frühen Neunziger Jahre (siehe z.B:

⁸Es wird vermutet, dass in den Tagen im unmittelbaren Anschluss an den Unfall in eilig ausgehobenen „Lagern“ rund um den Reaktorblock 4 auch hochradioaktiver Brennstoffabfall aus der Reaktornähe direkt vergraben wurde [99]. Dieser Anteil lässt sich nicht mehr genau quantifizieren, könnte aber für einen Teil der Diskrepanz in den Schätzungen verantwortlich sein.

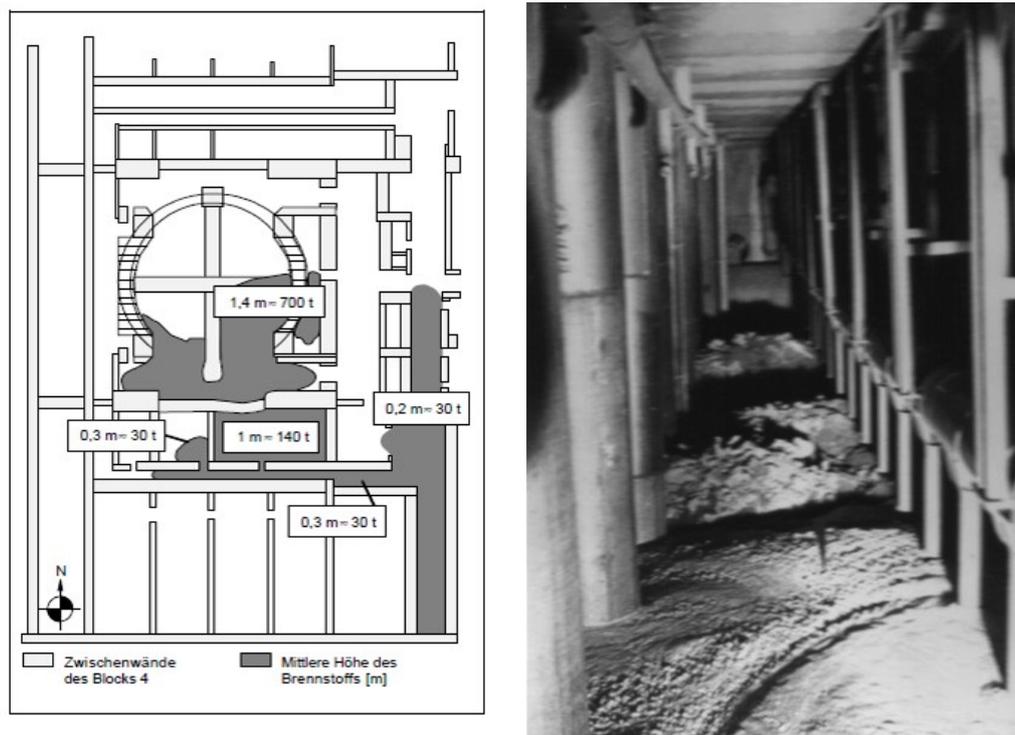


Abbildung 8 – Verteilung der Reaktorkernschmelze im Reaktorgebäude (links, Quelle: [99]), sowie Blick auf „brennstoffhaltige Flüssigkeit“ unterhalb des Reaktors, (rechts, Quelle: [105])

[108–110]) stellten Pöml et al. 2013 fest: „it is surprising that so little is known about the condition of the Chernobyl fuel at the time of the accident and the physical properties of the lava. For example, isotopic data on the fuel are non-existent or unavailable in the open literature“ [111]. Über die Dynamik der Entstehung dieser sekundären Partikel ist aus der Literatur so gut wie nichts bekannt. Als gesichert kann aber gelten, dass sie nicht vor dem 02.05.1986, also sechs Tage nach der Explosion entstanden sein dürften, da sich erst zu diesem Zeitpunkt die Lava zu bilden begann.

Eine hohen Datenlage wäre hier insofern interessant, da diese Rückschlüsse auf die Genese der Partikel und damit wiederum auf die Bedingungen und Abläufe (Temperaturen, Drücke, Zeitskalen) im Rahmen des Unfallgeschehens erlauben würde [112]. Ein Grund für die schlechte Datenlage ist sicherlich die auch weiterhin große Schwierigkeit bei der Probenahme in der Nähe der erkalteten Reaktorschmelze und der Strahlenschutz-bedingt eingeschränkte Zugang für Wissenschaftler.

Die hohen Temperaturen, denen der Brennstoff zum Zeitpunkt der Explosion und in den folgenden Wochen und Monaten ausgesetzt war, führten auch dazu, dass neben dem partikulären Austrag erhebliche Teile des Gesamtinventars *flüchtiger* Radionuklide aus dem verbliebenen Kernbrennstoff „herausdestilliert“ und in die Umwelt entlassen wurden. Schätzungsweise bis zu 100 % der Edelgase, 20-50 % des Iodinventars und 12-33 % des Radiocäsium wurden auf diese Weise in die Umwelt emittiert [101]. Die Verflüchtigung aufgrund der hohen Temperaturen stellt folglich den Hauptaustragspfad der Nuklide ^{137}Cs (HWZ = 30,1 a), ^{134}Cs (HWZ = 2,1 Jahre) und ^{131}I (HWZ = 8,0 d) dar, welche für einen wesentlichen Anteil der Dosisbelastung der europäischen Bevölkerung verantwortlich sind. Abb. 10 zeigt das Ausmaß an fortgesetzter Aktivitätsfreisetzung aus dem Reaktor, bis zu seinem weitgehenden Verschluss am 06. Mai.

Radiostrontium (hier von primärer Bedeutung ^{90}Sr ; HWZ = 28,8 a und ^{89}Sr ; HWZ = 59,5 d, Siedepunkt 1380°C) gilt im Rahmen des Unfallgeschehens von Tschernobyl als Element mittlerer Volatilität, da seine Siedetemperatur über weite Teile des Unfallgeschehens nicht überschritten wurde. Zumindest ein kleiner Teil von schätzungsweise 3-4 % [101] ist aufgrund der vorherr-

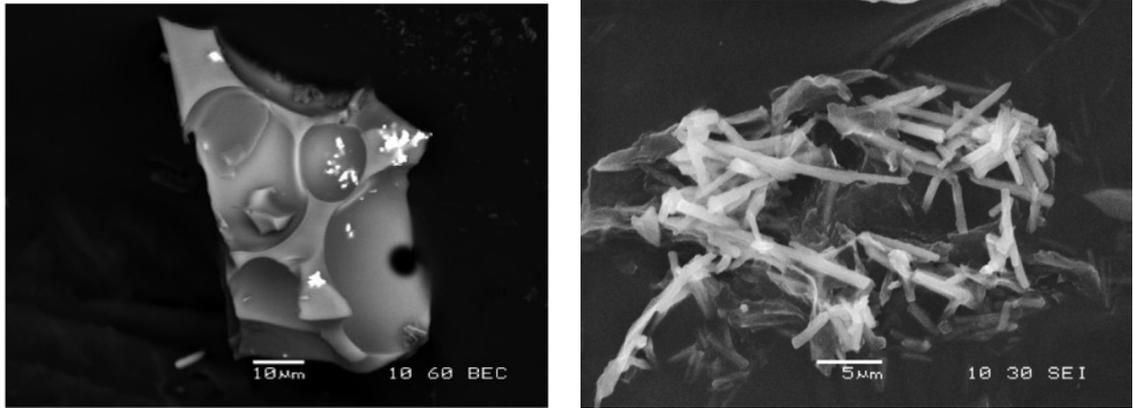


Abbildung 9 – Beispiele für sekundäre Brennstoffpartikel. Quelle: [106]. Links: Aerosolpartikel aus der unmittelbaren Nähe (0,5m) eines erkalteten „Lava“-Haufens mit kleinen UO_{2+x} -Einschlüssen. Rechts: Nicht näher spezifizierte Na-S-U-O Strukturen von der Oberfläche eines Lava-Fragmentes.

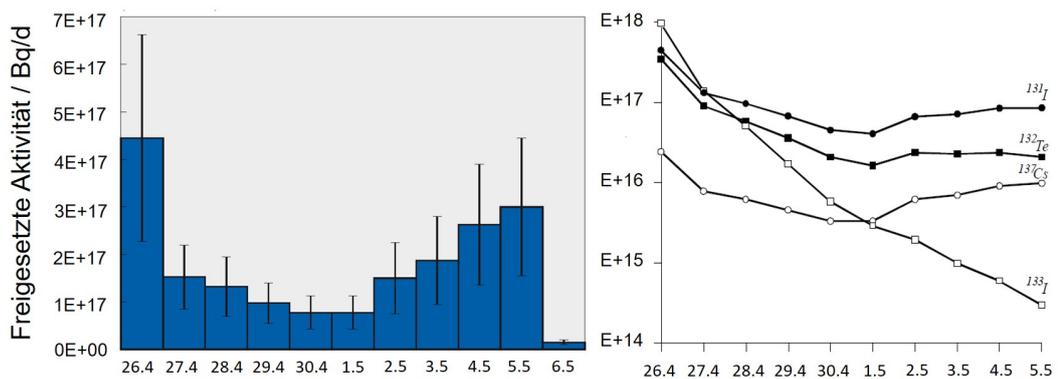


Abbildung 10 – Entwicklung der Radioaktivitätsfreisetzung im Verlauf von 11 Tagen nach der Explosion. Quellen: [113] (links) und [4] (rechts).

schenden Temperaturen während des Emissionsgeschehen jedoch in nicht-partikulärer Form freigesetzt worden. Tabelle 3 gibt eine Übersicht über das emittierte Radionuklidinventar, welches aufgrund von Halbwertszeit und freigesetzter Aktivität für die heutige und die zukünftige Kontaminationssituation noch immer relevant ist.

Im Anschluss an die Emission in größere Höhen kühlten die volatilen Radionuklide wieder ab und kondensierten an feinen Staubpartikeln der Luft. In Abhängigkeit von Flüchtigkeit der Nuklide und Temperatur während der Emission erreichten sie hierbei unterschiedliche Höhen, wobei (neben den Edelgasen) insbesondere das Radioiod und das Radiocäsium in über einen Kilometer Höhe transportiert werden konnten.

Tabelle 3 – Radionuklidvektor der für die heutige und zukünftige Kontaminationssituation der Sperrzone maßgeblichen Freisetzungen des Unfalls ($T_{1/2} > 3$ Jahre, $A_{initial} > 0,1$ PBq). Quelle: [114].

	Radionuklid	$T_{1/2}$ [Jahre]	Emittierte Aktivität [PBq]
Flüchtige Elemente	^3H	12,3	1,4
	^{137}Cs	30,1	85
Mäßig flüchtige Elemente	^{90}Sr	28,9	≈ 10
Schwer flüchtige Elemente	^{154}Eu	8,6	0,13
	^{241}Pu	14,3	2,6
	\longrightarrow ^{241}Am	433	(^{241}Pu)

2.4.3 Lokale Verteilung der Kontamination

Die Ausbreitung der Radionuklide im Laufe des Emissionsgeschehens hing neben dem Quellterm von den meteorologischen Bedingungen zum Zeitpunkt der jeweiligen Emission ab. Zum Zeitpunkt der Explosion wehte der Wind in Richtung Westen. In der westlichen Ausbreitungsrichtung findet sich folglich ein Großteil des emittierten Nuklidinventars im Allgemeinen und ein Großteil der nicht-oxidierten Reaktorpartikel im Speziellen [101, 115].

Der nicht-partikuläre Anteil der emittierten Radioaktivität ging entweder in kondensierter Form sorbiert an Staubpartikeln zu Boden (trockene Deposition) oder wurde durch Regenwasser ausgewaschen und erreichte mit diesem den Boden (nasse Deposition). Flüchtige Radionuklide, insbesondere das Radioiod sowie teilweise das Radiocäsium, sowie ein kleiner Teil sehr feiner Partikel wurde in der Folge über weite Teile Europas bis nach Finnland und Schweden transportiert [116]. Allerdings nahm die Reichweite flüchtiger Radionuklide mit abnehmendem Siedepunkt drastisch ab und auch vom vergleichsweise flüchtigen Radiocäsium gingen große Teile des Inventars innerhalb der Sperrzone, sowie den angrenzenden Ländern Weißrussland und Russland nieder (siehe Abb. 11).

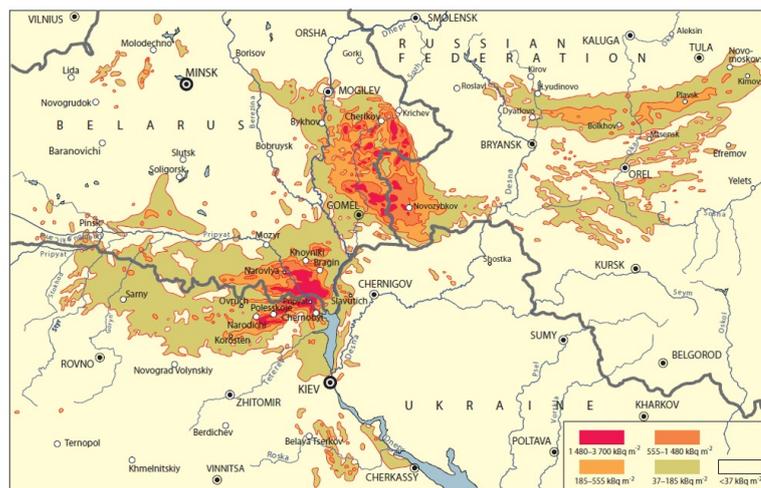


Abbildung 11 – Karte des ^{137}Cs - Depositionsniveaus in Weißrussland, Russland und der Ukraine im Dezember 1989. (Quelle: [102]).

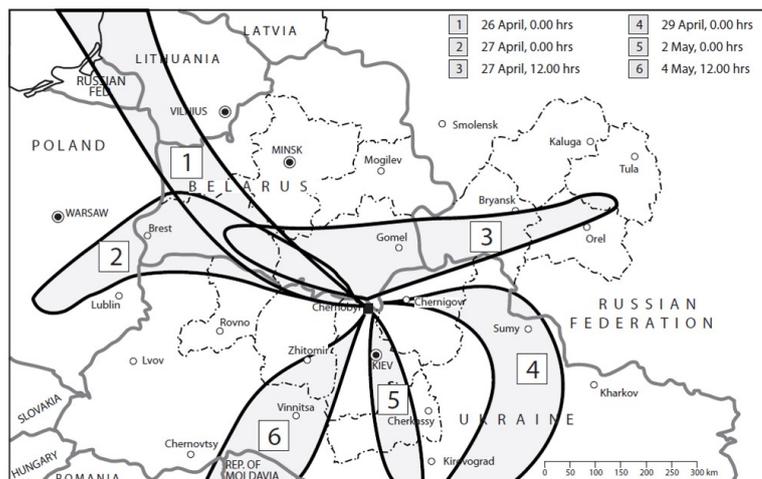


Abbildung 12 – Vorherrschende Windrichtungen in den Tagen unmittelbar nach der Explosion. (Quelle: [102]).

In den Tagen unmittelbar nach der Reaktorhavarie, in denen weiterhin sowohl partikuläres (nun kontinuierlich stärker oxidiert), als auch flüchtiges Inventar aus der Reaktorrüine austrat, änderte sich die Windrichtung mehrfach. Zunächst ab dem 27. April mittags in Richtung Norden, dann ab dem 29. April in Richtung Westen und ab dem 02. Mai bis zum Ende des akuten Emissionsgeschehens in Richtung Süden.

Die wechselnden vorherrschenden Windrichtungen, gemeinsam mit dem dynamischen Emissionsgeschehen (Quellterm) führten zu großen richtungsabhängigen Unterschieden in der Kontaminationssituation in den verschiedenen Regionen um den Reaktor. Im Rahmen dieser Arbeit ist insbesondere die Emissionsphase ab dem 02. Mai 1986 mit vorwiegend in südlicher Richtung wehendem Wind von Bedeutung, da sich das Testfeld des BioVeStRa-Projektes in dieser Richtung befindet. Abb. 13 zeigt die Lage des Testfeldes, sowie das Depositionsniveau von ^{90}Sr und $^{239+240}\text{Pu}$ in der Umgebung des Reaktors.

Plutonium, als schwer-flüchtiges Element wurde praktisch ausschließlich partikulär emittiert. Die Umrisse der Plutoniumkontamination können insofern mit der Kontamination durch Reaktorpartikel weitgehend gleichgesetzt werden. Diese gingen fast ausschließlich innerhalb der 30 km Sperrzone zu Boden. Auch die Kontamination mit Radiostrontium ist ein primär lokales Problem der 30 km Zone um den Reaktor, sowie der nördlich angrenzenden weißrussischen Gebiete. Allerdings kam es hier auch zu Kontaminationen nordöstlich der weißrussischen Stadt Gomel, welche primär mit dem Emissionsgeschehen um den 27.04.1986 in Verbindung steht (siehe Abb. 12). Die Unterschiede der Verteilung von Strontium zu denen des Cäsiums und Plutoniums zeigen seinen Status als Element mittlerer Flüchtigkeit im Rahmen des Unfallgeschehens.

Da das weitere Migrationsgeschehen der Radionuklide in Folge der Deposition extrem stark von den lokalen Bedingungen - insbesondere von Nuklidvektor und Boden - abhängen, liegt der Fokus des folgenden Kapitels gezielt auf der Situation in unmittelbarer Umgebung des Testfeldes.

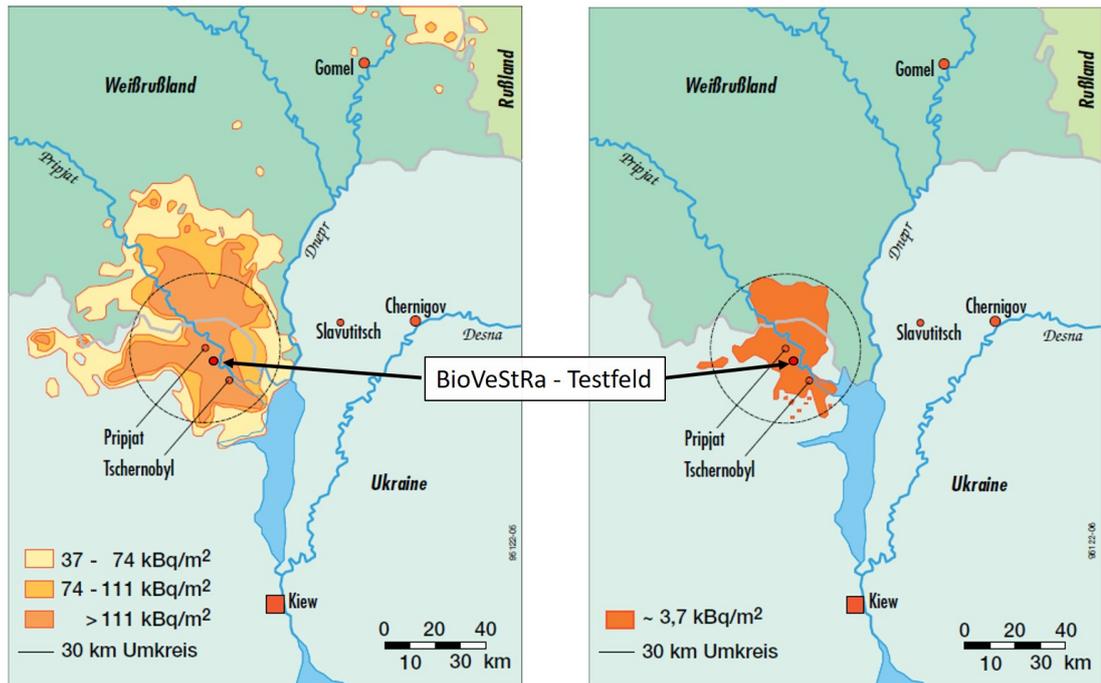


Abbildung 13 – Lokale Verteilung von ^{90}Sr (links) und $^{239+240}\text{Pu}$ (rechts) um das Kernkraftwerk im Dezember 1989 (Quelle: [99]), sowie Lage des BioVeStRa-Testfeldes.

2.4.4 Kontaminationssituation nahe des Testfeldes - 32 Jahre nach dem Unfall

Das BioVeStRa-Testfeld befindet sich auf dem Gebiet der ehemaligen Kommune Kopachi 5 km süd-süd-westlich des havarierten Reaktors und liegt damit eindeutig in einem Bereich der Sperrzone, der auch partikulär kontaminiert wurde. Für das Radiostrontium und das Radiocäsium ist hier folglich sowohl ein partikulärer, als auch ein nicht-partikulärer Eintrag zu erwarten. Speziell für diese Gegend stehen in der Literatur umfangreiche Untersuchungen zur Kontaminationssituation sowie zur Bodenbeschaffenheit aus mehreren Messkampagnen in den 1990er Jahren zur Verfügung, so etwa aus dem Jahr 1992 (Askbrant et al.[117]) und aus den Jahren 1995-1996 (Kashparov et al. 1999[118]). Die für diese Arbeit interessantesten Ergebnisse dieser Messkampagnen sind in Tabelle 4 zusammengefasst.

Tabelle 4 – Ausgewählte Messdaten der Untersuchungen der Kontaminationssituation nahe Kopachi. Quellen: [117] [118] [119]. Die Untersuchung von Askbrant (1986) bezieht sich auf „undisturbed soils“, die Untersuchung (1992) hingegen auf „tilled soils“. Die Untersuchung von Kashparov (1995) bezieht sich auf Bohrkernproben von 30cm Tiefe, der pH-Wert jedoch abweichend auf die obersten 5cm des Bodens.

Untersuchung	Askbrant (1986)	Askbrant (1992)	Kashparov (1995)
Bodentyp	Rasenpodsol (sandig)	Rasenpodsol (sandig)	Rasenpodsol (lehmig)
^{137}Cs	1100-2500 kBq m ⁻²	3,9-8,7 kBq kg ⁻¹	830 ± 70 kBq m ⁻²
^{90}Sr	850-1600 kBq m ⁻²	3,0-5,7 kBq kg ⁻¹	830 ± 70 kBq m ⁻²
pH	5,3-6,5 (KCl)	4,5-5,0 (KCl)	5,55 (H ₂ O), 4,2 (KCl)

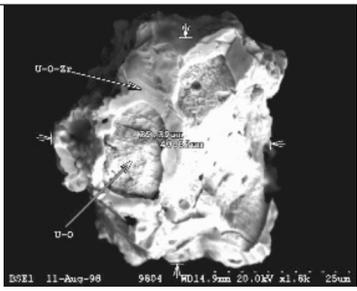
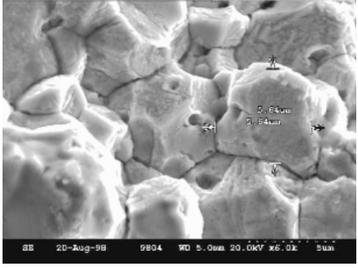
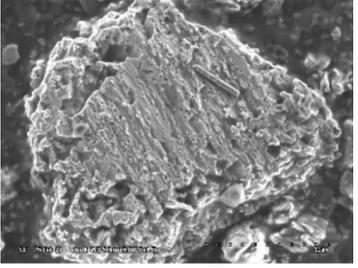
Askbrant et al. [117] geben zudem für die Gegend von Kopachi eine Jahresdurchschnittstemperatur von 6,5 °C und eine Niederschlagsmenge von 589 mm/a an. Als Historie der Bodennutzung werden genannt: Wechselnde Feldfrüchte (vor 1986) sowie Gräser (nach dem Unfall bis zum Beginn der Messkampagne).

Bemerkenswert an den Ergebnissen von Askbrant et al. ist insbesondere die große Unsicherheit mit der die Aktivitäten angegeben werden. Im Fall der untersuchten Proben von Kashparov fallen diese deutlich niedriger aus, hier wurden jedoch im Rahmen einer Messkampagne über die gesamte Sperrzone nur insgesamt zwei Bohrkernproben aus der Gegend von Kopachi genommen

und analysiert. Ebenfalls interessant ist die Beobachtung, dass es eine Versäuerung der Böden im Nachgang des Reaktorunfalls gegeben haben könnte, wobei die Studien von Askbrant und Kashparov aufgrund der unterschiedlichen Probenahmestellen nur bedingt vergleichbar sind. Eine Versäuerung des Bodens scheint zumindest denkbar, da der vorherrschende Bodentyp vor der Evakuierung zur Aufrechterhaltung der Fruchtbarkeit regelmäßig gekalkt werden musste. Ein solcher Prozess hätte in Bezug auf das Auflösungsverhalten von Partikeln weitreichende Folgen.

Der partikuläre Eintrag der Gegend um Kopachi rührt wetterbedingt überwiegend aus Emissionen im Zeitraum zwischen dem 02.05. und dem 06.05. Während fein verteiltes im Reaktorgebäude verbliebenes Brennstoffmaterial zu diesem Zeitpunkt bereits relativ stark oxidiert vorlag begann das im Reaktorkern verbliebene Material in diesem Zeitraum die umgebenden Gebäudematerialien zu verflüssigen. Eine Kontamination des Testfeldes sollte folglich größtenteils der heterogenen Partikelklasse der oxidierten Uranpartikel UO_{2+x} zuzuordnen sein. Während sowohl für die Partikelklasse der Uran-Zirkon-Partikel als auch für die Klasse der Uranoxid-Partikel langsame Auflösungs-Geschwindigkeiten erwartet werden, gelten UO_{2+x} -Partikel als chemisch relativ instabil (siehe Tab. 5)[120].

Tabelle 5 – Unterteilung der primären partikulären Fraktion in drei Klassen nach Kashparov [121], sowie dominante Ausbreitungsrichtung und Umweltstabilität. Die Elektronenmikroskopiebilder entstammen der öffentlich zugänglichen „Hot Particles Database“ [122]. chem. Stab. = chemische Stabilität unter Umwelteinflüssen. Aufl. Rate = Halbwertszeit der chemischen Auflösung in Böden, pH 4-7, Quellen: [123] [118].

UZrO	UO₂	UO_{2+x}
		
<p>Ursprung: Verschmelzen von U-Oxid mit Zirkalloy der Hüllrohre (initiale Freisetzung)</p> <p>Richtung: West ca 10 % N+S</p> <p>chem. Stab.+++</p> <p>Aufl.-Rate -</p>	<p>initiale Freisetzung</p> <p>West</p> <p>+</p> <p>7-70 Jahre</p>	<p>Folgefreesetzung 26.04.1986- 05.05.1986</p> <p>Nord + Süd</p> <p>-</p> <p>1-14 Jahre</p>

Die elektronenmikroskopischen Aufnahmen aus Tabelle 5 zeigen den typischen Zustand von Partikeln, nachdem sie einige Jahre in den Böden der Umgebung den dortigen Verwitterungsprozessen ausgesetzt waren. Das Ausmaß an Verwitterung wird neben der Partikelklasse maßgeblich vom pH-Wert des Bodens beeinflusst[120].

Basierend auf der Einteilung der Partikel in die Emissionsrichtungen Norden + Süden (UO_{2+x}) und Westen (ZrU_yO_x und UO_2) konnten Kashparov et al. 2019 [124] zeigen, dass sich der Anteil der verbliebenen Partikel (ΔFP) in Abhängigkeit der Zeit t (in Jahren) in der südlichen (sowie nördlichen) Richtung vom Reaktor gemäß folgender Reaktionsgleichung erster Ordnung beschreiben lässt:

$$\Delta FP = \exp(-kt) \quad (8)$$

mit $k = 40 \cdot 10^{-0,45pH}$ und $pH < 6,5$.

Legt man dieser Berechnung einen Boden-pH von 5,55 zu Grunde,⁹ bedeutet dies eine Halbierung des partikulären Inventars auf dem Testfeld nach etwa fünfeneinhalb Jahren, sowie ein partikuläres Restinventar nach 32 Jahren, von 1,7 %.

⁹Entspricht dem in dieser Arbeit für das Testfeld bestimmten pH, siehe Material und Methoden.

3 Material und Methoden

3.1 Verwendete Chemikalien und Reinheiten

Die verwendeten Chemikalien stammten, wenn nicht anders angegeben, von den Herstellern Merck Millipore und VWR, wobei die Reinheiten der Chemikalien grundsätzlich mindestens Analysegrad besaßen. Im Fall von VWR entspricht dies der hauseigenen Definitionen AnalaR[®] und Normapur[®], sowie im Fall der Chemikalien von Merck der Reinheit EMSURE[®].

Das verwendete Laborwasser hatte Analysequalität (Merck-Milli-Q), einen elektrischen Widerstand von 18,3 M Ω einen organischen Kohlenstoffanteil (TOC) < 3 μ g/kg sowie einen pH von 5,5.

Die *Hoagland Lösung* mit reduziertem Phosphorgehalt für die Versorgung der Pflanzen in den Klimakammer-Experimenten wurde mit vollentsalztem Wasser (Elix) und folgenden Chemikalien (in Analysenqualität) angesetzt:

Tabelle 6 – Zusammensetzung Hoagland-Lösung (phosphatreduziert)

Substanz	KNO ₃	Ca(NO ₃) ₂	MgSO ₄	NH ₄ NO ₃	KCl	KH ₂ PO ₄	Fe-EDTA
c (μ mol/l)	2000	500	200	100	50	25	20
Substanz	H ₃ BO ₃	MnSO ₄	ZnSO ₄	CuSO ₄	Na ₂ MoO ₄	NiSO ₄	
c (μ mol/l)	12	2	0,5	0,2	0,1	0,1	

Die verwendeten Pilzkulturen stammten aus einer Reinzucht im Bioreaktor des HZDR. Diese wurden unter sterilen Bedingungen „geerntet“ und in verschlossenen Kautex-Flaschen gekühlt ans IRS verschickt, wo sie bis zu ihrer Verwendung maximal eine Woche im Kühlschrank lagerten. Die Flaschen wurden am Tag des Experimentbeginns geöffnet und alle weiteren Arbeiten fanden unter nicht-sterilen Bedingungen statt. Das heißt, sämtliche verwendeten Geräte hatten analytische, aber nicht sterile Sauberkeit und die Arbeiten fanden in unsteriler Laborluft statt.

Die Arbeiten innerhalb der Sperrzone von Tschernobyl fanden unter besonderen Bedingungen statt, was die Reinheit von verwendeten Geräten und Wasser anbelangt. Die auf dem Feld benötigten Materialien und Geräte wurden nach Möglichkeit aus Deutschland mitgebracht und vor Ort beim Wechsel der Tätigkeit (z.B. nach Einbringen einer Pilzkultur) mit Leitungswasser der Sperrzone gereinigt und anschließend mit ethanolischer Lösung (Ethanol > 85 %) desinfiziert. Das benutzte Leitungswasser stammte dabei aus Tiefenbrunnen der Umgebung und war nicht durch die Kontamination der Reaktorhavarie belastet.

Die Reinheit der verwendeten Geräte (Schneidebretter, Wägeschalen, Trockenschalen etc.) im Labor des Ecocenters in Tschernobyl (Stadt) hatten am ehesten eine als „haushaltsrein“ zu bezeichnende Qualität, welche durch händisches Spülen mit Leitungswasser der Sperrzone und Haushaltsreiniger erreicht wurde.

3.2 Unsicherheiten der Meßgrößen

Den dargestellten Unsicherheiten der einzelnen Meßgrößen X liegt, wenn nicht anders angegeben, die einfache ($k = 1$) Standardabweichung σ der Stichprobenmenge N , gemäß Gl. 9 zu Grunde.

$$u(X) = k\sigma = k\sqrt{\frac{\sum(x_i - \mu)^2}{N - 1}} \quad (9)$$

Für den Vergleich der Effekte der unterschiedlichen Behandlung mit Pilzen wird als Kriterium der Standardfehler des Mittelwertes SEM gemäß Gl. 10 herangezogen.

$$SEM = \sigma(\bar{X}) = \frac{\sigma}{\sqrt{N}} \quad (10)$$

Die Unsicherheit der Zählereignisse (i) im Fall radiometrischer Einzelmessungen ergibt sich aus der Poisson-Verteilung des statistischen Zerfallsprozesses gemäß:

$$u(i) = \sqrt{i} \quad (11)$$

Die Unsicherheiten der Zählraten ips wurden aus diesen unter Vernachlässigung der Unsicherheit der Messzeit t_{Mess} gemäß Gleichung 12 berechnet:

$$u(ips) = u(i)/t_{Mess} \quad (12)$$

Die Messzeit der Gamma-Messungen wurde dabei nach Möglichkeit so gewählt, dass ein relativer statistischer Fehler von 1 % (10000 Zählereignisse) zumindest für das ^{137}Cs , ^{85}Sr und ^{241}Am unterschritten wurde. Bei einigen der Messproben und Nukliden musste jedoch auf Grund der niedrigen Aktivitäten ein höherer statistischer Fehler akzeptiert werden.

Die Berechnung der Unsicherheiten der massenspektrometrischen Analysen geschahen gemäß DIN 32645 und sind in dieser Arbeit mit einem Konfidenzniveau von $k = 1(68\%)$ angegeben.

3.3 Gammaspektroskopie

3.3.1 Zusammenfassung

Eine Zusammenfassung aller Experimente, die gamma-spektrometrisch ausgewertet wurden, findet sich in Tabelle 7. Die nachfolgenden Abschnitte schlüsseln die verwendeten Detektoren, Standards und Kalibrationsmethoden auf.

Tabelle 7 – Zusammenfassung verwendeter Detektoren, Nuklidstandards und Kalibrationsmethoden in den verschiedenen Experimenten. Details zu den jeweiligen Geräten, Standards und Methoden, siehe folgende Abschnitte.

Experiment	Abschnitt	Detektoren	Kalibration	Standard
Bohrkernanalyse	4.1.2	5	Top-Bot	xQCY-11
Sr-Sorption	5.1	2,4	Bot	xSr-85-02
Zeien u. Brümmer	4.1.4,4.1.5	4,5,6	Geometrie-Std.	xQCY-11
Partikelanalyse	4.2.2	5	Punktquellen	Punktquellen
Partikelextrakte	4.3	5	Geometrie-Std	xQCY-13
Laboraafzucht Kartoffel	5.2	1,2	Top-Bot	xSr85-03, xQCY-12
Laboraafzucht Roggen	5.2	3,4,5	Top-Bot	xSr85-03, xQCY-12
Feldaufzucht Roggen 2017	5.3	6	Top-Bot	xQCY-12
Feldaufzucht Roggen 2018	5.3	2,4,5	Top-Bot	xQCY-12
Feldaufzucht Kartoffel 2017	5.3	2,6	Top-Bot	xQCY-12
Feldaufzucht Kartoffel 2018	5.3	2,4,6	Top-Bot	xQCY-12
Bioverfügbarkeit Feld 2018	5.3	4,6	Geometrie-Std	xQCY-13

3.3.2 Detektoren

Die gammaspektrometrischen Ergebnisse wurden mit Hilfe von hochreinen Germanium-Halbleiterdetektoren ermittelt. Die wichtigsten Kenndaten der sechs verwendeten Detektoren sind in Tabelle 8 zusammengefasst. Datenblätter zu den Detektoren finden sich im Anhang.

Tabelle 8 – Technische Daten der verwendeten Germanium-Halbleiterdetektoren

Detektor [Nr.]	Hersteller	Typ	Volumen [cm ³]	Fenster [Material]	rel. Effizienz [%](1333)	FWHM [keV] (1333)
1	Intertechnique	p-koaxial	65,5	Al	12,6	1,81
2	Ortec	n-koaxial	150,8	Be	33,1	1,84
3	Ortec	p-koaxial	226,4	Al	42,1	1,83
4	Canberra	n-koaxial	131	C-Epoxy	28,3	1,76
5	Canberra	n-planar	56,5	C-Epoxy	23,1	1,90
6	Canberra	p-koaxial	151,2	C-Epoxy	35,0	1,78

3.3.3 Ausgewertete Linien

Die in der Arbeit verwendeten Daten zum radioaktiven Zerfall, Halbwertszeiten, Emissionswahrscheinlichkeiten etc. stammen, wenn nicht anders angegeben, alle aus der ENDF/B-VIII.0-Datenbank [125], welche über den Direktzugang zur Karlsruhe Nuclide Chart online [126] abgerufen wurden.

Die Auswertung der Gammaspektren geschah wenn möglich relativ zu einem Standard, der ebenfalls das zu analysierende Nuklid enthielt, so dass die Effizienzen einzeln und linienspezifisch bestimmt werden konnten. Eine Ausnahme bildet hier die Auswertung der Eu-154-Aktivität, für die kein Nuklidstandard vorlag. Hier wurde abweichend die Gammalinie bei 123 keV ausgewertet, wobei deren Effizienz aus der Gammalinie von Co-57 (122 keV) abgeschätzt wurde. Typische Unterschiede in der Effizienz lagen hier (am Beispiel eines dualen Fits für eine Punktquellengeometrie gerechnet) bei ca. $0,5\% \left(\frac{0,1634 \text{ cps}}{0,1643 \text{ Bq}} \right)$ was in Anbetracht der typischen Unsicherheiten aus Zählstatistik und Probenheterogenität als vernachlässigbar angesehen wurde. Die wesentlichen für die Arbeit zur Auswertung herangezogenen Linien und Emissionswahrscheinlichkeiten sind in Tabelle 9 dargestellt.

Tabelle 9 – Zusammenfassung der ausgewerteten Gammalinien.
 ϵ = Emissionswahrscheinlichkeit. HWZ = Halbwertszeit.

Gemessen Nuklid	HWZ [Jahre]	Linie [keV]	ϵ [%]	Kalibriert mit Nuklid	Linie [keV]	ϵ [%]
^{137}Cs	30,08	661,7	85,1	^{137}Cs	661,7	85,1
^{241}Am	232,6	59,5	35,9	^{241}Am	59,5	35,9
^{85}Sr	0,178	514,0	95,7	^{85}Sr	514,0	95,7
^{154}Eu	8,6	123,1	40,4	^{57}Co	122,1	85,6

3.3.4 Verwendete Radionuklidstandards

Daten der verwendeten Radionuklidlösungen sind in Tabelle 10, Daten der verwendeten Punktquellen zur Partikelanalyse sind in Tabelle 11 zusammengefasst.

Tabelle 10 – Verwendete Flüssig-Standards. PTB = Physikalisch-technische Bundesanstalt, Braunschweig. ARC = American radiolabeled chemicals, Inc. E & Z = Eckert und Ziegler, Braunschweig. * = siehe Zertifikat im Anhang

Nuklid id	Aktivität [kBq/g]	Unsicherheit [%] (k=2)	Referenzzeitpunkt Datum	Hersteller	Matrix chemisch
xSr85-01	9,62	1,04	01.07.2016	PTB	0,1M HCl
xSr85-02	12,64	0,97	01.02.2017	PTB	0,1M HCl
xSr85-03	615,64	n.a.	07.07.2017	ARC	0,5M HCl
xSr90-09	30,59	1,5	01.07.2015	PTB	3M HNO ₃
xQCY-11	-*	2,3-3,1*	01.10.2014	E & Z	2M HCl
xQCY-12	-*	2,3-3,1*	01.05.2016	E & Z	2M HCl
xQCY-13	-*	2,3-3,1*	01.02.2019	E & Z	2M HCl

Tabelle 11 – Verwendete Punktquellen zur Kalibration der Partikelgeometrie. PTB = Physikalisch-technische Bundesanstalt, Braunschweig.

Nuklid (interne id)	Aktivität [kBq]	Unsicherheit [kBq] (k=3)	Referenzzeitpunkt Datum	Hersteller
Eu-152 (228-94)	42,8	0,86	14.02.1995	PTB
Am-241 (569-81)	29,2	0,44	01.01.1985	PTB
Cs-137 (246-83)	29,9	0,45	01.01.1985	PTB

3.3.5 Verwendete Kalibrationsmethoden

Zur Effizienzbestimmung der Gammamessungen der Proben kamen, je nach Probenart, drei verschiedene Kalibrationsverfahren zum Einsatz. Allen gemeinsam ist der Versuch, die Verteilung der Radionuklide im Messpräparat auf dem Detektor so genau wie möglich abzubilden. Die Zählraten sämtlicher Messungen wurden für die nachfolgenden Berechnungen jeweils auf ein gemeinsames Referenzdatum zerfallskorrigiert.

Abschätzung der mittleren Effizienz einer Zylindergeometrie aus oberer und unterer Flächeneffizienz- Top-Bottom Methode Zur Kalibration mittels Top-Bottom Methode wurden die Proben möglichst volumenfüllend in Petrischalen aus Polyethylen von 1 cm Höhe eingewogen, und diese im Anschluss mit Parafilm fest verschlossen. War die Probenmenge zu gering um volumenfüllend in Standardgefäße verpackt zu werden, wurde durch die hauseigene Werkstatt zusätzliches Wandmaterial abgetragen und die Höhe der Petrischalen so weit verringert, dass diese durch die Probe ausgefüllt werden konnten.

Die mittlere Effizienz der untersuchten Energielinie (eff_{mittel} in Bq/cps) wurde für jede individuelle Probe mit zwei Kalibrationsmessungen durch einen als volumenlos betrachteten Filterstandard bekannter Aktivität A_{Std} (in Bq) eines Multinuklid- (xQCY) oder Nuklidstandards (xSr85) nach folgendem Schema ermittelt (siehe Abbildung 14).

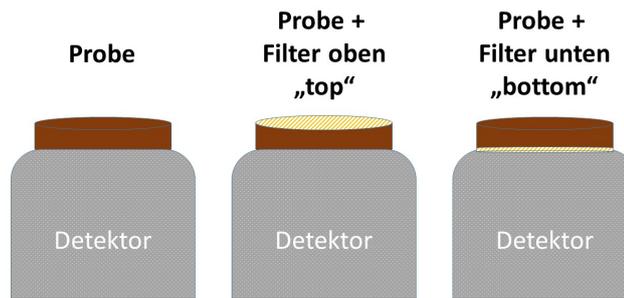


Abbildung 14 – Messung der Probe, sowie Kalibrationsmessungen mittels eines Filterstandards jeweils über (top) und unterhalb (bottom) der Probe

Die Netto-Zählrate von oberer ($cps_{Top,net}$) und unterer ($cps_{Bot,net}$)- Messung ergaben sich hieraus mit Hilfe der (Brutto-)Zählrate der Probe $cps_{Probe,brut}$ und die jeweilige Effizienz von unterer (eff_{Bot}) und oberer (eff_{Top}) Kalibrationsmessung dann gemäß:

$$cps_{Top,net} = cps_{Top,brut} - cps_{Probe,brut} \quad (13)$$

$$eff_{Top} = \frac{cps_{Top,net}}{A_{Std}} \quad (14)$$

$$cps_{Bot,net} = cps_{Bot,brut} - cps_{Probe,brut} \quad (15)$$

$$eff_{Bot} = \frac{cps_{Bot,net}}{A_{Std}} \quad (16)$$

Die zur Probenauswertung herangezogene mittlere (logarithmische) Effizienz eff wurde aus oberer und unterer Effizienz mittels folgender Gleichung bestimmt:

$$eff = \frac{eff_{Bot} - eff_{Top}}{\ln(eff_{Bot}) - \ln(eff_{Top})} \quad (17)$$

Bei den Messproben des Versuches zur Strontiumdetektion (Abschnitt 5.1) handelte es sich um - ebenfalls als volumenlos betrachtete - Filterproben, weshalb hier abweichend nur eine einzige Kalibrationsmessung (Bot) durchgeführt wurde und die hieraus bestimmte Effizienz für die Auswertung aller Filter-Messproben herangezogen wurde.

Herstellung eines Geometriestandards Für sämtliche flüssigen Proben wurde auf die Herstellung von Vergleichsstandards zurückgegriffen. Hierfür wurde zu den Messgefäßen einer Messreihe jeweils ein weiteres Gefäß mit dem selben Flüssigkeitsvolumen und der gleichen Matrixzusammensetzung wie die Messproben befüllt. Hierin wurde eine volumentechnisch vernachlässigbare Menge eines Multielementstandards (QCY-48) bekannter Aktivität (A_{Std}) eingewogen und das Gemisch zur Homogenisierung für mindestens 24h auf dem Überkopfschüttler belassen. Die zur Auswertung herangezogenen nuklidspezifischen Effizienzen eff für alle Messproben einer Messreihe ergaben sich mit Hilfe der Zählrate der Kalibrationsmessung cps_{Std} dann gemäß:

$$eff = \frac{cps_{Std}}{A_{Std}} \quad (18)$$

Punktquellenkalibration für einzelne Reaktorpartikel Für die Partikelmessungen wurde ausschließlich mit Detektor 5 gearbeitet, da dieser den geringsten verfügbaren Untergrund aufweist und zudem vergleichsweise hohe Nachweiswahrscheinlichkeiten im nieder- wie hochenergetischen Messbereich liefert. Die Aktivitätsbestimmung von einzelnen, isolierten Partikeln geschah über eine Punktquellenkalibration. Die zu messenden Partikel wurden hierzu fest an die Spitze einer Wolframnadel geklebt und in einem Nadelhalter aus Aluminium fixiert.

Dieser Nadelhalter wurde für die Gamma-Messungen auf einer Rundscheibe aus Aluminium fixiert, in deren Mitte sich als Messfenster ein Loch befand und die exakt und reproduzierbar auf dem verwendeten Detektorkopf platziert werden konnte. Das Loch der Aluminiumplatte war dabei so ausgelegt, dass es ebenfalls geeignet war, eine Punktquelle zu umfassen und zwar so, dass sich der Mittelpunkt der Punktquelle an der selben Stelle über dem Detektor befand, wie die Nadelspitze im Fall der Partikelmessung.¹⁰

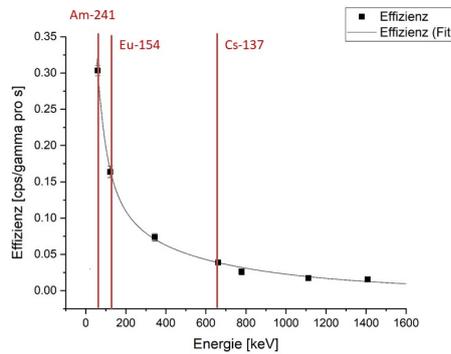


Abbildung 15 – Effizienzkurve für die Auswertung der Reaktorpartikel (Punktquellenkalibration). Die Parameter des verwendeten Fits lauten: $\log(Effizienz) = -0,0005935 * E - 1,107 + 60,04/E - 13653/(E^2)$. E = Energie.

Typische Durchmesser der gemessenen Partikel lagen im Bereich von einigen zehn Mikrometern. Die zur Kalibration verwendeten Punktquellen waren hingegen sichtbar und makroskopisch, was ihre optische Detektion ermöglichte. Der Durchmesser betrug etwa 1 mm. Dieser Unterschied in der Geometrie musste in Kauf genommen werden, da kleinere Punktquellen nicht zur Verfügung standen. Auf die Verbesserung der Vergleichbarkeit der Geometrien durch die Erhöhung des Abstandes zum Detektor wurde verzichtet, da sich diese zu negativ auf die Nachweisbarkeit der Radionuklide ausgewirkt hätte. Tabelle 11 listet die verwendeten Punktquellen auf.

¹⁰Für eine detailliertere Beschreibung des Aufklebens der Partikel auf die Wolframnadeln, sei auf die Doktorarbeit von Martin Weiß verwiesen[127], der dieses Verfahren im Haus etabliert hat. Technische Zeichnungen und weitere Details zu dem entwickelten Probenhalter, der neben dem Einsatz in der Gammaskopimetrie auch für die Sekundärionen-Massenspektrometrie verwendet wurde, finden sich in der Doktorarbeit von Hauke Bosco[128].

Aus der Messung dieser drei Partikel wurde eine Effizienzkurve für den verwendeten Detektor 5 erstellt, (siehe Abb. 15) und die untersuchten Partikel anhand dieser Effizienzkurve und den in Tabelle 9 hinterlegten Nukliddaten quantifiziert.

3.4 Flüssigszintillationsspektrometrie

Die Flüssigszintillationsmessungen der Partikelauflösungen wurden an einem 1220 Quantulus der Firma PerkinElmer durchgeführt. Als Szintillationscocktail wurde Ultima Gold AB im Verhältnis von 17:3 mit den Eluaten (0,025M HNO₃ eingeeengt auf ca 1ml und mit H₂O auf 3ml aufgefüllt) verwendet. Die Auswertung geschah über das Signal des ⁹⁰Y (Summeninhalt der Kanäle 720-940) Abb. 16 zeigt ein beispielhaftes Spektrum eines Reaktorpartikelextraktes (Herakles, aufgelöst in HNO₃ + HClO₄).

Die Messzeit betrug bei allen Proben und Kalibrationsmessungen 6h und die zur Auswertung herangezogenen Ergebnisse entsprechen dem Mittelwert von jeweils 3 Wiederholmessungen.

Die externe Kalibration wurde anhand einer Aktivitätsreihe von ⁹⁰Sr im säkularen Gleichgewicht mit seiner Tochter ⁹⁰Y durchgeführt. Dazu wurde eine volumetrisch vernachlässigbare Menge eines ⁹⁰Sr Aktivitätsstandards (xSr90-09, Zertifikat siehe Anhang) in 3 ml HNO₃ (0,025M) eingewogen und ebenfalls mit Ultima AB Gold (17:3) vermischt. Die zur Quantifizierung herangezogene Regressionsgerade der Kalibrationsmessungen ist in Abb. 16 dargestellt.

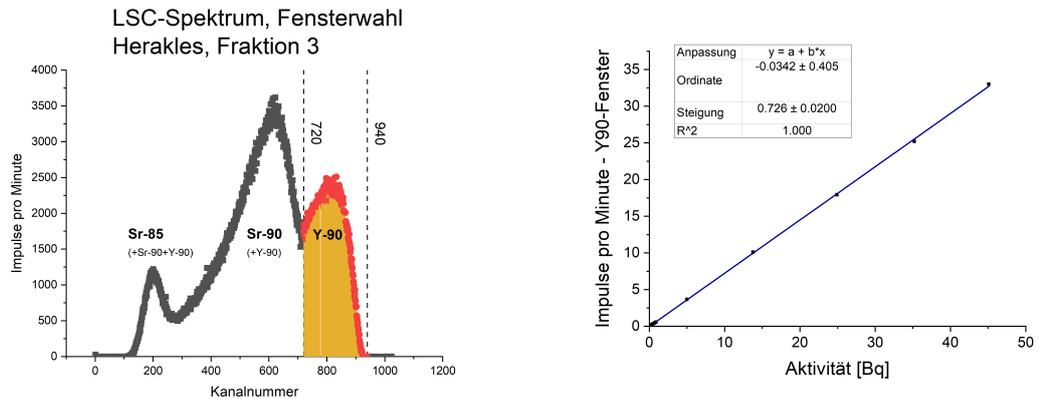


Abbildung 16 – Links: Beispielhaftes Spektrum einer LSC-Messung (Herakles, Fraktion 3). Zur Auswertung wurde der Inhalt der Kanäle 720-940 herangezogen, welcher fast ausschließlich durch das ⁹⁰Y entsteht. Rechts: Kalibrationsgerade für die Auswertung der LSC-Messungen

Zur Bestimmung der Wiederfindung der chemischen Abtrennung wurden die Extrakte vor der Abtrennung mit einem internen ⁸⁵Sr Standard getracert, dessen Verbleib im Anschluss an die Trennung in den LSC-Röhrchen vergleichend zu einem füllhöhenäquivalenten ⁸⁵Sr Standard über die Auswertung des 514 keV Signals quantifiziert wurde (Geometriestandard-Methode).

3.5 Elektronenmikroskopie

Zu den Grundlagen der Funktionsweise eines Elektronenmikroskops sei an dieser Stelle auf die Literatur verwiesen, siehe z.B. [129–131].

Für die elektronenmikroskopischen Aufnahmen wurde ein Philips XL 30 ESEM mit eingebautem remX SDD-Detektor zur EDX Analyse verwendet. Die dargestellten Aufnahmen wurden im Hochvakuummodus bei Drücken von etwa 10⁻⁵ mbar aufgenommen. Typische Beschleunigungsspannungen lagen bei 30 keV und sind im Einzelnen bei den jeweiligen Aufnahmen angegeben. In das Mikroskop war ein MM3A-Mikromanipulator der Firma Kleindiek Nanotechnik eingebaut. Zur Fixierung der Partikel auf im Haus hergestellte Wolframnadeln wurde ein unter dem Elektronenstrahl aushärtender Hochvakuumkleber der Firma Kleindiek Nanotechnik mit dem Handelsnamen SEMgluTM verwendet.

3.6 Bodenkundliche Charakterisierung der verwendeten Böden

Im Rahmen dieser Dissertation wurde mit insgesamt vier verschiedenen Böden gearbeitet, die im Folgenden kurz beschrieben werden. Für alle vier Böden wurden im Haus bodenkundliche Charakterisierungen erstellt, deren Ergebnisse in Tabelle 12 zusammengefasst sind. Der pH Wert wurde in 0,01 M CaCl₂-Lösung gemäß DIN EN 15933 (2012) [132] bestimmt. Die Bestimmung der Körnung geschah durch Siebung und Sedimentation gemäß DIN ISO 11277 (2002) [133]. Die Verfahren zur Bestimmung der dithionit- und oxalatlöslichen Gehalte basierten auf DIN EN ISO 12782-2 (2012) [134] und DIN EN ISO 12782-3 (2012) [135]. Die Kationenaustauschkapazität wurde mittels der Thio-Urea Methode bestimmt [136].

Tabelle 12 – Bodenkundliche Kenngrößen. KAK_{eff} = effektive Kationenaustauschkapazität. KAK_{pot} = potentielle Kationenaustauschkapazität. Xx_o = Gehalt an oxalatlöslichem Element Xx. Xx_d = Gehalt an dithionitlöslichem Element Xx. C_{ges} = Kohlenstoffgehalt, gesamt. C_{carb} = Kohlenstoffgehalt, anorganisch. C_{org} = Kohlenstoffgehalt, organisch. OS = Organische Substanz.

Boden Beprobungstiefe		CEZ			VKTA	Refesol 4	Refesol 1
		0-10cm	10-20cm	20-30cm	1-2m		80 cm
Körnung	(Ton %)	6,1	6,0	4,9	3,3	3,0	1,23
	(Schluff %)	40,6	39,1	39,1	6,3	8,5	3,6
	(Sand %)	53,3	54,9	56,0	90,4	88,6	95,18
pH		5,5	5,6	5,6	7,4	5,3	4,83
KAK_{eff}	(mmol _c /kg)	51,5	43,3	33,1	34,4	71,4	9,7
KAK_{pot}	(mmol _c /kg)	57,3	44,6	32,9	28,2	83,4	
Fe _o	(g/kg)	0,98	1,00	0,88	0,56	0,60	0,07
Fe _d	(g/kg)	3,76	3,75	3,09	6,71	2,56	0,01
Fe _o /Fe _d		0,26	0,27	0,28	0,08	0,24	5,15
Al _o	(g/kg)	0,60	0,58	0,52	0,42	1,54	0,47
Al _d	(g/kg)	1,21	1,18	1,05	0,68	3,40	0,40
Al _o /Al _d		0,49	0,49	0,49	0,61	0,45	1,17
Mn _o	(g/kg)	0,51	0,51	0,37	0,06	0,14	0,01
Mn _d	(g/kg)	1,34	1,43	0,94	0,18	0,45	0,01
Mn _o /Mn _d		0,38	0,36	0,39	0,34	0,31	0,43
C_{ges}	(%)	1,52	0,94	0,52	0,09	2,67	
C_{carb}	(%)	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	
C_{org}	(%)	1,52	0,94	0,52	0,09	2,67	0,02
OS	(C_{org} x 1,72)	2,61	1,61	0,89	0,16	4,60	0,03

Die Feldversuche und ein Teil der Laborversuche fanden auf einem - im weiteren **CEZ Boden**¹¹ genannten - ehemals landwirtschaftlich genutzten Boden statt, der ausführlich in Kapitel 4.1.1 auf Seite 41 beschrieben wird. Für die Versuche unter Laborbedingungen wurde in zwei Exkursionen im September 2016, sowie im Mai 2017 ca. 40 kg Bodenmaterial aus einer Tiefe von ca. 30 cm entnommen. Da größere Mengen des Oberbodens für einen Transport aus der Sperrzone heraus zu stark kontaminiert sind, wurden hiervon jeweils nur kleinere Mengen genommen (insgesamt ca 500g). Ober- und Unterboden wurden nach der Ankunft im Labor luftgetrocknet und miteinander homogen vermischt.

Von unserem Projektpartner VKTA stand ein - im weiteren **VKTA Boden** genannter - Sandboden vom Standort des ehemaligen Forschungsreaktors Dresden-Rossendorf (siehe Abb. 17) zur Verfügung.

Für die Pflanzen-, sowie die Sorptionsexperimente wurde durch den VKTA in Zusammenarbeit mit dem HZDR unkontaminierter Boden aus etwa 1-2 m Tiefe vom Rand der Baugrube, sowie vom ehemaligen Entwässerungsgraben entnommen (siehe Abb. 18). Dieser Boden wurde luftgetrocknet, gesiebt (5 mm), homogenisiert und in Eimer verpackt. Ein Teil des Bodens wurde im Anschluss in den luftdicht verschlossenen Eimern durch die Synergy Health Radeberg GmbH gammasterilisiert (⁶⁰Co-Quelle; 40 kGy).

¹¹CEZ steht für Chernobyl Exclusion Zone



Abbildung 17 – Baugrube unterhalb des ehemaligen Forschungsreaktors Dresden-Rossendorf



Abbildung 18 – Probenahmeorte der unkontaminierten VKTA Bodenproben. Links: Ein ehemaliger Entwässerungsgraben des Reaktors. Rechts: Zwei Beprobungsorte in etwa 1 und 2 m Tiefe am Rand der Baugrube

Des Weiteren wurde durch den VKTA ein Fass eines mit $14,4 \text{ Bq/g } ^{90}\text{Sr}$ kontaminierten Bodens zur Verfügung gestellt¹². Dieser Boden wurde beim Auskoffern der Baugrube im Anschluss an die Demontage des Reaktorgebäudes sichergestellt. Zur Historie der Kontamination lagen unserem Projektpartner VKTA folgende Informationen vor¹³:

Die Kontamination rührt aus einer Undichtigkeit des ehemaligen Lagers für flüssige radioaktive Abfälle in Rossendorf. Dabei handelte es sich um ein Lagerbecken aus Beton, welches über mehrere Jahrzehnte genutzt wurde. Während seiner Nutzung ist es an wenigen Stellen über winzige Risse zum Austritt von gelagertem Abwasser in den Kontrollbereich gekommen. Die Kontamination befand sich unter der Bodenplatte des daneben befindlichen Transportbereitstellungslagers und war bis zu ihrer Beseitigung überbaut. Die Kontamination stammt dabei aus tieferen Schichten von etwa 1 m - 4,25 m unter der Bodenplatte. Vor allem in der Tiefe 2 m bis 2,5 m. In diesem Bereich ist aus geologischer Geländekenntnis bereits Schichtenwasser vorhanden. Deshalb ist auch erklärbar, dass sich die beiden, eigentlich im Gleichgewicht befindlichen, Nuklide Cs-137 und Sr-90 getrennt hatten. Das Cs-137 hatte man in der darüber liegenden Schicht nachgewiesen. Bei dem Abwasser in den Lagerbecken handelte es sich um Abwasser aus der Forschung, welches vor der Ableitung gereinigt wurde.

Wann die Kontamination entstanden ist, ist nicht mehr nachvollziehbar. Sie fand sicherlich über einen längeren Zeitraum statt. Das Lager wurde in den 90er Jahren leer gemacht und danach wurde das Gelände bearbeitet (Rückbau und Freimessen, im Anschluss Rekultivierung). Der Bereich, in dem diese Kontamination war, war dabei nie bewachsen.

Zusätzlich wurde auf zwei Referenzböden (Refesols) des Fraunhofer IME-Systems zurückgegriffen.

¹²Siehe hierzu auch den Prüfbericht des VKTA 'Fass 1' im Anhang

¹³Die Informationen zur Historie der Kontamination in den folgenden zwei Absätzen wurden vom VKTA so zur Verfügung gestellt und stammen unverändert aus einer E-Mail Korrespondenz mit Mitarbeitern des VKTA.

Bei **Refesol 04A** (Ref04) handelt es sich um einen Gley-Podsol, der als schwach schluffiger Sand, mittel sauer, mittel humos charakterisiert werden kann. Dieser Boden wurde als Referenzboden für sämtliche Pflanz- und Sorptionsexperimente ausgewählt, da er von den zur Verfügung stehenden Referenzböden die größte Ähnlichkeit zum verwendeten CEZ-Boden aufweist. Für die sequentiellen Extraktionen an einzelnen Reaktorpartikeln, sowie am kontaminierten VKTA-Boden wurde hingegen auf einen Unterboden von **Refesol 01** (Braunerde) zurückgegriffen, da dieser die größtmögliche Ähnlichkeit zum VKTA Boden aufwies. Der vom IME vertriebene Oberboden wird von diesem als schwach lehmiger Sand, mittel sauer, sehr schwach humos beschrieben. Bei der verwendeten Charge handelte es sich jedoch um eine durch Mitarbeiter des Hauses genommene Probe aus einer Tiefe von unterhalb 80 cm, wodurch Sandgehalt und Armut an Austauscherplätzen noch einmal ausgeprägter sind, als vom IME im Mittel angegeben (siehe Tab. 12).

Im Rahmen der Klassifikation der IAEA (siehe Abschnitt. 2.2.1) gehören die Böden VKTA, Refesol 01 und Refesol 04 zur Gruppe der Sandböden, während der CEZ-Boden aufgrund seines hohen Schluffgehaltes den Lehm Böden zuzurechnen ist.

3.7 Verwendete Geiger Müller Zählrohre zur Identifizierung von Hot spots

Als Detektor wurden zwei „Pancake Mica Window-Alpha-Beta-Gamma Detector“ der Firma LND, Inc verwendet. Die wichtigsten Detektorparameter sind in Tabelle 13 zusammengefasst.

Tabelle 13 – Geräteparameter der verwendeten Detektoren (Herstellerangaben).

Gasfüllung	Ne + Halogen
Fenstermaterial	Glimmer
Fensterdicke	1,5-2,0 mg/cm ²
Effektiver Durchmesser	44,5 mm / 15 mm
Effektive Tiefe	12,7 mm
Arbeitsspannung	500V
maximale Plateauanstieg	10 % / 100V
Minimale Totzeit	40 μ s
γ -Sensitivität	60 cps/mr/hr

Bei der verwendeten Messelektronik handelte es sich um ein „ALPHAiX 3000“ der Firma Innova. Mit diesem wurde experimentell eine Auflösungszeit von $\tau = 985 \mu$ s erzielt. Datenblätter zu Detektor und Zähl Elektronik finden sich im Anhang.

3.8 Exkursionen in die Sperrzone von Tschernobyl

Im Rahmen des Projektes wurden insgesamt 5 Exkursionen in die Sperrzone von Tschernobyl durchgeführt. Eine weitere Exkursion vor Beginn des Projektes diente seiner Vorbereitung. Die Rahmendaten, sowie eine kurze Übersicht zu den durchgeführten Arbeiten und den daraus entstandenen wissenschaftlichen Daten finden sich in Tabelle 14.

Tabelle 14 – Exkursionen in die Sperrzone von Tschernobyl

Exkursion	von	bis	Arbeiten	Siehe Kapitel	Seite
0	12.06	16.06.15	Probenahme Bohrkerne	4.1.2	43
1	26.10.	31.10.16	Abstecken des Testfeldes Probenahme Boden	4.1.1	41
2	15.05.	19.05.17	Pflanzen Roggen/Kartoffeln	5.3	97
3	25.09.	29.09.17	Ernte Roggen und Kartoffel I Pflanzen Roggen II	5.3	97
4	22.05.	26.05.18	Ernte Roggen II Pflanzen Kartoffeln II	5.3	97
5	07.10	11.10.18	Ernte Kartoffeln II	5.3	97

Im Rahmen der Exkursionen 1-4 wurden Videotagebücher erstellt. Im Anhang (Abschnitt A) findet sich eine Liste mit Titeln und Linkadressen zu den einzelnen Videos.

4 Experimenteller Teil I Untersuchungen zur Radionuklidmigration in Böden

4.1 Radionuklidkontamination auf einem Testfeld in der Sperrzone von Tschernobyl

4.1.1 Das Testfeld

Das Testfeld in der Sperrzone von Tschernobyl wurde ca 5 km süd-südwestlich des havarierten Reaktorblocks angelegt und liegt - unmittelbar nördlich an das ehemalige Dorf Kopachi angrenzend - etwa 100m östlich der Straße von Tschernobyl nach Prypiat.

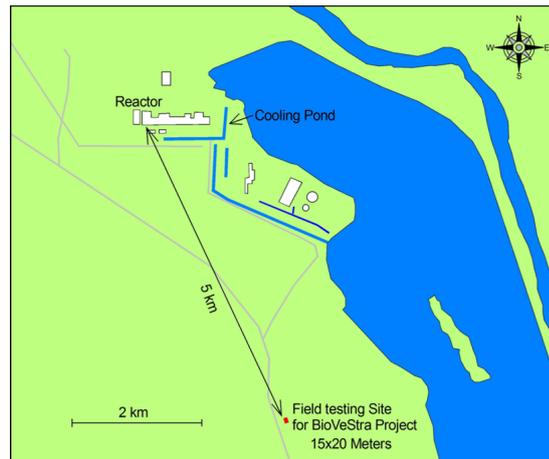


Abbildung 19 – Lage des BioVeStRa-Testfeldes in der Sperrzone von Chernobyl. Die Koordinaten lauten: 51°20'54" N; 30°07'41" O.

Durch die unmittelbare Nähe zum Reaktor ist eine Kontamination des Feldes sowohl mit partikulärem- als auch nicht-partikulärem Nuklideintrag gegeben, wobei hier eine primäre Belastung mit oxidierten Uranpartikel zu erwarten wäre, die sich bis zum Zeitpunkt der Nutzung durch das BioVeStRa-Projekt bereits weitgehend aufgelöst haben sollten (siehe hierzu auch Kapitel 2.4.3 auf Seite 26).

Zwar ließen sich im Rahmen der Standortauswahl keine Primärquellen mehr zur ursprünglichen Nutzung ausmachen, unser lokaler Partner vom SEAPGEM konnte in Gesprächen mit ehemaligen Bewohnern und Arbeitern der Sperrzone aber folgende Informationen über die Historie des Feldes zusammentragen:

Der Boden des Testfeldes war bis zur Reaktorhavarie 1986 Teil der kommunalen Kollektive und wurde landwirtschaftlich genutzt. Primär wurden in der Gegend auf vergleichbaren Böden Kartoffeln, Roggen (Sommer- und Wintervarietäten), Hafer und Lupine angebaut. Zur Nutzbarmachung der vornehmlich anzutreffenden Radenpodsole waren üblicherweise Kalkgaben erforderlich. Außerdem wurden zur Bodenverbesserung typischerweise 40-80 t/ha Mist in den Boden eingebracht [119].

Im Zuge der Evakuierungsmaßnahmen wurde das Feld, wie das gesamte Dorf Kopachi, aufgegeben. Während das Dorf vollständig zerstört und gezielt verschüttet wurde, blieb das Feld im Zuge der Liquidatoren-Arbeiten weitgehend unberührt. Des Weiteren wurde das Feld durch den nahegelegenen Fluss Prypiat seit 1986 nicht überschwemmt, weshalb die Kontaminationssituation als wahrscheinlich weitgehend ungestört angesehen werden kann. Allerdings bleibt anzumerken, dass durch die chaotische Lage im Nachgang der Reaktorexpllosion und der folgenden Liquidatoren-Arbeiten keine hundertprozentige Sicherheit zu der Historie auf dem Feld besteht.

In einer vorbereitenden Exkursion im Oktober 2016 wurden zunächst einige Bodenproben für die Durchführung von Laborexperimenten genommen und das eigentliche Testfeld in einem



Abbildung 20 – Zustand des Testfeldes Mai 2017. Gut zu erkennen ist das teilweise wieder Aufleben der Grasvegetation, welche zum Beginn jeder Pflanzperiode von Hand wieder soweit zurückgedrängt werden musste, damit sich die zu untersuchenden Nutzpflanzen ohne weitere Pflege etablieren konnten. Im Hintergrund das typische Auftreten einzelner junger Bäume

baumfreien¹⁴ Bereich von ca. 15 x 20 m abgesteckt. Dieses wurde im Frühjahr 2017 unter Regie des SEAPGEM durch lokale Arbeiter mit einem stabilen Holzzaun, als Schutz vor Wildtieren eingezäunt und grob von der Vegetation befreit. Hierfür kamen Schneidwerkzeuge zum Einsatz, die die Gräser direkt unterhalb der Grasnarbe durchtrennten. Dieses Verfahren der Feldvorbereitung wurde gewählt, da das Ausreißen der gesamten Wurzeln aufgrund der Kontaminationssituation und der damit verbundenen strahlenschutztechnischen Regulatorien der Sperrzone nicht möglich war und Pflügen zu einer unerwünschten Störung der Kontaminationsschichtung geführt hätte. Abb. 20 zeigt den Zustand des Testfeldes im Frühjahr 2017.

In der Exkursion im September 2017 wurde direkt neben dem Zaun des Testfeldes ein Loch von etwa 1,2 m für ein Bodenprofil ausgehoben (siehe Abb. 21).

Der Pflughorizont (Ap) ist deutlich erkennbar. Dieser reicht bis in gut dreißig Zentimeter Tiefe, was der maximalen Beprobungstiefe für alle Bodenproben entspricht. Die maximalen Wurzeltiefen der verwendeten Nutzpflanzen reichen bis 120/160 cm (Winterroggen) bzw 90 cm (Kartoffeln), der Hauptwurzelbereich beider Pflanzen liegt jedoch im Bereich bis 40 cm Tiefe. Unterhalb des Ap-Horizontes folgt ein deutlich lessivierter Eluvialhorizont (Ael). In ca 90 cm Tiefe findet sich ein Anreicherungshorizont der verlagerten Tone (Bt), an den sich weitere Auswaschungs- (ICv) und kleinere Anreicherungshorizonte anschließen.

Die für den Vorgang der Podsolierung charakteristischen Ah und Ae - Horizonte sind vermutlich durch die Bodenbearbeitung vermischt worden, wodurch sich auch die gräuliche, teilweise weiße Färbung des Oberbodens im Pflug-Horizont erklärt. Dies erschwert eine genaue bodenkundliche Klassifikation des Bodens. Es ist jedoch anzunehmen, dass es sich um einen für die Gegend typischen Rasenpodsol (Derno-Podsol, englisch: soddy podzolic soil) handelt¹⁵. Diese Klassifikation entspricht auch Literaturquellen, in denen explizit die Böden nahe Kopachi untersucht wurden [117].

Die Tatsache, dass es sich um ehemals landwirtschaftlich genutzte Böden handelt, hat weit-

¹⁴Das ehemals landwirtschaftlich genutzte Feld befindet sich in einem Übergang vom Kulturland zurück in ein für die Gegend typisches Wald. Während der Großteil der Fläche noch mit hohen Gräsern bewachsen ist, stehen vereinzelt bereits junge Bäume über die gesamte Fläche verteilt, deren Beseitigung einen überflüssig großen Aufwand bedeutet hätte.

¹⁵Der Begriff Rasenpodsol ist primär eine direkte Übersetzung des englischen Begriffes soddy-podzolic soil, der wiederum auf das russische Klassifikationssystem für Böden zurückgeht. Nach deutschem Klassifikationssystem würde man diesen Bodentyp einer stark lessivierten Braunerde mit (vermutlich) initialer Podsolierung der obersten Bodenzentimeter zu den Fahlerden und nicht zu den Podsolen zählen [138] [139]

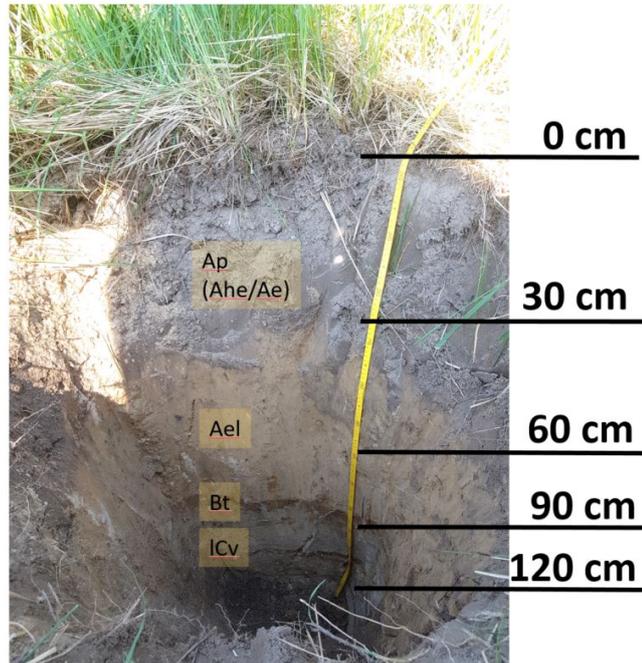


Abbildung 21 – Bodenprofil vom Testfeld. Ap = Durch Pflügen vermischter Mineralhorizont des Oberbodens, mutmaßlich aus humosem (Ahe) und nicht-humosem (Ae), sauergebleichtem (eluvialem) Oberboden. Darunter der deutlich tonverarmte (lessivierte) eluviale Ael Horizont, an den sich ein deutlich abgegrenzter Tonanreicherungshorizont im Unterboden (Bt) anschließt. Darunter Wechsel von weiteren lessivierten, verwitterten Horizonten des Unterbodens (ICv) und Tonanreicherungshorizonten. Für detailliertere Beschreibungen der Horizontcharakterisierung sei auf die bodenkundliche Literatur verwiesen [137].

reichende Folgen für die Radionuklidmobilität. Insbesondere liegt der Boden pH-Wert bei 5 (siehe Material und Methoden), was im Vergleich mit echten Podsolböden relativ neutral ist (typische pH-Werte von Podsolböden liegen eher im Bereich von pH 3-4, unter Wald auch niedriger [137]). Dies wurde möglicherweise auch durch bodenverbessernde Maßnahmen, wie beispielsweise Kalkung, im Zuge der landwirtschaftlichen Nutzung erreicht.

4.1.2 Vertikale und horizontale Verteilung von ^{137}Cs , ^{241}Am und ^{154}Eu

Im Juli 2015 wurden im Zuge der Standortauswahl für das BioVeStRa-Projekt vom später eingezäunten Testfeld drei Bohrkern im Abstand von etwa 12 m (siehe Abb. 22) zueinander genommen. Hierzu wurde zunächst die Oberflächenvegetation (Gras) von Hand entfernt und dann jeweils ein Plastikrohr von 30 cm Länge und 3,5 cm Durchmesser mit Hilfe einer Einschlaghülse in den Boden getrieben.

Eine längere Trockenperiode vor dem Zeitpunkt der Probenahme führte dazu, dass die entnommenen Bohrkern in den oberen 5-8 cm ebenfalls extrem trocken waren. Die Bohrkern wurden mit Endkappen aus Plastik verschlossen und im Labor zunächst tiefgefroren (siehe Abb. 23).

Die Bohrkern sollten daraufhin entsprechend eines im Haus etablierten Verfahrens zunächst in Scheiben von 2 cm zersägt werden, wobei das gefrorene Bodenwasser als Kleber dienen sollte, um ein Nachrutschen der tieferen Bodenschichten zu verhindern. Beim Zersägen des ersten Bohrkern zeigte sich jedoch, dass der Oberboden durch die lange Trockenperiode vor der Probenahme zu trocken für dieses Verfahren war, weshalb beim ersten Bohrkern die oberen 6 cm durch ständiges Nachrutschen nur gesammelt abgetrennt werden konnten. Auch zeigte sich, dass die Probenmenge aus 2 cm - Schnitten sowohl etwas zu gering für die verwendete Standard-Messgeometrie war, als auch zu Problemen mit der Nachweisgrenze des ^{241}Am in den tieferen Bodenschichten führte.

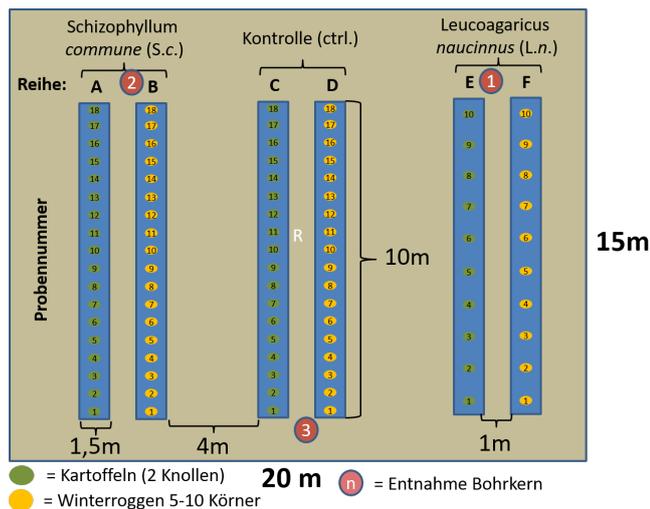


Abbildung 22 – Probenahmeorte der drei Bohrkerne auf dem eingezäunten Testfeld. Die einzelnen Reihen wurden in unterschiedlichen Exkursionen von Mai 2017 - Oktober 2018 jeweils bepflanzt und abgeerntet, siehe hierzu den entsprechenden Abschnitt 5.3 auf Seite 97.



Abbildung 23 – Tiefgefrorener Bohrkern. Die Endkappen wurden entfernt und zum Sägen durch Parafilm ersetzt.

Die folgenden zwei Bohrkernproben wurden daher abweichend vor dem Zersägen vorsichtig im oberen Bereich mit einigen Millilitern destilliertem Wasser befeuchtet und abermals eingefroren, um die oberen Schichten vor dem Zersägen zu fixieren. Des Weiteren wurde die Scheibendicke auf 2,5 cm erhöht, was die Probleme mit der passenden Probengeometrie löste und die Nachweisbarkeit der untersuchten Nuklide pro Probe leicht verbesserte.

Das Probenmaterial wurde anschließend bei 105°C bis zur Gewichtskonstanz (4-12h) getrocknet und gesiebt (< 2mm), wobei insgesamt nur sehr geringe Mengen Pflanzenmaterial und sehr wenige kleine Steine von der weiteren Analyse ausgeschlossen wurden. Die gesiebte Fraktion wurde anschließend raumfüllend in Petrischalen aus Plastik eingewogen¹⁶. Die Proben wurden daraufhin mittels Top-Bottom Methode (siehe Abschnitt 3.3.5) quantifiziert.

In fast allen Proben und Tiefen konnten ¹³⁷Cs und ²⁴¹Am, sowie in den oberen Schichten noch ¹⁵⁴Eu (HWZ = 8,6 a) quantifiziert werden. Der Verlauf der Abnahme der Aktivitäten war für alle drei Nuklide relativ ähnlich, was insbesondere für den Vergleich von ¹³⁷Cs und ²⁴¹Am bereits in vorherigen Arbeiten beschrieben wurde [140]. Der ähnliche Aktivitätsverlauf von ¹⁵⁴Eu und ²⁴¹Am scheint aufgrund der Homologie naheliegend, ist allerdings in sofern etwas überraschend, als dass sich das Americium-Inventar im Boden - im Gegenteil zum ¹⁵⁴Eu - zunächst aus ²⁴¹Pu bilden muss, für welches auf vergleichbaren Böden eine um etwa 20 % ge-

¹⁶Für die 2,5 cm Querschnitte aus den Bohrkernen 2 und 3 war dies ohne Probleme mit den gekauften Standard-Petrischälchen möglich. Für Probe 1 mussten diese durch die hauseigene Werkstatt jeweils dünner geschliffen werden.

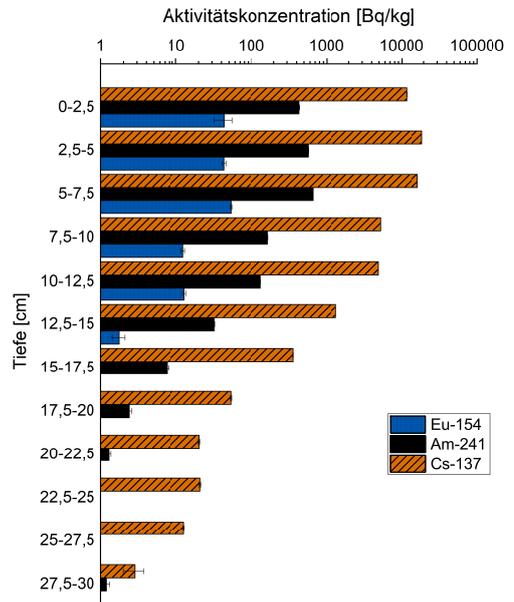
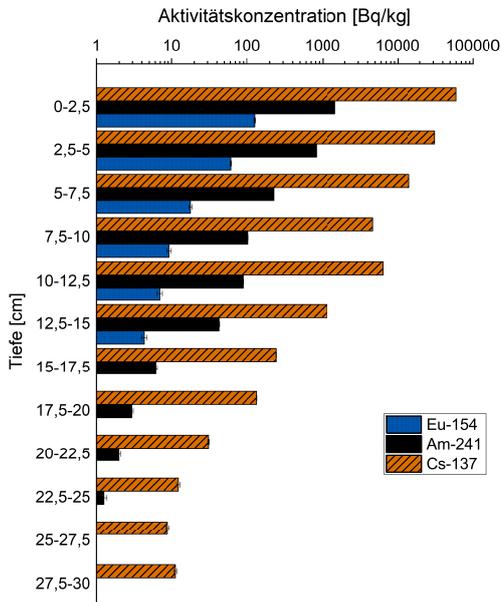
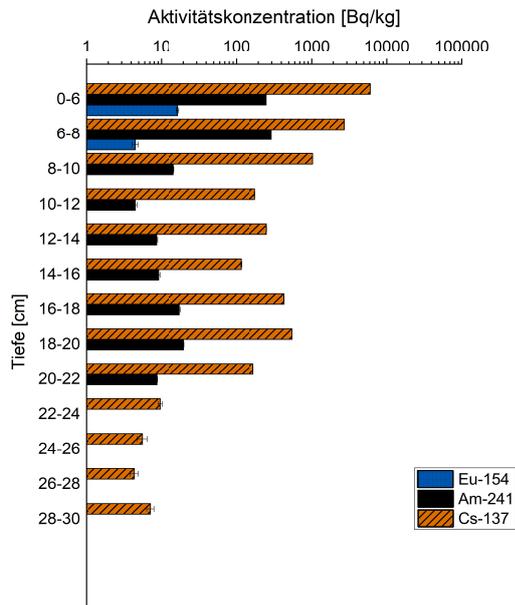


Abbildung 24 – Vertikaler Verlauf der Aktivitätskonzentrationen der drei gammaspektrometrisch erfassten Radionuklide in den Bohrkernen vom Testfeld bei Kopachi. oben: Probe 1. Links unten: Probe 2. Rechts unten: Probe 3. Bei Probe 1 wurden abweichend die oberen 6 cm gemeinsam und dann der weitere Verlauf in 2cm Querschnitten analysiert. Referenzdatum für die Aktivitäten ist der Tag der Probenahme: 14.06.2015

ringere vertikale Transportgeschwindigkeit im Vergleich zum Americium gefunden wurde [140]. Während nachweisbare Mengen der Nuklide auch in tiefere Schichten migriert sind, gilt für alle drei Nuklide, dass sich der bei weitem größte Teil des Gesamtinventars noch in den oberen 5 bis 10 Zentimetern des Bodens befindet. Ein Teil des vertikalen Transportes von ^{137}Cs und ^{241}Am (bzw. ^{241}Pu) könnte zudem auch kolloidal stattgefunden haben [141], was den Transport dieser eigentlich sehr immobilen Nuklide auch in größere Tiefen erklären würde.

Alle drei Bohrproben weisen Abweichungen von einem idealisierten, monotonen Verlauf der vertikalen Verteilung auf, der bei völlig ungestörten Modellböden zu erwarten wäre. Dies ist insbesondere bei Bohrkern 1 der Fall, wo in etwa 20 Zentimeter Tiefe ein zweites Maximum der Cs und Am- Aktivitäten auftritt. Bohrkern 3 weist einen überraschend konstant hohen Aktivitätslevel in den ersten drei untersuchten Querschnitten auf, dessen Maximum im Bereich 5-7,5 cm liegt.

Zwar reicht die Stichprobenmenge kaum aus, um sich ein umfassendes Bild der vertikalen Verteilung zu machen, es kann jedoch als sicher gelten, dass trotz der vermuteten Ungestörtheit des Versuchsfeldes durch menschliche Aktivität, in den vergangenen dreißig Jahren seit der Freisetzung kleinere Störungen der Nuklidverteilung im Boden eher die Regel, als die Ausnahme sind. Gründe für diese Störungen können sowohl pedologischer (z.B. preferential flow), als auch biologischer Natur (Bioturbation) sein.

Auffällig an der Analyse der drei Bohrkern ist insbesondere die große Inhomogenität, was das Gesamtinventar angeht. Tabelle 15 fasst die gefundenen Gesamtaktivitäten der drei Bohrkern, bezogen auf den Durchmesser der Bohrkern zusammen.

Tabelle 15 – Flächenbezogene Aktivität der drei Bohrkern. StAbw = Einfache Standardabweichung. Referenzdatum: 14.06.2015

Bohrkern Nr.	Cs $\frac{\text{kBq}}{\text{m}^2} \left(\frac{\text{Ci}}{\text{km}^2} \right)$	Am $\frac{\text{kBq}}{\text{m}^2} \left(\frac{\text{Ci}}{\text{km}^2} \right)$	Eu $\frac{\text{kBq}}{\text{m}^2} \left(\frac{\text{Ci}}{\text{km}^2} \right)$
1	253 (7)	14 (0,4)	0,5 (0,01)
2	1894 (51)	43 (1,2)	3,6 (0,10)
3	1502 (41)	52 (1,4)	4,0 (0,11)
Mittelwert	1216 (33)	36 (1,0)	2,7 (0,07)
StAbw	700 (19)	16 (0,4)	1,6 (0,04)

Die Ergebnisse des (mittleren) flächenbezogenen Gesamtinventars sind grundsätzlich im Einklang mit den Erwartungen aus der Literatur. So befindet sich das Testfeld am südlichen Rand des Gebietes, welches bei der ursprünglichen Kartierung der Sperrzone [142] als Bereich mit der höchsten Cs-Kontamination von $A_{Cs137} > 40 \frac{\text{Ci}}{\text{km}^2}$ definiert wurde, was zu der gefundenen mittleren Kontamination von $A_{Cs137} = 33 \frac{\text{Ci}}{\text{km}^2}$ im zeitlichen Abstand von knapp einer Halbwertszeit gut passt.

Im Verlauf des Projektes wurden mit jeder Ernte weitere Bodenproben aus dem Wurzelbereich der geernteten Pflanzen genommen. In der Exkursion im Mai 2017 wurden für jeweils 5 Exemplare jeder Pflanzreihe individuelle Bodenproben genommen. Um einen groben, eher qualitativen Überblick über die Inhomogenität der Kontamination zu bekommen, wurde aus diesen Datenpunkten eine Matrix für jedes der drei untersuchten Nuklide erstellt und die fehlenden Punkte durch eine Spline-Funktion interpoliert. Abb. 25 gibt ein grobes Bild darüber, wie inhomogen diese drei Nuklide auf dem Testfeld verteilt vorkommen.

Die Analyse einer größeren Datenmenge zeigt deutlich die Inhomogenität der Kontamination. Sie erlaubt zudem Rückschlüsse auf den wesentlichen Kontaminationspfad für die untersuchten Radionuklide. Während sich die lokalen Maxima und Minima aller drei Nuklide ähneln, sind diese im Fall des Americiums und Europiums relativ gesehen wesentlich stärker ausgeprägt als beim Cäsium. Hier spiegelt sich die Tatsache wieder, dass die schwer flüchtigen Radionuklide Americium und Europium nahezu ausschließlich brennstoff-partikulär aus dem Reaktor ausgetreten sind und sich folglich in Form kleiner 'Hot spots' auf den Feldern der unmittelbaren Umgebung verteilten, während sich Cäsium zusätzlich in rekondensierter Form, vergleichsweise fein über die Umgebung verteilt ausgebreitet hat.

Des Weiteren zeigt sich, dass es in den vergangenen dreißig Jahren, in denen die Partikel den Auflösungs- und Diffusionsprozessen des Bodens ausgesetzt waren, noch nicht zu einer

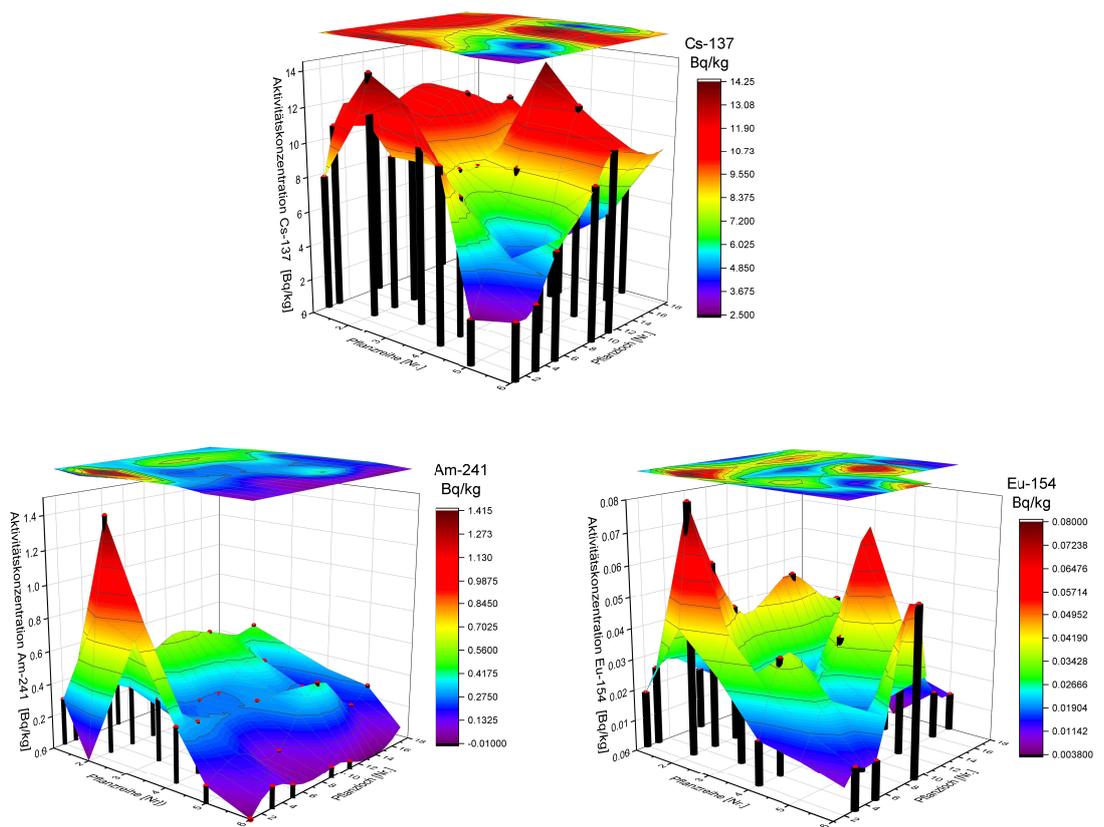


Abbildung 25 – Verteilung von ^{137}Cs (oben), ^{241}Am (unten, links) und ^{154}Eu (unten, rechts) im Oberboden (obere 0-4 cm) des Testfeldes von Kopachi. Der dargestellte Bereich entspricht einer räumlichen Ausdehnung von etwa 16 x 10 m. Es wurden insgesamt 30 Punkte des Testfeldes beprobt auf deren Messwerten (schwarzer Balken + roter Punkt) die farblichen Abbildungen basieren. Die weiteren, nicht beprobten Stellen des Feldes wurden durch eine Spline-Funktion durch das Programm Origin 2019 interpoliert.

Equilibrierung der Verteilung gekommen ist, was insbesondere für die vorwiegend partikulär eingetragenen Radionuklide gilt. Dies überrascht vor dem Hintergrund der geringen Mobilität aller drei gamma-spektrometrisch untersuchter Nuklide und der bereits in der Vergangenheit beschriebenen, geringen Migrationsrate der Nuklide [143] nicht und eine weitgehende Homogenisierung der Verteilung ist auch für die nächsten Jahrzehnte kaum zu erwarten.

Aufgrund der gammaspektrometrischen Ergebnisse zur Verteilung allein lässt sich noch kein weitgehender Rückschluss auf den Fortschritt der Partikelauflösung im Testfeld ziehen. Denkbar wäre, dass bereits das gesamte partikulär eingetragene Nuklidinventar - sei es durch leaching, oder Auflösung der Partikel - in die Bodenmatrix übergegangen ist und dort aufgrund ihrer chemischen Eigenschaften stark immobilisiert wurde.

Um ein genaueres Bild über die Mobilität der untersuchten Radionuklide zu erlangen, wurden daher im Anschluss an die gammaspektrometrischen Untersuchungen des unbehandelten Bodens umfangreiche Extraktionsversuche durchgeführt.

4.1.3 Sequentielle Extraktionen nach Zeien und Brümmer

Um die Bindungsstärke der beiden in der Gegenwart und den kommenden Jahrzehnten dosisrelevantesten Radionuklide in der Sperrzone von Tschernobyl ^{137}Cs und ^{90}Sr im Hinblick auf ihre aktuelle und potentielle Bioverfügbarkeit bewerten zu können, wurden sequentielle Extraktionen zunächst an den bereits gammaspektrometrisch untersuchten Bohrkernen durchgeführt. Hierfür wurde der Boden der 2-2,5 cm Schnitte aller drei Bohrkern zu jeweils 10 cm Schichten (0-10 cm; 10-20 cm; 20-30 cm) vereinigt und für 4,5 Std auf dem Überkopfschüttler homogenisiert.

Als Extraktionsverfahren wurde ein sequentielles Schema nach Zeien und Brümmer [78] gewählt, welches für die Untersuchung einer großen Bandbreite an Schwermetallen in Böden entwickelt wurde. Tabelle 16 listet die verwendeten Extraktionsmittel, sowie die hieraus abgeleitete chemische Bindung an der Bodenmatrix auf.

Tabelle 16 – Extraktionsschema nach Zeien und Brümmer

Fraktion	Chemische Bindung	Extraktionsmittel	pH
1	mobil	1M NH_4NO_3	4,5
2	leicht nachlieferbar	1M NH_4OAc	6,0
3	An Mn-Oxide gebunden	0,1M $\text{NH}_4\text{OOH}-\text{HCl}$ 1M NH_4OAc	6,0
4	An organische Substanz gebunden	0,2M NH_4-EDTA	4,6
5	An schlecht kristalline Eisen-Oxide gebunden	0,1M $\text{NH}_4-\text{Oxalat}$	3,25
6	An gut kristalline Eisen-Oxide gebunden	0,1 M Ascorbinsäure 0,2 M Oxalsäure	3,25
7	Residual	konz. HClO_4 konz. HNO_3	< 1

Das Verfahren versucht über die Extraktion mit sukzessive stärker werdenden Extraktionsmitteln die Analyten mit den bodenkundlich wichtigsten Austauschphasen in einer großen Bandbreite von Böden zu assoziieren. Die Summe der ersten zwei Fraktionen (mobil + leicht nachlieferbar) wird hierbei häufig mit dem Begriff der „bioverfügbaren Fraktion“ gleichgesetzt, da die Extraktionskraft der Summe in etwa der typischen Extraktionskraft von Pflanzenwurzeln ähnelt.

Im letzten Extraktionsschritt (Residualfraktion, $\text{HNO}_3 + \text{HClO}_4$) wird das Bodenskelett nicht vollständig aufgelöst - es verbleibt ein Rest von Quarz und anderer hoch kristalliner Silikate. Bei der Entwicklung des Verfahrens konnte jedoch gezeigt werden, dass das verbleibende Bodenskelett keine wesentliche Rolle in Bezug auf das Schwermetallinventar mehr spielt, weshalb hier auf einen aufwändigen Aufschluss der gut kristallinen Silikate verzichtet wird.



Abbildung 26 – Gewonnene Extraktionslösungen nach Zeien und Brümmer. Es wurden aus insgesamt 10 Proben (Je 3 Tiefen der drei Bohrkerne + Blindprobe) jeweils 7 Fraktionen extrahiert.

Die Extraktion wurde entsprechend der Analysenvorschrift mit jeweils 2g Bodeneinwaage durchgeführt, parallel durchlief eine Blindprobe ohne jede Bodeneinwaage alle Analyseschritte. Durch die anschließende Auftrennung in jeweils 7 Fraktionen wurden die Aktivitäten von ^{241}Am und ^{154}Eu so stark verdünnt bzw aufgeteilt, dass sie in den resultierenden Messproben jeweils nicht mehr nachweisbar waren.

Abbildung 26 zeigt die gewonnenen Proben, die in den folgenden zwei Abschnitten auf ihre Gehalte an Cäsium und Strontium untersucht werden.

Für weitere Details zur Durchführung der sequentiellen Extraktion, sowie zur Quantifizierung des stabilen Strontiums in Abschnitt 4.1.5 siehe auch in der Forschungsarbeit „*Untersuchung zur Bindungsform von stabilem Strontium in Bodenprofilen aus der Tschernobylsperrzone*“ von Vivian Pottgiesser (geb.Schulte) [144].

4.1.4 Bindungsstärke von ^{137}Cs

Die Extrakte der Zeien und Brümmer Extraktion wurden zunächst gammaspektrometrisch vermessen (Detektoren 1, 2 u. 3) und der ^{137}Cs -Gehalt relativ zu einem jeweils füllhöhen-äquivalenten Standard bekannter Aktivität quantifiziert (Geometrie-Standard Methode). Abb. 27 fasst die Ergebnisse bezogen auf die ursprüngliche Bodeneinwaage von 2g pro Probe zusammen.

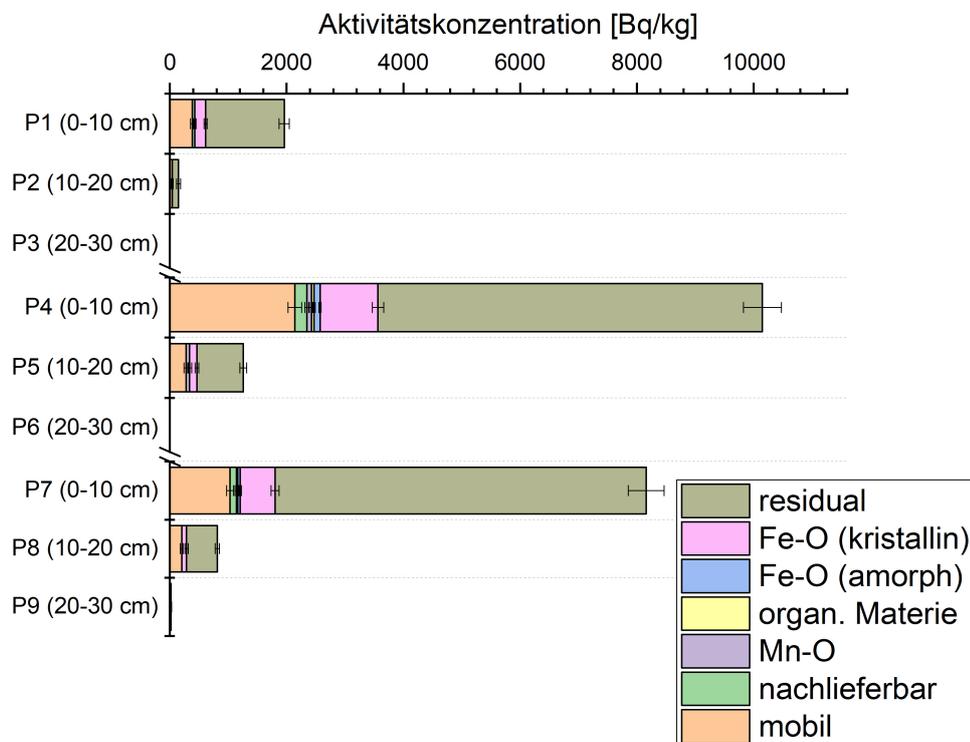


Abbildung 27 – Tiefenabhängige ^{137}Cs Verteilung nach dem Zeien und Brümmer Schema (1989) [78].

Beim Betrachten der absoluten Aktivitätskonzentrationen fällt zunächst eine recht große Inhomogenität zwischen den drei Bohrkernen auf. Diese Inhomogenität betrifft zudem alle quantifizierbaren Fraktionen (1,2,6 u. 7). Alle drei Bohrkern zeigen eine recht ähnliche relative Verteilung des ^{137}Cs Gehaltes über die verschiedenen Fraktionen und Tiefen, wobei die Aktivität der untersten untersuchten Bodentiefe (20-30 cm) keine quantifizierbaren Aktivitäten mehr aufwies. Die ähnliche Verteilung lässt sich insbesondere beim Vergleich der relativen Gehalte in den Fraktionen für die einzelnen Proben erkennen, siehe Abb. 28.

Für die oberen 20 cm lässt sich feststellen, dass sich konstant etwa 70% des ^{137}Cs in der Residualfraktion wiederfinden, während ca. 20 % bioverfügbar (Fraktionen 1 +2) vorliegen. Weitere 10 % finden sich in der sechsten Fraktion wieder, welche nach Vorschlag des Zeien und Brümmer Schemas mit der Bindung an kristalline Eisenoxid-Phasen assoziiert ist.

Die Interpretation der gefundenen Aktivitäten in den Fraktionen 6 und 7 ist aufgrund einer Reihe von Besonderheiten der Bindung von Radiocäsium im vorliegenden Fall kompliziert, da hier drei verschiedene chemische Bindungsformen verteilt auf die beiden Fraktionen in Betracht kommen. So sollte sich noch immer **partikulär gebundenes** ^{137}Cs insbesondere in Fraktion 7, im Falle von bereits weitgehend oxidierten und amorphen Partikeln möglicherweise aber auch teilweise in Fraktion 6 wiederfinden lassen. Gleiches gilt für ^{137}Cs , welches **an Tonpartikel gebunden** ist. Auch hier ist zu erwarten, dass insbesondere in (kollabierten) FES fixiertes Cs erst in Fraktion 7 extrahiert werden kann, während ein Teil des an weniger starke Sorptionsplätze der Tone gebundenes Cs bereits in Fraktion 6 extrahiert worden sein könnte. Auch die Bindung an **kristalline Eisenoxide** ist aufgrund der Ergebnisse nicht auszuschließen.

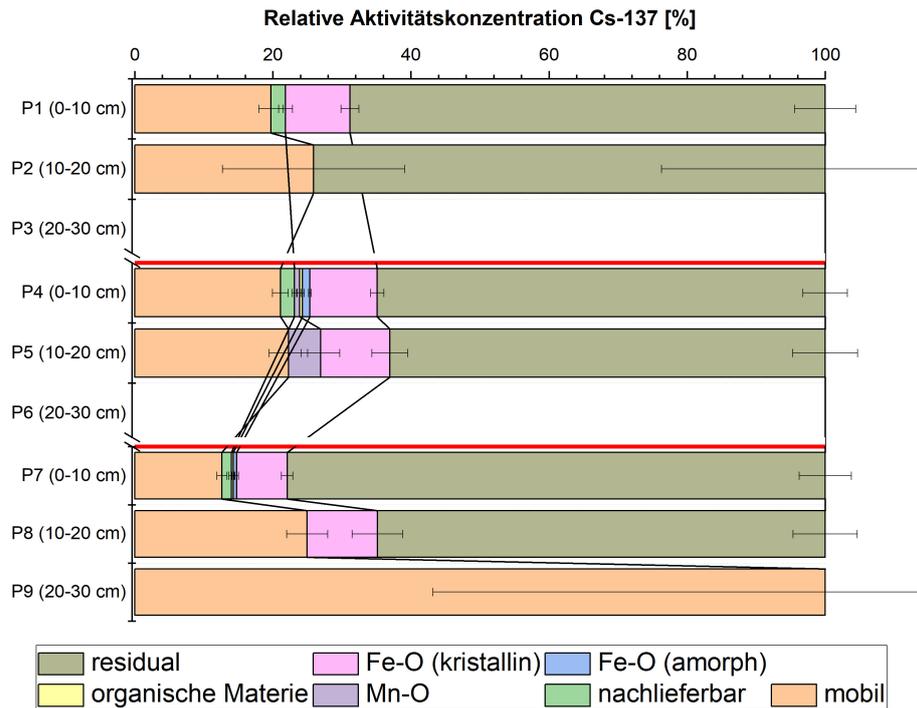


Abbildung 28 – Relative Verteilung von Cs-137 in den sequentiellen Extrakten (Z u B) der Bohrkern

Insofern lässt sich aus den Ergebnissen kein Rückschluss auf den Anteil an partikulär gebundenem (und damit potentiell noch freizusetzendem) Radiocäsium ziehen. Um dies zu tun, wäre ein Extraktionsverfahren erforderlich, welches stark genug ist, die Uranoxide quantitativ aufzulösen, ohne durch einen extrem niedrigen pH auch das Cäsium von seinen sehr starken Sorptionsplätzen in den Tonmineralen zu verdrängen.

Vergleicht man das insgesamt in den Extrakten wiedergefundene Inventar an ^{137}Cs mit den gemittelten Gesamtgehalten aus den korrespondierenden Bohrkernproben, so stellt man fest, dass nur gut die Hälfte der zu erwartenden ^{137}Cs Aktivität in den Extrakten wiedergefunden wurde (siehe Tab. 17).

Tabelle 17 – Wiederfindung des ^{137}Cs in den Extrakten.

Bohrkern Nr	Tiefe [cm]	Mittlerer Gehalt im Boden [Bq/g] (\pm Bq/g)	Gesamtgehalt in den Extrakten [Bq/g] (\pm Bq/g)	Wiederfindung [%] (\pm %)
1	0-10	3293 (5,3)	1959 (167)	59,5 (5)
1	10-20	307 (2,3)	148 (55)	48,2 (18)
1	20-30	39 (0,7)	-	-
2	0-10	27495 (22,4)	10149 (654)	36,9 (2)
2	10-20	1964 (19,2)	1256 (161)	64,0 (9)
2	20-30	16 (0,6)	-	-
3	0-10	13013 (43,2)	8158 (494)	62,7 (4)
3	10-20	1667 (5,4)	815 (92)	49 (7)
3	20-30	14 (0,6)	21 (12)	150 (88)
Durchschnitt (ohne 20-30cm)	0-20			53,4

Auch hier lässt sich anhand der Ergebnisse allein nicht sicher sagen, welcher Bindungsform die nicht wiedergefundene Aktivität zuzuordnen ist. Leider stand das Bodenskelett der einzelnen

Proben, welches nach der Abtrennung der Residualfraktion verbleibt, nicht mehr für eine weitere Untersuchung zur Verfügung. Zwar konnte auf vereinzelt noch vorhandenen Filterpapieren mit Bodenskelett noch ^{137}Cs nachgewiesen, aber nicht mehr quantifiziert werden.

4.1.5 Vertikale Migration und Bindungsform von Radiostrontium

Die Extrakte der 10 cm Schnitte der drei Bohrkerne wurden zunächst mittels ICP-MS auf die Verteilung von stabilem Strontium (ermittelt über den Massenanteil des häufigsten stabilen Isotops ^{88}Sr , natürliche Häufigkeit: 82,58 %) untersucht. Abb 29 zeigt die Verteilung von stabilem Strontium über die Fraktionen und neun untersuchten Proben.

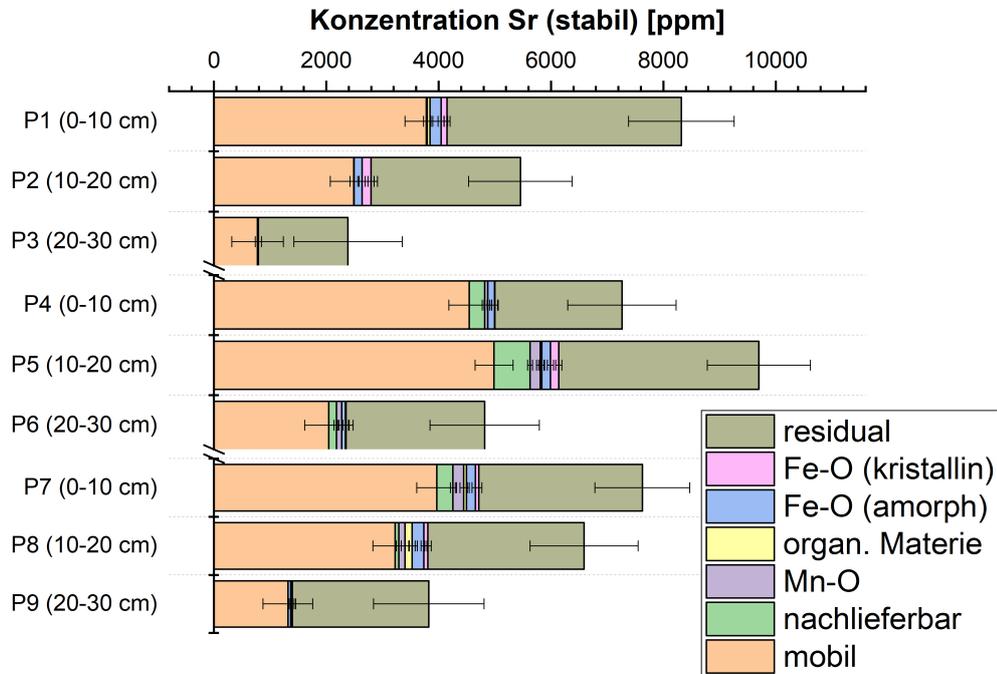


Abbildung 29 – Absolute Verteilung des stabilen Sr in den sequentiellen Extrakten (Zeien & Brümmer) der Bohrkerne.

Es zeigte sich dabei, dass stabiles Strontium in den untersuchten Böden in erster Linie in zwei chemischen Bindungen vorkommt: mobil(/bioverfügbar) und residual. Nur ein verschwindend kleinerer Anteil ist der an organischer Materie fixierten Fraktion gemäß Zeien & Brümmer zuzuordnen. Bei dieser Definition ist allerdings zu beachten, dass schwach an organische Materie gebundenes Sr bereits in den Fraktionen 1 und 2 extrahiert wird und lediglich vergleichsweise stark gebundenes Sr in der Zeien & Brümmer Extraktion auch tatsächlich in Fraktion 4 gefunden wird.

Ein signifikanter Anteil (fast 40 %) des Gesamtinventars an stabilem Strontium ist tatsächlich extrem stark fixiert (Residualfraktion). Bei diesem Anteil handelt es sich vermutlich in erster Linie um fest bei der Entstehung der Ursprungsgesteine in das Kristallgitter der Plagioklas-Feldspate eingebautes Strontium, welches hier, homolog zum ebenfalls eingebauten Calcium, feste Gitterplätze zum Ausgleich der Aluminium-induzierten Gitterladung besetzt. Dieser Anteil steht insofern vermutlich auf nicht-geologischen Zeitskalen in keinem Gleichgewicht mit dem restlichen Inventar an stabilem und radioaktivem Sr (siehe hierzu z.B. auch die Isotopengeochemie $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ zur Datierung von Gesteinen [145] [146]).

Die geringere Mobilität der residual gebundenen Fraktion zeigt sich auch, wenn man den vertikalen Verlauf des stabilen Strontiums in den beiden Fraktionen vergleicht (siehe Abb. 30).

Die hohen relativen Unsicherheiten bezüglich der Gehalte an residual gebundenem Strontium wurden durch einen ungünstig hohen Blindwert in dem verwendeten (analytisch reinen) Säuregemisch verursacht. Für eine Wiederholung des Versuches wäre daher die Verwendung einer noch höheren Qualität (subboiled) dringend zu empfehlen. Trotz der vorhandenen messtechnischen Unsicherheiten lässt sich feststellen, dass der Massenanteil an mobilem, stabilem

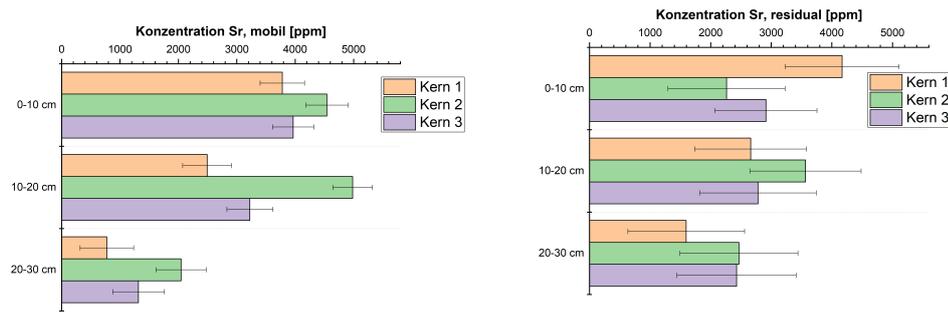


Abbildung 30 – Vertikale Migration von stabilem Strontium. Links: mobiles Strontium, Rechts: Immobiles (residual gebundenes) Strontium. Die angegebenen Unsicherheiten entsprechend einem Vertrauensbereich mit einem Konfidenzniveau von 95 %, gemäß DIN 32645.

Strontium mit zunehmender Tiefe deutlich stärker abnimmt, während dies für den Anteil an residual gebundenem Strontium nur geringfügig festzustellen ist.

Da sich die untersuchten 30 cm Bodentiefe innerhalb des Pflughorizontes befinden, ist nicht davon auszugehen, dass der erhöhte Gehalt an mobilem Strontium in den oberen Schichten durch einen oberflächlichen Eintrag von Strontium (etwa durch Kalkung) entstanden ist. Vielmehr liegt hier die Vermutung nahe, dass mobiles Strontium innerhalb des Wurzelhorizonts der hier seit dem Unfall wachsenden Gräser stetig recycelt wird, wodurch ein Auswaschen in das Grundwasser effektiv verhindert wird.

Die wesentliche radioökologische Fragestellung, die sich an die Untersuchung der Gehalte von stabilem Strontium anschließt, ist, ob und inwieweit sich das Radiostrontium der etablierten Gleichgewichtseinstellung des stabilen Strontiums nach dreißig Jahren im Boden angenähert hat. Hierzu wurde ein Verfahren entwickelt, um ^{90}Sr aus den Zeien & Brümmer Extrakten zu isolieren und mittels Flüssigszintillationspektrometrie zu quantifizieren.

Hierzu wurden die Zeien & Brümmer-Extrakte jeweils mit einer bekannten Menge ^{85}Sr als Wiederfindungsstandard versetzt, durch Eindampfen und vorsichtige Pyrolyse der verwendeten Ammonium-Salze von ihrer hohen - für die anschließende Abtrennung des ^{90}Sr störenden - Salzfracht befreit und ^{90}Sr unter Verwendung des selektiven Extraktionschromatographie-Harzes Sr-Resin der Firma Triskem abgetrennt. Für eine detailliertere Beschreibung der Probenvorbereitung und des Eindampfvorgangs, siehe Masterarbeit von Mark Viebrock 2018 [147].

In Abb. 31 sind die Ergebnisse der absoluten Gehalte an ^{90}Sr in den drei Bohrkernen für die drei Beprobungstiefen und sieben Extraktionsschritte zusammengefasst.

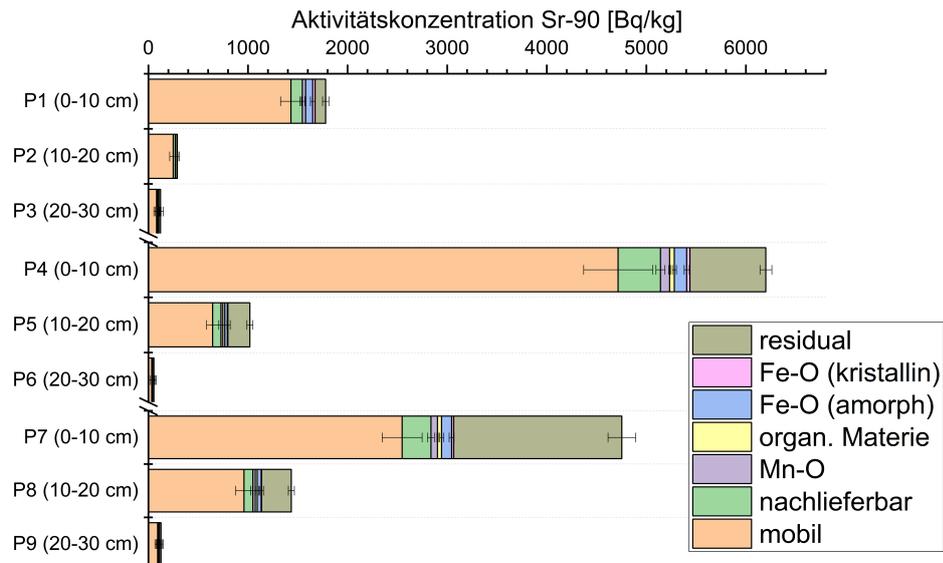


Abbildung 31 – Sr-90 in den sequentiellen Extrakten (Z u B) der Bohrkerne (absolut). Kern 1 = P1-3, Kern 2 = P4-6, Kern 3 = P7-9.

Es zeigt sich bei der Analyse des Gesamtgehaltes an ^{90}Sr in den drei Proben zunächst ein ähnliches Bild der Verteilung wie im Fall des ^{137}Cs (Abb. 27). So finden sich in den Proben mit der höchsten ^{137}Cs Aktivität auch die höchsten ^{90}Sr Aktivitäten. Normiert man die Gesamtgehalte stellt man jedoch auch Unterschiede in der vertikalen Verteilung des Gesamtinventars fest (siehe Abb. 32).

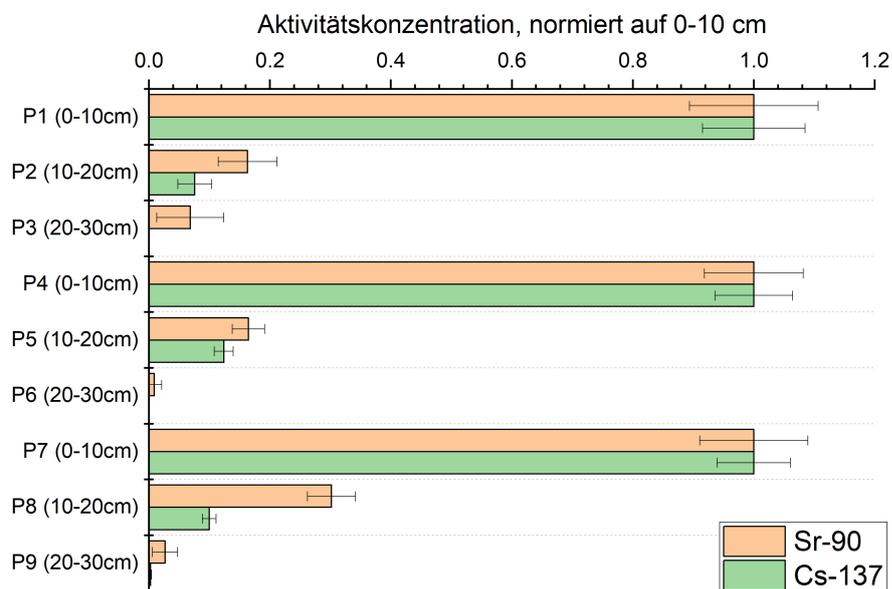


Abbildung 32 – Vergleich der relativen Verteilung der Aktivitätskonzentrationen von ^{137}Cs und ^{90}Sr in den untersuchten Bohrkerne, jeweils normiert auf die Aktivitätskonzentration der oberen 10 cm.

Diese Erkenntnis steht im Einklang mit der Literatur, da die stärkere Mobilität des Strontiums in der Umwelt zu verstärkter Migration führen sollte. Die Inhomogenität der Aktivitätsverteilung auf dem Testfeld ist jedoch auch im Fall des Strontiums dreißig Jahre nach dem Unfall noch immer recht hoch und die Verteilung der Aktivität über das Testfeld von einer Gleichgewichtssituation weit entfernt.

Aus der relativen Verteilung der Strontiumaktivität auf die verschiedenen Fraktionen (siehe

Abb. 33) lassen sich belastbarere Schlüsse zur tatsächlichen chemischen Bindung ziehen, zumal hier kein Mechanismus zur starken Fixierung des Sr an die Bodenphase (analog zu den FES für das Cs) bekannt ist.

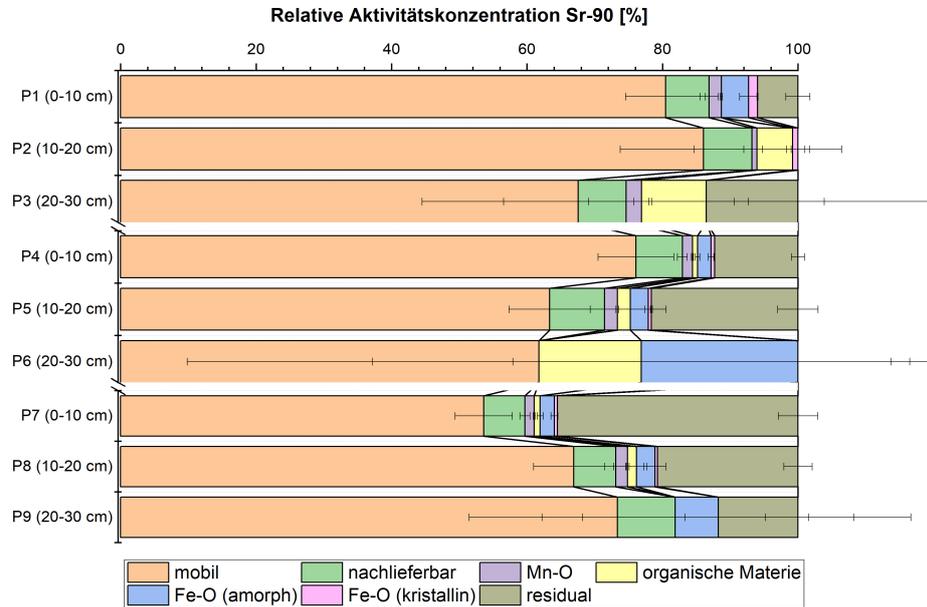


Abbildung 33 – Sr-90 in den sequentiellen Extrakten (Z u B) der Bohrkerne (relativ)

Es wurden 68% ($\pm 10\%$) des ^{90}Sr in der mobilen Phase und weitere 7% ($\pm 0,9\%$) in der leicht nachlieferbaren Fraktion gefunden. Damit wurden 75% ($\pm 11\%$) des ^{90}Sr als zum Zeitpunkt der Probenahme als bioverfügbar identifiziert. Das Aktivitätsverhältnis von Fraktion 1 (mobil) und Fraktion 2 (nachlieferbar) war dabei in allen Proben relativ konstant, was für ein eingestelltes Gleichgewicht zwischen diesen Phasen spricht. Eine solche - auf ein eingestelltes chemisches Gleichgewicht mit der mobilen Phase hindeutendes - starke Korrelation konnte auch für die Fraktionen 3-6 festgestellt werden (siehe Abb. 34), wobei die Stärke der Korrelation mit zunehmender Extraktionsstärke der Extraktion abnimmt.

Die Fraktionen 3-6 sind für das ^{90}Sr -Gesamtinventar im vorliegenden Boden zunächst von untergeordneter Bedeutung. In drei der Proben (P1, P6 und P9) wurde in Fraktion 6 zwar ein vergleichsweise hoher Anteil (5 – 20%) des Inventars gefunden, die Proben P6 und P9 stammen jedoch aus den unteren 20-30 cm wo aufgrund der geringen noch gefundenen Aktivität die Gehalte in einigen Fraktionen unterhalb der Nachweisgrenze lagen, was die ohnehin unsicheren Ergebnisse in der relativen Darstellung zusätzlich verzerrt. Im Fall von P1 handelt es sich um einen belastbar signifikanten Anteil an ^{90}Sr in Fraktion 6, allerdings lässt sich auch im Fall des ^{90}Sr aufgrund der erhöhten Extraktionskraft dieser Fraktionen wiederum nicht ganz sicher differenzieren, ob es sich wirklich um eisen-gebundenes Inventar handelt, oder ob dieses aus einem bereits stark verwitterten Brennstoffpartikel stammt.

Insbesondere in der tiefsten untersuchten Schicht (20 - 30 cm) ließ sich in zwei von drei Bohrkerne ein im Vergleich zu den höheren Schichten deutlich erhöhter Anteil an organisch gebundenem Radiostrontium wiederfinden. Aufgrund der geringen gemessenen Aktivitäten in dieser Tiefe und den daraus resultierenden hohen relativen Unsicherheiten ist die Belastbarkeit dieser Ergebnisse zwar begrenzt, sie könnten jedoch ein Indiz dafür sein, dass ein Teil des vertikalen Transportes über stark organisch gebundene Strontiumspezies erfolgt (siehe hierzu auch [51]).

Insgesamt 13% ($\pm 11\%$) des ^{90}Sr wurden in der residual gebundenen Fraktion gefunden. ^{90}Sr lässt sich in allen drei untersuchten Tiefen residual gebunden wiederfinden. Die - gemessen an der gefundenen Heterogenität - geringe untersuchte Probenanzahl und die hohe Schwankungsbreite der Gehalte erlaubt hier zwar keine belastbare quantitative Aussage zur Tiefenver-

Fraktion	Nachlieferbar	Mn-O	Organik	Fe-O amorph	Fe-O kristallin	Residual
Ordinate	2.5 ± 12	0.69 ± 1.7	12 ± 11	16 ± 13	-1.7 ± 5.0	-0.79 ± 76
Steigung	0.095 ± 0.010	0.023 ± 0.00	0.0082 ± 0.004	0.026 ± 0.0064	0.010 ± 0.0037	0.23 ± 0.092
Pearson R	0.99	0.98	0.96	0.96	0.89	0.64

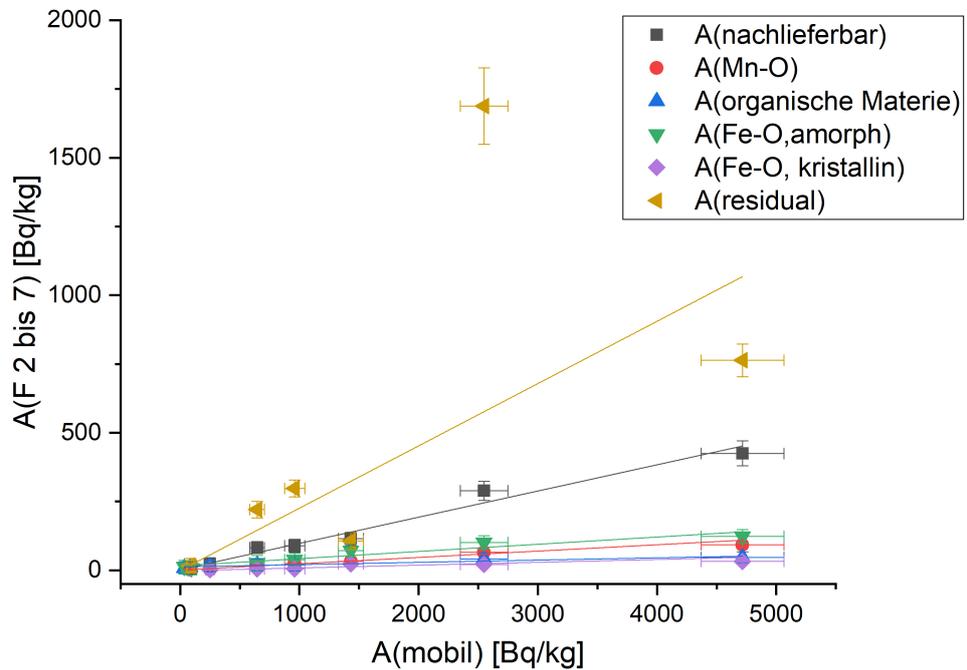


Abbildung 34 – Korrelation zwischen mobilem ^{90}Sr und den Inventaren der stärker gebundenen Fraktionen 2-7

teilung, aber die Tatsache, dass überhaupt in 20-30 cm Tiefe residual gebundenes ^{90}Sr vorhanden ist, ist zunächst etwas überraschend und könnte für eine Störung der Bodenschichtung durch natürliche (Bioturbation, preferential flow) oder anthropogene Einflussnahme im Nachgang der Reaktorhavarie sprechen.

Im Fall des residual gebundenen Inventars gibt es nur eine sehr schwache Korrelation zu den Gehalten in den Fraktionen 1-6, die Gehalte in dieser Fraktion schwanken sehr stark und sind für einen wesentlichen Anteil der Heterogenität des Gesamtinventars verantwortlich. Es ist daher anzunehmen, dass sich zwischen diesem und den weiteren Inventaren noch kein Gleichgewicht eingestellt hat, was - zusammen mit der im Vergleich zu allen weiteren Fraktionen höheren Heterogenität - den Schluss nahelegt, dass es sich hierbei vorwiegend um noch immer partikulär gebundenes Inventar handeln könnte.

Der Vergleich von stabilem Sr und ^{90}Sr gelingt auf Grund der Datenlage nur für einen kleinen Teil der untersuchten Fraktionen und Tiefen ist aber dennoch interessant. Abbildung 35 zeigt die Korrelation zwischen diesen für die beiden wichtigsten Inventare - mobil und residual.

Es zeigt sich ein hohes Maß an Korrelation ausschließlich für das mobile Strontiuminventar in den obersten 10 cm, wobei die Aussagekraft für die tieferen Bodenschichten, aufgrund der sehr geringen Mengen ^{90}Sr und der hohen Unsicherheiten bezüglich stabilem Sr sehr begrenzt sind. Es zeigt sich insbesondere aber auch, dass die Gehalte an residual gebundenem Sr völlig unkorreliert sind, was die Vermutung erhärtet, dass es sich hierbei um Bindungen an zwei unterschiedliche Bodenkompartimente handelt, die in diesem Extraktionsschritt ko-extrahiert werden.

Die getätigten Untersuchungen zur Bindung von Radiostrontium, aber auch die enormen Heterogenitäten der ^{137}Cs -Aktivitätskonzentrationen im Boden des Testfeldes legen die Vermutung nahe, dass - anders als zu Beginn der Arbeiten angenommen - ein signifikanter Anteil des Radionuklidinventars noch immer partikulär gebunden im Boden vorliegt. Die folgenden Arbeiten beschäftigen sich daher mit der gezielten Suche nach Reaktorpartikeln in Bodenproben des Testfeldes.

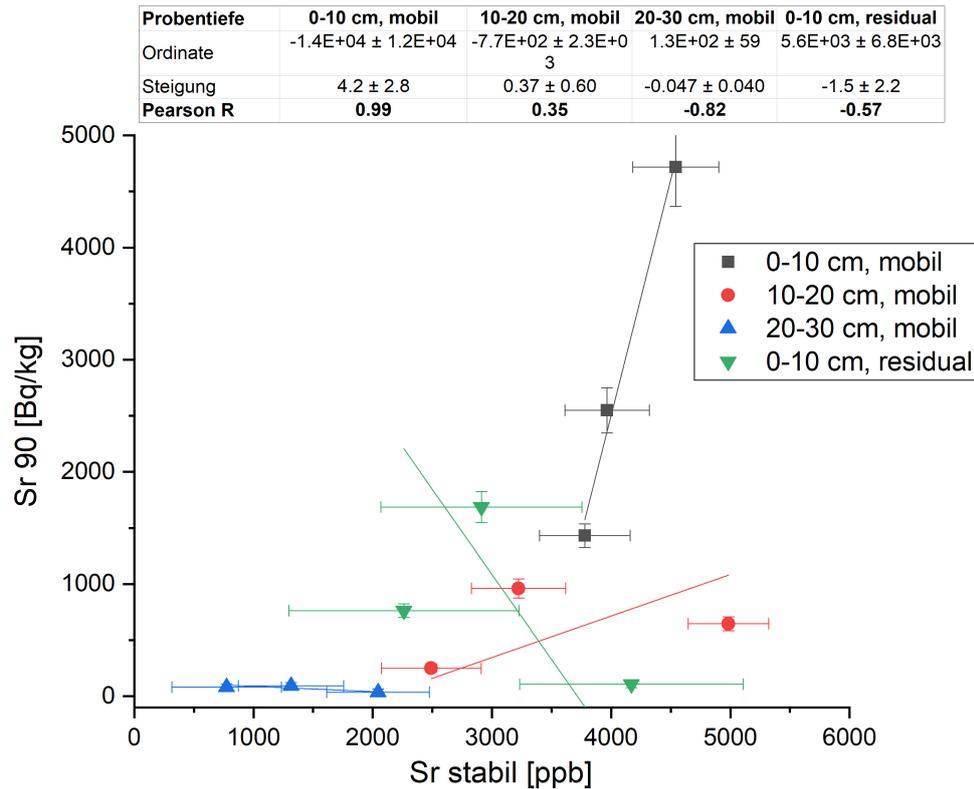


Abbildung 35 – Korrelation zwischen ^{90}Sr und stabilem Strontium in den untersuchten Tiefen und Fraktionen

4.2 Ausmaß von noch immer partikulär gebundenem Radionuklidinventar

4.2.1 Isolierung von Reaktorpartikeln aus der Bodenmatrix

Um zu überprüfen, ob die gefundenen Inhomogenitäten und residual gebundenen Aktivitätsanteile auf ein teilweise partikulär gebundenes Nuklidinventar zurückzuführen sind, wurde ein Verfahren entwickelt, um Reaktorpartikel aus der Bodenmatrix zu isolieren. Aufgrund der geringen Größe typischer Brennstoffpartikel im Mikrometerbereich kommt hierfür letztlich nur die Identifizierung unter einem Rasterelektronenmikroskop (REM) in Frage.

Das direkte Finden von Reaktorpartikeln im REM aus zufällig ausgewählten Bodenproben ist dabei jedoch mit sehr hohem Aufwand verbunden, da die Suche nach Reaktorpartikeln aus einer vergleichsweise großen Menge Bodenpartikeln der sprichwörtlichen Suche nach der Nadel im Heuhaufen gleicht. Es bedarf daher einer Methode zur Aufkonzentrierung der Reaktorpartikel im Vergleich zur „tauben“ Bodenmatrix.

Hierfür wurden aus den umfangreichen gammaspektrometrischen Messungen zur Transferfaktorbestimmung (siehe Experimenteller Teil II) und Bohrkernmessungen jene Bodenproben mit signifikant erhöhter ^{137}Cs -Aktivitätskonzentration vorausgewählt, da hier eine lokale Erhöhung der Aktivität durch Partikel als wahrscheinlich angesehen wurde. Aus insgesamt etwa 140 gammaspektrometrisch untersuchten Einzelproben des Oberbodens (aus ca. 0-5 cm Tiefe; jeweils 20-50g Trockenmasse pro Probe) wurden die fünfzehn Proben mit der höchsten Aktivitätskonzentration zur näheren Untersuchung vorausgewählt.

Drei der Partikel (Kop 04 Dionysos, Kop 04a Kastor und Kop 05 Eris) wurden abweichend in Bodenproben gefunden, die in einer Exkursion im Mai 2018 gezielt genommen wurden um diese im Labor nach Partikeln zu durchsuchen. Hierfür wurde der Boden des Testfeldes für einige Minuten mit einem Geiger-Müller Zählrohr nach HotSpots abgesucht. Dies gestaltete sich jedoch aufgrund des hohen Untergrundes sehr schwierig.

Zwar konnten immer wieder kleinere Stellen mit erhöhter Aktivität identifiziert werden, bei

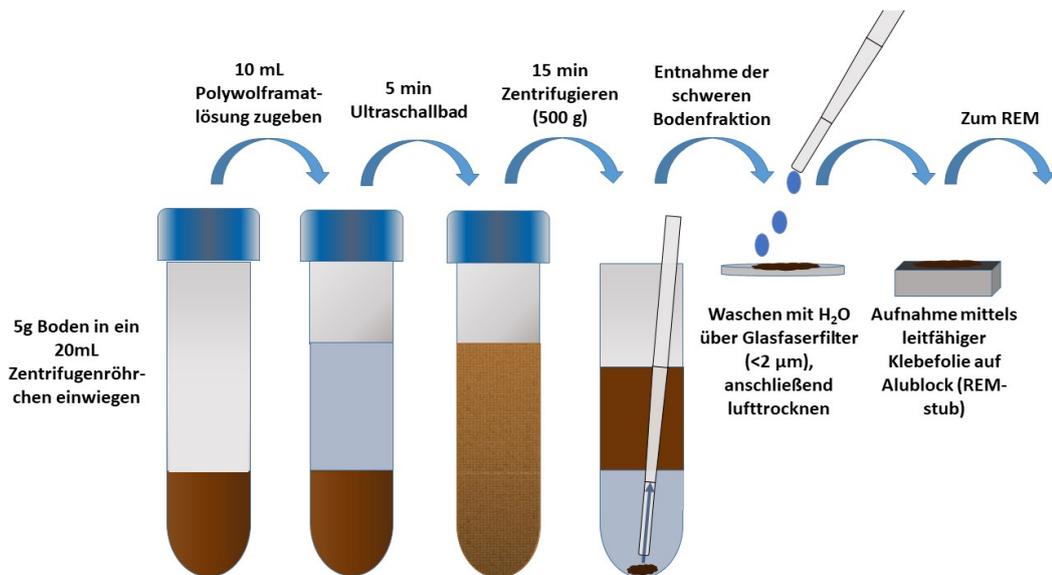


Abbildung 36 – Schema der durchgeführten Aufkonzentrierung der Reaktorpartikel mittels Flotation

dem Versuch, die Erde mit dem Hot spot darin dann aufzunehmen, ließ sich in der genommenen Probe häufig keine erhöhte Aktivität mehr feststellen. Aufgrund der sehr begrenzten Aufenthaltszeit auf dem Testfeld und der als gering erachteten Erfolgchancen der Methode, wurde hier nur für etwa eine halbe Stunde lang gesucht und ca 20g Boden genommen. Bei der händischen Durchsichtung der Proben im Labor wurden keine größeren Hot Spots mehr identifiziert.

Aufgrund der physikalischen Eigenschaften der Reaktorpartikel bieten sich zum weiteren Aufkonzentrieren zwei grundlegend verschiedene Methoden an, die an den vorausgewählten Bodenproben des Testfeldes durchgeführt wurden und daher im folgenden kurz beschrieben sind. Für eine Übersicht der grundsätzlich bei der Partikelanalyse zum Einsatz gebrachten Analysemethoden, sei auf [121] verwiesen.

Beim Verfahren der **Flotation** wird die im Vergleich zur Bodenmatrix deutlich erhöhte spezifische Dichte der Uranoxidpartikel ($\delta_{UO_2} = 10,97 \text{ g/cm}^3$ [148]) ausgenutzt, um diese abzutrennen. Dazu wird eine kleine Bodenmenge mit einem ausreichend großen Volumen einer Flüssigkeit mit einer höheren spezifischen Dichte als Siliziumdioxid ($\delta_{SiO_2} = 2,17 - 2,20 \text{ g/cm}^3$ [148]) vermischt, wobei der Großteil des Bodens aufschwimmt und die Reaktorpartikel, gemeinsam mit weiteren schweren Umweltpartikeln (beispielsweise Blei und diverse Seltenerd-Oxide), zu Boden sinken.

Als Flüssigkeit wurde hier in der Vergangenheit häufig auf Bromoform [149–151] zurückgegriffen (Dichte = $2,89 \text{ g/cm}^3$ [148]), was jedoch aufgrund seiner hohen Toxizität zusätzliche Nachteile im Umgang mit sich bringt. Stattdessen wurde im Rahmen dieser Dissertation auf das frische Ansetzen von Natrium-Polywolframatlösungen ($Na_6[H_2W_{12}O_{40}]$) zurückgegriffen, welche Dichten um $2,8 \text{ g/cm}^3$ (siehe Datenblatt im Anhang) aufwiesen. Das gesamte Verfahren der Abtrennung, bis zum Erhalt der Proben für die Untersuchung im REM ist in Abbildung 36 schematisch dargestellt.

Bei der **Identifikation und Isolierung von Hot Spots** wird mittels radiometrischen Methoden nach lokal erhöhter Aktivität innerhalb der Bodenproben gesucht. Hierbei ist es insbesondere die beta-Strahlung und in geringerem Maße die gamma-Strahlung die sich prinzipiell für die radiometrische Detektion von außen eignet, was das Verfahren auf solche Partikel begrenzt, die (noch) einen erheblichen Anteil an Spaltprodukten und/oder Aktivierungsprodukten enthalten.

Hierfür wurde neben Kontaminationsmonitoren und Geiger Müller Zählrohren mit einem großen Messfenster (5 cm), insbesondere im letzten Schritt ein Zählrohr mit besonders kleinem Messfenster (1,5 cm) eingesetzt, welches es ermöglichte mit entsprechend hohen Messzeiten

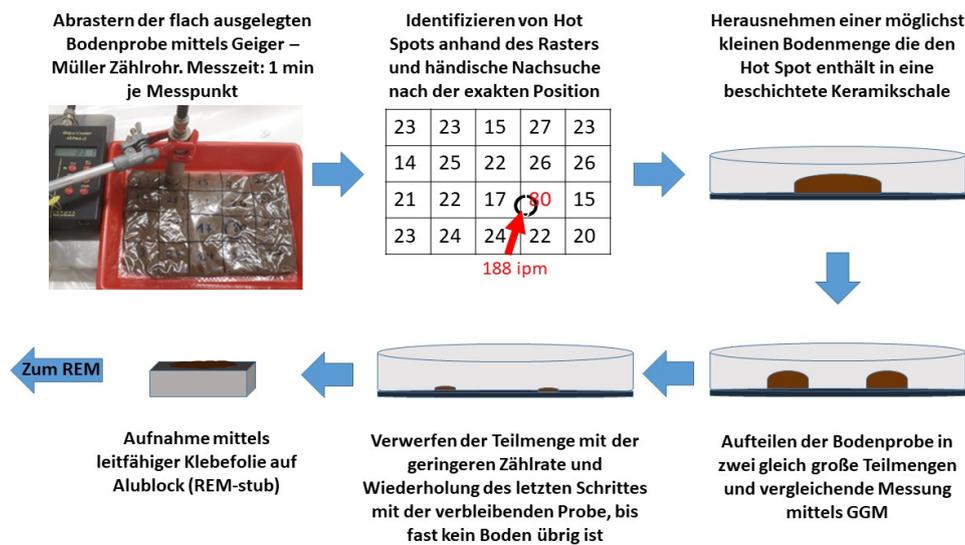


Abbildung 37 – Partikelsuche mit dem kleinen GMZ-Zählrohr

zuvor eingegrenzte Hot spots sehr genau zu lokalisieren. Das Schema der Abtrennung ist beispielhaft für einen der gefundenen Partikel in Abbildung 37 dargestellt.

Beide Methoden zur Partikelsuche haben Vor- und Nachteile. So ist das radiometrische Absuchen äußerst aufwendig und nur bei geeigneter Vorauswahl der Proben vertretbar effizient. Desweiteren lassen sich mit dieser Methode ausschließlich Partikel mit einer ausreichend hohen Beta-, oder einer noch höheren Gamma-Aktivität isolieren, mit der sie sich aus dem ohnehin erhöhten Untergrund des kontaminierten Bodens in zeitlich vertretbarem Rahmen messbar abheben. Umso kleiner, und weniger aktiv ein Partikel ist, umso unwahrscheinlicher wird es, ihn zu finden, was insofern problematisch ist, als dass nicht bekannt ist, wieviel des Radionuklidinventars in solchen extrem kleinen Partikeln gebunden ist. Auch kann keine gesicherte Aussage darüber getroffen werden, wieviele der in einem untersuchten Bodenvolumen vorhandenen Reaktorpartikel man am Ende tatsächlich gefunden hat.

Die Verwendung von Natriumpolywolframat-Lösungen hat sich als gut geeignet erwiesen, um das zu untersuchende Bodenvolumen drastisch (um ca. 95 %) zu reduzieren. Des Weiteren lassen sich mit Hilfe der Flotation Uranoxid-Partikel unabhängig von ihrer Aktivität aufkonzentrieren und für das Durchsuchen im REM vorbereiten. Der große Nachteil liegt hier jedoch darin, dass die verbleibende schwere Fraktion noch immer sehr viele nicht-nukleare Partikel enthält, die zudem im Rückstreukontrast des Raster-Elektronenmikroskops nur schwer von den gesuchten Uranoxidpartikeln zu unterscheiden sind. Während dieses Verfahren im Fall von stärker mit Reaktorpartikeln belasteten Böden sehr erfolgreich eingesetzt und weiterentwickelt wurde - siehe hierzu die Dissertationsschrift von Martin Weiss[127] - konnte auf dem Boden des BioVeStRa-Testfeldes auf diese Weise kein Partikel identifiziert werden. Alle im folgenden beschriebenen Reaktorpartikel wurden daher ausschließlich mittels radiometrischer Isolierung gefunden.

Im Anschluss an die Aufbringung der verbleibenden Bodenmenge auf die REM stubs wurden diese im Rückstreukontrast-Modus des Rasterelektronenmikroskops händisch nach auffällig hellen (= dichten) Partikeln durchsucht. In Abbildung 38 ist beispielhaft ein Bild vom Auffinden eines Reaktorpartikels (Kop 08, Herakles) auf dem REM-stub dargestellt.

Hier zeigte sich der große Vorteil der Methode der Hot-spot-Isolierung: Da auf den Proben-trägern im Idealfall nur sehr wenige weitere Partikel (aus Staub und verbleibender Restmenge Boden) zu finden waren, war das Durchsuchen der Probenhalter mit vergleichsweise wenig Aufwand verbunden. Das händische Durchsuchen eines stubs (ca. 1cm² Monolage) im REM dauerte in diesem Fall nur etwa eine Stunde und war meistens erfolgreich, wenn zuvor das Vorhandensein einer erhöhten Aktivität auf dem Probenhalter gezeigt werden konnte. Die durch Flotation abgetrennte schwere Fraktion von etwa 5 g Boden musste hingegen auf 4-6 REM-stubs aufge-



Abbildung 38 – Auffinden eines Reaktorpartikels (Kop 08, Herakles) im Rückstreukontrast des Elektronenmikroskops. Im Vordergrund (hell) die Nadel des Mikromanipulators aus Wolfram, mittig, rechts daneben das Signal des Partikels. Dieses ist bei geeigneter Kontrasteinstellung deutlich von den weiteren Partikeln der Bodenprobe (schwach grau) zu unterscheiden.

teilt werden, wobei das Durchsuchen jedes Einzelnen deutlich zeitaufwändiger war und im Fall der Böden des Kopachi-Feldes nie zum gewünschten Erfolg führte.

4.2.2 Analyse der gefundenen Reaktorpartikel

Im Anschluss an die Identifizierung von möglichen Reaktorpartikeln im Rückstreukontrast wurde mittels Messung des charakteristischen Röntgenspektrums (EDX) die atomare Zusammensetzung bestimmt. Zeigte sich hier ein Uransignal, schlossen sich weitere Untersuchungen mit dem Elektronenmikroskop an, und die Partikel wurden in der Folge mittels Mikromanipulator an die Spitze einer sehr dünnen Wolframnadel geklebt und extrahiert¹⁷. Im Anschluss an die Extraktion wurden die Partikel gammaspektrometrisch vermessen.

Es wurden insgesamt zwölf Partikel isoliert und unter dem Rasterelektronenmikroskop analysiert. Bei acht dieser Partikel gelang zudem die Extraktion mittels Mikromanipulator, so dass hier auch gammaspektrometrische Ergebnisse vorliegen. Die Ergebnisse der Messung aller gefundenen Partikel sind in Tabelle 18 zusammengefasst.

Tabelle 18 – Überblick über die gefundenen Reaktorpartikel. Die angegebenen Aktivitäten beziehen sich auf den Messtag (04.03.19-11.02.20) und sind hier nicht auf ein gemeinsames Referenzdatum berechnet, da eine korrekte Zerfallskorrektur des ²⁴¹Am ohne genaue Kenntnis der ²⁴¹Pu Aktivität nicht möglich ist.

Partikel (Kop) Nr., Name	Typ	Größe [ca. μm]	Cs-137 [Bq] (\pm Bq)	Am-241 [Bq] (\pm Bq)	Eu-154 [Bq] (\pm Bq)
1, Ares	ZrU _y O _x	50x60	150 (7,9)	7,64 (0.10)	0,649 (0,05)
2, Bellerophon	UO ₂	40x25	80,0 (0,4)	3,61 (0,04)	0,32 (0,02)
3, Chimaera	UO ₂	15x15	-	-	
4, Dionysos	UO ₂ /UPO ₄ ?	30x35	< 0,014	0,072 (0,002)	0,015 (0,004)
4b, Kastor	USO ₄ ?	10x10	-	-	
5, Eris	UO ₂	15x15	-	-	
6, Faina	UO _{2+x}	10x25	3,40 (0,02)	0,085 (0,002)	< 0,01
7, Gaia	Lava?	200x150	155 (0,8)	7,89 (0,09)	0,73 (0,03)
8, Herakles	UO ₂	20x20	23,1 (0,14)	1,43 (0,02)	0,104 (0,016)
9, Iris	UO ₂	10x15	-	-	
10, Japetos	ZrU _y O _x	40x40	221 (1,1)	0,887 (0,015)	0,100 (0,025)
11, Kronos	UO ₂	40x40	40,6 (0,22)	2,3 (0,03)	0,197 (0,017)

Es zeigt sich, dass mit der Methode der Hot-spot-Suche Partikel bis zu einer minimalen Aktivität von etwa 3-4 Bq ¹³⁷Cs gefunden werden konnten, wobei davon auszugehen ist, dass es sich bei Dionysos entweder um einen reinen Zufallsfund handelt, oder hier eine größere Aktivität ⁹⁰Sr vorhanden war. Die kleinsten gefundenen Partikel hatten in der Rasterlektronenmikroskopie-Aufnahme eine Fläche von etwa 10x10 μm .

Die Ergebnisse der gammaspektrometrischen Untersuchungen zeigen für alle Partikel ein relativ konstantes Aktivitätsverhältnis zwischen ²⁴¹Am und ¹⁵⁴Eu von etwa 11,4(\pm 1,6) im Jahr 2019¹⁸. Dies lässt sich zum Einen durch die Tatsache erklären, dass es sich in beiden Fällen (mittelbar) um Aktivierungsprodukte handelt, zum anderen zeigt sich hier auch die chemische Ähnlichkeit beim Verhalten in der Umwelt.

Die relative Aktivität des ¹³⁷Cs ist im Vergleich zu den beiden anderen untersuchten Nukliden deutlich heterogener verteilt. Hier zeigt sich zum Einen der Unterschied in der Genese: ¹³⁷Cs baut sich als Spaltprodukt bereits vom Beginn der nuklearen Kettenreaktion im Brennstoff auf und ist nicht darauf angewiesen, dass seine Vorstufen zunächst erbrütet werden. Zum Anderen ist denkbar, dass insbesondere bei kleinen Partikeln Leaching eine Rolle spielt, wo aufgrund der unterschiedlichen chemischen Eigenschaften von einer Veränderung des Aktivitätsverhältnisses im Partikel auszugehen ist.

Zieht man den Mittelwert der Aktivitätsverhältnisse von ¹³⁷Cs und ²⁴¹Am aller Partikel, mit Ausnahme von Dionysos und Japetos, heran, so ergibt sich ein durchschnittliches Verhältnis von 22,5(\pm 8,8). Der Partikel Japetos stellt hier eine klare Ausnahme dar ($A(^{137}\text{Cs})/A(^{241}\text{Am})$)

¹⁷Die Entwicklung dieses Verfahrens fand im Rahmen der Doktorarbeit von Martin Weiss statt[127], weshalb zu einer detaillierteren Beschreibung dieses Verfahrens auf diese verwiesen wird.

¹⁸Der Berechnung liegen der Mittelwert und die Standardabweichung der Verhältnisse jener Partikel mit Messwerten oberhalb der NWG für beide Nuklide, mit Ausnahme von Dionysos zu Grunde.

= 249). Eine Diskussion dieses Befundes findet sich in dem direkt anschließenden Paragraphen zu Uran-Zirkon-Mischoxidpartikeln auf Seite 66.

Die gammaspektrometrischen Ergebnisse von Dionysos sind in vielerlei Hinsicht eine Ausnahme. So findet sich hier ein deutlich niedrigeres Verhältnis von ^{241}Am zu ^{154}Eu und keinerlei ^{137}Cs . Auch ist die Gesamtaktivität verglichen mit seiner Größe sehr gering. Eine Hypothese zur Erklärung dieses Unterschiedes findet sich bei der detaillierten Darstellung dieses Partikels auf Seite 71.

In den folgenden drei Abschnitten sind die interessantesten Partikel im Detail beschrieben. Im Falle der häufigsten gefundenen Klasse der UO_2 -Partikel wird hier jedoch nur eine Auswahl detailliert diskutiert. Da sich die wesentlichen Befunde der weiteren UO_2 -Partikel gleichen, finden sich Abbildungen zu diesen im Anhang.

Uran-Zirkonium Mischoxidpartikel Anhand der beiden EDX-Spektren (siehe Abb. 39) von **Kop 01 (Ares)** ist gut zu erkennen, dass es sich hier um einen Partikel aus zwei verschmolzenen Phasen von Uran-Zirkon-Mischoxid (EDX 01) und nicht-zirkonhaltigem Uranoxid (EDX 02) handelt. Dieser Unterschied in den Phasen wird auch in der Morphologie des Partikels, sowohl im Rückstreukontrast, als auch im Sekundärelektronenkontrast sehr deutlich. Während sich das EDX 01 in einem Bereich mit einer sehr glatten und kompakten Oberfläche befindet, ist der Bereich um EDX 02 deutlich von Poren im sub-Mikron Bereich übersät. Aufgrund des ansonsten wenig amorphen Charakters dieses porösen Bereiches ist diese Phase am ehesten der nicht-höher oxidierten Klasse (UO_2) an Brennstoffpartikeln zuzuordnen. Das gemeinsame Auftreten dieser beiden Phasen passt auch zu den Annahmen bezüglich des Quellterms, die von einer gemeinsamen Emission beider Phasen im unmittelbaren Anschluss an den Reaktorunfall ausgehen.

id	Kop 01 (Ares)
Typ	$\text{ZrU}_y\text{O}_x / \text{UO}_2$
Größe	$50 \times 60 \mu\text{m}$
$A(^{137}\text{Cs})$	$150 \pm 7,9 \text{Bq}$
$A(^{241}\text{Am})$	$7,64 \pm 0,10 \text{Bq}$
$A(^{154}\text{Eu})$	$0,649 \pm 0,05 \text{Bq}$

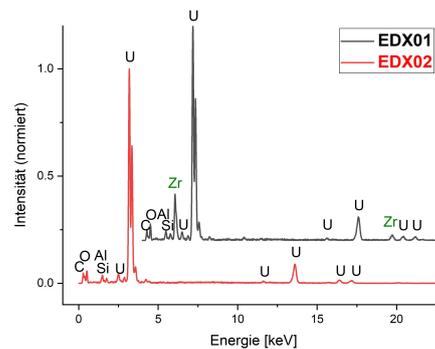
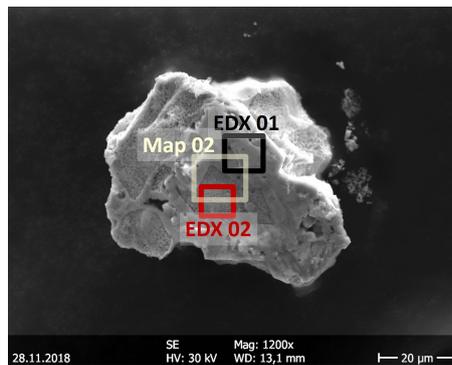
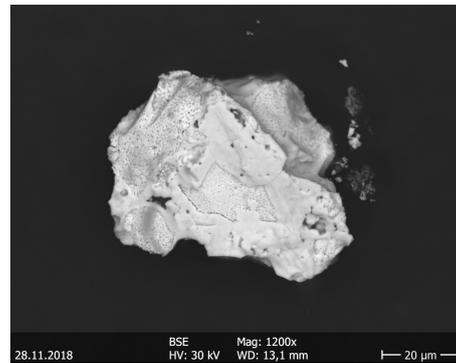


Abbildung 39 – Kop 01, Ares. Daten oben links. Bilder vom Rückstreu- (oben rechts) und Sekundärelektronenkontrast (unten links) sowie EDX-Spektrum (unten rechts) aus den beiden im SE-Kontrast markierten Bereichen. Der Offset der Darstellung von EDX01 beträgt: $\Delta Y = 0,2$ und $\Delta X = 400 \text{eV}$

Um den Zusammenhang zwischen Morphologie und Zirkoniumgehalt zu bestätigen wurden, von Ares zusätzlich zwei EDX-mappings angefertigt, siehe Abbildung 40. Hier zeigt sich sehr deutlich, dass der Übergang von poröser zu glatter Oberflächenmorphologie dem Übergang von zirkoniumhaltigem - zu nicht-zirkoniumhaltigem Partikel entspricht.

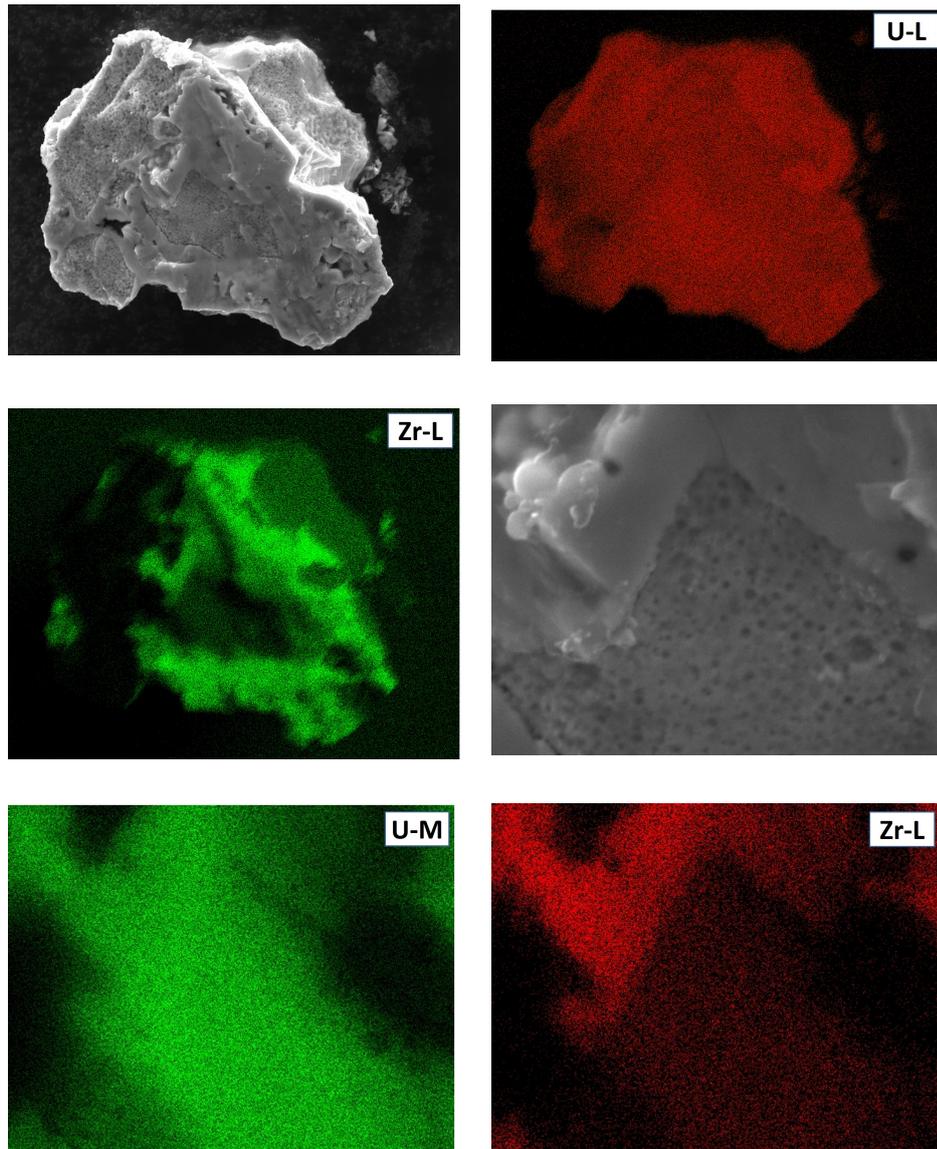


Abbildung 40 – EDX-Mapping der Elemente Uran und Zr auf Kop 01 Ares. Während das Uran-signal aus allen Bereichen des Partikels stammt, korreliert der Zirkoniumgehalt mit den morphologisch glatten Bereichen des Rückstreubildes. In den mappings vom Zentralbereich ist der Übergang von der Zirkonium- in die „nicht-Zirkoniumphase“ deutlich zu erkennen, allerdings kommt auch aus dieser Phase noch ein schwaches, homogen verteiltes Zr-Signal.

Aufgrund der teilweisen Legierung mit Zirkonium ist davon auszugehen, dass der Partikel zumindest teilweise aus einem Reaktorbereich nahe der aus Zirkalloy bestehenden Hüllrohre stammt und zum Zeitpunkt der Explosion teilweise mit diesem verschmolzen wurde. Bemerkenswert ist der Partikel insbesondere deshalb, weil man an ihm sehr anschaulich den Unterschied in der umweltchemischen Stabilität von UO_2 und zirkoniumhaltigen Partikeln verdeutlichen kann, wenn man davon ausgeht, dass beide Phasen in den letzten dreißig Jahren gemeinsam den selben Umweltbedingungen ausgesetzt waren.

Während die UO_2 -Phase von kleinen Poren durchsetzt ist, ist die Oberfläche der zirkoniumhaltigen Phase völlig intakt und wirkt optisch in keiner Weise beeinträchtigt. Es lässt sich hierbei nicht mit Sicherheit sagen, ob die Poren der UO_2 -Phase durch chemische Umwelteinflüsse entstanden sind, oder sich bereits im Reaktorbetrieb und der anschließenden Leistungsexkursion vornehmlich an den Grenzen nicht ideal gesinterter Körner gebildet haben.

Schaut man sich den Rand zum Zentralbereich, sowie zum unteren linken Bereich der UO_2 -Phase im Rückstreukontrast und insbesondere im Sekundärelektronenkontrast genau an, so lässt sich optisch vermuten, dass hier ein Höhenunterschied zwischen beiden Phasen besteht. Zwar lässt sich nicht mit Sicherheit sagen, ob dieser Unterschied nicht schon zum Zeitpunkt der Entstehung so, oder so ähnlich vorhanden war, es scheint jedoch plausibel anzunehmen, dass dieser Höhenunterschied mit der schnelleren Auflösung der UO_2 -Phase im Boden korreliert. Interessant wäre es daher für zukünftige Untersuchungen, den Partikel schrittweise stärkeren Säurebedingungen auszusetzen, um parallel die Auswirkungen auf Zirkonium- und nicht-Zirkoniumphase zu beobachten.

Ebenfalls als Partikel der Zirkonium-Uran Mischoxidklasse wurde **Kop 10 Japetos** (siehe Abb. 41) klassifiziert, da sich hier im EDX ein klares Zirkoniumsignal zeigte. Dieses war relativ zum Uransignal kleiner als im Fall der Zr-U Phase von Ares, jedoch wesentlich größer als im Fall von dessen nicht-Zirkoniumphase (vgl. Abb. 39). Der Partikel wirkt im Rückstreukontrast wie im Sekundärelektronenkontrast sehr heterogen und scheint aus einer Vielzahl kleinerer sehr dichter Bruchstücke, sowie einer oder mehrerer weniger dichter Phasen agglomeriert zu sein.

id	Kop 10 (Japetos)
Typ	U–Zr–O
Größe	40x40 μm
$A(^{137}\text{Cs})$	$221 \pm 1,2\text{Bq}$
$A(^{241}\text{Am})$	$0,887 \pm 0,015\text{Bq}$
$A(^{154}\text{Eu})$	$0,10 \pm 0,025\text{Bq}$

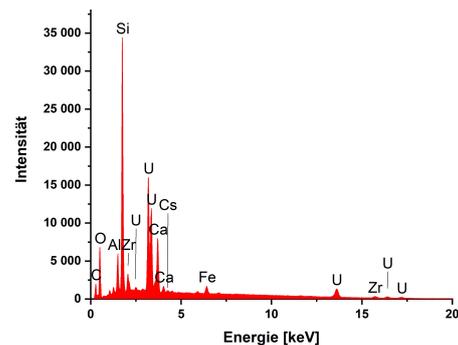
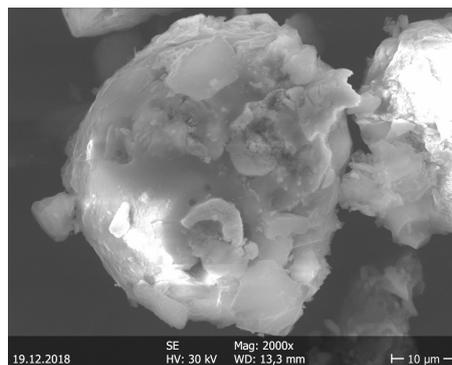
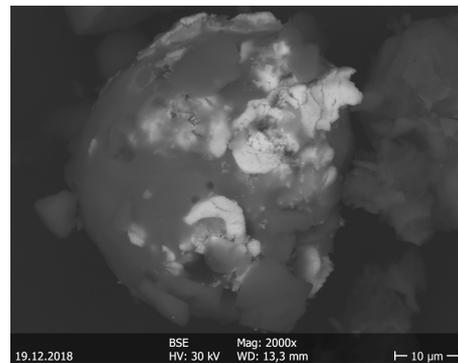


Abbildung 41 – Kop 10, Japetos. Daten oben links. Bilder vom Rückstreukontrast (oben rechts) und Sekundärelektronenkontrast (unten links) sowie EDX-Spektrum (unten rechts) aus dem Zentralbereich des Partikels. Im Rückstreukontrast zeigen sich deutliche Einschlüsse höherer Dichte, in einer wesentlich weniger dichten Matrix.

Betrachtet man die Verteilung von Uran und Zirkon über den Partikel (siehe Abb. 42) so stellt man fest, dass diese weitgehend deckungsgleich sind, weshalb davon auszugehen ist, dass die im Rückstreukontrast gefundenen Phasen hoher Dichte aus einem Uran-Zirkon Mischoxid bestehen, wobei aufgrund des EDX-Spektrums von einer etwas geringeren Beimengung von Zirkon im Vergleich zu Kop 01 Ares ausgegangen werden kann.

Die EDX mappings von U und Si sind weitgehend antikorreliert und es kann aufgrund des

EDX-mappings von Si als wahrscheinlich gelten, dass die Uran-Zirkonium-Einschlüsse in eine Silikatmatrix eingebettet sind.

Stabiles Cs korreliert andeutungsweise mit den Uran-Phasen, kaum jedoch mit der weniger dichten, siliziumhaltigen Phase. Zwar stammt das EDX-Signal des Cs praktisch ausschließlich von stabilem Cs und nicht von ^{137}Cs , es scheint aufgrund der Verteilung von stabilem Cs und der sehr wahrscheinlichen Historie der Zr-U-Einschlüsse als Reaktormaterial jedoch plausibel anzunehmen, dass das ^{137}Cs Signal hauptsächlich aus den eingeschlossenen Zr-U Bruchstücken stammt.

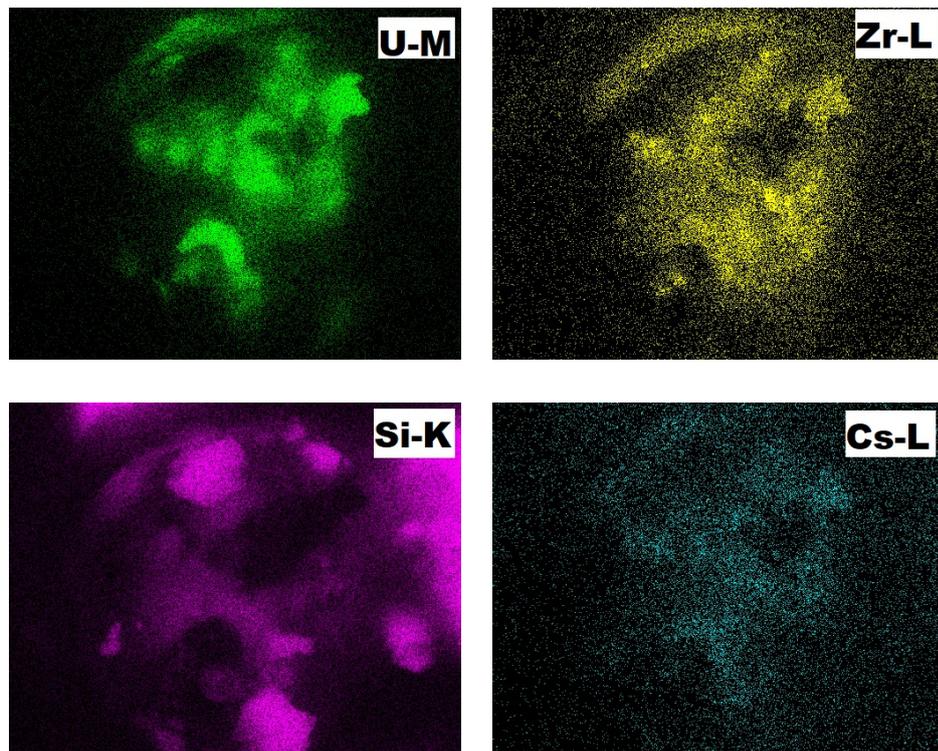


Abbildung 42 – Kop 10, Japetos. EDX-Mapping der Elemente Uran (oben links), Zr (oben rechts) Si (unten links) und Cs (unten rechts). Zirkon und Uransignal sind weitgehend deckungsgleich und zum Si-Signal antikorreliert, so dass davon auszugehen ist, dass es sich bei den vorhandenen hellen Bruchstücken im Rückstreukontrast um ZrU_yO_x Phasen handelt, welche in eine siliziumhaltige Matrix eingebaut sind.

Japetos zeigte in der gammaspektrometrischen Analyse eine außergewöhnlich hohe ^{137}Cs Aktivität, sowohl bezogen auf das (geschätzte) Volumen, als auch relativ zu den Aktivitäten von ^{241}Am und ^{154}Eu . Möglicherweise stammt die Uran-Zirkonium-Phase aus einem Reaktorbereich der erst seit vergleichsweise kurzer Zeit bestrahlt wurde, was zumindest das hohe Aktivitätsverhältnis zu den (mittelbaren) Aktivierungsprodukten ^{241}Am und ^{154}Eu erklären würde.

Aufgrund des heterogenen Erscheinungsbildes in den elektronenmikroskopischen Aufnahmen und der vermutlich silikatischen Matrix wäre es plausibel, Japetos als sekundären Partikel zu klassifizieren, allerdings sind aufgrund der bisher an dem Partikel durchgeführten Analysen noch wesentliche Fragen zu seiner Genese offen - insbesondere die Frage ob die Einbettung in die vermutete Silikatmatrix innerhalb des Reaktorgebäudes stattgefunden haben kann.

So scheint das hohe Aktivitätsverhältnis des ^{137}Cs gegen ein - aufgrund der Morphologie plausibles - Auskristallisieren aus der Reaktor-Lava zu sprechen: Durch die hohen Temperaturen die zum Verflüssigen des Konstruktionsmaterial nötig sind, sollte gerade das stärker flüchtige Cs in dem Reaktormaterial abgereichert und nicht angereichert vorliegen. Zwar ließe sich das hohe Aktivitätsverhältnis zu ^{241}Am und ^{154}Eu erklären, wenn man von einer sehr kurzen Bestrahlungszeit des Brennstoffes ausgeht, nicht jedoch die hohe (geschätzte) Volumenkonzentration

des ^{137}Cs . So sollte sich in kürzer bestrahltem Reaktormaterial auch weniger volumenbezogene ^{137}Cs Aktivität finden lassen.

Um die Genese von Japetos abschließend zu klären, wären eine Reihe weiterer Untersuchungen interessant, insbesondere um Rückschlüsse auf die Herkunft der silikathaltigen Phase, aber auch die Assoziation der hohen ^{137}Cs Konzentration, sowie der niedrigen ^{241}Am und ^{154}Eu Konzentrationen zu klären. Siehe hierzu Abschnitt 6.

Gut kristalline Uranoxidpartikel (UO_2) Einige gefundene Partikel hatten eine relativ intakte Morphologie, wobei mitunter noch kristallin wirkende Facetten ausgemacht werden konnten, zeigten im EDX aber wenig bis kein Zirkonium Signal. Diese wurden der Kategorie der nicht-oxidierten Brennstoffpartikel UO_2 zugeordnet. Alle Partikel dieser Kategorie wiesen zudem - analog der Zirkonium-freien Phase von Kop 01 (Ares) - an der Oberfläche Poren in der Größenordnung von wenigen Mikrometern bis in den sub-Mikrometerbereich auf.

Die beiden größten Partikel dieser Kategorie Kop 02 (Bellerophon) und Kop 08 (Herakles) werden im nächsten Kapitel für Extraktionsexperimente benutzt und sind daher im Folgenden - stellvertretend für die gesamte Partikelkategorie - detailliert beschrieben (siehe Abbildungen 43 und 44). Daten und Bilder aller weiteren untersuchten UO_2 - Partikel finden sich im Anhang.

id	Kop 02 (Bellerophon)
Typ	UO_2
Größe	$40 \times 25 \mu\text{m}$
$A(^{137}\text{Cs})$	$80,0 \pm 0,4 \text{ Bq}$
$A(^{241}\text{Am})$	$3,61 \pm 0,04 \text{ Bq}$
$A(^{154}\text{Eu})$	$0,32 \pm 0,02 \text{ Bq}$

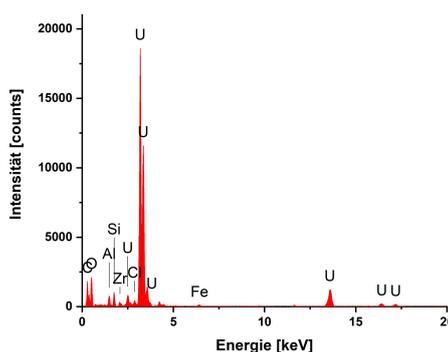
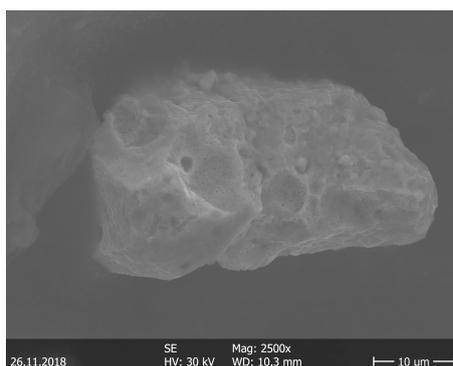
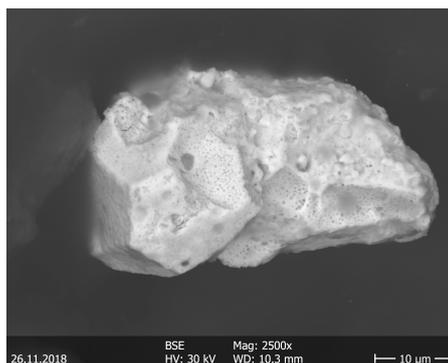


Abbildung 43 – Kop 02, Bellerophon. Daten oben links. Bilder vom Rückstreu- (oben rechts) und Sekundärelektronenkontrast (unten links) sowie EDX-Spektrum (unten rechts) aus dem Zentralbereich des Partikels. Der Partikel weist deutlich die typischen Merkmale der UO_2 -Kategorie auf: Der Partikel ist mit Poren im sub-Mikrometerbereich übersät, man kann aber noch deutlich Facetten des Kristallgitters erkennen.

Kop 02 (Bellerophon) weist eine relativ intakte Morphologie und eine im Vergleich zu den anderen gefundenen Partikeln eher überdurchschnittliche Größe auf. In der EDX-Messung des

Zentralbereiches zeigte sich ein relativ ungestörtes Uran (-Oxid) Spektrum mit vergleichsweise niedrigen Signalen von Si, Al und Fe. Es kann als gesichert gelten, dass es sich bei dem gefundenen Intensitätsmaximum bei 2 keV tatsächlich um Zr-Signal handelt. Aufgrund des geringen Zirkoniumanteils (Vergleiche z.B. das EDX01 von Ares Abb. 39) wurde der Partikel in dieser Arbeit der Klasse der reinen UO_2 Partikeln zugeordnet. Es zeigte sich jedoch anhand dieses und der beiden zuvor beschriebenen Partikel Kop01 und Kop10, dass der Gehalt an Zirkonium in den Partikeln teilweise fließend ist. Im Fall von Kop02 (Bellerophon) ist es nicht auszuschließen, dass bereits die relativ geringe Beimischung von Zr im Kristallgitter des Partikels zu einer signifikanten Erhöhung der chemischen Stabilität führt, was ein Grund dafür sein könnte, dass dieser Partikel noch vergleichsweise groß ist und eine relativ intakte Morphologie aufweist.

Die Ergebnisse der gammaspektrometrischen Untersuchung von Kop 02 zeigen sowohl ein typisches Aktivitätsverhältnis von ^{137}Cs , ^{241}Am , und ^{154}Eu , als auch eine eher durchschnittliche Aktivität pro (geschätztem) Volumen. Dies unterstützt die Vermutung, dass es sich bei Bellerophon um einen Partikel handelt, der relativ zu Beginn des Emissionsgeschehens emittiert wurde und seitdem keinerlei chemische Umwandlung vollzogen hat.

Kop 08 (Herakles) weist ebenso wie Kop 02 (Bellerophon) eine relativ intakte Morphologie auf, jedoch nicht die bei Bellerophon vorhandenen deutlichen Facetten. Auch finden sich auf seiner Oberfläche im Vergleich zu Bellerophon kaum kleine und nur wenige größere Poren.

id	Kop 08 (Herakles)
Typ	UO_2
Größe	$20 \times 20 \mu\text{m}$
$A(^{137}\text{Cs})$	$23,1 \pm 0,14 \text{ Bq}$
$A(^{241}\text{Am})$	$1,43 \pm 0,02 \text{ Bq}$
$A(^{154}\text{Eu})$	$0,104 \pm 0,016 \text{ Bq}$

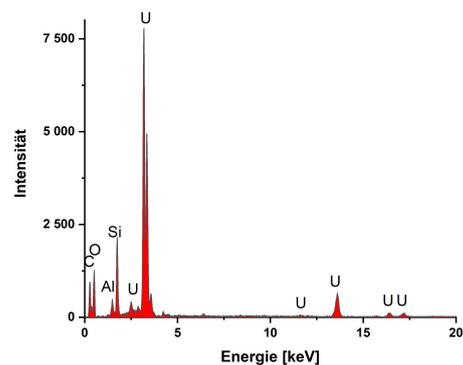
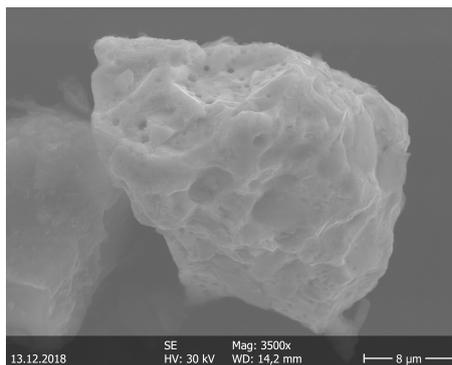
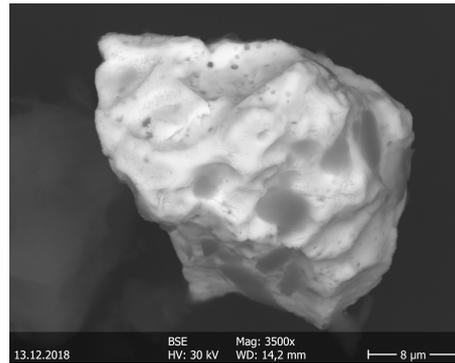


Abbildung 44 – Kop 08, Herakles

Im EDX-Spektrum zeigte sich keinerlei Zr-Signal und die gammaspektrometrisch bestimmten Aktivitäten und Aktivitätsverhältnisse liegen auf einem für die UO_2 Partikel typischen Niveau, weshalb der Partikel dieser Fraktion zugeordnet werden kann. Er wurde für die späteren sequentiellen Extraktionsexperimente insbesondere aufgrund der Tatsache ausgewählt, dass er ein typischer Vertreter dieser Klasse ist und eine vergleichsweise hohe Gesamtaktivität aufweist,

die für die Nachweisbarkeit der Radionuklide in den sequentiellen Extrakten entscheidend ist.

Schlecht kristalline Uranoxidpartikel (UO_{2+x}) Die Unterscheidung der Uranoxidpartikel in höher und weniger hoch oxidierte Klassen gestaltet sich anhand der elektronenmikroskopisch zugänglichen Informationen mitunter schwierig [149, 151, 152]. So reicht die Präzision der (standardlosen) röntgenspektrometrischen Analyse kaum aus, um kleine Unterschiede in der Sauerstoff-Stöchiometrie nachzuweisen und die morphologischen Strukturen sind mitunter fließend. In der Tat wurden auf dem Testfeld keine Partikel mit sehr deutlich amorpher Struktur gefunden, wie sie sicher der Kategorie der höher oxidierten Partikel zuzuordnen wären. Dieser Befund deckt sich mit Literaturquellen, die davon ausgehen, dass sich diese Partikelkategorie in den Böden inzwischen fast vollständig aufgelöst haben sollte.

Kop 06 (Faina) wurde im Rahmen dieser Arbeit dennoch der Kategorie der höher oxidierten Uranpartikel zugeordnet, da dieser Partikel deutlich stärker zerklüftet erscheint und nicht die für die anderen UO_2 Partikel typische Porenstruktur aufwies. Darüber hinaus wirkt die Morphologie allerdings durchaus eher kristallin als amorph, und es könnte sich auch um einen bereits stark verwitterten UO_2 -Partikel handeln und die Unterschiede in der Morphologie eher durch den fortgeschrittenen Verwitterungsprozess bedingt sein, welcher zu zunehmend höher oxidierten Uran-Sauerstoff-Stöchiometrien führt [153].

id	Kop 06 (Faina)
Typ	UO_{2+x}
Größe	$10 \times 25 \mu\text{m}$
$A(^{137}\text{Cs})$	$3,4 \pm 0,02 \text{ Bq}$
$A(^{241}\text{Am})$	$0,085 \pm 0,002 \text{ Bq}$
$A(^{154}\text{Eu})$	$< 0,01$

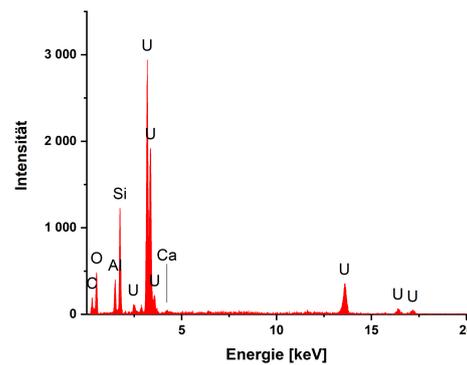
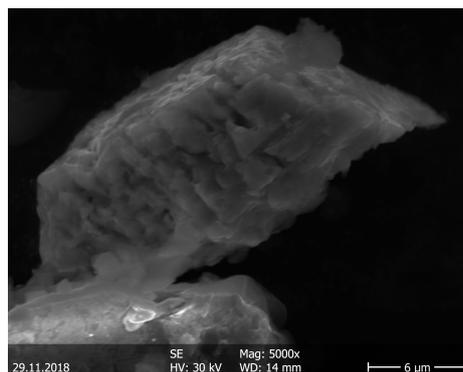
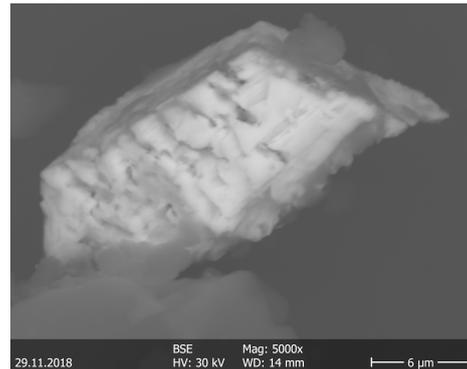


Abbildung 45 – Kop 06, Faina

Kop 06 (Faina) war der kleinste isolierte Partikel, der erfolgreich auf eine Nadel aufgenommen und gamma-spektrometrisch vermessen werden konnte. Die Aktivität lag hierbei im Fall des ^{154}Eu unterhalb der Nachweisgrenze. Das gefundene Aktivitätsverhältnis $^{137}\text{Cs} / ^{241}\text{Am}$ lag mit 40 signifikant höher als der in Abschnitt 4.2.2 angegebene Durchschnitt von $22,5 (\pm 8,8)$.

Aufgrund fehlender Vergleichsproben ist es allerdings nicht möglich sicher festzustellen, ob es sich hierbei um einen gruppenspezifischen Unterschied oder nur einen Einzelbefund handelt.

Unklassifizierte Partikel Beim Durchsuchen des vierten isolierten Hot spots wurden zwei uranhaltige Partikel gefunden, die sehr unterschiedlich und jeweils sehr ungewöhnlich sind. Als erster Kandidat wurde auf diesem Probenhalter der Partikel **Kop 04 (Dionysos)** identifiziert (siehe Abb. 46) und zur gamma-spektrometrischen Untersuchung extrahiert.

id	Kop 04 (Dionysos)
Typ	Übergang $UO_2/Ux(PO_4)_y$?
Größe	$30 \times 35 \mu m$
$A(^{137}Cs)$	$< NWG(0,014) Bq$
$A(^{241}Am)$	$0,072 \pm 0,002 Bq$
$A(^{154}Eu)$	$0,015 \pm 0,004 Bq$

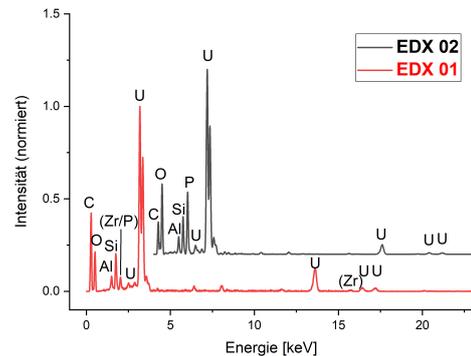
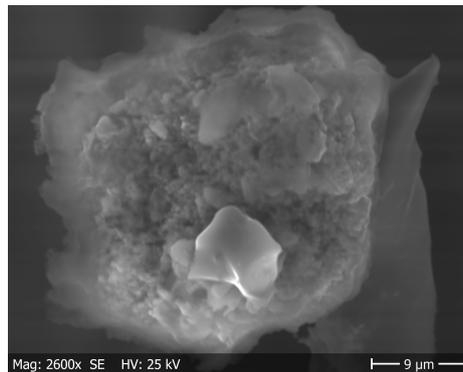
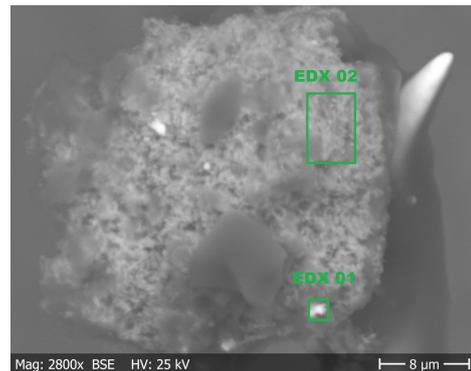


Abbildung 46 – Kop 04, Dionysos. Im Rückstreu-Kontrast (oben rechts) gibt es mehrere gut erkennbare helle Flecken. Bei sehr genauer Betrachtung erkennt man des Weiteren kleinere sehr helle Flecken im sub-Mikrometerbereich und eine insgesamt uneinheitliche Dichteverteilung über den Partikel verteilt. Des Weiteren zu erkennen sind zwei dunklere Flecken, die von einer im Vergleich zum restlichen Partikel weniger dichten Phase stammen und sich auch im Sekundärelektronenkontrast (unten links) deutlich erkennen lassen. Der Offset der Darstellung von EDX02 (unten rechts) beträgt: $\Delta Y = 0,2$ und $\Delta X = 400 eV$. Bezüglich der Zuordnung des EDX-Signals bei 2 keV, siehe Text.

Kop 04 (Dionysos) ist aus mehreren Gründe sehr ungewöhnlich. Zum Einen konnte in der Gamaspektrometrie trotz annähernd zehn Tagen Messzeit kein ^{137}Cs nachgewiesen werden, wohl aber - gemessen an seiner Größe - sehr geringe Aktivitäten von ^{154}Eu und ^{241}Am . Zum Anderen zeigen sich im Rückstreukontrast mehrere hellere Flecken, während der restliche Teil des Partikels deutlich weniger hell und zwei weitere abgrenzbare Bereiche deutlich dunkler erscheinen. Aufgrund der Aufnahme im Rückstreukontrast ist vom Vorliegen von mindestens drei Phasen in dem Partikel auszugehen.

Vergleicht man die EDX-Spektren des kleinen sehr hellen Bereiches (EDX 01) mit einem Spektrum aus einem etwas zentraler gelegenen Bereich (EDX 02), so erscheint das Signal des Ur-

ans vom hellen Fleck relativ gesehen etwas höher, aber auch aus der Mitte des Partikels kommt charakteristisches Uran-Signal, sowie ein erhöhtes Sauerstoffsignal und ein deutlich erhöhtes Signal bei 2 keV.

Im Rahmen des Auflösungsvermögens ist durch die EDX-Aufnahme nicht unterscheidbar, ob es sich bei dem Signal bei 2 keV um die charakteristische $L\alpha$ -Linie von Zirkonium (2,044 keV) oder die $K\alpha$ -Linie des Phosphor (2,010 keV) handelt. Aufgrund der EDX-Messungen von anderen zirkoniumhaltigen Partikeln, mit einer sehr ähnlichen Matrixzusammensetzung lässt sich jedoch die zu erwartende Höhe des $K\alpha$ -Signals des Zirkoniums bei 15,775 keV aus der L-Linie abschätzen und umgekehrt.

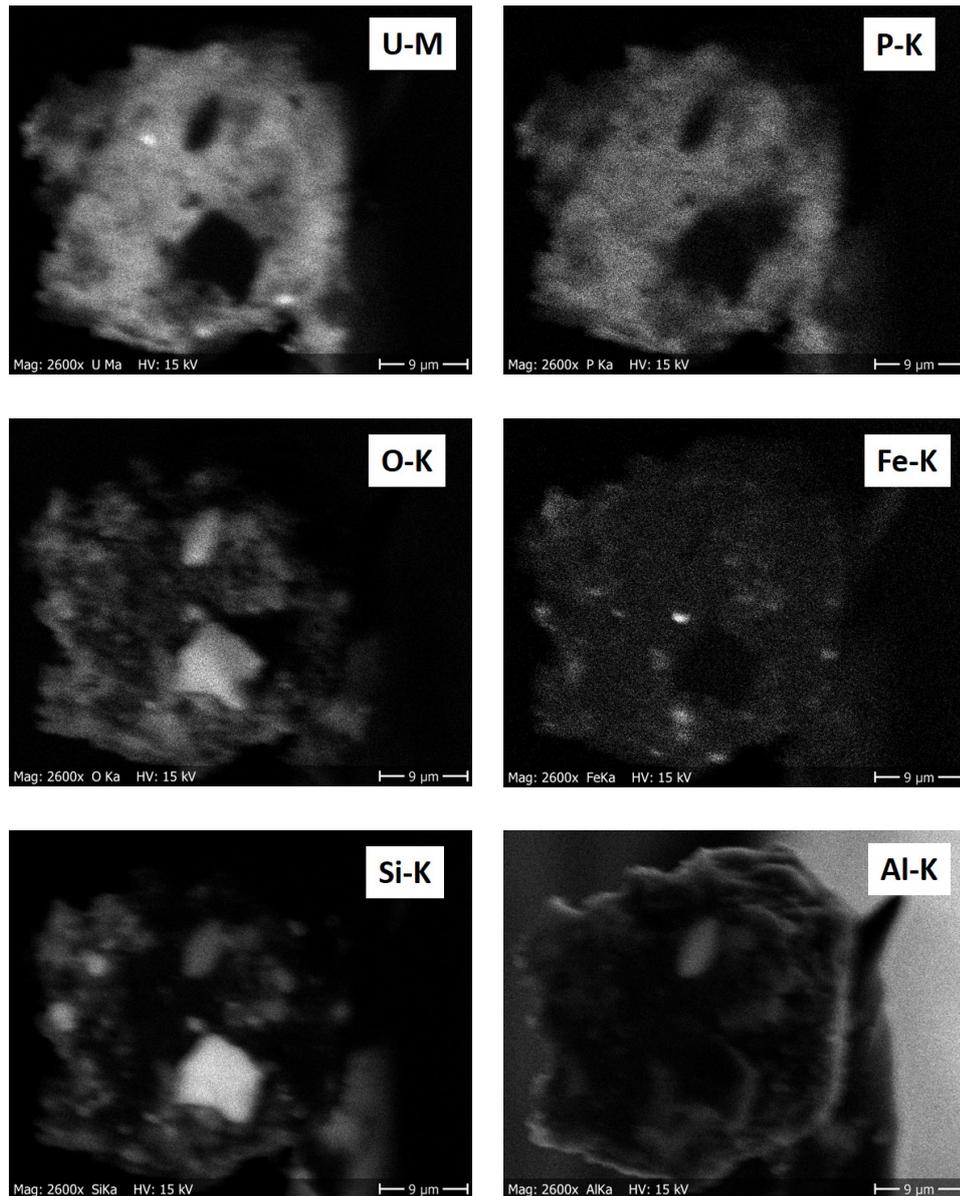


Abbildung 47 – EDX-Mapping von Kop 04 (Dionysos)

Vergleicht man die relative Höhe des 2 keV Signals von EDX 02 beispielsweise mit der Zirkoniumphase von Kop 01 Ares (Abb. 39) wird deutlich, dass es sich hierbei (größtenteils) nicht um Zirkoniumsignal handeln kann, da sich in diesem Fall zusätzlich ein deutlich größeres Signal bei 15,775 keV in EDX 02 zeigen müsste. Es ist daher wahrscheinlich, dass das 2 keV Signal von Dionysos überwiegend von Phosphor stammt. Das Spektrum vom hellen Fleck (EDX

01) zeigt ein deutlich geringeres Signal im Bereich von 2 keV und es deutet sich zudem ein Signal bei 15,775 keV an, so dass es sich bei dem 2 keV Signal in diesem Fall um eine Überlagerung beider Linien in einer ähnlichen Größenordnung handeln könnte. Dies lässt sich jedoch aufgrund der EDX-Analyse nicht sicher unterscheiden.

Die Verteilung von Uran und dem mutmaßlich Phosphor zuzuordnenden 2 keV-Signal wurde durch ein EDX-mapping genauer untersucht (siehe Abb. 47).

Die Signale von Uran und Phosphor korrelieren über einen weiten Teil des Partikels, mit Ausnahme der im Rückstreukontrast ebenfalls auffällig hellen kleinen Flecken, wo ein deutlich erhöhtes Uran-Signal und bei genauer Betrachtung kaum Phosphor-Signal vorhanden ist. Die dunkleren Bereiche im Rückstreukontrast stammen hauptsächlich von Silizium vergesellschaftet mit Sauerstoff und teilweise vergesellschaftet mit Aluminium (unten rechts, K-Linie), weshalb es sich bei diesen Phasen höchstwahrscheinlich um (Alumo-)Silikate handelt. Des Weiteren sind kleinere Einschlüsse von Eisen (Oxid) zu erkennen (mitte rechts, K-Linie), die ebenfalls mit einem Teil der dunkleren Bereiche im Rückstreukontrast korrelieren.

Aufgrund des vermuteten Phosphorsignals - welches gerade nicht von den hellen Fleck stammt, ansonsten aber mit dem Signal von Uran deckungsgleich ist scheint es plausibel anzunehmen, dass es sich bei der Matrix um eine Verbindung aus Uran und Phosphor handelt, die weniger dicht als Uranoxid ($10,97\text{g/cm}^3$), aber dichter als typische Silikatphasen ($\approx 2,65\text{g/cm}^3$) ist.

In diesem Fall könnte es sich um einen Uranoxidpartikel handeln an dessen Oberfläche eine noch nicht vollständig abgeschlossene Phasenumwandlung zu einer Uran-Phosphat-haltigen Phase stattgefunden hat. Ob es sich hierbei um einen direkten Phasenübergang handelt, oder sich eine Uranphosphat-Schicht, möglicherweise auch aus natürlichem Uran auf der Oberfläche des Uranoxidpartikels neu gebildet hat lässt sich hierbei aufgrund der bisherigen Untersuchungen nicht abschließend ermitteln.

Für die Abwesenheit nachweisbarer ^{137}Cs -Aktivität kommen prinzipiell physikalische (Destillation während des Reaktorunfalls) oder chemische Prozesse in Frage. Auf Basis der geäußerten Hypothese zur Phasenumwandlung ließe sich auch dieser Befund plausibel erklären: Das einwertige Kation Cäsium verlässt die Uranmatrix bei der Phasenumwandlung (Auflösung und Neubildung) fast vollständig, während ein Teil der dreiwertigen Kationen Europium und Americium offensichtlich in die neu gebildete Phase aufgenommen werden. Dies würde auch erklären, warum die Aktivität von ^{154}Eu und ^{241}Am im Partikel zwar gammaspektrometrisch quantifizierbar, aber gemessen an der Größe nur sehr gering waren und deren Verhältnis zu den Befunden in allen anderen analysierten Partikeln deutlich unterschiedlich war.

Möglicherweise handelt es sich bei Dionysos folglich um eine Zwischenstufe bei der Verwitterung von Reaktorpartikeln entweder im vorliegenden Boden oder aber im Reaktorgebäude. In beiden Fällen könnte eine weitere Untersuchung dieses Partikels wertvolle Hinweise zum Verständnis des Auflösungs- und Umwandlungsmechanismus der Reaktorpartikel liefern.

Auf dem selben Probenträger wie Dionysos wurde ein weiterer Partikel, **Kop 04b (Kastor)** entdeckt, der ebenfalls Uran enthielt siehe Abb. 48). Der Partikel hob sich im Rückstreukontrast nur sehr wenig von den umgebenden Bodenpartikeln ab und war deutlich weniger hell, als die hellen Flecken von Dionysos, der unter den gleichen Belichtungsbedingungen aufgenommen wurde. Die Morphologie des Partikels wirkt relativ glatt und ebenmäßig, aufgrund der Schattierung am Rand kann angenommen werden, dass es sich möglicherweise um ein relativ dünnes „Plättchen“ handelt.

id	Kop 04b (Kastor)
Typ	$U_x(SO_4)_y?$
Größe	$10 \times 10 \mu\text{m}$

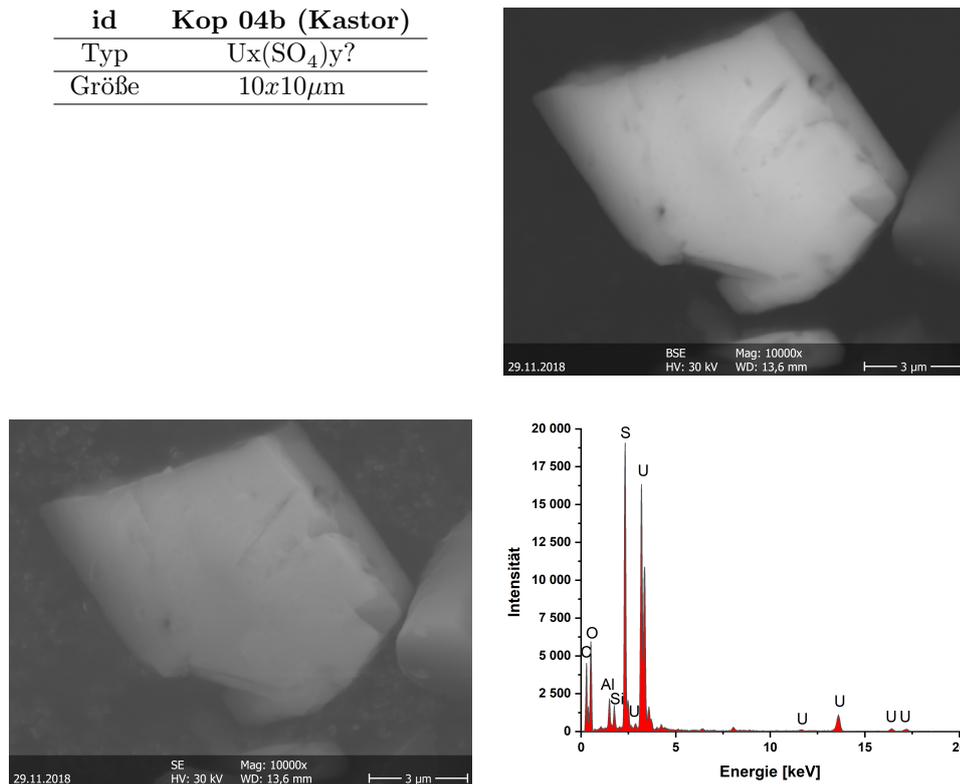


Abbildung 48 – Kop 04b, Kastor

Das EDX-Spektrum von Kop 04b (Kastor) zeigt bei 2,3 keV ein Signal, das eindeutig Schwefel zuzuordnen ist und in keinem weiteren der untersuchten Partikel gefunden wurde. Dies, in Verbindung mit dem vergleichsweise geringen Rückstreukontrast, legt die Vermutung nahe, dass es sich bei dem Partikel um eine Mischphase aus Uran und Schwefel handelt, wobei es aufgrund der chemischen Eigenschaften beider Elemente sehr wahrscheinlich ist, dass diese Phase der Gruppe der Uransulfate zuzuordnen ist. Über die genaue Genese dieses Partikels lässt sich nur spekulieren. Der Partikel zerbrach beim Versuch, ihn auf eine Nadel zu kleben und konnte daher im Rahmen dieser Arbeit nicht weiter untersucht werden. Es wäre denkbar, die übrigen Bruchstücke noch einmal aufzunehmen, allerdings sind diese für das Herauslösen mit dem Mikromanipulator inzwischen extrem klein, so dass sie beim Versuch der Aufnahme größtenteils im Kleber verschwinden dürften. Auch besteht hier aufgrund der Größe kaum noch Hoffnung, zu einer Aktivitätsbestimmung von Zerfallsprodukten mittels Gammastrahlungsspektrometrie zu gelangen. Aufgrund der fehlgeschlagenen Aufnahme auf die Nadel konnte bisher nicht sicher gesagt werden, ob sich in der Matrix von Kastor Reaktoruran oder natürliches Uran befindet.

Allerdings ist Kastor in seiner Morphologie den Na-S-U-O-Phasen, welche als sekundäre Uranpartikel innerhalb des Sarkophages von Reaktorblock 4 gefunden und beschrieben wurden[106], nicht unähnlich, und es könnte sich hier um ein Bruchstück einer ähnlichen Phase handeln. Ob diese im Reaktor oder im Boden des Testfeldes entstanden ist, lässt sich aufgrund der bisherigen Ergebnisse nicht sagen.

Der interessanteste gefundene Partikel ist **Kop 07 (Gaia)** (siehe Abb. 49). Bei diesem Partikel handelt es sich um mehrere in eine Alumosilikatmatrix eingebettete Einschlüsse von verschiedenen Uran-, -Zirkon, und Uran-Zirkon-Mischphasen.

id	Kop 07 (Gaia)
Typ	Lava Fragment ?
Größe	200x150µm
A(¹³⁷ Cs)	155,0 ± 0,8 Bq
A(²⁴¹ Am)	7,89 ± 0,09 Bq
A(¹⁵⁴ Eu)	0,73 ± 0,03 Bq

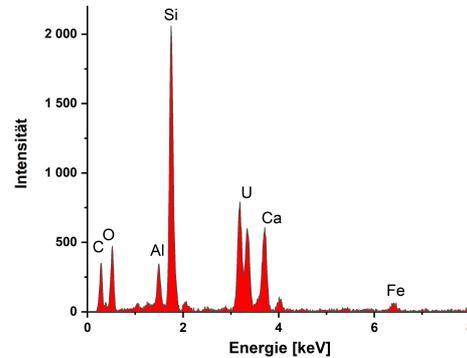
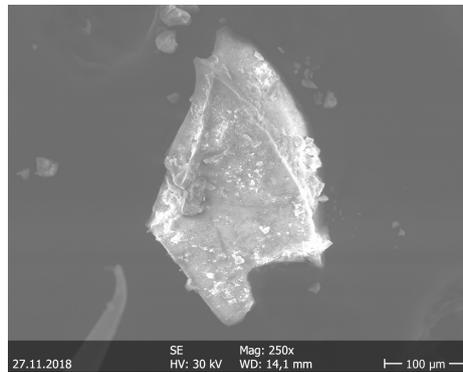
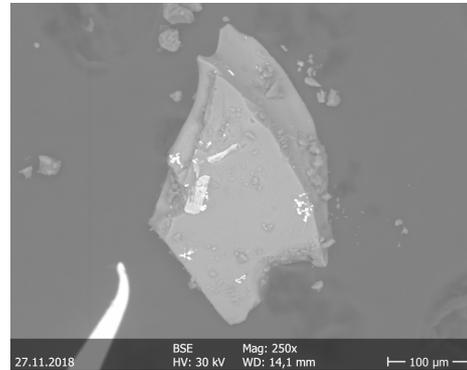


Abbildung 49 – Kop 07, Gaia

Dieser Partikel ist von besonderem Interesse, da er einer offensichtlich anderen Genese unterliegt als alle anderen in Kopachi gefundenen Partikel. Er ähnelt in seiner Zusammensetzung in der Literatur beschriebenen Fragmenten von erkalteter Lava, wie sie bisher nur aus dem Inneren des Reaktorgebäudes bekannt sind. Die Bedingungen für ihre Entstehung stellten sich erst einige Tage nach der Reaktorexpllosion etwa ab dem 02.05.1986 ein, als der sich immer weiter aufheizende Reaktorkern begann, das umgebende Gebäudematerial zu schmelzen und sich mit diesem gemeinsam als Lava fortzubewegen.

Anhand der bisherigen Ergebnisse ist es nicht möglich zu sagen, zu welchem Zeitpunkt genau der Partikel auf dem Testfeld von Kopachi deponiert wurde, aber aufgrund der rapiden Abnahme der Emissionen im Zuge der Liquidatorenarbeiten und der zu dieser Zeit herrschenden Windverhältnisse scheint eine Emission zwischen dem 02.05.1986 und 06.05.1986 am wahrscheinlichsten. Spätestens mit Abschluss der Arbeiten am Sarkophag sollte der Austritt solcher Partikel verhindert worden sein.

Die Existenz von Lava-Partikeln ist außerhalb des Reaktorgebäudes in der Literatur bisher nicht beschrieben und entsprechend sind noch viele wissenschaftliche Fragestellungen offen. So ist weder der genaue Zeitpunkt der Emission bekannt, noch wieviele dieser Partikel in den Böden der Reaktor Umgebung vorkommen und welches Nuklidinventar sie bergen. Auch stehen entsprechend noch keine Informationen zu Ihrer Auflösung in Böden zur Verfügung.

Aufgrund der Ergebnisse der Gammaskopie von Gaia lässt sich sagen, dass für diesen Partikel - im Vergleich zu den weiteren auf dem Testfeld gefundenen Partikeln - durchschnittliche Aktivitätsverhältnisse von ¹³⁷Cs, ²⁴¹Am und ¹⁵⁴Eu gefunden wurden. Zwar handelt es sich bei den Brennstoffphasen des Partikels um ein heterogenes Gemisch und die Gamma-Analyse

liefert hier ein gemitteltetes Signal über alle Phasen, es scheint aber aufgrund der Ergebnisse sehr wahrscheinlich, dass keine einzige dieser Phasen seit der Explosion eine wesentliche chemische Umwandlung vollzogen hat.

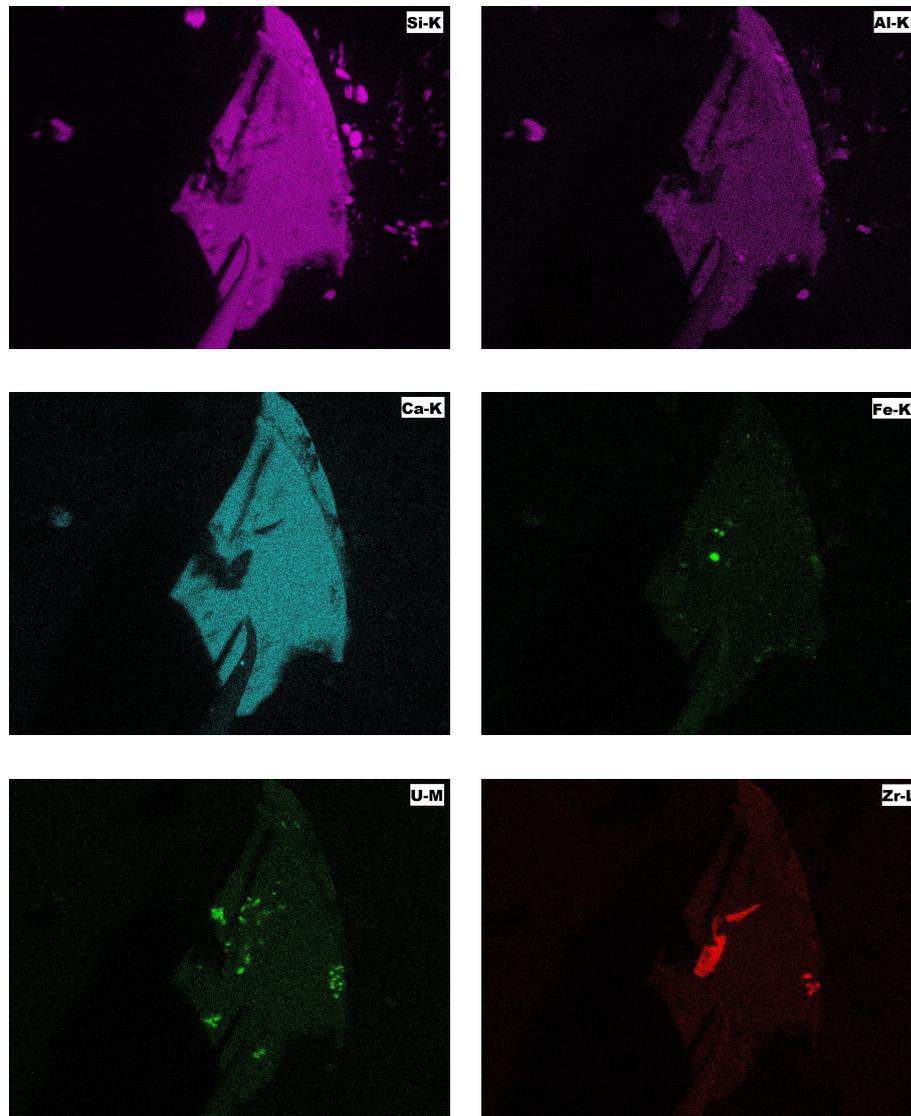


Abbildung 50 – EDX-Mapping von Gaia. Deutlich zu erkennen ist das Vorhandensein einer Partikelmatrix aus Silizium (oben links), Aluminium (oben rechts) und Calcium (Mitte links). Darin eingeschlossen befinden sich kleinere Fragmente aus Uran (unten links), teilweise korreliert mit Zirkonium (unten rechts). Auch kleinere Einschlüsse von Eisen (Mitte rechts) sind zu erkennen.

Die (mutmaßliche) Alumosilikatmatrix - und mit ihr die eingebetteten Reaktorpartikel - wirken im Sekundärelektronenkontrast, wie im Rückstreukontrast über dreißig Jahre nach dem Unfall noch völlig intakt und zeigen keinerlei Auflösungserscheinungen. Gaia ist von allen gefundenen Partikeln der mit Abstand größte, was ebenfalls für eine hohe Persistenz gegenüber Witterungseinflüssen spricht.

4.3 Sequentielle Extraktion von einzelnen Reaktorpartikeln nach einem modifizierten Zeien und Brümmer-Schema

Das Extraktionsschema nach Zeien und Brümmer wurde sehr allgemein für die Extraktion von Schwermetallen in einer großen Bandbreite an Böden konzipiert. In den vorangegangenen Experimenten konnte gezeigt werden, dass sich sowohl das Inventar an Radiocäsium, als auch das Radiostrontium in nur einem Teil der untersuchten Bodenphasen wiederfindet. Dies sind die bioverfügbare Fraktion (Fraktionen 1 u. 2), sowie die Residualfraktion (Fraktion 7), sowie im Fall des Radiocäsiums zu einem geringen Prozentsatz die Fraktion 6, welche - aus klassischer bodenkundlicher Sicht - mit der Bindung an kristalline Fe-Oxide assoziiert wird. Sequentielle Extraktionen geben jedoch allenfalls Hinweise darauf, in welcher chemischen Form, bzw gebunden an welche Phasen die Analyten im Boden vorliegen.

Im Fall der Radioanalytik makroskopischer Mengen Boden aus der Umgebung von Kopachi wird diese Interpretierbarkeit zusätzlich durch die zu erwartende Auflösung der noch teilweise intakten Brennstoffpartikel [120, 154] und der folgenden Freisetzung von weiteren Spaltprodukten erschwert. Insbesondere für das Radiocäsium lassen sich Daten aus der Zeien und Brümmer Extraktion kaum mit dem Anteil an noch immer partikulär gebundenem Inventar korrelieren, was vor allem daran liegt, dass die Bindung von Cäsium an - ubiquitär im Boden vorhandenen - Tonpartikeln selbst so stark ist, dass hier erst von einer überwiegenden Extraktion im letzten Extraktionsschritt (Residualfraktion) ausgegangen werden kann, bei der ebenfalls die Auflösung der Uranpartikel erwartet wird. Im Anschluss an die vorangegangenen Experimente sollte untersucht werden in welchen Extraktionsschritten ^{90}Sr aus Reaktorpartikeln gelöst wird, um die Ergebnisse der Extraktionen der Kopachi-Böden in Hinblick auf den noch immer partikulär gebundenen Anteil an Radionukliden besser interpretieren zu können.

Das hierfür verwendete Extraktionsschema (siehe Tabelle 19) entspricht in den ersten drei Stufen, den Stufen 1,2 und 7 des Extraktionsschema nach Zeien und Brümmer, in welchen in den vorhergehenden Untersuchungen der Tschernobyl-Böden praktisch das gesamte Sr-Inventar gefunden wurde. Als vierte Fraktion wurde zusätzlich ein Flussäureaufschluss durchgeführt, um sicherzustellen, dass die Uranoxidpartikel vollständig aufgelöst wurden.

Tabelle 19 – Extraktionssequenz zur Bestimmung der Bindungsstärke von Radiostrontium in partikulär kontaminierten Böden. Die Summe der beiden ersten Fraktionen entspricht der "bioverfügbaren" Fraktion. Fraktion 3 und 4 potentiell der partikulär gebundenen Fraktion

Fraktion	Bindungsform	Extraktionsmittel
1	mobil	1 MNH_4NO_3
2	leicht nachlieferbar	1 MNH_4OAc
3	"Residual"	Konz. HClO_4 , Konz HNO_3 , rauchend
4	Bodenskelett	HF

Aus den bereits im vorangegangenen Kapitel vorgestellten Partikeln vom Testfeld wurden die Partikel Kop2 (Bellerophon) und Kop8 (Herakles) als typische Vertreter der Uran-Oxid Partikel ausgewählt, um zunächst für diesen, am häufigsten gefundenen Partikeltyp, die Bindungsstärke von Sr-90, sowie der Gamma-emittierenden Radionuklide ^{137}Cs , ^{241}Am und ^{154}Eu zu bestimmen. Beide Partikel verfügten zudem über ausreichend Aktivität, (80, bzw 23,1 Bq ^{137}Cs), um mit hoher Wahrscheinlichkeit auch über ein nachweisbares Level an Sr-90 zu verfügen.

Die Abb. 51 zeigt den Zustand der Partikel im Anschluss an die Gamma-Messungen und unmittelbar vor der Auflösung.

Beide Partikel wurden jeweils vorsichtig durch Abstreifen in ein 50 ml Zentrifugenröhrchen aus Polypropylen überführt, in welches zuvor 1g eines als unkontaminiert geltenden Referenzbodens (Refesol 01) vorgelegt worden war. Der Erfolg des Abstreifens ließ sich dabei mit dem Kontaminationsmonitor verfolgen. Die Zugabe von 1 g zusätzlichem Boden geschah, um Matrix und Extraktionsbedingungen der Zeien und Brümmer Vorschrift, wie sie auch für die Bodenproben der vorangegangenen Untersuchungen vorlagen, möglichst exakt reproduzieren zu können.

Parallel zur Auflösung der beiden Partikel wurden zwei Kontrollproben untersucht (siehe Abb. 52). Die erste Kontrollprobe beinhaltete 1 g Refesol 01 ohne Zugabe von Aktivität und stellte die Blindprobe dar. Des Weiteren wurde ein vom VKTA zur Verfügung gestellter Sand-

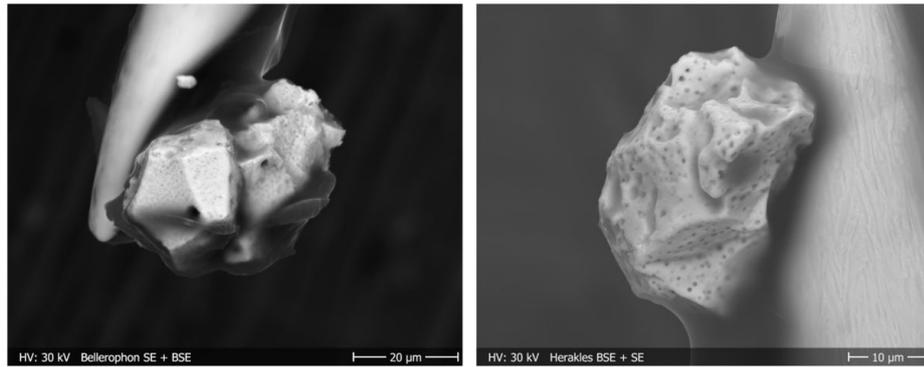


Abbildung 51 – Addition von Sekundär- und Rückstreuelektronenbild der beiden zur Auflösung bestimmten Reaktorpartikel. Links: Kop2 Bellerophon. Rechts Kop8 Herakles. Hell sichtbar sind die facetten- und porenreichen Uranoxidpartikel, sowie die Wolframnadel. Im dunkel schattierten Bereich dazwischen befindet sich der Kleber.

boden untersucht, der durch ein Leck in einem Flüssigkeitslager des Forschungsreaktors eine Kontamination mit ^{90}Sr aufwies. Dieser Boden diente als Vergleich der Extrahierbarkeit von nicht-partikulärer ^{90}Sr -Kontamination, welche sich in einem realen Boden über Jahre etablieren konnte (Alterung). Genauere Informationen zu den Böden und der Kontaminationshistorie des VKTA-Bodens, siehe Material und Methoden. Ein Analysezertifikat des VKTA-Bodens findet sich im Anhang.

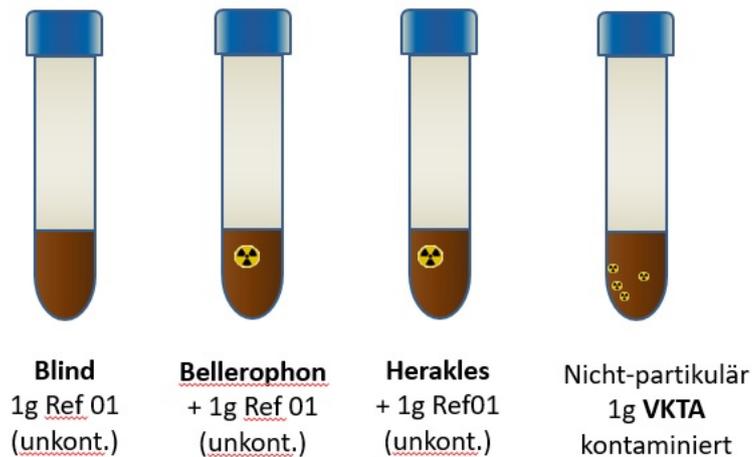


Abbildung 52 – Proben für die sequentielle Extraktion nach dem modifizierten Zeien und Brümmer Schema. Die Partikel werden jeweils mit 1 g eines unkontaminierten Bodens versetzt und durchlaufen mit diesem gemeinsam die Analysesequenz.

Alle vier Proben wurden im Anschluss mit dem modifizierten Zeien und Brümmer Schema extrahiert. Hierfür wurden sämtliche Mengenangaben der Originalvorschrift (die für den Einsatz von 2 g Boden ausgelegt ist) halbiert und im Anschluss an die Extraktion der Residualfraktion ein Aufschluss mit Flusssäure nach folgendem im Haus etablierten Schema durchgeführt:

Die verbliebene Probe wurde mit 10ml HNO_3 (69 %) und 10 ml HF (48 %) und einem ^{85}Sr Wiederfindungsstandard versetzt und unter der Heizlampe bis zur Trockene eingedampft. Weitere 20 ml HF (48 %) wurden hinzugegeben und es wurde abermals bis zur Trockene eingedampft. Der Vorgang wurde ein weiteres Mal wiederholt mit jeweils 10 ml HNO_3 und 10 ml HF und die Probe anschließend in 20 ml HNO_3 aufgenommen. Nach dem Aufschluss war in den Probegefäßen keinerlei fester Rückstand mehr zu erkennen und die Proben wurden in 20 ml einer Lösung aus Aluminiumnitrat ($c=1$ mol/l) in verdünnter Salpetersäure (3M) aufgenommen

und über Nacht rühren gelassen. Anschließend wurden die Proben über Faltenfilter filtriert und das Filterpapier zweimal mit jeweils 2,5 ml verdünnter Salpetersäure gewaschen.

Die erhaltenen Extrakte aller vier Sequenzen wurden zunächst mit Wasser auf eine gemeinsame Füllhöhe von 30 ml aufgefüllt und gammaspektrometrisch, relativ zu einem füllhöhenäquivalenten Multielementstandard (siehe Herstellung eines Geometriestandard 3.3.5), in 30 ml 1 M NH_4NO_3 -Lösung vermessen. Die Ergebnisse der gammaspektrometrischen Analyse sind in Tabelle 20 zusammengefasst.

Tabelle 20 – Ergebnisse der Gammamessung der Partikelextrakte nach dem modifizierten Zeien und Brümmer Schema. Die Angaben „kleiner als“, beziehen sich auf die Nachweisgrenze gemäß DIN ISO 11929.

	F1 NH_4NO_3 Bq [±]	F2 NH_4Ac Bq [±]	F3 $\text{HNO}_3 +$ $\text{HClO}_4 + \text{T}$ Bq[±]	F4 HF Bq[±]	Gesamt Extraktion Bq[±]	Gesamt Partikel Bq[±]
Kop02 Bel.						
^{137}Cs	0,08	< 0,09	74 [2]	< 0,1	74 [2]	80,1 [0,6]
^{241}Am	< 0,04	< 0,05	3,7 [0,2]	< 0,04	3,7 [0,2]	3,61 [0,05]
^{154}Eu	< 0,05	< 0,06	0,3 [0,05]	< 0,04	0,3 [0,05]	0,35 [0,03]
Kop08 Her.						
^{137}Cs	1,84 [0,09]	0,05 [0,02]	20,5 [0,6]	0,03 [0,02]	22,6 [0,7]	23,2 [0,2]
^{241}Am	< 0,05	< 0,02	1,41 [0,05]	< 0,02	1,41 [0,05]	1,41 [0,02]
^{154}Eu	< 0,06	< 0,03	0,13 [0,02]	< 0,03	0,13 [0,02]	0,096 [0,002]

Die Extrakte 1-3 wurden anschließend, analog der Herstellung der ^{90}Sr -Proben in Abschnitt 4.1.5, mit einer bekannten Aktivität ^{85}Sr versetzt und alle Proben danach vorsichtig eingengt und in 8M HNO_3 wieder aufgenommen. Anschließend fand eine Abtrennung des ^{90}Sr mit Hilfe des Austauschharzes Sr-Resin statt. In den abgetrennten Eluaten wurde die Wiederfindung des ^{85}Sr gammaspektrometrisch bestimmt. Anschließend wurden die Proben mit LSC-Cocktail Ultima ABGold im Verhältnis 3:17 gemischt und eine Einwachsperiode des ^{90}Y von mindestens drei Wochen abgewartet. Daraufhin wurde der ^{90}Sr Gehalt am Quantulus mittels Kalibriergeradenmethode über das ^{90}Y Signal quantifiziert (Ergebnisse, siehe Abb. 53).

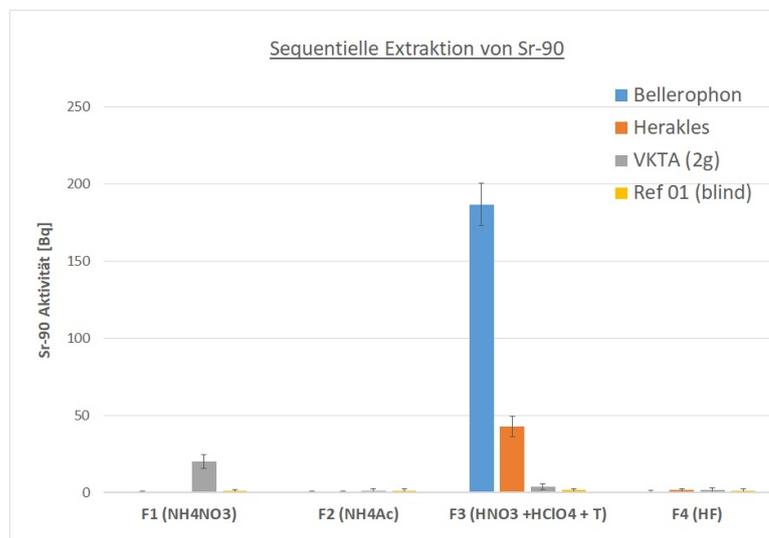


Abbildung 53 – Ergebnisse der sequentiellen ^{90}Sr Extraktion aus den beiden Partikeln und den beiden Kontrollen.

Alle vier untersuchten Radionuklide konnten in den Extrakten quantifiziert werden, wobei die gammaspektrometrischen Ergebnisse der ersten drei Fraktionen klar zeigen, dass die Nuklidverluste im ersten Schritt der Auflösung und vor der Zugabe des internen Sr-Standards relativ gering sind. ^{241}Am und ^{154}Eu lagen in allen Fraktionen, außer Fraktion 3 unterhalb

der Nachweisgrenze, während sich in Fraktion 3 für beide Partikel nahezu 100 % der zuvor im Partikel bestimmten Aktivität wiederfand.

Ein ähnliches Bild zeigt sich für das ^{137}Cs , wobei sich hier, insbesondere im Fall des Herakles ein kleiner Teil (8 %) des ^{137}Cs bereits in Fraktion 1, sowie ein noch wesentlich kleinerer Teil in Fraktion 2 gelöst hat. Dies ist insbesondere interessant, wenn man es mit den Ergebnissen der ^{90}Sr Bestimmung vergleicht. Für dieses finden sich für beide Partikel über 99 % der Aktivität erst in der Residualfraktion wieder, was die Vermutung nahelegt, dass es sich bei dem aufgelösten Cäsium der ersten zwei Fraktionen um schwach anhaftende Aktivität - in Form von Sorption oder einer angelagerten sekundären Phase - handelt, während die Uranoxidphase von diesen Extraktionsmitteln in keiner Weise angegriffen wurde.

Die Ergebnisse zeigen des Weiteren deutlich, dass die beiden Uranoxidpartikel durch abrauchen mit einem Gemisch aus konzentrierter Salpetersäure und Perchlorsäure vollständig aufgelöst werden, was von großer Bedeutung für die Interpretation der Ergebnisse der sequentiellen Extraktionen an den Bohrkernproben ist. Hier kann man davon ausgehen, dass zumindest sämtliche nicht-zirkonhaltigen Uranoxidpartikel aufgelöst wurden.

Besonders spannend für die Interpretation der Bohrkernexperimente ist hierbei die Verteilung der ^{90}Sr Aktivität des VKTA Bodens. Hier wurden nach jahrzehntelanger Alterung im Boden zwar immer noch 80 % des Radiostrontiums in bioverfügbarer Form (76 % mobil, 4% nachlieferbar) gefunden, allerdings fanden sich auch 13 % in der Residualfraktion und selbst in der Flussäurefraktion wurden noch 6 % der Gesamtaktivität gefunden.

Der Anteil des residual gebundenen ^{90}Sr im VKTA Boden entspricht demjenigen, der auch in den Extraktionen der Bohrkern aus Tschernobyl als Durchschnittswert ermittelt wurde. Aufgrund der Heterogenität der Aktivität in den CEZ-Böden und der gefundenen ^{90}Sr -haltigen Partikel ist klar belegt, dass ein Teil des Inventars auf dem Kopachi-Feld noch immer partikulär gebunden ist. Aufgrund der im VKTA-Boden gefundenen nicht-partikulär aber dennoch residual (nach Z. u. B) gebundenem ^{90}Sr Aktivität scheint es jedoch verfrüht, diese Aktivität zum größten Teil mit partikulär gebundenem ^{90}Sr zu assoziieren.

Vielmehr weisen die Ergebnisse aus der sequentiellen Extraktion des VKTA Bodens darauf hin, dass der größere Teil des residual gefundenen ^{90}Sr im Kopachi Boden tatsächlich im Boden durch Verwitterungsprozesse gealtert sein könnte. Allerdings lassen sich die gemachten Beobachtungen aufgrund der Unterschiede der Böden hinsichtlich Bodenparametern, Umwelteinflüssen und Kontaminationshistorie nur bedingt vergleichen, weshalb die Wiederholung des Versuches mit einem sicher nicht-partikulär ^{90}Sr belasteten Boden aus der Tschernobyl Sperrzone wünschenswert wäre.

4.4 Zusammenfassung der Ergebnisse zur Radionuklidmigration

Auf dem Testfeld der Sperrzone konnte eine sehr heterogene Kontamination mit ^{137}Cs , ^{90}Sr , ^{154}Eu , und ^{241}Am nachgewiesen werden, wobei die Verteilung der beiden refraktären Nuklide ^{154}Eu und ^{241}Am deutlich inhomogener als die des ^{137}Cs waren, was darauf hinweist, dass der Eintrag des ^{137}Cs sowohl partikulären, als auch nicht-partikulären Ursprungs ist.

Die Tiefenverteilung für alle vier Nuklide war überraschend ähnlich, insbesondere zeigte sich auf dem Testfeld im Vergleich mit ^{137}Cs nur eine leicht erhöhte Mobilität der ^{90}Sr - Inventars.

Über sequentielle Extraktionen nach Zeien und Brümmer wurde gezeigt, dass sich 70% des hier erfassten ^{137}Cs in der Residualfraktion befanden, während ca 20 % bioverfügbar (Fraktionen 1 +2) vorlagen. Weitere 10 % wurden in der mit kristallinen Eisenoxiden assoziierten Fraktion 6 gefunden. Allerdings zeigte die Betrachtung der Wiederfindungsrate, dass möglicherweise nur etwa die Hälfte des Gesamtinventars durch die gewählte Extraktion aufgeschlossen wurde, weshalb der tatsächliche Residualanteil sehr wahrscheinlich höher angenommen werden muss.

Von ^{90}Sr wurden 68% ($\pm 10\%$) in der mobilen Phase und weitere 7% ($\pm 0,9\%$) in der leicht nachlieferbaren Fraktion gefunden. Damit wurden 75% ($\pm 11\%$) des ^{90}Sr als zum Zeitpunkt der Probenahme bioverfügbar identifiziert. Die Aktivitätsinventare der Fraktionen 2-6 zeigten hohe Korrelationen zum Aktivitätsinventar in der mobilen Fraktion, weshalb davon ausgegangen werden kann, dass sich zwischen den hiermit assoziierten Bodenkompartimenten weitgehend ein Gleichgewicht eingestellt hat. Die Gleichgewichtseinstellung für das residual gebundene Inventar war erkennbar weniger fortgeschritten, weshalb die Vermutung nahelag, dass es sich hier

teilweise um noch immer partikulär gebundenes Inventar handeln könnte.

Die Suche nach Reaktorpartikeln wurde mit der Durchsuchung von etwa 140 im Rahmen des Projektes gemessenen Bodenproben nach auffälligen hohen Messwerten begonnen. Die hierdurch vorausgewählten Bodenproben wurden mittels Geiger-Müller Zählrohren mit geringem Durchmesser systematisch nach Hot Spots durchsucht. Hierbei konnten insgesamt 12 Uranpartikel vom Testfeld isoliert und im Rasterelektronenmikroskop charakterisiert werden. Des Weiteren wurde eine Messmethode etabliert, die eine Quantifizierung der Gamma-Aktivität von einzelnen Reaktorpartikeln erlaubt.

Hierzu wurden die Partikel, welche nach einem im Haus entwickelten Verfahren zunächst im REM an einer Nadelspitze aus Wolfram fixiert wurden, in einem speziell hierfür angefertigten Probenhalter gammaspektrometrisch vermessen. Die Quantifizierung geschah relativ zu Punktquellenstandards welche auf dem Probenhalter in einer zu den Nadelspitzen identischen räumliche Position fixiert wurden.

Durch die elektronenmikroskopischen und gammaspektrometrischen Ergebnisse konnten 6 der gefundenen Partikel der Klasse der UO_2 Partikel zugeordnet werden. An zwei dieser Partikel wurden sequentielle Extraktionen nach einem, für die Strontiumanalytik optimierten, modifizierten Zeien und Brümmer-Schema durchgeführt. Hierbei wurde praktisch das gesamte Inventar des ^{90}Sr und über 90 % der ^{137}Cs Aktivität in der Residualfraktion nach Zeien und Brümmer wiedergefunden, während durch den anschließenden Flusssäureaufschluss keine weitere Aktivität extrahiert wurde. Es kann daher als sicher gelten, dass die Zeien und Brümmer Extraktion UO_2 -Partikel vollständig aufschließt und die Residualfraktion mit dem hierin gebundenen Inventar korreliert. Es konnte des Weiteren gezeigt werden, dass sich nicht-partikulär eingetragenes ^{90}Sr Inventar in einem parallel untersuchten Sandboden zu 13 % in der Residualfraktion wiederfand, was für eine signifikante Alterung auf diesem Bodentyp spricht. Dies erschwert die Korrelation von Residualfraktion und partikulärer Fraktion im Fall von bereits seit Jahren kontaminierten Böden erheblich.

Ein Partikel (Kop 06, Faina) der auf dem Testfeld gefunden wurde, war am ehesten der Klasse der UO_{2+x} Partikel zuzuordnen, er zeigte jedoch auch Ähnlichkeiten zu den UO_2 Partikeln. Ein Partikel (Kop 01, Ares) war sehr klar der Kategorie der ZrU_yO_x Partikel zuzuordnen, ein weiterer (Kop 10, Japetos) wurde aufgrund des Zirkoniumgehaltes ebenfalls dieser Kategorie zugeordnet, er zeigte jedoch eine ungewöhnliche Einbettung in eine Silizium-haltige-Matrix deren Genese unbekannt ist.

Drei der gefundenen Uranpartikel konnten eindeutig keiner der drei primären Partikelklassen zugeordnet werden. Bei Kop 04b, Kastor legen die elektronenmikroskopischen Befunde das Vorliegen einer U-S-O-Phase nahe, wie sie in der Literatur bereits für sekundäre Phasen von Reaktormaterial beschrieben wurden.

Bei Kop 04 Dionysos könnte es sich um ein Gemisch aus einer UO_2 und einer Uranphosphat-Phase, mit aufliegenden silikatischen Partikeln handeln. Die gammaspektrometrischen Ergebnisse legen nahe, dass es sich bei der Uran-Phosphat-Phase um eine aus Reaktormaterial umgebildete Phase halten könnte.

Kop 07, Gaia ist mit hoher Wahrscheinlichkeit ein sekundärer Partikel, der aus dem verflüssigten Konstruktionsmaterial des Kernreaktors auskristallisiert ist. Die Matrix ist eindeutig siliziumhaltig, mit einem hohen Anteil an Calcium, was auf Beton als den wahrscheinlichen Hauptursprung hinweist. Zusätzlich sind auch kleinere Einschlüsse von Eisen belegt, welche mutmaßlich aus dem Stahl des Reaktors stammen. In der Matrix sind sowohl Uran-, als auch Zirkon-, als auch Uran-Zirkon-Phasen eingebettet, wobei die gammaspektrometrische Analyse Aktivitätsverhältnisse für ^{137}Cs , ^{241}Am , und ^{154}Eu belegt, die mit denen von primären Reaktorpartikeln vergleichbar sind. Der Partikel zeigte keinerlei Anzeichen einer Auflösung und scheint gegenüber den Witterungsbedingungen des Testfeldes sehr stabil zu sein.

Damit konnten auf dem Testfeld ein Viertel der gefundenen Partikel nicht der primären Partikelfraktion nach Kashparov zugeordnet werden, wobei im Hinblick auf Genese und Transport der Partikel noch viele Fragen offen sind. Möglicherweise handelt es sich hierbei um einen lokalen Befund, der mit der in südlicher Richtung stattfindenden Emission in den Tagen vom 02.05.1986 - 06.05.1986 zusammenhängt. Zumindest die sekundären Phasen, die in Kop04, Dionysos und Kop04b, Kastor gefunden wurden, könnten auch eine Folge der Verwitterungsprozesse im Testfeld sein und folglich eher die zeitlichen Veränderungen des Reaktorinventars in den Böden der

Sperrzone abbilden.

5 Experimenteller Teil II Untersuchungen zum Einfluss der Pilzarten *Schizophyllum commune* und *Leucoagaricus naucinus* auf die Radionuklidaufnahme in Pflanzen

Ziel des BioVeStRa Projektes war es zu untersuchen, ob sich Hinweise für einen Einfluss der Pilzbeimpfung von Böden mit den beiden ausgewählten Pilzarten *Schizophyllum commune* und *Leucoagaricus naucinus* auf die Radionuklidaufnahme von Pflanzen finden lassen und diese nach Möglichkeit zu quantifizieren. Dabei lag der Fokus darauf, dass ein solcher Ansatz in einer realen Kontaminationssituation außerhalb des Labors funktioniert, weshalb ein wesentlicher Teil der Experimente auf dem bereits ausführlich beschriebenen Testfeld (siehe Abschnitt. 4.1.1) der Sperrzone von Tschernobyl stattfand. Als Modellpflanzen wurden hierfür Kartoffeln (*Solanum tuberosum*) und Winterroggen (*Secale cereale*) ausgewählt. Der folgende experimentelle Teil beschäftigt sich daher direkt (Pflanzenversuche) und indirekt (Sorptionsversuche) mit dem Einfluss der Pilze auf die Radionuklidaufnahme von ^{137}Cs und ^{85}Sr .

Als wesentliches Maß für diesen Einfluss werden in diesem Abschnitt Transferfaktoren herangezogen. Diese unterliegen in der Natur einer Vielzahl von äußeren Parametern, weshalb die untersuchten Gruppen ein möglichst hohes Maß an Ähnlichkeit in den Bedingungen Voraussetzung für eine Vergleichbarkeit der Transferfaktoren zwischen den Gruppen ist. Im vorhergegangenen experimentellen Abschnitt konnte bereits gezeigt werden, dass diese Vergleichbarkeit für einen der wichtigsten Parameter der Transferfaktorberechnung - die zur Verfügung stehende Aktivität im Boden - aufgrund der räumlichen und chemischen Heterogenität der Aktivitätsverteilung auf dem Testfeld mit hohen Unsicherheiten verbunden ist.

Um diese hohe Unsicherheit zu minimieren, wurden zwei verschiedene Ansätze verfolgt. Zum Einen wurden neben den Feldexperimenten auch Experimente an Topfpflanzen im Labor durchgeführt, wo eine wesentlich stärkere Kontrolle und Vergleichbarkeit des Aktivitätsinventars zwischen den verschiedenen Proben sichergestellt werden konnte. Zum Anderen wurde versucht, über die Probenahme aus dem individuellen Wurzelbereich jeder geernteten Pflanze zu einer Minimierung der Unsicherheit des Aktivitätsinventars im Hinblick auf die räumliche Heterogenität zu gelangen. Der letzte experimentelle Abschnitt beschäftigt sich zudem mit dem Versuch, über die Bestimmung des bioverfügbaren Inventars im Wurzelbereich jeder individuellen Pflanzenprobe auch die chemische Heterogenität der Aktivitätsverteilung im Boden zu minimieren um die Signifikanzschwelle der gemachten Beobachtungen zu senken.

5.1 Sorptionsgeschwindigkeit von Radiostrontium im Boden

Für die Durchführung der Topfexperimente unter Laborbedingungen sollten die drei Projektböden Ref 04, VKTA und CEZ (siehe Material und Methoden) künstlich mit ^{85}Sr kontaminiert werden, um die Aufnahme von Radiostrontium in die Pflanzen anschließend gammaspektrometrisch bestimmen zu können. Hierzu musste vor Beginn des Pflanzenwachstums sichergestellt sein, dass sich das hinzugegebene Radiostrontium in einem Gleichgewicht mit der Bodenmatrix befand, damit die Bestimmung der Radionuklidaufnahme vergleichbar und reproduzierbar erfolgte. Des Weiteren sollte der Einfluss der Gamma-Sterilisierung auf die Böden untersucht werden, um zu entscheiden ob eine solche Behandlung vor der Pilzbeimpfung sinnvoll ist, oder durch Störung der Boden-(Bio-)Chemie eher stört.

Hierzu wurden die drei Projektböden, sowie eine sterilisierte Charge des Refesol 04A (Ref 04) zunächst in einem Vorversuch mit einer Lösung aus ^{85}Sr versetzt und auf einem Überkopfschüttler geschüttelt. Im Abstand einiger Tage wurden von den insgesamt 18 Proben jedes Bodens jeweils drei entnommen und der Nuklidgehalt in der überstehenden Lösung gemessen, siehe Abb. 54. Aus den gemessenen Aktivitäten in der Lösung A_v wurde dann der K_d Wert zum Zeitpunkt der Probenahme gemäß Gleichung 19 bestimmt:

$$K_d = \frac{A_m}{A_v} = \frac{A_{\text{gesamt}} - A_v}{A_v} \quad (19)$$

Der Verlauf der K_d -Wert Einstellung ist in Abb. 56 dargestellt.

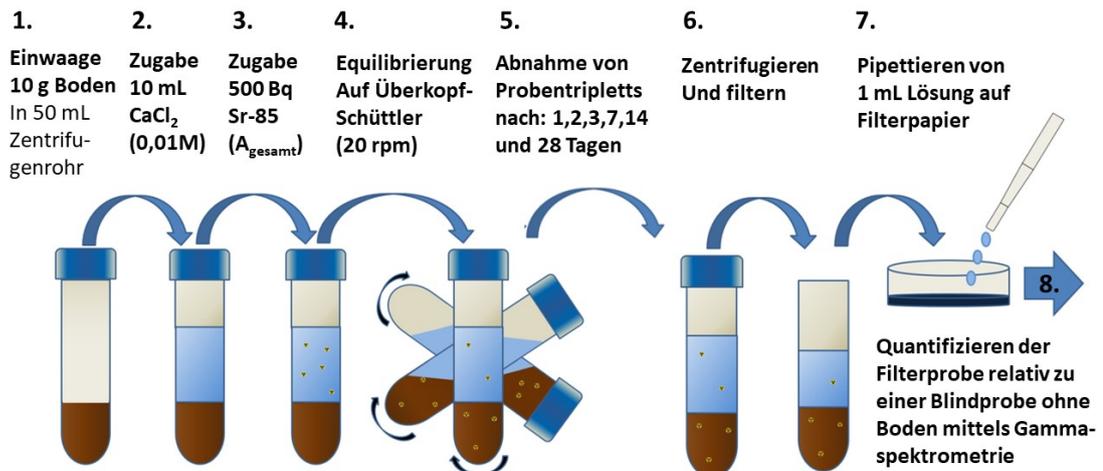


Abbildung 54 – Schema der Versuche zur Bestimmung der Sorptionskinetik von ⁸⁵Sr .

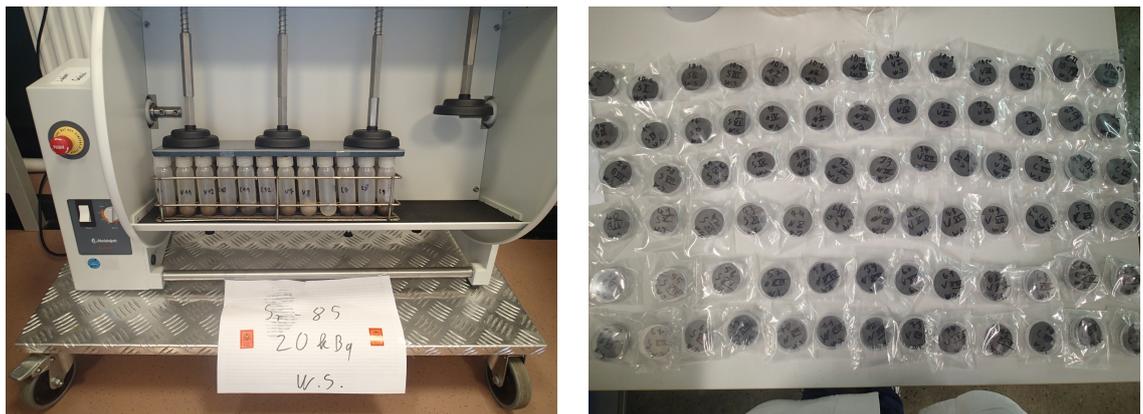


Abbildung 55 – Proben zur Bestimmung der Sorption von ⁸⁵Sr an den Projektböden. Links: Proben auf dem Überkopfschüttler. Rechts: Fertige Messpräparate für die Gamma-Spektrometrie

Die Einstellung eines Sorptionsgleichgewichtes war auf allen drei unsterilisierten Böden nach etwa 7 Tagen erreicht. Im Fall des sterilisierten Bodens ließ sich ein leichter Anstieg über die gesamte Dauer des Experimentes feststellen. Im sterilisierten Ref 04 lag der erreichte K_d -Wert bis zum Abschluss des Experimentes zudem deutlich niedriger als im unsterilisierten Refesol 4. Hier kann folglich von einem deutlichen Einfluss der Gamma-Sterilisierung auf die Sorptionseigenschaften des Bodens gesprochen werden, was wiederum auf einen relativ starken Zusammenhang zwischen Sr-Aufnahme im Boden und Mikrobiologie hindeuten könnte.

Unterschiede der drei unbehandelten Böden zeigten sich lediglich in der Höhe des erreichten Gleichgewichts- K_d , was zu erwarten war, da sich die drei Böden hinsichtlich der Anzahl und Art der vorhandenen Austauscherplätze unterscheiden. In Abbildung 57 ist die in den bodenkundlichen Untersuchungen ermittelte Kationenaustauschkapazität (KAK) der drei Böden gegen den ermittelten K_d -Wert aufgetragen.

Es zeigt sich ein linearer Zusammenhang zwischen Kationenaustauschkapazität und K_d . Dieser Befund entspricht auch den Erwartungen. So schlagen Gil-Garcia und andere [66] zur Abschätzung von Sr- K_d -Werten beliebiger Böden eine sehr vereinfachende Abschätzung in Abhängigkeit von Kationenaustauschkapazität, sowie Magnesium- und Calcium-Konzentration

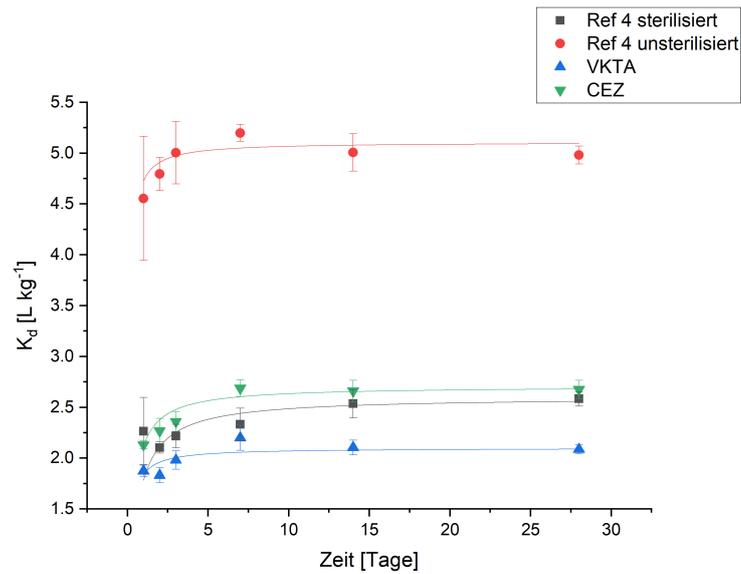


Abbildung 56 – Entwicklung des ^{85}Sr - K_d innerhalb von 28 Tagen nach Kontamination. Nach etwa 7 Tagen stellt sich auf allen drei Böden ein relativ konstantes Level ein. Unter Annahme eines konstanten, durch Sorption asymptotisch erreichten K_d -Wertes wurden die Daten mit folgender Formel gefittet: $y = \frac{tx}{tx+1} K_d$ mit den freien Parametern t und K_d .

in der Bodenlösung ($[Mg]_{SS} + [Ca]_{SS}$) gemäß Gl. 20 vor.

$$K_d(Sr) = \frac{KAK}{[Mg]_{SS} + [Ca]_{SS}} \quad (20)$$

Um diese Abschätzung zu überprüfen, wurden in der entnommenen Bodenlösung mittels ICP-OES und externer Kalibration zusätzlich die Gehalte an Ca und Mg bestimmt. Tabelle 21 listet die Konzentrationen der beiden Sr-Homologe, sowie die daraus ermittelten Vorhersagen gemäß Gleichung 20 auf. Neben der Abschätzung von K_d -Werten aufgrund obiger Gleichung (Ko-Kriterium Konzept) sind in der Tabelle zum Vergleich auch die tatsächlich ermittelten K_d -Werte, sowie eine „Abschätzung“ auf Basis des Textur/organische Materie Konzeptes[46] (siehe Abschnitt 2.2.3) angegeben:

Tabelle 21 – Vergleich von experimentell bestimmten $K_d(Sr)$ -Werten mit Daten aus der Literatur und Abschätzungen gemäß des Ko-Kriterium Konzeptes nach Gil Garcia et al. 2008 [66]

Boden	Ca_{SS} mM [\pm]	Mg_{SS} mM [\pm]	K_d , Vorhersage Gl. 20 kg l^{-1} [\pm]	K_d , Vorhersage IAEA kg l^{-1}	K_d , gefunden) kg l^{-1}
VKTA	9,6 [0,4]	0,4 [0,004]	3,4 [0,05]	110 (0,4–2400)	2,1 [0,04]
CEZ	6,9 [2,1]	1,6 [0,5]	5,0 [1,67]	160 (2–2500)	2,7 [0,05]
Ref 04	9,4 [0,07]	1,4 [0,001]	6,6 [0,05]	110 (0,4–2400)	5,1 [0,09]

Die Verwendung von 0,01 M CaCl_2 -Lösung bei der Equilibrierung bewirkt einen sehr niedrigen K_d Wert des ^{85}Sr in den vorhandenen Böden, der am untersten Ende des extrem breiten Vorhersagespektrums der IAEA-Vorschläge liegt. Zu beachten ist hierbei, dass die vorgeschlagene Bandbreite an K_d -Werten durch Anwendung des Textur/organische Materie-Kriteriums bereits deutlich reduziert wurde im Vergleich zu den insgesamt in der Literatur gefundenen Werten. Das Ko-Kriterium Konzept von Gil-Garcia et al. 2008 liefert hingegen eine wesentlich zutreffendere Vorhersage der tatsächlich gefundenen Werte. Im Rahmen dieser Arbeit konnte folglich bestätigt werden, dass die Vorhersage des Sr- K_d anhand der drei in Gleichung 20 verwendeten Parameter im Vergleich zum Textur/organische Materie Konzept wesentlich robuster ist.

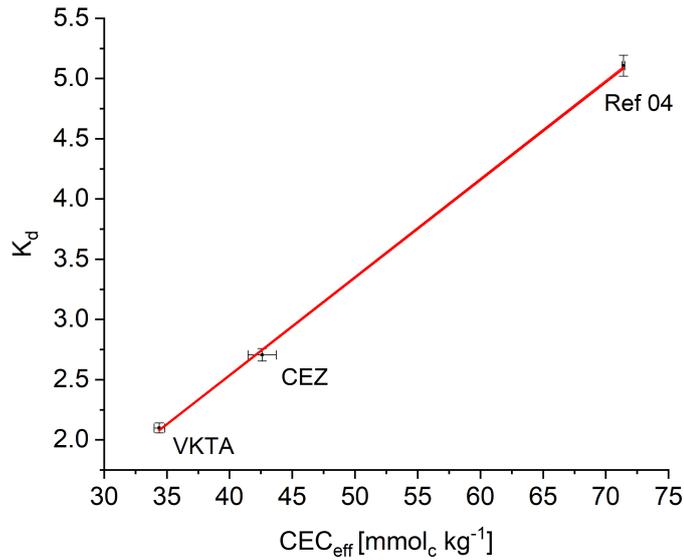


Abbildung 57 – $K_d(^{85}\text{Sr})$ vs Kationenaustauschkapazität der drei untersuchten Böden. Die Parameter der linearen Regression ($y = a + bx$) sind: $a = -0,71 \pm 0,10$
 $b = 0,081 \pm 0,002$; $r^2 = 0,999$; $\chi^2(\text{reduziert}) = 0,844$

Der Einfluss der Gamma-Sterilisation wurde im Anschluss ein weiteres mal am VKTA Boden überprüft, wobei der Versuchsablauf identisch zu dem des vorangegangenen Experimentes war. Zusätzlich wurde in diesem Versuchsdurchlauf bei jeder Probenahme zunächst der pH-Wert der Lösung gemessen, um zu überprüfen, in wieweit mögliche Änderungen hier einen Einfluss auf die Sr-Sorption haben. Die Entwicklungen des K_d -Wertes in diesem Experiment sowie die parallele Entwicklung des pH-Wertes sind in Abb. 58 dargestellt.

Anders als im Fall des Refesol 04A scheint die Gamma-Sterilisation auf die Sorptionskinetik von ^{85}Sr im VKTA-Boden keinen Einfluss zu haben. Dies liegt möglicherweise daran, dass es sich um einen Konstruktionsand aus einer Tiefe von mehreren Metern handelt, wo, im Vergleich zum Refesol 04A, kaum Organismen vorhanden sind. Die Ergebnisse der pH-Wert-Messung waren insofern aufschlussreich, als dass sie zeigen, dass sich das chemische Milieu in den abgeschlossenen Zentrifugenröhrchen während des Versuchsfortschrittes leicht ändert. Dies dürfte der Hauptgrund für das bei einigen Böden beobachtete leichte Absinken der gemessenen K_d -Werte im späteren Verlauf des Experimentes sein.

Aufgrund der Ergebnisse zum Sorptionsverhalten wurde entschieden, die Böden für die folgenden Gefäßexperimente im Labor zwei Wochen vor dem Einsetzen der Nutzpflanzen mit ^{85}Sr zu kontaminieren und während der Equilibrierungsphase Luftzutritt zu ermöglichen. Desweiteren wurde aufgrund des Einflusses der Gamma-Sterilisation auf die Sorptionskinetik und Kapazität in den weiteren Experimenten ausschließlich mit nicht-sterilisierten Böden gearbeitet.

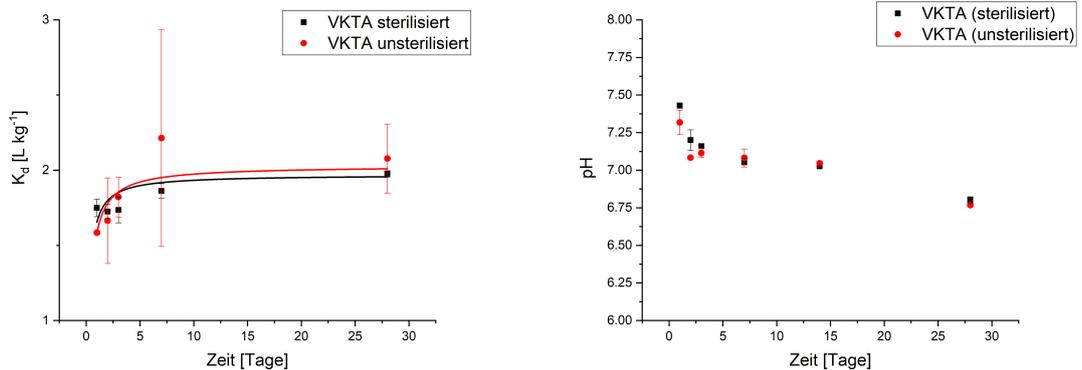


Abbildung 58 – Links: Kinetik der ^{85}Sr -Sorption im Verlauf von 28 Tagen Equilibrierung im VKTA Boden. Die Daten wurden mit folgender Formel gefittet: $y = \frac{tx}{tx+1} K_d$ mit den freien Parametern t und K_d . Der Datenpunkt der Probenahme nach 14 Tagen wurde im Graphen verworfen, da die Aufarbeitung hier fehlerhaft war. Der vollständige Graph mit einer Diskussion des Fehlers findet sich im Anhang. Rechts: Entwicklung des pH in der überstehenden Lösung.

5.2 Einfluss von *Schizophyllum commune* und *Leucoagaricus naucinus* auf den Transfer von ^{137}Cs und ^{90}Sr in Kartoffeln und Winterroggen unter Laborbedingungen

Um das Potential der untersuchten Pilzstämme für eine Rückhaltung von Radionukliden im Boden zu testen, wurden als eine Säule des Projektes Laborversuche unter kontrollierten Bedingungen durchgeführt. Insbesondere durch die Zugabe eines radioaktiven Tracers bekannter Aktivität, sowie durch gut vergleichbare Wachstumsbedingungen jeder einzelnen Pflanze sollten so Transfer-Faktoren ermittelt werden, die nicht durch die starke Heterogenität auf dem Versuchsfeld beeinflusst waren.

Hierzu wurden zunächst Bedingungen ermittelt, unter denen sich Roggen und Kartoffeln im Labor kultivieren lassen. Als Vorversuch diente eine kleine Wachstumsreihe mit je fünf Pflanzen auf Refesol 04A (2,5 kg Boden pro Topf). Diese wurde in den Klimaschränken des Instituts kultiviert. Die hierfür gewählten Parameter sind in Tabelle 22 zusammengefasst.

Tabelle 22 – Parameter der Klimasteuerung in den Laborexperimenten

	Tag	Nacht
Stunden	16	8
Temperatur	22°C	18°C
Luftfeuchte (rel.)	65 %	65 %

Die Wasser- und Nährstoffzugabe geschah mittels phosphatreduzierter *Hoagland-Lösung* (siehe Material und Methoden) ohne ein festes Regime nach Bedarf der Pflanzen, in der Regel zweimal wöchentlich. Unter diesen Bedingungen zeigten alle Pflanzen des Vorversuches einen angemessenen Wuchs (siehe Abb. 59).

Die Kartoffelpflanzen entwickelten sich unter den Klimakammer-Bedingungen zufriedenstellend und hatten bereits nach drei Monaten erste Knollen ausgebildet. Das Wachstum der Roggenpflanzen blieb hinter den Erwartungen zurück. Zwar bildeten sich zunächst gesunde Triebe aus, diese wuchsen jedoch nach einigen Wochen nicht mehr kräftig in die Höhe. Auch hatten sich nach 5 Monaten noch keine Fruchtstände an den Pflanzen ausgebildet. Vermutlich hatte die für die Roggenpflanzen notwendige Frostphase in den Klimakammern nicht ausgereicht um den späteren Fruchtbildungsprozess zu initialisieren (Vernalisation), da es hier immer wieder zu technischen Problemen durch Vereisung kam, die den Ausfall der Klimakammern verursachten.

Auch muss erwähnt werden, dass es während des gesamten Experimentes immer wieder zu technischen Problemen mit den Klimakammern kam, die dafür sorgten, dass diese für einige



Abbildung 59 – Status von Roggen- und Kartoffelpflanzen im Vorversuch nach drei Monaten

Zeit ausfielen, oder aber die Befeuchtung ausblieb und die Temperatur anstieg. Dies konnte im schlimmsten Fall über ein ganzes Wochenende zu erheblichem Stress für die Pflanzen führen, welchem vermutlich die Pflanzen auf dem am wenigsten für die Pflanzenaufzucht geeigneten VKTA-Boden am stärksten ausgesetzt waren.

Da die grundlegende Fragestellung des Projektes, nämlich ob die untersuchten Pilze einen Einfluss auf die Aufnahme in Pflanzen haben, grundsätzlich an allen gewachsenen Teilen der Pflanzen untersucht werden kann, wurden beide Pflanzenarten in die folgenden Experimente aufgenommen, wobei hier für die Untersuchung des Winterroggens jeweils nur die grünen Anteile (Stengel und Blätter) zur Aktivitätsbestimmung genutzt werden konnten.

Für das Hauptexperiment wurden zunächst die Böden kontaminiert. Für die Versuche auf dem CEZ-Boden standen vom Testfeld 43 kg relativ schwach kontaminierter Boden aus etwa einem Meter Tiefe, sowie 300 g Oberboden mit deutlich erhöhter Aktivität zur Verfügung. Diese wurden in einer großen Plastikwanne durch einstündiges Mischen von Hand homogenisiert. Zur Aktivitätsbestimmung wurden 4 repräsentative Stichproben genommen. Diese wurden in Petrischälchen eingewogen (ca. 65 g pro Probe) und der ^{137}Cs -Gehalt mittels Top-Bottom Methode gemessen (siehe Abb. 60).

In Anbetracht der wesentlich höheren Unsicherheiten durch weitere Parameter, wie Wachstumsbedingungen, chemische Fixierung und Messeffizienz wurde die Homogenität des CEZ-Bodens als ausreichend betrachtet. Der CEZ-Boden wurde im folgenden Experiment abweichend nicht nachträglich mit ^{137}Cs kontaminiert. Für die Berechnung der Transferfaktoren wurde in diesem Fall der errechnete Mittelwert der Stichprobenmenge herangezogen. Die weitere Kontamination aller Böden mit ^{85}Sr , sowie der Böden VKTA und Ref 04 mit ^{137}Cs geschah wie folgt:

Jeweils 3 kg luftgetrockneter Boden wurden in einen Plastikbeutel eingewogen, mit 100 ml Wasser befeuchtet und zunächst durch Walken von außen homogenisiert. Im Anschluss erfolgte die Zugabe der Aktivität (0,5-10 ml). Die applizierte Kontamination war dabei angepasst auf die (erwarteten) unterschiedlichen Transferfaktoren der beiden Pflanzen und wurde mit Hilfe tabellierter Mittelwerte für Sandböden aus [46] abgeschätzt. In Tabelle 23 sind alle Proben der Versuchsreihe, sowie applizierte Aktivitäten und Pilzbeimpfung aufgelistet.

Die Bodenproben wurden im Anschluss an die Nuklidapplikation abermals durch Walken homogenisiert und dann in der geschlossenen Plastiktüte im Abzug ruhen gelassen. Über vierzehn Tage wurde das Prozedere des Durchmischens dreimal wöchentlich wiederholt, um eine Gleichgewichtseinstellung der Nuklidverteilung zu gewährleisten, wobei die Tüten jedesmal zur Belüftung geöffnet waren.

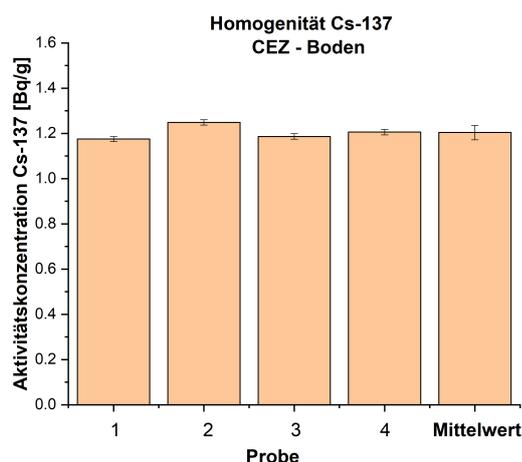


Abbildung 60 – Ermittelte Aktivitätskonzentrationen der 4 Stichproben im Anschluss an die Homogenisierung des CEZ-Bodens. Die Unsicherheiten der Einzelmesswerte entsprechen dem statistischen Fehler der Zählrate. Für den Mittelwert ist die einfache Standardabweichung angegeben. Referenzdatum 01.03.2018

Im Anschluss an die zweiwöchige Wartefrist wurden die Böden in den Plastikbeuteln mit den Pilzkulturen beimpft. Hierzu stand vom Projektpartner HZDR im Bioreaktor frisch hergestellte Biomasse zur Verfügung. Diese wurde direkt nach dem Herausnehmen aus dem Bioreaktor in sterile PE-Flaschen verpackt und gekühlt zum IRS geschickt, wo sie wiederum für 3 Tage im Kühlschrank gelagert wurden. Von dieser Frischmasse wurden jeweils 15 g mit je drei kg Boden eines Beutels vermischt und durch Kneten von außen eingearbeitet. Im Anschluss wurden die Böden weitere zwei Tage ruhen gelassen.

Danach wurden Pflanztöpfe mit den je drei kg Boden befüllt und gemäß Tab. 23 bepflanzt. Hierzu wurden im Fall des Winterroggens je 8 Körner pro Topf in etwa zwei Zentimeter Tiefe in den Boden gedrückt und dieser verschlossen. Die Kartoffeln wurden geteilt, so dass jedes zum Pflanzen vorbereitete Stück jeweils einen Okulus umfasste. Zwei Saatkartoffeln wurden daraufhin in ca. 4 cm Tiefe vergraben. Anschließend wurden die Töpfe reichlich angegossen und in die Klimakammern verbracht.

Die Wachstumsbedingungen der Pflanzen entsprachen denen des Vorexperimentes. Der einzige Unterschied lag in der dichteren Beladung der Klimaschränke. Das Wachstum der Pflanzen verlief auf den Refesol 4 Böden genau wie in den Vorexperimenten. Während der Roggen auf allen drei Böden zunächst ein ähnlich starkes Wachstum zeigte, wuchsen die Kartoffeln auf dem VKTA Boden deutlich schlechter als auf den anderen beiden Böden (siehe Abb. 61). Unterschiede zwischen dem Wachstum der Wachstumskontrolle und den weiteren Proben konnten in keiner der Gruppen festgestellt werden.

Nach knapp drei Monaten begannen die ersten Kartoffelpflanzen zu welken. Nach insgesamt 94 Tagen war der Großteil der angewachsenen Pflanzen entweder bereits vollständig verwelkt, oder im Prozess des Verwelkens. Da ab hier kein wesentliches Wachstum der Kartoffelknollen mehr zu erwarten war und auch das Kartoffel-Grün untersucht werden sollte, wurden sämtliche Kartoffelpflanzen nach 94 Tagen abgeerntet. Abbildung 62 zeigt den Zustand der Kartoffelpflanzen bei der Ernte.

Bei der Ernte wurden zunächst verbliebene Blätter und Stängel, die teilweise noch grün, teilweise bereits verwelkt waren abgetrennt, zerkleinert und bei 105 °C bis zur Gewichtskonstanz getrocknet. Die Kartoffeln wurden ausgegraben, von den Wurzeln befreit und mit einem Schwamm gründlich gewaschen (siehe Abb. 63). Nach dem Waschen wurde von Hand die Schale entfernt. Die geschälten Kartoffeln wurden klein geschnitten und bei 105 °C bis zur Gewichtskonstanz getrocknet.

Die getrockneten Proben wurden möglichst raumfüllend in Petrischalen aus Plastik eingewogen und versiegelt. Diese wurden dann im Verlauf der nächsten Wochen mittels Top-Bottom

Tabelle 23 – Pflanzenproben im Laborversuch. Von allen Gruppen (3 Böden x 2 Pflanzen) wurden jeweils Triplikate mit (L.N. + S.C.) sowie ohne (Kontrolle) Pilzbeimpfung durchgeführt. Des Weiteren wurde eine einzelne Probe ohne Aktivität und Pilzbeimpfung (Wachstumskontrolle) pro Gruppe angelegt. Referenzdatum 01.08.2017.

Probe ID	Boden	Pflanze	Pilzbeimpfung	⁸⁵ Sr kBq/3kg	¹³⁷ Cs kBq/3kg
1-3	VKTA	Kartoffel	-	308	100
4-6	VKTA	Kartoffel	S.C.	308	100
7-9	VKTA	Kartoffel	L.N.	308	100
10	VKTA	Kartoffel	-	-	-
11-13	VKTA	Roggen	-	1047	250
14-16	VKTA	Roggen	S.C.	1047	250
17-19	VKTA	Roggen	L.N.	1047	250
20	VKTA	Roggen	-	-	-
21-23	Ref04	Kartoffel	-	308	100
24-26	Ref04	Kartoffel	S.C.	308	100
27-29	Ref04	Kartoffel	L.N.	308	100
30	Ref04	Kartoffel	-	-	-
31-33	Ref04	Roggen	-	1047	250
34-36	Ref04	Roggen	S.C.	1047	250
37-39	Ref04	Roggen	L.N.	1047	250
40	Ref04	Roggen	-	-	-
41-43	CEZ	Kartoffel	-	308	-
44-46	CEZ	Kartoffel	S.C.	308	-
47-49	CEZ	Kartoffel	L.N.	308	-
50	CEZ	Kartoffel	-	-	-
51-53	CEZ	Roggen	-	1047	-
54-56	CEZ	Roggen	S.C.	1047	-
57-59	CEZ	Roggen	L.N.	1047	-
60	CEZ	Roggen	-	-	-

Methode gamma-spektrometrisch analysiert.

Die Roggenpflanzen waren zum Zeitpunkt der Kartoffelernte auf allen Böden gut entwickelt. Abbildung 64 zeigt den Zustand der Roggenpflanzen nach gut 3 Monaten Wachstum.

Wie auch in den Vorexperimenten bildeten sich keine Blütenstände und folglich auch keine Früchte aus. In der Hoffnung, dennoch eine weitere Entwicklung der Pflanzen über die Monate beobachten zu können, wurden diese noch weitere 4 Monate im Klimaschrank belassen. Die Ernte erfolgte, nachdem sich bis dahin keine weitere Entwicklung der Pflanzen gezeigt hatte, nach einer Wachstumsdauer von 214 Tagen.

Bei der Ernte wurden Blätter und Stängel der Pflanzen etwa 2 cm oberhalb des Boden abgeschnitten, grob zerkleinert und anschließend bei 105 °C bis zur Gewichtskonstanz getrocknet. In Abb. 65 sind die Erntemengen zusammengefasst.



Abbildung 61 – Zustand der Pflanzen nach 50 Tagen. Im oberen linken Bild von links nach rechts: Ref 04, VKTA, CEZ. In den anderen Bildern jeweils von links nach rechts: VKTA, Ref 04, CEZ. Gut zu erkennen ist, dass die Kartoffelpflanzen im VKTA-Boden deutlich schlechter wuchsen als in den anderen Böden. Das stärkste Wachstum zeigte sich auf den CEZ-Böden



Abbildung 62 – Zustand der Kartoffelpflanzen bei der Ernte (nach 94 Tagen).

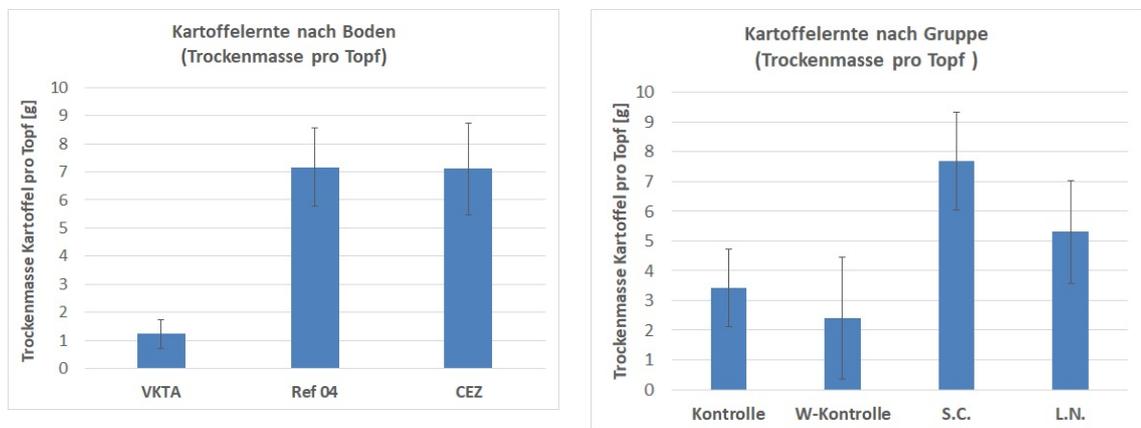


Abbildung 63 – Auswertung der Probemenge nach Böden und Behandlung. Oben: geerntete Frischmasse der Kartoffeln. Jedes Aluschiffchen enthält die gesamte Ernte eines Topfes. Unten Vergleich der geernteten Masse pro Topf (nach Schälen und Trocknen bis zur Gewichtskonstanz). Unsicherheiten = SEM, mit N = 3 für Wachstumskontrolle (W-Kontrolle), N=9 für Kontrolle, S.C. und L.N. und N=10 für VKTA, Ref 04 und CEZ. Rohdaten, siehe Anhang.



Abbildung 64 – Zustand der Roggenpflanzen nach 100 Tagen

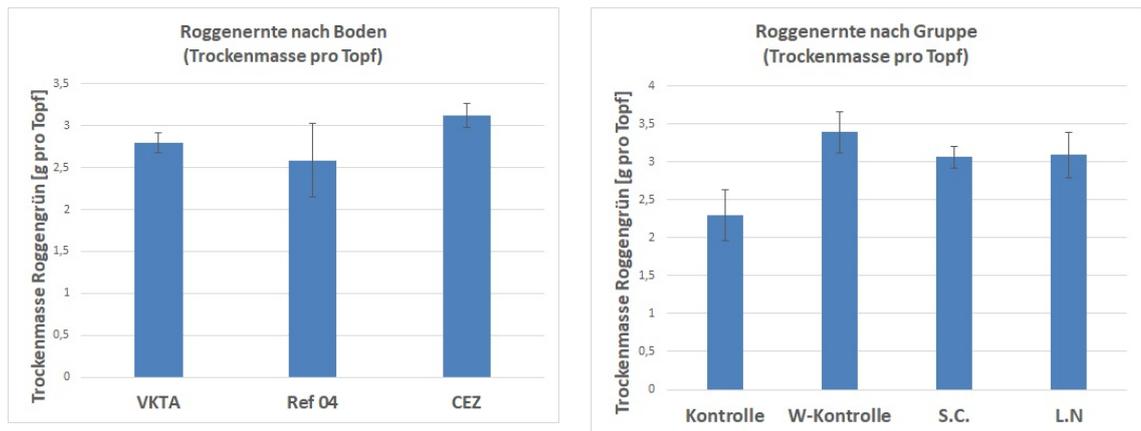


Abbildung 65 – Vergleich der Roggenernte zwischen den verschiedenen Böden und Behandlungen. Unsicherheiten = SEM, mit N = 3 für Wachstumskontrolle (W-Kontrolle), N=9 für Kontrolle, S.C. und L.N. und N=10 für VKTA, Ref 04 und CEZ. Rohdaten, siehe Anhang.

Im Anschluss an die Trocknung wurden die Grünproben möglichst raumfüllend in Petrischälchen verpackt und mittels Top-Bottom Methode gammaspektrometrisch analysiert. Im folgenden sind die Ergebnisse der gammaspektrometrischen Untersuchungen zunächst für das Roggengrün zusammengefasst.

Bei den **Roggenexperimenten** zeigte sich für die Aufnahme des ^{85}Sr weder bezüglich der Böden, noch bezüglich der Pilzbeimpfung ein signifikanter Unterschied. Die Aufnahme von ^{85}Sr in Roggen scheint folglich von keinem der untersuchten Parameter und insbesondere auch nicht durch die Beimpfung der Böden mit den Pilzen S.C. und L.N. beeinflusst zu werden.

Bei der Aufnahme von ^{137}Cs in das Roggengrün zeigten sich deutliche Unterschiede in Abhängigkeit vom Boden und geringfügige, signifikante Unterschiede in Abhängigkeit von der Pilzbeimpfung. Die Aufnahme von ^{137}Cs in Refesol 04A war gegenüber der Aufnahme im VKTA-Boden in allen Fällen signifikant erhöht.

Von deutlich größerem Interesse für das Projekt ist hier jedoch der Unterschied der Transferfaktoren in den Pilz-beimpften Proben. So lässt sich unter Zusammenfassung aller Ergebnisse (N=9) des Roggengrüns eine signifikante Erhöhung der ^{137}Cs -Aufnahme der Roggenpflanzen durch die Applikation von L.N. und S.C. feststellen. Diese Erhöhung betrug im Fall des S.C. $30\%[\pm 19, 5\%]$ und im Falle des L.N. $65\%[\pm 30\%]$.

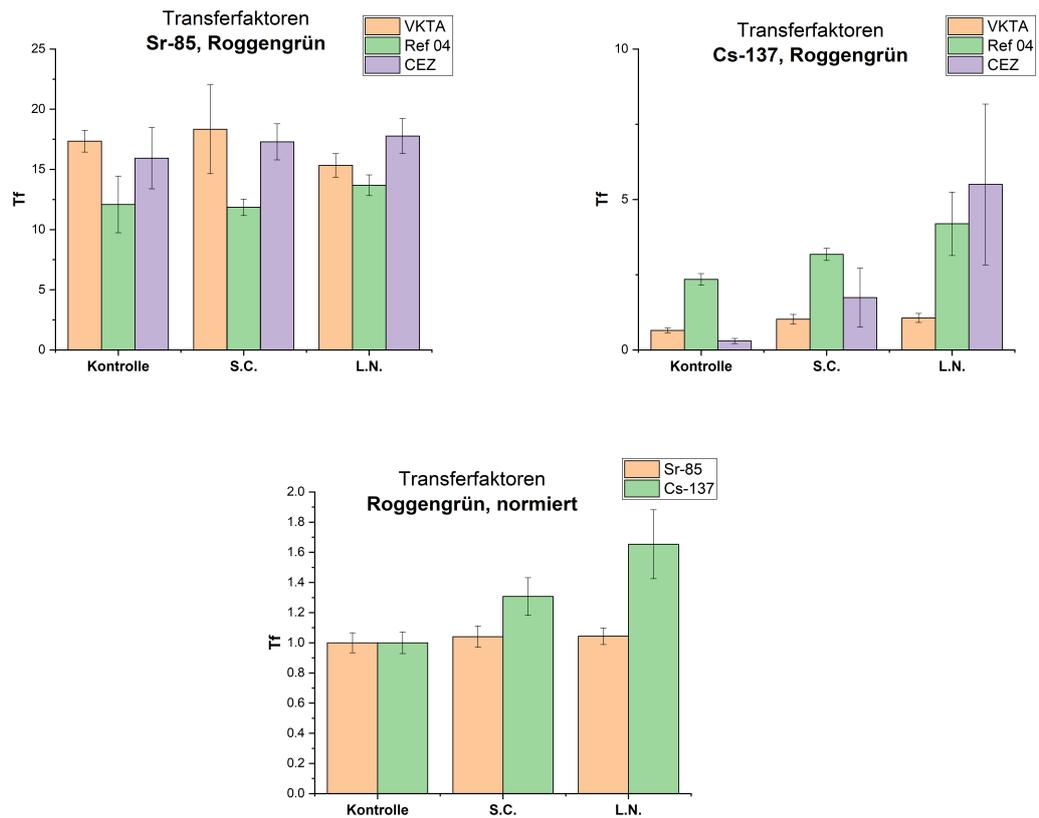


Abbildung 66 – Transferfaktoren von ^{85}Sr (oben links) und ^{137}Cs (oben rechts) in Roggen in Abhängigkeit des Bodens und der Pilz-Behandlung. Die angegebene Unsicherheit entspricht dem Standardfehler des Mittelwertes (N=3). Um die Unterschiede in der Pilzbehandlung herauszuarbeiten wurden die Transferfaktoren zusätzlich auf den Mittelwert der jeweiligen Kontrollgruppe normiert und zusammengefasst (N=9, unten).

Bei der Versuchsreihe mit den **Kartoffeln** zeigten sich signifikante Unterschiede fast ausschließlich in Bezug auf die eingesetzten Böden, während der **Einfluss der Pilzbeimpfung** in praktisch allen Fällen unsignifikant war (siehe Abb. 67). Einzige statistische Ausnahme auf dem 1- σ Konfidenzniveau ist hier die Aufnahme von ^{137}Cs in das Kartoffelgrün in der S.C.-Gruppe auf den CEZ-Böden. Diese führt zudem zu einem kleinen statistisch signifikanten Unterschied in den normierten Ergebnissen. Der Transfer von ^{137}Cs unterliegt jedoch den größten relativen Unsicherheiten der Messkampagne und aufgrund der Tatsache, dass dieser Befund zwar für das Kartoffelgrün, in keiner Weise jedoch für die Kartoffelknollen gilt, könnte eher für einen statistischen Ausreißer, als für einen realen biologischen Effekt sprechen.

Vergleicht man den **Einfluss des Bodens** auf den Nuklidtransfer in Kartoffeln, so zeigt sich bei Refesol 04A - wie auch bereits bei den Roggenproben - eine deutlich höhere ^{137}Cs Aufnahme. Der Grund hierfür liegt vermutlich in einer weniger starken Fixierung des Radiocäsiums durch den Refesol. Ein Grund hierfür könnte der geringe Tongehalt des Bodens sein, der mit 3 % relativ niedrig lag (vgl. VKTA (3,3 %) und CEZ (etwa 5% ¹⁹). Allerdings ist der vergleichsweise geringe Unterschied in der Gesamt-Tonfraktion hier kaum als alleiniger Grund zu sehen. Möglicherweise spielt hier eher die Art der Tone (insbesondere das Vorhandensein verwitterter Glimmer) und das Inventar an stabilem Cäsium, welches bereits einen Teil der vorhandenen FES absättigt, eine wichtige Rolle.

Die Aufnahme von ^{90}Sr in die Kartoffelknollen war auf den VKTA-Böden signifikant erhöht,

¹⁹Der Tongehalt in der Bodenprobe aus 1m Tiefe wurde nicht separat bestimmt. Für die tiefste untersuchte Bodenschicht (20-30 cm) wurde ein Wert von 4,9 % ermittelt. Siehe Material und Methoden

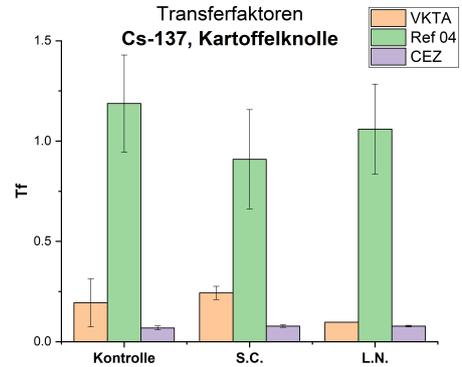
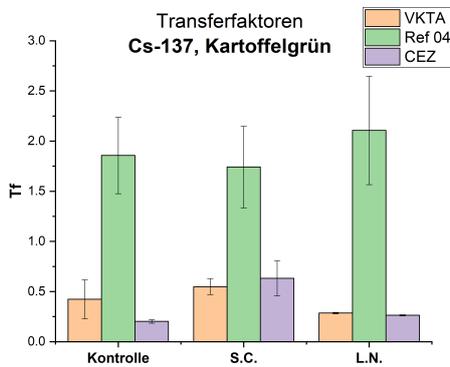
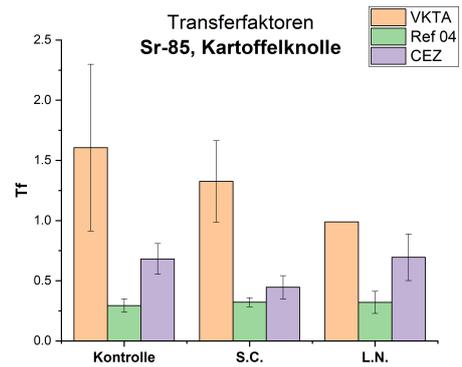
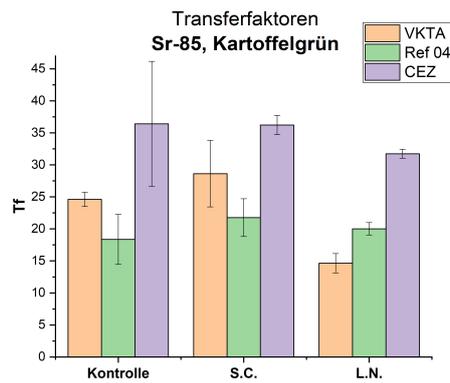


Abbildung 67 – Transferfaktoren von ^{85}Sr und ^{137}Cs in Kartoffelgrün und Knolle in Abhängigkeit vom Boden und der Pilz-Behandlung. Die angegebene Unsicherheit entspricht dem Standardfehler des Mittelwertes ($N=3$).

jedoch hält auch diese Erhöhung einer kritischen Betrachtung kaum stand, da hier aufgrund des schlechten Anwachsens der Kartoffelpflanzen die Stichprobenanzahl der drei Gruppen auf $N=5$ reduziert war, was zu einer sehr schwachen Statistik führte.

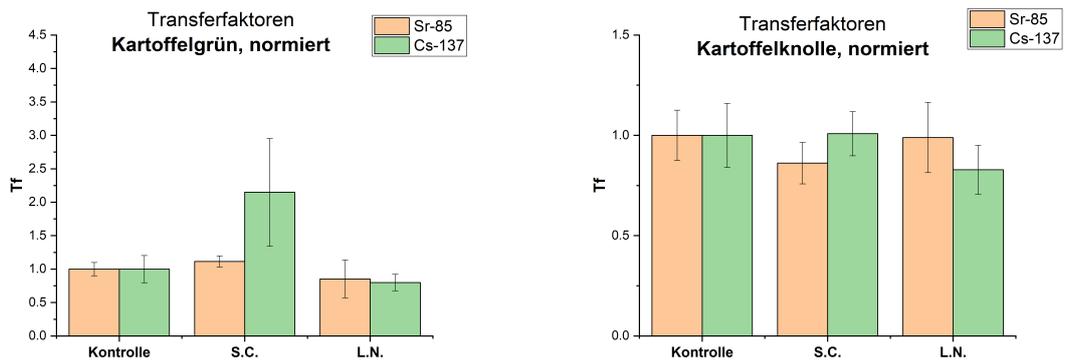


Abbildung 68 – Um die Unterschiede in der Pilzbehandlung herauszuarbeiten wurden die Transferfaktoren auf den Mittelwert der jeweiligen Kontrollgruppe normiert und zusammengefasst (N=9).

Zusammenfassend konnte in den Pflanzen-Experimenten in Klimakammern kein immobilisierender Einfluss der Pilzbeimpfung auf ^{137}Cs und ^{85}Sr nachgewiesen werden. Der einzige mit hoher Konfidenz ermittelte Befund zeigt eher den gegenteiligen Effekt: So kann von einer Erhöhung der ^{137}Cs -Aufnahme in Roggenpflanzen - insbesondere durch S.C. - ausgegangen werden. Warum sich hier als einzigem Fall ein signifikanter Effekt zeigt ist unklar. Möglicherweise hat die deutlich erhöhte Versuchsdauer im Fall der Roggenpflanzen erst zu einer ausreichenden Etablierung der Pilzbeimpfung geführt, so dass diese erst hier Wirkung zeigte. Um dieser Hypothese nachzugehen, wäre ein Nachweis der Pilzvitalität zwingend erforderlich.

Leider ist es im Rahmen des Versuches jedoch nicht gelungen die gemachten Beobachtungen mit einem Monitoring der Vitalität der Pilze in den einzelnen Pflanzen zu vergleichen, da ein solches Verfahren bis zum Abschluss des Experimentes noch nicht existierte. Optisch ließen sich während der gesamten Versuchsdauer, sowie bei der Ernte keine größeren Unterschiede in der Bodendurchdringung und Struktur zwischen den Pilz-Gruppen und Kontrollen ausmachen. Es wurden daher zum Zeitpunkt der Ernte repräsentative Stichproben der einzelnen Böden genommen und bei $-70\text{ }^{\circ}\text{C}$ tiefgefroren, womit sich ein molekulargenetischer Nachweis der Pilzvitalität in Zukunft noch nachholen ließe.

Weitere Hinweise zu einer möglicherweise erst verzögert stattfindenden Wirksamkeit der Pilzbeimpfung zeigten sich in den nachfolgend beschriebenen Feldexperimenten, wo für einen Teil der Proben der Nachweis der Pilzvitalität von S.C. gelungen ist, weshalb diesbezüglich in der Zukunft weitere Untersuchungen geplant sind (Siehe Zusammenfassung dieses Abschnitts 5.4 auf Seite 106).

5.3 Einfluss von *Schizophyllum commune* und *Leucoagaricus naucinus* auf den Transfer von ^{137}Cs in Kartoffeln und Winterroggen unter Feldbedingungen

Ein wesentliches Ziel des BioVeStRa Projektes bestand darin, zu untersuchen, ob und wie der Einsatz von Pilzkulturen im Freilandanbau grundsätzlich praktikabel ist, sowie, ob und in welcher Größenordnung die Ausbringung der beiden Projekt-Arten *Schizophyllum commune* und *Leucoagaricus naucinus* zu einem nachweisbaren Effekt bei der Radionuklidaufnahme im Freiland führt. Hierzu wurden durch unseren Projektpartner HZDR jeweils vor Beginn der geplanten Arbeiten in der Sperrzone Pilzkulturen der beiden Pilzarten erbrütet und eine Woche vor Beginn der Exkursion in sterilen PE-Flaschen gekühlt per Paket nach Kiew gesandt. Von hier wurden sie dann - weiterhin gekühlt - durch uns in die Sperrzone und auf das Testfeld verbracht.

Im Rahmen des BioVeStRa-Projektes wurden insgesamt jeweils ein Satz Winterroggen und ein Satz Kartoffeln in zwei aufeinander folgenden Jahren auf dem Testfeld der Tschernobyl Sperrzone kultiviert. Die große Schwierigkeit des Anbaus bestand darin, eine Anbaumethode zu finden, die ein Wachsen der Pflanzen ohne weitere Pflege während der Wachstumsphase erlaubte, da Arbeiten am Testfeld immer nur im Halbjahres-Rhythmus vorgesehen waren, in welchen dann Ernte und Neu-Bepflanzung stattfinden konnten. In der Zwischenzeit wurden die Pflanzen nur im Fall lang anhaltender Trockenheit von einem Mitarbeiter des örtlichen Ecocenter gegossen. Eine weitere Pflege war nicht vorgesehen.

Die Aussaat der ersten Kartoffel- und Roggenpflanzen fand in einer Exkursion im Mai 2017 statt. Die ursprüngliche Projektskizze sah eine abwechselnde Bepflanzung des Feldes mit Kartoffeln in den Sommermonaten bis zum Herbst und Winterroggen in den anschließenden Wintermonaten und im Frühjahr vor. Aufgrund von Verzögerungen des Projektbeginns musste jedoch die ursprünglich für den Herbst 2016 geplante Aussaat des Winterroggens gemeinsam mit der ersten Kartoffelaussaat im Mai 2017 stattfinden.

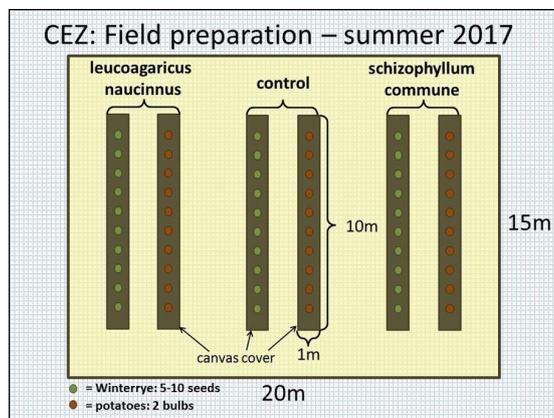


Abbildung 69 – Links: Aufteilung des Testfeldes für die Pflanzexperimente. Die Positionen der Pflanzreihen blieben über das gesamte Projekt unverändert und wurden in den späteren Exkursionen jeweils für die neue Aussaat wiederverwendet, wobei in den späteren Wachstumszyklen jeweils nur die Hälfte der Reihen (Kartoffeln oder Roggen) bepflanzt wurde. Rechts: Zustand des Testfeldes bei der ersten Bepflanzung (18.05.2017).

Durch unseren Projektpartner SEAPGEM wurde das Feld im März 2017 zunächst grob von der Vegetation befreit. Bei der Exkursion im Mai wurden dann durch Harken der Oberfläche 6 etwa 10 x 1 m breite Streifen des Testfeldes weitgehend egalisiert. Hierauf wurde anschließend ein Unkrautfließ von 10 x 1 m ausgerollt und fixiert, in welches dann vor Ort Pflanzlöcher von 15 cm Durchmesser geschnitten wurden. Die Erde in den Pflanzlöchern wurde anschließend per Hand gründlich von verbliebener Vegetation befreit und gewässert (11 pro Pflanzloch)²⁰.

²⁰Die Durchführung der Bepflanzung wurde auch in einem Video-Tagebuch dokumentiert, siehe link-Adressen

Zum Einbringen der Pilzkulturen wurden zunächst 300 g der frischen Pilz-Biomasse in 20l Wasser suspendiert (15g/l). Anschließend wurde mit einem Spaten die oberste Bodenschicht eines jeden Pflanzloches vorsichtig angehoben und 1 l der Pilz-Kultur-Suspension eingebracht und mit der abgenommenen Bodenschicht bedeckt. Dieses Prozedere wurde gewählt um die Pilzkulturen etwas unterhalb der Oberfläche einzubringen, wo gerade in der Anfangszeit mit einem deutlich geringeren Trockenstress für die Pilze zu rechnen war. Die Pflanzreihen für die Beimpfung mit *Schizophyllum commune* und *Leucoagaricus naucinus* lagen dabei an gegenüberliegenden Enden des Versuchsfeld im Abstand von etwa dreieinhalb Metern zu den mittig liegenden Kontrollreihen, in die keinerlei Pilzkulturen eingebracht wurden.

Im Anschluss wurden die Pflanzlöcher analog zur Bepflanzung in den Laborexperimenten mit Saatkartoffeln (2 Saatstücke pro Loch) und Roggen (5-10 Körner pro Loch) entsprechend des Pflanzplans (Abb. 69) bestückt. Hierbei wechselten sich jeweils Reihen mit Kartoffel- und Roggensaat ab, so dass zu jeder der drei Pilz-Gruppen (S.C., L.N., Kontrolle) jeweils eine Reihe mit Kartoffeln und eine Reihe mit Winterroggen kultiviert wurde.

Während der anschließenden Wachstumsperiode war das Testfeld weitgehend sich selbst überlassen. Die Pflanzen wurden durch lokale Arbeiter insgesamt zweimal während längerer Trockenphasen gegossen und das Unkraut einmal im September in unmittelbarer Umgebung der Unkrautfolien gemäht.

Im Rahmen der folgenden Exkursion in die Sperrzone im Oktober 2017 wurden die Pflanzen geerntet. Abb. 70 zeigt den Zustand von Kartoffeln und Winterroggen bei Ankunft auf dem Testfeld. In allen sechs Reihen fanden sich noch grüne und vitale Pflanzen zur Ernte. Im Fall der Kartoffelpflanzen hatten sich allerdings nur in gut der Hälfte der Pflanzlöcher Pflanzen entwickelt. Die Kartoffelpflanzen waren zum Zeitpunkt der Ernte noch grün, die ersten Exemplare begannen jedoch bereits zu welken.

Abbildung 70 – Zustand von Kartoffel- (links) und Roggenpflanzen (rechts) am Tag der Ernte (26.09.2017).



Die Roggenpflanzen waren zwar in fast allen Pflanzlöchern gewachsen, die zur Ernte anstehenden Pflanzen waren jedoch relativ klein (20-30 cm) und hatten allesamt keine Früchte ausgebildet (fehlende Vernalisation). Aus allen Reihen wurden je fünf Bohrlöcher - verteilt über die gesamte Länge - einzeln beprobt. Hierzu wurden die Pflanzen ausgegraben und zunächst

zu den Videos im Anhang

im Ganzen in Plastiktüten verpackt und eine Bodenprobe von ca 30g aus dem unmittelbaren Wurzelbereich der individuell geernteten Pflanzen entnommen. Die restlichen angewachsenen Pflanzen jeder Reihe wurden ebenfalls geerntet und vereint (Bulk-Probe), sowie aus den entsprechenden nicht individuell beprobten Pflanzlöchern geringe Mengen Boden entnommen und ebenfalls vereint.

Die Proben wurden anschließend im Labor des EcoCenter in Tschernobyl (Stadt) gewaschen und zerteilt. Hierbei wurden die Wurzeln, sowie anhaftender Boden entfernt. Im Anschluss wurden die Proben im Trockenschrank ($T \approx 105^\circ\text{C}$) getrocknet. Hierbei reichten Zeit und Kapazität des Labors in der Sperrzone jedoch nicht aus, um sämtliche Proben bis zur Gewichtskonstanz zu trocknen. Die (vor-)getrockneten Proben wurden im Anschluss ausgewogen, luftdicht in Plastikbeutel verpackt und zum Transport ans IRS vorbereitet.

Nach der Ankunft am IRS wurden diese zunächst bei 105°C bis zur Gewichtskonstanz getrocknet und anschließend in Messpräparate für die Gammaskpektrometrie (Top-Bottom Methode) überführt und zur Bestimmung von Transferfaktoren die Aktivitätskonzentration des ^{137}Cs in den Boden und Pflanzenproben bestimmt. Die Ergebnisse der Transferfaktorbestimmung der Ernte im Jahr 2017 sind in Abb. 71 zusammengefasst.

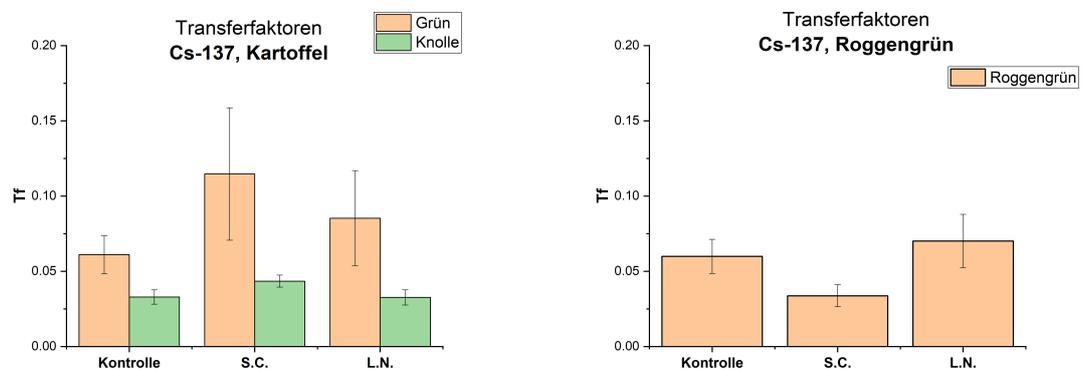


Abbildung 71 – Zusammenfassung der ^{137}Cs Transferfaktoren aus der Ernte im Oktober 2017. Die angegebenen Unsicherheiten entsprechend dem Standardfehler der Mittelwertes mit $k=1$.

Im Rahmen der Unsicherheiten konnte nur in der S.C.-Gruppe der Kartoffelknollen ein signifikanter Unterschied zur Kontrolle gefunden werden. Hier betrug die Aufnahme 132 % verglichen mit der Kontrollgruppe. Auch in den weiteren Gruppen der Transferfaktoranalyse legen die Daten - insbesondere für die *Schizophyllum commune* Proben - eher einen mobilisierenden, als einen immobilisierenden Effekt durch die Pilzkulturen nahe, jedoch lässt sich dieser aufgrund der hohen relativen Unsicherheiten hier nicht als statistisch signifikant auf dem 68 % Konfidenzniveau belegen. Zwar erlauben die ermittelten Transferfaktoren sehr vorsichtige Interpretationen in Bezug auf den möglichen Effekt der Einbringung der beiden Pilzkulturen in dieser Ernte - so ist es anhand der Datenlage sehr wahrscheinlich, dass von keiner deutlichen Reduzierung des ^{137}Cs Transfers aufgrund der Pilzbehandlung auszugehen ist - jedoch sind die hohen relativen Unsicherheiten bei der Frage, ob es überhaupt einen Einfluss gibt, sehr störend.

Um zu verstehen, woher diese Unsicherheiten rühren, sind in Abb. 72 und 73 die einzelnen Aktivitätsverhältnisse Boden - Pflanze aus der Ernte 2017 gesammelt dargestellt. Hierbei ist grundsätzlich zu beachten, dass das Modell, welches hinter der Bestimmung von Transferfaktoren steht, sehr vereinfachend von einem proportionalen Zusammenhang zwischen Aktivitätskonzentration im Boden und in einer Pflanze (bzw. in einem Pflanzenkompartiment) ausgeht. Bei Betrachtung der ermittelten Aktivitätsverhältnisse ist zu erkennen, dass dieser Zusammenhang über weite Teile der Stichprobenmenge nicht gegeben ist.

Geht man davon aus, dass der Zusammenhang zwischen Aktivität im Boden und Aufnahme in Pflanzen grundsätzlich proportional sein sollte (Transferfaktor-Modell) und messtechnische Fehler zumindest in der gefundenen Größenordnung der Transferfaktor-Schwankungen ausge-

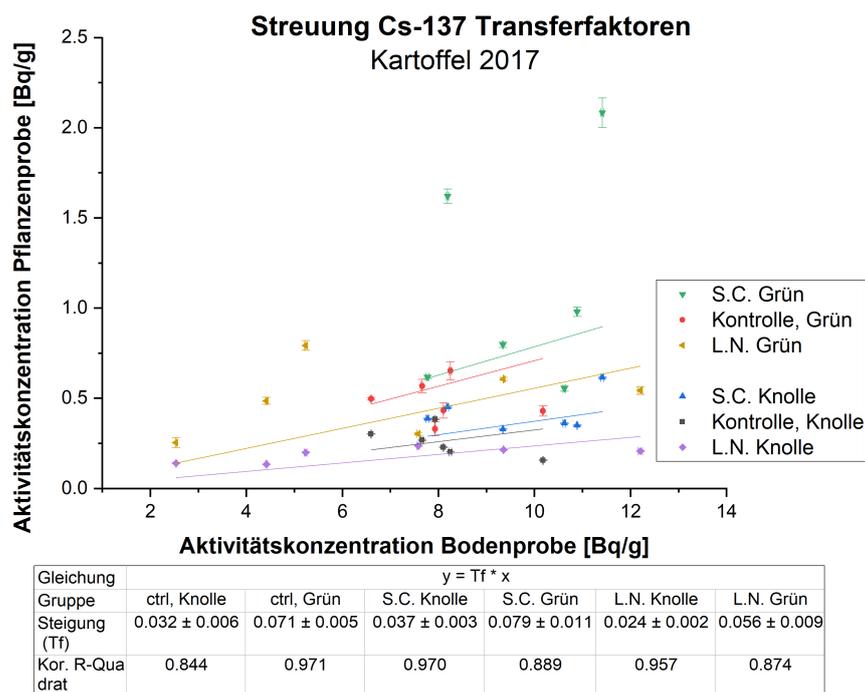


Abbildung 72 – Verhältnisse der gefundenen ^{137}Cs Aktivitätskonzentrationen Boden - Pflanze in der Ernte im Oktober 2017 (Kartoffel). Die Annahme eines proportionalen Zusammenhangs im Sinne des Transferfaktormodells muss für die Mehrheit der Gruppen abgelehnt werden (siehe Text). Die angegebenen Unsicherheiten beziehen sich auf den statistischen Fehler der Gamma-Messung.

geschlossen sein sollten, verbleibt als größte und wahrscheinlichste Quelle für die ermittelten Unsicherheiten eine nicht-repräsentative Bodenprobenahme für die einzelnen Pflanzen.

Eine solche repräsentative Probenahme ist aufgrund der bereits im vorigen Kapitel ausführlich beschriebenen großen Inhomogenität der Kontamination des Bodens im vorliegenden Fall besonders schwierig, zumal die Aufnahme von Radionukliden in die Pflanzen über ein halbes Jahr ein dynamischer, mit dem Wachstum der Pflanze verbundener Prozess ist. Es lässt sich folglich noch nicht einmal ein festes Volumen an Bodenkörper pro Pflanze definieren, dessen Aktivitätskonzentration die Bedingungen im Verlauf des Wachstumszyklusses abbildet. Ferner ergeben sich aus der noch immer teilweise partikulären und nicht-equilibrierten Kontaminationssituation, dass unter Umständen gammaspektrometrisch bestimmte Aktivitätskonzentrationen im Boden nicht repräsentativ für das für die Pflanze zur Verfügung gestellte (bioverfügbare) Inventar sind.

Da eine noch umfangreichere Beprobung des Testfeldes aufgrund der strahlenschutztechnischen Einschränkungen der Sperrzone nicht möglich war (und auch nicht sichergestellt war, dass selbst eine drastische Erhöhung der Menge an Bodenproben zu einer besseren Korrelation geführt hätte), wurden in der zweiten Kultivierungs- und Messkampagne im Jahr 2018 vergleichbar geringe Mengen Boden aus dem Wurzelbereich der einzelnen Pflanzen entnommen. Jedoch wurde dieses mal besonders darauf geachtet durch intensives Mischen des Bodens in den individuellen Pflanzlöchern eine größere Homogenisierung bei der Probenahme zu erreichen. Desweiteren wurde in den späteren Messkampagnen zusätzlich zum Gesamtinventar im Boden auch der bioverfügbare Anteil an ^{137}Cs analysiert, um zumindest den Einfluss der chemischen Bindung aus den ermittelten Transferfaktoren herauszurechnen.

Die Bepflanzung mit der zweiten Charge an Winterroggen fand direkt im Anschluss an die vorangegangene Probenahme im Oktober 2017 statt. Hierfür wurden die Unkrautfolien erneuert und ansonsten die bereits zuvor beschriebene Methode der Pilzbeimpfung (15g Frischmasse Pilz pro Pflanzloch) und Aussaat (5-10 Körner Winterroggen pro Pflanzloch) angewandt. Ohne weitere Pflege verlief das Wachstum der Roggenpflanzen wie erhofft. Bis zum Winter hatten sich in nahezu allen Pflanzlöchern junge Triebe gebildet. Diese entwickelten sich nach Ende

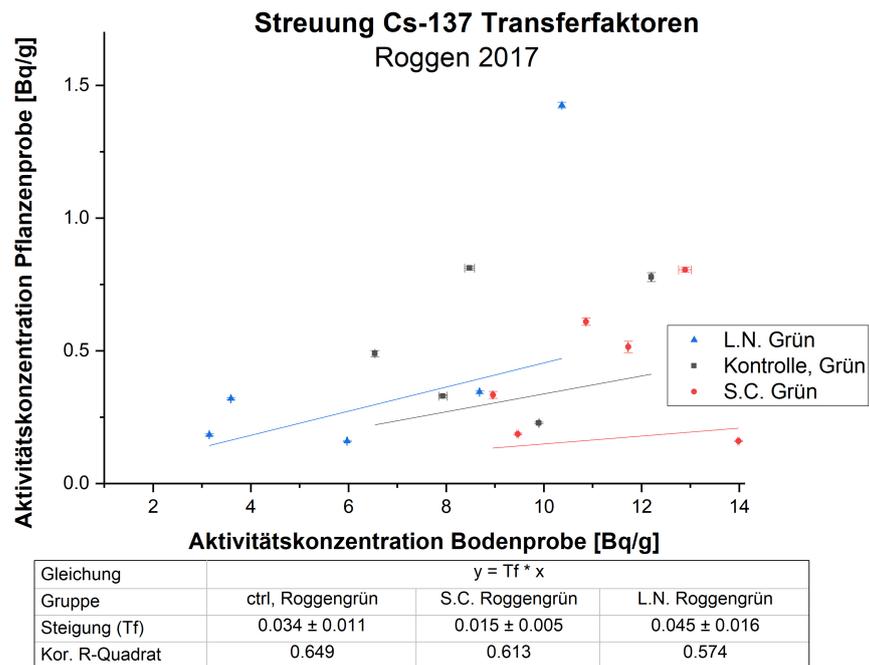


Abbildung 73 – Verhältnisse der gefundenen ¹³⁷Cs Aktivitätskonzentrationen Boden - Pflanze in der Ernte im Oktober 2017 (Roggen)

des Winters, etwa ab März 2018, zu adulten Pflanzen weiter und konnten sich aufgrund ihres angepassten Wachstumszyklus gut gegenüber dem Wildwuchs auf dem Testfeld behaupten.

Aufgrund der besonderen Beschränkungen bei der Arbeit in der Sperrzone musste der Erntezeitpunkt jeweils bereits Monate im Voraus zeitlich geplant werden. In Absprache mit unserem lokalen Partner vom SEAPGEM wurde der Zeitpunkt der zweiten Roggenernte bereits im Februar 2018 für den 23.05.2018 festgelegt, in der Hoffnung, den idealen Erntezeitpunkt zu treffen. Allerdings bewirkte ein für die Umgebung ungewöhnlich kalter Märzanfang gefolgt von einer sehr nassen Witterung über den Rest des Monats März, dass die Roggenpflanzen vergleichsweise spät das Wachstum wieder aufnahmen und der Erntezeitpunkt auf ein noch unreifes Stadium der Vegetationsperiode fiel (siehe Abb. 74).

Bei der Exkursion im Mai 2018 wurden, wie in der vorherigen Expedition, aus jeder Pflanzreihe fünf Proben, gemeinsam mit aus dem Wurzelbereich entnommenen Bodenproben individuell beprobt und aus den verbleibenden Pflanzlöchern Sammelpflanzen erstellt. Die Pflanzen wurden im Labor des Ecocenter in Spross/Blätter und Fruchtstand („Körner“) aufgetrennt, wobei sich innerhalb des Spelzes in den Fruchtständen noch praktisch keine Samen ausgebildet hatten. Die Proben wurden vor Ort bis zur Gewichtskonstanz getrocknet und zur weiteren Analyse am IRS in luftdichte Plastiktüten verpackt.

Parallel zur Probenvorbereitung der zweiten Roggenernte wurde eine zweite Kartoffelpflanzung, sowie eine weitere Ausbringung der Pilzstämmen (15 g Frischmasse pro Pflanzloch) durchgeführt. Diese wurde im Oktober 2018 geerntet, wobei die Kartoffelpflanzen zu diesem Zeitpunkt bereits verwelkt waren und nur die Kartoffelknollen zur Probenahme zur Verfügung standen. Diese wurden nach der Ernte im Labor des Ecocenter gründlich gewaschen, geschält und zerkleinert. Schale und Kartoffelknolle wurden anschließend bis zur Gewichtskonstanz getrocknet und zur Versendung ans IRS in luftdichte Plastiktüten verpackt.

Alle Pflanzenproben wurden am IRS anschließend möglichst raumfüllend in Petrischälchen verpackt und der ¹³⁷Cs -Gehalt mittels Top-Bottom Methode gammaspektrometrisch quantifiziert. Die Bodenproben wurden bei 105°C bis zur Gewichtskonstanz getrocknet, gesiebt (< 2mm) und ebenfalls über die Top-Bottom Methode gammaspektrometrisch analysiert. Im Anschluss an die Messung der Gesamtaktivität wurde aus sämtlichen Bodenproben der bioverfügbare An-



Abbildung 74 – Zustand der Pflanzen bei ihrer Ernte im Mai (Roggen, links) und Oktober (Kartoffeln, rechts) 2018. Die Roggenpflanzen hatten bereits Fruchtstände ausgebildet, diese waren jedoch noch nicht reif und bestanden vorwiegend aus blättrigem Spelz. Die Kartoffelpflanzen waren zum Zeitpunkt der Ernte bereits verwelkt, so dass in dieser Exkursion kein oberirdischer Teil der Pflanze beprobt werden konnte.

teil der Aktivität bestimmt. Hierzu wurden jeweils 20 g Boden in einen 1 l Zentrifugenbecher mit Schraubverschluss gefüllt und Fraktionen 1 + 2 entsprechend der Vorschrift nach Zeien & Brümmer extrahiert. Im Anschluss an die Extraktion wurden beide Fraktionen filtriert (Schleicher und Schüll 595 1/2) und in 1 l PE-Flaschen mit Verschluss vereinigt.

Die Proben wiesen dabei noch einen kleinen, nach Abstreifen am Boden erkennbaren Anteil sehr feinen Feststoffes auf. Da es sich hierbei vermutlich um eine Fraktion kleiner Bodenpartikel oder Aggregate handelte, welche potentiell signifikante Mengen ^{137}Cs gebunden haben könnten, wurden die Proben im Anschluss noch ein weiteres Mal über Glasfaserfilter (Rückhaltebereich $0,4 - 0,7\mu\text{m}$) filtriert, was den Anteil an Schwebstoffen deutlich reduzierte. Die Proben wurden daraufhin mittels Gammaskopie analysiert und der Gehalt an ^{137}Cs relativ zu einem parallel angesetzten 1 l Kautex- Gefäß mit einer bekannten Aktivität eines Multielementstandards (QCY-13) quantifiziert (Geometriestandard Methode).

Vergleicht man die ermittelten Gesamtgehalte der Bodenproben aus der Kartoffelernte 2018 mit dem bioverfügbaren Inventar der selben Bodenproben (siehe Abb. 75), so stellt man zwar eine deutliche Streuung um einen - im Fall eines eingestellten Gleichgewichtes zu erwartenden - proportionalen Verlauf fest, gemessen an den enormen Schwankungen der Transferfaktoren aus den vorherigen Feldexperimente ist diese Streuung jedoch eher moderat und eine deutliche Korrelation beider Inventare erkennbar.

Aufgrund der Korrelation von bioverfügbarer und Gesamtaktivitätskonzentration im Boden ist es nicht verwunderlich, dass auch die auf der jeweiligen Basis berechneten Transferfaktoren vergleichbare relative Unsicherheiten zeigen. Für die Kartoffelernte 2018 sind die ermittelten Transferfaktoren der drei Gruppen in Abb. 76 zusammengefasst.

Im Rahmen der - weiterhin recht hohen - relativen Unsicherheiten lassen sich bei der Analyse der Kartoffelernte zumindest auf dem Konfidenzniveau von 68 % Unterschiede in den Gruppen ausmachen. Die gefundenen Mittelwerte von Kartoffelknolle und Schale lagen in der *Schizopyllum commune* -Gruppe, sowohl bezogen auf das Gesamtinventar, als auch bezogen auf das bioverfügbare Inventar signifikant über dem der Kontrollgruppe. Diese Erhöhung betrug für die essbare Knolle 133 % bezogen auf das Gesamtinventar und 128 % bezogen auf das bioverfügbare Inventar.

Die Aufnahme von ^{137}Cs in der LN-Gruppe ist gegenüber der Kontrollgruppe reduziert. Basierend auf dem Gesamtinventar ist dieser Unterschied jedoch, sowohl für die Kartoffelschale, als auch für die Knolle auf dem gewählten Konfidenzniveau (knapp) insignifikant. Basierend auf dem bioverfügbaren Inventar ist dieser Unterschied hingegen für beide Gruppen signifikant. Die

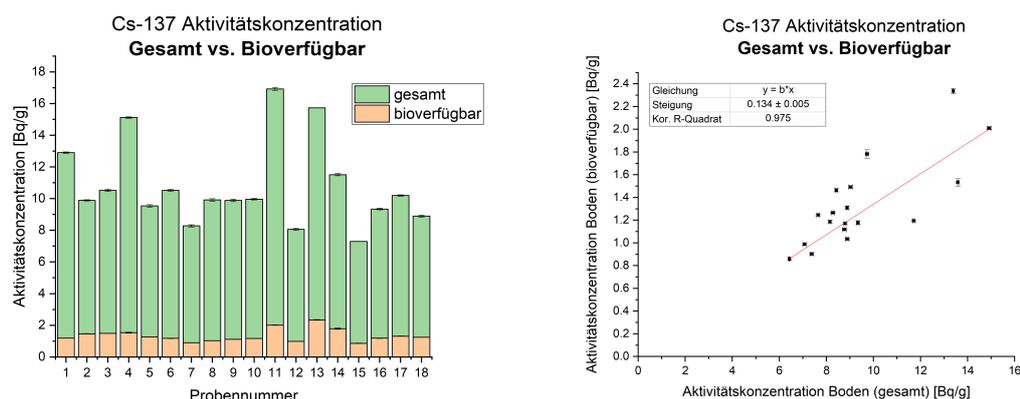


Abbildung 75 – Vergleich der Aktivitätskonzentration des bioverfügbaren ^{137}Cs mit dem Gesamtinventar aus den Bodenproben der Kartoffelernte 2018. Den angegebenen Unsicherheiten liegt der statistische Fehler der Messereignisse zu Grunde. Referenzdatum 31.03.2018.

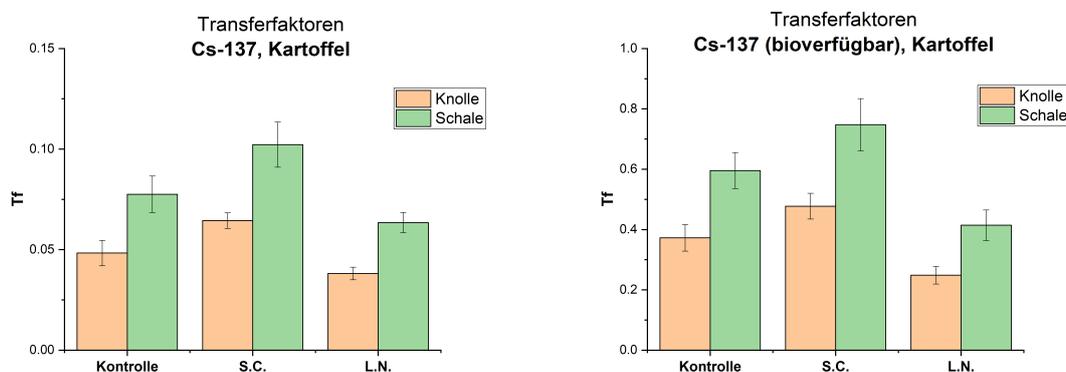


Abbildung 76 – Transferfaktoren von ^{137}Cs in Kartoffelpflanzen basierend auf dem Gesamt- ^{137}Cs Inventar im Boden (links) und basierend auf dem bioverfügbaren Inventar (rechts). Die angegebenen Unsicherheiten entsprechen dem Standardfehler des Mittelwertes, mit $k=1$ und $N=6$.

Aufnahme in die essbare Kartoffelknolle ist hier auf 67 % im Vergleich mit der Kontrollgruppe reduziert.

Zwar lässt sich in diesem Fall durch den Vergleich mit der bioverfügbaren Fraktion ein leichter Signifikanzgewinn in der Statistik erreichen, die relativen Unsicherheiten bleiben allerdings auf einem sehr ähnlichen - relativ hohen - Niveau. Dass die Bioverfügbarkeit nicht die Hauptursache für die nach wie vor hohen Unsicherheiten ist, zeigt sich sehr deutlich, wenn man die Aktivitätsverhältnisse der einzelnen Proben miteinander vergleicht (siehe Abb. 77 und 78) Hierbei zeigt sich, dass durch die Bezugnahme des Transferfaktors auf die bioverfügbare Fraktion im Boden nur für einen Teil der Gruppen eine (geringfügig) höhere Korrelation mit den Gehalten in der Pflanze erreicht wird und der Zusammenhang insgesamt nur wenig an Linearität gewinnt.

Bei der Analyse der Roggenproben zeigten sich, basierend auf dem Gesamtinventar des Bodens, keinerlei signifikante Unterschiede zwischen der Kontrolle und den beiden Pilz-Gruppen (siehe Abb. 79). Die Extraktion der bioverfügbaren Fraktion erhöhte hier im Fall der S.C.-Gruppe sogar die Streuung um den Mittelwert des Transferfaktors ins Roggengrün sehr deutlich und es sind in der S.C. -Gruppe für beide Pflanzenkompartimente keine signifikanten Unterschiede zur Kontrollgruppe zu erkennen.

Auffällig beim Vergleich der Transferfaktoren der Roggenproben ist der geringe Unterschied zwischen der Roggen-Korn und der Grün-Gruppe. Erwartungsgemäß sollten Pflanzen die Co-

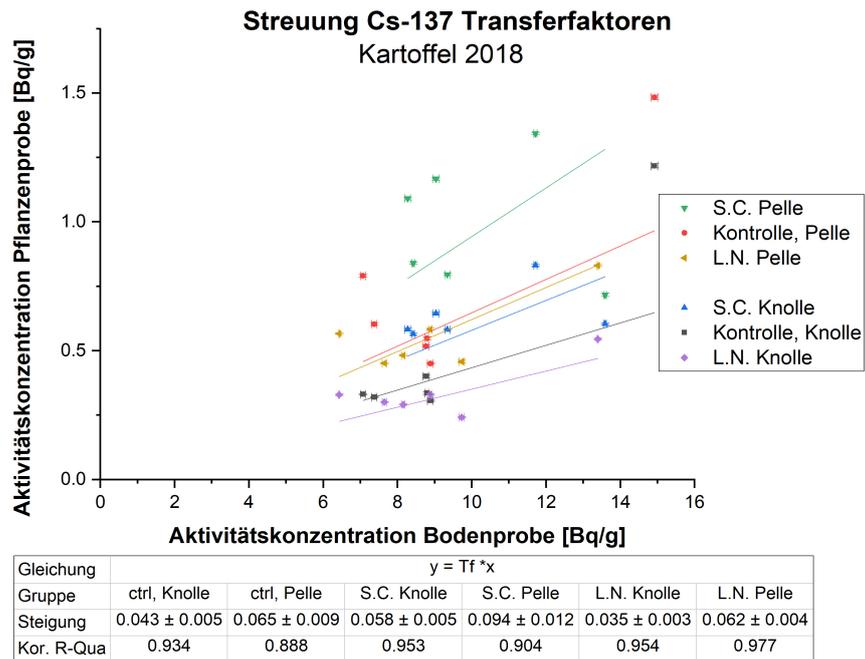


Abbildung 77 – Verhältnisse der gefundenen ^{137}Cs Aktivitätskonzentrationen Boden - Kartoffel in der Ernte im Oktober 2018. Die Annahme eines proportionalen Zusammenhangs im Sinne des Transferfaktormodells muss für die Mehrheit der Gruppen abgelehnt werden (siehe Text). Die angegebenen Unsicherheiten leiten sich vom statistischen Fehler der gamma-spektrometrischen Messung ab.

Aufnahme von nicht-erwünschten Homologen (wie dem Cäsium als Homolog zum Kalium) beim aktiven Transport von einem Kompartiment in ein anderes zusätzlich diskriminieren, wodurch sich insbesondere für die essbaren Früchte der meisten Pflanzen geringere Transferfaktoren als für das Pflanzengrün ergeben. Insofern decken sich diese Erkenntnisse jedoch mit der Beobachtung, dass die Pflanzen bei der Ernte einfach noch nicht reif waren. Für die Spelzblätter, aus denen die „Körner“ zum größten Teil noch bestanden, macht eine Klassifikation als Pflanzengrün Sinn, insofern gehören beide hier getrennt analysierten Gruppen vermutlich zu einem überwiegenden Teil zur gleichen Grundgesamtheit.

Basierend auf der Extraktion der bioverfügbaren Fraktion heben sich die Mittelwerte in der L.N.-Gruppe wesentlich deutlicher von denen der Kontrollgruppe ab, als dies basierend auf dem Gesamtinventar der Fall ist. Der Unterschied ist auf dem 68 % Konfidenzniveau für die Roggenkorn-Proben zwar noch immer knapp nicht signifikant, überschreitet im Fall der Grünproben jedoch deutlich die Signifikanzschwelle. Basierend auf den Transferfaktoren der bioverfügbaren Fraktion ergibt sich in der L.N.-Gruppe eine ^{137}Cs Aufnahme von 55 % verglichen mit der Kontrolle, was dem stärksten in diesem Projekt ermittelten Einfluss entspricht.

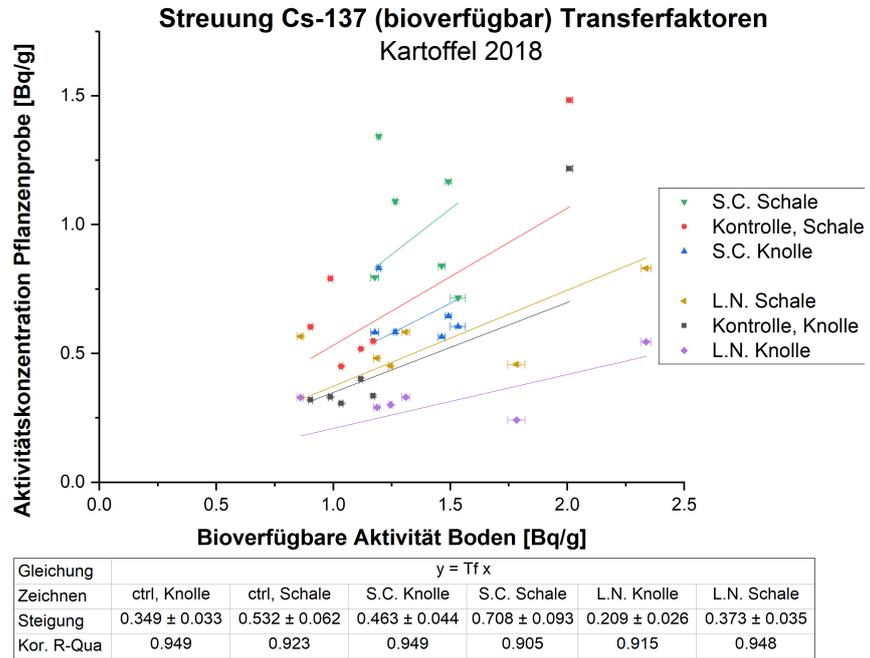


Abbildung 78 – Verhältnisse der gefundenen ^{137}Cs Aktivitätskonzentrationen Boden (bioverfügbar) - Kartoffel in der Ernte im Oktober 2018. Die Annahme eines proportionalen Zusammenhangs im Sinne des Transferfaktormodells muss für die Mehrheit der Gruppen abgelehnt werden (siehe Text). Die angegebenen Unsicherheiten leiten sich vom statistischen Fehler der gamma-spektrometrischen Messung ab.

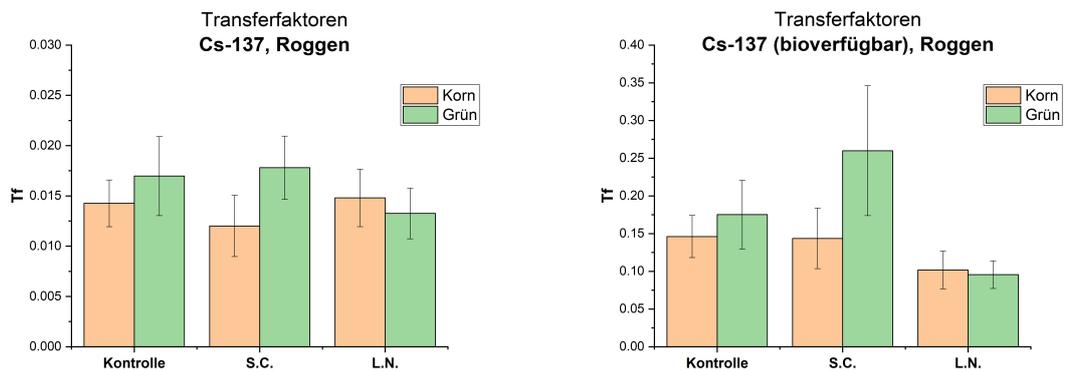


Abbildung 79 – Transferfaktoren von ^{137}Cs in Roggenpflanzen basierend auf dem Gesamt- ^{137}Cs Inventar im Boden (links) und basierend auf dem bioverfügbaren Inventar (rechts). Die angegebenen Unsicherheiten entsprechen dem Standardfehler des Mittelwertes, mit $k=1$ und $N=6$.

5.4 Zusammenfassung der Ergebnisse zum Einfluss der Pilzkulturen *Schizophyllum commune* und *Leucoagaricus naucinus*

Die Ergebnisse aus den Transferfaktor-Bestimmungen unterliegen relativ großen statistischen Unsicherheiten und sind zudem teilweise widersprüchlich. So konnte in den Klimakammerexperimenten für den Winterroggen eine Erhöhung der ^{137}Cs -Aufnahme durch *Leucoagaricus naucinus* in allen Böden gefunden werden, während die Ergebnisse der Freiland-Ernte 2017 keinen signifikanten Effekt zeigten und die Freiland-Ernte im Jahr 2018 eine Verringerung der Aufnahme anzeigten.

Für die Aufnahme von ^{137}Cs in Kartoffeln im Laborexperiment zeigte der *Leucoagaricus naucinus* keinen statistisch signifikanten Einfluss, was auch für die erste Kartoffelernte aus dem Feldversuch gilt. Im zweiten Feldversuch hingegen war eine signifikante Verminderung des Transfers zu beobachten.

Die Proben der *Schizophyllum commune* Gruppe zeigten insgesamt einen etwas deutlicheren Trend hin zu einer Aufnahmeerhöhung, allerdings gab es auch hier eine Freiland-Ernte die diesem Trend widersprach. Beim Anbau des Winterroggens zeigte sich im Laborexperiment ein gegenüber der Kontrolle signifikant erhöhter Transfer von ^{137}Cs . Der gegenteilige Effekt wurde hier jedoch in der Roggenernte aus dem Jahr 2017 beobachtet, wo die Aufnahme in der *Schizophyllum* Gruppe gegenüber der Kontrolle signifikant verringert war.

Für die Aufnahme von ^{137}Cs in Kartoffelknollen zeigte die Beimpfung mit *Schizophyllum commune* in den Laborexperimenten keinen signifikanten Effekt, in beiden Ernten der Feldversuche konnte hier hingegen eine signifikante Erhöhung der Aufnahme festgestellt werden. Tabelle 24 fasst die gemachten Beobachtungen für die beiden in allen Experimenten untersuchten Kompartimente Roggengrün und Kartoffelknolle zusammen.

Tabelle 24 – Einfluss der Pilzbeimpfung auf die Aufnahme von ^{137}Cs in den drei Ernten. + = signifikante Erhöhung. - = signifikante Verringerung. 0 = kein signifikanter Unterschied. Zum Vergleich sind hier die normierten Ergebnisse aus dem Laborexperiment und die auf bioverfügbarem Inventar basierenden Ergebnisse der beiden Feldversuche für das Roggengrün (Roggen) und die Kartoffelknollen (Kartoffel) angegeben.

Ernte	S.C.		L.N.	
	Roggen	Kartoffel	Roggen	Kartoffel
Labor (2017)	+	0	+	0
Feld 2017	-	+	0	0
Feld 2018	0	+	-	-

Die Untersuchungen des Transfers von ^{85}Sr in den Laborexperimenten zeigten keinerlei signifikante Einflüsse der Pilzbeimpfung. Die Ergebnisse von umfangreichen Arbeiten zum Einfluss der beiden Pilzkulturen auf die ^{90}Sr -Aufnahme in den Feldversuchen stehen zur Zeit im Rahmen einer Master-Arbeit[155] noch aus. Vorläufige Ergebnisse hieraus legen aber ebenfalls einen, wenn überhaupt, nur sehr geringen Effekt der Pilzbeimpfung auf die Aufnahme von ^{90}Sr in die Pflanzen der Feldversuche nahe.

Im Verlauf der Feldversuche zeigte sich - unter Vorbehalt der relativ hohen Unsicherheiten - eine leichte Tendenz zu zunehmend signifikanteren Ergebnissen in den späteren Ernten. Dies könnte möglicherweise ein Hinweis darauf sein, dass die Pilzkulturen sich erst im Verlauf des Projektes und durch die insgesamt dreimalige Einbringung bei jeder Aussaat fest im Boden etablieren konnten. Dies könnte auch ein Grund sein, warum sich signifikante Ergebnisse bei den Laborexperimenten ausschließlich bei der über 200 Tage andauernden Kultivierung des Roggens, nicht aber in der deutlich kürzeren Kultivierung der Kartoffeln zeigte.

Um diese Hypothesen zu stützen und möglicherweise auch einige der Ausreißer zu erklären, die auch in den Laborexperimenten auftraten, wäre ein (im Idealfall quantitativer) Nachweis der Pilzvitalität in den verschiedenen Bodenproben von großem Wert. Ein solcher Nachweis kann prinzipiell über quantitative PCR Analytik von art- oder zumindest gattungsspezifischen DNA-Markern geführt werden.

Ein solches Verfahren konnte im Rahmen des Projektes von unserem Projektpartner FSU Jena für den *Schizophyllum commune* entwickelt und bei der Exkursion im Mai 2018 erstmalig

getestet werden. Hierbei konnte das grundsätzliche Vorhandensein von *Schizophyllum* DNA in Bodenproben der S.C.-Reihen gezeigt werden. Des Weiteren war die Menge gefundener DNA gegenüber den Bodenproben der Kontroll- und der L.N Gruppe deutlich erhöht[156]).

Der Aufwand dieser Analytik, sowohl was die Methodenentwicklung, als auch die Durchführung an den einzelnen Proben angeht, wurde jedoch zu Beginn des Projektes unterschätzt, so dass über die einmalige Probenahme der Exkursion im Mai 2018 hinaus keine Erkenntnisse zu der Vitalität der Pilze in den Böden gewonnen werden konnten. Um dieser, für die Aussagekraft der gemachten Untersuchungen wesentlichen, Fragestellung nachzugehen, sind daher für die Zukunft weitere Untersuchungen der Pilzvitalität auf dem Testfeld geplant.

Trotz intensiver Literaturrecherche konnte für den *Leucoagaricus naucinus* kein geeigneter Primer für die Vervielfältigung artspezifischer Marker gefunden werden, so dass für diesen bis auf Weiteres keine Methode zur Quantifizierung im Boden existiert.

6 Ausblick

Im Rahmen dieser Arbeit wurde eine Reihe von Erkenntnissen gewonnen, aus denen sich wissenschaftliche Fragestellungen für zukünftige Forschungsansätze ergeben.

Die Analysen der Radionuklidverteilung auf dem Testfeld nahe des ehemaligen Dorfes Kopachi geben Aufschlüsse über den lokalen Ist-Zustand, insbesondere der vertikalen Radionuklidverteilung von ^{137}Cs , ^{241}Am , und ^{154}Eu im Jahr 2015 (Bohrkernnahme). Auch zeigen die Daten des Testfeldes, 5 km südlich des Reaktors, dass auch nach 30 Jahren Equilibrierung im Boden ein hohes Maß an Heterogenität von der ursprünglichen, teilweise partikulären Kontamination noch immer Bestand hat und zwar in nur leicht abnehmenden Maße sowohl für ^{137}Cs , als auch für ^{90}Sr und ^{241}Am . Gemeinsam mit den umfangreichen Daten zur horizontalen Radionuklidverteilung aus den Jahren 2017 und 2018 (Feldversuche) und den detaillierten bodenkundlichen Untersuchungen sind diese Daten geeignet, um gängige Modelle zur Vorhersage der Radionuklidmigration zu überprüfen und gegebenenfalls zu optimieren, womit sie einen wertvollen Beitrag zur Strahlenschutzvorsorge der Bevölkerung liefern können.

Die sequentiellen Extraktionen nach dem Schema von Zeien und Brümmer konnten zeigen, dass sich ^{90}Sr in den untersuchten Böden zu etwa 75 % in der bioverfügbaren Fraktion (Extraktion mit 1 M NH_4NO_3 und 1 M NH_4OAc) und zu etwa 13 % residual gebunden (HNO_3 konz. + HClO_4 konz.) wiederfindet, während die weiteren Fraktionen des Extraktionsschemas für das ^{90}Sr von nachrangiger Bedeutung waren. Die Frage, ob das residual gebundene ^{90}Sr mit dem partikulären Inventar weitgehend gleichzusetzen ist, konnte jedoch nicht abschließend geklärt werden.

So zeigte sich eine starke Inhomogenität der ^{90}Sr Verteilung insbesondere im Fall der Residualfraktion, was sich sehr plausibel erklären lässt, wenn man davon ausgeht, dass dieses Inventar tatsächlich noch immer in den verbliebenen Reaktorpartikeln des Bodens vorliegt. Auch war die Korrelation zum mobilen Inventar für das residual gebundene ^{90}Sr von allen Extrakten mit Abstand am niedrigsten, was darauf hindeutet, dass sich zwischen den beiden Inventaren bis heute kein thermodynamisches Gleichgewicht eingestellt hat. Geht man hierbei von den im Abschnitt Bioverfügbarkeit ausführlich beschriebenen Eintrags- und Equilibrierungsprozessen aus und nimmt die Bodenlösung als mobiles und zwischen allen Equilibrierungsprozessen vermittelndes Kompartiment an, deuten die Ergebnisse darauf hin, dass sich das residual gefundene Inventar in den vergangenen 32 Jahren größtenteils zu keinem Zeitpunkt in der Bodenlösung befunden hat und folglich nur dauerhaft partikulär gebunden gewesen sein kann.

Allerdings zeigte die sequentielle Extraktion des nicht-partikulär gebundenen ^{90}Sr im Fall des VKTA-Bodens, dass Alterungsprozesse in der Größenordnung von Jahrzehnten durchaus zu einer Fixierung des ^{90}Sr führen können, die eine Wiederfindung erst in der Residualfraktion des Zeien und Brümmer Schemas bewirkt. Die im Falle des VKTA-Bodens gefundenen 13 % residual gebundenen ^{90}Sr entsprechen größenordnungsmäßig genau dem Anteil des im Boden des Kopachi-Testfeldes residual gebundenen ^{90}Sr . Um die Zuordnung der Residualfraktion zu dem partikulär gebundenen Inventar zu verifizieren, wären folglich belastbare Daten zum Ausmaß der ^{90}Sr -Alterung im Kopachi-Boden notwendig. Zum Prozess der Alterung von ^{90}Sr in Böden stehen jedoch in der Literatur überraschend wenige und teilweise widersprüchliche Untersuchungen zur Verfügung.

So ist - anders als im Fall des bioverfügbaren Inventars - der dominierende Bindungstyp von „gealtertem“ ^{90}Sr -Inventar ebenso wenig bekannt wie der genaue Mechanismus der Alterung. Hier wären folglich weitere Untersuchungen zur Aufklärung des Mechanismus von großem wissenschaftlichen Wert. Dabei würde es sich anbieten, zunächst die überschaubare Anzahl der vorhandenen, teilweise widersprüchlichen Literaturquellen systematisch zu erfassen und diese gezielt nach Korrelationen zwischen berichtetem (nicht-)Auftreten von Alterungseffekten und Parametern der Experimente (Kontaminationszeit, Art der Kontamination, Bodenparameter) zu durchsuchen. Auf diese Weise gefundene Korrelationen ließen sich im Anschluss durch systematische Laboruntersuchungen ergänzen, um so in einem ersten Schritt die primär für die Alterung verantwortlichen Bodenphasen zu identifizieren, was wiederum die Grundlage für eine mögliche Aufklärung des Mechanismus darstellt.

Da das ^{137}Cs , sowie in geringerem Maße auch das ^{90}Sr , aufgrund ihrer Bodenchemie durch sequentielle Extraktionen nur sehr eingeschränkt mit der partikulär gebundenen Fraktion gleich-

gesetzt werden können, wäre es des Weiteren interessant, das Auflösungsverhalten der beiden ebenfalls gefundenen Radionuklide ^{154}Eu und ^{241}Am anhand von angepassten sequentiellen Extraktionsverfahren zu untersuchen. Insbesondere das ^{241}Am bietet sich aufgrund seiner hohen und im Vergleich zum ^{90}Sr mit wenig Aufwand messbaren Aktivität für ein solches Verfahren an. Eine genaue Assoziation extrahierter Inventare ließe hier zudem einen sehr präzisen Rückschluss auf die ursprüngliche Menge an partikulärer Deposition zu, da das ^{241}Am im Gegensatz zum ^{90}Sr ausschließlich partikulär deponiert wurde. Allerdings fehlen auch zu diesem Nuklid umfangreiche und systematische Untersuchungen zu Umfang und Mechanismus von Alterungsprozessen im Boden, welche die Basis für eine gezielte Entwicklung und valide Interpretation von sequentiellen Extraktionsverfahren sind.

Für die Klasse der UO_2 -Partikel, welche auf dem Testfeld am häufigsten gefunden wurde, konnte durch die vorgeschlagene sequentielle Extraktion von einzelnen Partikeln gezeigt werden, dass das partikulär gebundene ^{90}Sr vollständig und ausschließlich in der Residualfraktion nach Zeien und Brümmer wiederzufinden ist. Ein solcher Nachweis steht jedoch für die Klasse der ZrU_yO_x -Partikel noch aus. Trotz intensiver Suche wurde in den Böden des Kopachi Testfeldes nur ein einziger typischer, sowie ein weiterer untypischer Vertreter dieser Klasse gefunden, weshalb die weitere Extraktion gerade dieses Partikeltyps für umfangreichere Untersuchungen von großem Wert wären. Aufgrund der, aus der Literatur bekannten, hohen chemischen Stabilität der ZrU_yO_x -Partikel ist eine vollständige Auflösung in der Fraktion 4 (HF), nicht aber in der Fraktion 3 (HNO_3 konz. + HClO_4 konz.) des modifizierten Zeien und Brümmer Schemas zu erwarten. Anhand des Partikels Kop 01 (Ares) ließe sich dieser Prozess unter Umständen an einem einzigen Partikel analysieren und im Idealfall auch elektronenmikroskopisch dokumentieren.

Die auf dem Testfeld gefundenen Reaktorpartikel bestätigen zum Einen wesentliche in der Literatur etablierte Vorhersagen zur Kontaminationssituation des Testfeldes und werfen auf der anderen Seite einige ungeklärte neue Fragen auf. Die auf dem Testfeld gefundenen Partikel gehörten zum größten Teil der Klasse der UO_2 -Partikel an, was sich mit der in der Literatur beschriebenen Umweltbeständigkeit der Partikel deckt. Insbesondere wurde nur ein einziger Partikel identifiziert, der möglicherweise eher der Kategorie der UO_{2+x} -Partikel zuzuordnen ist. Dies deckt sich mit der Annahme, dass sich diese Partikel unter Umweltbedingungen innerhalb der vergangenen 32 Jahre fast vollständig - bis auf weniger als 2 % des ursprünglichen Inventars - aufgelöst haben sollten. Auch sind in den elektronenmikroskopischen Aufnahmen der gefundenen Uran-Zirkoniumphasen auch nach 32 Jahren im Boden optisch keinerlei Auflösungserscheinungen zu erkennen.

Die Befunde deuten allerdings auch darauf hin, dass im Fall des BioVeStRa-Feldes der Anteil von UO_2 -gebundenem Inventar denjenigen der UO_{2+x} -Partikel inzwischen möglicherweise deutlich übersteigt. Die aus der Literatur übernommene und im theoretischen Teil dargestellte Berechnung der Auflösung des Partikelinventars, geht für die südliche Richtung jedoch pauschal von einer Kontamination durch UO_{2+x} Partikel aus und hat daher im Fall der Böden um Kopachi in Zukunft vermutlich keine Gültigkeit mehr. Hier sollte man in Zukunft eher auf Auflösungsgeschwindigkeiten zurückgreifen, wie sie für das nicht-oxidierte Partikelinventar ausgehen typisch sind und in der Literatur daher bisher nur für das westlich des Reaktors niedergegangene Partikelinventar angenommen werden.

Zwar lässt sich der überwiegende Anteil der gefundenen Reaktorpartikel mehr oder weniger sicher den drei primären Partikelkategorien nach Kashparov zuordnen, insbesondere die drei in dieser Arbeit als „unklassifiziert“ beschriebenen Partikel werfen jedoch auch Fragen, sowohl bezüglich des Quellterms, als auch bezüglich des Auflösungsverhalten der primären Reaktorpartikel im Boden auf. So ist es aufgrund der bisherigen Ergebnisse wahrscheinlich, dass es sich bei Kop 07 (Gaia) um ein Fragment der erkalteten „Lava“ aus dem Reaktorgebäude handelt. Das Vorkommen solcher Partikel außerhalb des Reaktorschutzgebäudes ist bisher jedoch nicht dokumentiert.

Sollte sich die Hypothese zur Herkunft des Partikels in weiteren Untersuchungen bestätigen, stellen sich eine Reihe von weiteren wissenschaftlichen Fragen. Zum Beispiel wann und wie dieser Partikel emittiert werden konnte. Nach den in der Literatur veröffentlichten Erkenntnissen über den Quellterm, ist die naheliegenste Vermutung, dass ein solcher Partikel nur in dem relativ engen Zeitraum zwischen dem 02. Mai und dem 06. Mai 1986 gebildet und emittiert werden konnte. Eine spätere Emission ist zwar denkbar, sollte aber aufgrund der Arbeiten zur

Eindämmung der Emission ab dem 06. Mai gestoppt worden sein.

Basierend auf einer noch zu validierenden Hypothese zum Emissionspfad wäre für eine Bewertung der radioökologischen und strahlenschutztechnischen Bedeutung des Befundes zudem eine Einschätzung wichtig, wieviele dieser Partikel aus dem Reaktor emittiert wurden und welches Radionuklidinventar auf diese Weise freigesetzt wurde. Um diese Fragen zu beantworten, wäre es notwendig, weitere Partikel dieses Typs in der Umwelt zu finden. Da sich in der Literatur, trotz umfangreicher Datenlage zur partikulären Kontamination der Sperrzone (siehe zum Beispiel die „Hot Particles Database“ [122]), keine Beispiele dieses Partikeltyps finden lassen ist davon auszugehen, dass es wenn überhaupt, nur sehr wenige dieser Partikel in der Umwelt gibt. Durch den Fund ergibt sich allerdings ein Hinweis, in welcher Umgebung es sich lohnen würde, gezielt nach diesen Partikeln zu suchen.

Auch die Herkunft der beiden aus einer Uran-Sekundärmatrix bestehenden Partikel konnte im Rahmen dieser Arbeit nicht abschließend geklärt werden. Hier wäre zunächst der Nachweis zu führen, dass es sich bei dem enthaltenen Uran tatsächlich um Reaktoruran handelt und ob der Abbrand zu der für RBMK-Reaktoren typischen Isotopensignatur passt. Dies sollte über die Bestimmung der Isotopenverhältnisse von ^{235}U und ^{238}U , beispielsweise mittels Sekundärionen-Massenspektrometrie an den einzelnen Partikeln möglich sein, wobei fraglich ist, ob es gelingt den U-S-Partikel (Kop 04b Kastor) erfolgreich auf einer Nadel zu fixieren. Sollte in den beiden Fällen der Nachweis gelingen, dass es sich tatsächlich um Reaktoruran handelt, würden sich die selben wissenschaftlichen Fragen wie im Fall des mutmaßlichen Lava-Partikels Kop 07 (Gaia) anschließen. Auch hier wäre folglich die Entwicklung eines nuklearforensischen Nachweises zur Herkunft der Sekundärphasen von großem Wert, um weitere Schlüsse bezüglich des Umwandlungsprozesses der Reaktorpartikel, entweder innerhalb, oder außerhalb des Reaktor Gebäudes zu gewinnen und so zu einem besseren mechanistischen Verständnis von Quellterm und Nuklidmigration in der Umwelt zu gelangen. Auch der Partikel Kop 10 (Japetos), der in dieser Arbeit der Klasse der ZrU_yO_x -Partikel zugeordnet wurde, könnte im Hinblick auf die Herkunft und Entstehung der siliziumhaltigen Matrix ein interessantes Untersuchungsobjekt sein.

Insgesamt lässt sich feststellen, dass die relativ hohe Zahl (3-4 / 12) gefundener, vermutlich sekundärer Partikel, aufgrund der Datenlage in der Literatur so nicht zu erwarten war. Dieser Befund ist möglicherweise teilweise auf die zeitlich bedingte, erst langsam einsetzende Verwitterung insbesondere der Klasse der UO_2 Partikel zurückzuführen, welche nach der Auflösung der UO_{2+x} -Partikel die dominierende Partikelklasse der Böden darstellt. Eine weitere plausible Hypothese, die durch das Auffinden von Kop 07 (Gaia) gestützt wird, wäre, dass die lokale Kontaminationssituation in unmittelbarer Umgebung des Feldes von der Situation in der restlichen Sperrzone insofern abweicht, dass hier - potentiell im Rahmen der Emissionen zwischen dem 02. und 06. Mai - neben den beschriebenen primären Partikeltypen auch bereits sekundäre Partikel deponiert wurden, welche innerhalb des zerstörten Reaktor Gebäudes entstanden.

Um diese Hypothesen zu stützen, wäre neben umfangreichen Untersuchungen der bereits gefundenen Partikel dringend das Auffinden weiterer Partikel aus der Umgebung nötig, um die Datenlage zu verbessern. Aufgrund der, im Rahmen dieser Dissertation dargelegten, Erfahrungen bei der Suche nach Partikeln auf dem Testfeld, dürfte das Auffinden weiterer Partikel mit großem Aufwand verbunden sein. Im Rahmen dieser Arbeit gelang das Auffinden von 12 Partikeln durch die systematische gammaspektrometrische Analyse von über 140 zufällig genommenen Proben vorwiegend des Oberbodens, mit einem durchschnittlichen Gewicht von etwa 50g und die händische Nachsuche nach Partikeln mittels Geiger-Müller Zählrohr.

Um die Erfolgsaussichten für das weitere Auffinden von Partikeln in Böden der Umgebung, aber auch andernorts, zu erhöhen, wäre es daher nützlich das bestehende Suchverfahren zu optimieren und nach Möglichkeit zu automatisieren. Ideal zum Auffinden geeignet wäre eine Apparatur, die es erlaubt, im Feld genommene Bodenproben vor Ort nach dem Vorhandensein von Hot Spots zu durchsuchen und diese, gemeinsam mit einem möglichst geringen umgebenden Bodenvolumen, zu separieren. Eine solche Apparatur könnte beispielsweise mittels Geiger-Müller Zählrohr, oder auch eines geeigneten Szintillationsdetektors, unter welchem eine flach ausgebreitete Bodenmenge automatisiert vorbeigeführt wird nach Hot Spots suchen und diese im Anschluss an die Detektion in ein separates Auffanggefäß umleiten. Ein solches Gerät ließe sich neben der weiteren Untersuchung der aufgeworfenen Forschungsfragen zudem für andere und

potentiell zukünftige Kontaminationssituationen im Sinne einer „nuclear-preparedness“ vorhalten und nutzen.

Bezüglich des Potentials zum Einsatz von Pilzkulturen zur Strahlenschutzvorsorge sind die erhobenen Daten teilweise widersprüchlich und deuten eher auf einen geringen Effekt auf die Radionuklidaufnahme in Pflanzen hin. Hier wäre für eine genauere Bewertung zunächst ein etabliertes und vom Aufwand her vertretbares Verfahren zur (idealerweise quantitativen) Bestimmung der vitalen Pilzbiomasse im Boden notwendig, mit dessen Hilfe die gefundenen Unterschiede in der Nuklidaufnahme präziser korreliert werden könnten.

Im Falle des *Leucoagaricus naucinus* konnte in den beiden Ernten des Jahres 2018 ein Rückgang des Radionuklidtransfers von ^{137}Cs verglichen mit der Kontrolle festgestellt werden. Hier konnte, verglichen mit der jeweiligen Kontrolle, eine Reduzierung der Aufnahme in Kartoffeln auf 67 %, sowie auf 55% im Fall des Roggengrüns, gezeigt werden. Geht man davon aus, dass sich bis zu dieser Versuchsreihe der eingesetzte Pilz aufgrund der wiederholten Beimpfung am ehesten fest im Boden etablieren konnte, spricht dieser Befund dafür, dass *Leucoagaricus naucinus* in der Tat in der Lage sein könnte, unter Feldbedingungen Radiocäsium im Boden zu fixieren.

Den Ergebnissen liegen jedoch trotz vergleichsweise hohem Aufwand bei Probenahme und Vorbereitung (N=6, Individuelle Bestimmung des bioverfügbaren Nuklidinventars im Wurzelbereich der Pflanze) hohe relative Unsicherheiten zu Grunde, die eine Aussage nur mit geringer Konfidenz (Irrtumswahrscheinlichkeit < 32%) zulassen. Es wäre folglich neben der Bestimmung der Pilzvitalität wichtig, auch das grundsätzlich angewendete Verfahren zur Transferfaktorbestimmung zu hinterfragen und gegebenenfalls zu optimieren. So korrelierte der gefundene Nuklidgehalt in den individuellen Bodenproben nur wenig mit dem in der jeweiligen Pflanze gefundenen Gehalt.

Ein Grund hierfür dürfte in der großen Heterogenität der Kontaminationssituation und der damit verbundenen möglicherweise nicht-repräsentativen Entnahme der einzelnen Bodenproben liegen. Zwar konnte durch die Bestimmung des bioverfügbaren Gehaltes und der darauf basierenden Transferfaktoren gezeigt werden, dass es nicht die Unterschiede in der chemischen Bindung in den verschiedenen Bodenproben ist, die zu den geringen Korrelationen der Gehalte Pflanze/Boden führen. Aufgrund der gefundenen hohen Heterogenität der vertikalen und lateralen Kontaminationsverteilung auf dem Testfeld ist es jedoch gut möglich, dass die Probenahme von etwa 50g Oberboden pro Pflanze nicht ausreichend war, um das zur Aufnahme zur Verfügung stehende Nuklidinventar im Boden abzubilden. Hier stellt sich jedoch die Frage, ob im Falle der vorliegenden Kontaminationssituation des Testfeldes eine repräsentative Bodenprobenahme aus dem gesamten Wurzelbereich der Pflanzen, unter den Randbedingungen des Arbeitens in der Sperrzone, überhaupt mit vertretbarem Aufwand möglich ist.

Im übrigen ist zu bezweifeln, dass die Heterogenität der Kontamination den alleinigen Grund für die gefundene geringe Korrelation zwischen den Inventaren von Boden und Pflanze darstellt. So zeigten sich auch bei den Versuchen unter Laborbedingungen innerhalb der Gruppen hohe Schwankungen in der Radionuklidaufnahme, welche auch hier zu einer unerfreulich hohen Signifikanzschwelle in der Bestimmung von Unterschieden zwischen den verschiedenen Gruppen führten.

Es scheint, sowohl aufgrund der in dieser Arbeit gemachten Beobachtungen, aber auch aufgrund der Datenlage in der Literatur[157–159] plausibel anzunehmen, dass sich die komplexen und hochregulierten biologischen Prozesse der Nuklidaufnahme dem proportionalen Modell welches durch die Verwendung empirisch bestimmter Transferfaktoren zur Dosisabschätzung impliziert wird, weitgehend entziehen. Um Unterschiede trotz der hohen Schwankungen der Aufnahme auch innerhalb der verschiedenen Gruppen festzustellen, empfiehlt sich für zukünftige Untersuchungen dieser Art, auf eine deutlich höhere Stichprobenmenge zurückzugreifen. Im Fall des Vergleichs der normierten Transferfaktoren von ^{137}Cs in das Roggengrün unter Laborbedingungen stand eine Stichprobenmenge von N=9 zur Verfügung und die relativen Standardfehler der Mittelwerte auf einem Konfidenzniveau von 68 % betragen etwa ± 15 %. Um zu einer Verbesserung der Ergebnisse auf ein Signifikanzniveau von 95 % zu gelangen wäre etwa die vierfache Stichprobenmenge, also insgesamt ca. 36 Proben notwendig. Im Falle der Feldexperimente lagen die ermittelten relativen Unsicherheiten noch einmal deutlich höher.

Im Gegensatz zum L.N. zeigte der Pilz *Schizophyllum commune* in der Mehrheit der Un-

tersuchungen eher einen leichten mobilisierenden, als einen immobilisierenden Effekt, wobei es auch hier Ergebnisse gab, die diesem Trend widersprachen. Im Fall der Kartoffelernte aus den Feldexperimenten 2018 konnte beispielsweise eine signifikante Erhöhung der Aufnahme von bioverfügbarem ^{137}Cs auf 128 % im Vergleich zur Kontrollgruppe festgestellt werden. Der Mechanismus einer möglichen Mobilisierung ist noch ungeklärt, es scheint aber plausibel anzunehmen, dass die selben Mechanismen mit denen der Pilz - wie in der Literatur beschrieben [85, 89] - in der Lage ist, sogar Quartz-Strukturen im Boden aufzulösen, zu einer vermehrten Freisetzung residual gebundenen ^{137}Cs führen könnten. Hierbei kämen sowohl randständige Ätzung von Tonmineralen und die daraus resultierende Zerstörung der FES, als auch das direkte Auflösen von Uranpartikeln als Mechanismus der ^{137}Cs -Freisetzung in Betracht.

Beide Effekte ließen sich durch geeignete Laborexperimente mit tonhaltigen, sowie mit gezielt partikulär kontaminierten Böden untersuchen. Die Ergebnisse einer solchen Untersuchung könnten wiederum wertvolle Hinweise auf die Rolle bodenlebender Pilze in der Radioökologie speziell für das ^{137}Cs liefern. Für die Verwendung im Rahmen eines Konzeptes zur Bodensanierung mittels Myko-Stabilisierung ist *Schizophyllum commune* aufgrund der erzielten Ergebnisse vermutlich nicht geeignet, jedoch macht der möglicherweise mobilisierende Effekt der Pilzbeimpfung auf ^{137}Cs im Boden den Pilz zu einem interessanten Kandidaten für den Einsatz im Rahmen von Konzepten zur Pilz-unterstützten (myco-assisted) Phytoremediation.

Danksagung

Diese Arbeit konnte nur durch die Unterstützung einer ganzen Reihe von Personen entstehen. An dieser Stelle möchte ich die Gelegenheit nutzen mich bei einigen von diesen zu bedanken.

Meinem Doktorvater **Professor Clemens Walther** gilt aus einer Reihe von Gründen mein erster Dank. Zunächst, selbstverständlich dafür, dass er mir durch die Anstellung als wissenschaftlicher Mitarbeiter in einem sehr spannendem und herausforderndem Projekt die Möglichkeit zur Promotion am Institut für Radioökologie und Strahlenschutz eröffnet hat. Des Weiteren, weil er mir während dieser Zeit ein hohes Maß an Vertrauen in die Ausgestaltung meiner Arbeit entgegenbrachte und mich in allen Phasen meiner Promotionszeit sehr gefördert und unterstützt hat.

Ebenso gilt mein Dank **Professor Georg Steinhauser**. Und zwar nicht nur, weil er als Projektleiter des BioVeStRa-Projektes fachlich in vielen Belangen als mein erster Ansprechpartner stets eine offene Tür und ein offenes Ohr für mich hatte, sondern auch und gerade weil er mich über das Projekt hinaus zu jeder Zeit gefördert und voll unterstützt hat - wissenschaftlich, wie menschlich.

Ferner bedanke ich mich herzlich bei **Professor Thorsten Stumpf** für die Übernahme der externen Begutachtung der vorliegenden Dissertation.

Dem **Bundesministerium für Bildung und Forschung** gilt mein Dank für die Finanzierung der wissenschaftlichen Stelle im Rahmen des BioVeStRa-Projektes, auf dessen Basis ich mich einer spannenden und sehr lehrreichen Promotionszeit widmen konnte.

Die Exkursionen in die Sperrzone von Tschernobyl stellen für mich persönlich eine enorme Bereicherung meiner Promotionszeit dar und nehmen einen besonderen Platz in meiner Erinnerung ein. Neben den bereits genannten, möchte ich mich für die hier gemachten unschätzbaren Erfahrungen bei meinen regelmäßigen Mitstreitern bedanken. Dies waren zum Einen Herr **Dharmendra Kumar Gupta** und Herr **Karl Heinz Iwannek**, die mich darüberhinaus beide während der gesamten Projektdauer am Institut nach Kräften unterstützt haben und zum Anderen unsere ukrainischen Partner **Sergiy Dubchak**, sowie unser Guide **Ihor Chizhevskiy**.

Für das Korrekturlesen und ausdauernde Verbessern diverser unfertiger Fassungen dieser Arbeit, aber auch für ungezählte Fachgespräche aus denen sich viele gute Ratschläge entwickelten, danke ich ganz besonders **Beate Riebe**, **Fabian Köhler**, **Martin Weiß**, **Manuel Raiwa** und **Hauke Bosco**.

Meinen Forschungspraktikanten **Vivien Pottgießer**, **Lena Grüger**, **Felix Stäger**, sowie meinen Masteranden **Mark Viebrock Nanne Schumann** und **Malte Böhl** danke ich für Ihre Engagierte Zusammenarbeit, durch die Sie mit zum Erfolg meiner Promotionszeit beigetragen haben.

Herrn **Stefan Bister** danke ich für seine unermüdliche und stets konstruktive Unterstützung in allen Fragen der chemischen und strahlenschutztechnischen Ausgestaltung meiner Laborarbeit. **Sebastian Büchner** danke ich für seine kompetente Hilfe in technischen Fragen aller Art. Frau **Hilal Alemdar** danke ich für ihre hervorragende Unterstützung bei allen Fragen des Laborbetriebs, sowie die Durchführung der bodenkundlichen Untersuchungen, sowie der Messungen mittels ICP-OES.

Ferner gilt mein Dank Herrn **Ralf Groffmann**, sowie den Mitarbeitern der Werkstatt Herrn **Michael Senft**, **Younes Seft** und **Frank Köpcke** für ihre praktische Unterstützung in Labor- und Büro-Betrieb.

Den Herren **Leonard Wujec** und **Jan-Lukas Karzewsky** danke ich für ihre motivierte

Mitarbeit bei der händischen Suche nach Reaktorpartikeln, ohne die der Fundus an analysierten Partikeln in dieser Arbeit wesentlich kleiner ausgefallen wäre.

Allen Mitarbeitern des IRS gilt des Weiteren mein Dank für die sehr freundliche und konstruktive Arbeitsatmosphäre, die es so in keinem anderem mir bekanntem Institut gibt.

Dem **Corona-Virus** danke ich nicht, gleichwohl es mir geholfen hat den Wert von manchen Dingen in der Welt klarer zu sehen. Sei es die Gesundheit, die Freiheit sich zu bewegen oder die professionelle Kinderbetreuung.

Zu Letzt gilt mein größter Dank meiner Ehefrau (sic!) **Cindy Schulz**, die mich während meines - langen, nicht immer ganz geradlinigen - Studiums und während meiner Promotion stets unterstützt hat. Sowohl wenn es leicht fiel, als auch wenn es schwer fiel.

Literaturverzeichnis

Literatur

- [1] J. Lochard, I. Bogdevitch, E. Gallego, P. Hedemann-Jensen, A. McEwan, A. Nisbet, A. Oudiz, T. Schneider, P. Strand, Z. Carr, A. Janssens, T. Lazo, Application of the Commission's Recommendations to the Protection of People Living in Long-term Contaminated Areas after a Nuclear Accident or a Radiation Emergency. ICRP Publication 109. Ann. ICRP 39 (3), Techn. Ber., **2009**.
- [2] F. J. Sandalls, M. G. Segal, N. Victorova, *Journal of Environmental Radioactivity* **1993**, 18, 5–22.
- [3] S. Nakayama, K. Kawase, S. Hardie, S. Yashio, K. Iijima, I. McKinley, K. Miyahara, L. Klein, Remediation of contaminated areas in the aftermath of the accident at the Fukushima Daiichi nuclear power station: overview, analysis and lessons learned part 1: a report on the "decontamination pilot project", Techn. Ber., Japan Atomic Energy Agency, **2015**.
- [4] UNSCEAR, UNSCEAR 2000 Report to the General Assembly, Annex J, Techn. Ber., United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, **2000**.
- [5] M. Rahu, *European Journal of Cancer* **2003**, 39, 295–299.
- [6] W. Weiss, J. Fairobert, M. Morrey, O. Pavlovsky, D. Queniart, E. Buglova, T. Lazlo, I. Robinson, Application of the Commission's Recommendations for the Protection of People in Emergency Exposure Situations. ICRP Publication 109. Ann. ICRP 39 (1), Techn. Ber., ICRP, **2009**.
- [7] P. J. Thomas, *Process Saf. Environ. Prot.* **2017**, 112, 4–15.
- [8] I. V. Filyushkin, *Health Phys.* **1996**, 71, 4–8.
- [9] N. Horikoshi, H. Iwasa, S. Yasumura, H. Iwasa, N. Kawakami, Y. Suzuki, *BMC Psychiatry* **2016**, 16, 420.
- [10] A. Hasegawa, T. Ohira, M. Maeda, S. Yasumura, K. Tanigawa, *Clin Oncol (R Coll Radiol)* **2016**, 28, 237–44.
- [11] S. Yasumura, A. Goto, S. Yamazaki, M. R. Reich, *Public Health* **2013**, 127, 186–8.
- [12] A. Bayer, *Kerntechnik* **1996**, 61, 251–259.
- [13] Q. H. Hu, J. Q. Weng, J. S. Wang, *Journal of Environmental Radioactivity* **2010**, 101, 426–437.
- [14] BfS, <https://www.bfs.de/SharedDocs/Downloads/BfS/DE/broschueren/ion/stth-lebensmittel.pdf> aufgerufen am 02.09.2020; **2016**.
- [15] BfS, <https://www.bfs.de/DE/themen/ion/umwelt/lebensmittel/pilze-wildbret/pilze-wildbret.html> aufgerufen am 02.09.2020; **2019**.
- [16] A. Bouville, *Health Physics* **2020**, 118, 360–381.
- [17] R. Pravalie, *Ambio* **2014**, 43, 729–744.
- [18] I. Bredberg, J. Hutter, K. Kühn, K. Niedzwiedz, F. Philippczyk, A. Thömmes, Statusbericht zur Kernenergienutzung in der Bundesrepublik Deutschland, Techn. Ber., Bundesamt für kerntechnische Entsorgungssicherheit - Abteilung Kerntechnische Sicherheit und atomrechtliche Aufsicht in der Entsorgung, **2016**.
- [19] C. Dushe, K. Gehrcke, M. Kümmel, S. Müller, Ergebnisse der Radonmessungen in der bodennahen Luft der Bergbauggebiete, Techn. Ber., Bundesamt für Strahlenschutz, **2009**.
- [20] E. Ettenhuber, R. Gellermann, S. Kahnwald, C. Kunze, D. Weiß, H. Schulz, Ressortforschungsberichte zur kerntechnischen Sicherheit und zum Strahlenschutz - Bestandsaufnahme und Prognose von NORM-Rückständen für die Endlagerung in einem Endlager für radioaktive Abfälle - Vorhaben 3610R03250, Techn. Ber., Bundesamt für Strahlenschutz, **2014**.

- [21] S. Thiele-Bruhn, H.-P. Blume, R. Horn, *Handbuch des Bodenschutzes : Bodenökologie und -belastung ; vorbeugende und abwehrende Schutzmaßnahmen*, XXIII, 757 Seiten, Wiley-VCH; Weinheim, **2011**.
- [22] Vierter Bodenschutzbericht der Bundesregierung, Techn. Ber., Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz, Bau und Reaktorsicherheit (BMUB), **2017**.
- [23] D. Kyne, B. Bolin, *Int. J. Environ. Res. Public Health* **2016**, *13*, 700/1–700/19.
- [24] Abschlussbericht Verbundprojekt Strahlung und Umwelt II: Radionuklide in der Umwelt, ihr Transport in Nahrungsketten zum und im Menschen Teilprojekt C Wirkpfad Boden-Mikroorganismus-Pflanze, Techn. Ber., **2014**.
- [25] E. Kothe, *Journal of Basic Microbiology* **2015**, *55*.
- [26] S. Dushenkov, A. Mikheev, A. Prokhnevsky, M. Ruchko, B. Sorochinsky, *Environmental Science & Technology* **1999**, *33*, 469–475.
- [27] H. Vandenhove, *Ann. Nucl. Energy* **2013**, *62*, 596–606.
- [28] S. Kulshreshtha, N. Mathur, P. Bhatnagar, *Amb Express* **2014**, *4*.
- [29] F. Schindler, M. Gube, E. Kothe, *Bioremediation and heavy metal uptake: microbial approaches at field scale*, Heidelberg, **2012**, S. 365–383.
- [30] E. A. Caffrey, M. E. Leonard, J. B. Napier, D. R. Neville, K. A. Higley, *J. Environ. Prot.* **2014**, *5*, 181–192.
- [31] H.-G. Vogt, J.-W. Vahlbruch, *Grundzüge des praktischen Strahlenschutzes*, Carl Hanser Verlag GmbH & Co. KG, **2019**, S. I–XIII.
- [32] ICRP, Age-dependent Doses to Members of the Public from Intake of Radionuclides: Part 5 Compilation of Ingestion and Inhalation Dose Coefficients. Publication 72. Ann. ICRP 26 (1), Techn. Ber., **1995**.
- [33] G. Steinhauser, *Nachr. Chem.* **2015**, *63*, 563–565.
- [34] P. Strand, N. Beresford, D. Copplestone, J. Gogoy, L. Jianguo, R. Saxen, T. Yankovich, J. Brown, Environmental Protection: Transfer Parameters for Reference Animals and Plants. ICRP Publication 114. Ann. ICRP 39 (6), Techn. Ber., **2009**.
- [35] IAEA, *Handbook of Parameter Values for the Prediction of Radionuclide Transfer in Terrestrial and Freshwater Environments*, Vienna, **2010**.
- [36] S. Askbrant, J. Sandalls, *J. Environ. Radioact.* **1997**, *38*, 85–95.
- [37] D. K. Gupta, W. Schulz, G. Steinhauser, C. Walther, *Environmental Science and Pollution Research* **2018**, *25*, 29996–30008.
- [38] J. Wauters, A. Elsen, A. Cremers, A. V. Konoplev, A. A. Bulgakov, R. N. J. Comans, *Applied Geochemistry* **1996**, *11*, 589–594.
- [39] D. Teufel, B. Steinhilber-Schwab, U. Höpfner, R. Ratka, H. van de Sand, B. Franke, Zum Einfluß verschiedener Parameter auf den Transfer von Cäsium und Strontium vom Boden in Blattgemüse, Kartoffeln und Klee, Techn. Ber., IFEU - Institut für Energie- und Umweltforschung Heidelberg e.V., **1979**.
- [40] E. Fluck, K. Heumann, *Periodensystem der Elemente: Physik, Chemie, Biologie*, 5. Aufl., Wiley-VCH-Verlag, Weinheim, **2010**.
- [41] R. L. Bunde, J. J. Rosentreter, M. J. Liszewski, C. H. Hemming, J. Welhan, *Environmental Geology* **1997**, *32*, 219–229.
- [42] R. Y. Kim, J. K. Yoon, T. S. Kim, J. E. Yang, G. Owens, K. R. Kim, *Environmental Geochemistry and Health* **2015**, *37*, 1041–1061.
- [43] M. Nordén, R. Avila, M. A. Gonze, C. Tamponnet, *Radioprotection* **2005**, *40*, S107–S111.
- [44] C. Tamponnet, A. Martin-Garin, M. A. Gonze, N. Parekh, R. Vallejo, T. Sauras-Yera, J. Casadesus, C. Plassard, S. Staunton, M. Norden, R. Avila, G. Shaw, *Journal of Environmental Radioactivity* **2008**, *99*, 820–830.

- [45] N. R. Council, *Bioavailability of Contaminants in Soils and Sediments: Processes, Tools, and Applications*, The National Academies Press, Washington, DC, **2003**, S. 432.
- [46] IAEA, *Quantification of Radionuclide Transfer in Terrestrial and Freshwater Environments for Radiological Assessments*, Vienna, **2009**.
- [47] A. J. Fuller, S. Shaw, C. L. Peacock, D. Trivedi, I. T. Burke, *Langmuir* **2016**, *32*, 2937–2946.
- [48] A. Yamaguchi, M. Tanaka, Y. Kurihara, Y. Takahashi, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* **2018**, *317*, 545–551.
- [49] S. Ehlken, G. Kirchner, *J. Environ. Radioact.* **2001**, *58*, 97–112.
- [50] J. Guillén, A. Baeza, N. A. Beresford, M. D. Wood, *Journal of Environmental Radioactivity* **2017**, *175-176*, 70–77.
- [51] E. Valcke, *The behaviour dynamics of radiocesium and radiostrontium in soils rich in organic matter. (Dissertationsschrift)*, Katholike Universitaet, Leuven, Belgium, **1993**.
- [52] P.-N. Chiang, M.-K. Wang, P.-M. Huang, J.-J. Wang, C.-Y. Chiu, *J. Environ. Radioact.* **2010**, *101*, 472–481.
- [53] K. E. Van Bergeijk, H. Noordijk, J. Lembrechts, M. J. Frissel, *Journal of Environmental Radioactivity* **1992**, *15*, 265–276.
- [54] T. Ohnuki, N. Kozai, *Radiochim. Acta* **1994**, *66/67*, 327–31.
- [55] B. Bilgin, G. Atun, G. Keçeli, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* **2001**, *250*, 323–328.
- [56] I. Smičiklas, M. Jović, M. Šljivić-Ivanović, V. Mrvić, D. Čakmak, S. Dimović, *Geoderma* **2015**, *253-254*, 21–29.
- [57] C. J. Gil-Garcia, A. Rigol, G. Rauret, M. Vidal, *Appl. Radiat. Isot.* **2007**, *67*, 367.
- [58] J. Eslava-Gomez, A. Brown, Determination of root uptake to vegetables grown in soil contaminated for twenty-five years, Techn. Ber., Health Protection Agency, **2013**.
- [59] A. Rigol, M. Roig, M. Vidal, G. Rauret, *Environ. Sci. Technol.* **1999**, *33*, 887–895.
- [60] W. Schulz, D. K. Gupta, B. Riebe, G. Steinhauser, C. Walther, *Applied Geochemistry* **2019**, *101*, 103–108.
- [61] L. Al Attar, M. Al-Oudat, B. Safia, B. Abdul Ghani, *J Environ Radioact* **2016**, *164*, 19–25.
- [62] H. Noordijk, K. E. Van Bergeijk, J. Lembrechts, M. J. Frissel, *J. Environ. Radioact.* **1992**, *15*, 277–86.
- [63] J. A. Corcho-Alvarado, B. Balsiger, H. Sahli, M. Astner, F. Byrde, S. Röllin, R. Holzer, N. Mosimann, S. Wüthrich, A. Jakob, M. Burger, *Journal of Environmental Radioactivity* **2016**, *160*, 54–63.
- [64] A. A. Sysoeva, I. V. Konopleva, N. I. Sanzharova, *J. Environ. Radioact.* **2005**, *81*, 269–282.
- [65] L. Maskalchuk, A. Baklay, T. Leontieva, *J. Chem. Eng. Chem. Res.* **2015**, *2*, 521–528.
- [66] C. Gil-García, A. Rigol, M. Vidal, *Journal of Environmental Radioactivity* **2008**, *100*, 690–696.
- [67] A. Baeza, M. Delrio, A. Jimenez, C. Miro, J. Paniagua, *Radiochimica Acta* **1995**, *68*, 135–140.
- [68] S. H. Wallace, S. Shaw, K. Morris, J. S. Small, A. J. Fuller, I. T. Burke, *Applied Geochemistry* **2012**, *27*, 1482–1491.
- [69] A. Rigol, M. Roig, M. Vidal, G. Rauret, *Environ. Sci. Technol.* **1999**, *33*, 887–895.
- [70] M. Vidal, M. Roig, A. Rigol, M. Llauro, G. Rauret, J. Wauters, A. Elsen, A. Cremers, *Analyst (Cambridge U. K.)* **1995**, *120*, 1785–91.
- [71] A. Cremers, A. Elsen, P. De Preter, A. Maes, *Nature (London)* **1988**, *335*, 247–9.

- [72] E. Brouwer, B. Baeyens, A. Maes, A. Cremers, *J. Phys. Chem.* **1983**, *87*, 1213–19.
- [73] J. Wauters, A. Elsen, A. Cremers, *Applied Geochemistry* **1996**, *11*, 601–603.
- [74] M. Camps, A. Rigol, S. Hillier, M. Vidal, G. Rauret, *Sci. Total Environ.* **2004**, *332*, 23–38.
- [75] C.-M. Zhao, P. G. C. Campbell, K. J. Wilkinson, *Environ. Chem.* **2016**, *13*, 425–433.
- [76] L. Skipperud, B. Salbu, *Radiochimica Acta* **2015**, *103*, 187–197.
- [77] D. H. Oughton, B. Salbu, T. L. Brand, J. P. Day, A. Aarkrog, *Analyst (Cambridge U. K.)* **1993**, *118*, 1101–5.
- [78] H. Zeien, G. Brümmer, *Mitt. Dt. Bodenkundl. Ges.* **1989**, 505–510.
- [79] D. H. Oughton, B. Salbu, G. Riise, H. Lien, G. Oestby, A. Noren, *Analyst (London)* **1992**, *117*, 481–6.
- [80] V. H. Kennedy, A. L. Sanchez, D. H. Oughton, A. P. Rowland, *Analyst (Cambridge U. K.)* **1997**, *122*, 89R–100R.
- [81] M. C. Duff, M. L. Ramsey, *Journal of Environmental Radioactivity* **2008**, *99*, 912–932.
- [82] P. Calmon, Y. Thiry, G. Zibold, A. Rantavaara, S. Fesenko, *Journal of Environmental Radioactivity* **2009**, *100*, 757–766.
- [83] A. Baeza, J. Guillen, J. W. Mietelski, P. Gaca, *Radiochim. Acta* **2006**, *94*, 75–80.
- [84] A. Baeza, J. Guillen, J. M. Bernedo, *J. Environ. Radioact.* **2005**, *81*, 89–106.
- [85] J. Kirtzel, N. Ueberschaar, T. Deckert-Gaudig, K. Krause, V. Deckert, G. M. Gadd, E. Kothe, *Environmental Microbiology* **2020**, *22*, 1535–1546.
- [86] M. Wengel, E. Kothe, C. M. Schmidt, K. Heide, G. Gleixner, *Science of the Total Environment* **2006**, *367*, 383–393.
- [87] A. Ceci, M. Kierans, S. Hillier, A. M. Persiani, G. M. Gadd, *Applied and Environmental Microbiology* **2015**, *81*, 4955–4964.
- [88] E. P. Burford, M. Fomina, G. M. Gadd, *Mineralogical Magazine* **2003**, *67*, 1127–1155.
- [89] J. Kirtzel, D. Siegel, K. Krause, E. Kothe, *Advances in Applied Microbiology Vol 99* **2017**, *99*, 83–101.
- [90] G. M. Gadd, *Mycological Research* **2007**, *111*, 3–49.
- [91] A. Gunther, J. Raff, M. L. Merroun, A. Rossberg, E. Kothe, G. Bernhard, *Biometals* **2014**, *27*, 775–785.
- [92] H. L. Ding, X. N. Zhang, H. Yang, X. G. Luo, X. Y. Lin, *Chemical Engineering Journal* **2019**, *368*, 37–50.
- [93] X. J. Liang, M. A. M. Perez, J. G. Armstrong, L. A. Bullock, J. Feldmann, L. Csetenyi, G. M. Gadd, *Life with Ore Deposits on Earth Proceedings of the 15th Sga Biennial Meeting 2019 Vols 1-4* **2019**, 1558–1561.
- [94] R. Phieler, D. Merten, M. Roth, G. Buchel, E. Kothe, *Environmental Science and Pollution Research* **2015**, *22*, 19408–19416.
- [95] *The Chernobyl Accident: Updating of INSAG-1*, INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, Vienna, **1992**.
- [96] A. A. Borovoi, A. R. Sich, *Nuclear Safety* **1995**, *36*, 1–32.
- [97] E. Velikhov, N. Ponomarev-Stepnoy, V. Asmolov in Selected proceedings of the international conference on nuclear accidents and the future of energy. The Lessons of Chernobyl, Paris, **1991**, S. 12–36.
- [98] E. O. Adamov, Y. M. Cherkashov, L. N. Podlazov, Chernobyl accident causes: Overview of studies over the decade, Techn. Ber., IAEA, **1996**.
- [99] GRS, Der Unfall und die Sicherheit der RBMK-Anlagen, Techn. Ber. GRS-121, **1996**.

- [100] N. Victorova, E. Garger in Proceedings of Seminar on Comparative Assessment of the Environmental Impact of Radionuclides Released during Three Major Accidents: Kyshtym, Windscalem Chernobyl. Volume I, Luxembourg, **1990**.
- [101] V. A. Kashparov, S. M. Lundin, S. I. Zvarych, V. I. Yoshchenko, S. E. Levchuk, Y. V. Khomutinin, I. M. Maloshtan, V. P. Protsak, *Science of the Total Environment* **2003**, *317*, 105–119.
- [102] UNSCEAR, Sources and effects of ionizing radiation Volume II: Effects, Techn. Ber., **2008**.
- [103] V. A. Kashparov, Y. A. Ivanov, S. I. Zvarisch, V. P. Protsak, Y. V. Khomutinin, A. D. Kurepin, E. M. Pazukhin, *Nuclear Technology* **1996**, *114*, 246–253.
- [104] B. E. Burakov, E. B. Anderson, S. I. Shabalev, E. E. Strykanova, S. V. Ushakov, M. Trotabas, J. Y. Blanc, P. Winter, J. Duco, *MRS Proceedings* **2012**, *465*, 1297.
- [105] V. Kortov, Y. Ustyantsev, *Radiation Measurements* **2013**, *55*, 12–16.
- [106] I. Vlasova, A. Shiryayev, B. Ogorodnikov, B. Burakov, E. Dolgopolova, R. Senin, A. Averin, Y. Zubavichus, S. Kalmykov, *Radiation Measurements* **2015**, *83*, 20–25.
- [107] B. E. Burakov, E. E. Strykanova, E. B. Anderson, *MRS Proceedings* **2012**, *465*, 1309.
- [108] B. E. Burakov, E. B. Anderson, B. Y. Galkin, E. M. Pazukhin, S. I. Shabalev, **1994**, *65*, 199.
- [109] A. Kisilev, *Post-accident balance of nuclear fuel in the fourth block of the Chernobyl-NPP (russisch)*, IAE-5716/3 RRC, Kurchatov's Institute, Moscow, **1994**.
- [110] A. Kisilev, A. Surin, K. Checharov, *The results of additional studies of lava localities in the fourth block of the Chernobyl NPP (russisch)*, IAE-5783/3 RRC, Kurchatov's Institute, Moscow, **1994**.
- [111] P. Pöml, B. Burakov, T. Geisler, C. T. Walker, M. L. Grange, A. A. Nemchin, J. Berndt, R. O. C. Fonseca, P. D. W. Bottomley, R. Hasnaoui, *Journal of Nuclear Materials* **2013**, *439*, 51–56.
- [112] P. Pöml, B. Burakov, *Journal of Nuclear Materials* **2017**, *488*, 314–318.
- [113] A. Kerner, R. Stück, F.-P. Weiß, G. Pretzsch, H. Teske, *Sonderdruck 25 Jahre Tschernobyl - Rückblick, Status Quo, Ausblick*, GRS, **2011**.
- [114] G. Steinhauser, A. Brandl, T. E. Johnson, *Science of the Total Environment* **2014**, *470*, 800–817.
- [115] V. A. Kashparov, *Environmental Science and Pollution Research* **2003**, 21–30.
- [116] R. Pollanen, I. Valkama, H. Toivonen, *Atmos. Environ.* **1997**, *31*, 3575–3590.
- [117] S. Askbrant, J. Melin, J. Sandalls, G. Rauret, R. Vallejo, T. Hinton, A. Cremer, C. Vandecastelle, N. Lewycky, a. et al, *J. Environ. Radioact.* **1996**, *31*, 287–312.
- [118] V. A. Kashparov, D. H. Oughton, S. I. Zvarich, V. P. Protsak, S. E. Levchuk, *Health Phys.* **1999**, *76*, 251–259.
- [119] *The transfer of radionuclides through the terrestrial environment to agricultural products, including the evaluation of agrochemical practices*, European Commission. Directorate-General XII. Science, Research und Development, Luxembourg, **1996**.
- [120] V. A. Kashparov, V. P. Protsak, N. Ahamdach, D. Stammose, J. M. Peres, V. I. Yoshchenko, S. I. Zvarich, *Journal of Nuclear Materials* **2000**, *279*, 225–233.
- [121] B. Salbu, V. Kashparov, O. C. Lind, R. Garcia-Tenorio, M. P. Johansen, D. P. Child, P. Roos, C. Sancho, *Journal of Environmental Radioactivity* **2018**, *186*, 101–115.
- [122] M. Zhurba, V. Kashparov, N. Ahamdach, B. Salbu, V. Yoschenko, S. Levchuk in, **2009**, S. 187–195.
- [123] V. A. Kashparov, N. Ahamdach, S. I. Zvarich, V. I. Yoschenko, I. M. Maloshtan, L. Dewiere, *Journal of Environmental Radioactivity* **2004**, *72*, 335–353.

- [124] V. Kashparov, B. Salbu, S. Levchuk, V. Protsak, I. Maloshtan, C. Simonucci, C. Courbet, H. L. Nguyen, N. Sanzharova, V. Zabrotsky, *Journal of Environmental Radioactivity* **2019**, *208-209*, 106025.
- [125] D. A. Brown, M. B. Chadwick, R. Capote, A. C. Kahler, A. Trkov, M. W. Herman, A. A. Sonzogni, Y. Danon, A. D. Carlson, M. Dunn, D. L. Smith, G. M. Hale, G. Arbanas, R. Arcilla, C. R. Bates, B. Beck, B. Becker, F. Brown, R. J. Casperson, J. Conlin, D. E. Cullen, M. A. Descalle, R. Firestone, T. Gaines, K. H. Guber, A. I. Hawari, J. Holmes, T. D. Johnson, T. Kawano, B. C. Kiedrowski, A. J. Koning, S. Kopecky, L. Leal, J. P. Lestone, C. Lubitz, J. I. Márquez Damián, C. M. Mattoon, E. A. McCutchan, S. Mughabghab, P. Navratil, D. Neudecker, G. P. A. Nobre, G. Noguere, M. Paris, M. T. Pigni, A. J. Plompen, B. Pritychenko, V. G. Pronyaev, D. Roubtsov, D. Rochman, P. Romano, P. Schillebeeckx, S. Simakov, M. Sin, I. Sirakov, B. Sleford, V. Sobes, E. S. Soukhovitskii, I. Stetcu, P. Talou, I. Thompson, S. van der Marck, L. Welsch-Sherill, D. Wiarda, M. White, J. L. Wormald, R. Q. Wright, M. Zerkle, G. Žerovnik, Y. Zhu, *Nuclear Data Sheets* **2018**, *148*, 1–142.
- [126] *Karlsruhe Nuclear Chart Online*, <https://www.nucleonica.com/>, zuletzt abgerufen am 02.09.2022, Nucleonica GmbH.
- [127] M. Weiss, *Extraction and Analysis of Nuclear Fuel Fragments from the Chernobyl Exclusion Zone*, Dissertationsschrift, IRS Leibniz Universität Hannover, voraussichtliche Veröffentlichung Okt., **2020**.
- [128] H. Bosco, *Ortsaufgelöste Analyse von Aktiniden mittels resonanter ToF-Laser-SNMS*, Dissertationsschrift, IRS Leibniz Universität Hannover, **2020**.
- [129] D. A. Skoog, J. J. Leary in *Instrumentelle Analytik: Grundlagen — Geräte — Anwendungen*, Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg, **1996**, S. 415–433.
- [130] *Grundlagen der Licht- und Elektronenmikroskopie, Bd. 4864*, 1 Online-Ressource (397 Seiten), Verlag Eugen Ulmer; Stuttgart, **2018**.
- [131] E. J. Kirkland, *Advanced Computing in Electron Microscopy*, 1 Online-Ressource (XII, 354 p. 146 illus., 8 illus. in color.), Springer International Publishing; Cham, **2020**.
- [132] D. I. f. N. e. V., Schlamm, behandelter Bioabfall und Boden - Bestimmung des pH-Werts; Deutsche Fassung EN 15933:2012, **2012**.
- [133] D. I. f. N. e. V., Bodenbeschaffenheit - Bestimmung der Partikelgrößenverteilung in Mineralböden - Verfahren mittels Siebung und Sedimentation (ISO 11277:1998 + ISO 11277:1998 Corrigendum 1:2002), **2002**.
- [134] D. I. f. N. e. V., Bodenbeschaffenheit - Parameter zur geochemischen Modellierung der Elution und Speziation von Bestandteilen in Böden und Materialien - Teil 2: Extraktion von kristallinen Eisenoxiden und -hydroxiden mittels Dithionit (ISO 12782-2:2012); Deutsche Fassung EN ISO 12782-2:201, **2012**.
- [135] D. I. f. N. e. V., Bodenbeschaffenheit - Parameter zur geochemischen Modellierung der Elution und Speziation von Bestandteilen in Böden und Materialien - Teil 3: Extraktion von Aluminiumoxiden und -hydroxiden mittels Ammoniumoxalat/Oxalsäure (ISO 12782-3:2012); Deutsche Fassung EN ISO 12782-3:2012, **2012**.
- [136] R. Dohrmann, *Applied Clay Science* **2006**, *34*, 38–46.
- [137] H.-P. Blume, G. Brümmer, R. Horn, E. Kandeler, I. Kögel-Knaber, R. Kretschmar, e. al. et, *Scheffer/Schachtschabel: Lehrbuch der Bodenkunde*, Springer, Berlin, Heidelberg, **2010**.
- [138] World Reference Base for Soil Resources 2006, Techn. Ber., Food und Agriculture Organization of the United Nations (FAO), **2006**.
- [139] M. E. Christiane Martin, *Lexikon der Geowissenschaften*, <https://www.spektrum.de/lexikon/geowissenschaften/derno-podsol/3087>, zuletzt aufgerufen am 02.02.2020, Spektrum der Wissenschaft Verlag.

- [140] D. Heine, *Vertikale Migration von Radionukliden in Böden der kontaminierten Gebiete um Tschernobyl*, Masterarbeit (Physik), IRS Leibniz Universität Hannover, **2017**.
- [141] D. Bugai, J. Smith, M. A. Hoque, *Chemosphere* **2020**, *242*.
- [142] Y. A. Izrael, M. D. Cort, A. R. Jones, I. M. Nazarov, S. D. Fridman, E. V. Kvasnikova, E. D. Stukin, G. N. Kelly, I. I. Matveenko, Y. M. Pokumeiko, L. Y. Tabatchnyi, Y. Tsatururov in Proceedings of the first international conference 'The radiological consequences of the Chernobyl accident', ENVIRONMENTAL SCIENCES SPECIFIC NUCLEAR REACTORS AND ASSOCIATED PLANTS, S. 1192.
- [143] Y. A. Ivanov, N. Lewyckyj, S. E. Levchuk, B. S. Prister, S. K. Firsakova, N. P. Arkhipov, A. N. Arkhipov, S. V. Kruglov, R. M. Alexakhin, J. Sandalls, S. Askbrant, *J. Environ. Radioact.* **1997**, *35*, 1–21.
- [144] Vivian Pottgiesser (geb. Schulte), *Untersuchung zur Bindungsform von stabilem Strontium in Bodenprofilen aus der Tschernobylsperrzone*, Forschungspraktikumsbericht (M.Sc. Analytik), IRS Leibniz Universität Hannover, **2016**.
- [145] T. Nakano, *Proceedings of the Japan Academy. Series B Physical and biological sciences* **2016**, *92*, 167–184.
- [146] I. M. Gorokhov, *Sov. Geol.* **1968**, *11*, 89–101.
- [147] M. Viebrock, *Untersuchungen zur Extrahierbarkeit von Radionukliden aus Bodenproben an einem Beispiel aus Tschernobyl*, Masterarbeit (Chemie), IRS Leibniz Universität Hannover, **2018**.
- [148] *Datenbank: Sicherheitstechnische Kenndaten online*, <https://www.ecomed-storck.de/Login-Online-Produkte-es/>, abgerufen über den Zugang der technischen Informationsbibliothek am 09.09.2020, Ecomed.
- [149] V. Kashparov, V. Yoschenko, S. Levchuk, D. Bugai, N. Van Meir, C. Simonucci, A. Martin-Garin, *Applied Geochemistry* **2012**, *27*, 1348–1358.
- [150] V. Kashparov, N. Ahamdach, S. Levchuk, V. Yoschenko, S. Fesenko, I. Maloshtan in, Springer Netherlands, S. 139–156.
- [151] N. Ahamdach, D. Stammose, *Comptes Rendus de l'Académie des Sciences - Series IIA - Earth and Planetary Science* **2000**, *330*, 415–422.
- [152] B. Salbu, T. Krekling, O. C. Lind, D. H. Oughton, M. Drakopoulos, A. Simionovici, I. Snigireva, A. Snigirev, T. Weitkamp, F. Adams, K. Janssens, V. A. Kashparov, *Nuclear Instruments & Methods in Physics Research Section a-Accelerators Spectrometers Detectors and Associated Equipment* **2001**, *467*, 1249–1252.
- [153] J. Devoy, J. Haschke, D. Cui, K. Spahiu, *Scientific Basis for Nuclear Waste Management Xvii* **2004**, *807*, 41–46.
- [154] Y. F. Zhao, J. Chen, *Science in China Series B-Chemistry* **2008**, *51*, 700–704.
- [155] M. Böhl, *Aufnahme des bioverfügbaren Sr-90 Inventars in Pflanzen - Uptake of bioavailable Sr-90 into Plants*, Masterarbeit (Physik), IRS Leibniz Universität Hannover, **2020**.
- [156] L. Traxler, A. Wollenberg, G. Steinhäuser, S. Großmann, A. Günther, W. Schulz, C. Walther, J. Raff, E. Kothe, *Journal of Hazardous Materials* eingereicht- Status: Major revisions **2020**.
- [157] B. Penrose, K. A. J. N. Payne, A. Arkhipov, A. Maksimenko, S. Gaschak, M. C. Meacham, N. J. M. Crout, P. J. White, N. A. Beresford, M. R. Broadley, *Journal of Environmental Radioactivity* **2016**, *155*, 112–121.
- [158] B. Penrose, N. A. Beresford, M. R. Broadley, N. M. J. Crout, *Journal of Environmental Radioactivity* **2015**, *139*, 103–117.
- [159] K. A. Payne, H. C. Bowen, J. P. Hammond, C. R. Hampton, J. R. Lynn, A. Mead, K. Swarup, M. J. Bennett, P. J. White, M. R. Broadley, *New Phytologist* **2004**, *162*, 535–548.

A Anhang

Videotagebücher der Tschernobyl-Exkursionen

Tabelle 25 – Links zu den Videotagebüchern der Exkursionen

Exkursion	von	bis	Titel / link
1	26.10.	31.10.16	Tschernobyl Exkursion 2016 https://www.youtube.com/watch?v=N6xGxBFRqvM
2	15.05.	19.05.17	1. Tschernobyl Exkursion 2017 https://youtu.be/yVsJo2iBL90
3	25.05.	29.09.17	2. Tschernobyl Exkursion 2017 https://www.youtube.com/watch?v=EXeeyZVoJDc
4	22.05.	26.05.18	Tschernobyl Exkursion 2018 https://youtu.be/HAb12GIh5SE

Rasterelektronenmikroskopie von weiteren UO_2 -Partikeln

id	Kop 05 (Eris)
Typ	UO_2
Größe	$15 \times 15 \mu\text{m}$

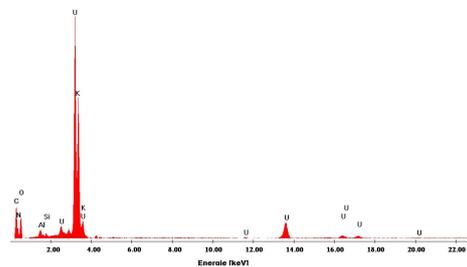
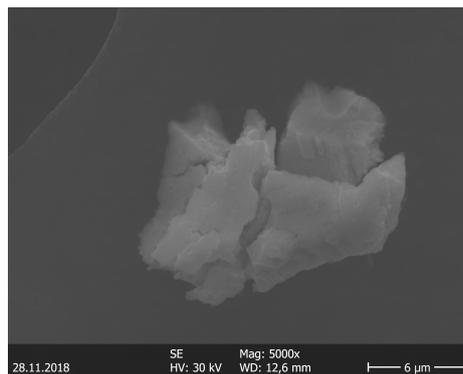
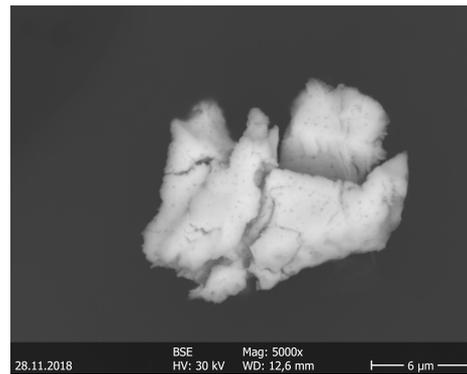


Abbildung 80 – Kop 05, Eris

id	Kop 09 (Iris)
Typ	UO ₂
Größe	20x20µm

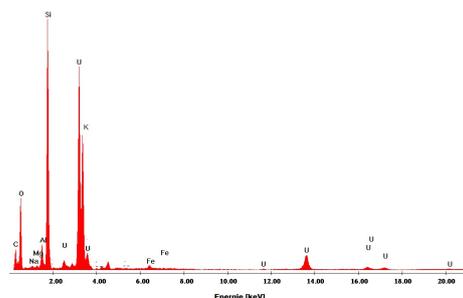
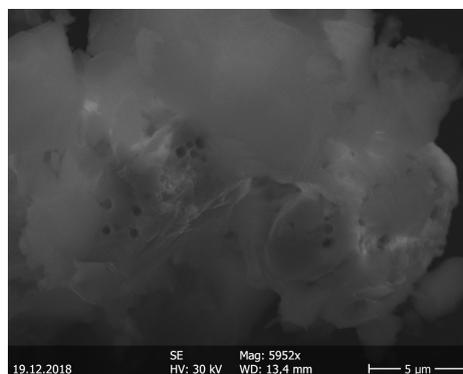
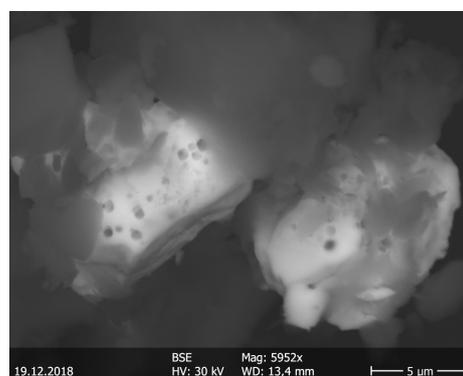


Abbildung 81 – Kop 09, Iris

id	Kop 11 (Kronos)
Typ	UO ₂
Größe	20x20µm
A(¹³⁷ Cs)	40,6 ± 0,22 Bq
A(²⁴¹ Am)	2,3 ± 0,03 Bq
A(¹⁵⁴ Eu)	0,197 ± 0,017 Bq

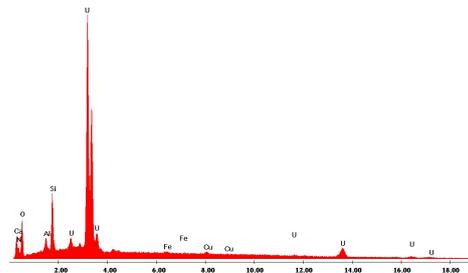
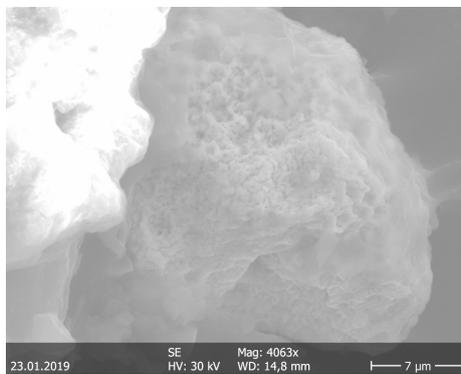
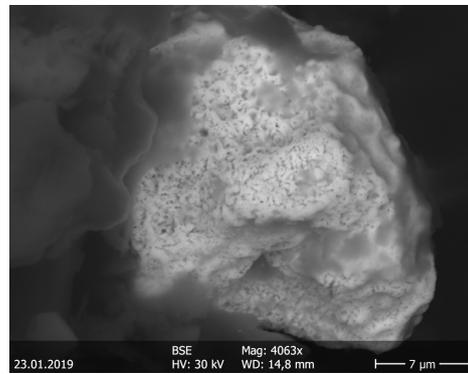


Abbildung 82 – Kop 11, Kronos

Vollständige Messreihe zu Abb. 58 aus Abschnitt 5.1

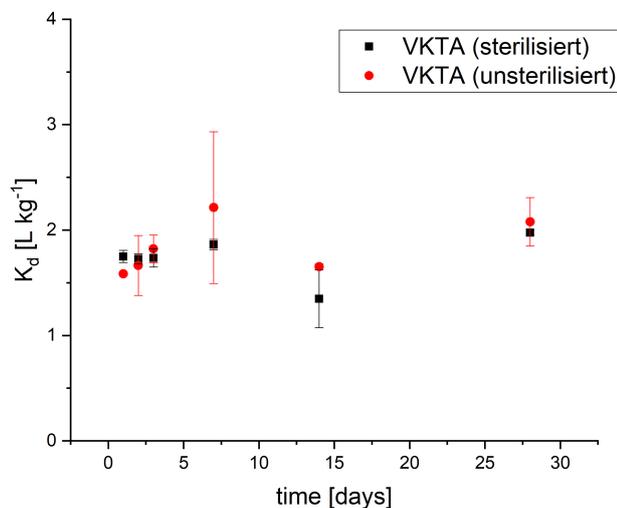


Abbildung 83 – Kinetik der ⁸⁵Sr -Sorption im Verlauf von 28 Tagen Equilibrierung im VKTA Boden. Die Daten wurden mit folgender Formel gefittet: $y = \frac{tx}{tx+1} K_d$ mit den freien Parametern t und K_d . Bei der Ermittlung des Datenpunktes nach 14 Tagen wurden die Proben im Anschluss an das Zentrifugieren fälschlicherweise nicht mehr gefiltert. Hierdurch sind offensichtlich Schwebstoffe (mutmaßlich Tone) in die Analyseprobe mit übergegangen die signifikant zur gemessenen Aktivität in Lösung beigetragen und so den ermittelten K_d -Wert gesenkt haben.

Rohdaten der Ernte aus den Klimaschränken

Tabelle 26 – Rohdaten der Ernte aus den Klimaschränken in Abschnitt 5.2.

id	Kartoffelfrucht Frischmasse [g / Topf]	Trockenmasse [g / Topf]	id	Roggengrün Trockenmasse [g / Topf]
1	6,69	1,69	11	2,27
2	4,21	1,15	12	2,82
3	0,00	0,00	13	2,24
4	0,00	0,00	14	2,82
5	15,70	3,90	15	2,83
6	14,79	4,23	16	3,05
7	0,00	0,00	17	2,53
8	2,20	0,79	18	3
9	0,00	0,00	19	2,87
10	1,95	0,56	20	3,5
21	1,00	0,93	31	0
22	34,11	10,94	32	2,48
23	21,64	4,95	33	1,71
24	44,85	12,16	34	3,64
25	51,83	11,62	35	2,46
26	18,09	4,99	36	2,68
27	41,05	10,58	37	2,19
28	22,44	5,99	38	5,44
29	27,00	9,36	39	2,41
30	0,17	0,15	40	2,88
41	38,61	8,50	51	2,84
42	0,00	0,00	52	2,71
43	12,18	2,67	53	3,61
44	50,60	15,90	54	3,07
45	36,10	7,62	55	3,79
46	40,03	8,80	56	3,21
47	0,00	0,00	57	2,69
48	34,48	8,07	58	2,67
49	49,86	13,00	59	2,89
50	20,17	6,52	60	3,8

Analysezertifikate

Anschrift des Labors: VKTA – Strahlenschutz, Analytik & Entsorgung Rossendorf e. V.
 Labor für Umwelt- und Radionuklidanalytik
 Bautzner Landstraße 400, **01328 Dresden**
 Tel.: 0351 / 260 3489, Fax: 0351 / 260 3190

Auftraggeber: Institut für Radioökologie und Strahlenschutz (IRS)
 Gottfried Wilhelm Leibniz Universität
 Herrenhäuser Str. 2, D-**30419 Hannover**
 Herr Wolfgang Schulz

Auftragsnummer: 2686.5/1

Auftragsdatum: ---

Auftragsgegenstand: aktiver Boden aus Rückbauprojekt

Probenzahl: 1

Probenahme durch: VKTA

Probeneingang: ---

Prüfzeitraum: 01. – 05.2018

Analysenverfahren:

⁹⁰ Sr	MB-416 (2015-05)	Flüssigszintillationsmessung (LSC) nach radiochemischer Abtrennung
¹³⁷ Cs	MB-402 (2015-06)	Gammaspektrometrie

Bemerkungen: Der aktive Boden befindet sich in einem ca. 60 L Aluminiumfass. Die Nettomasse beträgt 65,20 kg.

freigegeben:

Name: Dr. Sina Großmann
Funktion: Projektverantwortliche
Unterschrift:

¹⁾ nicht akkreditiertes Verfahren ²⁾ vom Nachauftragnehmer durchgeführt
 Die Prüfergebnisse beziehen sich nur auf die Prüfgegenstände.
 Ohne Genehmigung des Labors darf der Prüfbericht nicht auszugsweise vervielfältigt werden.

Durch die DAKKS nach DIN EN ISO/IEC 17025 akkreditiertes Prüflaboratorium.
 Die Akkreditierung gilt für die in der Urkunde aufgeführten Prüfverfahren.



 Labor für Umwelt- und Radionuklidanalytik	Prüfbericht	Seite	2 von 2
		Revision	0
	2686.5 - 1	vom	07.06.2018

Analysenergebnisse:

Sample		⁹⁰ Sr
		[Bq/g FM]
2686.5/1	a_i	14,4
Boden Fass 1	1* s	2,0
	s/a _i	14%
	g*	0,0020
	reference date	22.02.2018

Probe		⁶⁰ Co	¹³⁷ Cs	²³⁸ U	²²⁶ Ra	²¹⁰ Pb	²²⁸ Ra	²²⁸ Th	⁴⁰ K	Detektor, Geometrie	t _m	
		[Bq/g]	[Bq/g]	[Bq/g]	[Bq/g]	[Bq/g]	[Bq/g]	[Bq/g]	[Bq/g]	Masse / [g]	[ks]	Messzeitpunkt
1	a_i	< 0,00098	0,0022	< 0,058	0,0106	< 0,089	0,0137	0,0115	0,45	BL, 70 D	36	
Boden	1* s		0,0005		0,0017		0,0023	0,0013	0,04	116,3		29.01.2018
	s/a _i		25%		16%		17%	11%	9,4%			
	g*	0,00049	0,00063	0,029	0,0015	0,045	0,0021	0,0014	0,0054			Degering

Legende:

- a_i spezifische Aktivität
- s Gesamtunsicherheit
- s/a_i relative Gesamtunsicherheit
- g* Erkennungsgrenze

Für ein Vertrauensniveau von 90% ist der Vertrauensbereich durch a_i ± 1,645 s gegeben.

---- Ende des Prüfberichtes ----

Zertifikate der verwendeten Radionuklidstandards

x QCY-12

akkreditiert durch die / accredited by the

Deutsche Akkreditierungsstelle GmbH

als Kalibrierlaboratorium im / as calibration laboratory in the



Deutsche
Akkreditierungsstelle
D-K-19029-01-01

Deutschen Kalibrierdienst



Kalibrierschein
Calibration certificate

Kalibrierzeichen
Calibration mark

002169
D-K- 19029-01-01
2016-05

Gegenstand
Object **Multiple gamma ray emitting solution**

Hersteller
Manufacturer **Eckert & Ziegler Isotope Products**

Typ
Type **5mL flame-sealed ampoule,
catalog number 7601**

Fabrikat/Serien-Nr.
Serial number **1876-59**

Auftraggeber
Customer **Eckert & Ziegler Nuclitec GmbH
Gieselweg 1
38110 Braunschweig
Germany**

Auftragsnummer
Order No. **285488**

Anzahl der Seiten des Kalibrierscheines
Number of pages of the certificate **3**

Datum der Kalibrierung
Date of calibration **1 May 16**

Dieser Kalibrierschein dokumentiert die Rückführung auf nationale Normale zur Darstellung der Einheiten in Übereinstimmung mit dem Internationalen Einheitensystem (SI).

Die DAkkS ist Unterzeichner der multilateralen Übereinkommen der European co-operation for Accreditation (EA) und der International Laboratory Accreditation Cooperation (ILAC) zur gegenseitigen Anerkennung der Kalibrierscheine.

Für die Einhaltung einer angemessenen Frist zur Wiederholung der Kalibrierung ist der Benutzer verantwortlich.

This calibration certificate documents the traceability to national standards, which realize the units of measurement according to the International System of Units (SI).

The DAkkS is signatory to the multilateral agreements of the European co-operation for Accreditation (EA) and of the International Laboratory Accreditation Cooperation (ILAC) for the mutual recognition of calibration certificates.

The user is obliged to have the object recalibrated at appropriate intervals.

Dieser Kalibrierschein darf nur vollständig und unverändert weiterverbreitet werden. Auszüge oder Änderungen bedürfen der Genehmigung sowohl der Deutschen Akkreditierungsstelle GmbH als auch des ausstellenden Kalibrierlaboratoriums. Kalibrierscheine ohne Unterschrift haben keine Gültigkeit.

This calibration certificate may not be reproduced other than in full except with the permission of both the Deutsche Akkreditierungsstelle GmbH and the issuing laboratory. Calibration certificates without signature are not valid.

Datum
Date

Leiter des Kalibrierlaboratoriums
Head of the calibration laboratory

Bearbeiter
Person in charge

11 May 16

Januel James Van Dalsem
Van Dalsem

Catterson

Tithy Patton

002169
D-K- 19029-01-01
2016-05

• **Object Calibrated:**

Mass of solution: (5.1677 ± 0.0002) g in 5 mL flame-sealed ampoule
 Chemical form: Multinuclide in 2M HCl
 Density: 1.033 g/mL @ 20°C

• **Calibration Procedure:**

Master nuclide batches were calibrated using an efficiency curve to determine the concentration of each nuclide according to Eckert & Ziegler Isotope Products procedure LP05-24, Revision C "Operating Procedure for Calibration of Multiline Sources". The germanium spectrometer's efficiency curve was generated using standards traceable to a national metrology laboratory. The energies and branching ratios for the gamma rays used are listed in the Measurement Results section.

• **Place of Calibration:**

Eckert & Ziegler Isotope Products
 DBA Isotope Products Laboratories
 24937 Avenue Tibbitts
 Valencia, CA 91355
 USA

• **Measurement Conditions:**

The source was manufactured using gravimetric aliquots from previously calibrated master nuclide batches according to Eckert & Ziegler Isotope Products procedure PM29-01, Revision N "Calibrated Solutions". When applicable, decay corrections were performed using the half life values listed in the Measurement Results section.

• **Environmental Conditions:**

Temperature: (22 ± 2) °C
 Relative humidity: (38 ± 5) %

• **Measurement Results:**

Gamma-Ray Energy (keV)	Nuclide	Half-life	Branching Ratio (%)	Specific Activity	Gammas per second per gram	Total Uncert.
60	Am-241	(432.17 ± 0.66) years	36.0	1080 Bq/g (29.2 nCi/g)	388.8	3.1%
88	Cd-109	(462.6 ± 0.7) days	3.63	15400 Bq/g (416 nCi/g)	559.0	2.5%
122	Co-57	(271.79 ± 0.09) days	85.6	521 Bq/g (14.1 nCi/g)	446.0	2.3%
166	Ce-139	(137.640 ± 0.023) days	79.9	682 Bq/g (18.4 nCi/g)	544.9	2.3%
279	Hg-203	(46.595 ± 0.013) days	81.5	2140 Bq/g (57.8 nCi/g)	1744	2.3%
392	Sn-113	(115.09 ± 0.04) days	64.9	2740 Bq/g (74.1 nCi/g)	1778	2.3%
514	Sr-85	(64.849 ± 0.004) days	98.4	3320 Bq/g (89.7 nCi/g)	3267	2.3%
662	Cs-137	(30.17 ± 0.16) years	85.1	2320 Bq/g (62.7 nCi/g)	1974	2.3%
898	Y-88	(106.630 ± 0.025) days	94.0	5340 Bq/g (144 nCi/g)	5020	2.3%
1173	Co-60	(5.272 ± 0.001) years	99.86	2770 Bq/g (74.9 nCi/g)	2766	2.3%
1333	Co-60	(5.272 ± 0.001) years	99.98	2770 Bq/g (74.9 nCi/g)	2769	2.3%
1836	Y-88	(106.630 ± 0.025) days	99.4	5340 Bq/g (144 nCi/g)	5308	2.3%
			Total:	36300 Bq/g (981 nCi/g)		
			Total:	188 kBq (5.08 µCi)		

002169
D-K- 19029-01-01
2016-05

- **Uncertainty of Measurement:**

The uncertainty stated is the expanded uncertainty obtained by multiplying the standard uncertainty by the coverage factor $k = 2$. It has been determined in accordance with DAkkS-DKD-3. The value of the measurand lies within the assigned range of values with a probability of 95%.

- **Carrier Content:**

20 µg Co/mL	10 µg Cs/mL
50 µg Sr/mL	500 µg Cd/mL
50 µg Y/mL	50 µg Sn/mL
10 µg Ce/mL	10 µg Eu/mL

- **Radioimpurities:**

This source contains trace level radioimpurities, all of which have been determined not to adversely affect the source's intended usage.

- **Additional Information:**

-EZN Item Code: 7601-5FSA-185KBQ-D.

-This is an original calibration certificate.

-This is not a registered sealed source (Registration number: none, ANSI-N542/ISO 2919 classification: none).

-Eckert & Ziegler Isotope Products' reference number: 1876-59.

-Nuclear data was taken from IAEA-TECDOC-619, 1991.

-The date of calibration is referenced to 12:00 p.m. PST (GMT-08:00).

-The source has a recommended working life of 1 year.

-To determine the integrity of the source, the following leak test(s) were performed according to information taken directly from ISO 9978:1992 or derived from the leak test methods listed in ISO 9978:1992. Leak test results contained <5 nCi (185 Bq) of removable activity.

- The source was wiped over its entire surface with a moistened filter paper disk. In addition, the ampoule was kept in an inverted position on a filter paper disk for a minimum of 16 hours. The filter paper disks were checked for activity using both a beta-gamma plastic scintillation counter and a ZnS alpha scintillation counter.

-This document uses the numerical convention where $1.000 = 1$ and $1,000 = 10^3$.

-In the Measurement Results section, activity refers to the contained activity of the source and specific activity is equivalent to activity concentration.

-Eckert & Ziegler Isotope Products participates in a National Institute of Standards and Technology (United States national metrology laboratory) measurement assurance program to establish and maintain implicit traceability for a number of nuclides, based on the blind assay (and later National Institute of Standards and Technology certification) of Standard Reference Materials (as in Nuclear Regulatory Commission Regulatory Guide 4.15).

-The DAkkS is signatory to the multilateral agreements of the European co-operation for Accreditation (EA) and of the International Laboratory Accreditation Cooperation (ILAC) for the mutual recognition of calibration certificates. The other signatories in and outside Europe can be seen on the Websites of EA (www.european-accreditation.org) and ILAC (www.ilac.org).

End of Certificate

QCY-48

Ansatz am 31.05.2016

Inventar Nr. xQCY-12

		g
	Flasche inkl. Verdünnungslösung	436,46
	abzgl. Flasche leer	<u>239,27</u>
	Summe Verdünnungslösung	197,19
	Verdünnungslsg	197,19
mStd	Lösungsmenge Standard ldt. Kalibrierschein	<u>5,1677</u>
mGes	Gesamtlösung	202,358
mStd	Standardtlösung ldt. Zertifikat /	5,1677
mGes	Verdünnungslösung inkl. Standardlsg.	<u>202,358</u>
k	Verdünnungsfaktor	0,0255

(Flasche inkl. Ampulle 445,77 g)

Versender

Eckert & Ziegler Nuclitec GmbH (EZN)
Gieselweg 1
38110 Braunschweig



000484259406

AUF PACKSTÜCK AUFBRINGEN

Empfänger:

Gottfried Wilhelm Leibniz, Uni Hannover
Radioökologie Strahlenschutz (IRS)
Herrenhäuser Straße 2
30419 Hannover
Germany
Rotraud Helble +497081177285

Absender



Telefon: +49 6107-96776-0 - Fax: +49 6107- 96776-20

i.A.Eckert + Ziegler Nuclitec
TOF-Kunden# 8-28146-04-0

LIEFERSCHEIN

Beförderungspapier nach 5.4.1 ADR

Positionsnummer: LI1605-058	Versender-Referenz: P 705743,-705745	Zustellreferenz	Datum 20.05.2016
AWB-Nr.:72453870224		Sachbearbeiter: Telefonnummer:	Danilo Sciacca +49 (0) 6107 96776-14

UN 2910 RADIOAKTIVE STOFFE, FREIGESTELLTES
VERSANDSTÜCK - BEGRENZTE STOFFMENGE, 7(E)

	Anzahl Kennzeichnungs- pflichtig	Anzahl NICHT kennzeichnungs- pflichtig	Gesamtzahl	Gewicht kg
Beförderung nach Absatz 1.1.4.2.1	0	1	1	1

zusätzliche Maßnahmen bei der Verladung, der Verstauung, der Beförderung, der Handhabung und der Entladung des Versandstücke sind nicht erforderlich

Die ordnungsgemäße Lieferung wird bestätigt

Datum,
Unterschrift (Annahmehberechtigter)

Gem.ADSp müssen äußerlich erkennbare Schäden unverzüglich, verdeckte innerhalb von 5 Tagen nach Ablieferung schriftlich angezeigt werden

Unterschrift Fahrzeugführer

Information an den Fahrzeugführer:
Ladungssicherung erfolgt durch den Fahrzeugführer

Radiation Source Handling Instructions for Reference and Calibration Solutions

1. Summary:

These instructions for use (IFU) apply to reference and calibration solutions (Nominal and Calibrated Activity) under the **6000** and **7000** product code series.

These reference and calibration solutions may be distributed to those persons or entities who hold an appropriate license issued by the US Nuclear Regulatory Commission or an Agreement State. This container must not be opened until adequate health and safety measures have been taken; (e.g., placed in a hood, glove box or cell), to protect the user from excessive exposure to the body as a result of radiation and/or contamination. This material has not been sterilized or tested for pyrogenicity and is for laboratory or manufacturing use only. These sources are designed for use in reference, calibration or research applications.

Sources with NIST/DKD-traceable radioactivity values have the overall uncertainty for the listed radioactivity values stated on the Certificate of Calibration included with the source documentation packet. Please refer to your facility's procedures for instructions; including error propagation in measurements using calibrated instruments.

The stated radioactivity value on labels and source certificates for all sources provided by Eckert & Ziegler Isotope Products is the contained radioactivity value of the source, unless otherwise specified on the source certificate. All isotopes are guaranteed to be stable in solution when carrier is added to the solution. Carriers are normally nonradioactive isotopes of the same element to which the nuclide of interest belongs. For example, nonradioactive cobalt (100% Co-59) would be added to solutions of radioactive cobalt (e.g., Co-56, Co-57 and Co-60). For those cases where nonradioactive isotopes do not exist, one of the chemical homologs of the element of interest is typically used. For example, Europium is used as the carrier for Am-241 because there are no stable isotopes of Americium. Other examples are the use of Barium as a carrier for Ra-226 and Gadolinium for Cm-244. Solutions that do not contain a carrier are likely to be unstable and experience a plate-out of the radioactivity. This means the radioactive atoms of interest (e.g., Co-56, Co-57 or Co-60 in the aforementioned example) come in contact with the inner surface of the solution container and adhere to that surface, and thus, effectively being removed from the solution. This results in the radioactive atoms of interest no longer being available for use. This also means the contained radioactivity value in solution is no longer the value listed in the documentation provided with the solution. EZIP recommends that all solutions contain carriers; otherwise calibrated and nominal radioactivity values may not be guaranteed. Refer to Appendix 1 for the list of carriers added to specific solutions. These are subject to change based on the chemical formula of the radioactive solution.

2. Radiation Safety Overview:

This instruction provides general information for the safe and proper use of radioactive sources. It is imperative that this and other relevant regulations (local/national) and industry specific practices be followed for safe use. It should be understood that radiation sources emit potentially harmful radiation. Radioactive sources should be handled and utilized under the supervision of authorized personnel.

To take advantage of limiting radiation exposure, remember to apply these three basic principles:

TIME - The simplest way to reduce exposure is to keep the time spent around a radioactive source to a minimum. If time is cut in half, so is the exposure, with all other factors remaining constant.

DISTANCE - Distance is another effective means to reduce radiation exposure. A formula known as the "inverse square law" relates the radiation exposure rate to distance. Doubling the distance from a radiation source reduces the exposure to one-fourth of its original value. If the distance is tripled, the exposure is reduced by a factor of nine, etc. For this reason very short distances should be avoided whenever possible.

SHIELDING - Shielding is any material used to reduce the radiation reaching the user from a radioactive source. While some types of radiation such as alpha particles may be stopped by a single sheet of paper, other particles such as neutrons and photons require much more shielding. Materials containing large amounts of hydrogen, such as polyethylene, are used to shield neutrons. Dense materials, such as lead, are used to shield photons.

3. Receipt of Solution(s):

A. Receipt - The package should be inspected upon arrival. If packaging damage is observed (e.g., crushed) stop the opening process and immediately notify your Radiation Safety Officer or authorized equivalent. During off-duty hours, comply with your radiation safety plan.

Ensure that all documentation and label description corresponds to the goods received. If not, do not open the package. Place package in a secure area and notify Eckert & Ziegler Isotope Products.

Notify the appropriate radiation protection personnel of the arrival of the package and conduct your internal inventory controls.

If the sources are not intended for immediate processing, place the package in a secure radioactive material controlled area. Packages are transported in compliance with applicable transport regulations for dose levels. However, these levels may be too high for storage in places of work without additional shielding.

B. Unpacking - Unpacking must be accomplished in a designated area by authorized personnel. Radiation levels should be checked using a dose rate meter at each stage of unpacking. Safety glasses and gloves should be worn at all times during the unpacking process.

Warning- Injuries typical of cutting or opening packages may result and applicable safety precautions should be taken.

During each phase of unpacking the surface dose rate may progressively increase. The use of shielding, gloves and remote handling equipment are recommended to minimize exposure.

Remove the inner container and place in a properly shielded area. Wipe the external surface of the container with a cotton swab or filter paper. Assay the wipe sample in a low-background area to determine if there is any removable radioactivity. If contamination is in excess of permissible limits, stop the procedure and notify the RSO. Open the inner container and remove the source. Please refer to section 4, (Recommended Handling Procedures and Directions for Use), for wipe test instructions. Wipe the source and assay the wipe sample in a low-background area to determine if there is any removable radioactivity. If contamination is in excess of permissible limits, stop the procedure and notify the RSO.

The source should be inspected immediately following removal from the container. Care must be taken to ensure adequate shielding or distance to minimize dose levels. From the source, locate the serial number and determine that it agrees with the supplied source certificate. If not, repack the source, place in a secure area, and notify Eckert & Ziegler Isotope Products. Solutions (aqueous or otherwise) may leak during shipment, even when the best precautions are taken to prevent this. Therefore, it is recommended that after solution sources are removed from their shipping box; the shipping can, inner packaging and vial be opened in a fume containment hood. If leakage (moisture, dried residue, broken vial) is observed before opening the sealed bag containing the vial, do not open the bag. Call Eckert & Ziegler Isotope Products for instructions on returning the source.

The source solution vial may have a cap with threads or be a serum vial with a rubber stopper. Eckert & Ziegler Isotope Products assures that these vials are free from removable contamination during shipment of sources. Once the protective seal is removed from the vial, customers may find some removable contamination or moisture around the cap of the vial especially when opening. This cannot be prevented by Eckert & Ziegler Isotope Products in all cases, and does not constitute source leakage. Use extreme caution as contamination may occur.

Before package disposal, survey the packaging and packaging materials for contamination. If contamination is found, treat as radioactive waste. If damage to the packaging materials is not detected the materials may be used to return spent sources for recycling with prior approval.

Maintain the records of receipt, package survey, and wipe test results, or the records required by your organization.

4. Recommended Handling Procedures and Directions for Use:

Always refer to your institution's Radioactive Materials License or Radiation Safety Manual for procedures regarding handling of radioactive material, such as this source. You must comply with any special procedures required by your Radioactive Materials License or your institution's Standard Operating Procedures.

These instructions are intended as guidelines and are not meant to supersede your license or internal procedures.

It is recommended that all solutions be opened in a fume hood. It is possible for some highly concentrated solutions to become aerosolized at the solution surface below the cap or neck of a flame sealed ampule. Opening the vial will relieve pressure over the solution surface, and may carry contamination out of and away from the vial. It is recommended to be prepared for this by using absorbant material underneath the vial and around the working area to catch this potential contamination.

Aqueous radioactive solutions are subject to radiolysis, the breaking apart of water molecules in solution. This occurs as a natural result of some of the higher radiation energies interacting with the solution water molecules. As a result, solutions may become concentrated over time. It is recommended to evaluate the solution's radioactive concentration upon receiving the source to determine if there is disagreement with the certificate value.

Calibrated solutions may vary within the total uncertainty stated on the Certificate of Calibration. Nominal and calibrated solutions are prepared to within a tolerance of +/-15% unless otherwise agreed to by Eckert & Ziegler Isotope Products in writing at the time of order quotation.

Some elements are volatile when in solution. Below is a list of elements that Eckert & Ziegler Isotope Products has found to be volatile. If the element of your solution is listed, it is recommended that all work with that solution be done in a fume hood in order to avoid accidental inhalation, or bodily contamination with the radioactive element of that solution.

Volatile Isotopes:

Antimony: Sb-124 and Sb-125	Lead: Pb-210
Arsenic	Mercury: Hg-203
Bromine	Polonium: Po-208, Po-209, and Po-210
Cadmium: Cd-109	Selenium: Se-75
Chlorine: Cl-36	Tellurium: Te-123m
Gadolinium: Gd-148 and Gd-153	Thallium: Tl-204
Germanium: Ge-68 in chloride form	Thorium: Th-228, and Th-230
Indium	Tin: Sn-113
Iodine: I-125, I-129, and I-131	

All radioactive sources should be stored in a dedicated shielded area when not in use. It is not recommended to store high-activity radioactive sources near detectors, since they may contribute to background radioactivity and affect experimental results.

While the source vial is designed to be durable for the working life of the source, it should not be dropped and mechanical stress should be avoided.

5. Warnings and Precautions:

Reference and calibration sources contain radioactive material and their use is governed by your institution's Radioactive Materials License.

Misuse of a radioactive source that results in a breach of the source with subsequent release of material, with possible ingestion of the radioactive material, may cause physical harm from high radiation dose including cancer.

When handling the source, use remote handling devices if possible, and always wear gloves. Do not touch the source with bare hands.

THE STATE OF CALIFORNIA, UNDER PROPOSITION 65, REQUIRES THIS WARNING: THIS SOURCE CONTAINS RADIONUCLIDES, WHICH ARE KNOWN TO THE STATE OF CALIFORNIA TO CAUSE CANCER, BIRTH DEFECTS AND OTHER REPRODUCTIVE HARM. MISUSE OR MISHANDLING BEYOND ITS INTENDED USE MAY EXPOSE YOU TO EXCESS RADIATION. HANDLE WITH CARE. CONTACT YOUR RADIATION SAFETY OFFICER FOR ADDITIONAL INFORMATION.

Solutions containing Ra-226, or Th-228 release Radon gas as a byproduct of their natural decay. Radon gas and its subsequent daughters may cause radioactive contamination on the inactive surfaces of the source, and its storage area. In addition to other protective measures, sources with these isotopes should always be handled with gloves, and in well ventilated areas. It is recommended that they be stored in a well ventilated area such as a fume hood, or in a glove box.

6. Additional Regulatory Considerations:

- A. The unique serial number that identifies this source is on the source certificate and on the source label. This number should be recorded on your radioactive material possession records.
- B. Dispose of spent sources properly via licensed disposal routes.

7. General Instructions Applicable to All Radiation Sources:

A. Source Usage – All sources must be checked for the suitability of a given application prior to use. Unless otherwise specified, sources are generally intended for use at room temperature. Do not expose the source to destructive or corrosive environments. Operating conditions for the use of the sources are assumed to be ambient and typical for laboratory and field environments.

B. Storage - Radioactive sources must be kept in a suitable container within a controlled area which provides secured access in and adequate shielding. Contact your Radiation Safety Officer for proper storage techniques.

C. Damage or Loss - If a source or package is damaged or involved in an accident, the radiation safety procedures as outlined in the radiation safety program must be followed. In addition, Eckert & Ziegler Isotope Products should be notified so that further safety related information can be forwarded. The local and/ or national regulatory agency may require notification.

If the source is lost, appropriate radiation safety personnel must notify your local and/ or national regulatory authorities.

D. Transfer and Disposal - If sources are resold or incorporated into any device which will be distributed, it is the responsibility of the customer to ensure that all subsequent users are knowledgeable of the type of radiation source and its specified use. In addition, appropriate warnings and instructions must be included within any shipment to ensure safe use, return, and disposal of the source.

Appropriate documentation must be recorded on the transfer of radioactive sources. Additionally, all users should be supplied with a copy of the original Eckert & Ziegler Isotope Products Calibration Certificate or Nominal Data Sheet.

E. Standards and Testing – Eckert & Ziegler Isotope Products radioactive sources are manufactured and designed to meet rigorous customer specifications. Every shipment, single source or batch, is issued a Certificate of Calibration or Nominal Data Sheet. This certificate provides a leak test certificate, radioassay data, model number, serial or lot number.



Source vials are leak tested prior to shipment. Results of the tests performed are listed on the test certificate. Additionally, leak tests must be completed at regular intervals. For the required leak test interval consult your regulatory agency.

Packaging is manufactured and tested in accordance with 49 CFR and ICAO regulations.

Users are ultimately responsible for determining frequency of leak testing. If rigorous operating conditions are anticipated, an appropriate leak test frequency policy would be anticipated.

F. Recommended Working Life - The manufacturer indicates a recommended working life to the user. This is governed by radiotoxicity, radioactivity, source construction, half-life and conditions of use. It is recommended that the source should be replaced at the end of this period. Refer to the source certificate.

We advise customers to contact Eckert & Ziegler Isotope Products for additional details:

Eckert & Ziegler Isotope Products
DBA Isotope Products Laboratories
24937 Avenue Tibbitts
Valencia, CA 91355
Telephone: (661) 309-1010
Fax: (661) 257-8303

Appendix 1: CARRIERS AND CARRIER CONCENTRATIONS		
Nuclide ¹	Recommended Carrier ²	µg/ml Element
C-14 as benzoic acid	Benzoic acid in 1 M NaOH	—
Be-7	BeCl ₂ in 1 M HCl	10
Na-22, Na-24	NaCl in H ₂ O	50
Al-26	AlCl ₃ in 1 M HCl	10
P-32	H ₃ PO ₄ in 0.02M HCl	50
Si-32	Na ₂ SiO ₃ in 0.1M NaOH	-
S-35	0.1 M HCl	—
Cl-36	NaCl in H ₂ O	100
Ca-45	CaCl ₂ in 1 M HCl CaCl ₂ in H ₂ O	10
Sc-46	ScCl ₃ in 0.1 M HCl	50
Cr-51	CrCl ₃ ·6H ₂ O in 0.1 M HCl	10
Mn-54, Mn-56	MnCl ₂ ·4H ₂ O in 0.1 M HCl	10
Fe-55	FeCl ₃ ·6H ₂ O in 0.1 M HCl	10
Fe-59	FeCl ₃ ·6H ₂ O in 0.1 M HCl	100
Co-56, Co-57, Co-58, Co-60	CoCl ₂ ·6H ₂ O in 0.1 M HCl	10
Ni-63	NiCl ₂ in 0.1 M HCl	50
Zn-65	ZnCl ₂ in 0.5 M HCl	10
Ge-68	GeCl ₄ in 0.5 M HCl	10
Se-75 as SeO ₃	H ₂ SeO ₃ in 1 M HCl	100
Sr-85, Sr-89	SrCl ₂ ·H ₂ O in 0.1 M HCl	50
Y-88	YCl ₃ ·H ₂ O in 0.1 M HCl	50
Sr-90/Y-90	SrCl ₂ ·6H ₂ O plus YCl ₃ ·6H ₂ O in 0.1 M HCl	10 +50
Zr-95 as oxalate	ZrCl ₄ in 0.5 M oxalic acid	10
Nb-95	NbCl ₅ in 6M HCl	100
Tc-95m, Tc-99, Tc-99m	Ammonium pertechnetate in H ₂ O	—
Ru-103, Ru-106	RuCl ₃ in 4 M HCl	500
Cd-109, Cd-113m, Cd-115m	CdCl ₂ ·2½H ₂ O in 0.1 M HCl	500

Appendix 1: CARRIERS AND CARRIER CONCENTRATIONS		
Nuclide ¹	Recommended Carrier ²	µg/ml Element
Ag-110, Ag-110m	AgNO ₃ in 0.1 M HNO ₃	500
Sn-113, Sn-119m	SnCl ₄ in 6 M HCl	50
Sb-124, Sb-125	SbCl ₃ in 6 M HCl	10
Te-123m, Te-125m	TeCl ₃ in 4 M HCl	50
I-125, I-129, I-131	Na ₂ SO ₃ + LiOH + KI in 0.1 M NaOH	10
	LiOH + KI in 0.1M NaOH	10 + 10
Cs-134, Cs-137	CsCl in 0.1 M HCl	10
Ba-133	BaCl ₂ in 0.1 M HCl	10
Ce-139, Ce-144	CeCl ₃ in 1 M HCl	10
Ce-141	Ce(NO ₃) ₃ in 1 M HNO ₃	100
Pm-147	LaCl ₃ in 0.1 M HCl	10
Sm-151	Sm ₂ O ₃ in 5% HNO ₃ ; for solutions in chloride form SmCl ₃ in 1 M HCl contact Radiochemistry	10
Eu-152, Eu-154, Eu-155	EuCl ₃ in 0.1 M HCl	10
Gd-148, Gd-153	GdCl ₃ in 0.1 M HCl	10
Ho-166m	HoCl ₃ in 0.1 M HCl	10
Lu-177m	Lu ₂ O ₃ in 5% HNO ₃ ; for solutions in chloride form LuCl ₃ in 0.5 M HCl contact Radiochemistry	10
Ta-182	Ta(NO ₃) ₅ in 4 M HNO ₃ + 0.2 M HF	—
Ir-192	IrCl ₃ in 0.1 M HCl	10
Au-198	AuCl ₃ in 2M HCl	-
Tl-204	TlCl in 1 M HCl TlNO ₃ in 1 M HNO ₃	10
Pb-210	PbNO ₃ in 1 M HNO ₃	10
Bi-207	BiCl ₃ in 4 M HCl	10
Ra-226, Ra-228	Ba(NO ₃) ₂ in 1 M HNO ₃	10
Ac-227	La(NO ₃) ₃ in 0.1 M HNO ₃	10
Th-228, Th-229, Th-230, Th-232	ZrCl ₂ O in 0.1M HNO ₃	10

Appendix 1: CARRIERS AND CARRIER CONCENTRATIONS		
Nuclide ¹	Recommended Carrier ²	µg/ml Element
Am-241, Am-243	EuCl ₃ in 1 M HCl	10
Cm-244	Gd(NO ₃) ₃ in 0.1 M HNO ₃	10
Cf-252	Dy(NO ₃) ₃ in 0.1 M HNO ₃	10

¹All in ionic form (Co⁺², Cl⁻) except where noted.

²Suggested carrier, can usually substitute nitrate or chloride

Radioactive Safety Data Sheet

HYDROCHLORIC ACID RADIOACTIVE SOLUTION

Section 1: Identification

SDS Name: Hydrochloric Acid Radioactive Solution
Catalog Numbers: 6XXX series, 7XXX series
Sealed Source and Device Registry Numbers: NA
Synonyms: radioactive solution in hydrochloric acid (0.1%-18%) (aqueous hydrochloric acid; hydrogen chloride; muriatic acid)

Usage: Used as a calibration standard for radiation detection equipment; reagent for radiochemical processes.

Company Identification:

Eckert & Ziegler Isotope Products (dba. Isotope Products Laboratories)
24937 Avenue Tibbitts
Valencia, CA 91355

For Technical information, call: 661-309-1010

Emergency Number:

For CHEMTREC assistance, call: 800-424-9300 (account 11625)

For International CHEMTREC assistance, call: 703-527-3887 (account 11625)

Section 2: Hazard(s) Identification

Radioactive substances are exempted/excluded from the notification requirements of the GHS (REACH/OSHA /WHMIS).

Warning: Contains radioactive material, which, although beyond the scope of SDS requirements, should be considered the principal hazard. This material should be handled only by individuals qualified to handle radioactive material in conformance with local regulatory requirements.

GHS CLASSIFICATIONS

Health:

Skin Irritant Category 2: H315

Eye Irritant Category 2: H319

STOT SE (Respiratory System) Category 3: H335

GHS LABEL



Exclamation mark

SIGNAL WORD: Danger

HAZARD STATEMENTS

H315 Causes skin irritation.

H319 Causes serious eye irritation.

H335 May cause respiratory irritation

PRECAUTIONARY STATEMENT(S)

Radioactive Safety Data Sheet

HYDROCHLORIC ACID RADIOACTIVE SOLUTION

P201 - Obtain special instructions before use
P202 - Do not handle until all safety precautions have been read and understood
P264 - Wash thoroughly after handling
P261 - Avoid breathing dust/fume/gas/mist/vapors/spray.
P270 - Do not eat, drink or smoke when using this product
P272 - Contaminated work clothing should not be allowed out of the workplace
P280 - Wear protective gloves/protective clothing/eye protection/face protection.
P302+P352 - IF ON SKIN: Wash with plenty of soap and water
P305+P351+P338 - IF IN EYES: Rinse cautiously with water for several minutes. Remove contact lenses, if present and easy to do. Continue rinsing.
P314 - Get medical advice and attention if you feel unwell
P333+P313 - If skin irritation or rash occurs: Get medical advice/attention
P362+P364 - Take off contaminated clothing and wash it before reuse
P501 - Dispose of contents/container in accordance with local/regional/national/international regulations.

OTHER HAZARDS:



CAUTION! RADIOACTIVE MATERIAL. Promptly remove any contamination from the skin, eyes, or clothing. Radioactive materials must be handled by qualified personnel in conformity with regulations appropriate to the government agency authorized to license the use of this radionuclide. The radioactive solution should be kept within its container or within the holder designed for its use. Avoid contact with the radioactive contents which would cause unnecessary exposure to radiation.

DANGER! This product may cause severe irritation or burns by all routes of exposure. Corrosive effect depends on concentration and duration of exposure. May be harmful or fatal if swallowed and by inhalation. Symptoms by inhalation may be delayed. Repeated inhalation of low level concentrations may cause reduced lung capacity and erosion of the teeth. Chronic skin exposure to low concentration may result in dermatitis.

Section 3: Composition/Information on Ingredients

CAS#	EC Number	Chemical Name	Percent
7647-01-0	231-595-7	Hydrogen Chloride	0.1-18
7732-18-5	231-791-2	Water	Balance
NA	NA	Radioactive Material	<0.1

Section 4: First-Aid Measures

Eyes: Flush eyes with plenty of water for at least 15 minutes, occasionally lifting the upper and lower eyelids. Get medical aid immediately.

Skin: Immediately flush with plenty of water for at least 15 minutes while removing contaminated clothing and wash using soap. Get medical attention if irritation develops or persists. Wash clothing before reuse.

Ingestion: CALL PHYSICIAN OR POISON CONTROL CENTER FOR MOST CURRENT INFORMATION. If professional advice is not available, DO NOT INDUCE VOMITING! If victim is

Radioactive Safety Data Sheet

HYDROCHLORIC ACID RADIOACTIVE SOLUTION

conscious and alert, give 2-4 cupfuls of milk or water. Never give anything by mouth to an unconscious person. Get medical aid immediately.

Inhalation: Remove from exposure and move to fresh air immediately. If not breathing, give artificial respiration. If breathing is difficult, give oxygen. Get medical aid if cough or other symptoms appear.

Notes to Physician: Treat symptomatically and supportively.

Antidote: There are several chelating agents for radioactive materials. Only qualified medical personnel should determine their use.

Section 5: Fire-Fighting Measures

Fire: Extreme heat or contact with metals can release flammable Hydrogen gas.

Explosion: Not considered to be an explosion hazard.

Fire Extinguishing Media: Use any means suitable for extinguishing surrounding fire. Neutralize with soda ash or slaked lime.

Special Instructions: In the event of a fire, wear full protective clothing and NIOSH-approved self-contained breathing apparatus with full face piece operated in the pressure demand or other positive pressure mode.

Flash Point: Not applicable.

Autoignition Temperature: Not applicable.

Explosion Limits, Lower: Not available. **Upper:** Not available.

NFPA Rating: (estimated) Health: 3; Flammability: 0; Instability: 0

Section 6: Accidental Release Measures

General Information: If the product is received in a leaking condition or any loss or release of the radioactive contents occurs, notify your Radiation Safety Department. All cleanup operations should be performed according to the Standard Operating Procedures (SOPs) established for your facility and by the NRC or other applicable local, state or federal regulations. Use proper personal protective equipment as indicated in Section 8.

Spills/Leaks: Notify all personnel in the area. Reduce airborne aerosols and prevent spread by covering spill with suitable absorbent. Neutralize spill area with sodium bicarbonate or other material appropriate for acidic materials. Wipe area with wet towels, then place into a suitable container for disposal. Provide ventilation.

Section 7: Handling and Storage

Handling: Wash thoroughly after handling. Remove contaminated clothing and wash before reuse. Use with adequate ventilation. Minimize dust generation and accumulation. Avoid contact with skin and eyes. Avoid ingestion and inhalation.

Radioactive Safety Data Sheet

HYDROCHLORIC ACID RADIOACTIVE SOLUTION

Storage: Storage and disposal of product should be controlled in a manner that is in compliance with the appropriate radioactive material regulations of the federal or state government agency authorized to license the use of this radionuclide. Store in a cool, dry, well-ventilated area away from incompatible substances. Keep containers tightly closed.

Section 8: Exposure Controls/Personal Protection

Engineering Controls: Facilities storing or utilizing this material should be equipped with an eyewash facility and a safety shower. Use adequate general or local exhaust ventilation to keep airborne concentrations below the permissible exposure limits.

Exposure Limits (Chemical)

Chemical Name	ACGIH	NIOSH	OSHA - Final PELs
Hydrogen Chloride	3 mg/m ³ ; 2 ppm (Ceiling)	7 mg/m ³ ; 5 ppm (Ceiling) 75 mg/m ³ ; 50 ppm (IDLH)	7 mg/m ³ ; 5 ppm (Ceiling)

Personal Protective Equipment

Eyes: Wear appropriate protective eyeglasses or chemical safety goggles as described by OSHA's eye and face protection regulations in 29 CFR 1910.133 or European Standard EN166.

Skin: Wear appropriate gloves to prevent skin exposure.

Clothing: Wear appropriate protective clothing to minimize contact with skin.

- **Radiation Dosimetry:** Wear dosimetry as specified by your radiological license commitments.
- **Respirators:** Not expected to require personal respirator usage. Follow the OSHA respirator regulations found in 29 CFR 1910.134 or European Standard EN 149. Use a NIOSH/MSHA or European Standard EN 149 approved respirator if exposure limits are exceeded or if irritation or other symptoms are experienced.

Section 9: Physical and Chemical Properties

Physical State: Liquid

Appearance: Clear, colorless liquid (may have slight yellow tone)

Odor: Strong, pungent odor of Hydrogen chloride

pH: For HCL solutions: 0.01 (6.0 N), 0.1 (1.0 N), 1.1 (0.1 N), 2.02 (0.01 N)

Vapor Pressure: 17.8 mmHg @ 20°C

Vapor Density: 1.26 G/L

Evaporation Rate: Essentially the same as water.

Viscosity: Not applicable.

Boiling Point: 81.5°C to 110°C

Freezing/Melting Point: -74°C to -46.2°C

Decomposition Temperature: >1500°C (> 2732°F).

Oxidizing Properties: Not an oxidizer.

Solubility: Soluble

Radioactive Safety Data Sheet

HYDROCHLORIC ACID RADIOACTIVE SOLUTION

Specific Gravity/Density: 1.1-1.2
Molecular Formula: HCl
Molecular Weight: 36.46

Section 10: Stability and Reactivity

Chemical Stability: Stable under normal temperatures and pressures.

Conditions to Avoid: Temperature above 1500°C. Contact with water and incompatible materials.

Incompatibilities with Other Materials: A strong mineral acid, concentrated Hydrochloric Acid is highly reactive with strong bases, metals, metal oxides, hydroxides, amines, carbonates and other alkaline materials. Incompatible with materials such as cyanides, sulfides, sulfites, and Formaldehyde. Hydrochloric Acid is incompatible with metals, strong oxidizing agents, strong reducing agents, bases, acetic anhydride, alcohols, amines, sulfuric acid, perchloric acid, vinyl acetate, epoxides (e.g. butyl glycidyl ether), chlorosulfonic acid, carbides, beta-propiolactone, ethyleneimine, propylene oxide, lithium silicides, 2-aminoethanol, 1, 1-difluoroethylene, magnesium boride, mercuric sulfate, aldehydes, cyanides, sulfides, phosphides, sodium, potassium permanganate.

Hazardous Decomposition Products: When heated to decomposition, emits toxic Hydrogen Chloride fumes and will react with water or steam to produce heat and toxic and corrosive fumes. Thermal oxidative decomposition produces toxic chlorine fumes and explosive Hydrogen gas.

Hazardous Polymerization: Will not occur.

Section 11: Toxicological Information

Radiological:

It is widely accepted by the scientific community that exposure to sufficient quantities of ionizing radiation can potentially cause harmful biological effects which include cancer, leukemia, and genetic and teratogenic effects.

Chemical:

CAS# 7647-01-0:

LD50/LC50: Inhalation rat LC50: 3124 ppm/1H; Oral rabbit LD50: 900 mg/kg.

Carcinogenicity:

CAS# 7647-01-0:

- **ACGIH:** Not classifiable as a human carcinogen.
- **California:** Not listed.
- **NTP:** Not listed.
- **IARC:** Group 3 carcinogen (Unclassifiable as to carcinogenicity in humans).

Epidemiology: No information available.

Teratogenicity: Female rats were exposed to 450 mg/m³ of HCl for 1 hour either prior to mating or on day 9 of pregnancy. Developmental effects were observed in the offspring. However, this exposure caused toxic effects, including mortality, in the mothers.

Reproductive Effects: No information available.

Mutagenicity: No information available.

Neurotoxicity: No information available.

Radioactive Safety Data Sheet

HYDROCHLORIC ACID RADIOACTIVE SOLUTION

Symptoms Related to the Physical, Chemical and Toxicological

Characteristics: Burning pain and severe corrosive skin damage Respiratory tract burns. Skin burns. Eye burns. Mucous membrane burns.

Potential Health Effects (Acute, Chronic and Delayed):

Inhalation: Inhalation of fumes may cause irritation and burning of the nose, throat, and upper respiratory tract, coughing and choking.

Skin Contact: Skin contact may cause severe irritation, inflammation, and chemical burns.

Eye Contact: Vapors are irritating and may cause damage to the eyes. Eye contact may cause severe irritation, conjunctivitis, corneal necrosis, and burns with impairment or permanent loss of vision.

Ingestion: Ingestion can cause pain and burns of the mouth, throat, esophagus, and stomach. May also cause nausea, vomiting, diarrhea, chills, shock, and intense thirst. Perforation of the intestinal tract and circulatory collapse may occur. Death may occur due to esophageal or gastric necrosis.

Section 12: Ecological Information

Ecotoxicity: This material is expected to be toxic to aquatic life.

LC50 Shrimp: 100-300 ppm / 48 h /salt water; LC100 trout: 10 mg/l / 24 h; TLm mosquito fish: 282 ppm / 96 h

Persistence and Degradability: When released into the soil, this material is not expected to biodegrade; however reactions should neutralize the solution.

Bioaccumulative Potential: Hydrochloric Acid does not bioconcentrate.

Mobility in Soil: When released into the soil, this material may leach into groundwater.

Section 13: Disposal Considerations

This solution is a radioactive material. Radioactive waste must be handled in accordance with procedures established by your Radiation Safety Officer, NRC and other applicable regulations.

Chemical waste generators must determine whether a discarded chemical is classified as a hazardous waste. US EPA guidelines for the classification determination are listed in 40 CFR Parts 261.3. Additionally, waste generators must consult state and local hazardous waste regulations to ensure complete and accurate classification.

RCRA P-Series: None listed.

RCRA U-Series: None listed.

Section 14: Transport Information

The classification for transportation of radioactive materials will depend on the specific activity level of the solution, type of isotope, packaging, as well as the quantity shipped. Specific site procedures should be followed for shipping radioactive materials or seek advice from your site Radiation Safety Officer.

This material will typically ship as Class 7 Radioactive with a subsidiary risk of Class 8 Corrosive.

Section 15: Regulatory Information

US FEDERAL

TSCA:

Radioactive Safety Data Sheet

HYDROCHLORIC ACID RADIOACTIVE SOLUTION

CAS# 7647-01-0 is listed on the TSCA inventory.

CAS# 7732-18-5 is listed on the TSCA inventory.

Health & Safety Reporting List

None of the chemicals are on the Health & Safety Reporting List.

Chemical Test Rules

None of the chemicals in this product are under a Chemical Test Rule.

Section 12b

None of the chemicals are listed under TSCA Section 12b.

TSCA Significant New Use Rule

None of the chemicals in this material have a SNUR under TSCA.

SARA:

Section 302 (RQ)

CAS# 7647-01-0: final RQ = 5000 pounds (2270 kg)

Section 302 (TPQ)

CAS# 7647-01-0: TPQ = 500 pounds; RQ = 5000 pounds (does not meet toxicity criteria but because of high production volume and recognized toxicity is considered a chemical of concern)

SARA Codes

CAS # 7647-01-0: acute.

Section 313

This chemical is not at a high enough concentration to be reportable under Section 313. No chemicals are reportable under Section 313.

Clean Air Act:

CAS# 7647-01-0 is listed as a hazardous air pollutant (HAP). This material does not contain any Class 1 Ozone depleters. This material does not contain any Class 2 Ozone depleters.

Clean Water Act:

CAS# 7647-01-0 is listed as a Hazardous Substance under the CWA. None of the chemicals in this product are listed as Priority Pollutants under the CWA. None of the chemicals in this product are listed as Toxic Pollutants under the CWA.

OSHA:

CAS# 7647-01-0 is considered highly hazardous by OSHA.

STATE

CAS# 7647-01-0 can be found on the following state right to know lists: California, New Jersey, Florida, Pennsylvania, Minnesota, Massachusetts.

CAS# 7732-18-5 is not present on state lists from CA, PA, MN, MA, FL, or NJ.

California No Significant Risk Level: None of the chemicals in this product are listed.

European/International Regulations

European Labeling in Accordance with EC Directives

Hazard Symbols:

C

Risk Phrases:

R 34 Causes burns.

R 20 Harmful by inhalation.

Safety Phrases:

S 26 In case of contact with eyes, rinse immediately with plenty of water and seek medical advice.

S 45 In case of accident or if you feel unwell, seek medical advice immediately (show the label where possible).

WGK (Water Danger/Protection)

CAS# 7647-01-0: 1

CAS# 7732-18-5: No information available.

Canada

CAS# 7647-01-0 is listed on Canada's DSL List. CAS# 7647-01-0 is listed on Canada's DSL List. CAS# 7732-18-5 is listed on Canada's DSL List. CAS# 7732-18-5 is listed on Canada's DSL List.

This product has a WHMIS classification of E, D2A.

CAS# 7647-01-0 is listed on Canada's Ingredient Disclosure List.

CAS# 7732-18-5 is not listed on Canada's Ingredient Disclosure List.

Exposure Limits

CAS# 7647-01-0: OEL-AUSTRALIA:TWA 5 ppm (7 mg/m³); OEL-AUSTRIA:TWA 5 ppm (7 mg/m³); OEL-BELGIUM:STEL 5 ppm (7.7 mg/m³); OEL-DENMARK:STEL 5 ppm (7 mg/m³); OEL-FINLAND:STEL 5 ppm (7 mg/m³); Skin OEL-FRANCE:STEL 5 ppm (7.5 mg/m³); OEL-GERMANY:TWA 5 ppm (7 mg/m³); OEL-HUNGARY:STEL 5 mg/m³; OEL-JAPAN:STEL 5 ppm (7.5 mg/m³); OEL-THE NETHERLANDS:TWA 5 ppm (7 mg/m³); OEL-THE PHILIPPINES:TWA 5 ppm (7 mg/m³); OEL-POLAND:TWA 5 mg/m³ OEL-RUSSIA:STEL 5 ppm (5 mg/m³); OEL-SWEDEN:STEL 5 ppm (8 mg/m³); OEL-SWITZERLAND:TWA 5 ppm (7.5 mg/m³); STEL 10 ppm (15 mg/m³); OEL-THAILAND:TWA 5 ppm (7 mg/m³); OEL-

Radioactive Safety Data Sheet

HYDROCHLORIC ACID RADIOACTIVE SOLUTION

TURKEY:TWA 5 ppm (7 mg/m³); OEL-UNITED KINGDOM:TWA 5 ppm (7 mg/m³); STEL 5 ppm (7 mg/m³); OEL IN BULGARIA,COLOMBIA, JORDAN, KOREA check ACGIH TLV OEL IN NEW ZEALAND, SINGAPOR E, VIETNAM check ACGI TLV

Section 16: Other Information

SDS Creation Date: 19 May 2015

SDS Review Date: 21 May 2015

The information above is believed to be accurate and represents the best information currently available to us. However, we make no warranty of merchantability or any other warranty, express or implied, with respect to such information, and we assume no liability resulting from its use. Users should make their own investigations to determine the suitability of the information for their particular purposes. In no event shall EZIP be liable for any claims, losses, or damages of any third party or for lost profits or any special, indirect, incidental, consequential or exemplary damages, howsoever arising, even if EZIP has been advised of the possibility of such damages.

How Long Should I Use My Source?

Numerous factors affect a source's recommended working life (RWL), among them are the radionuclide half life, intended use and construction. In determining a RWL, safety is paramount. The maximum RWL for non-welded sources is two or five years depending on its configuration. Alternatively, the RWL will be approximately two half lives if less than the two- or five-year options. For welded capsules, the RWL is 15 years or less based primarily on the radionuclide. Although EZIP customers have reported using sources beyond the listed RWL, doing so is not recommended. The final decision when to have a source recalibrated or replaced rests with the user. If at any point a source shows visible damage (e.g., scratches or cracks), it should be tested for possible leakage or contamination and decided whether it should be recalibrated or replaced. EZIP makes no warranties, expressed or implied, or guarantees how long a source can be safely used. Adverse source environmental conditions, improper use, or material incompatibility can affect a source's appearance and/or integrity. It is the user's responsibility to conduct source evaluations at appropriate time intervals using the appropriate materials and methods.

The following table lists the EZIP medical product line families, whether the sources are sold calibrated or nominal, and their typical RWL:

Product Family	Nuclide	Half Life	Typical RWL
Attenuation Correction Line and Point Sources (nominal)	Na-22	2.6 y	5 years
	Co-57	271.79 d	2 years
	Ge-68	270.8 d	2 years
	Ba-133	10.57 y	5 years
	Cs-137	30.17 y	15 years
	Gd-153	242 d	2 years
Brachytherapy (calibrated)	Cs-137	30.17 y	15 years
Dose Calibrator Vials (calibrated)	Co-57	271.79 d	2 years
	Co-60	5.272 y	5 years
	Ba-133	10.57 y	5 years
	Cs-137	30.17 y	5 years
Flood Sources (nominal)	Co-57	271.79 d	2 years
Markers and Rulers (nominal)	Na-22	2.6 y	5 years
	Co-57	271.79 d	2 years
	Gd-153	242 d	2 years
Medical Check Standard Sources (nominal and calibrated)	Na-22	2.6 y	5 years
	Mn-54	312.3 d	2 years
	Co-57	271.79 d	2 years
	Co-60	5.272 y	5 years
	Ge-68	270.8 d	2 years
	Cd-109	1.27 y	2 years
	Ba-133	10.57 y	5 years
	Cs-137	30.17 y	5 years
	Eu-152	13.5 y	5 years
	Quality Assurance Sources (nominal)	Na-22	2.6 y
Co-57		271.79 d	2 years
Ge-68		270.8 d	2 years
Gd-153		242 d	2 years

-----ISO 9001 CERTIFIED-----



Eckert & Ziegler

Isotope Products

x QCY-13

akkreditiert durch die / accredited by the

Deutsche Akkreditierungsstelle GmbH

als Kalibrierlaboratorium im / as calibration laboratory in the



Deutsche Akkreditierungsstelle
D-K-19029-01-01

Deutschen Kalibrierdienst



Kalibrierschein
Calibration certificate

Kalibrierzeichen
Calibration mark

002935
D-K-19029-01-01
2019-02

Gegenstand
Object **Multiple gamma ray emitting solution**

Hersteller
Manufacturer **Eckert & Ziegler Isotope Products**

Typ
Type **5mL flame-sealed ampoule,
catalog number 7601**

Fabrikat/Serien-Nr.
Serial number **2060-38**

Auftraggeber
Customer **Eckert & Ziegler Nuclitec GmbH
Gieselweg 1
38110 Braunschweig
Germany**

Auftragsnummer
Order No. **331288**

Anzahl der Seiten des Kalibrierscheines
Number of pages of the certificate **3**

Datum der Kalibrierung
Date of calibration **1 Feb 19**

Dieser Kalibrierschein dokumentiert die Rückführung auf nationale Normale zur Darstellung der Einheiten in Übereinstimmung mit dem Internationalen Einheitensystem (SI).

Die DAkKS ist Unterzeichner der multilateralen Übereinkommen der European co-operation for Accreditation (EA) und der International Laboratory Accreditation Cooperation (ILAC) zur gegenseitigen Anerkennung der Kalibrierscheine.

Für die Einhaltung einer angemessenen Frist zur Wiederholung der Kalibrierung ist der Benutzer verantwortlich.

This calibration certificate documents the traceability to national standards, which realize the units of measurement according to the International System of Units (SI).

The DAkKS is signatory to the multilateral agreements of the European co-operation for Accreditation (EA) and of the International Laboratory Accreditation Cooperation (ILAC) for the mutual recognition of calibration certificates.

The user is obliged to have the object recalibrated at appropriate intervals.

Dieser Kalibrierschein darf nur vollständig und unverändert weiterverbreitet werden. Auszüge oder Änderungen bedürfen der Genehmigung sowohl der Deutschen Akkreditierungsstelle GmbH als auch des ausstellenden Kalibrierlaboratoriums. Kalibrierscheine ohne Unterschrift haben keine Gültigkeit.

This calibration certificate may not be reproduced other than in full except with the permission of both the Deutsche Akkreditierungsstelle GmbH and the issuing laboratory. Calibration certificates without signature are not valid.

Datum
Date

Leiter des Kalibrierlaboratoriums
Head of the calibration laboratory

Bearbeiter
Person in charge

19 Dec 18

Van Dalsem

Catterson

24937 Avenue Tibbitts
Valencia, CA 91355

Tel: +1-661-309-1010 Fax: +1-661-257-8303
www.ezag.com

1800 North Keystone Street
Burbank, CA 91504

• **Object Calibrated:**

Mass of solution: (5.1547 ± 0.0002) g in 5 mL flame-sealed ampoule
 Chemical form: Multinuclide in 2M HCl
 Density: 1.033 g/mL @ 20°C

• **Calibration Procedure:**

Master nuclide batches were calibrated using an efficiency curve to determine the concentration of each nuclide according to Eckert & Ziegler Isotope Products procedure LP05-24, Revision C "Operating Procedure for Calibration of Multiline Sources". The germanium spectrometer's efficiency curve was generated using standards traceable to a national metrology laboratory. The energies and branching ratios for the gamma rays used are listed in the Measurement Results section.

• **Place of Calibration:**

Eckert & Ziegler Isotope Products
 DBA Isotope Products Laboratories
 24937 Avenue Tibbitts
 Valencia, CA 91355
 USA

• **Measurement Conditions:**

The source was manufactured using gravimetric aliquots from previously calibrated master nuclide batches according to Eckert & Ziegler Isotope Products procedure PM29-01, Revision O "Calibrated Solutions". When applicable, decay corrections were performed using the half life values listed in the Measurement Results section.

• **Environmental Conditions:**

Temperature: (24 ± 2) °C
 Relative humidity: (24 ± 5) %

• **Measurement Results:**

Gamma-Ray Energy (keV)	Nuclide	Half-life	Branching Ratio (%)	Specific Activity	Gammas per second per gram	Total Uncert.
60	Am-241	(432.17 ± 0.66) years	36.0	1040 Bq/g (28.1 nCi/g)	374.4	3.1%
88	Cd-109	(462.6 ± 0.7) days	3.63	14600 Bq/g (395 nCi/g)	530.0	2.5%
122	Co-57	(271.79 ± 0.09) days	85.6	571 Bq/g (15.4 nCi/g)	488.8	2.3%
166	Ce-139	(137.640 ± 0.023) days	79.9	725 Bq/g (19.6 nCi/g)	579.3	2.3%
279	Hg-203	(46.595 ± 0.013) days	81.5	2100 Bq/g (56.8 nCi/g)	1712	2.3%
392	Sn-113	(115.09 ± 0.04) days	64.9	2760 Bq/g (74.6 nCi/g)	1791	2.3%
514	Sr-85	(64.849 ± 0.004) days	98.4	3430 Bq/g (92.7 nCi/g)	3375	2.3%
662	Cs-137	(30.17 ± 0.16) years	85.1	2470 Bq/g (66.8 nCi/g)	2102	2.3%
898	Y-88	(106.630 ± 0.025) days	94.0	5720 Bq/g (155 nCi/g)	5377	2.3%
1173	Co-60	(5.272 ± 0.001) years	99.86	2950 Bq/g (79.7 nCi/g)	2946	2.3%
1333	Co-60	(5.272 ± 0.001) years	99.98	2950 Bq/g (79.7 nCi/g)	2949	2.3%
1836	Y-88	(106.630 ± 0.025) days	99.4	5720 Bq/g (155 nCi/g)	5686	2.3%
			Total:	36400 Bq/g (984 nCi/g)		
			Total:	188 kBq (5.08 µCi)		

• **Uncertainty of Measurement:**

The uncertainty stated is the expanded uncertainty obtained by multiplying the standard uncertainty by the coverage factor $k = 2$. It has been determined in accordance with DAkkS-DKD-3. The value of the measurand lies within the assigned range of values with a probability of 95%.

• **Carrier Content:**

20 µg Co/mL	10 µg Cs/mL
50 µg Sr/mL	500 µg Cd/mL
50 µg Y/mL	50 µg Sn/mL
10 µg Ce/mL	10 µg Eu/mL

• **Radioimpurities:**

This source contains trace level radioimpurities, all of which have been determined not to adversely affect the source's intended usage.

• **Additional Information:**

- EZN item code: 7601-5FSA-185KBQ-D.
- This is an original calibration certificate.
- This is not a registered sealed source (Registration number: none, ANSI-N542/ISO 2919 classification: none).
- Eckert & Ziegler Isotope Products' reference number: 2060-38.
- Nuclear data was taken from IAEA-TECDOC-619, 1991.
- The date of calibration is referenced to 12:00 p.m. PST (GMT-08:00).
- The source has a recommended working life of 1 year.
- To determine the integrity of the source, the following leak test(s) were performed according to information taken directly from ISO 9978:1992 or derived from the leak test methods listed in ISO 9978:1992. Leak test results contained <185 Bq (5 nCi) of removable activity.
 - The source was wiped over its entire surface with a moistened filter paper disk. In addition, the ampoule was kept in an inverted position on a filter paper disk for a minimum of 16 hours. The filter paper disks were checked for activity using both a beta-gamma plastic scintillation counter and a ZnS alpha scintillation counter.
- This document uses the numerical convention where $1.000 = 1$ and $1,000 = 10^3$.
- In the Measurement Results section, activity refers to the contained activity of the source and specific activity is equivalent to activity concentration.
- Eckert & Ziegler Isotope Products participates in a National Institute of Standards and Technology (United States national metrology laboratory) measurement assurance program to establish and maintain implicit traceability for a number of nuclides, based on the blind assay (and later National Institute of Standards and Technology certification) of Standard Reference Materials (as in Nuclear Regulatory Commission Regulatory Guide 4.15).
- The DAkkS is signatory to the multilateral agreements of the European co-operation for Accreditation (EA) and of the International Laboratory Accreditation Cooperation (ILAC) for the mutual recognition of calibration certificates. The other signatories in and outside Europe can be seen on the Websites of EA (www.european-accreditation.org) and ILAC (www.ilac.org).

End of Certificate

Radiation Source Handling Instructions for Reference and Calibration Solutions

1. Summary:

These instructions for use (IFU) apply to reference and calibration solutions (Nominal and Calibrated Activity) under the **6000** and **7000** product code series.

These reference and calibration solutions may be distributed to those persons or entities who hold an appropriate license issued by the US Nuclear Regulatory Commission or an Agreement State. This container must not be opened until adequate health and safety measures have been taken; (e.g., placed in a hood, glove box or cell), to protect the user from excessive exposure to the body as a result of radiation and/or contamination. This material has not been sterilized or tested for pyrogenicity and is for laboratory or manufacturing use only. These sources are designed for use in reference, calibration or research applications.

Sources with NIST/DKD-traceable radioactivity values have the overall uncertainty for the listed radioactivity values stated on the Certificate of Calibration included with the source documentation packet. Please refer to your facility's procedures for instructions; including error propagation in measurements using calibrated instruments.

The stated radioactivity value on labels and source certificates for all sources provided by Eckert & Ziegler Isotope Products is the contained radioactivity value of the source, unless otherwise specified on the source certificate. All isotopes are guaranteed to be stable in solution when carrier is added to the solution. Carriers are normally nonradioactive isotopes of the same element to which the nuclide of interest belongs. For example, nonradioactive cobalt (100% Co-59) would be added to solutions of radioactive cobalt (e.g., Co-56, Co-57 and Co-60). For those cases where nonradioactive isotopes do not exist, one of the chemical homologs of the element of interest is typically used. For example, Europium is used as the carrier for Am-241 because there are no stable isotopes of Americium. Other examples are the use of Barium as a carrier for Ra-226 and Gadolinium for Cm-244. Solutions that do not contain a carrier are likely to be unstable and experience a plate-out of the radioactivity. This means the radioactive atoms of interest (e.g., Co-56, Co-57 or Co-60 in the aforementioned example) come in contact with the inner surface of the solution container and adhere to that surface, and thus, effectively being removed from the solution. This results in the radioactive atoms of interest no longer being available for use. This also means the contained radioactivity value in solution is no longer the value listed in the documentation provided with the solution. EZIP recommends that all solutions contain carriers; otherwise calibrated and nominal radioactivity values may not be guaranteed. Refer to Appendix 1 for the list of carriers added to specific solutions. These are subject to change based on the chemical formula of the radioactive solution.

2. Radiation Safety Overview:

This instruction provides general information for the safe and proper use of radioactive sources. It is imperative that this and other relevant regulations (local/national) and industry specific practices be followed for safe use. It should be understood that radiation sources emit potentially harmful radiation. Radioactive sources should be handled and utilized under the supervision of authorized personnel.

To take advantage of limiting radiation exposure, remember to apply these three basic principles:

TIME - The simplest way to reduce exposure is to keep the time spent around a radioactive source to a minimum. If time is cut in half, so is the exposure, with all other factors remaining constant.

DISTANCE - Distance is another effective means to reduce radiation exposure. A formula known as the "inverse square law" relates the radiation exposure rate to distance. Doubling the distance from a radiation source reduces the exposure to one-fourth of its original value. If the distance is tripled, the exposure is reduced by a factor of nine, etc. For this reason very short distances should be avoided whenever possible.

SHIELDING - Shielding is any material used to reduce the radiation reaching the user from a radioactive source. While some types of radiation such as alpha particles may be stopped by a single sheet of paper, other particles such as neutrons and photons require much more shielding. Materials containing large amounts of hydrogen, such as polyethylene, are used to shield neutrons. Dense materials, such as lead, are used to shield photons.

3. Receipt of Solution(s):

A. Receipt - The package should be inspected upon arrival. If packaging damage is observed (e.g., crushed) stop the opening process and immediately notify your Radiation Safety Officer or authorized equivalent. During off-duty hours, comply with your radiation safety plan.

Ensure that all documentation and label description corresponds to the goods received. If not, do not open the package. Place package in a secure area and notify Eckert & Ziegler Isotope Products.

Notify the appropriate radiation protection personnel of the arrival of the package and conduct your internal inventory controls.

If the sources are not intended for immediate processing, place the package in a secure radioactive material controlled area. Packages are transported in compliance with applicable transport regulations for dose levels. However, these levels may be too high for storage in places of work without additional shielding.

B. Unpacking - Unpacking must be accomplished in a designated area by authorized personnel. Radiation levels should be checked using a dose rate meter at each stage of unpacking. Safety glasses and gloves should be worn at all times during the unpacking process.

Warning- Injuries typical of cutting or opening packages may result and applicable safety precautions should be taken.

During each phase of unpacking the surface dose rate may progressively increase. The use of shielding, gloves and remote handling equipment are recommended to minimize exposure.

Remove the inner container and place in a properly shielded area. Wipe the external surface of the container with a cotton swab or filter paper. Assay the wipe sample in a low-background area to determine if there is any removable radioactivity. If contamination is in excess of permissible limits, stop

the procedure and notify the RSO. Open the inner container and remove the source. Please refer to section 4, (Recommended Handling Procedures and Directions for Use), for wipe test instructions. Wipe the source and assay the wipe sample in a low-background area to determine if there is any removable radioactivity. If contamination is in excess of permissible limits, stop the procedure and notify the RSO.

The source should be inspected immediately following removal from the container. Care must be taken to ensure adequate shielding or distance to minimize dose levels. From the source, locate the serial number and determine that it agrees with the supplied source certificate. If not, repack the source, place in a secure area, and notify Eckert & Ziegler Isotope Products. Solutions (aqueous or otherwise) may leak during shipment, even when the best precautions are taken to prevent this. Therefore, it is recommended that after solution sources are removed from their shipping box; the shipping can, inner packaging and vial be opened in a fume containment hood. If leakage (moisture, dried residue, broken vial) is observed before opening the sealed bag containing the vial, do not open the bag. Call Eckert & Ziegler Isotope Products for instructions on returning the source.

The source solution vial may have a cap with threads or be a serum vial with a rubber stopper. Eckert & Ziegler Isotope Products assures that these vials are free from removable contamination during shipment of sources. Once the protective seal is removed from the vial, customers may find some removable contamination or moisture around the cap of the vial especially when opening. This cannot be prevented by Eckert & Ziegler Isotope Products in all cases, and does not constitute source leakage. Use extreme caution as contamination may occur.

Before package disposal, survey the packaging and packaging materials for contamination. If contamination is found, treat as radioactive waste. If damage to the packaging materials is not detected the materials may be used to return spent sources for recycling with prior approval.

Maintain the records of receipt, package survey, and wipe test results, or the records required by your organization.

4. Recommended Handling Procedures and Directions for Use:

Always refer to your institution's Radioactive Materials License or Radiation Safety Manual for procedures regarding handling of radioactive material, such as this source. You must comply with any special procedures required by your Radioactive Materials License or your institution's Standard Operating Procedures.

These instructions are intended as guidelines and are not meant to supersede your license or internal procedures.

It is recommended that all solutions be opened in a fume hood. It is possible for some highly concentrated solutions to become aerosolized at the solution surface below the cap or neck of a flame sealed ampule. Opening the vial will relieve pressure over the solution surface, and may carry contamination out of and away from the vial. It is recommended to be prepared for this by using absorbant material underneath the vial and around the working area to catch this potential contamination.

Aqueous radioactive solutions are subject to radiolysis, the breaking apart of water molecules in solution. This occurs as a natural result of some of the higher radiation energies interacting with the solution water molecules. As a result, solutions may become concentrated over time. It is recommended to evaluate the solution's radioactive concentration upon receiving the source to determine if there is disagreement with the certificate value.

Calibrated solutions may vary within the total uncertainty stated on the Certificate of Calibration. Nominal and calibrated solutions are prepared to within a tolerance of +/-15% unless otherwise agreed to by Eckert & Ziegler Isotope Products in writing at the time of order quotation.

Some elements are volatile when in solution. Below is a list of elements that Eckert & Ziegler Isotope Products has found to be volatile. If the element of your solution is listed, it is recommended that all work with that solution be done in a fume hood in order to avoid accidental inhalation, or bodily contamination with the radioactive element of that solution.

Volatile Isotopes:

Antimony: Sb-124 and Sb-125	Lead: Pb-210
Arsenic	Mercury: Hg-203
Bromine	Polonium: Po-208, Po-209, and Po-210
Cadmium: Cd-109	Selenium: Se-75
Chlorine: Cl-36	Tellurium: Te-123m
Gadolinium: Gd-148 and Gd-153	Thallium: Tl-204
Germanium: Ge-68 in chloride form	Thorium: Th-228, and Th-230
Indium	Tin: Sn-113
Iodine: I-125, I-129, and I-131	

All radioactive sources should be stored in a dedicated shielded area when not in use. It is not recommended to store high-activity radioactive sources near detectors, since they may contribute to background radioactivity and affect experimental results.

While the source vial is designed to be durable for the working life of the source, it should not be dropped and mechanical stress should be avoided.

5. Warnings and Precautions:

Reference and calibration sources contain radioactive material and their use is governed by your institution's Radioactive Materials License.

Misuse of a radioactive source that results in a breach of the source with subsequent release of material, with possible ingestion of the radioactive material, may cause physical harm from high radiation dose including cancer.

When handling the source, use remote handling devices if possible, and always wear gloves. Do not touch the source with bare hands.

THE STATE OF CALIFORNIA, UNDER PROPOSITION 65, REQUIRES THIS WARNING: THIS SOURCE CONTAINS RADIONUCLIDES, WHICH ARE KNOWN TO THE STATE OF CALIFORNIA TO CAUSE CANCER, BIRTH DEFECTS AND OTHER REPRODUCTIVE HARM. MISUSE OR MISHANDLING BEYOND ITS INTENDED USE MAY EXPOSE YOU TO EXCESS RADIATION. HANDLE WITH CARE. CONTACT YOUR RADIATION SAFETY OFFICER FOR ADDITIONAL INFORMATION.

Solutions containing Ra-226, or Th-228 release Radon gas as a byproduct of their natural decay. Radon gas and its subsequent daughters may cause radioactive contamination on the inactive surfaces of the source, and its storage area. In addition to other protective measures, sources with these isotopes should always be handled with gloves, and in well ventilated areas. It is recommended that they be stored in a well ventilated area such as a fume hood, or in a glove box.

6. Additional Regulatory Considerations:

- A. The unique serial number that identifies this source is on the source certificate and on the source label. This number should be recorded on your radioactive material possession records.
- B. Dispose of spent sources properly via licensed disposal routes.

7. General Instructions Applicable to All Radiation Sources:

A. Source Usage – All sources must be checked for the suitability of a given application prior to use. Unless otherwise specified, sources are generally intended for use at room temperature. Do not expose the source to destructive or corrosive environments. Operating conditions for the use of the sources are assumed to be ambient and typical for laboratory and field environments.

B. Storage - Radioactive sources must be kept in a suitable container within a controlled area which provides secured access in and adequate shielding. Contact your Radiation Safety Officer for proper storage techniques.

C. Damage or Loss - If a source or package is damaged or involved in an accident, the radiation safety procedures as outlined in the radiation safety program must be followed. In addition, Eckert & Ziegler Isotope Products should be notified so that further safety related information can be forwarded. The local and/ or national regulatory agency may require notification.

If the source is lost, appropriate radiation safety personnel must notify your local and/ or national regulatory authorities.

D. Transfer and Disposal - If sources are resold or incorporated into any device which will be distributed, it is the responsibility of the customer to ensure that all subsequent users are knowledgeable of the type of radiation source and its specified use. In addition, appropriate warnings and instructions must be included within any shipment to ensure safe use, return, and disposal of the source.

Appropriate documentation must be recorded on the transfer of radioactive sources. Additionally, all users should be supplied with a copy of the original Eckert & Ziegler Isotope Products Calibration Certificate or Nominal Data Sheet.

E. Standards and Testing – Eckert & Ziegler Isotope Products radioactive sources are manufactured and designed to meet rigorous customer specifications. Every shipment, single source or batch, is issued a Certificate of Calibration or Nominal Data Sheet. This certificate provides a leak test certificate, radioassay data, model number, serial or lot number.

Source vials are leak tested prior to shipment. Results of the tests performed are listed on the test certificate. Additionally, leak tests must be completed at regular intervals. For the required leak test interval consult your regulatory agency.

Packaging is manufactured and tested in accordance with 49 CFR and ICAO regulations.

Users are ultimately responsible for determining frequency of leak testing. If rigorous operating conditions are anticipated, an appropriate leak test frequency policy would be anticipated.

F. Recommended Working Life - The manufacturer indicates a recommended working life to the user. This is governed by radiotoxicity, radioactivity, source construction, half-life and conditions of use. It is recommended that the source should be replaced at the end of this period. Refer to the source certificate.

We advise customers to contact Eckert & Ziegler Isotope Products for additional details:

Eckert & Ziegler Isotope Products
DBA Isotope Products Laboratories
24937 Avenue Tibbitts
Valencia, CA 91355
Telephone: (661) 309-1010
Fax: (661) 257-8303

Appendix 1: CARRIERS AND CARRIER CONCENTRATIONS		
Nuclide ¹	Recommended Carrier ²	µg/ml Element
C-14 as benzoic acid	Benzoic acid in 1 M NaOH	—
Be-7	BeCl ₂ in 1 M HCl	10
Na-22, Na-24	NaCl in H ₂ O	50
Al-26	AlCl ₃ in 1 M HCl	10
P-32	H ₃ PO ₄ in 0.02M HCl	50
Si-32	Na ₂ SiO ₃ in 0.1M NaOH	-
S-35	0.1 M HCl	—
Cl-36	NaCl in H ₂ O	100
Ca-45	CaCl ₂ in 1 M HCl CaCl ₂ in H ₂ O	10
Sc-46	ScCl ₃ in 0.1 M HCl	50
Cr-51	CrCl ₃ ·6H ₂ O in 0.1 M HCl	10
Mn-54, Mn-56	MnCl ₂ ·4H ₂ O in 0.1 M HCl	10
Fe-55	FeCl ₃ ·6H ₂ O in 0.1 M HCl	10
Fe-59	FeCl ₃ ·6H ₂ O in 0.1 M HCl	100
Co-56, Co-57, Co-58, Co-60	CoCl ₂ ·6H ₂ O in 0.1 M HCl	10
Ni-63	NiCl ₂ in 0.1 M HCl	50
Zn-65	ZnCl ₂ in 0.5 M HCl	10
Ge-68	GeCl ₄ in 0.5 M HCl	10
Se-75 as SeO ₃	H ₂ SeO ₃ in 1 M HCl	100
Sr-85, Sr-89	SrCl ₂ ·H ₂ O in 0.1 M HCl	50
Y-88	YCl ₃ ·H ₂ O in 0.1 M HCl	50
Sr-90/Y-90	SrCl ₂ ·6H ₂ O plus YCl ₃ ·6H ₂ O in 0.1 M HCl	10 +50
Zr-95 as oxalate	ZrCl ₄ in 0.5 M oxalic acid	10
Nb-95	NbCl ₅ in 6M HCl	100
Tc-95m, Tc-99, Tc-99m	Ammonium pertechnetate in H ₂ O	—
Ru-103, Ru-106	RuCl ₃ in 4 M HCl	500
Cd-109, Cd-113m, Cd-115m	CdCl ₂ ·2½H ₂ O in 0.1 M HCl	500

Appendix 1: CARRIERS AND CARRIER CONCENTRATIONS		
Nuclide ¹	Recommended Carrier ²	µg/ml Element
Ag-110, Ag-110m	AgNO ₃ in 0.1 M HNO ₃	500
Sn-113, Sn-119m	SnCl ₄ in 6 M HCl	50
Sb-124, Sb-125	SbCl ₃ in 6 M HCl	10
Te-123m, Te-125m	TeCl ₃ in 4 M HCl	50
I-125, I-129, I-131	Na ₂ SO ₃ + LiOH + KI in 0.1 M NaOH	10
	LiOH + KI in 0.1M NaOH	10 + 10
Cs-134, Cs-137	CsCl in 0.1 M HCl	10
Ba-133	BaCl ₂ in 0.1 M HCl	10
Ce-139, Ce-144	CeCl ₃ in 1 M HCl	10
Ce-141	Ce(NO ₃) ₃ in 1 M HNO ₃	100
Pm-147	LaCl ₃ in 0.1 M HCl	10
Sm-151	Sm ₂ O ₃ in 5% HNO ₃ ; for solutions in chloride form SmCl ₃ in 1 M HCl contact Radiochemistry	10
Eu-152, Eu-154, Eu-155	EuCl ₃ in 0.1 M HCl	10
Gd-148, Gd-153	GdCl ₃ in 0.1 M HCl	10
Ho-166m	HoCl ₃ in 0.1 M HCl	10
Lu-177m	Lu ₂ O ₃ in 5% HNO ₃ ; for solutions in chloride form LuCl ₃ in 0.5 M HCl contact Radiochemistry	10
Ta-182	Ta(NO ₃) ₅ in 4 M HNO ₃ + 0.2 M HF	-
Ir-192	IrCl ₃ in 0.1 M HCl	10
Au-198	AuCl ₃ in 2M HCl	-
Tl-204	TlCl in 1 M HCl TlNO ₃ in 1 M HNO ₃	10
Pb-210	PbNO ₃ in 1 M HNO ₃	10
Bi-207	BiCl ₃ in 4 M HCl	10
Ra-226, Ra-228	Ba(NO ₃) ₂ in 1 M HNO ₃	10
Ac-227	La(NO ₃) ₃ in 0.1 M HNO ₃	10
Th-228, Th-229, Th-230, Th-232	ZrCl ₂ O in 0.1M HNO ₃	10

Appendix 1: CARRIERS AND CARRIER CONCENTRATIONS		
Nuclide ¹	Recommended Carrier ²	µg/ml Element
Am-241, Am-243	EuCl ₃ in 1 M HCl	10
Cm-244	Gd(NO ₃) ₃ in 0.1 M HNO ₃	10
Cf-252	Dy(NO ₃) ₃ in 0.1 M HNO ₃	10

¹All in ionic form (Co⁺², Cl⁻) except where noted.

²Suggested carrier, can usually substitute nitrate or chloride

Radioactive Safety Data Sheet

HYDROCHLORIC ACID RADIOACTIVE SOLUTION

Section 1: Identification

SDS Name: Hydrochloric Acid Radioactive Solution

Catalog Numbers: 6XXX series, 7XXX series

Sealed Source and Device Registry Numbers: NA

Synonyms: radioactive solution in hydrochloric acid (0.1%-18%) (aqueous hydrochloric acid; hydrogen chloride; muriatic acid)

Usage: Used as a calibration standard for radiation detection equipment; reagent for radiochemical processes.

Company Identification:

Eckert & Ziegler Isotope Products (dba. Isotope Products Laboratories)
24937 Avenue Tibbitts
Valencia, CA 91355

For Technical information, call: 661-309-1010

Emergency Number:

For CHEMTREC assistance, call: 800-424-9300 (account 11625)

For International CHEMTREC assistance, call: 703-527-3887 (account 11625)

Section 2: Hazard(s) Identification

Radioactive substances are exempted/excluded from the notification requirements of the GHS (REACH/OSHA /WHMIS).

Warning: Contains radioactive material, which, although beyond the scope of SDS requirements, should be considered the principal hazard. This material should be handled only by individuals qualified to handle radioactive material in conformance with local regulatory requirements.

GHS CLASSIFICATIONS

Health:

Skin Irritant Category 2: H315

Eye Irritant Category 2: H319

STOT SE (Respiratory System) Category 3: H335

GHS LABEL



Exclamation mark

SIGNAL WORD: Danger

HAZARD STATEMENTS

H315 Causes skin irritation.

H319 Causes serious eye irritation.

H335 May cause respiratory irritation

PRECAUTIONARY STATEMENT(S)

P201 - Obtain special instructions before use

Radioactive Safety Data Sheet

HYDROCHLORIC ACID RADIOACTIVE SOLUTION

P202 - Do not handle until all safety precautions have been read and understood
P264 - Wash thoroughly after handling
P261 - Avoid breathing dust/fume/gas/mist/vapors/spray.
P270 - Do not eat, drink or smoke when using this product
P272 - Contaminated work clothing should not be allowed out of the workplace
P280 - Wear protective gloves/protective clothing/eye protection/face protection.
P302+P352 - IF ON SKIN: Wash with plenty of soap and water
P305+P351+P338 - IF IN EYES: Rinse cautiously with water for several minutes. Remove contact lenses, if present and easy to do. Continue rinsing.
P314 - Get medical advice and attention if you feel unwell
P333+P313 - If skin irritation or rash occurs: Get medical advice/attention
P362+P364 - Take off contaminated clothing and wash it before reuse
P501 - Dispose of contents/container in accordance with local/regional/national/international regulations.

OTHER HAZARDS:



CAUTION! RADIOACTIVE MATERIAL. Promptly remove any contamination from the skin, eyes, or clothing. Radioactive materials must be handled by qualified personnel in conformity with regulations appropriate to the government agency authorized to license the use of this radionuclide. The radioactive solution should be kept within its container or within the holder designed for its use. Avoid contact with the radioactive contents which would cause unnecessary exposure to radiation.

DANGER! This product may cause severe irritation or burns by all routes of exposure. Corrosive effect depends on concentration and duration of exposure. May be harmful or fatal if swallowed and by inhalation. Symptoms by inhalation may be delayed. Repeated inhalation of low level concentrations may cause reduced lung capacity and erosion of the teeth. Chronic skin exposure to low concentration may result in dermatitis.

Section 3: Composition/Information on Ingredients

CAS#	EC Number	Chemical Name	Percent
7647-01-0	231-595-7	Hydrogen Chloride	0.1-18
7732-18-5	231-791-2	Water	Balance
NA	NA	Radioactive Material	<0.1

Section 4: First-Aid Measures

Eyes: Flush eyes with plenty of water for at least 15 minutes, occasionally lifting the upper and lower eyelids. Get medical aid immediately.

Skin: Immediately flush with plenty of water for at least 15 minutes while removing contaminated clothing and wash using soap. Get medical attention if irritation develops or persists. Wash clothing before reuse.

Ingestion: CALL PHYSICIAN OR POISON CONTROL CENTER FOR MOST CURRENT INFORMATION. If professional advice is not available, DO NOT INDUCE VOMITING! If victim is conscious and alert, give 2-4 cupfuls of milk or water. Never give anything by mouth to an unconscious person. Get medical aid immediately.

Radioactive Safety Data Sheet

HYDROCHLORIC ACID RADIOACTIVE SOLUTION

Inhalation: Remove from exposure and move to fresh air immediately. If not breathing, give artificial respiration. If breathing is difficult, give oxygen. Get medical aid if cough or other symptoms appear.

Notes to Physician: Treat symptomatically and supportively.

Antidote: There are several chelating agents for radioactive materials. Only qualified medical personnel should determine their use.

Section 5: Fire-Fighting Measures

Fire: Extreme heat or contact with metals can release flammable Hydrogen gas.

Explosion: Not considered to be an explosion hazard.

Fire Extinguishing Media: Use any means suitable for extinguishing surrounding fire. Neutralize with soda ash or slaked lime.

Special Instructions: In the event of a fire, wear full protective clothing and NIOSH-approved self-contained breathing apparatus with full face piece operated in the pressure demand or other positive pressure mode.

Flash Point: Not applicable.

Autoignition Temperature: Not applicable.

Explosion Limits, Lower: Not available. **Upper:** Not available.

NFPA Rating: (estimated) Health: 3; Flammability: 0; Instability: 0

Section 6: Accidental Release Measures

General Information: If the product is received in a leaking condition or any loss or release of the radioactive contents occurs, notify your Radiation Safety Department. All cleanup operations should be performed according to the Standard Operating Procedures (SOPs) established for your facility and by the NRC or other applicable local, state or federal regulations. Use proper personal protective equipment as indicated in Section 8.

Spills/Leaks: Notify all personnel in the area. Reduce airborne aerosols and prevent spread by covering spill with suitable absorbent. Neutralize spill area with sodium bicarbonate or other material appropriate for acidic materials. Wipe area with wet towels, then place into a suitable container for disposal. Provide ventilation.

Section 7: Handling and Storage

Handling: Wash thoroughly after handling. Remove contaminated clothing and wash before reuse. Use with adequate ventilation. Minimize dust generation and accumulation. Avoid contact with skin and eyes. Avoid ingestion and inhalation.

Radioactive Safety Data Sheet

HYDROCHLORIC ACID RADIOACTIVE SOLUTION

Storage: Storage and disposal of product should be controlled in a manner that is in compliance with the appropriate radioactive material regulations of the federal or state government agency authorized to license the use of this radionuclide. Store in a cool, dry, well-ventilated area away from incompatible substances. Keep containers tightly closed.

Section 8: Exposure Controls/Personal Protection

Engineering Controls: Facilities storing or utilizing this material should be equipped with an eyewash facility and a safety shower. Use adequate general or local exhaust ventilation to keep airborne concentrations below the permissible exposure limits.

Exposure Limits (Chemical)

Chemical Name	ACGIH	NIOSH	OSHA - Final PELs
Hydrogen Chloride	3 mg/m ³ ; 2 ppm (Ceiling)	7 mg/m ³ ; 5 ppm (Ceiling) 75 mg/m ³ ; 50 ppm (IDLH)	7 mg/m ³ ; 5 ppm (Ceiling)

Personal Protective Equipment

Eyes: Wear appropriate protective eyeglasses or chemical safety goggles as described by OSHA's eye and face protection regulations in 29 CFR 1910.133 or European Standard EN166.

Skin: Wear appropriate gloves to prevent skin exposure.

Clothing: Wear appropriate protective clothing to minimize contact with skin.

- **Radiation Dosimetry:** Wear dosimetry as specified by your radiological license commitments.
- **Respirators:** Not expected to require personal respirator usage. Follow the OSHA respirator regulations found in 29 CFR 1910.134 or European Standard EN 149. Use a NIOSH/MSHA or European Standard EN 149 approved respirator if exposure limits are exceeded or if irritation or other symptoms are experienced.

Section 9: Physical and Chemical Properties

Physical State: Liquid

Appearance: Clear, colorless liquid (may have slight yellow tone)

Odor: Strong, pungent odor of Hydrogen chloride

pH: For HCL solutions: 0.01 (6.0 N), 0.1 (1.0 N), 1.1 (0.1 N), 2.02 (0.01 N)

Vapor Pressure: 17.8 mmHg @ 20°C

Vapor Density: 1.26 G/L

Evaporation Rate: Essentially the same as water.

Viscosity: Not applicable.

Boiling Point: 81.5°C to 110°C

Freezing/Melting Point: -74°C to -46.2°C

Decomposition Temperature: >1500°C (> 2732°F).

Oxidizing Properties: Not an oxidizer.

Solubility: Soluble

Specific Gravity/Density: 1.1-1.2

Molecular Formula: HCl

Molecular Weight: 36.46

Radioactive Safety Data Sheet

HYDROCHLORIC ACID RADIOACTIVE SOLUTION

Section 10: Stability and Reactivity

Chemical Stability: Stable under normal temperatures and pressures.

Conditions to Avoid: Temperature above 1500°C. Contact with water and incompatible materials.

Incompatibilities with Other Materials: A strong mineral acid, concentrated Hydrochloric Acid is highly reactive with strong bases, metals, metal oxides, hydroxides, amines, carbonates and other alkaline materials. Incompatible with materials such as cyanides, sulfides, sulfites, and Formaldehyde. Hydrochloric Acid is incompatible with metals, strong oxidizing agents, strong reducing agents, bases, acetic anhydride, alcohols, amines, sulfuric acid, perchloric acid, vinyl acetate, epoxides (e.g. butyl glycidyl ether), chlorosulfonic acid, carbides, beta-propiolactone, ethyleneimine, propylene oxide, lithium silicides, 2-aminoethanol, 1, 1-difluoroethylene, magnesium boride, mercuric sulfate, aldehydes, cyanides, sulfides, phosphides, sodium, potassium permanganate.

Hazardous Decomposition Products: When heated to decomposition, emits toxic Hydrogen Chloride fumes and will react with water or steam to produce heat and toxic and corrosive fumes. Thermal oxidative decomposition produces toxic chlorine fumes and explosive Hydrogen gas.

Hazardous Polymerization: Will not occur.

Section 11: Toxicological Information

Radiological:

It is widely accepted by the scientific community that exposure to sufficient quantities of ionizing radiation can potentially cause harmful biological effects which include cancer, leukemia, and genetic and teratogenic effects.

Chemical:

CAS# 7647-01-0:

LD50/LC50: Inhalation rat LC50: 3124 ppm/1H; Oral rabbit LD50: 900 mg/kg.

Carcinogenicity:

CAS# 7647-01-0:

- **ACGIH:** Not classifiable as a human carcinogen.
- **California:** Not listed.
- **NTP:** Not listed.
- **IARC:** Group 3 carcinogen (Unclassifiable as to carcinogenicity in humans).

Epidemiology: No information available.

Teratogenicity: Female rats were exposed to 450 mg/m³ of HCl for 1 hour either prior to mating or on day 9 of pregnancy. Developmental effects were observed in the offspring. However, this exposure caused toxic effects, including mortality, in the mothers.

Reproductive Effects: No information available.

Mutagenicity: No information available.

Neurotoxicity: No information available.

Symptoms Related to the Physical, Chemical and Toxicological Characteristics:

Burning pain and severe corrosive skin damage Respiratory tract burns. Skin burns. Eye burns. Mucous membrane burns.

Radioactive Safety Data Sheet

HYDROCHLORIC ACID RADIOACTIVE SOLUTION

Potential Health Effects (Acute, Chronic and Delayed):

Inhalation: Inhalation of fumes may cause irritation and burning of the nose, throat, and upper respiratory tract, coughing and choking.

Skin Contact: Skin contact may cause severe irritation, inflammation, and chemical burns.

Eye Contact: Vapors are irritating and may cause damage to the eyes. Eye contact may cause severe irritation, conjunctivitis, corneal necrosis, and burns with impairment or permanent loss of vision.

Ingestion: Ingestion can cause pain and burns of the mouth, throat, esophagus, and stomach. May also cause nausea, vomiting, diarrhea, chills, shock, and intense thirst. Perforation of the intestinal tract and circulatory collapse may occur. Death may occur due to esophageal or gastric necrosis.

Section 12: Ecological Information

Ecotoxicity: This material is expected to be toxic to aquatic life.

LC50 Shrimp: 100-300 ppm / 48 h /salt water; LC100 trout: 10 mg/l / 24 h; TLm mosquito fish: 282 ppm / 96 h

Persistence and Degradability: When released into the soil, this material is not expected to biodegrade; however reactions should neutralize the solution.

Bioaccumulative Potential: Hydrochloric Acid does not bioconcentrate.

Mobility in Soil: When released into the soil, this material may leach into groundwater.

Section 13: Disposal Considerations

This solution is a radioactive material. Radioactive waste must be handled in accordance with procedures established by your Radiation Safety Officer, NRC and other applicable regulations.

Chemical waste generators must determine whether a discarded chemical is classified as a hazardous waste. US EPA guidelines for the classification determination are listed in 40 CFR Parts 261.3. Additionally, waste generators must consult state and local hazardous waste regulations to ensure complete and accurate classification.

RCRA P-Series: None listed.

RCRA U-Series: None listed.

Section 14: Transport Information

The classification for transportation of radioactive materials will depend on the specific activity level of the solution, type of isotope, packaging, as well as the quantity shipped. Specific site procedures should be followed for shipping radioactive materials or seek advice from your site Radiation Safety Officer. This material will typically ship as Class 7 Radioactive with a subsidiary risk of Class 8 Corrosive.

Section 15: Regulatory Information

US FEDERAL

TSCA:

CAS# 7647-01-0 is listed on the TSCA inventory.

CAS# 7732-18-5 is listed on the TSCA inventory.

Health & Safety Reporting List

None of the chemicals are on the Health & Safety Reporting List.

Chemical Test Rules

None of the chemicals in this product are under a Chemical Test Rule.

Section 12b

None of the chemicals are listed under TSCA Section 12b.

Radioactive Safety Data Sheet

HYDROCHLORIC ACID RADIOACTIVE SOLUTION

TSCA Significant New Use Rule

None of the chemicals in this material have a SNUR under TSCA.

SARA:

Section 302 (RQ)

CAS# 7647-01-0: final RQ = 5000 pounds (2270 kg)

Section 302 (TPQ)

CAS# 7647-01-0: TPQ = 500 pounds; RQ = 5000 pounds (does not meet toxicity criteria but because of high production volume and recognized toxicity is considered a chemical of concern)

SARA Codes

CAS # 7647-01-0: acute.

Section 313

This chemical is not at a high enough concentration to be reportable under Section 313. No chemicals are reportable under Section 313.

Clean Air Act:

CAS# 7647-01-0 is listed as a hazardous air pollutant (HAP). This material does not contain any Class 1 Ozone depleters. This material does not contain any Class 2 Ozone depleters.

Clean Water Act:

CAS# 7647-01-0 is listed as a Hazardous Substance under the CWA. None of the chemicals in this product are listed as Priority Pollutants under the CWA. None of the chemicals in this product are listed as Toxic Pollutants under the CWA.

OSHA:

CAS# 7647-01-0 is considered highly hazardous by OSHA.

STATE

CAS# 7647-01-0 can be found on the following state right to know lists: California, New Jersey, Florida, Pennsylvania, Minnesota, Massachusetts.

CAS# 7732-18-5 is not present on state lists from CA, PA, MN, MA, FL, or NJ.

California No Significant Risk Level: None of the chemicals in this product are listed.

European/International Regulations

European Labeling in Accordance with EC Directives

Hazard Symbols:

C

Risk Phrases:

R 34 Causes burns.

R 20 Harmful by inhalation.

Safety Phrases:

S 26 In case of contact with eyes, rinse immediately with plenty of water and seek medical advice.

S 45 In case of accident or if you feel unwell, seek medical advice immediately (show the label where possible).

WGK (Water Danger/Protection)

CAS# 7647-01-0: 1

CAS# 7732-18-5: No information available.

Canada

CAS# 7647-01-0 is listed on Canada's DSL List. CAS# 7647-01-0 is listed on Canada's DSL List. CAS# 7732-18-5 is listed on Canada's DSL List. CAS# 7732-18-5 is listed on Canada's DSL List.

This product has a WHMIS classification of E, D2A.

CAS# 7647-01-0 is listed on Canada's Ingredient Disclosure List.

CAS# 7732-18-5 is not listed on Canada's Ingredient Disclosure List.

Exposure Limits

CAS# 7647-01-0: OEL-AUSTRALIA:TWA 5 ppm (7 mg/m3); OEL-AUSTRIA:TWA 5 ppm (7 mg/m3); OEL-BELGIUM:STEL 5 ppm (7.7 mg/m3); OEL-DENMARK:STEL 5 ppm (7 mg/m3); OEL-FINLAND:STEL 5 ppm (7 mg/m3); Skin OEL-FRANCE:STEL 5 ppm (7.5 mg/m3); OEL-GERMANY:TWA 5 ppm (7 mg/m3); OEL-HUNGARY:STEL 5 mg/m3; OEL-JAPAN:STEL 5 ppm (7.5 mg/m3); OEL-THE NETHERLANDS:TWA 5 ppm (7 mg/m3); OEL-THE PHILIPPINES:TWA 5 ppm (7 mg/m3); OEL-POLAND:TWA 5 mg/m3; OEL-RUSSIA:STEL 5 ppm (5 mg/m3); OEL-SWEDEN:STEL 5 ppm (8 mg/m3); OEL-SWITZERLAND:TWA 5 ppm (7.5 mg/m3); STEL 10 ppm (15 mg/m3); OEL-THAILAND:TWA 5 ppm (7 mg/m3); OEL-TURKEY:TWA 5 ppm (7 mg/m3); OEL-UNITED KINGDOM:TWA 5 ppm (7 mg/m3); STEL 5 ppm (7 mg/m3); OEL IN BULGARIA, COLOMBIA, JORDAN, KOREA check ACGIH TLV OEL IN NEW ZEALAND, SINGAPOR E, VIETNAM check ACGI TLV

Radioactive Safety Data Sheet

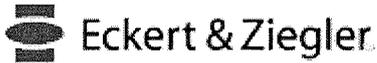
HYDROCHLORIC ACID RADIOACTIVE SOLUTION

Section 16: Other Information

SDS Creation Date: 19 May 2015

SDS Review Date: 21 May 2015

The information above is believed to be accurate and represents the best information currently available to us. However, we make no warranty of merchantability or any other warranty, express or implied, with respect to such information, and we assume no liability resulting from its use. Users should make their own investigations to determine the suitability of the information for their particular purposes. In no event shall EZIP be liable for any claims, losses, or damages of any third party or for lost profits or any special, indirect, incidental, consequential or exemplary damages, howsoever arising, even if EZIP has been advised of the possibility of such damages.



PACKING SLIP



Eckert & Ziegler Isotope Products,
24937 Avenue Tibbitts
Valencia, CA 91355

Order No	Date	Page No
331288	1/7/2019	1 of 1

Customer P/O Number	Shipment Number
P710875	

Tel (661) 309-1010
Fax (661) 257-8303

Bill to:
Eckert & Ziegler Nuclitec GmbH
Gieselweg 1
38110 Braunschweig
Germany

Shipped To
Eckert & Ziegler Nuclitec GmbH
c/o Borchardt Luftfrachtspedition GmbH
Frankfurt Airport
Frankfurt, 65451
Germany

Tracking number

Customer No	Ship Date	Ship via	Delivery terms	Ship Carrier#	Shipping Instructions
AREZN	1/8/2019	Clr Frt	Carriage Freight to Airpor		CPT: Frankfurt Airport

Contact: Simone Homes, Tel: +49 5307 932-247
simone.homes@ezag.com

Item number	Description	Unit	Delivered	Ordered	Remaining quantity
7601	Cd-109, Co-57, Ce-139, Hg-203, Sn-113, Sr-85, Cs-137, Co-60, Y-88 (179.61kBq) + 3% Am-241 (5.39kBq), Total Activity: 185kBq (5uCi) +/-15%, 5mL fill in 5mL FSA, DAKKS In 2M HCl EZN Item Code: 7601-5FSA- 185KBQ-D	Ea	1.000	1.000	Line no. : 1.0
Quantity : 1.00 Serial number : 2060-38					
ECCN-NOTES-STD	For Research Use, ECCN: EAR99 Schedule B: 2844.40.0020 Country of origin: US	Ea	1.000	1.000	Line no. : 2.0

Final Consignee:
Same as end end user

End User:
Gottfried Wilhelm Leibniz
Uni Hannover
Radioökologie/Strahlenschutz (IRS)
Herrenhäuser Straße 2
30419 Hannover
Germany

Contact: Prof. Dr. Clemens Walther, Tel: 0511/762-3312

Contact: Prof. Dr. Clemens Walther, Tel: 0511/762-3312

Receipt: _____



Eckert & Ziegler
Isotope Products

Eckert & Ziegler Isotope Products
DBA Isotope Products Laboratories
1800 N. Keystone Street
Burbank, California 91504

Tel 661 – 309 - 1010
Fax 661 – 257 – 8303
E-mail: sales@ezag.com
E-mail nucmedsales@ezag.com
Web Site: www.ezag.com

EMERGENCY RESPONSE INFORMATION

(49CFR 172.600,602,604)

1. PROPER SHIPPING NAME AND HAZARD CLASS

- a) UN2910, Radioactive material, excepted package- limited quantity of material, Class 7
- b) UN2911, Radioactive material, excepted package - instruments, Class 7
- c) UN2911, Radioactive material, excepted package - articles, Class 7
- d) UN2908, Radioactive material, excepted package, empty packaging, Class 7
- e) UN3332, Radioactive material, Type A package, special form, non-fissile or fissile excepted, Class 7
- f) UN3327, Radioactive material, Type A package, fissile, non-special form, Class 7
- g) UN2915, Radioactive material, Type A package, non-special form, non-fissile or fissile excepted, Class 7
- h) UN2916, Radioactive material, Type B(U) package, non-fissile or fissile excepted, Class 7
- i) UN2912, Radioactive material, low specific activity (LSA-I) non-fissile or fissile excepted, Class 7
- j) UN3321, Radioactive material, low specific activity (LSA-II) non-fissile or fissile excepted, Class 7
- k) UN3333, Radioactive material, Type A package, special form, fissile, Class 7
- l) UN2913, Radioactive material, surface contaminated objects (SCO-I) non-fissile or fissile excepted, Class 7
- m) UN2913, Radioactive material, surface contaminated objects (SCO-II) non-fissile or fissile excepted, Class 7
- n) UN2917, Radioactive material, Type B(M) package, non-fissile or fissile excepted, Class 7

2. IMMEDIATE HAZARDS TO HEALTH: No significant hazards

3. RISKS OF FIRE OR EXPLOSION

- a) None
- b) Compressed gas: could explode on exposure to intense heat or flame

4. IMMEDIATE PRECAUTIONS: Keep non-essential people away from area; notify radiation safety authorities.

5. EMERGENCY FIRE MEASURES: Self-contained breathing apparatus and firefighters' protective gear should be used.

6. FIRST AID: Use standard first aid measures as required. Advise medical personnel that victim may be contaminated with low-level radioactive material.

7. Twenty-four (24) hour emergency response numbers call CHEMTREC, Account # 11625: (800) 424-9300 or (703) 527-3887.



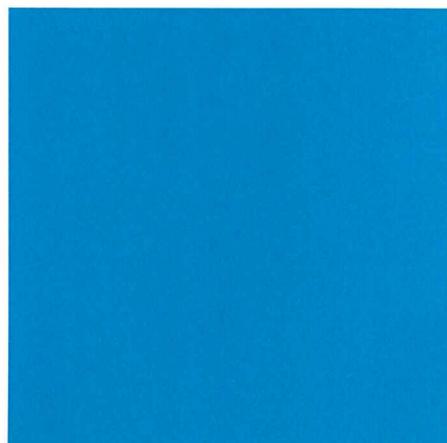
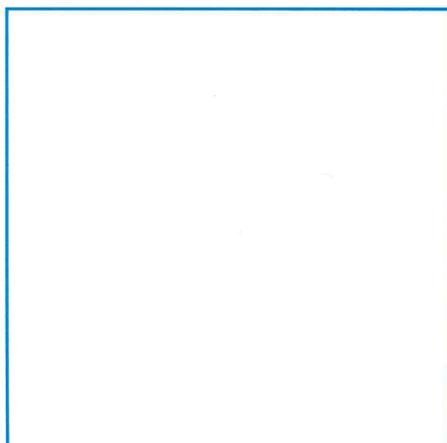
Physikalisch-Technische Bundesanstalt
Braunschweig und Berlin
Nationales Metrologieinstitut

X 5 + 85 - 01

Kalibrierschein

Calibration Certificate

PTB-6.11-2016-1036





Kalibrierschein

Calibration Certificate

Gegenstand: Aktivitätsnormal
Object: Activity standard

Hersteller: Physikalisch-Technische Bundesanstalt
Manufacturer: Fachbereich 6.1

Typ: Wässrige Lösung in Glasampulle (AM05)
Type: Aqueous solution in glass ampoule (AM05)

Kenn-Nummer: 2016-1036
Serial No.:

Auftraggeber: Institut für Radioökologie
Applicant: und Strahlenschutz
Herrenhäuser Straße 2
30419 Hannover

Anzahl der Seiten: 4
Number of pages:

Geschäftszeichen: PTB-6.11-281/28.2016
Reference No.:

Kalibrierzeichen: PTB-6.11-2016-1036
Calibration mark:

Datum der Kalibrierung: 28.06.2016
Date of calibration:

Im Auftrag
On behalf of PTB



Dr. O. Nähle

Braunschweig, 28.06.2016

Siegel
Seal



Im Auftrag
On behalf of PTB



M. Ehlers



Seite 2 zum Kalibrierschein vom 28.06.2016, Kalibrierzeichen: PTB-6.11-2016-1036
Page 2 of calibration certificate of 28.06.2016, calibration mark: PTB-6.11-2016-1036

Gegenstand:
Object:

Aktivitätsnormal
Activity standard

Typ:
Type:

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

Kenn-Nummer:
Serial number:

2016-1036

Radionuklid:
Radionuclide:

Strontium-85
Strontium-85

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

HCl	0,1 mol/L
SrCl ₂	30 mg/L

Kalibrierverfahren:
Method of calibration:

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

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

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

Die Lösungsmassen wurden durch Wägung bestimmt.

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

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

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

The masses of the solutions were determined by weighing.





Seite 3 zum Kalibrierschein vom 28.06.2016, Kalibrierzeichen: PTB-6.11-2016-1036

Page 3 of calibration certificate of 28.06.2016, calibration mark: PTB-6.11-2016-1036

Lösungsmasse: $m = (2,0135 \pm 0,0017) \text{ g}$
Mass of solution:

Spezifische Aktivität: $a = (201,2 \pm 2,1) \text{ kBq/g}$
Specific activity:

Bezugszeitpunkt: 1. Juli 2016, 00:00 Uhr MEZ
Reference date: 00:00 CET on 1 July 2016

Radioaktive Verunreinigungen: Die verwendete Ausgangslösung wurde mit einem
Radioactive impurities: kalibrierten Halbleiterspektrometer auf gammastrahlende radioaktive Verunreinigungen geprüft. Dabei wurde Rb-84 mit folgendem Aktivitätsanteil nachgewiesen:

$$A(\text{Rb-84})/A(\text{Sr-85}) = (1,09 \pm 0,07) \cdot 10^{-4}$$

am Bezugszeitpunkt.

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

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

$$A(\text{Rb-84})/A(\text{Sr-85}) = (1.09 \pm 0.07) \cdot 10^{-4}$$

on the reference date.

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

Messunsicherheit:
Uncertainty of measurement:

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

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





Physikalisch-Technische Bundesanstalt
Braunschweig und Berlin
Nationales Metrologieinstitut

Seite 4 zum Kalibrierschein vom 28.06.2016, Kalibrierzeichen: PTB-6.11-2016-1036
Page 4 of calibration certificate of 28.06.2016, calibration mark: PTB-6.11-2016-1036

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

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

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



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

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

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

Physikalisch-Technische Bundesanstalt

Bundesallee 100
38116 Braunschweig
DEUTSCHLAND

Abbestraße 2-12
10587 Berlin
DEUTSCHLAND

Physikalisch-Technische Bundesanstalt

Braunschweig und Berlin

Empfohlene Radionukliddaten

Stand: 01.01.2005

Radionuklid: Sr-85

Halbwertszeit: $T_{1/2} = 64,849(4)$ Tage

Photonen-Energien E und –Emissionswahrscheinlichkeiten p :

Strahlungs- typ	E in keV	p	Kommentar
Rb-L	1,7	0,016(6)	
Rb-K $_{\alpha 2}$	13,34	0,171(10)	
Rb-K $_{\alpha 1}$	13,40	0,330(19)	
Rb-K $_{\beta}$	15,0	0,087(6)	
γ	514,01	0,984(4)	
γ	868,06	0,00012(4)	

Messunsicherheiten:

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

Literatur:

Schötzig, U. und Schrader, H.:

Halbwertszeiten und Photonen-Emissionswahrscheinlichkeiten von häufig verwendeten Radionukliden, 5. erweiterte und korrigierte Auflage; PTB-Bericht PTB-Ra-16/5, Braunschweig, Mai 2000, ISBN 3-89701-279-0

AKTIVITÄTSNORMAL
Activity Standard

LÖSUNG IN GLASAMPULLEN (AM05)
Solution in Glass Ampoules (AM05)

Hinweis auf neue Glasampullen
Information regarding new glass ampoules

Die Lösung befindet sich in einer im Jahre 2005 beschafften Glasampulle der Firma M Glas AG.

Diese Ampullen weisen ähnliche Abmessungen und Materialeigenschaften auf, wie die bis zum Jahre 2005 verwendeten Ampullen für Aktivitätsnormale der PTB. Bei Messungen, bei denen die Ampullengeometrie wesentlich eingeht, kann es daher zu Abweichungen im Vergleich zu früher durchgeführten Kalibriermessungen kommen, z. B. bei Messungen der Aktivität in Aktivimetern (Ionisationskammern).

The solution is contained in a glass ampoule which was procured from the company "M Glas AG" in 2005.

These ampoules have dimensions and material properties similar to the ampoules which were used for activity standards of the PTB until 2005. In measurements in which the ampoule geometry has a significant influence, deviations from earlier calibration measurements can therefore occur, e.g. when the activity is measured in activimeters (ionisation chambers).



**Physikalisch-Technische Bundesanstalt
Braunschweig und Berlin**

Bundesallee 100
38116 Braunschweig

Dr. Dirk Arnold
6.1 | Radioaktivität



Telefon: 0531 592-6100
E-Mail: dirk.arnold@ptb.de
www.ptb.de



Stand: 07/14

Sr-85 Verdünnung				
Inventar Nr.:	xSr-85-01			
Ansatz:	05.07.2016			
Brechampulle:	PTB			
chemische Zusammensetzung der Trägerlösung	HCL	0,1	mol/L	
	SrCl ₂	30	mg/L	
Lösung in der Ampulle ldt. Kalibrierschein (m)		2,0135	g	(± 0,0017) g
Aktivität ldt. Kalibrierschein (a)		201,2	kBq/g	(± 2,1) kBq/g
Gesamtaktivität berechnet (a)		405,116	kBq	
Bezugszeitpunkt ldt. Kalibrierschein	01.07.2016			

Flasche Deckel inkl. Verdünnungslösung (m)		204,58	g
Flasche Deckel leer (m)		164,49	g
Verdünnungslösung berechnet (m)		40,09	g

Gewichte sind ohne Etikett

Verdünnungslösung (m)		40,09	g
Ampullenlösung (m)		2,0135	g
Gesamtmasse Lösung (m)		42,1035	g

Aktivität der Verdünnung		9,622	kBq/g
---------------------------------	--	--------------	-------

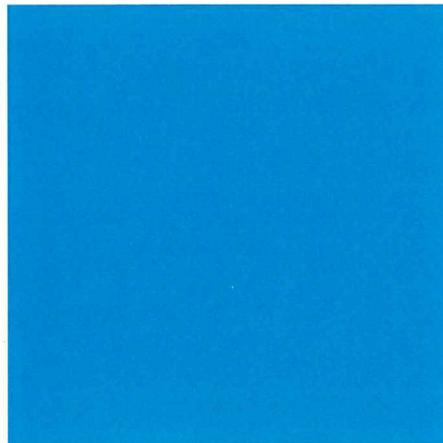
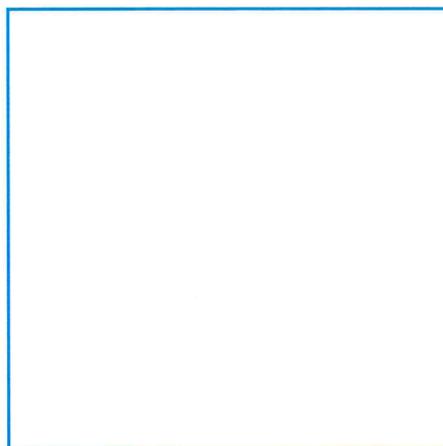


Physikalisch-Technische Bundesanstalt
Braunschweig und Berlin
Nationales Metrologieinstitut

Kalibrierschein

Calibration Certificate

PTB-6.11-2016-1826





Kalibrierschein

Calibration Certificate

Gegenstand: Aktivitätsnormal
Object: *Activity standard*

Hersteller: Physikalisch-Technische Bundesanstalt
Manufacturer: Fachbereich 6.1

Typ: Wässrige Lösung in Glasampulle (AM05)
Type: *Aqueous solution in glass ampoule (AM05)*

Kenn-Nummer: 2016-1826
Serial No.:

Auftraggeber: IRS
Applicant: Leibniz Universität Hannover
Herrenhäuser Straße 2
30419 Hannover

Anzahl der Seiten: 4
Number of pages:

Geschäftszeichen: PTB-6.11-284/17.2017
Reference No.:

Kalibrierzeichen: PTB-6.11-2016-1826
Calibration mark:

Datum der Kalibrierung: 09.02.2017
Date of calibration:

Im Auftrag
On behalf of PTB



Dr. K. Kossert

Braunschweig, 09.02.2017

Siegel
Seal



Im Auftrag
On behalf of PTB



M. Ehlers



Seite 2 zum Kalibrierschein vom 09.02.2017, Kalibrierzeichen: PTB-6.11-2016-1826
Page 2 of calibration certificate of 09.02.2017, calibration mark: PTB-6.11-2016-1826

Gegenstand:
Object:

Aktivitätsnormal
Activity standard

Typ:
Type:

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

Kenn-Nummer:
Serial number:

2016-1826

Radionuklid:
Radionuclide:

Strontium-85
Strontium-85

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

HCl	0,1 mol/L
SrCl ₂	30 mg/L

Kalibrierverfahren:
Method of calibration:

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

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

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

Die Lösungsmassen wurden durch Wägung bestimmt.

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

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

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

The masses of the solutions were determined by weighing.





Seite 3 zum Kalibrierschein vom 09.02.2017, Kalibrierzeichen: PTB-6.11-2016-1826
Page 3 of calibration certificate of 09.02.2017, calibration mark: PTB-6.11-2016-1826

Lösungsmasse: $m = (2,0066 \pm 0,0017) \text{ g}$
Mass of solution:

Spezifische Aktivität: $a = (1009 \pm 10) \text{ kBq/g}$
Specific activity:

Bezugszeitpunkt: 1. Februar 2017, 00:00 Uhr MEZ
Reference date: 00:00 CET on 1 February 2017

Radioaktive Verunreinigungen:
Radioactive impurities:

Die verwendete Ausgangslösung wurde mit einem kalibrierten Halbleiterspektrometer auf gammastrahlende radioaktive Verunreinigungen geprüft. Dabei wurde Rb-84 mit folgendem Aktivitätsanteil nachgewiesen:

$$A(\text{Rb-84})/A(\text{Sr-85}) = (1,99 \pm 0,12) \cdot 10^{-4}$$

am Bezugszeitpunkt.

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

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

$$A(\text{Rb-84})/A(\text{Sr-85}) = (1.99 \pm 0.12) \cdot 10^{-4}$$

on the reference date.

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

Messunsicherheit:
Uncertainty of measurement:

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

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





Physikalisch-Technische Bundesanstalt
Braunschweig und Berlin
Nationales Metrologieinstitut

Seite 4 zum Kalibrierschein vom 09.02.2017, Kalibrierzeichen: PTB-6.11-2016-1826
Page 4 of calibration certificate of 09.02.2017, calibration mark: PTB-6.11-2016-1826

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

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

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



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

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

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

Physikalisch-Technische Bundesanstalt

Bundesallee 100
38116 Braunschweig
DEUTSCHLAND

Abbestraße 2-12
10587 Berlin
DEUTSCHLAND

Physikalisch-Technische Bundesanstalt

Braunschweig und Berlin

Empfohlene Radionukliddaten

Stand: 01.01.2005

Radionuklid: Sr-85

Halbwertszeit: $T_{1/2} = 64,849(4)$ Tage

Photonen-Energien E und -Emissionswahrscheinlichkeiten p :

Strahlungs- typ	E in keV	p	Kommentar
Rb-L	1,7	0,016(6)	
Rb-K α_2	13,34	0,171(10)	
Rb-K α_1	13,40	0,330(19)	
Rb-K β	15,0	0,087(6)	
γ	514,01	0,984(4)	
γ	868,06	0,00012(4)	

Messunsicherheiten:

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

Literatur:

Schötzig, U. und Schrader, H.:

Halbwertszeiten und Photonen-Emissionswahrscheinlichkeiten von häufig verwendeten Radionukliden, 5. erweiterte und korrigierte Auflage; PTB-Bericht PTB-Ra-16/5, Braunschweig, Mai 2000, ISBN 3-89701-279-0

AKTIVITÄTSNORMAL
Activity Standard

LÖSUNG IN GLASAMPULLEN (AM05)
Solution in Glass Ampoules (AM05)

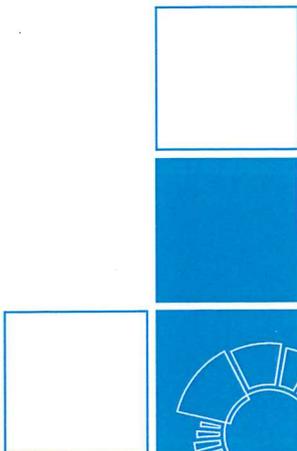
Hinweis auf neue Glasampullen
Information regarding new glass ampoules

Die Lösung befindet sich in einer im Jahre 2005 beschafften Glasampulle der Firma M Glas AG.

Diese Ampullen weisen ähnliche Abmessungen und Materialeigenschaften auf, wie die bis zum Jahre 2005 verwendeten Ampullen für Aktivitätsnormale der PTB. Bei Messungen, bei denen die Ampullengeometrie wesentlich eingeht, kann es daher zu Abweichungen im Vergleich zu früher durchgeführten Kalibriermessungen kommen, z. B. bei Messungen der Aktivität in Aktivimetern (Ionisationskammern).

The solution is contained in a glass ampoule which was procured from the company "M Glas AG" in 2005.

These ampoules have dimensions and material properties similar to the ampoules which were used for activity standards of the PTB until 2005. In measurements in which the ampoule geometry has a significant influence, deviations from earlier calibration measurements can therefore occur, e.g. when the activity is measured in activimeters (ionisation chambers).



**Physikalisch-Technische Bundesanstalt
Braunschweig und Berlin**

Bundesallee 100
38116 Braunschweig

Dr. Dirk Arnold
6.1 | Radioaktivität

Telefon: 0531 592-6100
E-Mail: dirk.arnold@ptb.de
www.ptb.de

Stand: 07/14

Physikalisch-Technische Bundesanstalt

Braunschweig und Berlin

Empfänger:

IRS
Leibniz Universität Hannover
Inst. für Radioökologie
und Strahlenschutz
Herrenhäuser Straße 2

30419 Hannover

Absender:

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

Geschäftszeichen: 6.11-284/04.17
Sachbearbeiter: Frau Ehlers
Telefon: 0531-592-6315
Telefax: 0531-592-6305

Bezug: Bestellung vom 08.02.2017
Hilal Alemdar

Braunschweig, 14.02.2017

Beförderungspapier zum Transport radioaktiver Stoffe auf der Straße

Verpackung: 1 Karton

Masse:2..... kg

Inhalt: 1 Aktivitätsnormal Sr-85 (2016-1826)
als Lösung in einer Glasampulle zu 2 g

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

Radionuklid(e): Sr-85

Phys./chem. Zustand: Flüssig / Lösung

Aktivität: 2 MBq

Kategorie: I-weiß II-gelb III-gelb

Transportkennzahl:0.0.....

Besondere Maßnahmen gemäß Abschnitt 5.4.1.2.5.2 ADR sind nicht erforderlich.

Empfangsbestätigung:

Sendung am13.02.2017.....
übernommen.

Unterschrift:

Ausgeschrieben:

Verpackt:Ehlers.....

Sr-85-02 Verdünnung

Inventar Nr.:	xSr-85-02	
Ansatz	17.02.2017	
Brechampulle	PTB	
chemische Zusammensetzung	HCl	0,1 mol/L
der Trägerlösung	SrCl ₂	30 mg/L

Lösung der Ampulle ldt. Kalibrierschein	2,0066 g	
Aktivität ldt. Kalibrierschein	1009 kBq/g	
Gesamtaktivität berechnet	2024,659 kBq	
Bezugszeitpunkt laut Kalibrierschein:	01.02.2017	0:00 Uhr

Laborverdünnung:	
Flasche Deckel inkl- Verdünnungslösung	256,05 g
Flasche Deckel leer	164,49 g
Verdünnungslösung berechnet	91,56 g

Verdünnungslösung	91,56 g
Ampullenlösung	2,0066 g
Gesamtmasse Lösung	93,5666 g

Aktivität der Verdünnung	21,638698 kBq/g
Verdünnungsfaktor (k)	0,02144569

$\pm 0,0017\text{g}$
 $\pm 10 \text{ kBq/g}$



American
Radioabeled
Chemicals, Inc.

X 50-85-03

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

TECHNICAL DATA SHEET
ARX 0108 Strontium-85 as ⁸⁵SrCl₂

SPECIFIC LOT DATA:

Lot Number: 170630

Specific Activity 18.99 mCi/mg

Solvent: 0.5M HCl

Calibration Date: 7/07/17

Concentration: 14.28 mCi/ml

Storage: Room Temperature

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

Half Life: 64.84 days

OCCUPATIONAL LIMITS:

Derived Air Concentration (DAC): 6×10^{-7} μ Ci/ml
Annual Limit on Intake (ALI): 2mCi

DECAY TABLES:

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

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

X 54 85-03



**HARTMANN
ANALYTIC**

HARTMANN ANALYTIC GmbH, Steinriedendamm 15, DE-38108 Braunschweig

Lieferschein

Institut für Radiokologie und
Strahlenschutz
Frau Altmeyer
Herrenhäuserstr. 2
30419 HANNOVER
DEUTSCHLAND

Nr.	Datum	Kunden Nr.
311224	04.07.2017	100078

181677

Seite: 1/1

Warenempfänger/Besteller:
Institut für Radiokologie und
Strahlenschutz
Herrenhäuserstr. 2
D 30419 HANNOVER

Rechnungsadresse:
Institut für Radiokologie und
Strahlenschutz
Herrenhäuserstr. 2
D 30419 Hannover

Best.-Datum : 12.06.2017
Best.-Nummer : (per E-Mail bestellt)
Auftrag.-Nr. : 181677

Versand : tof
Versanddatum : 04.07.2017

Pos.	ITEM	Code	Nuklid	physik. Form	Menge	
20	18167720	ARX0108	SR85	Flüssig	74,0 MBq (2,00 mCi)	00 X
				Strontium-85 Radionuclide as strontium chloride		

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

Gesamtaktivität : 74,0 MBq (2,00 mCi)
Quotient: 0,00

Ware ordnungsgemäß erhalten.

Datum / Unterschrift: _____
Verpackung und Bezeichnung entsprechen den ADR-Regeln in der jeweils geltenden Form.

HARTMANN ANALYTIC GmbH
Steinriedendamm 15
DE-38108 Braunschweig
Geschäftsführer:
Dr. Ursula Hartmann und
Dr. Heinrich Hartmann

Zahlungen in EUR (€)
Bank: Postbank Hannover
IBAN: DE 36 2501 0030 0433 3353 09
BIC: PANKDE33HAN
Zahlungen in USD (\$) (in US-Dollars)
Bank: Deutsche Landsparbank
IBAN: DE 27 2505 0000 0001 9349 34
BIC: NOLADE33HAN

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

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

Gewichte sind ohne Edikett

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

Aktivität der Verdünnung			
Verdünnungsfaktor:	k	0,00087619	
chemische Zusammensetzung	HCL	0,5	mol/L
entsprechend	100 µl	61,5640599	kBq



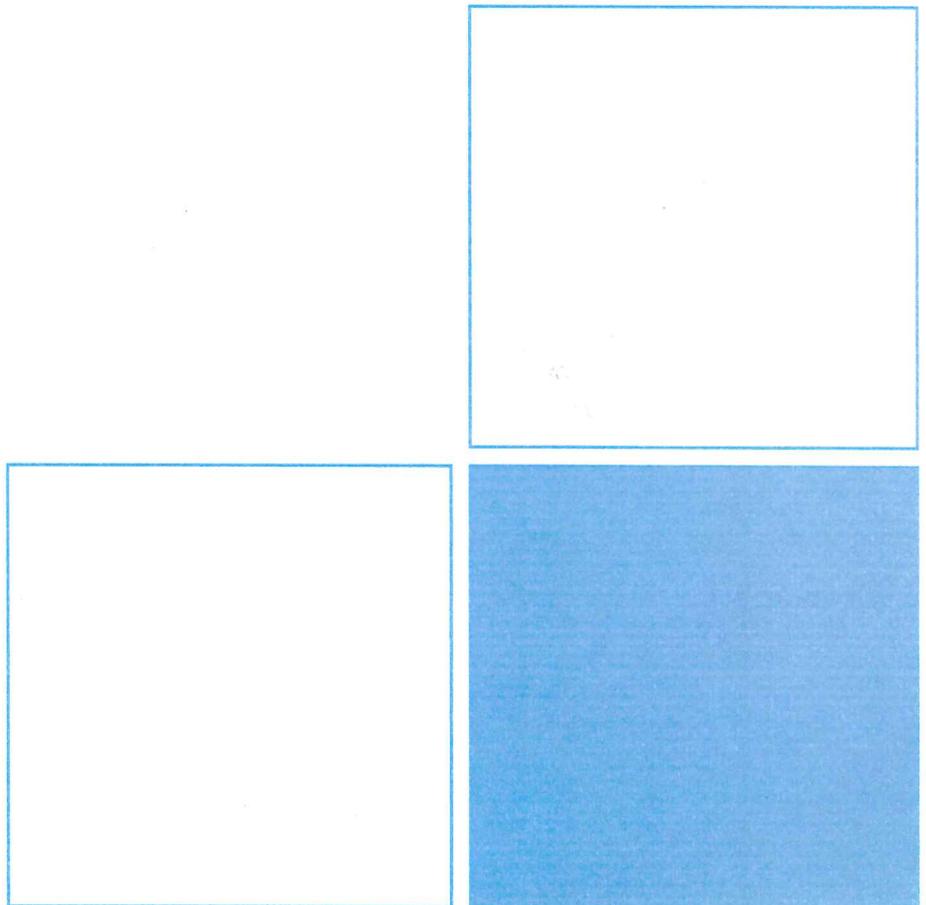
Physikalisch-Technische Bundesanstalt
Braunschweig und Berlin
Nationales Metrologieinstitut

~~SI 90-56~~
x SI 90-09

Kalibrierschein

Calibration Certificate

PTB-6.11-2005-1704





~~ST 90-86~~
X ST 90-09

Kalibrierschein Calibration Certificate

Gegenstand:
Object: Aktivitätsnormal
Activity standard

Hersteller:
Manufacturer: Physikalisch-Technische Bundesanstalt
Fachbereich 6.1

Typ:
Type: Wässrige Lösung in Glasampulle (AM)
Aqueous solution in glass ampoule (AM)

Kenn-Nummer:
Serial No.: 2005-1704

Auftraggeber:
Applicant: Institut für Radioökologie
und Strahlenschutz
Herrenhäuser Straße 2
30149 Hannover

Anzahl der Seiten:
Number of pages: 4

Geschäftszeichen:
Reference No.: PTB-6.11-277/24.2015

Kalibrierzeichen:
Calibration mark: PTB-6.11-2005-1704

Datum der Kalibrierung:
Date of calibration: 21.07.2015

Im Auftrag
On behalf of PTB



Dr. O. Nähle

Braunschweig, 21.07.2015

Siegel
Seal



Im Auftrag
On behalf of PTB



M. Ehlers



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

Gegenstand:
Object:

Aktivitätsnormal
Activity standard

Typ:
Type:

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

Kenn-Nummer:
Serial number:

2005-1704

Radionuklid:
Radionuclide:

Strontium-90
Strontium-90

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

HCl	0,1 mol/L
SrCl ₂	30 mg/L
YCl ₃	30 mg/L

Kalibrierverfahren:
Method of calibration:

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

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

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

Die Lösungsmassen wurden durch Wägung bestimmt.

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

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

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

The masses of the solution were determined by weighing.





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

Lösungsmasse: $m = (2,0278 \pm 0,0017) \text{ g}$
Mass of solution:

Spezifische Aktivität: $a = (329 \pm 5) \text{ kBq/g}$
Specific activity:

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

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

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

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

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





Physikalisch-Technische Bundesanstalt
Braunschweig und Berlin
Nationales Metrologieinstitut

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

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

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

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



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

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

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

Physikalisch-Technische Bundesanstalt

Bundesallee 100
38116 Braunschweig
DEUTSCHLAND

Abbestraße 2-12
10587 Berlin
DEUTSCHLAND

Empfohlene Radionukliddaten

Stand: 01.01.2010

Radionuklid: Sr-90 und Y-90 im radioaktiven Gleichgewicht

Halbwertszeit: $T_{1/2}$ (Sr-90) = 1,0523(35)·10⁴ Tage [28,81(10) Jahre]
 $T_{1/2}$ (Y-90) = 2,6689(9) Tage

Betastrahlen-Energien E_{\max} und \bar{E} und –Emissionswahrscheinlichkeit p_{β} :

Strahlungs- typ	E_{\max} in keV	\bar{E} in keV	p_{β}
β_1^- Sr-90	546(2)	196(1)	1,0
β_2^- Y-90	532,2(25)	188(1)	0,00016(7)
β_3^- Y-90	2283,9(25)	939(1)	0,99984(7)

Messunsicherheiten:

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

Literatur:

Schötzig, U. und Schrader, H.:

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

Lagoutine, F., Coursol, N. und Legrand, J.:

Table de radionucléides; LMRI, F-91193 Gif-sur-Yvette 1982-1987, ISBN 2-7272-0078-1

Kossert, K. und Schrader, H.:

Applied Radiation and Isotopes 60 (2004), 741-749

X Sr 90-09

Physikalisch-Technische Bundesanstalt

Braunschweig und Berlin

Empfänger:

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

30419 Hannover

Bezug: Mail Frau Erb-Bunnenberg
vom 20.07.2015

Absender:

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

Geschäftszeichen: 6.11-277/24.15

Sachbearbeiter: Frau Ehlers

Telefon: 0531-592-6315

Telefax: 0531-592-6305

Braunschweig, 22.07.2015

Beförderungspapier zum Transport radioaktiver Stoffe auf der Straße

Verpackung: 1 Karton

Masse: 1 kg

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

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

TNT Lieferservice

hat die Sendung am 22.7.2015
übernommen.

Unterschrift:

Ausgeschrieben:

Verpackt: *J. Ehlert*

Datenblätter

BEDIENUNGSANLEITUNG ALPHAI X 3000

Inhaltsverzeichnis	Seite
1. Allgemeines	2
2. Hinweise zu den 3 Messverfahren	2
3. Programmierung der Messzeiten / Messintervalle	4
4. Weitere Befehle zur Steuerung des ALPHAI X	4
5. Austausch der Zählrohre	6
6. Austausch der Batterien / Netzanschluss	7
7. Garantie	7
8. Hinweis zum EDV-Auswertungs- u. Analyseprogramm	7
9. Zählrohre	8



1. Allgemeines

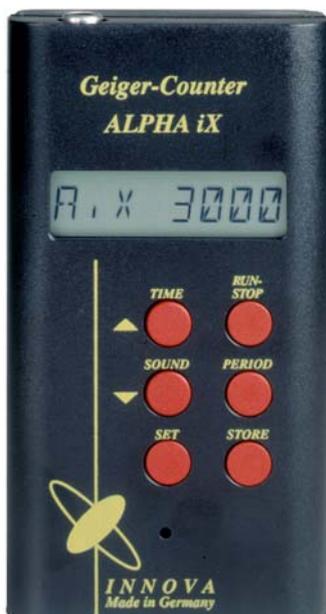
Der ALPHAIX 3000 ist ein mikroprozessorgesteuertes Strahlenmessgerät, also ein programmierbarer Computer mit Speicher. Es können natürlich sofort Messungen durchgeführt werden, ohne vorher das Gerät programmieren zu müssen.

Die wichtigsten Grundfunktionen

- | | |
|------------------------------|--|
| a) Gerät einschalten | Taste RUN/STOP ca. 3 Sek. drücken (Signalton und AiX 3000 in LCD-Fenster) |
| b) Messung starten | noch mal Taste RUN/STOP drücken (ca. 2 Sek. Anzeige der Batteriespannung, dann Anzeige des Messverfahrens) |
| c) Messung abbrechen | Taste RUN/STOP ca. 3 Sek. drücken, dann erscheint STOP auf LCD - Messung abgebrochen - kann mit RUN/STOPP wieder gestartet werden |
| d) Wechsel der Messverfahren | Durch Drücken der Taste SET kann man 3 verschiedene Messverfahren einstellen: <ul style="list-style-type: none"> - Messung Einzel-Impulse, - Messung Minutendurchschnitt, - $\mu\text{Sv/h}$ = Mikro-Sievert pro Stunde Die Auswahl erfolgt nach dem Einschalten oder nach dem STOP (Abbruch). |
| e) Gerät ausschalten | Taste RUN/STOP + SET gleichzeitig drücken |

Damit wissen Sie bereits das Wichtigste. Bitte beachten Sie, dass die Reaktion auf einen Tastendruck etwas verzögert sein kann - Sparschaltung - d.h. die Tasten nicht fest drücken, aber so lange bis Reaktion erfolgt.

2. Hinweise zu den 3 Messverfahren



Die 3 verschiedenen Messverfahren bieten die Möglichkeit, für jeden Untersuchungszweck, den geeigneten Messvorgang zu wählen. Die Einzel-Impuls-Auswertung wurde beibehalten, da es für die Kontaminationsmessungen das übliche Messverfahren ist. Bei dem Messverfahren nach IPM/min. und $\mu\text{Sv/h}$ werden die Messwerte umgerechnet und gespeichert.

Hinweis: Für die Anzeige in μSv muss die richtige Nullrate eingestellt sein > siehe Abschnitt Programmierung.

<p>Anzeige IMPULS</p>	<p>Einzel-Impuls-Zählung mit Anzeige direkt auf der LCD und es ertönt bei jedem Impuls ein Signalton, der sich mit der Taste SOUND an und ausschalten lässt. Nach Ablauf der Messzeit bleibt der Messwert im Anzeigefenster stehen. Für eine neue Messung muss mit der Taste RUN/STOP wieder gestartet werden.</p>
<p>Anzeige lpm</p>	<p>Bei diesem Messverfahren werden die erfassten Impulse sofort auf eine Minute umgerechnet. Die Anzeige des Ein-Minuten-Mittelwertes ist der wichtigste Vergleichswert bei der Strahlenmessung. Die Anzeige erfolgt erst nach Ablauf der Messzeit. Werden z.B. in 10 Minuten 968 Impulse gezählt, erscheint nach 10 Minuten der Wert 96.8/m in der Anzeige - waren es 60 Minuten, dann wird 16.1/m angezeigt. Die Messungen laufen automatisch weiter, so dass jeweils noch 10 Minuten, sofern keine andere Messzeit eingestellt wurde, der neue Messwert in die Anzeige geladen wird. Die letzten 40 Messwerte werden automatisch gespeichert. Aus den gesamten gespeicherten Werten kann noch mal der Mittelwert angezeigt werden, in dem die Taste STORE gedrückt wird - diese Anzeige hat nach dem Querstrich eine /0. Es erfolgen keine akustischen Signale - erst nach Überschreiten einer einstellbaren Warnschwelle.</p>
<p>Anzeige $\mu\text{Sv/h}$</p>	<p>Diese Anzeige ist für Dosisleistungsmessung vorgesehen, die in Sv angezeigt werden. Es handelt sich hierbei ausschließlich um eine Messung der GAMMA-Strahlung, so dass ALPHA- und BETA-Strahlung abzuschirmen sind, in dem man bei den Messungen die Schutzdeckel auf den Zählrohren lässt. Bei diesem Messverfahren ist es wichtig, dass die richtige Nullrate zum eingesetzten Zählrohr programmiert wurde (Taste SET + SOUND). Die Anzeige erfolgt jeweils nach 100 Impulsen, so dass die Zeit die Variable ist und nicht, wie bei den anderen Messverfahren, eingestellt werden kann. Bei 100 lpm ist der Messfehler max. 10 %. Der Messintervall variiert mit der Strahlungsintensität → Lange Messzeit = schwache Strahlung, kurze Messzeit = starke Strahlung. Wie bei dem Messverfahren IPM/m, setzen sich die Messintervalle ständig fort, und es wird jeweils der letzte Messwert angezeigt. Ebenso werden die letzten 40 Messwerte gespeichert, wobei auch hier der Mittelwert (μO) aus den gespeicherten Messwerten, mit der Taste STORE, abgerufen werden kann.</p>

Programmierung der Messzeit / Messintervall

Der ALPHAI X ermöglicht die Einstellung von unterschiedlichen Messzeiten im IMPULS-Mode, bzw. Messintervalle bei den Anzeigen in $\mu\text{Sv/h}$ und lpm. Wie bereits erwähnt, starten bei den Messverfahren $\mu\text{Sv/h}$ und lpm nach Ablauf der vorgegebenen Messzeit die neuen Messintervalle automatisch, wobei der Messwert des abgelaufenen Messintervalls gespeichert wird.

D.h. die Messreihe setzt sich unendlich fort, und es werden jeweils die letzten 40 Messwerte gespeichert werden. Dadurch können Langzeitmessungen mit kleineren Messintervallen gefahren werden, um so viele Zwischenergebnisse abfragen zu können.

Bei dem IMPULS-Mode geht das nicht. Nach Ablauf der eingestellten Messzeit bleibt das Gerät, mit der während der Messzeit erfassten Impulsgesamtsumme in der Anzeige stehen. Man muss manuell erneut starten (Taste RUN), wobei mit dem Start die Anzeige auf null zurückgesetzt wird.

In der Regel wählt man im IMPULS-Mode eine längere Messzeit als bei den Messverfahren ($\mu\text{SV/h} + \text{lpm}$) bei denen eine automatische Messwertspeicherung erfolgt. Um im IMPULS-Mode Zwischenergebnisse abfragen zu können, besteht die Möglichkeit die Zählung anzuhalten ohne diese zu unterbrechen.

Wenn man im IMPULS-Mode gleichzeitig die Tasten RUN/STOP + PERIOD drückt, bleibt die Anzeige stehen. Die Punkte in der Anzeige verschwinden und nur ein pulsierender Punkt zeigt an, dass die Messung im Hintergrund weiterläuft. Drückt man erneut die Tasten RUN/STOP und PERIOD wird die Anzeige wieder aktiviert, d.h. die zwischenzeitlich erfassten Impulse werden in die Anzeige geladen und die Messung wird mit den aktuellen Werten fortgesetzt.

Es können 8 verschiedene Messzeiten/-intervalle eingestellt werden, durch gleichzeitiges Drücken der beiden Tasten SET + PERIOD und der Tasten   :

IMPULS-Mode:	10 Sek.	lpm + $\mu\text{Sv/h}$:	10 Sek.
	1 Min.		1 Min.
	10 Min.		10 Min.
	60 Min.		60 Min.
	100 Min.		100 Min.
	6 Std.		6Std.
	12 Std.		12 Std.
	Unendlich		24 Std.

Die Unterscheidung in der letzten Stufe ergibt sich durch die Tatsache, dass die Messverfahren lpm + $\mu\text{Sv/h}$ ohnehin unendliche laufen. Durch Drücken der beiden Tasten SET + PERIOD erscheint als erstes die aktuelle Messzeit, die blinkt  . Durch die beiden Tasten   kann man die gewünschte Messzeit einstellen. Nach der gewünschten Einstellung ist die Taste SET so lange zu drücken bis die Datumsanzeige erscheint. Dann kann man eine neue Messreihe starten.

Die beiden Tasten   , die identisch sind mit den beiden Tasten TIME + SOUND, werden generell für die Programmierung des ALPHAI X eingesetzt. Eine Programmierung wird immer mit der Taste SET abgeschlossen, d.h. solange betätigen bis die Datumsanzeige erscheint und umgeschaltet werden kann.

3. Weitere Befehle zur Programmierung des ALPHAix 3000

Taste PERIOD

Die Taste PERIOD dient zum Programmieren der Messintervalle. Wenn man direkt nach dem Einschalten PERIOD drückt, erscheint die zu der Zeit eingestellte Messzeit. Wenn man dann gleichzeitig auf die Taste SET drückt, blinkt diese Messzeitanzeige. In dieser Phase kann die Messzeiteinstellung mit den beiden Tasten   verändert werden. Nach der gewünschten Messzeiteinstellung drückt man wieder SET, bis die Zeitanzeige erscheint, dann hat man den Messbereich-Wahlmodus verlassen und man kann mit anderen Funktionen fortfahren.

Bedient man während einer Messung die Taste PERIOD,

- wird erst die bereits abgelaufene Messzeit angezeigt,
- beim 2. Drücken die Gesamtmesszeit die eingestellt wurde,
- und mit dem 3. Drücken wieder zurück zur aktuellen Messwertanzeige.

Am Schluss einer Messreihe wird auf jeden Fall der Messwert in die Anzeige geladen.

Taste STORE

Anzeige **(f0)** ist Durchschnittswert aller gespeicherten Messwerte – max. 40 (arithm. Mittelwert) . Wenn keine zusätzliche Strahlenbelastung vorhanden ist, kann man diesen Wert als Nullrate nehmen, wenn Gesamtmesszeit mindestens 100 Minuten beträgt

Man kann nach dem Drücken von STORE mit den Tasten   die gespeicherten Messwerte durchblättern, wobei am Anfang Datum, Uhrzeit, eingestellte Nullrate und Messzeit, angezeigt wird.

In den Speicher kann man allerdings nur einsehen, wenn keine Messreihe läuft, d.h. vorher mit STOP die Messreihe unterbrechen und dann mit der Taste STORE den Speicher öffnen.

Die Messwerte sind durchnummeriert, wobei der älteste Wert die Nummer 1 hat und der zuletzt gemessene Wert die Nr. 40.

Taste SOUND

der Taste SOUND kann das akustische Impulssignal im IMPULS-Mode aus und eingeschaltet werden. Weiterhin kann mit dieser Taste das Alarmsignal aus- und eingeschaltet werden.

Gleichzeitig SOUND und SET drücken, ermöglicht die Einstellung der Nullrate, und zwar wie übliche mit den beiden Tasten  

Bei Dosismessungen in μSv ist darauf zu achten, dass die richtige Nullrate

des Zählrohres programmiert wurde. Vom Hersteller ist eine Nullrate von 20 lpm vorprogrammiert – das entspricht der Nullrate vom Zählrohr Typ A.

Bei dem Zählrohr B ist die Nullrate 8 lpm, bei dem Zählrohr FSZ 17 lpm und bei dem Zählrohr Typ G ist die Nullrate 28 lpm.

Das ist besonders wichtig, wenn man verschiedene Zählrohre abwechselnd benutzt!

Wenn man in dieser Programmstufe noch mal SET drückt, kann man die Einstellung des Warnsignales (ALARM) ändern, die in der Regel auf das 10-fache der Nullrate eingestellt ist.

Mit den beiden Tasten   kann man das Warnsignal beliebig nach oben (max. 250) und nach unten verändern. Ist die Alarmschwelle auf 0 eingestellt, dann erfolgt kein Alarmsignal.

Zum Abschluss der Einstellungen wieder SET drücken bis Zeitanzeige erscheint.

Taste TIME

Wenn man gleichzeitig TIME und SET drückt, kann man das Datum und die Uhrzeit einstellen, ebenfalls mit den beiden Pfeil-Tasten.

Einmal drücken - Datum einstellen (Tag, Monat, Jahr) jeweils mit den Pfeiltasten

mit SET weiterschalten

dann Uhrzeit einstellen (Stunde, Minute, Sekunde) ebenfalls mit Pfeiltasten und SET

programmieren.

Mit Taste SET weiterschalten bis Uhrzeit erscheint. Dann kann ausgeschaltet oder eine Messung mit Taste START aktiviert werden.

Grundeinstellung

SET +  + 

Diese 3 Tasten drückt man gleichzeitig, Wenn man, aus welchen Gründen auch immer, in die Grundeinstellung zurück will, um so Programmierarbeit zu vermeiden.

Grundeinstellung: - IMPULS-Mode
- 10-Minuten-Messzeit
- 20 Minuten Nullrate
- Alarmstufe ist eingestellt auf 10-fache der Normalstrahlung

4. Austausch der Zählrohre

Der ALPHAI X 3000 ist ein Basisgerät, auf das verschiedene Messsonden (Geiger-Müller-Zählrohre) aufgesteckt werden können. Beim Wechsel der Zählrohre sollte das Gerät ausgeschaltet sein, bzw. vor dem Einschalten sollte das Zählrohr bereits aufgesteckt sein. Nach dem Ausschalten ca. 10 Sec. warten, bevor das Zählrohr entfernt wird. Bei einer falschen Bedienung kann es zu Störungen im Programm kommen und Steuerungstasten sprechen nicht mehr an. In diesem Falle ist die Batterie abzuklemmen und wieder anzuschließen. Das ist wie bei einem Computer bei dem das Programm abgestürzt ist.

Grundsätzlich können an den ALPHAI X alle Messsonden angeschlossen werden, die mit einer Betriebsspannung von 500 Volt arbeiten, da die Nullrate, der Zählrohre, bei dem Gerät eingestellt werden kann. Auf Wunsch können wir spezielle Sonden anfertigen. Lieferzeit und Preise können nur auf Anfrage mitgeteilt werden.

5. Austausch der Batterie/Netzanschlusses

Um die Batterie auszutauschen, muss der Deckel auf der Rückseite des ALPHAI X abgenommen werden, der mit 2 Schrauben befestigt ist. Die 9-Volt-Blockbatterie ist an einem Batterie-Clip befestigt und lässt sich leicht abnehmen und austauschen.

Vor dem Öffnen des Gerätes sollte der ALPHAI X bereits 1 Minute ausgeschaltet sein, damit die Hochspannung sich abgebaut hat.

Der ALPHAI X 3000 arbeitet bis zu einer Mindest-Spannung von 7,5 Volt. Wird diese Spannung unterschritten, erscheint in der Anzeige BATT. Es ist zu empfehlen die Batterie bereits bei einer Spannung unter 8 Volt zu wechseln. Vor einer größeren Reise mit diesem Gerät sollte die Batterie eine Spannung über 9 Volt anzeigen. In der Regel kann eine Batterie, je nach Qualität, mehrere Wochen Dauerbetrieb durchhalten.

Grundsätzlich ist es möglich, den ALPHAI X auch an Netz anzuschließen. Hierzu ist der Batterieclip nach außen zu legen. Bei den neueren Geräten wurde hierzu ein kleiner Schlitz an der Seite des Gehäuses angebracht. Mit einem Adapter zwischen ALPHAI X und dem Netz, ist die Spannung von 220/240 Volt auf 9 max. 10 Volt einzustellen. Diese Einstellung muss aber auch der tatsächlichen Spannung entsprechen - das ist keineswegs bei allen Adaptern der Fall. Wenn eine zu hohe Spannung übertragen wird, gibt es nicht nur falsche Messung, sondern auch das Gerät kann Schaden nehmen.

6. Garantie

Grundsätzlich gewähren wir auf den ALPHAI X ein Garantie von 24 Monaten. Voraussetzung ist allerdings eine sachgerechte Behandlung, wie dies bei elektronischen Messgeräten u. Computern üblich ist. Bei Eingriffen in das Gerät entfällt die Garantie, Reparaturen werden nur von Hersteller durchgeführt.

Das gilt auch für die verschiedenen Aufstecksonden (Geiger-Müller-Zählrohre). Bei den Endfensterzählrohren ist darauf zu achten, dass die Endfenstermembranen nicht berührt werden, auch nicht mit Wasser oder Dampf. Eine Beschädigung der Membranen entspricht einem Total-schaden der Messsonde.

Für den Transport und für größere Reisen empfehlen wir den schlagfesten Kunststoffkoffer in unserem Angebot.

7. Hinweis zum EDV-Auswertung- und Analyseprogramm

Bei der aktuellen Version ALPHAI X 3000 ist eine Übertragung der Messdaten auf einen PC möglich. Der ALPHAI X 3000 hat einen eingebauten Schnittstellenchip. Auch die vom ALPHAI X unterwegs gespeicherten Daten (40 Messwerte) können nachträglich auf einen PC übertragen werden.

Der Lieferumfang für das Auswertungs- und Analyseprogramm beschränkt sich auf die Programm- diskette mit Anleitung und einer speziellen Verbindungslitze zwischen ALPHAI X und dem PC (Com1/Com2).

Es kann sein, dass es bei 64 Bit-PC und neuen Betriebssystemen Probleme auftreten können.

8. Zählrohre (Mess-Sonden)

Zurzeit stehen serienmäßig 5 Messsonden zur Verfügung, die an den ALPHAIx angeschlossen werden können

Zählrohr Typ A

Endfensterzählrohr für ALPHA-, BETA- und GAMMA-Strahlung. Diese Version wird vorwiegend im Bereich techn. Lehrmittel (Physik/Chemie) eingesetzt.

Zählrohr Typ G

Endfensterzählrohr für ALPHA-, BETA- und GAMMA-Strahlung. Dieses Zählrohr wurde für den Laborbedarf konzipiert und ist durch das größere Endfenster etwa 5 mal empfindlicher als das Zählrohr Typ A.

Zählrohr Typ B

Eine Tauchsonde zur Messung von BETA- und GAMMA-Strahlung. Neben Oberflächenmessungen besonders gut als Tauchsonde in Schüttgut und Flüssigkeiten geeignet.

Zählrohr Typ FSZ

Eine Tauchsonde zur Messung von BETA- und GAMMA-Strahlung - größerer Ausführung von der Sonden B. Die festverbundene Litze (1 m) ist wasserdicht, so dass auch Messungen bis 1 m unter Wasser möglich sind. Dieses Zählrohr als Tauchzählrohr, ist mit Abstand das leistungsfähigste Zählrohr.

Zählrohr Typ D

Zählrohr zur Messung von GAMMA-Strahlung. Bevorzugt nur zu Dosismessung. Dieses Zählrohr wird in der Regel als Sonderanfertigung (wegen der Litzenlänge) geliefert.

Für die Zählrohre (Sonden) A, B, G und FSZ gibt es jeweils separate Bedienungsanleitungen.



7313 Pancake Mica Window-Alpha-Beta-Gamma Detector***GENERAL SPECIFICATIONS***

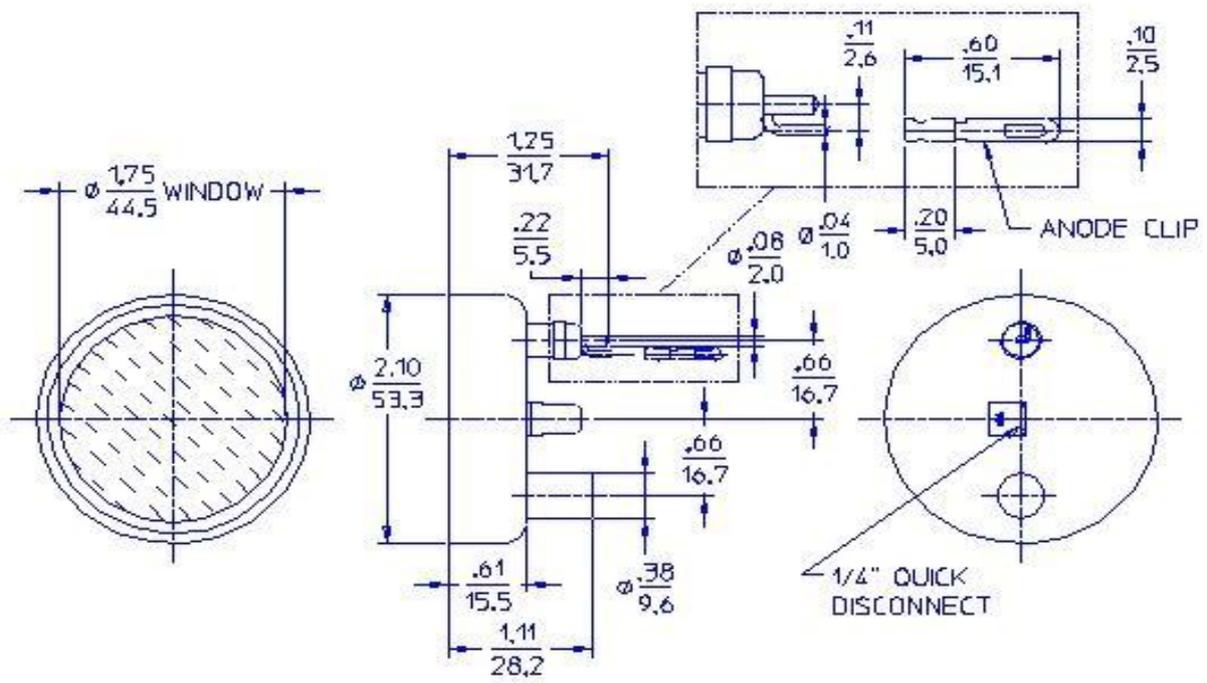
Gas filling	Ne +Halogen
Cathode material	446 Stainless Steel
Maximum length (inch/mm)	1.25/31.7
Effective depth (inch/mm)	0.5/12.7
Maximum diameter (inch/mm)	2.10/53.1
Effective diameter (inch/mm)	1.75/44.5
Connector	Pin
Operating temperature range °C	-40 to +75

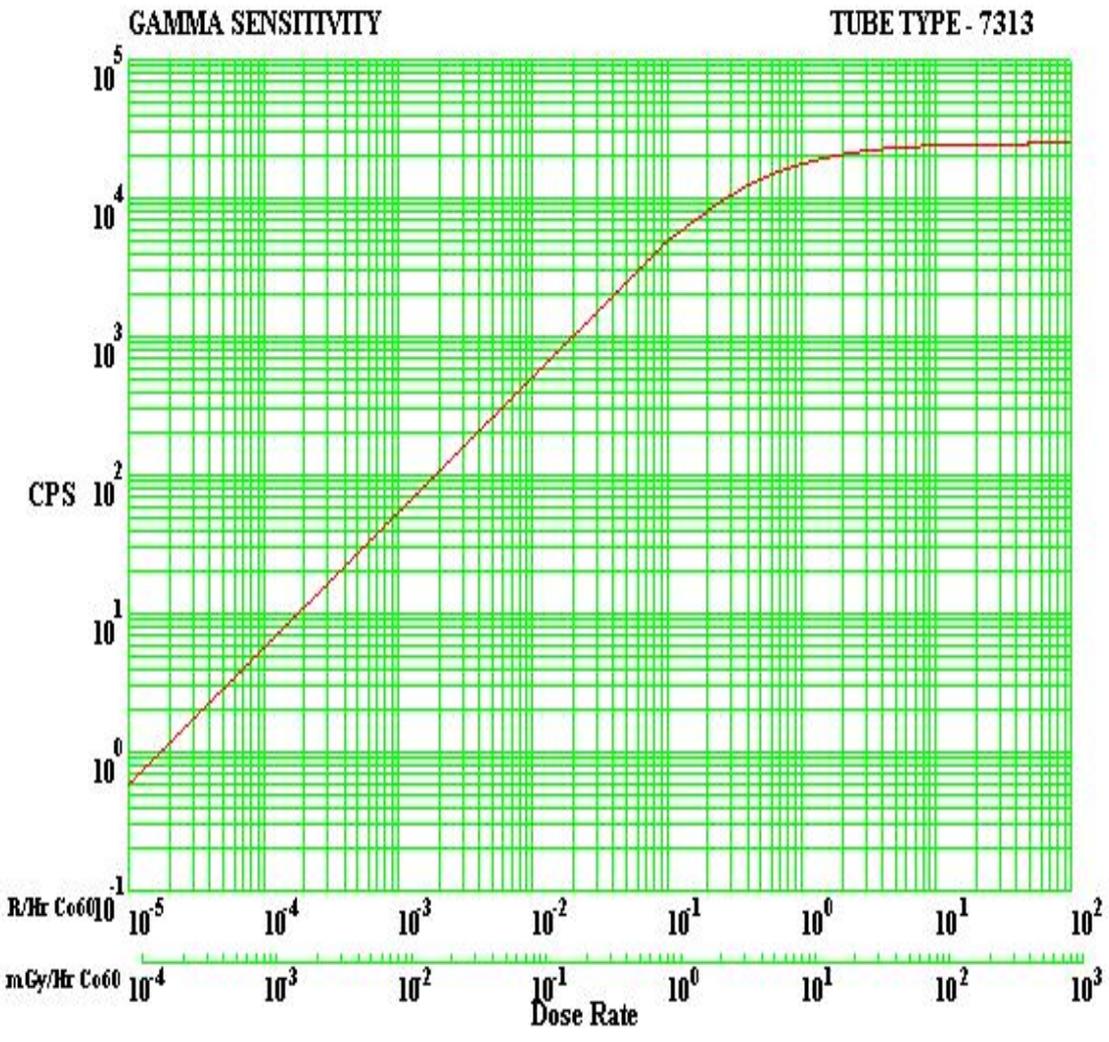
WINDOW SPECIFICATIONS

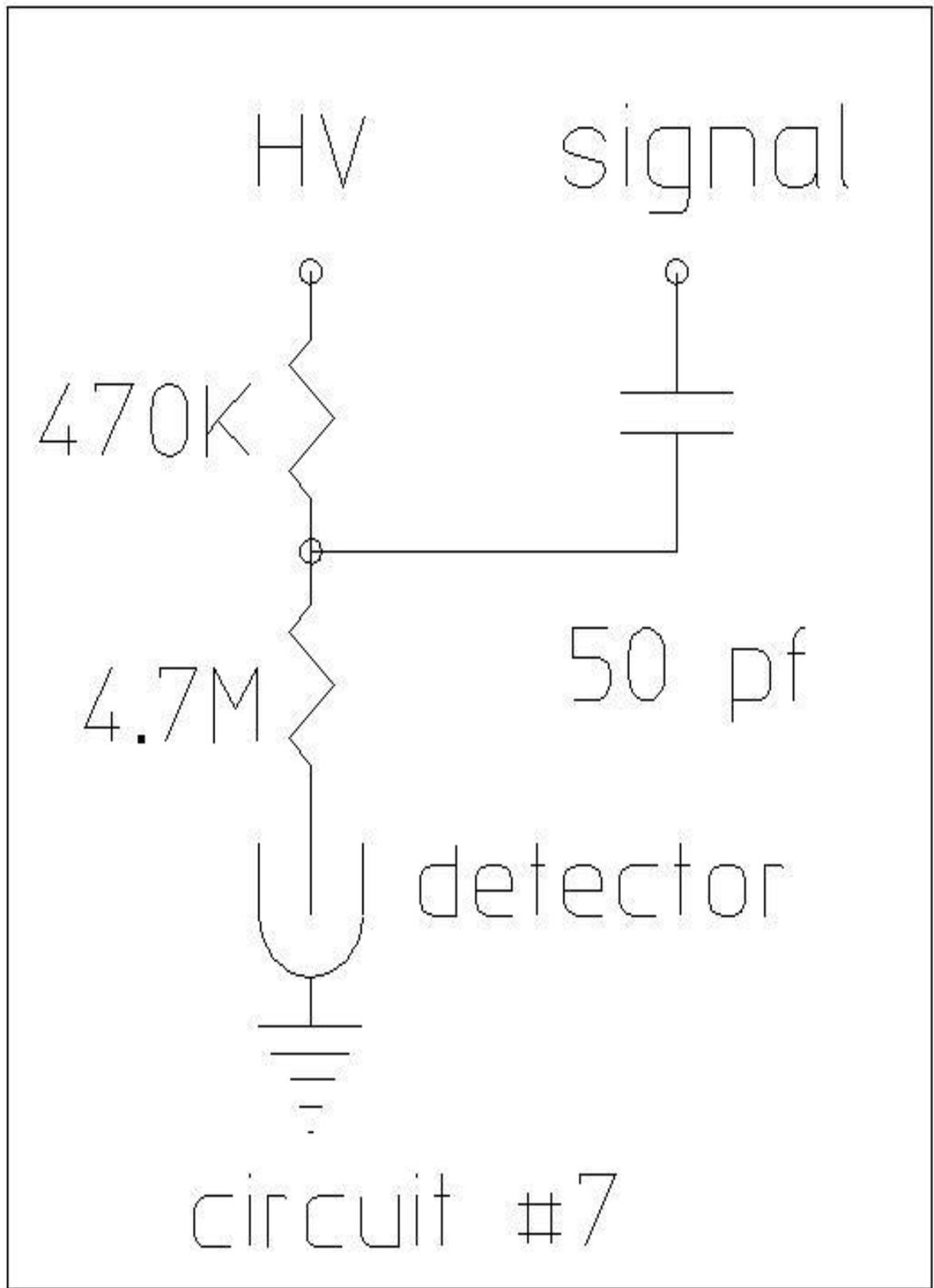
Areal density (mg/cm ²)	1.5-2.0
Effective diameter (inch/mm)	1.75/44.5
Material	Mica

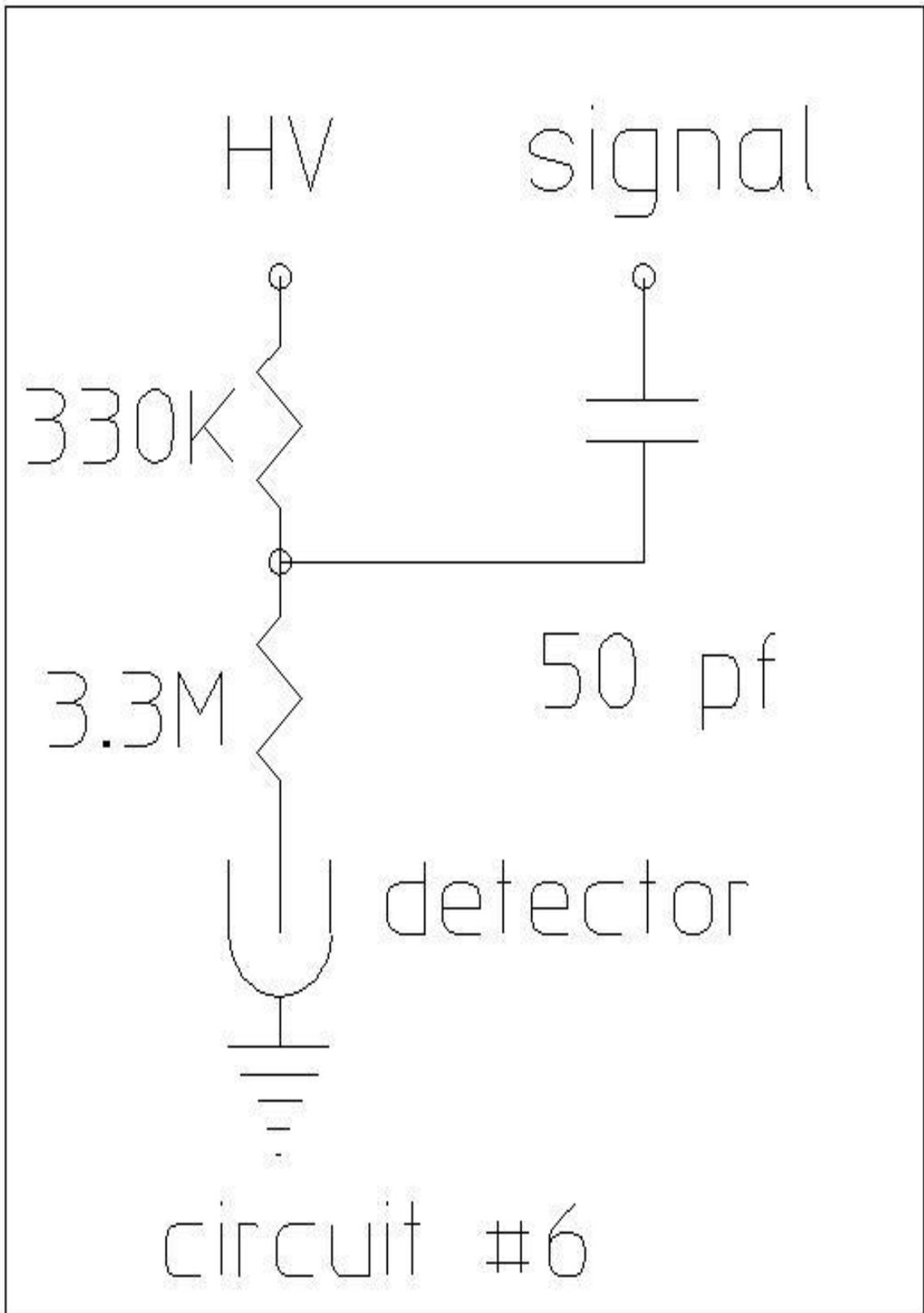
ELECTRICAL SPECIFICATIONS

Recommended anode resistor (meg ohm)	4.7
Maximum starting voltage (volts)	425
Recommended operating voltage (volts)	500
Operating voltage range (volts)	475-675
Maximum plateau slope (%/100 volts)	10
Minimum dead time (micro sec)	40
Gamma sensitivity Co60 (cps/mr/hr)	60
Tube capacitance (pf)	3
Weight (grams)	125
Maximum background shielded 50mm Pb + 3mm Al (cpm)	30
Minimum anode resistor (meg ohm)	3.3











Technical Data Sheet



TC-TUNGSTEN COMPOUNDS
environment-friendly heavy liquids

Sodium Polytungstate (SPT-x)

Revision date: 08.08.2018

Version: 01/2016 EN

General information

Substance name:	Hexasodium tungstate hydrate
Formula:	$\text{Na}_6[\text{H}_2\text{W}_{12}\text{O}_{40}]$
Molecular weight:	2986,13 g/mol
CAS-No.:	12141-67-2, 12333-13-0
REACH-Reg.-No.:	01-2120061128-61-0000
EC-No.:	412-770-9
Synonyms:	Sodium polytungstate hydrate, Natriummetawolframhydrate, Natriummetawolframat, Natriumpolywolframhydrat, Sodium metatungstate hydrate, SPT
Application:	SPT is used to prepare a heavy liquid for analytical purposes e.g. density separation (sink-swim analysis, density gradient centrifugation)

Modifications

Order number	Product name and form	Remarks
SPT-0:	Sodium polytungstate powder p.a.	High-purity, especially very poor in carbon and nitrogen
SPT-1:	Sodium polytungstate powder	99,9%
SPT-2:	Sodium polytungstate granules	99,9%, less dustiness
SPT-3:	Sodium polytungstate solution	Ready-to-use, density: $2,82 \text{ g/cm}^3 \pm 0,02 \text{ g/cm}^3$, Other densities available up to $3,05 \text{ g/cm}^3$
SPT-4:	Sodium polytungstate/tungstate carbide suspension	For higher densities e.g. $3,2 \text{ g/cm}^3$ to $4,4 \text{ g/cm}^3$
SPT-5:	Sodium polytungstate solution	Stabilized solution for metallic assays, Density: $2,82 \text{ g/cm}^3$, other densities available

Appearance

SPT-0, SPT-1, SPT-2:	Crystalline different grain size
SPT-3:	Highly transparent light yellow-greenish liquid
SPT-4:	Non transparent, black solution
SPT-5:	Highly transparent, light colored solution (depends on stabilizer)

Properties

Viscosity (mPa·s):	1 - 60	depends on density
Density (g/cm ³):	1,10 - 3,06	depends on preparation
pH-value:	≈ 3	solution with $2,82 \text{ g/cm}^3$ at 20°C
Grain size (mm):	< 2	SPT0, SPT1, undefined for SPT2
Transparency (NTU):	< 10	Nephelometric Turbidity Unit, solution with $2,82 \text{ g/cm}^3$
Further properties:		Non-toxic, odourless, non-flammable, reusable, non-photosensitive, highly transparent, no hazardous material regarding transportation and storage

Analytical information (without guarantee)

WO ₃ (%):	> 85	
N (ppm):	undefined	in case of SPT0 < 200
C (ppm):	undefined	in case of SPT0 < 200
Al (ppm):	< 15	
As (ppm):	< 10	
Cu (ppm):	< 10	
Fe (ppm):	< 50	
Mo (ppm):	< 50	
Si (ppm):	< 50	
Ti (ppm):	< 10	

Storage and shelf life

SPT-0, SPT-1, SPT-2:	5 years in the original, well-closed bottle at room temperature.
SPT-3, SPT-4, SPT-5:	1 years in the original, well-closed bottle at room temperature. In case of cloudiness or flocculation please contact manufacturer.

Technical Data Sheet



TC-TUNGSTEN COMPOUNDS
environment-friendly heavy liquids

Sodium Polytungstate (SPT-x)

Revision date: 08.08.2018

Version: 01/2016 EN

Delivery form

SPT-0, SPT-1, SPT-2: 1 kg, 5 kg, 10 kg and 25 kg	HDPE bottle, transparent
SPT-3, SPT-4, SPT-5: 1 kg, 5 kg, 10 kg and 25 kg	HDPE bottle, transparent

Instruction and notes

In order to prepare a heavy liquid solution the sodium polytungstate salt (SPT0, SPT1, SPT2) has to be dissolved in deionized water (ultrasonic bath possible). The more is dissolved the higher will be the density (checking by an aerometer). The maximum attainable density of an aqueous solution is 3.1 g/cm^3 at room temperature. The density is also adjustable by adding water (decreasing the density) or putting an open beaker (preferred big surface) in a compartment drier at max. 70°C (increasing the density). This adjusted solution allows separating fine granules, particles or solids by density (flotation and sedimentation). The use of a laboratory centrifuge will speed up the separation process.

The following points should be observed when using aqueous polytungstate solutions:

- Use only distilled or deionized water.
- Use only containers or bottles made from glass, synthetic materials or stainless steel.
- Do not bring the solution in contact with reduced substances. However, the resultant blue colour will not affect the density in any way. The colour can be removed by adding few drops of oxidizing agent (e.g. hydrogen peroxide). In case of metallic assays use SPT5.
- Samples that should be separated should not contain any water-soluble ions. If these ions are present they must be washed with hot deionized water before adding to the heavy liquid.
- In case of using SPT4 stir well before using.
- The pH value of the solution depends on the density. A solution with a density of 3.0 g/cm^3 typically has a pH value of around 3. The solution has long-term stability at this pH value (several years). Each SPT solution must therefore be stored at a pH value of 3. The pH value can quickly be changed e.g. to a pH of 7 by adding e.g. NaOH. After completion of the test at the increased pH value, the solution should generally be reduced again to a pH of 3 using e.g. a few drops of HCl.

Cleaning and disposal

Take up mechanically and avoid dust formation (e.g. use wet tissue). Fill into labelled, sealable containers. All contaminated equipment can be easily washed with water. Do not empty into drain. In case of disposal of unused material or questions regarding recycling: please contact manufacturer.

Safety advice

Observe the Material Safety Data Sheet.

Det 2
QUALITY ASSURANCE DATA SHEET

BENNO

**GMX Series HPGe GAMMA-X HPGE
 (High-Purity Germanium) Coaxial Photon Detector System**

Model and Serial Numbers

Detector Model No. GMX-30200-P
 Cryostat Configuration PopTop
 Dewar Model _____
 Preamplifier Model 237N
 Preamplifier S/N #613
 H. V. Filter Model 138
 H. V. Filter S/N #7993

Important Reference Data

Ship Date 10-12-94
 Serial No. 34-TN20508A

When calling Customer Service, always reference this Detector Serial No.

*bedeutet p-Typ
 Quatsch!
 ist ein n-type!*

Cryogenic Information

Dewar Capacity _____ Static Holding Time _____ Detector Cool-Down Time 8 HRS.

Dimensions

Crystal Diameter 59.9 mm
 Crystal Length 53.5 mm
 End Cap to Crystal 4 mm
 Total Active Volume _____ cc

Absorbing Layers

Beryllium 0.5 mm
 Aluminum _____ mm
 Inactive Germanium 0.3 ~~mm~~ ^{µm}

High Voltage Bias

Recommended Operation Bias, NEGATIVE 2500 V

Performance Specifications*

	Warranted	Measured	Amplifier Time Constant
Resolution (FWHM) at 1.33 MeV, ⁶⁰ Co	<u>2.00</u> keV	<u>1.84</u> keV	<u>6</u> us
Peak-to-Compton Ratio, ⁶⁰ Co	<u>48</u>	<u>58.2</u>	<u>6</u> us
Relative Efficiency at 1.33 MeV, ⁶⁰ Co	<u>30</u> %	<u>33.1</u> %	<u>6</u> us
Peak Shape (FWTM/FWHM), ⁶⁰ Co	<u>1.98</u>	<u>1.85</u>	<u>6</u> us
Peak Shape (FWFM/FWHM), ⁶⁰ Co	<u>2.90</u>	<u>2.44</u>	<u>6</u> us
Resolution (FWHM) at 122 keV, ⁵⁷ Co	— eV	— eV	
Resolution (FWHM) at 5.9 keV, ⁵⁵ Fe	<u>840</u> eV	<u>792</u> eV	

Other Capsule NOCA# 3033
Cryo PV-1 #3600

Data Certified By Gplanagar Date 10-12-94

*Measured at a nominal rate of 1000 counts/s unless otherwise specified.

Det 3
Marie

QUALITY ASSURANCE DATA SHEET

GEM Series HPGe (High-Purity Germanium) Coaxial Detector System

Model and Serial Numbers

Detector Model No. GEM 40200-P
Cryostat Configuration Pop Top
Dewar Model -

Important Reference Data

Ship Date 7-17-90
Serial No. 29-TP20009B

When calling Customer Service, always refer-
ence this Detector Serial No.

Cryogenic Information

Dewar Capacity - Static Holding Time - Detector Cool-Down Time 8 hours

Dimensions

Crystal Diameter 62 mm Absorbing Layers
Crystal Length 75 mm Aluminum 1.0 mm
End Cap to Crystal 3 mm Inactive Germanium 0.7 mm
Total Active Volume - cc

Vol: 226 cm³

High Voltage Bias

Recommended Operating Bias, POSITIVE 4000 V

Performance Specifications*

	Warranted	Measured	Amplifier Time Constant	
Resolution (FWHM) at 1.33 MeV, ⁶⁰ Co	<u>2.00</u> keV	<u>1.87</u> keV	<u>6</u> μs	<u>1.92</u> ✓
Peak-to-Compton Ratio, ⁶⁰ Co	<u>60:1</u>	<u>64.9</u>	<u>6</u> μs	
Relative Efficiency at 1.33 MeV, ⁶⁰ Co	<u>40</u> %	<u>40.3</u> %	<u>6</u> μs	<u>40.2</u> ✓
Peak Shape (FWTM/FWHM), ⁶⁰ Co	<u>1.95</u>	<u>1.85</u>	<u>6</u> μs	<u>1.89</u> ✓
Peak Shape (FWFM/FWHM), ⁶⁰ Co	<u>2.80</u>	<u>2.42</u>	<u>6</u> μs	<u>2.60</u> ✓
Resolution (FWHM) at 122 keV, ⁵⁷ Co	<u>950</u> eV	<u>891</u> eV		
Other	<u>capsule CA # 1700</u>			
	<u>cup PV-1 # 1429</u>			

Data Certified By Debbie Barker Date 7-17-90

*Measured at a nominal rate of 1000 counts/s unless otherwise specified.

Det 4

DETECTOR SPECIFICATION AND PERFORMANCE DATA

Specifications

Live

Detector Model GR2818 Serial number b 95691
 Cryostat Model 7500SL
 Preamplifier Model 2002CSL

The purchase specifications and therefore the warranted performance of this detector are as follows :

Nominal volume cc Relative efficiency 28 %
 Resolution 1.8 keV (FWHM) at 1.33 MeV
 keV (FWTM) at 1.33 MeV
 .920 keV (FWHM) at 122 keV
 keV (FWTM) at
 Peak/Compton 60:1 Cryostat well diameter Well depth mm
 Cryostat description or Drawing Number if special Vertical Dipstick, type 7500SL (Carbon epoxy window)

Physical Characteristics

Geometry Coaxial one open end, closed end facing window
 Diameter 53 mm Active volume cc
 Length 59.5 mm Crystal well depth mm
 Distance from window (outside) 5 mm Crystal well diameter mm

Electrical Characteristics

Depletion voltage (-4500 Vdc
 Recommended bias voltage Vdc (-5000 Vdc
 Leakage current at recommended bias 0.01 nA
 Preamplifier test point voltage at recommended voltage -1.0 Vdc

Resolution and Efficiency

With amp time constant of 4 μ s

Isotope	⁵⁷ Co	⁶⁰ Co			
Energy (keV)	122	1332			
FWHM (keV)	.918	1.76			
FWTM (keV)		3.28			
Peak/Compton		62.9:1			
Rel. Efficiency		28.3%			

- Test are performed following IEEE standard test ANSI/IEEE std325-1986
- Standard Canberra electronics used - See Germanium detector manual Section 7

Tested by :  Date : April 3, 1997

Approved by :  Date : April 3, 1997

Docum : GDAME001	Date : 05/12/96
Issue : Spec. Sheet GC	Name : PVE
Revue : C	Page : 1/1
Basis : 0.W001PVE.15	Appr :

Det 5

DETECTOR SPECIFICATION AND PERFORMANCE DATA

Jenö

Specifications

Detector Model GL2820R
Cryostat Model 7500SL-RDC-6
Preamplifier Model 2002CPSL

Serial number b 97611

The purchase specifications and therefore the warranted performance of this detector are as follows :

Energy	5.9 keV	122 keV	59.5 keV
Resolution eV(FWHM)		750	660

Cryostat description or Drawing Number if special Vertical dipstick, type 7500SL-RDC-6

Physical Characteristics

Active Diameter 60 mm Distance from window (outside) 5 mm
 Active Area 2800 mm² Window thickness 0.5 mm
 Thickness 20 mm Window material Carbon Epoxy
 Vol 56 cm³

Electrical Characteristics

Depletion voltage (-)2000 Vdc
 Recommended bias voltage Vdc (-)3000 Vdc
 Reset rate at recommended bias / sec (PO preamp only)
 Preamplifier test point voltage at recommended bias +0.5 Vdc (RC preamp only)

Resolution and Efficiency

With amp time constant of 4 μs

Isotope	⁵⁵ Fe	241Am	⁵⁷ Co		
Energy (keV)	5.9	59.5	122		
FWHM (eV)	352	530	739		
FWTM (eV)		970	1389		

- Test are performed following IEEE standard test ANSI/IEEE std325-1996
- Standard Canberra electronics used - See Germanium detector manual Section 7

Tested by : 

Date : October 25, 1999

Approved by : 

Date : October 25, 1999

Docum : GDAME003	Date : 02/02/99
Issue : Spec. Sheet GL	Name : PVE
Revue : D	Page : 1/1
Basis : 0.W001PVE.15	Appr :

Det 6

DETECTOR SPECIFICATION AND PERFORMANCE DATA

Josef

Specifications

Detector Model GX3018 Serial number b 99154
 Cryostat Model 7500SL-RDC-6
 Preamplifier Model 2002CSL

The purchase specifications and therefore the warranted performance of this detector are as follows :

Nominal volume cc Relative efficiency 30 %
 Resolution 1.8 keV (FWHM) at 1.33 MeV
 keV (FWTM) at 1.33 MeV
.875 keV (FWHM) at 122 keV
 keV (FWTM) at
 Peak/Compton 58:1 Cryostat well diameter Well depth mm
 Cryostat description or Drawing Number if special Vertical Dipstick, type 7500SL-RDC-6

Physical Characteristics

Geometry Coaxial one open end, closed end facing window
 Diameter 60 mm Active volume cc
 Length 53.5 mm Crystal well depth mm
 Distance from window (outside) 5 mm Crystal well diameter mm

Electrical Characteristics

Depletion voltage (+)4000 Vdc
 Recommended bias voltage Vdc (+)4500 Vdc
 Leakage current at recommended bias 0.03 nA
 Preamplifier test point voltage at recommended voltage -1.4 Vdc

Resolution and Efficiency

With amp time constant of 4 μ s

Isotope	⁵⁷ Co	⁶⁰ Co			
Energy (keV)	122	1332			
FWHM (keV)	.852	1.78			
FWTM (keV)		3.32			
Peak/Compton		64.3:1			
Rel. Efficiency		35.0%			

- Test are performed following IEEE standard test ANSI/IEEE std325-1996
- Standard Canberra electronics used - See Germanium detector manual Section 7

Tested by :

Date : October 25, 1999

Approved by :

Date : October 25, 1999

Docum : GDAME001	Date : 02/02/99
Issue : Spec. Sheet GC	Name : PVE
Revue : D	Page : 1/1
Basis : 0.W001PVE.15	Appr :



Wir haben diesen Boden uns erschaffen
durch unsrer Hände Fleiß, den alten Wald,
der sonst der Bären Wohnung war,
zu einem Sitz für Menschen umgewandelt.
Die Brut des Drachen haben wir getötet,
der aus den Sümpfen giftgeschwollen stieg.
Die Nebeldecke haben wir zerrissen,
die ewig grau um diese Wildnis hing,
den harten Fels gesprengt, über den Abgrund
dem Wandersmann den sichern Steg geleitet.
Unser ist durch tausendjährigen Besitz der Boden.

Friedrich Schiller, Weimar, Feb. 1804

Gewesen, doch nun liegt er da.
Durch Drachenbrut vergiftet.
Dem Wandersmann wird Angst und Bang,
wie er im dichten Nebel wandelt.
Im Ohre hört er schon des Bären Groll'n.
Der Wolf, im jungen Wald sich richtet.
und denkt: Was für ein schöner Ort.

Wolfgang Schulz, Tschernobył, Okt. 2016

Bild: Georg Steinhauser, Tschernobył 2016