

**Strontium-90 in der Umwelt:
Migrationsverhalten im Boden,
Transfer in die Nahrungskette und
Strahlenexposition in der nördlichen
Ukraine**

Vom Fachbereich Chemie der Universität Hannover

zur Erlangung des Grades

Doktor der Naturwissenschaften

Dr. rer. nat.

genehmigte Dissertation

von

Dipl. Ing. Arne Mewis

geboren am 07.06.1975 in Kiel

2004

Referent: Prof. Dr. G. Wunsch

Korreferent: Prof. Dr. R. Michel

Tag der Promotion: 16.06.2004

Zusammenfassung

Aufgabe dieser Arbeit war es, einen Überblick über das weltweite Vorkommen des radioaktiven Isotopes ^{90}Sr zu schaffen, sein Migrationsverhalten im Boden zu untersuchen und eine Abschätzung der Folgedosis für Personen in der nördlichen Ukraine liefern zu können. Hierzu wurden Boden- und Lebensmittelproben aus Niedersachsen und der Ukraine untersucht.

Gefundene Depositionsdichten des ^{90}Sr in niedersächsischen Böden von ca. 1000 Bq m^{-2} sind typisch für die aus dem Fallout der Kernwaffentests emittierten und in der gemäßigten Zone der nördlichen Halbkugel deponierten flächenbezogenen Aktivität. Durch einen Vergleich der Tiefenverläufe der niedersächsischen Böden mit Bodenparametern ist eine Interpretation des Migrationsverhaltens von ^{90}Sr möglich. Es hat sich gezeigt, dass die Verteilung von ^{90}Sr von folgenden Parametern abhängt: Durchwurzelung, Tongehalt sowie dem Vorhandensein von Stau- und Grundwasser.

Die untersuchten Bodenproben aus der nördlichen Ukraine weisen um den Faktor 3 (Zone 3) bis zu Faktor 30 (Zone 2) höhere Depositionsdichten auf als die niedersächsischen Böden, bedingt durch den Tschernobylunfall. Um eine mögliche Wiederbesiedlung der offiziell evakuierten Zone 2 diskutieren zu können, muss eine Abschätzung der Strahlenexposition der Bevölkerung erfolgen. Dies geschieht für das ^{90}Sr durch Modellierung der Ingestion mit Hilfe von spezifischen Aktivitäten in Lebensmitteln und von Verzehrsgewohnheiten in der Zone 2 lebender Menschen. Die Summe der Strahlenexposition durch ^{90}Sr und ^{137}Cs wird nach dieser Arbeit auf knapp über 1 mSv a^{-1} abgeschätzt, wobei ein Drittel der Exposition durch die Ingestion von ^{90}Sr erfolgt. Der Hauptanteil wird dabei von dem Grundnahrungsmittel Kartoffel bewirkt. Das Ergebnis verdeutlicht, dass bei der Frage der Wiederbesiedlung die Exposition durch ^{90}Sr mit einzubeziehen ist. Wegen der Überschreitung des Grenzwertes der zusätzlichen jährlichen effektiven Dosis für die Bevölkerung für Anlagen und Einrichtungen von 1 mSv kann eine Wiederbesiedlung der Zone 2 nicht empfohlen werden.

Zusätzlich zu diesem Ergebnis wurde mit Hilfe einer Monte-Carlo-Simulation die Verteilung der Strahlenexposition für die Bevölkerung der Zone 2 simuliert. Die Simulation ergibt eine logarithmische Normalverteilung mit einem Erwartungswert von $0,6 \text{ mSv a}^{-1}$ (geometr. StadAbw. 1,8). Über 10 % der Bewohner der Zone 2 erhalten nach dieser Verteilung allein durch ^{90}Sr eine zusätzliche Dosis von mehr als 1 mSv im Jahr. Die Betrachtung der Verteilung zeigt, dass eine Einbeziehung von Verteilungen grundsätzlich sinnvoll und notwendig ist, da sonst bei Verwendung eines Punktschätzers die Strahlenexposition für einen Großteil der Bevölkerung unterschätzt werden könnte.

Schlagworte

Strontium-90, Boden, Migration, Transfer, Dosismodellierung, Strahlenexposition, Tschernobyl, Qualitätssicherung, Monte-Carlo-Simulation, Ukraine

Abstract

The Task of this work was to produce an overview of the world-wide occurrence of the radioactive isotope ^{90}Sr , to examine its migration behavior in soil and to provide an estimation of radiation exposure of people living in the northern Ukraine. For this purposes soil samples of Lower Saxony and food samples from Ukraine were examined.

Deposition densities of ^{90}Sr from nuclear weapons tests found in soils of Lower Saxony of approx. 1000 Bq m^{-2} are typical for deposited surface-related activity, in the moderate zone of the northern hemisphere. An interpretation of the migration behavior of ^{90}Sr is possible by comparison of the depth profiles of the soils from Lower Saxony with soil parameters. It is shown that the distribution of ^{90}Sr depends on the following parameters: root penetration, clay content and the presence of back- and groundwaters.

As a consequence of the Chernobyl accident the examined soil samples from the northern Ukraine show 3 times higher deposition densities for zone 3 and 30 times higher deposition densities for zone 2 than the soils of Lower Saxony. In order to discuss a possible resettlement of the officially evacuated zone 2 it is necessary to estimate the possible radiation exposure of the population. This can be achieved by calculating the ingestion dose of people living in zone 2 from the activity concentrations in food items and consumption rates. The sum of the radiation exposure from ^{90}Sr and ^{137}Cs is estimated to a little over 1 mSv a^{-1} , with one third of the exposure resulting from the ingestion of ^{90}Sr . The main part is caused by the basic food potato. The result demonstrates that the exposure from ^{90}Sr has to be included in considerations of resettlement. As the limit value of the additional annual effective dose for the population of 1 mSv is exceeded, resettlement of zone 2 can not be recommended.

Additionally to this result, the distribution of the radiation exposure of the population in zone 2 was simulated with help of a Monte-Carlo-simulation. The simulation results in a logarithmic-normal distribution with an expectation value of 0.6 mSv a^{-1} (geometr. standard deviation 1.8). According to this distribution, more than 10 % of the inhabitants from zone 2 receive more than 1 mSv per year exclusively from ^{90}Sr . The exercise of the dose distribution shows that this method is principally meaningful and necessary, as radiation exposures for a majority of the population could be underestimated when using a point estimator.

keywords

Strontium-90, soil, migration, transfer, dose modelling, radiation exposure, Chernobyl, quality assurance, Monte-Carlo-simulation, Ukraine

Inhaltsverzeichnis

1	Grundlagen	1
1.1	Einführung	1
1.2	Betazerfall	3
1.2.1	Säkulares Gleichgewicht	5
1.3	Exposition des Menschen	6
1.3.1	Natürliche Strahlenexposition	8
1.3.2	Zivilisatorische Strahlenexposition	9
1.3.3	Die Expositionspfade des ⁹⁰ Sr	9
1.4	⁹⁰ Sr Quellen	10
1.4.1	Natürlicher Anteil	10
1.4.2	Nicht natürlicher Anteil	10
1.5	Tschernobyl - der größte Unfall in der friedlichen Nutzung der Kernenergie .	15
1.5.1	Der Reaktortyp	15
1.5.2	Ablauf	18
1.5.3	Freisetzung von Nukliden	21
1.5.4	Gegenmaßnahmen vor Ort	24
1.5.5	Maßnahmen zum Schutz der Bevölkerung	24
1.5.6	Personengruppen	26
1.5.7	Atmosphärischer Transport und Fallout	31
1.5.8	Der Sarkophag	33
1.5.9	Die Situation heute	35
1.5.10	Geheimhaltungspolitik und Presseberichte	36
1.5.11	Zusammenfassung des Reaktorunfalls	37
1.6	Deposition auf der Erde	38

1.6.1	Oberirdische Kernwaffentests	38
1.6.2	Lokale Schwankungen	40
1.7	Bodenkunde	42
1.7.1	Korngrößen	42
1.7.2	Bodenarten	43
1.7.3	Sand-, Ton- und Lehmböden	45
1.7.4	Horizontabkürzungen	46
1.7.5	Bödentypen	46
1.7.6	Calcium im Boden	48
1.7.7	Migration	48
2	Mögliche Methoden	54
2.1	Probenvorbereitung	55
2.2	Trennverfahren	56
2.3	Ausbeutebestimmung	58
2.4	Radiometrische Messmethoden	58
2.5	Massenspektrometrische Messmethoden	59
3	Aufgabenstellung	60
4	Experimentelles	62
4.1	Übersicht	62
4.2	Probennahme	62
4.2.1	Niedersachsen	62
4.2.2	Ukraine	63
4.3	Probenvorbereitung und Aufschluss	65
4.4	Trennungsgang	67
4.5	Anpassung und Versuch der Optimierung	70
4.6	Flüssigszintillationsmessungen	72
4.6.1	Prinzip	72
4.6.2	Quenching	75
4.6.3	Chemolumineszenz	78
4.6.4	Aufbau	78
4.7	Auswertung	80
4.7.1	Aktivitätsbestimmung mittels LSC	80

4.7.2	Ausbeute	81
4.7.3	⁹⁰ Sr-Aktivität	82
4.8	Nachweis- und Erkennungsgrenze	85
4.8.1	Festlegung der Erkennungsgrenze	86
4.8.2	Festlegung der Nachweisgrenze	87
4.9	Qualitätssicherung	88
4.9.1	Phase 1	89
4.9.2	Phase 2	90
4.9.3	Phase 3	92
4.9.4	Phase 4	95
5	Auswertung niedersächsischer Böden	97
5.1	Tiefenprofile	97
5.1.1	Weide Vestrup	99
5.1.2	Rasen Ricklingen	99
5.1.3	Laubwald Eilenriede	100
5.1.4	Acker Twenge	100
5.1.5	Acker Adenstedt	101
5.1.6	Acker Groß Lobke	101
5.2	Bestimmung der Depositionsdichte	101
5.3	Co-Adsorptive	103
5.4	Diskussion	108
6	Ukrainische Proben	110
6.1	Tiefenprofile	110
6.2	Depositionsdichten der ukrainischen Böden	113
6.3	Spezifische Aktivitäten	114
6.4	Transferfaktoren	118
6.4.1	Vergleich mit ¹³⁷ Cs	120
6.4.2	Literaturvergleich	121
6.4.3	Einfluss von Bodeneigenschaften auf den Transferfaktor	124
6.4.4	Diskussion der Transferfaktoren	126
6.5	Exposition durch Ingestion	127
6.5.1	Modell	127

6.5.2	Abschätzung der jährlichen effektiven Dosis durch ^{90}Sr	128
6.5.3	Vergleich der Strahlenexposition durch ^{90}Sr und ^{137}Cs	132
6.5.4	Lebenszeit-Folgedosis	136
6.5.5	Statistik	139
6.5.6	Zusammenfassung und Bewertung der Expositionsabschätzung . . .	143
7	Zusammenfassung	147
8	Ausblick	150
A	Tabellen	152
B	Grafiken	169
C	Verwendete Chemikalien und Geräte	181
D	Formelzeichen	182
	Literaturverzeichnis	186

Abbildungsverzeichnis

1.1	Nuklidkartenausschnitt und Zerfallsschema des ^{90}Sr	2
1.2	Spektrum eines Betastrahlers (^{32}P)	4
1.3	Aufbau und Zerfall des Tochternuklids	5
1.4	Mögliche Expositionspfade	7
1.5	Globale zeitliche Depositionsveränderung	11
1.6	Zeitlicher Verlauf der flüssigen Radionuklidemissionen von Sellafield und La Hague	13
1.7	Aufbau des Tschernobyl-Reaktors	17
1.8	Skizze des Reaktors nach dem Unfall	21
1.9	Zeitliche Freisetzung von Radionukliden	22
1.10	Schilddrüsenkrebsfälle bei Kindern unter 15 Jahren in den betroffenen Gebieten	29
1.11	Darstellung der Wolkenausbreitung über Europa nach dem Reaktorunfall . . .	32
1.12	Alter und neuer Sarkophag	35
1.13	Breitenabhängige Depositionsdichte des ^{90}Sr mit einzelnen Messpunkten . .	38
1.14	Windverhältnisse und Transportmechanismen in der Atmosphäre	39
1.15	Verteilung von Radionukliden in der Nordsee nach Emissionen aus Sellafield	41
1.16	Weltweite Verteilung des ^{90}Sr auf dem Land und in den Meeren (bez. 2003) .	41
1.17	Körnungs-Summenkurve von Feinböden	43
1.18	Bezeichnung von Bodenarten nach DIN 4220 (l) und USA (r)	44
1.19	Zeitliche Veränderung eines Transferfaktors eines Hot Spots	53
2.1	Methodenübersicht	55
4.1	Standorte der Probennahme in Niedersachsen	63
4.2	Standorte der Probennahme in der Ukraine	64

4.3	Trennungsgang	68
4.4	Kronenether	69
4.5	Jablonski-Term-Schema	73
4.6	Szintillationsprozess	74
4.7	Detektion der Photonen mittels Photomultiplier	75
4.8	Veränderung der Spektren durch Quencheffekte	76
4.9	Ausbeute (Efficiency) in Abhängigkeit der Verunreinigung	77
4.10	Aufbau eines Flüssig-Szintillations-Zählers mit Passiv- und Activ Guard	79
4.11	Energieaufteilung eines LSC-Spektrums	80
4.12	Spektrum von ^{85}Sr , ^{90}Sr und ^{90}Y mit Fenstersetzung	83
4.13	Quenchkurven, ermittelt zu verschiedenen Zeiten; Vergleich mit Quenchkurve von Dr. Filß	90
4.14	Tiefenprofil von Kupetsch-Tscherjanka mit Vergleichsmessung	91
4.15	Erhöhung des Untergrundes durch Kontamination der Glasgeräte	93
5.1	Tiefenprofile von sechs niedersächsischen Böden	98
6.1	Tiefenprofile aus der Zhitomirumgebung und Korostenregion	111
6.2	Tiefenprofile von Wiese und Ufer Christinowka	112
6.3	Vergleich der Lebensmittelanteile an der Dosis von ^{90}Sr und ^{137}Cs	134
6.4	Die effektive jährliche Dosis von ^{90}Sr durch Modellierung und von ^{137}Cs durch Direktmessung	136
6.5	Die Lebenszeit-Folgedosis von ^{90}Sr und ^{137}Cs im Vergleich zu natürlicher und zivilisatorischer Exposition und zu Extremwerten	139
6.6	Verteilung der effektiven jährlichen Dosis für Bewohner der Zone 2 mit konservativen Annahmen	142
B.1	PPO	169
B.2	bisMSB	169
B.3	(2-(2-Butoxyethoxy)ethanol (Lösungsmittel)	170
B.4	Nonylphenolethoxylat (Lösungsmittel)	170
B.5	Di-iso-propylnaphthalene (Lösungsmittel)	170
B.6	UTEVA-Säulenmaterial:ipentyl, pentylphosphonate (DAAP)	171
B.7	TRU-Säulenmaterial	171
B.8	LSC-Spektren	172

B.9 Modellwasser: Vergleich der Ringversuchergebnisse	173
B.10 Realwasser: Vergleich der Ringversuchergebnisse	174
B.11 Messungen der Laboratorien von Standardboden IAEA-375	175
B.12 Tiefenverläufe von ^{90}Sr und Calcium	176
B.13 Tiefenverläufe von ^{129}I und ^{127}I	176
B.14 Tiefenverläufe von ^{137}Cs und ^{40}K	177
B.15 Verteilung der Strahlenexposition für Zone 1 und Überlagerung einer logarithmischen Normalverteilung	178
B.16 Verteilung der Strahlenexposition für Zone 2 und Überlagerung einer logarithmischen Normalverteilung	179
B.17 Verteilung der Strahlenexposition für Zone 3 und Überlagerung einer logarithmischen Normalverteilung	180

Tabellenverzeichnis

1.1	Zusammensetzung der natürlichen Strahlenexposition	7
1.2	Spaltausbeute an ^{90}Sr	10
1.3	Aktivitätsinventar von Block 4 und Radionuklidfreisetzungen als Folge des Unfalls	23
1.4	Zeitpunkt der Evakuierung und Personenanzahl in den betroffenen Gebieten .	25
1.5	Belegschaft und Rettungspersonal in Tschernobyl in den ersten Stunden nach dem Unfall	27
1.6	Dosisbereich und Todesfälle für die Personen mit bestätigten akuten Strahlenschäden	27
1.7	Schilddrüsenkrebs bei Kindern in den Folgejahren	30
1.8	Strahlenexposition durch Tschernobyl in Deutschland, Schweiz und Österreich	31
1.9	Klassierung der Bodenskelettanteile nach DIN 4220	44
1.10	Bewegte Menge Boden verschiedener Tiere im Laufe eines Jahres	49
1.11	Migrationsgeschwindigkeiten k der Nuklide ^{90}Sr und ^{137}Cs	52
2.1	Typische Nachweisgrenzen für Sr-90	59
4.1	Ringversuch 01.2000; BfS	92
4.2	Qualitätskontrolle durch wiederholende Messung eines Standardbodens; bezogen auf den 01.01.2003	94
4.3	Ringversuch 01.2002; BfS	96
5.1	Depositionsdichten der sieben niedersächsischen Tiefenprofile	102
6.1	^{90}Sr -Depositionsdichten in Niedersachsen und in der Ukraine	113
6.2	Spezifische Aktivitäten von ^{90}Sr in Proben aus Christinowka	115

6.3	Spezifische Aktivitäten von ^{90}Sr in Proben aus Christinowka	116
6.4	Spezifische Aktivitäten von ^{90}Sr in Proben aus Christinowka	117
6.5	Transferfaktoren mit relativen Unsicherheiten	119
6.6	Vergleich der Transferfaktoren von ^{90}Sr und ^{137}Cs	120
6.7	Literaturvergleich von ^{90}Sr -Transferfaktoren	122
6.8	Zusätzliche jährliche effektive Dosis für einen Bewohner der Zone 2 mit Verzehrsgewohnheiten aus [Str01]	129
6.9	Ingestionsdosiskoeffizienten und altersabhängige Dosisabschätzung für Be- wohner der Zone 2 nach Verzehrsgewohnheiten der StrlSchV	130
6.10	131
6.11	Altersabhängige Dosisabschätzung für Bewohner der Zone 2 nach Verzehrsgewohnheiten der StrlSchV und nach Botsch in mSv a^{-1}	132
6.12	Die Lebenszeit-Folgedosis für verschiedene Altersgruppen für Bewohner der Zone 2 in mSv	138
A.1	Jährliche Emissionen des ^{90}Sr und ^{137}Cs von La Hague und Sellafield	152
A.2	Bodenkundliche Daten des Bodens aus Eilenriede	153
A.3	Bodenkundliche Daten des Bodens aus Twenge	154
A.4	Bodenkundliche Daten des Bodens aus Adenstedt	155
A.5	Bodenkundliche Daten des Bodens aus Ricklingen	156
A.6	Bodenkundliche Daten des Bodens aus Vestrup	157
A.7	Bodenkundliche Daten des Bodens aus Groß Lobke	158
A.8	Horizontabkürzungen	159
A.9	Altersabhängige Verzehrsmengen nach StrlSchV mit 95%-Percentil (Spalte 8)	160
A.10	Niedersächsische Tiefenprofile	161
A.11	Ukrainische Tiefenprofile (Zone 3 und Korostenregion)	162
A.12	Ukrainische Tiefenprofile, Teil 2 (Zone 3 und Korostenregion)	163
A.13	Ukrainische Tiefenprofile (Zone 2)	163
A.14	Ukrainische Lebensmittelproben, zugehörige Böden und Knochenproben	164
A.15	Ukrainische Lebensmittelproben, zugehörige Böden und Knochenproben 2	165
A.16	Ringversuche 2002 und 2001	166
A.17	IAEA-Standard 375	166
A.18	Statistische Daten der ermittelten Verteilung für Zone 1	167
A.19	Statistische Daten der ermittelten Verteilung für Zone 2	167

A.20 Statistische Daten der ermittelten Verteilung für Zone 3 168

1 Grundlagen

1.1 Einführung

Strontium gehört mit einer $5s^2$ -Konfiguration zu den Erdalkalimetallen. Mit 0,014 Gewichtsprozenten der Erdkruste findet man es in der Natur hauptsächlich als Strontionat SrCO_3 oder Coelestin SrSO_4 . Elementares Strontium wird durch Schmelzflusselektrolyse von SrCl_2 gewonnen. Das silberweisse Metall bedeckt sich an Luft schnell mit einer Oxidschicht, die aber infolge der Wasserlöslichkeit des Oxids keinen Schutz bietet. Anwendung findet das Strontium meist als Nitrat bei rotbrennenden Feuerwerkskörpern oder Leuchtfeuern (bengalische Feuer; 650-600 nm) oder zur Herstellung von Farbbildröhren. Strontiumsalze ähneln in ihrem Verhalten den Calciumsalzen, weisen aber zumeist noch niedrigere Löslichkeitsprodukte (SrCO_3 $1 \cdot 10^{-10}$; CaCO_3 $0.87 \cdot 10^{-8}$; SrSO_4 $3 \cdot 10^{-7}$; CaSO_4 $6.1 \cdot 10^{-5}$ in $\text{mol}^2 \text{L}^{-2}$ bei 25°C) auf. Die Nitrate, Chloride und Oxide sind wie bei allen Erdalkalimetallen gut löslich. Als einzige tritt die höchste Oxidationsstufe +II auf [Jan95, Hol85].

Vom Element Strontium sind vier stabile Isotope, 14 β^- -Strahler und 12 β^+ -Strahler bekannt. Die vier Stablen sind ^{84}Sr (0,56%), ^{86}Sr (9,86%), ^{87}Sr (7%) und ^{88}Sr (85,58%). Durch den Zerfall des primordialen radioaktiven ^{87}Rb ist das ^{87}Sr in einigen Böden angereichert, was zur geologischen Altersbestimmung dient. Je höher das Sr/Rb-Verhältnis ist, desto älter ist die Probe. Das höchste nach dieser Methode an einem Steinmeteoriten erhaltene Alter beträgt mehrere Milliarden Jahre [Hol85].

Von den β^- -Strahlern sind die einzig dosisrelevanten Isotope ^{89}Sr und ^{90}Sr , die durch Spontanspaltung von ^{238}U in nicht detektierbaren Mengen und durch künstliche Kernspaltung in deutlich größeren Mengen in die Umwelt gelangt sind. ^{89}Sr zerfällt dabei mit einer Halbwertszeit von 50,5 Tagen zum stabilen ^{89}Y und ^{90}Sr mit einer Halbwertszeit von 28,6 Jahren mit einer Betamaximalenergie von 0,546 MeV und einer Durchschnittsenergie von 0,196 MeV zum Tochternuklid ^{90}Y . Die Halbwertszeit dieses Nuklides ist mit 64,1 Stunden (2,67 Tagen) niedriger und stellt somit ein säkulares Gleichgewicht (Kapitel 1.2.1) dar. Die Betamaximalenergie des ^{90}Y liegt bei 2,282 MeV und die Durchschnittsenergie bei 0,925 MeV [UNS82]. Durch die oberirdischen Kernwaffentests der 60er Jahre und Unfälle wie Tschernobyl [UNS00], Tschernobyl [Tra93] und Windscale [Nie98] wurden die beiden Nuklide global verteilt. In relevanten Mengen ist jedoch nur noch das ^{90}Sr nachweisbar, welches aufgrund seiner biologischen Wirkung radiologisch zu überwachen ist.

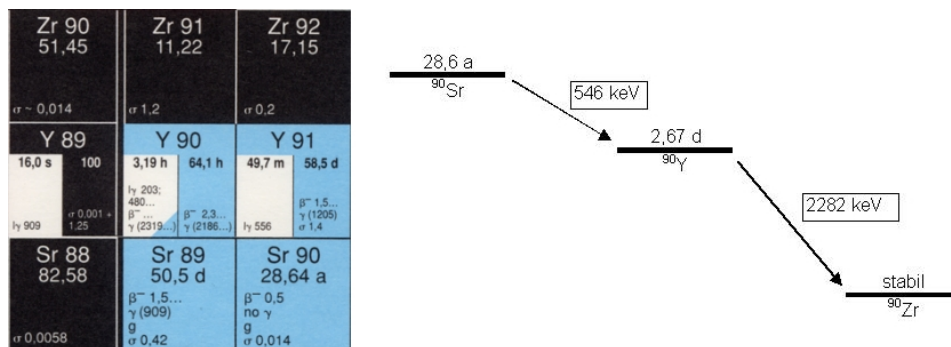


Abbildung 1.1: Nuklidkartenausschnitt [For95] und Zerfallsschema des ^{90}Sr

Es sind keine biologisch notwendigen Funktionen des Strontium für den Menschen bekannt. Dennoch wird es aufgrund seiner ähnlichen physikalischen und chemischen Eigenschaften zum Calcium vom menschlichen Organismus aufgenommen und innerhalb des Körpers gespeichert. Diese Einlagerung des Strontium erfolgt dementsprechend überwiegend an den Calciumlagerstätten - den Knochen und Zähnen [UNS82]. Hierbei liegt das Strontium als Apatit ($\text{Ca}_3(\text{PO}_4)_2 \cdot \text{Ca}(\text{F}, \text{Cl}, \text{OH})_2$) im mineralischen Teil vor, kann jedoch wieder wie das Calcium aus den Knochen oder Zähnen entfernt werden. Die biologische Halbwertszeit, die sich aus der physiologischen und physikalischen ergibt, beträgt 3,4 - 20 Jahre je nach Alter, Körpergröße, Ernährung und Lebensgewohnheit (Mittel 10) [Bit92]. Im Knochen schädigt radioaktives Strontium durch die Emission der hochenergetischen Elektronen das angren-

zende Gewebe, insbesondere das rote Knochenmark. Hinzu kommt, dass das Strontium vom Knochen in bestimmten Bereichen verstärkt eingelagert wird - ähnlich wie das radioaktive Iod in Schilddrüsen - wodurch es zu einer Anreicherung kommt und einer damit verbundenen intensiveren Wirkung auf das umliegende Gewebe. Diese Schädigung der umliegenden Zellen erhöht die Wahrscheinlichkeit eines irreparablen Schadens und damit die Wahrscheinlichkeit für stochastische Schäden wie Knochenkrebs.

Die Hauptquelle für ^{90}Sr in der Umwelt sind die oberirdischen Kernwaffentest der 60er Jahre, die mit Eintreten des Test Ban Treaty's größtenteils ein Ende fanden. Bis zum Jahre 1984 wurden ca. $8.3 \cdot 10^{17}$ Bq ^{90}Sr freigesetzt, von dem heute nach dem Zerfall noch ca. $3 \cdot 10^{17}$ Bq verbleiben. Dreiviertel dieser Aktivität findet man auf der nördlichen Halbkugel wieder, da hier die meisten der oberirdischen Tests stattfanden. ^{90}Sr kann auch über Abwasser und Abluft von kerntechnischen Anlagen in die Umwelt gelangen. Doch sind die Freisetzungsraten vergleichsweise niedrig, so dass die ^{90}Sr Belastung der Umwelt global durch die oberirdischen Kernwaffentest herrührt und nur lokal durch Unfälle erhöht ist [Fil98].

1.2 Betazerfall

Die Wechselwirkung von Betastrahlung mit seiner Umgebung ist gering. Ein Betateilchen von 3 MeV hat in Luft eine Reichweite von ca. 10 m, ionisiert auf dem Weg allerdings nur etwa 4 Ionenpaare pro Millimeter. Die Ablenkung der Betateilchen durch Stöße mit Hüllenelektronen von Atomen ist dafür größer als beispielsweise bei α -Teilchen, weshalb sie einen in einer Nebelkammer sichtbaren Zickzack-Kurs zurücklegen. Als Absorptionsmittel für Betastrahlung nutzt man meist leichte Elemente wie Aluminium. Es reicht aus, die Betastrahlung zurückzuhalten, da die Reichweite in fester Materie gering ist und die Bremsstrahlung aufgrund der niedrigen Ordnungszahl ($Z=13$) klein ist. Ein Betazerfall (β^-) beruht auf der Umwandlung eines Neutrons im Kern zu einem Proton, einem Elektron und einem Antineutrino.

$$n = p + e + \tilde{\nu} \quad (1.1)$$

Das Proton verbleibt im Kern, sodass die Massenzahl konstant bleibt. Elektron und Antineutrino verlassen das Atom. Die kinetische Energie beider und damit ihre Geschwindigkeit

resultiert aus der Energiedifferenz des Zerfalls. Die nachzuweisende Energie eines Elektrons kann somit maximal dieser Energiedifferenz entsprechen. Betrachtet man nun viele Zerfälle eines Betastrahlers ergibt sich eine Verteilung (Abb. 1.2). Möchte man den Zerfall eines Betastrahlers beschreiben, kann man lediglich etwas über seine Maximalenergie und seine mittlere Energie aussagen. Ein typisches Spektrum eines Betastrahlers spiegelt die Häufigkeit bestimmter Energien in einem Bereich wieder [Lie91].

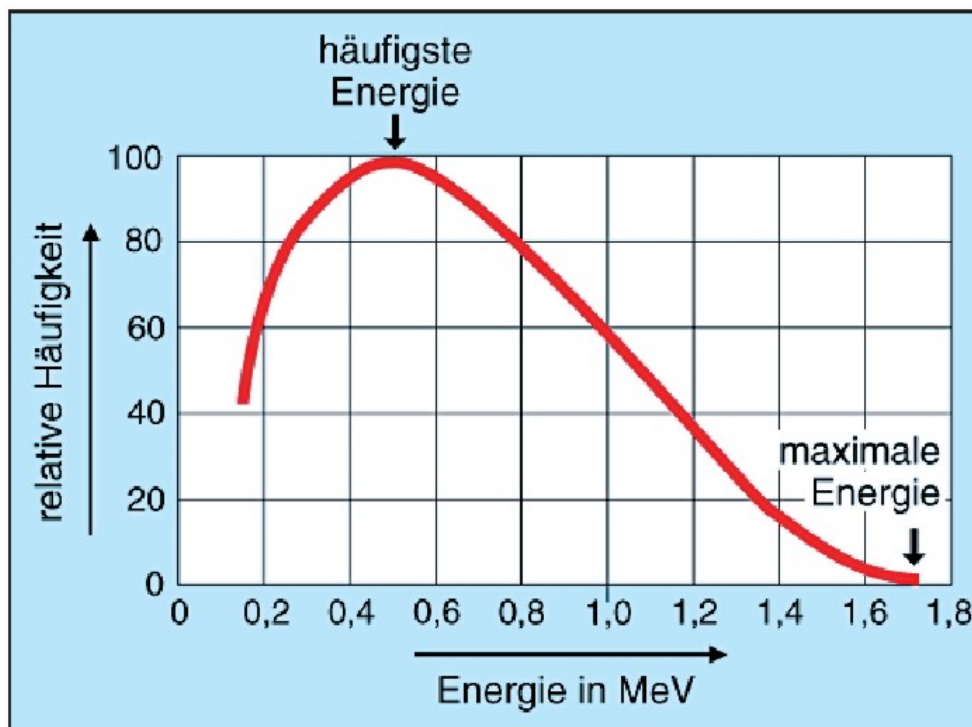


Abbildung 1.2: Spektrum eines Betastrahlers (^{32}P) [Köl01]

Betrachtet man nun zwei oder mehr Betastrahler, so überlagern sich die Spektren der einzelnen Nuklide und erzeugen ein nur schwer oder gar nicht interpretierbares Gesamtspektrum. Aus diesem Grunde ist eine Überlagerung, wenn möglich, zu vermeiden und bedingt oftmals eine chemische Abtrennung des zu untersuchenden Nuklids von anderen störenden Nukliden.

1.2.1 Säkulares Gleichgewicht

Ist die Halbwertszeit des Mutternuklides sehr viel größer als die Halbwertszeit des Tochternuklides, wie bei dem Paar ^{90}Sr und ^{90}Y , spricht man von einem „Säkularem Gleichgewicht“. Erfolgt zur Zeit $t=0$ eine Abtrennung gilt:

$$N_2 = N_1 \cdot \frac{\lambda_1}{\lambda_2} \cdot (1 - \exp^{-\lambda_2 \cdot t}). \quad (1.2)$$

Setzt man voraus, dass bei sehr großer Halbwertszeit des Mutternuklides die Anzahl ihrer Atome konstant ist, folgt

$$N_{1,0} = N_1. \quad (1.3)$$

Somit ist die Anzahl der Atome bei Einstellung eines Gleichgewichts lediglich abhängig von der Zerfallskonstanten des Tochternuklids. Der Verlauf von Abfall des Tochternuklids bei Fehlen des Mutternuklids und der Aufbau des Tochternuklides nach Abtrennung ist in folgender Grafik gezeigt:

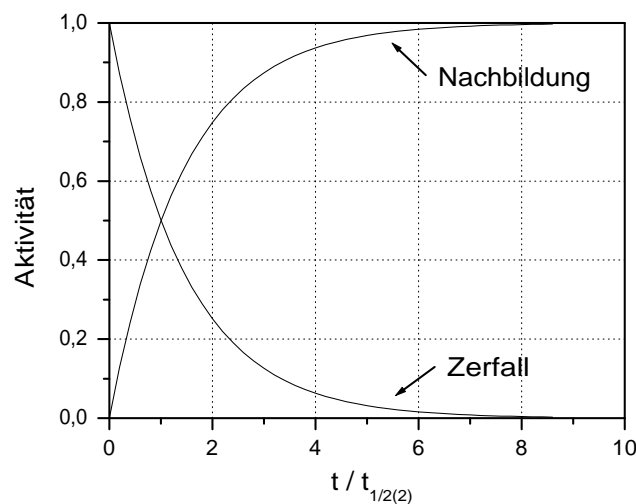


Abbildung 1.3: Aufbau und Zerfall des Tochternuklids

Dabei sind nach 7 Halbwertszeiten ca. 99 % des Tochternuklides zerfallen bzw. gebildet.

Im radioaktiven Gleichgewicht gilt:

$$\frac{N_1}{N_2} = \frac{\lambda_1}{\lambda_2} = \frac{t_{1/2(2)}}{t_{1/2(1)}} \quad (1.4)$$

Da für $A = dN/dt = \lambda \cdot dN$ gilt, folgt:

$$A_1 = A_2 \quad (1.5)$$

Im radioaktiven Gleichgewicht haben also Tochter- und Mutternuklid dieselbe Aktivität. Diese Tatsache kann in der Radioanalytik sehr hilfreich sein: zur Ermittlung von großen Halbwertszeiten über die Nuklidverhältnisse, Berechnung der Mengenverhältnisse von Radionukliden, die im radioaktiven Gleichgewicht sind und Berechnung der Menge Mutternuklid aus Bestimmung des Tochternuklides [Lie91].

1.3 Exposition des Menschen

Um eine Gefährdung der Bevölkerung oder bestimmter Bevölkerungsgruppen durch Quellen ionisierender Strahlung abschätzen zu können, ist es erforderlich, die Exposition zu ermitteln. Für die Ermittlung der Exposition des Menschen stellt man verschiedene Wege der Auswirkung radioaktiver Strahlung in Form von Kompartimentmodellen auf. Ein einfaches und verschiedene Pfade berücksichtigendes Modell findet man in Berichten von UNSCEAR (United Nations Committee on the Effects of Atomizing Radiation) [UNS82, UNS88].

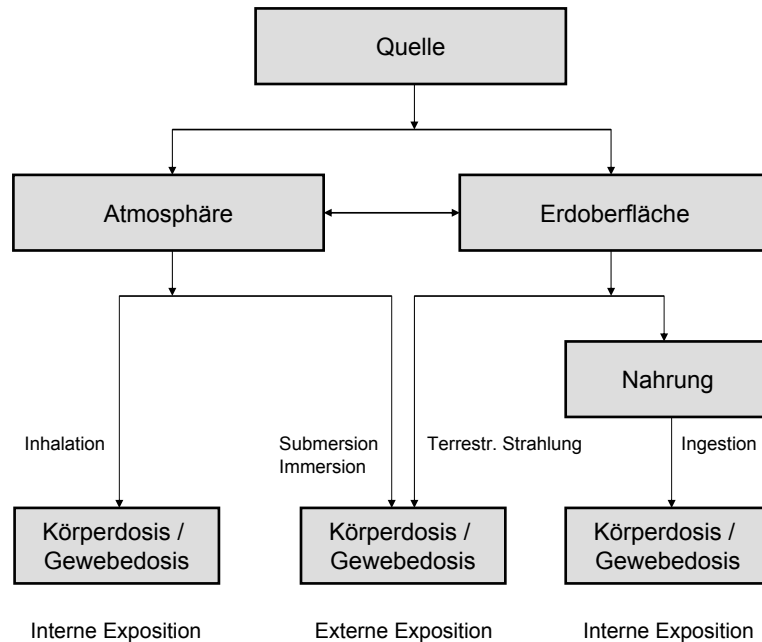


Abbildung 1.4: Mögliche Expositionspfade

Das vereinfachte System kann für verschiedene Aspekte erweitert werden. Zum Beispiel müsste der Übergang von Nukliden aus der Atmosphäre nicht direkt auf die Erdoberfläche erfolgen, sondern kann zunächst auf der Flora zum Liegen kommen, womit auch eine Direktstrahlung von den Pflanzen vorläge; und erst anschließend erfolgt die Exposition durch den Weg über den Boden oder die Nahrung zum Menschen. Die Exposition setzt sich zusammen aus der zivilisatorischen und der natürlichen Strahlung. Die natürliche Exposition des Menschen ergibt sich aus der Summe der terrestrischen Strahlung, der kosmischen Strahlung, der Inhalation von Radon und der Ingestion durch Radionuklide.

Tabelle 1.1: Zusammensetzung der natürlichen Strahlenexposition [Fac85]

Expositionsquelle	mittlere effektive Dosis (mSv a ⁻¹)
kosmische Strahlung	0,3
terrestrische Strahlung	0,4
Ingestion von Radionukliden	0,3
Inhalation von Radon	1,1
Summe der natürlichen Strahlenexposition	2,1

1.3.1 Natürliche Strahlenexposition

Die äußerste Schicht der Atmosphäre erreicht kontinuierlich ein Gemisch aus galaktischer und solarer Strahlung, wobei die galaktische Komponente überwiegt. Diese primäre kosmische Strahlung besteht überwiegend aus Protonen im MeV-Bereich. Durch Wechselwirkungen mit Atomen der Atmosphäre entstehen Sekundärteilchen: Photonen, Elektronen, Positronen, Neutronen und Myonen. Die Beeinflussung der primären kosmischen Strahlung durch das Magnetfeld der Erde ergibt eine Abhängigkeit dieser sekundären Strahlung mit dem Breitengrad. Der Wert der kosmischen Strahlenexposition ist des Weiteren von der geographischen Höhe abhängig und schwankt von $0,3 \text{ mSv a}^{-1}$ in Meereshöhe bis zu 2 mSv a^{-1} in 4000 m Höhe (La Paz, Bolivien, Höchste Stadt der Welt) [Köl01]. Lokal schwankt die kosmische Komponente der effektiven Dosis durch den 11 Jahreszyklus der Sonne um etwa 6-11 % [Fac85].

Der Hauptbestandteil der terrestrischen Strahlung stammt von Radionukliden der Thorium- und Uranzerfallsreihe sowie vom Kalium-40 ($T_{1/2}=1,3 \cdot 10^9 \text{ a}$), die aufgrund ihrer langen Halbwertszeiten seit Entstehung des Sonnensystems noch vorhanden sind (primordial) und somit als quasi stabil gelten. ^{40}K ist für den ca. 1 %igen Anteil des Argon an der Luft durch Betazerfall verantwortlich. Das auf lange Sicht dosisrelevanteste Nuklid ^{137}Cs von Spaltprozessen oberirdischer Kernwaffentests der 60er Jahre hat im Vergleich dazu keine Bedeutung. In der terrestrischen Strahlung wird eine wesentliche Ursache für die lokale Schwankung der jährlichen natürlichen Gesamtdosis gesehen. Ein steigender Feuchtgehalt erhöht die Dichte des Bodens und verringert durch Absorption von γ -Strahlung die Wirkung. Auch Schnee und kurzzeitige Wasseransammlungen durch Regen auf der Oberfläche reduzieren die üblicherweise in 1 m Höhe über dem Boden gemessene terrestrische Strahlung. Die jährliche durchschnittliche effektive Dosis in Deutschland liegt bei $0,4 \text{ mSv a}^{-1}$ [Fac85].

Der größte Anteil an der natürlichen Exposition wird von Isotopen des Elementes Radon gebildet. Es ist ein natürlich radioaktives Edelgas ($Z=86$), dessen drei Isotope ^{222}Rn , ^{220}Rn und ^{219}Rn aus den Zerfallsreihen des Uran, Thorium und Actinium stammen. Wichtigstes Isotop ist mit einer Halbwertszeit von 3,8 Tagen das ^{222}Rn , welches aus dem Zerfall des ^{238}U gebildet wird. Durch diffuse und konvektive Transportprozesse gelangt es aus dem Boden in die Atmosphäre. Der Alphastrahler wird durch die Atmung in der Lunge deponiert und führt dort zur Erhöhung der jährlichen mittleren effektiven Dosis. Die Inhalation des ubiquitären

Radon wurde nach neueren Berechnungsmodellen in den letzten Jahren von $1,4 \text{ mSv a}^{-1}$ im Mittel auf $1,1 \text{ mSv a}^{-1}$ korrigiert. Damit ergibt sich die in Tabelle 1.1 angegebene jährliche Gesamtexposition von $2,1 \text{ mSv}$ [Fac85].

1.3.2 Zivilisatorische Strahlenexposition

Die zivilisatorische Strahlenexposition wird in Deutschland zum größten Teil durch die medizinische Röntgendiagnostik bedingt, wobei diese Röntgenuntersuchungen in den letzten Jahren stetig zunehmen. Besonders die Anzahl der dosisintensiven Computertomographien ist gestiegen. Die mittlere effektive Dosis der Bevölkerung in Deutschland liegt damit durch medizinische Anwendungen ionisierender Strahlung im Jahr bei 2 mSv . Dies kann jedoch individuell stark schwanken und ist von der Anzahl der Untersuchungen und dem untersuchten Gewebe abhängig. Weitere zivilisatorische Quellen wie Emission von Radionukliden aus Kernkraftwerken und aus Abbrand fossiler Brennstoffe liegen im Bereich einiger μSv und sind somit vernachlässigbar [Köl01].

Die Summe der natürlichen Strahlenexposition liegt in Deutschland bei $2,1 \text{ mSv}$. Die Schwankung der Exposition ist auf unterschiedliche Breitengrade, Radonkonzentrationen, Bodenbeschaffenheiten, Baumaterialien der jeweiligen Orte zurückzuführen und lokal auf den Sonnenzyklus und den Feuchtgehalt des Bodens. Den Hauptanteil der zivilisatorischen Exposition liefert die Medizin. Insgesamt liegt der Durchschnitt der jährlichen Exposition der Bevölkerung durch natürliche und zivilisatorische Quellen somit bei $4,1 \text{ mSv a}^{-1}$, schwankt aber stark je nach Individuum durch den medizinischen Einfluss [Fac85].

1.3.3 Die Expositionspfade des ^{90}Sr

Das Element Strontium bildet keine leicht flüchtigen Verbindungen, womit der Pfad über die Atmosphäre von ^{90}Sr zum Gewebe des menschlichen Körpers vernachlässigt werden kann. Die Direktstrahlung vom Boden, auch als terrestrische Strahlung bezeichnet, hat bei reinen Betastrahlern wie ^{90}Sr und seinem Tochternuklid ^{90}Y eine Reichweite von wenigen Zentimetern. Somit ist der relevanteste Pfad für die Ermittlung der Exposition des Menschen die Aufnahme über die Nahrung, auch Ingestion genannt.

1.4 ^{90}Sr Quellen

1.4.1 Natürlicher Anteil

^{90}Sr wird natürlich fast ausschließlich durch die Spontanspaltung des am häufigsten vorkommenden Uranisotopes, des $^{238}\text{Uran}$ (partielle Halbwertszeit $T_{sf} = 9 \cdot 10^{15}$ a), gebildet, also ohne Einfluss von Neutronen [Lie91]. Der Anteil des ubiquitären Urans in der Erdkruste ist bekannt. So lässt sich die Anzahl der Uranatome in einem Kilogramm Boden abschätzen, wodurch sich mittels der Zerfallskonstanten die Aktivität des $^{238}\text{Uran}$ auf $1,9 \cdot 10^{-5}$ Bq kg^{-1} schätzen lässt. Die Isobarenausbeute des ^{90}Sr basierend auf dem Spontanzerfall des Uranisotopes liegt bei 6,8 % [For95], woraus sich die spezifische Aktivität des natürlichen ^{90}Sr auf $1,3 \cdot 10^{-6}$ Bq kg^{-1} berechnen lässt. Dieser Mittelwert ist für die üblichen radiochemischen Methoden heutzutage für einen Nachweis zu gering. Auch die massenspektrometrischen Methoden, wie die RIMS (Resonanz-Ionisations-Massenspektrometrie) sind mit Nachweisgrenzen im ppt-Bereich nicht dazu in der Lage. Selbst Uranlagerstätten, wie man sie im Ural findet, weisen keine nachweisbare spezifische Aktivität an ^{90}Sr auf [Fil98]. Daraus resultiert, dass natürliches ^{90}Sr nicht detektierbar ist und im Vergleich zu anderen Quellen rechnerisch so klein ist, dass eine Integration in Dosisberechnungen nicht sinnvoll wäre.

1.4.2 Nicht natürlicher Anteil

Nicht natürliches anthropogenes ^{90}Sr stammt aus der Kernspaltung. Je nach Spaltmaterial schwanken die Spaltausbeute zwischen 2,05 und 5,84 % [Wor83].

Tabelle 1.2: Spaltausbeute an ^{90}Sr [Wor83]

Spaltstoff	prozentuale Spaltausbeute an ^{90}Sr durch	
	thermische Spaltung	schnelle Spaltung
U-235	5,84	5,21
Pu-239	2,12	2,05
U-238	-	3,20
Th-232	-	7,66
Mittelwert	3,50	

Der Hauptanteil des weltweit verteilten ^{90}Sr stammt von den oberirdischen Kernwaffentests der 60er Jahre. Mit Abschluss eines Vertrages zur Einstellung der oberirdischen Kernwaffentests 1962, dem sogenannten Test Ban Treaty, zwischen Großbritannien, USA und der UdSSR und seinem Inkrafttreten am 10.10.1963 nahm der jährliche Zuwachs der globalen ^{90}Sr Deposition drastisch ab und sank schließlich sogar bedingt durch die Halbwertszeit des ^{90}Sr von 28,6 Jahren [UNS82].

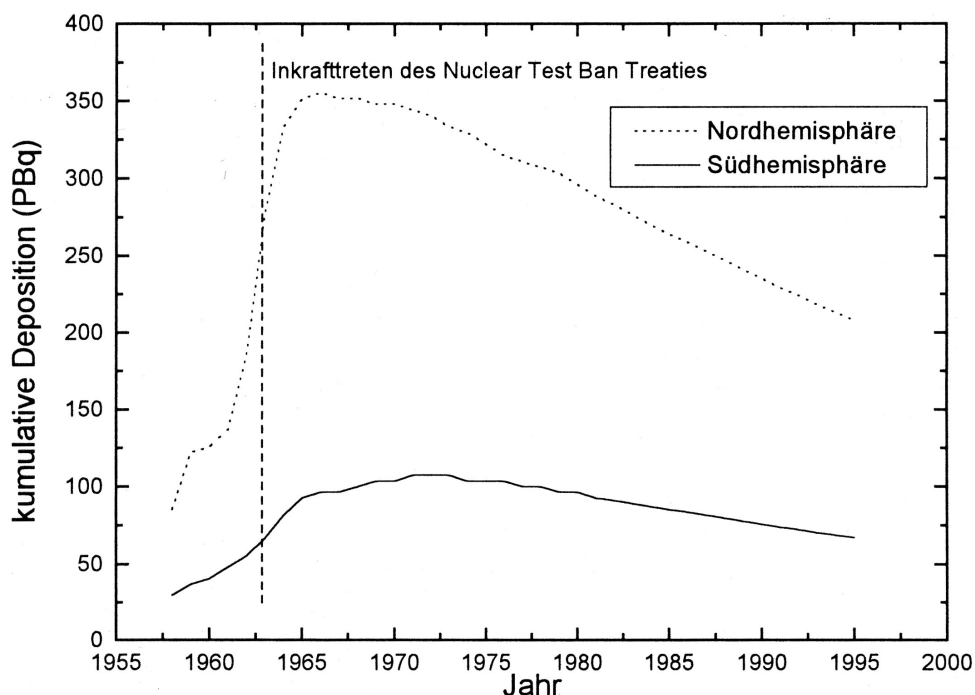


Abbildung 1.5: Globale zeitliche Depositionveränderung [Bot99]

Oberirdische Kernwaffentests

Die Anzahl der oberirdischen Kernwaffentests sind von den meisten Ländern veröffentlicht und belaufen sich bis 1986 auf 423 mit einer Sprengkraft von 217 Mt. 90 % der Versuche (194 Mt) fanden vor dem Eintreten des Nuclear Test Ban Treaty statt. Unter der Annahme, dass eine Kilotonne (kt) Sprengkraft $1,45 \cdot 10^{23}$ Spaltungen entspricht und ^{90}Sr mit einer mittleren Spaltausbeute von 3,5 % (s. Tab.1.2) gebildet wird, kann die Anzahl der ^{90}Sr Atome pro kt abgeschätzt werden. Da die Zerfallskonstante des ^{90}Sr bekannt ist ($7,7 \cdot 10^{-10} \text{ s}^{-1}$), lässt sich die Aktivität mit $3,9 \cdot 10^{12} \text{ Bq}$ pro kt errechnen. Bezieht man die Anzahl der kt mit ein,

ergibt sich bis 1962 eine Produktion von $7.4 \cdot 10^{17}$ Bq (740 PBq) ^{90}Sr und nach 1962 weitere $0,9 \cdot 10^{17}$ Bq (90 PBq). Insgesamt wurden somit bis 1986 $8,3 \cdot 10^{17}$ Bq ^{90}Sr freigesetzt. Danach kam nur eine unwesentliche Menge durch weitere Versuche hinzu. Die meisten Tests fanden in der Stratosphäre statt, so dass mit einer Verweilzeit von ca. 2 Jahren das ^{90}Sr sich über die Winde weltweit verteilte. Nach Berücksichtigung des radioaktiven Zerfalls verbleiben zum heutigen Zeitpunkt (2003) ca. $3 \cdot 10^{17}$ Bq (300 PBq). Bekannte Testgebiete der Atomwaffenmächte findet man von Großbritannien in der australischen Wüste, von Frankreich bis in die 90er Jahre auf dem Mururoa-Atoll und auf Fangataufa (Polynesien) und von den USA auf dem Bikini Atoll (Marshallinseln, Mikronesien) [Fil98].

Kernkraftwerke

In Deutschland gibt es zur Zeit 18 Kernkraftwerke, davon 12 Druckwasserreaktoren und 6 Siedewasserreaktoren. Sie decken mit rund 22 000 MWe 12,6 % des Primärenergiebedarfs des Landes. 2002 sind es weltweit 441 Reaktoren in 31 Ländern mit leicht steigender Tendenz. Führend sind weiter die USA (104) und Frankreich (59). Die überwiegende Anzahl an Reaktoren sind Druckwasserreaktoren (63 % nach Leistung, 57 % nach Anzahl). Insgesamt liefern die Kernkraftwerke der Welt ca. 350 000 MWe pro Jahr [Ker02, Köl01].

In Kernkraftwerken wird ^{90}Sr durch Spaltung des Brennstoffes produziert. Der gebildete Anteil variiert in Abhängigkeit von der Brennstoffzusammensetzung (Tab.1.2), dem Reaktortyp und dem Anteil des erreichten Abbrandes. Durch undichte Brennstoffhüllen gelangen geringe Mengen von Radionukliden in die Kühlflüssigkeit. Durch Kühlmittelverlust kann ^{90}Sr über den Kamin oder das Abwasser in die Umwelt gelangen. Da ^{90}Sr keine leicht flüchtige Verbindungen eingeht, erfolgt der überwiegende Anteil der Emission in flüssiger Form [Ker02].

Wiederaufbereitungsanlagen

In Wiederaufbereitungsanlagen wird nicht abgebranntes Uran und Plutonium aus alten Brennstäben gewonnen und angereichert. Das durch den Spaltprozess in Kernkraftwerken bereits entstandene ^{90}Sr wird mit allen anderen abgetrennten Zerfallsprodukten dem Abfall zugeführt.

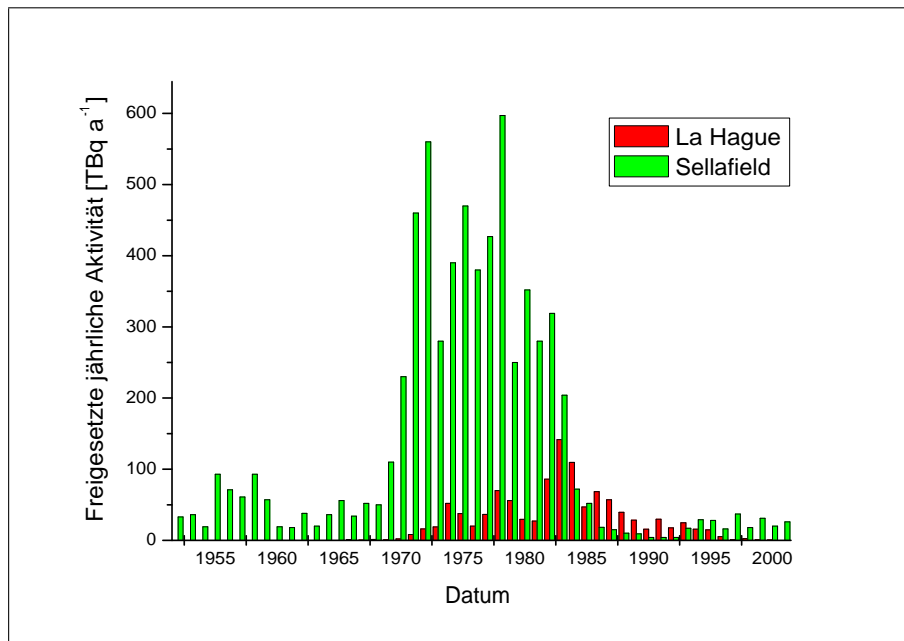


Abbildung 1.6: Zeitlicher Verlauf der flüssigen Radionuklidemissionen von Sellafield und La Hague [Nie98]

Das Bundesamt für Seeschifffahrt und Hydrographie aus Hamburg untersuchte in den letzten Jahrzehnten die Emissionen von Radionukliden aus den Wiederaufbereitungsanlagen La Hague und Sellafield und die daraus resultierenden Immissionen in die Nordsee, Ostsee und Karasee, insbesondere die von ^{137}Cs und ^{90}Sr . Der zeitliche Verlauf der Emissionen ist in der gezeigten Grafik wiedergegeben und weist ein Maximum in den Jahren 1983 (La Hague) und 1978 (Sellafield) auf. Auf die Immissionen wird in Kapitel 1.6.2 eingegangen.

Unfälle

Unfälle haben in der Vergangenheit zu einem großen Teil zur Emission von Radionukliden beigetragen. Zumeist waren die Auswirkungen jedoch lokal begrenzt.

In den Jahren von 1950-1953 verschwanden einige Ortschaften entlang des Flusses Tcha im südlichen Ural von der Landkarte.



Aus der nahegelegenen Wiederaufbereitungsanlage Mayak waren unkontrolliert in drei großen Schüben Emissionen von Radionukliden in den Fluss geleitet worden. Die landwirtschaftliche Nutzung in der Umgebung ist damals eingestellt worden und die Bevölkerung evakuiert

worden. Die Gesamtaktivität der Emissionen betrug 100 PBq, davon war ein Zehntel ^{90}Sr [Tra93].

Bei der Explosion eines Lagerbehälters im Ural, kam es 1957 zu einer Emission von etwa $7,4 \cdot 10^{17}$ Bq (740 PBq). Die Aktivität des ^{90}Sr wird dabei auf $8 \cdot 10^{14}$ Bq (0,8 PBq) geschätzt [Fil98].

Am 28.3.1979 kam es in dem bei Harrisburg gelegenen Kernkraftwerk Three Miles Island zu einem Versagen der Hauptspeisewasserpumpen des Sekundärkreislaufs durch defekte Ventile oder Ionenaustauschfilter. Die darauf benötigten Hilfspumpen schalteten durch einen War-



tungsfehler nicht zu. Noch weitere Pannen und Versäumnisse des Personals führten zu den Emissionen. Die Dosisleistung im 16 km entfernten Harrisburg betrug kurzzeitig $0,003 \text{ mSv h}^{-1}$. Die natürliche Dosisleistung in Harrisburg betrug vor der Havarie $0,88 \text{ mSv a}^{-1}$, das sind etwa $1-4 \mu\text{Sv h}^{-1}$.

Die Bewohner erhielten durch die Havarie die Dosis, die der natürliche Dosis eines ganzen Jahres entsprach. Das Kraftwerksgelände hatte auch nach Wochen noch eine Dosisleistung von $0,85 \text{ mSv h}^{-1}$. Das Innere des Containments konnte aufgrund der hohen Radioaktivität nicht betreten werden. Drei Arbeiter erhielten beim Verschließen des Hilfsanlagegebäudes eine Dosis, die der eines ganzen Quartals entsprach. Durch die Lüftungsanlage gelangte überwiegend gasförmiges Iod in die Umwelt. Strontiumemissionen konnten nicht nachgewiesen werden [Min01].



Der Unfall mit der größten Auswirkung auf eine Bevölkerung fand am 26.4.1986 in Tschernobyl statt. Die emittierte Menge ^{90}Sr entsprach mit ca. 5 % am ^{90}Sr -Brennstoffanteil einer Gesamtaktivität von 10 PBq. Der Reaktortyp, der Unfallablauf und die Folgen für die Bevölkerung sind im folgenden Kapitel beschrieben.

1.5 Tschernobyl - der größte Unfall in der friedlichen Nutzung der Kernenergie

Am 26.04.1986 ereignete sich ein Unfall im Block 4 des Atomkraftwerks Tschernobyl. Tschernobyl liegt in der heutigen Ukraine, in der Nähe der Grenze zu Weißrussland, etwa 100 km nördlich der ukrainischen Hauptstadt Kiew. Für die Arbeiter des Kraftwerkes wurde 3 km nördlich der am Fluss Pripyat gelegenen Anlage die gleichnamige Stadt Pripyat gegründet. Der Name des Kraftwerkes kommt von dem 12 km entfernten größeren Ort Tschernobyl. Die ebene Landschaft um den Reaktor herum besteht größtenteils aus Wald- und Wiesengebieten, Sümpfen und vereinzelt kleinen Ortschaften. Die Bevölkerungsdichte ist mit ca. 70 Einwohner pro Quadratkilometer relativ gering (Vergleich Deutschland: 230 Einwohner pro Quadratkilometer) [Kru96].

1.5.1 Der Reaktortyp

Zur Zeit des Unfalles gehörte das Gebiet der Sowjetunion an. Das sowjetische Reaktorprogramm bestand zur damaligen Zeit aus zwei Reaktortypen: dem Druckwasserreakortyp WWER (Wasser-Wasser-Energie-Reaktor) und dem graphitmoderierten Siedewasserreakortyp RBMK (Hochleistungs-Druckröhrenreaktor). Zur Zeit des Unfalles waren 4 Blöcke des Typs RBMK mit einer Leistung von je 1000 MWE_{el} in Betrieb, zwei weitere befanden sich in der Bauphase und sollten 1986 und 1988 ans Netz gehen. Mit dem Unfall wurde die Fertig-

stellung der beiden jedoch abrupt gestoppt. Wäre dies nicht geschehen, wäre Tschernobyl mit 6 Blöcken zum größten europäischen Kernenergiekomplex geworden. Der zweite Block wurde 1991 nach einem Feuer stillgelegt, Block 1 wurde nach einer vollständigen Untersuchung und Umbauarbeiten 1996 nicht wieder in Betrieb genommen [Bot99]. Der verbleibende Reaktorblock 3 lieferte bis 15.12.2000 Energie, wurde dann jedoch durch politischen Druck aus Westeuropa heruntergefahren. Ein Wiederaufstart wird es nach internationalen Vereinbarungen nicht mehr geben. Als Ausgleich sollen nach Übereinkunft mit G7-Staaten zwei neue Reaktoren an anderen Standorten der Ukraine durch 1,7 Millionen Euro mitfinanziert werden.

Insgesamt 1700 Druckrohre aus einer Zirkoniumlegierung sind vertikal in Graphitblöcken angeordnet. Diese Graphitblöcke sind in einem Stahlzylinder eingefüllt, der etwa 12 Meter im Durchmesser und 7 Meter in der Höhe misst. Die Druckrohre enthalten sowohl den Kernbrennstoff, die Steuerstäbe, die Abschaltstäbe als auch das von unten nach oben strömende Reaktorkühlmittel Wasser. Zum Schutz des 600 °C heißen Graphitmoderators wird der Kern mit einer Mischung aus Helium und Stickstoff gefüllt. Das im Kern erhitzte Wasser wird als Dampf in einem Sammler von der flüssigen Phase getrennt und über eine Frischdampfleitung einer Turbine zugeführt. Zwei dieser Kühlkreisläufe mit insgesamt vier Hauptkühlmittelpumpen gewährleisten die nötige Abfuhr von Energie aus dem Reaktorinneren [Min01].

Die RBMK-Reaktoren haben eine relativ niedrige Leistungsdichte, so dass bei einem kompletten Stromausfall erst sehr spät Kernschäden auftreten können. Aufgrund des Graphitmoderators kann auch niedrig angereichertes Uran verwendet werden und der Brennstoffwechsel kann kontinuierlich während des laufenden Betriebes stattfinden. Der entscheidende Nachteil der RBMK ist ein Anstieg der Reaktorleistung bei Ausfall des Kühlwassers (Positiver Void Effekt). Zudem finden die Kettenreaktionen sehr schnell und weniger stabil als in den weltweit am häufigsten vorkommenden Leichtwasserreaktoren statt. Dieses Verhalten verstärkt sich bei sehr niedrigen Leistungen des Reaktors. Ein weiterer Nachteil ist die langsame Geschwindigkeit der Steuerstäbe beim Einfahren in den Kern. Mit 400 mm s^{-1} dauert es 15 sec, um einen Steuerstab vollständig in den Kern abzulassen und so seine volle Wirkung nutzen zu können. Der optisch leicht feststellbare Unterschied und weitere Nachteil ist das Fehlen eines massiven Betoncontainers gegen Aktivitätsfreisetzungen bei Unfällen. Die überwiegenden Vorteile, die niedrigen Baukosten und die Möglichkeit, waffenfähiges Plu-

1.5 Tschernobyl - der größte Unfall in der friedlichen Nutzung der Kernenergie

nium zu produzieren, waren es vor allem, die die frühere UdSSR bewegt haben, von 1973 bis 1990 von diesem Kernkraftwerkstyp 17 zu errichten. Zurzeit sind noch 11 Reaktoren in Russland sowie 2 in Litauen im Einsatz. Sechs 1986 im Bau befindliche RBMK-Reaktoren (3 in Russland, 2 in der Ukraine, 1 in Litauen) wurden aufgrund des Unfalls nicht in Betrieb genommen oder in einen anderen Reaktortyp umgewandelt. Zudem versuchte man, die bestehenden RBMK-Reaktoren mit internationaler Hilfe zu verbessern und die den Unfall bedingten Schwachstellen zu beseitigen [Min01].

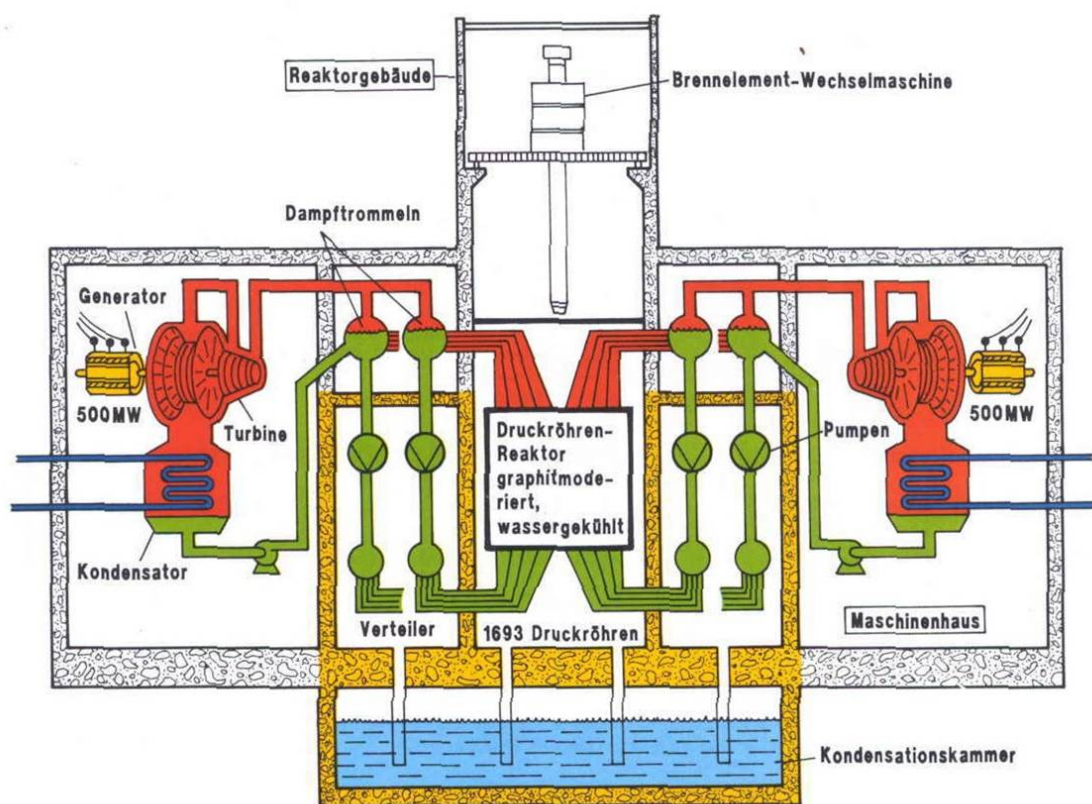


Abbildung 1.7: Aufbau des Tschernobyl-Reaktors [Kru96]

1.5.2 Ablauf

Der Reaktorunfall wurde durch einen Versuch ausgelöst, der zum Ziel hatte, die Kernkühlung beim Verlust der Energieversorgung (station blackout) zu testen. In einem solchen Fall würde die Notstromversorgung ca. 35 Sekunden benötigen, um die Systeme wieder mit Strom zu versorgen. Theorie war es, während dieser Zeit die Kühlwasserpumpen mit der selbst erzeugten Energie der auslaufenden Turbinengeneratoren zu versorgen. Ursprünglich sollte dieser Versuch schon früher während des Anfahrvorganges von Block 4 routinemäßig durchgeführt werden. Aufgrund des anstehenden Neujahrfestes wurde er jedoch auf den 25/26 April 1986 verschoben.

Für den Versuch sollte die Reaktorleistung auf 22 %-36 % heruntergefahren werden. Unterhalb von 22 % wäre der Reaktor instabil und schwer zu kontrollieren. Anschließend sollten durch eine auslaufende Turbine die Hauptkühlmittelpumpen betrieben werden. Damit die Notkühlmittelpumpen nicht automatisch zuschalten würden, wurden sie unverfügbar gemacht. Von diesem Plan wurde jedoch in einigen Punkten abgewichen. Das Uranium Institute aus Kiew veröffentlichte folgende Darstellung der Ereignisse:

25.04.1986	Testvorbereitungen
01:06	Beginn der Leistungsreduzierung.
13:05	Reaktorleistung auf 50 %.
14:00	Freischalten der Notspeisewasserpumpen. Weiteres Absenken der Reaktorleistung durch Anforderung des Lastverteilers in Kiew zunächst unterbrochen. Die Notspeisewasserversorgung blieb weiter unverfügbar.
23:10	Leistungsreduzierung fortgesetzt.
26.04.1986	
00:05	Reaktorleistung erreicht 22,6 %.
00:28	Reaktorleistung erreicht ca. 16 %. Die Reaktorleistungsregelung wurde auf Automatikbetrieb umgeschaltet. Aufgrund eines Operatorfehlers fällt die Reaktorleistung unkontrolliert auf unter 1 %. Der rasche Abfall wird beschleunigt durch den Kollaps der Dampfblasen im Kern.

1.5 Tschernobyl - der größte Unfall in der friedlichen Nutzung der Kernenergie

00:32	Der Operator versucht, die Leistung durch Ziehen von Steuerstäben wieder anzuheben. Durch eine Xenon-Vergiftung wird die Leistungssteigerung jedoch erschwert. Es ist anzunehmen, dass dabei deutlich mehr Steuerstäbe aus dem Kern gefahren werden, als es die Betriebsvorschriften zulassen. Eine sichere Schnellabschaltung des Reaktors ist zu diesem Zeitpunkt nicht mehr möglich.
01:00	Reaktorleistung stagniert bei ca 7 %.
01:03	Zuschalten einer weiteren Hauptkühlmittelpumpe, um den Kerndurchsatz entsprechend Testprogramm zu erhöhen. Der erhöhte Kerndurchsatz führt zum weiteren Kollaps von Dampfblasen im Kern und zum Druck- und Füllstandsabfall in den Sammlern.
01:07	Zuschalten einer weiteren Pumpe im Parallelkreislauf. Der geringe Dampfblasenanteil im Kern reduziert den hydraulischen Widerstand im Kühlkreislauf und führt zu einem erhöhten Kühlmitteldurchsatz im Kern. Aufgrund einer geringen Unterkühlung des Kühlmittels werden keine Dampfblasen mehr produziert.
01:15	Schutzeinrichtungen zur Füllstandsüberwachung in den Sammlern werden von Hand unwirksam geschaltet, um einen Weiterbetrieb der Anlage zu ermöglichen.
01:18	Der Operator erhöht den Speisewasserdurchsatz, um die Sammlerfüllstände wieder anzuheben. Die Einspeisung von kaltem Speisewasser führt zu einer weiteren Unterkühlung des Reaktorkühlmittels.
01:19	Um die Reaktorleistung zu erhöhen, werden weiter Steuerstäbe von Hand aus dem Kern gefahren. Zu diesem Zeitpunkt sind wahrscheinlich nur noch 8 manuell verfahrbare Steuerstäbe im Kern, erheblich weniger als die vorgeschriebene operationelle Reserve von 15.
01:22	Der Füllstand in den Sammlern normalisiert sich; der Speisewasserdurchsatz wird wieder reduziert. Das führt zu einem langsamen Temperaturanstieg am Kerneintritt. Die Dampfblasenbildung steigt an.
01:22:30	Aufgrund der zu geringen Anzahl von Steuerstäben im Kern hätte die Anlage zu diesem Zeitpunkt abgeschaltet werden müssen. Dieses wurde aus nicht nachvollziehbaren Gründen unterlassen.
	Testbeginn

1 Grundlagen

1:23:04	Die Turbinenventile werden entsprechend der Planung geschlossen. Normalerweise wäre jetzt eine automatische Reaktorabschaltung erfolgt, da der zweite Turbosatz im Rahmen der Testvorbereitungen am Tage vorher abgeschaltet worden war. Diese Automatik war jedoch vom Betriebspersonal unwirksam gemacht worden, um den Weiterbetrieb der Anlage zu ermöglichen.
01:23:10	Steuerstäbe werden aufgrund der Turbinenabschaltung automatisch aus dem Kern gezogen, um den damit verbundenen Reaktivitätsabfall zu kompensieren. Die Hauptkühlmittelpumpendrehzahl sinkt.
01:23:21	Die Dampfblasenproduktion im Kern steigt bis auf einen Punkt, ab dem eine weitere Dampfblasenproduktion aus physikalischen Gründen zu einer raschen Leistungssteigerung führt.
01:23:35	Die Leistungsexkursion im Reaktor beginnt.
01:23:40	Der Operator bemerkt den Leistungsanstieg und löst Reaktorschnellabschaltung aus. Das Einfahren der Stäbe von oben verschiebt das Zentrum der Leistungserzeugung in den unteren Kernbereich.
01:23:44	Der Reaktor wird prompt kritisch, die Reaktorleistung ist 100 mal größer als der Auslegungswert.
01:23:45	Es treten Kernschäden auf, der Brennstoff reagiert mit dem Kühlmittel. Der Druck im Kern steigt massiv an. Die Reaktorleistung erreicht einen Wert, der ca. 440 mal größer als der Auslegungswert ist.
01:23:48	Eine Dampfblasenexplosion findet statt. Der 1000 Tonnen schwere Reaktordeckel wird angehoben und um 90 Grad gedreht. Die mit dem Deckel verbundenen Rohrleitungen reißen ab. Der Reaktor wird zerstört.
danach	Luft kommt in Kontakt mit dem Kern. Als Reaktion mit dem Graphitmoderator entsteht brennbares CO. Möglicherweise wird aufgrund der Zirkon-Wasserreaktion auch Wasserstoffgas freigesetzt. Die Gase entzünden sich. Glühende Partikel werden aus dem zerstörten Kern geschleudert und führen zu ca. 30 Folgebränden. Von den ca. 140 Tonnen Kernbrennstoff werden etwa 8 Tonnen, zusammen mit Teilen des radioaktiven Graphitmoderators, aus dem Kern geschleudert und auf dem Gelände verteilt. Erst am Nachmittag des 27. beginnt in der nächstgelegenen Stadt Pripjat die Evakuierung der Bevölkerung. Die Bevölkerung wird nicht oder nur spärlich über die Katastrophe informiert. Schutzmassnahmen, wie z.B. die Einnahme von Iodtabletten oder Aufsuchen von sicheren Räumen, werden nicht getroffen.

Die eigentliche Ursache des Unfalles zu erklären, fällt schwer, da ähnliche schwere Unfälle bisher nicht aufgetreten sind und man fast ausschließlich auf Augenzeugenberichte, Messungen und nachgestellte Experimente angewiesen ist. Ein Zusammenspiel von menschlichen Versagen, Unwissenheit über die spezielle Auslegung des Reaktors und der Zeitdruck, unter dem das Betriebspersonal stand, dürften ausschlaggebend gewesen sein. Auch die vor dem eigentlichen Testbeginn aufgetretene und nicht erkannte Xenonvergiftung im Kern ist vermutlich für die Katastrophe mitverantwortlich [Bot99].

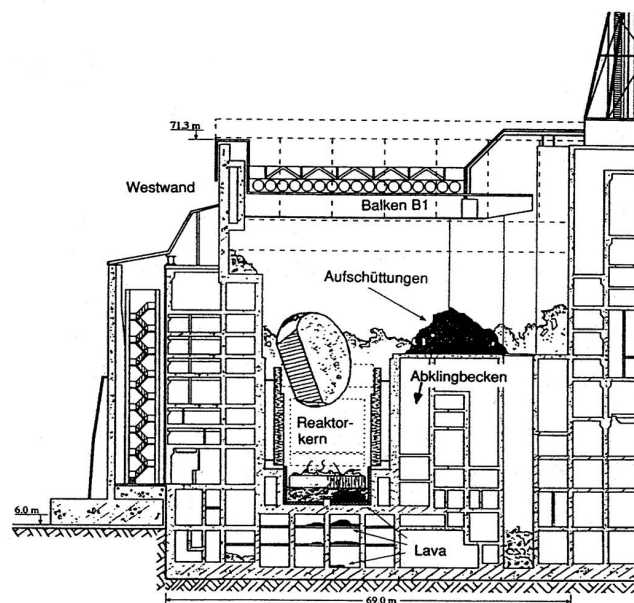


Abbildung 1.8: Skizze des Reaktors nach dem Unfall [UNS00]

1.5.3 Freisetzung von Nukliden

Die 1986 und 1988 anfängliche Einschätzung der Freisetzung von UNSCEAR konnte durch den Report von UNSCEAR 2000 auf eine Freisetzung von insgesamt 5300 PBq nach unten korrigiert werden [UNS00]. Die in Tabelle 1.3 aufgelisteten Werte wurden von L. Devell, M. Dreicer et al. und die Nuclear Energy Agency of the Organisation for Economic Cooperation and Development ermittelt und ihr prozentualer Anteil am Gesamtinventar errechnet. Von den 5300 PBq wurden am Unfallstag ca. 450 PBq freigesetzt. Durch Löscharbeiten sank in der folgenden Woche die tägliche Emission auf Durchschnittlich 80-100 PBq. Die zur Löschung und Abdeckung eingesetzten Materialien behinderten jedoch die Wärmeabfuhr und führten

zum Aufheizen des Kerns. Dadurch nahm die Freisetzung in den nächsten Tagen wieder zu und erreichte mit ca. 250 PBq am 9. Tag nach dem Unfall einen neuen Höhepunkt. Im Anschluss sanken die Emissionen stark ab. Dies führt man auf das Ende der Brände, auf die Umwandlung vom Reaktorinventar in physikalisch und chemisch stabilere Formen und auf die Einleitung von flüssigem Stickstoff zurück.

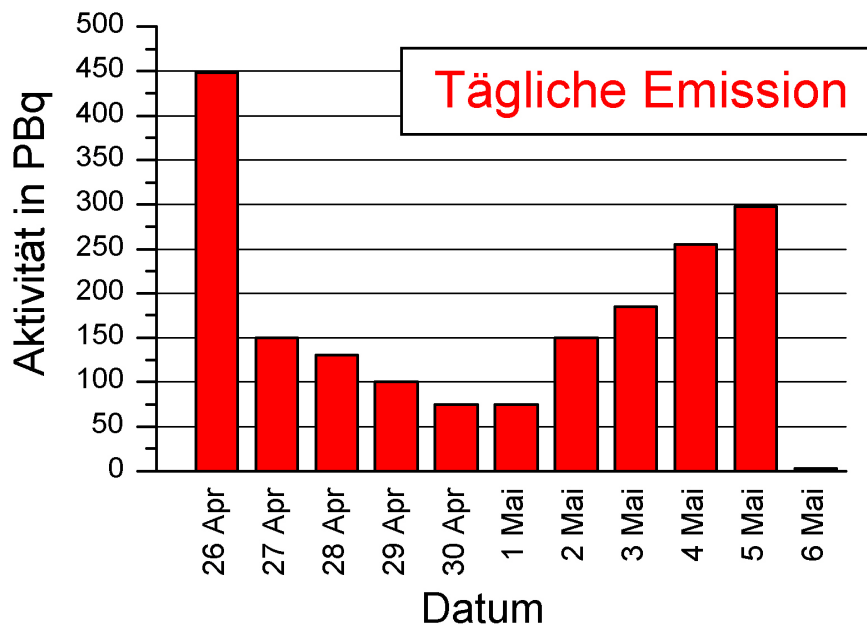


Abbildung 1.9: Zeitliche Freisetzung von Radionukliden

Sowohl im zeitlichen Verlauf als im prozentuale Anteil variieren die Nuklide ihren chemischen und physikalischen Eigenschaften entsprechend. Von den Spaltprodukten mit Edelgaskonfiguration nimmt man eine Freisetzung um 100 % an. Andere schwerer flüchtige Substanzen wurden teilweise nur mit 2-5 % ihres Aktivitätsinventars emittiert. Der Anteil des in dieser Arbeit näher betrachteten Nuklids ^{90}Sr schätzt man mit 10 PBq auf ca. 5 %.

Tabelle 1.3: Aktivitätsinventar von Block 4 und Radionuklidfreisetzungen
als Folge des Unfalls [UNS00]

Radionuklid	Halbwertszeit	Aktivitätsinventar vor dem 26.04.86 in PBq	Freisetzungen in PBq	Freisetzung in Prozent des Inventars
Edelgase				
Kr-85	10,7 a	33	33	100
Xe-133	5,25 d	6500	6500	100
flüchtige Elemente				
Te-132	3,26 d	4200	1150	27
I-131	8,04 d	3200	1760	55
I-132	2,3 h	4200	1040	25
I-133	20,8 h	4800	910	19
I-135	6,61 h	2900	250	9
Cs-134	2,06 a	150	54	36
Cs-137	30,0 a	260	85	33
mittlere Elemente				
Sr-89	50,5 d	3960	115	3
Sr-90	28,5 a	220	10	5
Ru-103	39,3 d	3770	>168	4
Ru-106	368 d	860	>73	8
Ba-140	12,7 d	6070	240	4
schwerflüchtige Elemente (einschl. Brennstoffteilchen)				
Zr-95	64,0 d	5850	196	3
Mo-99	2,75 d	5660	>168	3
Ce-141	32,5 d	6070	196	3
Ce-144	284 d	5550	116	2
Np-239	2,36 d	58100	945	2
Pu-238	87,74 a	0,93	0,035	4
Pu-239	24065 a	0,96	0,03	3
Pu-240	6537 a	1,5	0,042	3
Pu-241	14,4 a	190	6	3
Cm-242	163 d	31	0,9	3
Absolut			5300	

1.5.4 Gegenmaßnahmen vor Ort

Die unmittelbaren Ziele in den Tagen nach dem Unfall kann man zusammenfassen in einer Verhinderung einer erneuten Kettenreaktion, Kühlung der Brennelemente, Abschirmung der Direktstrahlung, Bekämpfung der Feuer und Minimierung der Aktivitätsfreisetzung. Hierzu wurden in den ersten Stunden 200-300 Tonnen Wasser mittels Notpumpen in die Reste des Reaktorkerns gepumpt. Das Vorhaben stellte man jedoch nach einigen Stunden ein, da eine Kühlung der Graphitblöcke kaum erreicht wurde und durch die großen Mengen abfließenden Wassers leicht lösliche Radionuklide in die Umwelt getragen wurden. Um eine weitere Emission trotzdem zu verhindern, begann man, mit mehr als 30 Militärhubschraubern Material in den Reaktor fallen zu lassen. Das Material bestand aus insgesamt 40 t Borcarbid (B_4C) gegen eine erneute Kettenreaktion, 800 t Dolomit [$CaMg(CO_3)_2$] zum Auffangen der freigesetzten Energie und Erstickung des Feuers durch Kohlenmonoxid-Bildung, 2400 t Blei zur Abschirmung der γ -Strahlung und 1800 t Sand und Lehm als Adsorptionsmittel freigesetzter radioaktiver Stoffe. Diese Materialien bewirkten die bereits erwähnte Behinderung der Wärmeabfuhr und die damit verbundene erneute Erhitzung des Kerns und verstärkte Freisetzung von Nukliden nach ca. 10 Tagen. Schließlich wurde noch mit flüssigem Stickstoff gespült, dessen Einsatz und Wirkung bis heute umstritten ist. Weiterhin grub man einen Tunnel unter den Reaktor und baute eine Betonplatte, die eine Kontamination von Grundwasser mit geschmolzenen Reaktorinventar unterbinden sollte [UNS00] .

1.5.5 Maßnahmen zum Schutz der Bevölkerung

Erste Messungen zeigten eine Gefahr von akuten Strahlenschäden für die nächstgelegene Ortschaft Pripjat. Aus diesem Grund wurde einen Tag nach dem Unfall, den 27.4.1986, die 50 000 Einwohner zählende Stadt evakuiert. Im Verlauf der folgenden Tage wurden umfangreiche Evakuierungsmaßnahmen abhängig vom Abstand zum Reaktor und der gesamt-radiologischen Situation beschlossen. Die Evakuierung dehnte man auf eine 30-km-Zone aus und in manchen Fällen auch darüber hinaus. Die 30-km-Zone wurde als Sperrzone deklariert und Aufenthalt ohne Genehmigung sowie Wohnen innerhalb der Zone untersagt. Durch die Einrichtung von Kontrollpunkten sollte die Verschleppung radioaktiven Materials aus der Zone heraus verhindert werden. Innerhalb von 10 Tagen wurden über 130 000 Menschen überwiegend über Busse evakuiert. Die zeitliche Reihenfolge und die Anzahl der Betroffenen Personen sind in folgender Tabelle wiedergegeben:

Tabelle 1.4: Zeitpunkt der Evakuierung und Personenanzahl
in den betroffenen Gebieten [UNS00]

Bereiche	Datum	Anzahl der Evakuierten
Ukraine		
Pripyat Stadt	27. April 1986	49360
Eisenbahnstation Yanov	27. April 1986	254
Burakovka Dorf	30. April 1986	226
15 Dörfer innerhalb der 10-km Zone	3. Mai 1986	9864
Tschernobyl Stadt	5. Mai 1986	13591
43 Dörfer innerhalb der 30-km Zone	3-7 Mai 1986	14542
8 Dörfer außerhalb der 30-km Zone	14-31 Mai 1986	2424
4 Dörfer außerhalb der 30-km Zone	10.6-16.8.1986	434
Bober Dorf	September 1986	711
insgesamt 75 Siedlungen		91406
Weißrussland		
51 Dörfer innerhalb der 30-km Zone	2-7 Mai 1986	11358
28 Dörfer außerhalb der 30-km Zone	3-10 Juni 1986	6017
29 Dörfer außerhalb der 30-km Zone	Aug./Sept. 1986	7350
insgesamt 108 Siedlungen		24725
Russland		
4 Dörfer des Krasnaya Gora Distrikts	August 1986	186
insgesamt 187 Siedlungen		116317

Obwohl nach heutigem Stand des Wissens die Bevölkerung in Weißrussland die höchste Strahlenexposition aufweist, fanden Evakuierungen dort erst ab dem 2.5.1986 statt, 6 Tage nach dem Unfall. Insgesamt evakuierte man 187 Siedlungen, davon 75 aus der heutigen Ukraine, 108 aus Weißrussland und 4 aus dem heutigen Russland. 116 317 Menschen mussten sich eine neue Unterkunft suchen und kamen zunächst überwiegend bei Familien unter, später in Wohnungen der ukrainischen Landeshauptstadt Kiew. Zur Zeiten der Sowjetunion wurden Auswirkungen des Unfalles über die 30-km-Zone hinaus von russischer Seite ausgeschlossen. Mit dem Beginn der Politik der „Glasnost“ in den späten 80er Jahren kurz vor der Unabhängigkeit der Ukraine wiederrief man dies jedoch und teilte darauf die kontaminierten

Gebiete um den Reaktor nach gemessenen ^{137}Cs -Aktivitäten in vier Zonen ein. Da das ^{137}Cs langfristig mit Abstand das dosisrelevanteste Nuklid ist, war diese Entscheidung geeignet:

- Zone I: $> 1480 \text{ kBq m}^{-2} \text{ }^{137}\text{Cs}$ ($40 \mu\text{Ci m}^{-2}$), Sperrzone, 2830 km^2 , 76 Siedlungen evakuiert, ca. 800 Personen sind bis 1998 trotz Verbotes in ihre Heimatdörfer zurückgekehrt
- Zone II: $> 555 \text{ kBq m}^{-2} \text{ }^{137}\text{Cs}$ ($15 \mu\text{Ci m}^{-2}$), offiziell Sperrzone, 882 km^2 , 92 Siedlungen evakuiert, erwartete Zusatzdosis $>5 \text{ mSv a}^{-1}$, Aufgrund fehlender Alternativen wurden ca. 11 000 Menschen nicht evakuiert und eine Vielzahl sind zurückgekehrt
- Zone III: $> 195 \text{ kBq m}^{-2} \text{ }^{137}\text{Cs}$ ($5 \mu\text{Ci m}^{-2}$), Umsiedlung gestattet, nur von 5 % der Bevölkerung wahrgenommen, 3177 km^2 , 835 Siedlungen, Zusatzdosis ca. $1\text{-}5 \text{ mSv a}^{-1}$
- Zone IV: $> 37 \text{ kBq m}^{-2} \text{ }^{137}\text{Cs}$ ($1 \mu\text{Ci m}^{-2}$), 1,8 Millionen Menschen leben auf 37000 km^2 und werden radiologisch überwacht, erwartete Zusatzdosis $<1 \text{ mSv a}^{-1}$

Die in Zone II lebenden Menschen stellen zurzeit die größte Problematik dar. Offiziell dürfen sie dort nicht wohnen, werden aber von der Regierung toleriert.

1.5.6 Personengruppen

Die durch den Unfall betroffenen Bevölkerungsgruppen lassen sich wie folgt einteilen:

- Mitarbeiter des Kernkraftwerkes, die während des Unfalles anwesend waren und die Rettungsmannschaften, die am 26.4. erste Maßnahmen durchführten
- Liquidatoren, die in den folgenden Jahren mit Aufräumungs- und Sicherheitsaufgaben beschäftigt waren
- Bewohner von kontaminierten Gebieten aus den Zonen I-III ($>37 \text{ kBq m}^{-2} \text{ }^{137}\text{Cs}$)
- Rückwanderer, die aus den evakuierten Gebieten stammen und zurückgekehrt sind
- Kinder und Jugendliche, deren Schilddrüsen durch Inkorporation kontaminierter Luft und Nahrungsmittel durch ^{131}I von Mai bis Juni 1986 hoch belastet wurden
- Die Bevölkerung im europäischen Fernbereich

Reaktorpersonal

Die Mitarbeiter und Rettungsmannschaften erhielten in den ersten Stunden nach dem Unfall die höchste Strahlenexposition. Die Gruppe, die etwa 600 Personen umfasst, wurde in erster Linie durch externe γ -Strahlung exponiert und durch starke β -Verbrennungen von auf der Haut abgelagerten hochradioaktiven Aerosolen geschädigt.

Tabelle 1.5: Belegschaft und Rettungspersonal in Tschernobyl in den ersten Stunden nach dem Unfall [UNS00]

Gruppe	Zeugen des Unfalls	Rettungsmannschaften am 26.04.86
Belegschaft Blöcke 1-4	176	480
Bauarbeiter	268	-
Feuerwehrlaute	24	69
Wachpersonal	23	113
lokales Sanitätspersonal	-	10

Eine akute Strahlenkrankheit wurde bei 237 Personen festgestellt, was sich in der Verringerung der Knochenmarksfunktion und Absenkung von Lymphozyten widerspiegelte. Nach klinischen Test und späterer Überprüfung der Testdaten konnten für 134 Personen der 237 die Symptome bestätigt werden. Dieser kritische Personenkreis erhielt zwischen 0,8 und 16 Gray (Gy) und wurde in Spezialkliniken in Moskau und Kiew behandelt:

Tabelle 1.6: Dosisbereich und Todesfälle für die Personen mit bestätigten akuten Strahlenschäden [UNS00]

Einstufung	Dosisbereich (Gy)	Anzahl Tote	Anzahl Überlebende
schwach	0.8-2.1	0 (0 %)	41
mittel	2.2-4.1	1 (2 %)	49
stark	4.2-6.4	7 (32 %)	15
sehr stark	6.5-16	20 (95 %)	1
Insgesamt	0.8-16	28	106

28 Personen verstarben während der ersten vier Monate nach dem Unfall. Durch zwei nicht strahlenbedingte Unfälle, die sich in den ersten Stunden während des Unfalls bei Löscharbei-

ten ereigneten und einen Herzinfarkt steigt die Zahl der Todesopfer auf 31. Weitere 11 Personen, die nach dem Unfall an akuter Strahlenkrankheit (ARS) litten, starben in den Jahren von 1986-1998. Davon schied einer an Leukämie aus dem Leben, alle anderen an Krankheiten, die keinen ursächlichen Zusammenhang mit Strahleneinwirkungen haben (zwei an Rückenmarkfehlbildung, drei an Herzinfarkt, einer an Wundbrand, einer an Tuberkulose, zwei an Leberzirrhose und einer an Fettembolie) [Mic01, UNS00].

Liquidatoren

Die Zahl der Liquidatoren schwankt zwischen 600 000 (russische Literatur; aus [Min01]) und 800 000 (WHO, UN). Rund 300 000 davon waren Armeeinghörige. Zu ihren Aufgaben gehörten Aufräumarbeiten um und auf dem Reaktor, Bau eines Tunnels unter dem Reaktor zur Verhinderung von Grundwasserkontamination, Bau eines provisorischen Schutzes - des Sarkophages - und Bau von Wasseraufbereitungsanlagen. Die Arbeiten waren so geplant, dass ein Arbeiter, während seines Einsatzes, maximal eine Dosis von 250 mSv erhalten würde. Durch kurzzeitige Arbeiten mit Hot Particles (überwiegend kompaktes Material aus den Brennstäben) betrug die Dosis in manchen Fällen jedoch bis zu 1000 mSv. Die Dosisabschätzung ist allerdings ähnlich ungenau wie die Anzahl der Liquidatoren und besonders für die ersten beiden Jahre sind die Dosen der Liquidatoren kaum bekannt. In der Ukraine, in Russland und Weißrussland wurden bis Mitte der neunziger Jahre etwa 50 % der vermutlich eingesetzten Liquidatoren registriert. Viele Personen ließen sich fälschlicherweise als Liquidatoren registrieren, um im Falle von Krankheit vom Staat zugesagte bessere und günstigere Versorgung zu erhalten und zudem soziale Vorteile in der Gesellschaft wahrnehmen zu können. Bis heute ist unter den Liquidatoren keine statistisch signifikante Erhöhung von stochastischen Schäden festzustellen [Min01].

Evakuierte und Zurückgekehrte

Wie auch bei den Liquidatoren ist eine Abschätzung der Dosis mit großen Unsicherheiten versehen. Nach Unsear 2000 schätzt man, dass 30 % der Evakuierten effektive Dosen von weniger als 10 mSv erhalten haben, 86 % weniger als 50 mSv und lediglich 4 % der Evakuierten erhielten mehr als 100 mSv. Die Höhe der Dosis hing nicht nur von der Entfernung zum Reaktor ab, sondern auch zu welchem Zeitpunkt die Evakuierung erfolgt ist. Die Abschätzung erfolgte zumeist nach der Evakuierung über die Messung von Radionuklidgehalten in der Luft und auf dem Boden. Durch die Evakuierungsmaßnahmen konnte ein Teil der potentiellen Strahlenexposition abgewendet werden, allerdings erfolgte die Evakuierung in vielen

Bereichen der Zonen später, als sie hätte erfolgen können. Dies ist auf eine schlechte Informationspolitik gegenüber der Bevölkerung, eine Unterschätzung des Risikos in den ersten Tagen und organisatorische Probleme zurückzuführen. Weitere Maßnahmen, die in den ersten Tagen zu einer Verminderung der Exposition hätten führen können, wie die Verteilung von Iodtabletten und der damit verringerten Aufnahme von ^{131}I , wurden versäumt [Mic01].

Kinder und Jugendliche

Besonders hervorzuheben ist die radioaktive Iodbelastung durch das kurzlebige Nuklid ^{131}I ($T_{1/2} = 8 \text{ d}$), dass überwiegend durch die erste Windfahne Richtung Norden im heutigen Weißrussland zu einer Strahlenexposition geführt hat. Dies wurde zunächst unterschätzt und ist erst nach ca. vier Jahren aufgefallen, als die Zahl der Schilddrüsenerkrankungen bei Kindern und Jugendlichen dort signifikant anstieg.

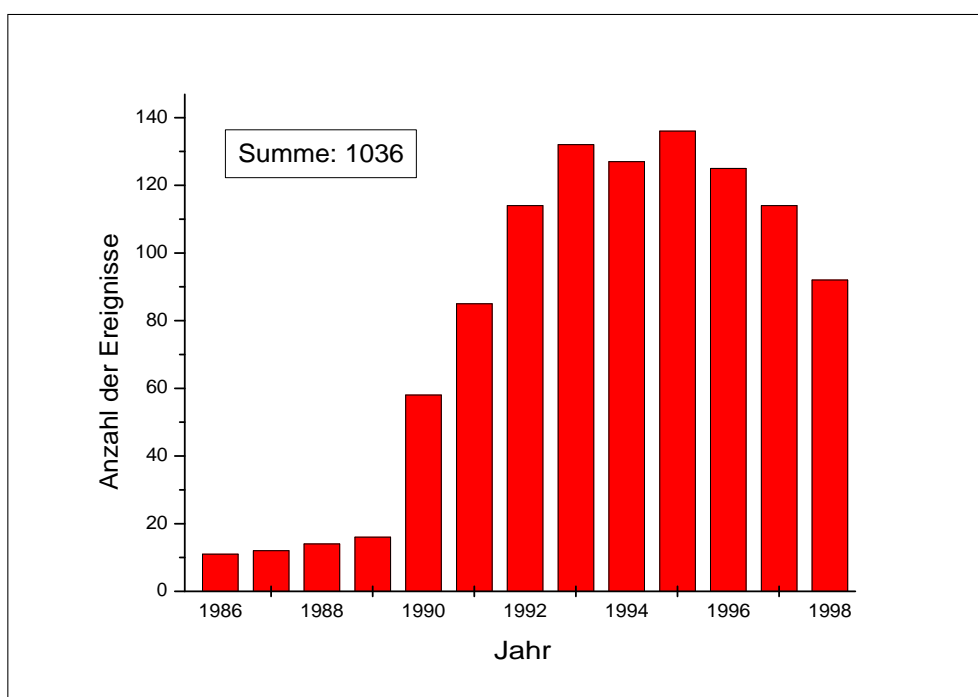


Abbildung 1.10: Schilddrüsenkrebsfälle bei Kindern unter 15 Jahren in den betroffenen Gebieten

Rückrechnungen ergaben Schilddrüsendosen für Kinder von mehreren Sievert. Die Gesamtzahl der Krebsfälle ist noch nicht abschätzbar, da noch offen ist, wie lange sich die Erhöhung der Inzidenz von Schilddrüsentumoren fortsetzt und ob sie auch noch bei den Erwachsenen

sichtbar wird. Bis 1998 sind es Insgesamt in Weißrussland 607 Schilddrüsenkrebsfälle bei Kindern, in der Ukraine 402 und im heutigen Russland 27. Somit hat es seit dem Unfall 1036 Schilddrüsenkrebsfälle gegeben, ohne den Unfall wären statistisch ca. 15 Fälle pro Jahr zu erwarten gewesen (damit 180 Fälle von 1986-1998) .

Tabelle 1.7: Schilddrüsenkrebs bei Kindern in den Folgejahren [UNS00]

Jahr	Weißrussland	Russland	Ukraine
1986	3		8
1987	4	1	7
1988	6		8
1989	5		11
1990	31	1	26
1991	62	1	22
1992	62	3	49
1993	87	1	44
1994	77	6	44
1995	82	7	47
1996	67	2	56
1997	73	5	36
1998	48		44
Teilsomme	607	27	402
Gesamtsumme	1036		

Bei Erwachsenen konnte bisher kein Anstieg der Krebszahlen in Schilddrüsen beobachtet werden [Min01].

Bevölkerung im europäischen Fernbereich

Eine Dosisabschätzung für Deutschland wurde 1987 von der SSK (Strahlenschutz Kommission) durchgeführt und 1996 wiederholt. Nach leichter Korrektur zu niedrigeren Werten ergaben sich die in Tabelle 1.8 aufgeführten jährlichen mittleren effektiven Dosen und daraus resultierende 50 Jahre-Lebenszeitdosen. Danach muss man Deutschland in drei verschiedene Bereiche einteilen: Voralpenland, südlich der Donau und nördlich der Donau. Die jährliche Effektivdosis für das Voralpenland entspricht in etwa dem von Österreich und liegt um den Faktor 2-4 höher als der Rest von Deutschland. Insgesamt liegen die Dosen im Bereich der

natürlichen Dosis für Deutschland, die bedingt wird durch kosmische Strahlung, terrestrische Strahlung, Ingestion und Radon. Nach einer Berechnung von [Min01] ergäbe eine solche zusätzliche Dosis bei 80 Millionen Einwohnern in Deutschland zusätzlich ca. 10 000 Krebsfälle bis 2001. Bei einer jährlichen Krebstodesrate von 180 000 Menschen in Deutschland wäre dies eine niemals nachweisbare Größenordnung. Insgesamt liegen die 50-Jahre-Folgedosen für den Europäischen Fernbereich bei 1,9 - 4,7 mSv und sind damit vernachlässigbar. Typischerweise muss bei dieser Abschätzung mit einer geometrischen Standardabweichung von 2 gerechnet werden [Min01].

Tabelle 1.8: Strahlenexposition durch Tschernobyl in Deutschland, Schweiz und Österreich [UNS00]

Gegend	^{137}Cs in kBq m^{-2}	Effektive Dosis in mSv	
		1.Jahr	Lebenszeit
Deutschland			
Voralpenland	32	0,65	2,2
Südlich der Donau	16	0,35	1,3
Nördlich der Donau	4	0,17	0,55
Schweiz		0,22	0,52
Nördlich der Alpen	<14	-	0,2
Südlich der Alpen	<26	-	5,0
Österreich	23	0,54	0,60
Ost-Österreich	-	0,45	-
Oberösterreich	-	0,84	-

1.5.7 Atmosphärischer Transport und Fallout

Ein Großteil der Radioaktivitätsfreisetzung erfolgte in den ersten 11 Tagen nach dem Unfall. Während dieser Zeit änderte sich die Zusammensetzung sowie die chemische Form der radioaktiven Abgaben und die Wetterverhältnisse. Der durch den Unfall verursachte Brand transportierte die Nuklide in größere Höhe und verteilte diese mit drei Hauptwindrichtungen an verschiedenen Tagen über Europa. Die Explosion und der Brand führte allerdings nur zu einer Freisetzung in geringer Höhe verglichen mit der Freisetzung von Radionukliden durch oberirdische Kernwaffentests. Letztere fanden in den 60er Jahren überwiegend

in der Troposphäre statt, wo aufgrund des langsamen Austausches mit der Atmosphäre eine langzeitige globale Verteilung auftrat. Hierbei spielten Wind- und Wetterverhältnisse der unteren Atmosphäre nur eine untergeordnete Rolle. Anders sieht es dagegen bei dem Unfall von Tschernobyl aus. Nach anfänglicher Ausbreitung der Luftmassen über Weißrussland in Richtung Norden schlugen in Finnland erste Überwachungsstationen Alarm. Die zweite Wolke zog in Richtung Westen über Polen, Tschechoslowakei, Ungarn, Österreich, Italien, Deutschland, Schweiz und andere westeuropäische Länder. Nahezu in jedem europäischen Land konnte radioaktiver Fallout aus dem Unfall nachgewiesen werden. Ein weiterer Wechsel der Windrichtung kontaminierte Bereiche in Rumänien, Bulgarien und den Balkanstaaten. Die folgende Abbildung zeigt die drei Hauptwindrichtungen und das Erreichen der jeweiligen Wolke in dem betroffenen Land [UNS88].

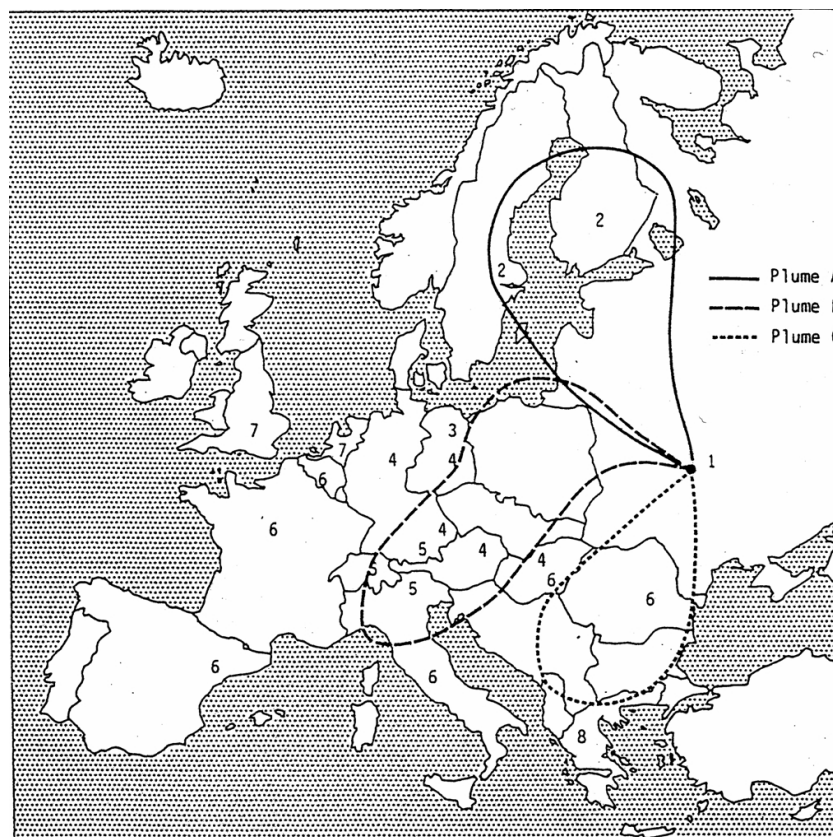


Abbildung 1.11: Darstellung der Ausbreitung der ersten drei radioaktiven Wolken über Europa nach dem Unfall und die Reihenfolge des ^{137}Cs -Nachweises (1-8) [UNS88]

Entscheidend für die Deposition auf der Oberfläche waren die Windrichtung, der Zeitpunkt nach dem Unfall, die Entfernung zum Unglück und die Niederschlagsereignisse. Die chemisch physikalischen Eigenschaften und diese Niederschlagsereignisse sind der Hauptgrund für die inhomogene Verteilung der emittierten Nuklide. So wurde die überwiegende Menge des ^{90}Sr und der Actinoide nicht weiträumig verfrachtet, sondern konnte vornehmlich im Nahbereich des Reaktors wiedergefunden werden. Die höchsten Pu-Kontaminationen findet man im 30-km-Gürtel um den Reaktor. Leichtflüchtige Elemente wie die Edelgase und Iodisotope wie ^{131}I wurden fast vollständig emittiert und zum großen Teil am ersten Tag mit der ersten Wolke in Richtung Norden getragen. Hierin beruht auch die Erklärung, warum die meisten Schilddrüsenerkrankten in dem im Norden befindlichen Weißrussland auftraten. Der ^{137}Cs -Fallout, der nach Abklingen des ^{131}I in den ersten Tagen, das dosisrelevanteste Nuklid ist, liegt nicht nur europaweit, sondern auch örtlich sehr inhomogen vor.

Die größte ^{137}Cs -Deposition in Deutschland fand man in Bayern, südlich der Donau (mittlere Depositionsdichte 16 kBq m^{-2}). Wesentlichen Einfluss hier hatte eine Wolke, die zuvor über Deutschland hinwegzog, vor den Alpen die Richtung änderte und sich dann über Bayern abregnete. Kleinräumige Maximalwerte registrierte man im Berchtesgadener Land und im Bayerischen Wald mit bis zu 100 kBq m^{-2} des ^{137}Cs [Mic01].

1.5.8 Der Sarkophag

Direkt nach dem Unfall am 26.04.1986 im Block 4 des Kernkraftwerkes Tschernobyl begann man mit der Planung, den zerstörten Reaktor von der Umwelt zu isolieren und den benachbarten Reaktor 3 so weiterbetreiben zu können. Hauptziel war es, einen weiteren Austrag durch Erosion und das Auswaschen hochradioaktiver Stoffe durch Regen zu vermeiden. Darauf wurde der Bau einer Konstruktion aus Beton und Stahl beschlossen, der sogenannte Sarkophag. Er umschließt wie auf der Grafik 1.12 zu sehen ist, das Reaktorgebäude samt havariertem Kern. Das von Reaktor 3 und 4 gemeinsam genutzte Maschinenhaus und das Hilfsanlagegebäude wurden getrennt. Auf der nördlichen Seite wurden 50 m hohe Wände aus Beton errichtet. Trümmer und radioaktive Gebinde betonierte man in diesem Bereich mit ein. Die fast intakte Westseite wurde mit einer Stahlkonstruktion versehen. Das Dach des Sarkophages besteht aus zwei 70 m langen Stahlträgern, die wiederum 27 Stahlröhren von je 1,20 m Durchmesser und 36 m Länge halten. Stahlplatten und Betonplatten verlegte man

als Dachabdeckung über diese Stahlröhren. Das Projekt sollte nach nur 6 Monaten Bauzeit abgeschlossen sein, was eine detaillierte Planung nicht möglich machte. Aus diesem Grund und wegen der im Inneren herrschenden aggressiven Bedingungen war ein hermetischer Abschluss des Sarkophages nicht möglich. Noch heute sind Öffnungen von insgesamt über 100 m² festzustellen. Das so eindringende Regenwasser stellt das zur Zeit größte Problem dar. Aus diesem Grund beschloss die ukrainische Regierung in Zusammenarbeit mit westeuropäischen Ländern den Bau eines zweiten Sarkophages über den Alten. Ziele des Neubaues sind:

- kontrollierte Abgabe der Abluft über Filter bei gezielter Unterdruckhaltung
- keine unkontrollierte Abgabe von Aerosole im Falle eines Einsturzes des alten Sarkophages
- Schutz vor Regenwasser und Abpumpen von etwa 3000 m³ Wasser aus den unteren Räumen
- Möglicher Rückbau des alten Sarkophages unter dem Schutz des neuen
- Permanente Kontrolle des Reaktorinventars über Sonden

Zur Dosisminimierung wird eine bogenförmige Konstruktion in einiger Entfernung vom Reaktor gebaut und mittels eines in der Praxis bewährten Schiebeverfahren (hydraulisch auf Gleitlagern) über den bestehenden Sarkophag geschoben. Unterhalb des Daches wird ein Kran installiert, der für einen evtl. Rückbau des alten Sarkophages dienlich sein soll. Das neue Projekt wird zurzeit noch geplant, soll aber bis zum Jahre 2010 unter dem Kürzel SIP (Shelter Implementation Plan) abgeschlossen sein. Der Bau wird überwiegend von westeuropäischen Firmen erfolgen. Der SIP wird von den G7-Staaten und weiteren Geberländern finanziert. Kosten hierfür belaufen sich nach Schätzungen auf ca. 760 Mio US \$, die vermutlich wie folgt aufgeteilt werden: die G-7-Staaten (\$ 394 Mio), EU (\$ 195 Mio), Ukraine (\$ 50 Mio) und andere Länder (\$ 78 Mio). Der Bau ist umstritten, da einige die Notwendigkeit anzweifeln, andere befürchten, das Gelder im ukrainischen System verschwinden. Nach letzten Aussagen der Verantwortlichen wird ein Bau aber sicher erfolgen [Min01].

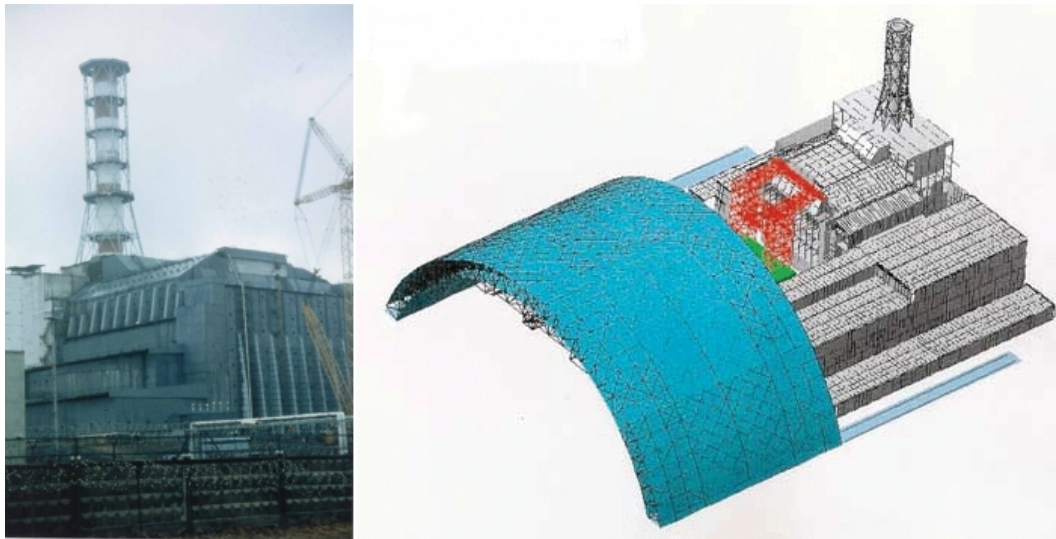


Abbildung 1.12: Alter und neuer Sarkophag

1.5.9 Die Situation heute

Große Teile der Bevölkerung waren nach ihrer Zwangsumsiedlung von 1986-1989 nicht mit den neuen Bedingungen zufrieden. Viele von ihnen waren Landarbeiter, die am Stadtrand von Kiew in eigens dafür gebauten Dörfern untergekommen waren. Seit 1995 strömen diese Menschen auch in größerem Umfang in die evakuierte und bis heute offiziell unbewohnte Zone II zurück. Zusammen mit Menschen, die aufgrund mangelnder Umsiedlungsmöglichkeiten gar nicht erst evakuiert worden sind, bilden sie eine Gruppe illegal wohnender, aber vom Staat tolerierter Personen. Durch den Unfall, seine Folgen und der allgemeinen wirtschaftlichen Rezession in der heutigen Ukraine sind diese Menschen einem beträchtlichen psychischen Druck ausgesetzt, der in der Vergangenheit zu diversen Krankheiten (sogenanntes Tschernobyl-Aids) und Selbstmorden geführt hat. Ob die Gebiete in Zone II in der Zukunft offiziell wieder bewohnt werden dürfen und die Menschen damit auch staatliche Unterstützung erhalten, hängt von genaueren Untersuchungen der vorhandenen Radionuklide und der aus diesen Nukliden resultierenden Exposition ab [Mic01]. Die dosisrelevantesten Nuklide sind hierbei das ^{137}Cs , das ^{90}Sr und Plutoniumisotope. Eine Betrachtung des γ -Strahlers ^{137}Cs wurde ausführlich in einer Vielzahl von Literaturquellen vorgenommen. Bei Strontium und Plutonium gibt es aufgrund des hohen analytischen Aufwandes Nachholbedarf [Min01].

1.5.10 Geheimhaltungspolitik und Presseberichte

Die Geheimhaltungspolitik der damaligen UdSSR in den ersten Tagen nach dem Unfall führte zu einer Reihe von Spekulationen. Am 27.6.86 erteilte das Gesundheitsministerium der UdSSR die Anweisung, alle Daten bezüglich des Unfalles, das Ausmaß über die radioaktive Strahlung und sogar Informationen über Heilung und Krankheiten geheim zu halten. Ein Jahr später erging eine weitere Regierungsanordnung, nach der akute und chronische Krankheiten von Liquidatoren, die weniger als 500 mSv durch den Unfall erhalten hatten, nicht mit der Strahlenbelastung durch die Radionuklidemission in Verbindung gebracht werden dürften. Die objektive Beurteilung der Lage wurde zudem dadurch erschwert, dass viele Personen des Rettungspersonals keine Dosimeter oder Schutzkleidung am Unfallort trugen. Einen Dienstplan in dem Sinne gab es auch nicht, so dass eine anschließende Bewertung, welches Personal wie lange welcher Strahlenbelastung ausgesetzt war, fast unmöglich ist. So basieren die Dosisangaben oft nur auf Abschätzungen und sind nur schwer in direkten Zusammenhang mit stochastischen Schäden zu bringen [Min01].

Zur erschwerten Einschätzung solcher Zahlen kam es zu sehr widersprüchlichen Angaben und Einschätzungen durch die Medien. Die Angaben der Todesopfern beispielsweise schwankte zwischen 30 und 125 000. Berichte über Erhöhung von Leukämien, Tumoren, Geburtsschäden, Säuglingssterblichkeit und genetischen Defekten sind nicht nachvollziehbar, von statistischen Schwankungen kaum zu unterscheiden oder auf andere Ursachen zurückführbar. Die oben genannte Zahl von 125 000 Toten durch Tschernobyl basiert zum Beispiel auf einer Meldung aus dem Jahre 1995. Diese Zahl kam zustande durch die Aussage einer Nachrichtenagentur aus Kiew, die berichtet hatte, dass es im Zeitraum von 1986-1995 125 000 Tote gegeben hatte. In dieser Zahl waren auch die natürlich verstorbenen Menschen enthalten. Bei einer durchschnittlichen Todesrate von 8 % hätte man in diesem Zeitraum sogar mit 140 000 Verstorbenen rechnen müssen. Eine Gesamtbewertung der Folgen von Tschernobyl wird durch derartige Missverständnisse immer wieder erschwert [Mic01].

1.5.11 Zusammenfassung des Reaktorunfalls

Der Unfall von Tschernobyl am 26.04.1986 war das schlimmste Ereignis in der Geschichte der friedlichen Kernenergienutzung. Insgesamt 5300 PBq wurden freigesetzt und mit drei verschiedenen Hauptwindrichtungen über Europa verteilt. Nach der Deposition von mehr als $1 \mu\text{Ci m}^{-2}$ auf $46\,300 \text{ m}^2$ wurden in Weißrussland, der Ukraine und Russland insgesamt 187 Siedlungen mit rund 116 000 Einwohnern evakuiert. Es gab offiziell 31 Tote durch Explosionen und Strahlenkrankheiten, die nachweislich durch den Unfall auftraten. 1036 Fälle von Schilddrüsenkrebs bei Kindern wurden bis 1998 hauptsächlich in Weißrussland gezählt. Der Nachweis für eine Erhöhung von stochastischen Schäden wie Leukämie, Erbschäden und Geburtsfehlern ist nicht erbracht und aufgrund der Statistik (wenige Ereignisse in großen Mengen) vermutlich auch nicht möglich. Der Anstieg von Erkrankungen, Selbstmorden und Gewalt sind nicht ursächlich mit der Strahlenwirkung in Verbindung zu bringen, aber können durch soziale und psychische Konsequenzen durch die Evakuierungen ausgelöst worden sein. In Unscear 2000 [UNS00] werden die schweren gesundheitlichen Folgen des Reaktorunglücks wie folgt zusammengefasst:

Außer dem Anstieg von Schilddrüsenkrebs nach Exposition in der Kindheit gibt es 14 Jahre danach keine Evidenz für eine größere Auswirkung auf die Gesundheit der Bevölkerung durch den Tschernobyl Unfall. Es wurde kein Anstieg der Krebshäufigkeit oder -mortalität beobachtet, der ionisierender Strahlung zugeschrieben werden kann. Das Risiko für Leukämie, eine der schweren Befürchtungen (Leukämie ist wegen seiner kurzen Latenzzeit als erste zu erwarten), ist nicht erhöht, sogar nicht unter den Liquidatoren. Es gibt ebenfalls keinerlei wissenschaftlichen Beweis, dass andere nicht-maligne somatische oder mentale Erkrankungen mit ionisierender Strahlung in Verbindung zu bringen sind (§414).

Weiter heißt es:

Obwohl die als Kinder Exponierten, das Rettungspersonal und das Werkspersonal ein erhöhtes Risiko für strahlenbedingte Auswirkungen aufweisen, muss die große Mehrheit der Bevölkerung nicht in der Angst vor ernststen gesundheitlichen Folgen durch den Unfall leben. Größtenteils wurden sie in vergleichbarem Maße oder um einige wenige Faktoren höher exponiert als durch natürliche Strahlung, und zukünftig wird durch den Zerfall der deponierten Radionuklide die Strahlung abnehmen. Das Leben wurde durch den Unfall von Tschernobyl gestört, aber aus radiologischer Sicht und aufgrund dieses Berichtes sollte sich generell ein positiver Verlauf für die zukünftige Gesundheit der meisten Individuen durchsetzen (§421).

1.6 Deposition auf der Erde

1.6.1 Oberirdische Kernwaffentests

Die Verteilung von ^{90}Sr in der Umwelt ist zum Einen von den bereits beschriebenen Kernwaffenfallouts der 60er Jahre und zum Anderen von lokal begrenzten Emissionen aus Anlagen sowie kontrolliert oder unkontrolliert durch Unfälle gegeben.

Der Großteil der Erdoberfläche ist nur von der Deposition aus oberirdischen Kernwaffentest abhängig. Mit der Einstellung der Test durch den Test Ban Treaty wurde Mitte der 60er Jahre die Emission in die Troposphäre und die damit verbundene bis zu zwei Jahre später stattfindende Deposition gestoppt. Lediglich 10 % der Produktion von Radionukliden fand nach 1963 statt, sogar nur 1 % zwischen 1976 und 1980. So verwundert es nicht, dass die weltweite kumulative Deposition, wie in Abbildung 1.5 aufgezeigt, seit den 60er Jahren bis heute stetig mit etwa der Halbwertszeit des ^{90}Sr abnimmt. Hierbei ist die nördliche von der südlichen Halbkugel zu unterscheiden. Da die meisten oberirdischen Test auf der Nordhalbkugel durchgeführt wurden, fand auch ca. Dreiviertel der Deposition dort statt [Mon96].

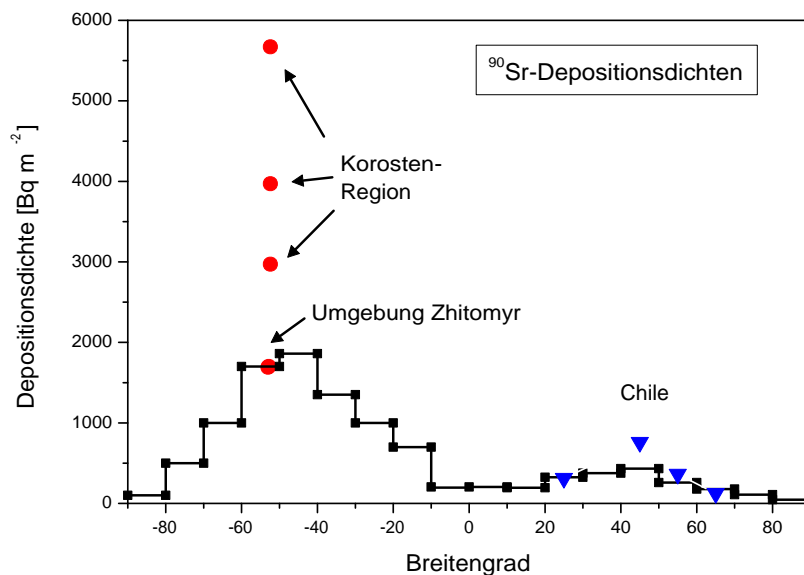


Abbildung 1.13: Breitenabhängige Depositionsdichte des ^{90}Sr mit einzelnen Messpunkten [Fil98]

Während einer Kernwaffenexplosion befinden sich die Spaltprodukte im Plasmazustand, kühlen ab, kondensieren zu Aerosolen oder lagern sich an in der Troposphäre befindlichen Teilchen an. Durch Gravitationskräfte wandern diese Nuklide in die obere Stratosphäre und durch Eddy-Diffusion in die untere Strato- und obere Troposphäre. Wind und Klimaeinflüsse sind für die Ausbreitung verantwortlich. Erreichen die Aerosole tiefere Luftschichten, werden meteorologische Faktoren, wie die geographische Höhe und die Niederschlagsmenge, entscheidend für die Depositionsmenge an der Erdoberfläche. Die Aufenthaltszeit von Teilchen in der Hemisphäre bis zur Ablagerung auf der Erdoberfläche nach einer Explosion kann zwischen 30 Tagen (überwiegend kleine Teilchen, die die Troposphäre gar nicht erst erreichen) und 2 Jahren liegen.

Die Abbildung 1.13 zeigt die Breitenabhängige Verteilung von ^{90}Sr durch oberirdische Kernwaffentests. Gut zu erkennen, ist die dreifache Depositionsdichte auf der nördlichen Halbkugel gegenüber der südlichen Halbkugel und die Maxima im Bereich der gemäßigten Zonen. Dies ist mit dem Transport über die Hauptwinde der Erde weg von den Polen und dem Äquator zu erklären.

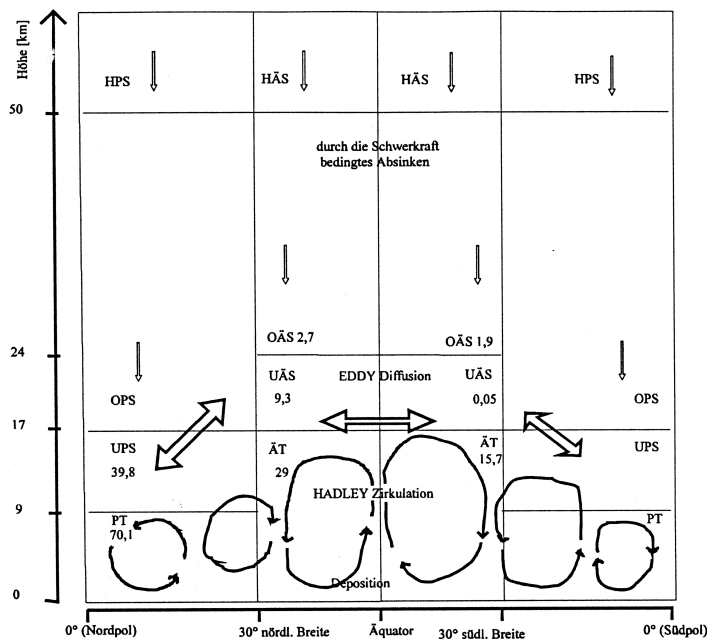


Abbildung 1.14: Windverhältnisse und Transportmechanismen in der Atmosphäre; U (Untere), H (Hohe), O (Obere), P (Polare), Ä (Äquatoriale), S (Stratosphäre), T (Troposphäre)

Zwischen dem Hochdruckgebiet an den Polen und dem Tiefdruckgebiet am Äquator existieren weitere Zirkulationssysteme, die aus der Drehbewegung der Erde um ihre eigene Achse und der sich daraus entwickelnden Coriolis-Kraft entstehen. Dabei werden über die sogenannte Hadley-Zirkulation und zwei weitere kleinere Zirkulationen aus Richtung der Pole Nuklide in die gemäßigte Zone um den 30° nördlicher und südlicher Breite transportiert. Die Depositionsdichte von ^{90}Sr liegt in Deutschland bei ca. 1000 Bq m^{-2} .

1.6.2 Lokale Schwankungen

Lokal kommt es zu Schwankungen in der Depositionsdichte zum einen durch die angesprochenen meteorologischen Einflüsse und zum anderen durch den normalen Betrieb und Unfälle von Kernkraftwerken und Wiederaufbereitungsanlagen. Hierbei hatte der Unfall von Tschernobyl die territorial größte Auswirkung mit Verteilungen von Radionukliden über ganz Europa. Der Großteil des ^{90}Sr ist dabei allerdings im 30-km-Gürtel um den Reaktor in der Ukraine verblieben. Hierbei wurden ca. $10 \text{ PBq } ^{90}\text{Sr}$ freigesetzt.

Auch die stetige und kontrollierte Freisetzung von ^{90}Sr aus Kernkraftwerken und Wiederaufbereitungsanlagen (Grafik 1.6) ist in den meisten Fällen dokumentiert.

Die wichtigsten ^{90}Sr -Schwankungen sind bestimmt durch

- Sellafield 13,5 TBq
- Tschernobyl 10 PBq
- Kernwaffentests 830 PBq
- Wiederaufbereitungsanlagen $>100 \text{ TBq}$
- Kernkraftwerke $5\text{-}6 \text{ MBq a}^{-1}$.

Anhang A Tabelle A.1 zeigt eine Übersicht über die in den Jahren 1966 bis 2001 von Sellafield und La Hague als Lösung emittierten ^{137}Cs -Aktivitäten. In den Jahren 1971-1976 gab es eine Erhöhung der spezifischen Aktivitäten in der Nordsee, die erst in den Jahren nach 1976 durch den radioaktiven Zerfall und die Verdünnung wieder sank. Das Verhältnis von ^{90}Sr und ^{137}Cs war unterschiedlich, so dass eine Messung von der Nordsee in diesen Jahren

durch ihr jeweiliges Verhältnis die Quelle der Kontamination verrät. Hier konnte das ^{90}Sr als Umwelttracer gesehen werden. Aus radiologischer Sicht gibt es bei Konzentrationen bis max. 44 mBq l^{-1} keine Bedenken [Nie98].

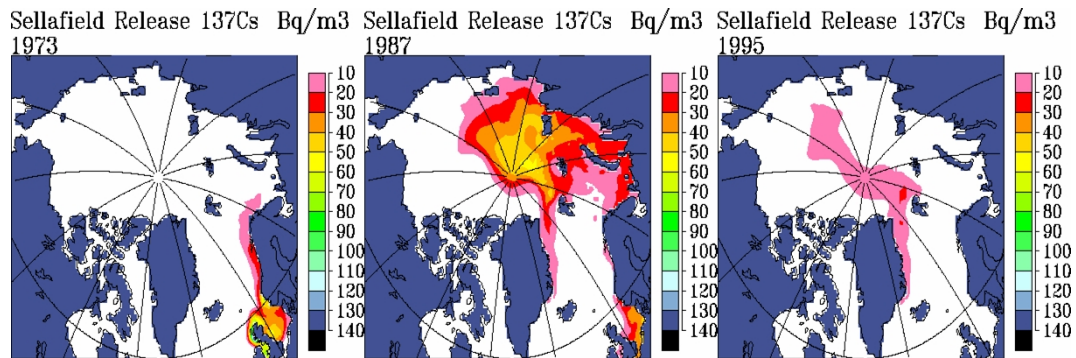


Abbildung 1.15: Verteilung von Radionukliden in der Nordsee nach Emissionen aus Sellafield [Nie98]

Mit Hilfe von Konzentrationen aus verschiedenen Meeren, den weltweit bekannten Depositionsdichten auf Land durch die oberirdischen Kernwaffentests, den kontrollierten Emissionen von verschiedenen Anlagen und Unfällen kann eine Weltkarte erstellt werden. Diese Karte erhebt keinen Anspruch auf Vollständigkeit, berücksichtigt jedoch die wichtigsten Ereignisse. Ein Vergleich zwischen dem Meer und dem Festland ist allerdings schwierig, da es nur Sinn macht, Aktivitäten im Meer auf die Masse bzw. das Volumen zu beziehen und auf dem Land die Aktivität pro Fläche anzugeben.

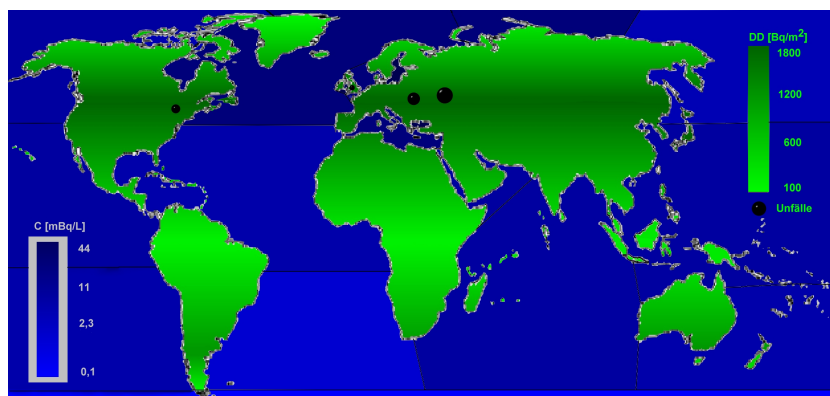


Abbildung 1.16: Weltweite Verteilung des ^{90}Sr auf dem Land und in den Meeren (bez. 2003)

1.7 Bodenkunde

Um die in dieser Arbeit angegebenen Bodenprofile näher bodenkundlich beschreiben und beurteilen zu können, werden hier kurz die Grundlagen für Korngrößen, Bodenarten und -horizonte zusammengefasst.

Böden bestehen aus anorganischen (mineralischen) und organischen Bestandteilen, Wasser und Luft, die in einem komplizierten System chemisch- und physikalischer Wechselwirkungen stehen. Der mineralische Anteil des Bodens wird nach seiner Korngröße in Sand, Schluff und Ton unterteilt. Für die Ernährung von Pflanzen ist dabei der Tonanteil des Bodens aufgrund seiner Eigenschaften von besonderer Wichtigkeit. Die Pflanzennährstoffe entstehen durch Verwitterung der verschiedenen Bodenfraktionen sowie durch mikrobiellen Um- und Abbau in und auf dem Boden befindlicher organischer Stoffe wie Ernterückstände, Laub, Gründünger u.a. Der größte Teil der Mineralstoffe wird in Form von Ionen an die Tonpartikel gebunden und steht mit den im Bodenwasser befindlichen Ionen im dynamischen Gleichgewicht [Sch84].

1.7.1 Korngrößen

Böden sind Gemische aus Mineralkörnern, Gesteinsbruchstücken und Humuspartikeln unterschiedlicher Form und Größe. Die Mengenanteile der Korngrößenfraktionen werden als dessen Korngrößenverteilung oder Körnung bezeichnet. Sie ist eine der wichtigsten Eigenschaften eines Bodens für die Bodenentwicklung, die Puffer- und Filtereigenschaften und das Wasseraufnahmevermögen. Man unterscheidet den Feinboden mit unter 2 mm Korndurchmesser und das Bodenskelett mit über 2 mm Korndurchmesser. Der Feinboden wird nun unterteilt in Sand (2000-63 μm), Schluff (63-2 μm) und Ton (<2 μm). Innerhalb dieser Untergliederung unterscheidet man noch durch die Vorsilben fein, mittel und grob.

In Abb. 1.17 ist die Körnung als Summenfunktion für vier typische Bodentypen aufgezeigt. Die Summenkurve wird durch Summieren der Fraktionsanteile, die der Größe nach aufeinander folgen, erhalten. Ein Löß-Boden besteht danach zu fast 80 % aus Schluff, unter 20 % sind je Sand und Tonfraktionen. Der größte Anteil mit ca. 50 % ist der Grobschluff (gU) mit einem Korndurchmesser von 20-63 μm [Sch84].

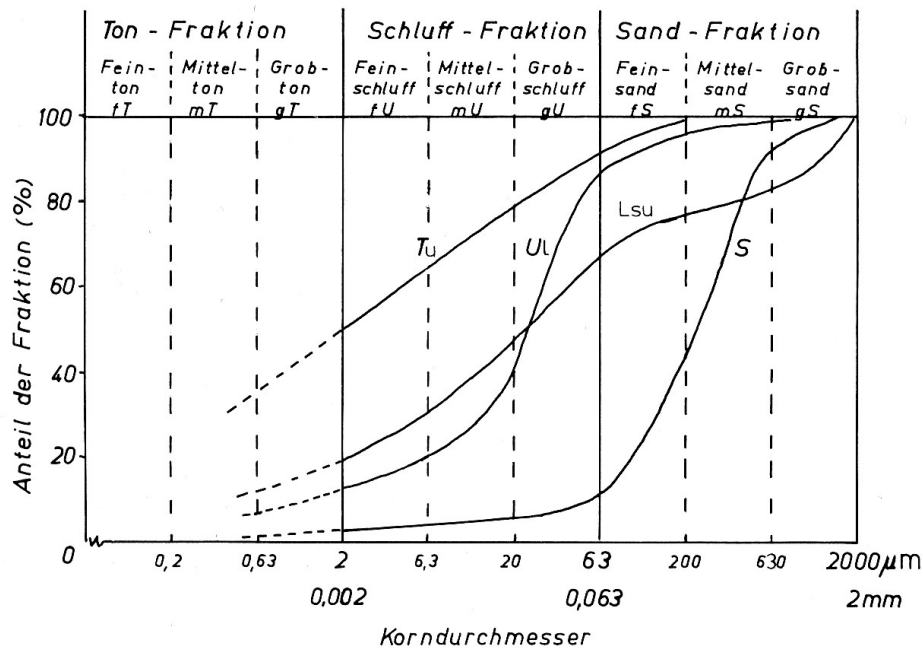


Abbildung 1.17: Körnungs-Summenkurve von Feinböden aus Sand (S), Löß (Ul), Geschiebelehm (Lsu) und tonreichem Schlick (Tu)

1.7.2 Bodenarten

Gemische aus Sand, Schluff und Ton nennt man Bodenarten. Diese werden durch Buchstabenkürzel gekennzeichnet. Dem Hauptanteil entsprechend spricht man von Sand- (S), Schluff- (U) oder Ton (T)-Böden. Andere kleinere aber trotzdem noch stark vertretene Fraktionen werden als Adjektiv hinzugefügt und mit einem kleinen Buchstaben an das Kürzel angehängt (schluffiger Ton entspricht Tu). In der Abbildung 1.18 sind die für Deutschland und die USA gängigen Abkürzung den Gehalten entsprechend aufgelistet.

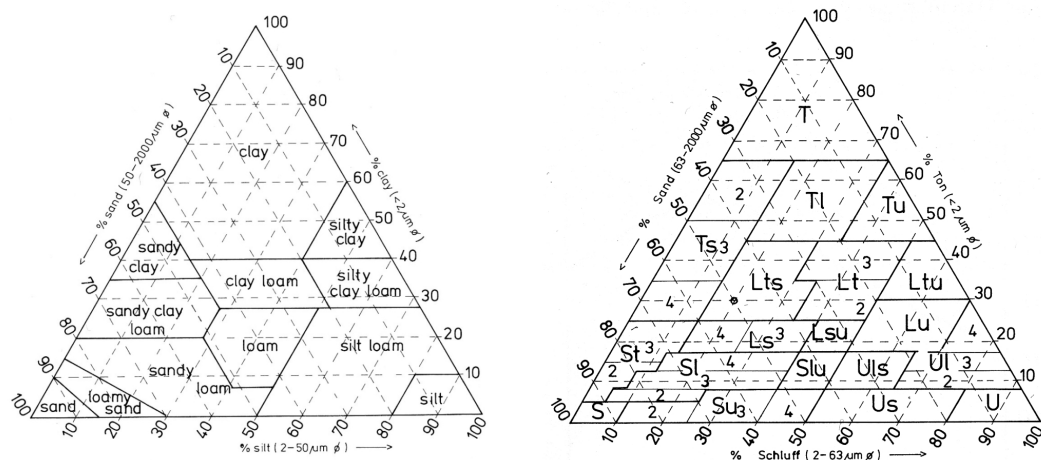


Abbildung 1.18: Bezeichnung von Bodenarten nach DIN 4220 (l) und USA (r)

Eine noch genauere Beschreibung des Bodens erhält man, wenn man Aussagen über das Bodenskelett (Korngröße > 2mm) hinzufügt. Diese werden nach folgender Tabelle untergliedert:

Tabelle 1.9: Klassierung der Bodenskelettanteile nach DIN 4220;
 x steinig (>63 mm ⊙), g kiesig bzw. gr grusig (2-63 mm ⊙)

Vol.-%	Gew.-%	Bezeichnung	Zeichen
<1	<2	sehr schwach	x1, g1, gr1
1-10	2-15	schwach	x2, g2, gr2
10-30	15-45	mittel	x3, g3, gr3
30-50	45-60	stark	x4, g4, gr4
50-75	60-85	sehr stark	x5, g5, gr5
>75	>85	Skelettboden	X, G, Gr

Ein schwach steiniger, lehmiger Schluff wäre somit mit Ul x2 zu kennzeichnen.

1.7.3 Sand-, Ton- und Lehmböden

Klima und Witterung beeinflussen nachhaltig die Eigenschaften von Böden. Folgende Ausführungen dienen nur zur Orientierung.

Sandböden

Sandböden haben aufgrund guter Wasserdurchlässigkeit, der guten Durchlüftung und leichter Bearbeitbarkeit zwar gute physikalische Eigenschaften, besitzen jedoch nur ein geringes Adsorptionsvermögen für Kationen und ein geringes Speichervermögen für pflanzenverfügbares Wasser. Hierdurch kommt es schnell zu einem vertikalen Abtransport von Kationen (leichte Auswaschung). Eine geringe Wärmekapazität bewirkt eine leichte Erwärmbarkeit und damit verbundene intensive Mikroorganismenaktivität, solange der Boden feucht ist. Dadurch werden organische Rückstände schnell abgebaut, so dass die Humusgehalte sehr niedrig sind. Dieses und die geringe Wasseraufnahmefähigkeit des Bodens, sowie ein kleiner effektiver Wurzelraum infolge geringer Kapillarität sind die Hauptursachen für geringe Erträge und schnellen Abtransport von Nukliden in Sandböden.

Tone

Tone haben die Fähigkeit Wasser einzulagern, zu quellen und neigen dazu, eine hohe Lagerungsdichte zu besitzen. Infolgedessen ist die Wasserleitfähigkeit in die Tiefe sehr gering, der Pflugwiderstand sehr hoch, die Durchlüftung schlecht, die Durchwurzelbarkeit schlecht und bewirken sehr oft temporär Stauwasser. Hinzu kommt dass die Quellung und Schrumpfung der Tone oftmals ausgebildete Wurzelsystem schädigen. Da sich Bewuchs auf solchen Böden schwer tut, findet eine Akkumulation von Nukliden in den oberen Schichten durch Aufnahme über Wurzeln nur selten statt. Die Bildung von Stauwasser allerdings, die damit verbundene pulsierende Auf- und Ab-Bewegung des Wassers und die Speicherefähigkeit der Tonminerale bewirken eine Akkumulation von Nukliden in diesen tonreichen Bodenschichten.

Schluff

Lehmböden und Schluffböden besitzen bei nicht zu dichter Lagerung sowohl eine ausreichende Durchlüftung als auch ein hohes Speichervermögen für nutzbares Wasser. Hohe Nährstoffgehalte und ein guter Luft- und Wasserhaushalt machen diese Böden zu den ertragsfähigsten. Ist der Tongehalt unter 5 % liegt häufig eine geringe Gefügestabilität vor, wodurch diese Böden der Verschlammung und Erosion unterliegen [Sch84].

1.7.4 Horizontabkürzungen

Böden werden weiter durch ihre verschiedenen Schichten definiert, indem sie mit Buchstaben gekennzeichnet werden. Man unterscheidet zwischen Großbuchstaben, die die Lage im Profil und die Zugehörigkeit zum Humus-, Mineral- und Grundwasserkörper widerspiegelt und angehängten Kleinbuchstaben, die spezifische Eigenschaften und Wirkungen beschreiben. Die in dieser Arbeit verwendeten Bezeichnungen sind im Anhang A Tabelle A.8 näher erläutert [Sch84].

1.7.5 Bödentypen

Wiederkehrende und typische Horizontprofile und Eigenschaften von Böden werden oftmals durch spezielle Bodennamen zusammengefasst. Die untersuchten Böden sollen hier kurz beschrieben werden:

Parabraunerde

Parabraunerden sind an Ton verarmte Böden und haben die Bodenhorizontreihenfolge Ah-Al-Bt-C. Der Oberboden kann bis zu 60 cm stark sein und wird aus dem humosen, krümeligen Ah- und den humusarmen, fahlbraunen häufig plattigen Al-Horizont gebildet. Der darunter folgende bis zu 4 m tiefe B-Horizont ist durch die Tonanreicherung geprägt. Parabraunerden entwickeln sich überwiegend aus lockeren Mergelgesteinen, aber auch aus carbonatfreien Lehmen und lehmigen Sanden. Entstanden sind diese Böden meist durch Auswaschung von Carbonaten oder schwache Versauerung und der damit verbundenen Tonverlagerung aus Pararendzinen oder Braunerden. Setzt sich die Versauerung fort, bilden sich Podsol-Parabraunerden und danach reine Podsole aus. In niederschlagsreichen Gebieten kann es auch durch Verlagerung von Eisen und Marmorierung zur Bildung von Pseudogley-Parabraunerden kommen. Da die Parabraunerden in Abhängigkeit von Gestein und Verwitterungsgrad hohe bis mäßige Nährstoffreserven aufweisen und auch der Unterboden meist gut durchwurzelbar und belüftet ist, sind diese Böden gut für den Ackerbau geeignet.

Podsol

Sie entstehen durch eine Verlagerung von Eisen und Aluminium mit organischen Stoffen im Profil (Podsolierung). Die Horizontreihenfolge ist Ol-Of-Ah-Ae-Bh-Bs-C. Podsole entstehen in Gebieten hohen Niederschlags, niedriger Jahresmitteltemperatur und calcium- und magnesiumarmen Gesteins und weisen geringe Nährstoffmengen auf. Bevorzugt findet man

daher Pflanzen mit niedrigen Nährstoffansprüchen wie Nadelhölzer vor. Humusauflagen mit weitem C/N-Verhältnis, starke Versauerung und sehr sandige Böden mit hohem Quarzgehalt als Ausgangsgestein sind weitere wichtige Eigenschaften.

Pseudogley

Sie sind grundwasserferne Böden, bei denen ein stetiger Wechsel zwischen Stauwasser und Austrocknung stattfindet. Konkretionen und Rostflecken sind die Folge. Typische Horizontreihenfolgen gibt es nicht; auf einen Ah-Horizont folgt mal ein Ag- oder Sw-Horizont, unter denen meist ein noch wasserundurchlässigerer Sd-Horizont liegt. Das Klima und die Wasserleitfähigkeit solch eines Bodens bestimmen die Dauer von Naß-, Feucht- und Trockenphasen bzw. sauerstoffarmen oder -reichen Phasen. Primäre Pseudogleye, die aus tonreichen Gesteinen entstanden sind, weisen viele Nährstoffe auf, die jedoch durch die Konkretionen und Rostflecken für die Wurzeln meist unzugänglich gemacht werden. Sekundäre Pseudogleye haben sich aus Parabraunerde entwickelt und sind dagegen nährstoffarm. Beiden Böden ist gemein, dass sie im Frühjahr durch die Stauzonen oft vollständig vernässt sind und sich für den Anbau in dieser Zeit nicht eignen.

Gleye

Gleye gehören zu den Grundwasserböden und sind durch die Horizontfolge Ah-Go-Gr gekennzeichnet. Direkt auf den vom Grundwasser nicht beeinflussten Ah-Horizont folgt der Grundwasserhorizont, der sich in der Abfolge durch Oxidations- und Reduktionseigenschaften unterscheidet. Erreichen Nährstoffe das Grundwasser erfolgt schnelle horizontale und vertikale Verteilung und eine damit verbundene Verdünnung. Aufgrund des hohen Wasseranteils ist der Bodentyp für den Anbau stark wasserverbrauchender Pflanzen wie Pappeln, Eschen oder Erlen gut geeignet. Lediglich eine Sauerstoffarmut in tieferen Schichten bewirkt gelegentlich Probleme [Sch84].

1.7.6 Calcium im Boden

Da sich ^{90}Sr und Ca als Erdalkalimetalle im Boden ähnlich Verhalten und besonders die Migration und der Transfer vom Calciumgehalt und dessen Eigenschaften abhängt, wird hier das Calcium näher betrachtet.

Calcium ist das fünft häufigste Element in der Erdkruste und weist dementsprechend in Böden einen hohen Gehalt auf. Ein großer Teil des für die Pflanzenernährung wichtigen Kations liegt im Boden in schwerlöslicher Form vor, sowohl als Gitterbaustein als auch als Salz. Von den schwerlöslichen Salzen dominieren Calcit (CaCO_3), Dolomit (CaMgC_2O_6), sekundäres Ca-Phosphat (CaHPO_4), Octocalciumphosphat ($\text{Ca}_4\text{H}(\text{PO}_4)_3 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$) und die Apatite. Bei niedrigeren pH-Werten werden die Carbonate in deutlich leichter lösliche Hydrogencarbonate umgewandelt und mit Regen oftmals in tiefere Bereiche getragen (Auswaschung). Auf diesem Vorgang basiert der Calciumverlust vieler Böden. Obwohl die Calciumkonzentration im Boden trotzdem oft sehr hoch ist (0,1-1,2 %), wird das Ca von den meisten Pflanzenarten nur wenig aufgenommen (50-5000 ppm). Die Ca^{2+} -Aufnahme ist passiv und wenig selektiv. Durch Kationen wie NH_4^+ , Na^+ und K^+ kann sie gestört werden. Nitrat begünstigt aufgrund der guten Löslichkeit die Aufnahme und Einlagerung. Da das Calcium nur mit geringer Rate durch die Membranen der Pflanzen transportiert wird, erfolgt die Aufnahme überwiegend über die Wurzelspitzen. Für den Transport in der Pflanze ist das Transpirationswasser ausschlaggebend, nicht der Phloemsaft. Die Funktionen des Ca^{2+} in der Pflanze sind hauptsächlich die Stabilisierung der Kernmatrix im Zellkern, Beteiligung am Aufbau von Zellwänden, Hormonreaktionen und Beeinflussung von Enzymen [Men84, Str91].

1.7.7 Migration

Um das Verhalten des Elementes Strontium im Boden zu erklären, werden in dieser Arbeit ^{90}Sr -Konzentrationen von verschiedenen Bodenprofilen aus Niedersachsen und der Ukraine verglichen. Wichtig hierbei ist die Höhe der Deposition und die zeitliche Verlagerung (Migration) von Elementen im Boden und ihre Abhängigkeit von Bodenparametern wie dem pH-Wert, der Bodenstruktur oder dem Kationengehalt. Aus diesem Wissen können Voraussetzungen über mögliche Resuspension, Winderosion, Bioverfügbarkeiten für Pflanzen und das Erreichen von Grundwasser gemacht werden.

Prozesse, die die Migrationsrate erhöhen können:

Hauptsächlich der Anteil eines Radionuklids, der in der Bodenlösung vorliegt, wird durch den Fluss des Sickerwassers vertikal bewegt (konvektiver Transport). Dieser von Regenwasser oder künstlicher Beregnung geprägte Fluss erhöht sich mit steigendem Wasservolumen. Die Radionuklide können durch ein hohes Löslichkeitsprodukt der entsprechenden Salze, aber auch durch Anlagerung an Huminstoffe oder kleine Partikel in Lösung gehen. Auf diese Weise können selbst schwerlösliche Nuklide als kolloidale Radionuklide oder Kolloide durch das Sickerwasser in tiefere Bodenschichten gelangen [Lie91].

Ist kein Wasserfluss vorhanden, bewegen sich die Radionuklide im Boden durch die Potentialdifferenzen von Konzentrationen - auch Diffusion genannt. Der Einfluss des konvektiven Transports ist im Vergleich hierzu stärker.

Ein mechanischer Prozess, der zur Verteilung von Radionukliden in den oberen ca. 30 cm eines Bodens führen kann, ist das Pflügen. Nach Beaufschlagung auf die Oberfläche können so relativ schnell Nuklide in tiefere Schichten, aber auch wieder von dort an die Oberfläche gelangen, so dass sich im Laufe der Zeit eine gleichmäßige Verteilung der Nuklide innerhalb der Pflugschartiefe ergibt.

Zu den biologischen Prozessen der Migration muss man die Aufnahme durch die Pflanzenwurzeln und Transport in denselben sowie wühlende Bodentiere (Bioturbation) zählen. Tabelle 1.10 zeigt die durch verschiedene Bodentiere durchschnittlich umgelagerte Masse Boden pro Quadratmeter und Jahr von verschiedenen Bodentieren.

Tabelle 1.10: Bewegte Menge Boden verschiedener Tiere im Laufe eines Jahres [Sch84]

Tier	Ökotyp	Bodenmenge in kg pro m ² und Jahr
Ameise	Wald	5
Landassel	Halbwüste	0,15
Maulwurf	Wald	1,2-12
Regenwurm	Grünland	7-14
Termite	Savanne	6

Prozesse, die die Migrationsrate erniedrigen können:

Durch Physisorption (schwache, meist reversible Bindung) und Chemisorption (stärkere, meist irreversible Bindung) können Radionuklide in Ionenform von verschiedenen Bodenbestandteilen sorbiert werden. Zur Beschreibung der Sorption nutzt man oft den K_d -Wert. Er ist definiert als

$$K_d(\text{cm}^3 \text{ g}^{-1}) = \frac{\text{Aktivität des Radionuklids pro Gramm Boden}}{\text{Aktivität des Radionuklides pro Kubikzentimeter Bodenlösung}} \quad (1.6)$$

Der K_d -Wert gilt jedoch nur dann, wenn sich keine Sättigungseffekte bemerkbar machen und das System genug Zeit für eine Gleichgewichtseinstellung hat [Ern03, Bun96]. Die Wechselwirkungen der Nuklide mit dem Boden hängen von einer Vielzahl von Parametern ab:

- Art des Nuklides (Element, chemische Form)
- Bodenparameter (pH, Art und Konzentration anorganischer Ionen, Redoxpotential, Art und Konzentration von organischen Bestandteilen)
- Physikalisch-chemische Eigenschaften des Bodens (Typ, Tongehalt, Oxide, Gehalt an organischer Substanz)
- Mikroorganismen und Pilzmyzel - Temperatur.

In verschiedener Literatur sind K_d -Werte angegeben, die allerdings meist unter idealen Bedingungen in Laboratorien erforscht wurden. Eine Vorhersage eines K_d -Wertes für einen realistischen Boden ist aufgrund des weiten Masse-Volumen-Verhältnisses und der vielen weiteren Parameter nicht möglich.

Theorie nach Ernst

Nach Ernst [Ern03] liegt ein für einen K_d -Wert notwendiges Gleichgewicht in realen Böden zumeist nicht vor, da Co-Adsorptive, wie die Elemente derselben Hauptgruppe, die sich chemisch und physikalisch sehr ähnlich verhalten, oftmals mögliche Adsorptionsplätze vorab belegen.

Nicht nur in diesem Punkt weicht Ernst in seiner Arbeit „Anthropogenes Iod-129 als Tracer für Umweltprozesse. Ein Beitrag zum Verhalten von Spurenstoffen bei der Migration in

Böden und beim atmosphärischen Transport“ von der Lehrmeinung ab: Entscheidend für die Sorption ist nach Ernst die Kinetik der Diffusion durch kapillare Grenzschichten. Die Migration im Boden erfolgt abgesehen von der Bioturbation (Maulwürfe, Regenwürmer usw.) vor allem durch die Hydrologie, die hydrodynamische Disperion, Evaporation und Transpiration. Der Anteil an frei fließendem Fluid, unterschiedliche morphologische und mineralogische Zusammensetzungen des Bodens und unterschiedliche Verweilzeit des Wassers erschweren die Abschätzung der Migration. Hinzu kommen Unterschiede wie die Thermodynamik und Kinetik der Adsorption und spezifische wie unspezifische Adsorptionen. Der Einfluss all dieser Faktoren auf Bodeneigenschaften und Migration ist von Ernst in seiner Arbeit ausführlich beschrieben worden. Danach ist der entscheidende Faktor für die Migration eines Nuklids

- im wasserungesättigten Boden die gegensätzliche Bewegung von Niederschlägen und kapillaren Aufstiegskräften in den Poren
- und im wassergesättigten Boden der relativ schnelle Abtransport von bestimmten Nukliden durch das Fehlen der Aufstiegskräfte in gefüllten Kapillaren.

Ob das von Ernst für Isotope des Elementes Iod ermittelte Verhalten auch auf ^{90}Sr zutrifft, ist durch Bewertung von Bodenprofilen in dieser Arbeit zu klären.

Migrationsgeschwindigkeit

Die irreversible Anlagerung des ^{90}Sr im Boden ist von untergeordneter Bedeutung. ^{137}Cs wird dagegen stärker fixiert und weist so meist auch geringere Migrationsraten auf. Die Migrationsgeschwindigkeiten des ^{90}Sr ist von Filß in [Fil98] untersucht worden und ist in Tabelle 1.11 wiedergegeben.

Tabelle 1.11: Migrationsgeschwindigkeiten k der Nuklide ^{90}Sr und ^{137}Cs für verschiedene Bodentypen und Horizonte

Bodentyp	FAO Nomenklatur	Horizont	k (cm a^{-1}) ^{90}Sr	k (cm a^{-1}) ^{137}Cs	Quelle
-	Eutric Cambisol	Ah	0,83	0,47	[Kir92]
		Bw, Co	0,83	0,95	
-	Ortic Podsol	Ah1	0,97	0,4	[Kir92]
		Ah2, Ae, Bh, Bhs	0,46	0,69	
-	Eutric Histosol	Ah, H1, O	1,36	0,3	[Kir92]
Ranker	Cambisol	O	1	0,11	[Bac82]
		(E) Ah	4,5	1,9	
		(B) C	24	-	
Podsol	Cambisol	O	0,6	0,7	[Bac82]
		Ah	2,4	2	
		E	10	9,6	
		Bh,fe	34	-	
		Bfe	13	-	
		BC	34	-	
Braunerde	Cambisol	Ah	1,7	1	[Bac82]
		Bv	6,9	5,3	
		BC	30	-	

In den organischen Schichten wandert das ^{90}Sr nur wenige Millimeter bis wenige Zentimeter pro Jahr. Durch das Erreichen von tonhaltigen Schichten oder Stauwasserregionen kann die Migration sogar noch mehr verlangsamt werden. Demgegenüber erfolgt eine hohe Migrationsgeschwindigkeit von bis zu 20 cm pro Jahr bei Erreichen von Grundwasser. Für die Deposition durch oberirdische Kernwaffentest der 60er Jahre und Tschernobyl sind diese Regionen jedoch noch kaum oder gar nicht erreicht und man kann eine durchschnittliche Wanderung von 10 cm pro Dekade für das ^{90}Sr annehmen [Fil98, Kir92, Bac82].

Pfade des Sr-90 aus dem Boden

Resuspension und Winderosion werden begünstigt durch lange Verweilzeiten von Nukliden in den obersten Bodenschichten. Leichte Teilchen und flüchtige Moleküle können nach einer Deposition durch starke Winde wieder in die Atmosphäre gelangen und so zu einer Kontamination auf zunächst nicht kontaminierten Gebieten führen. Die Bioverfügbarkeit eines Nuklides wird ebenfalls stark beeinflusst durch die Verweilzeit. Hinzu kommt die Art der Pflanze und die Tiefe ihrer Wurzeln. Liegt keine direkte Kontamination von Blatt- oder Fruchtbereichen der Pflanze vor, ist der Weg der Nuklid Aufnahme über die Wurzeln der entscheidende

Pfad. Dies ist spätestens eine Ernteperiode nach erfolgter Kontamination einer Oberfläche so. Verlassen die Nuklide die Wurzelzone, erreichen sie früher oder später den Unterboden, bei dem ein deutlich schnellerer Transport in die Tiefe erfolgt. Nach weiterer Migration gelangen die Nuklide in das Grundwasser und können auf diese Weise über Trinkwasser oder Wurzelpfad an anderer Stelle in die Biologie des Menschen finden.

Hot Spots

Der durch Tschernobyl entstandene Fallout unterteilt sich in flüchtige Elemente bzw. fragmentierte Brennstoffteilchen, die in Aerosolform größere Distanzen zurückgelegt haben und relativ homogen verteilt wurden, und in schwere Fragmente des Reaktorcores, die in unmittelbarer Nähe zum Reaktor als „Hot Spots“ zum Liegen kamen. Autoren wie Arkhipov et.al. [Ark00a] zeigten, dass eine Aufnahme der Nuklide eines solchen Hot Spots vom Boden und dem Wurzelsystem erst durch chemische Zersetzung Jahre später erfolgt.

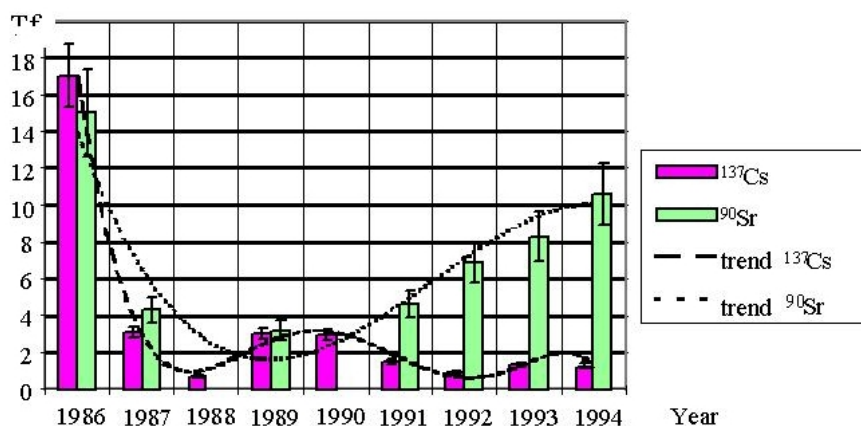


Abbildung 1.19: Zeitliche Veränderung eines Transferfaktors eines Hot Spots [Ark00a]

Nach der Verwitterung von abgelagerten Aerosolen und Hot Spots liegt das Strontium als bioverfügbares Sr^{2+} -Kation vor, so dass es von Pflanzen und Tieren aufgenommen werden kann.

2 Mögliche Methoden

Um ein von einem Betastrahler emittiertes Elektron zu detektieren, muss es von der Matrix getrennt werden. Ansonsten würden die Elektronen von derselben absorbiert werden. Die Reichweite von Elektronen in Materie beträgt wenige Millimeter. Eine direkte radiometrische Bestimmung des ^{90}Sr in biologischen Proben ist damit nicht möglich. Die einzige Ausnahme hierbei ist die Detektion der beim Durchgang der Elektronen erzeugten Bremsstrahlung. Für Umweltproben ist diese Methode jedoch zu unspezifisch und weist zu hohe Nachweisgrenzen auf. Eine weitere Möglichkeit, ^{90}Sr zu detektieren, ermöglicht nicht nur die Messung der Emission von Elektronen, sondern auch die Detektion der Masse des ^{90}Sr mittels Massenspektrometrie selbst. Diese Methode trennt zwar die Isotope des Sr voneinander, aber nicht die Isobaren (Isotope gleicher Massenzahl). Eine aufwendige chemische Abtrennung ist somit auch hier erforderlich. Trennt man das ^{90}Sr von allen evtl. störenden Nukliden ab, würde sich das Tochternuklid mit selber Massenzahl im Laufe der Zeit nachbilden. Dies ist jedoch kein Problem, da zwar die Aktivität des Tochternuklids sich dem des Mutternuklids asymptotisch annähert, aber für das Verhältnis der Anzahl der Teilchen folgende Formel gilt:

$$\frac{N(^{90}\text{Sr})}{N(^{90}\text{Y})} = \frac{t_{(1/2)}(^{90}\text{Sr})}{t_{(1/2)}(^{90}\text{Y})} = 4 \cdot 10^3. \quad (2.1)$$

Die Teilchenmenge ^{90}Y ist somit vernachlässigbar.

Aus den oben genannten Gründen ist eine Matrixabtrennung erforderlich. Der analytische Ablauf hierfür lässt sich in Probenahme, Probenvorbereitung, Trennung und Detektion unterteilen:

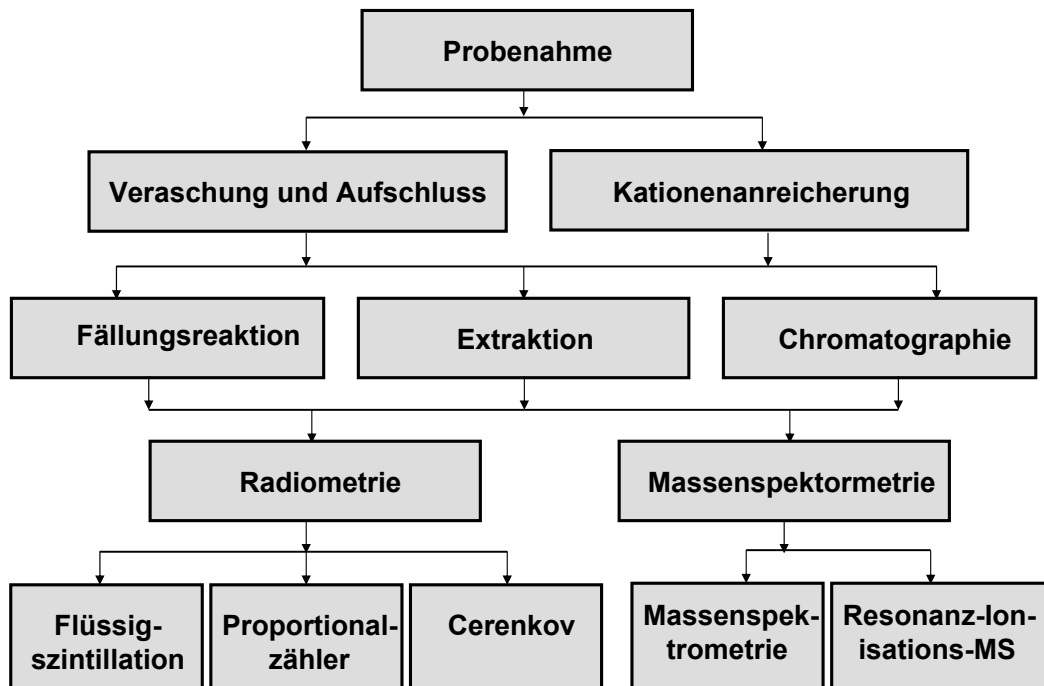


Abbildung 2.1: Methodenübersicht

2.1 Probenvorbereitung

Eine Vielzahl organischer Proben komplexieren Kationen und müssen daher vor einer Trennung zerstört werden. Dies erreicht man durch Veraschung. Je nach Nuklid sind die Temperaturgrenzen, ab denen es zur Bildung von leichtflüchtigen Aerosolen kommt, vorgegeben. Strontium beispielsweise wird auch bei Temperaturen über 600 °C nicht flüchtig, ^{137}Cs dagegen schon bei ca. 450 °C. Begrenzt ist die Wahl der Temperatur beim ^{90}Sr lediglich durch den Beginn von Sinterung und dem damit verbundenen Einschluss von Analytmaterial. Um eine vollständige Veraschung bei niedrigen Temperaturen zu erreichen, kann eine starke Säure wie Salpetersäure hinzu gegeben werden, was jedoch zu einem Problem für

korrodierbares Material im Probenraum werden kann [Pim95]. An die Veraschung wird üblicherweise ein saurer Aufschluß angeschlossen, um die Kationen aus der Matrix in Lösung zu bringen. In einigen Fällen reicht sogar mehrfaches Extrahieren mit heißer starker Säure, meistens allerdings führt man ein mehrstündiges Kochen unter Rückfluss mit Säure oder Lauge durch. Je nach Komplexität der Matrix und restlichem organischen Anteil muss eine mehr oder weniger starke Säure oder Lauge eingesetzt werden. Bei der Untersuchung von keramischer Brennstoffmatrix beispielsweise hat es sich gezeigt, dass Salzsäure nicht ausreicht und nur mit Salpetersäure eine annähernd vollständige Extraktion der Kationen erfolgen kann [Kru94, Oug93]. Im Extremfall muss sogar mit der von der Handhabung her schwierigeren Flusssäure gearbeitet werden. Handelt es sich um flüssige Proben als Ausgangsmaterial wie Milch oder Wasser kann auf eine Veraschung verzichtet werden. Sollte der organische Anteil hoch sein, empfiehlt sich beim Aufschluss mit Säure die Zugabe eines Oxidationsmittels wie Wasserstoffperoxid [Fil98].

2.2 Trennverfahren

Die Trennverfahren haben das Ziel, das ^{90}Sr von anderen Nukliden und störenden Salzfrachten zu befreien. Besonders wichtig und schwierig ist die Abtrennung der anderen Erdalkalimetalle Calcium und Barium, da sie dem Strontium physikalisch und chemisch sehr ähnlich sind. Von beiden gibt es keine störenden langlebigen Radionuklide, die durch Kernspaltung gebildet worden sein könnten, aber die damit verbundene Salzmenge der inaktiven Nuklide kann je nach Detektionsart zu Störungen durch Absorption, Streuung, oder Überschreiten von Löslichkeitsprodukten führen.

Böden enthalten 0,1 % - 1,2 % Calcium. Sind Calciumhaltige Gesteine im Boden vorhanden wie Dolomite ($\text{CaMg}[\text{CO}_3]_2$) oder größere Mengen Calcit (kristalline Modifikation von CaCO_3) oder Apatit ($\text{Ca}_5[\text{F,Cl,OH},1/2 \text{CO}_3](\text{PO}_4)_3$) kann der Anteil des Calcium auch deutlich über 1,2 % liegen [Sch84]. Problematisch sind Proben wie Milch, Knochen oder Zähne, da diese bis zu 20 % Calcium enthalten. Bei letzteren Proben ist eine Abtrennung des Calciums unumgänglich und wird oftmals durch Fällung der Erdalkalimetalle als Carbonate erreicht.

Barium kommt mit $2,6 \cdot 10^{-2}$ Gew.-% überwiegend als Witherit (BaCO_3) und Schwerspat (BaSO_4) in der Natur vor [Jan95], sodass in Umweltproben keine Matrixeffekte zu erwarten

sind. Mit ca. 6 % Spaltausbeute bei der Kernspaltung kommt jedoch der Betastrahler ^{140}Ba vor und könnte mit einer Betamaximalenergie von 1,02 MeV störend wirken. Jedoch ist die Halbwertszeit von ^{140}Ba mit 12,75 Tagen relativ niedrig und spielt bei Proben, die von Kernwaffentests der 60er oder Tschernobyl beeinflusst wurden, keine Rolle. Daher ist eine Abtrennung des Bariums nicht notwendig, könnte jedoch über die Löslichkeitsprodukte der Oxalate erfolgen.

Ein Folgeprodukt des Zerfalls von ^{238}U ist das ^{210}Pb , welches eine Halbwertszeit von 22,3 a besitzt. Selbst stört es nicht, da die Zerfallsenergien für Beta- und Gammastrahlung im niedrigen keV-Bereich liegen; das Tochternuklid Bismut-210 jedoch mit einer Halbwertszeit von 5,01 Tagen kann die Kinetik des ^{90}Y -Zerfalles simulieren. Eine Unterscheidung ist hier über die Betamaximalenergien möglich ($\beta_{\max}(^{210}\text{Bi})=1,2\text{ MeV}$; $\beta_{\max}(^{90}\text{Y})=2,28\text{ MeV}$) [Fil98].

In der Literatur sind eine Vielzahl Methoden beschrieben, um die Übergangsmetalle, Alkalimetalle und problematischen Erdalkalihomologe abzutrennen. Eine Übersicht bietet folgende Auflistung:

- O. Hahn F. Straßmann: Die Methode basiert auf Fällungsreaktionen und Trennung unterschiedlicher Löslichkeit von Nitraten. Größtes Problem ist die Handhabung rauchender Salpetersäure [Fil98].
- K. Bunzl, W. Kracke: Die Ausfällung der Erdalkalimetalle erfolgt als Oxalate bei unterschiedlichen pH-Werten. Das Strontium wird durch einen 18-Krone-6-Ether abgetrennt [Bun91].
- H.O. Fourie, J.P. Ghijsels, J. Alfaro, T. Apfel, H. Dierks, A. Knöchel, N. Borus-Böszörmenyi, J. Kovacs und E.J. Baretta: Extraktion des ^{90}Y wird durch HDEHP (Bis-(2-ethylhexyl)-ortho-phosphorsäure) oder durch TBPO (Tributylphosphoxid) erreicht [Fou69, Alf95, Bor82, Bar69].
- E.Makrlik, P.Vanura: Strontiumisolierung findet durch Extraktion mit Kobalt-dicarbolid statt [Mak85].
- J.Oravec, I.Navarcik, D.Tait, G.Haase, A.Wiechen: Es erfolgt eine Anreicherung durch Kationenaustauscher und Komplexierung durch EDTA oder Lactat [Ora88, Tai97].
- C.J.Petersen: Einsatz von Kronenether für eine Flüssig-Flüssig- Trennung [Pet67].

Bei allen Methoden ist die Trennung aufwendig und nimmt Zeit von einigen Stunden bis zu einigen Wochen pro Probe in Anspruch. Die Handhabung konzentrierter Säuren ist erforderlich und chemische Ausbeuten liegen typischerweise zwischen 40 %-90 %.

2.3 Ausbeutebestimmung

Um den Verlust des chemischen Trennungsganges von ^{90}Sr zu ermitteln, kann inaktives Strontium (Träger) oder ein radioaktives Strontiumisotop (Tracer) zu Beginn der Untersuchung zugegeben werden. Da sich die Isotope annähernd physikalisch und chemisch gleich verhalten, ist bei ausreichender Homogenisierung am Anfang des Trennungsganges von einem gleichen Verlust der Strontiumisotope im Verlaufe der Untersuchung auszugehen. Bei der Bestimmung des inaktiven Trägers werden bekannte Menge des Isotops zugegeben und nach der Chemie die Restmenge mittels Atomemissions-, Atomabsorptionsspektrometrie, oder Gravimetrie bestimmt. Das Verhältnis aus Restmenge und Anfangsmenge entspricht der Ausbeute. Bei Zugabe eines radioaktiven Tracers bestimmt man ebenfalls Anfangsmenge und Restmenge; allerdings erfolgt dieses über die radioaktiven Eigenschaften des Isotopes, zumeist über einen Gammazerfall mittels Halbleiter- oder Szintillationsdetektoren.

2.4 Radiometrische Messmethoden

^{90}Sr kann direkt über seine eigene β -Energie gemessen werden oder über die des Tochternuklides ^{90}Y , was oftmals günstiger ist, da die höheren Zerfallsenergien des Tochternuklids Messungen in Bereichen ermöglicht, in denen geringere Untergrundstörungen vorhanden sind. Zur Messung können Szintillationsdetektoren oder Ionisationsdetektoren verwendet werden. Auch Cerenkovstrahlung kann bei ausreichender Aktivität einer Probe eingesetzt werden. Als Summe können ^{90}Sr und ^{90}Y durch Plastikszintillationsmessgeräte oder Flüssigszintillationsmessgeräte erfasst werden, um anschließend durch geeignete Rechnerprogramme ausgewertet zu werden. Der Einfluss von unterschiedlichen Matrices und Untergrundverhalten führen zu einer höheren Unsicherheit dieser Rechnungsmethode. Die Nachweisgrenzen der einzelnen Messmethoden sind in Tab. 2.1 zusammengefasst und beziehen sich allein auf die gerätespezifischen Eigenschaften:

Tabelle 2.1: Typische Nachweisgrenzen für Sr-90 [Bit92]

Messmethode	Nachweisgrenze für Sr-90 [Bq]	Literatur
Ionisationsdetektor	0,013-0,02	[Ora88, Lar81]
Flüssigszintillationsmessung	0,05-0,2	[Ran75]
Cerenkov-Messung	0,025-0,55	[Rey80]
Plastikszintillationsspektrometrie (ohne $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ -Trennung)	0,23	[Kam71]
Flüssigszintillationsspektrometrie (ohne $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ -Trennung)	0,037	[Pil72]

2.5 Massenspektrometrische Messmethoden

Massenspektrometrische Methoden (MS) können gut zur Trennung von Isotopengemischen eines Elementes eingesetzt werden. Auch wenn ein stabiles Isotop der Reihe noch um den Faktor 10^{12} über dem nachzuweisenden Nuklid vorhanden ist, ist eine Auswertung mit heutigen MS möglich. Die Nachweisgrenzen haben sich in den letzten Jahren verbessert, liegen jedoch unter denen für die radiologischen Methoden. Auswertung von Umweltproben mit niedrigen ^{90}Sr -Gehalten sind somit nicht möglich. In Zukunft könnte dies jedoch eine sinnvolle Alternative sein.

Eine Ausnahme bei den MS-Methoden stellt die Resonanz-Ionisations-MS dar (RIMS). Bei diesem Verfahren werden die Atome der Probe zunächst bei einer geeigneten Temperatur verdampft (30-50 keV), nachfolgend in mehreren Schritten durch resonant eingestrahktes Laserlicht ionisiert und die erzeugten Ionen massenselektiv nachgewiesen. Die zur Sättigung der resonanten Anregungsschritte erforderlichen Photonenflüsse lassen sich durch Farbstofflaser erreichen, die von KupferdampfLasern hoher Repetitionsrate (6.5 kHz) gepumpt werden. Durch die Überlagerung der monoenergetischen Laserenergien werden Rydbergzustände erreicht, durch Feldionisation ionisiert und mittels Massenspektrometrie detektiert. Dabei können heutzutage bis zu 10^7 Teilchen ^{90}Sr neben stabilen Strontiumträger (^{88}Sr) von 10^{18} Teilchen detektiert werden [Fil98, Bit92].

3 Aufgabenstellung

Aufgabe dieser Arbeit ist es, einen Überblick über das weltweite Vorkommen des anthropogenen Radionuklids ^{90}Sr zu schaffen, sein Migrationsverhalten im Boden zu untersuchen und eine Abschätzung der Folgedosis für Personen im Umkreis des havarierten Reaktors Tschernobyl liefern zu können.

Das global verteilte ^{90}Sr hat seinen Ursprung in den oberirdischen Kernwaffentests der 60er Jahre und findet sich zum Großteil in den obersten Bodenschichten wieder. Wie dort das ^{90}Sr verteilt ist, an welchen Böden es charakteristische Veränderungen in den spezifischen Aktivitäten gibt und welchen Einfluss die Bodeneigenschaften auf den anschließenden Transfer in Pflanzen mit der damit verbundenen Aufnahme des ^{90}Sr durch den Menschen haben, sind zu untersuchen. Hierfür wurde von sechs Tiefenprofilen aus dem Raum Niedersachsen die ^{90}Sr -Aktivität gemessen, mit den Gehalten anderer wichtiger Radionuklide verglichen und bezüglich der jeweiligen Bodeneigenschaften verschiedener Schichten interpretiert. Aussagen über die zukünftige Verteilung des ^{90}Sr dieser Proben und Proben mit anderer ursächlicher Kontamination können abgeschätzt werden.

Der zweite Teil der Arbeit beschäftigt sich mit einer Bevölkerungsgruppe, die aufgrund der erhöhten Deposition des Radionuklids ^{90}Sr durch den Kernreaktorunfalls Tschernobyl eine erhöhte effektive jährliche Dosis durch dieses Radionuklid zu erwarten hat. Die vom Fallout kontaminierten Gebiete sind, abhängig von der ^{137}Cs -Depositionsdichte, in 4 Zonen unterteilt. Die Zonen 1 und 2 wurden evakuiert, die Zone 3 wurde unter strikte radiologische Kontrolle gestellt. Trotz Evakuierung und eines offiziellen Verbotes sind eine Vielzahl der Einwohner der zweiten Zone inzwischen zurückgekehrt. Für sie ist eine Betrachtung der Aktivitäten im Boden, der Transferfaktoren für die relevantesten Lebensmittelpfade und eine daraus resultierende Dosisabschätzung dringend nötig. Nachdem sich gezeigt hat, dass die zusätzliche Exposition durch ^{137}Cs für diese illegal zurückgekehrten Bewohnern der Zone 2 bei normalem Verhalten bei weniger als 1 mSv pro Jahr liegt, ist es erforderlich auch die Bei-

träge zur Strahlenexposition durch ^{90}Sr und Plutonium zu bestimmen. In dieser Arbeit wird dieses für ^{90}Sr durchgeführt, indem Boden und Lebensmittelproben aus einem Dorf dieser Zone 2 untersucht und interpretiert werden.

4 Experimentelles

4.1 Übersicht

Von den in Kapitel 2 angegebenen Analysemethoden wurde die Veraschung und der Aufschluss eingesetzt, um das Strontium von der Matrix zu entfernen. Fällungsreaktionen und Chromatographie trennen das Calcium und Barium ab und die Detektion erfolgte mittels Flüssigszintillationsdetektor. Es wurden die im Kapitel 3 bereits erwähnten Proben untersucht.

4.2 Probennahme

4.2.1 Niedersachsen

Von der Deutschen Bodenkundlichen Gesellschaft wurden für nicht radiologische Untersuchungen Proben gesammelt, deren Ergebnisse 1999 vorgestellt wurden. Das Ziel dieser Gesellschaft war es, ein möglichst vielfältiges Bild über die typischen Bodenstrukturen des Landes Niedersachsen zu gewinnen. Von den gleichen Standorten Abbildung 4.1 konnten durch Mitarbeiter des ZSR weitere Proben für Radionuklidnachweise gewonnen werden, und so mit den bodenkundlichen Daten interpretiert werden. Die Tiefe der Profile reichte bis zu 2,50 m. Die Probennahme erfolgte mittels Bagger in begehbaren Profilgruben. Die Bodenschichten trug man den erkennbaren Bodenhorizonten entsprechend an gesäuberten, senkrechten Schnittkanten ab. Die Böden wurden anschließend nach einer Messanleitung [Der00] luftgetrocknet, zerkleinert und gesiebt (2 mm Maschenweite).

Die bodenkundlichen Daten wie Bodenstruktur, pH-Werte, Ca-Gehalte, Wassergehalt und Kationengehalte sind von der Deutschen Bodenkundlichen Gesellschaft veröffentlicht und konnten so zur Bewertung der spezifischen ^{90}Sr -Aktivitäten in den verschiedenen Bodenhorizonten herangezogen werden [Deu99].

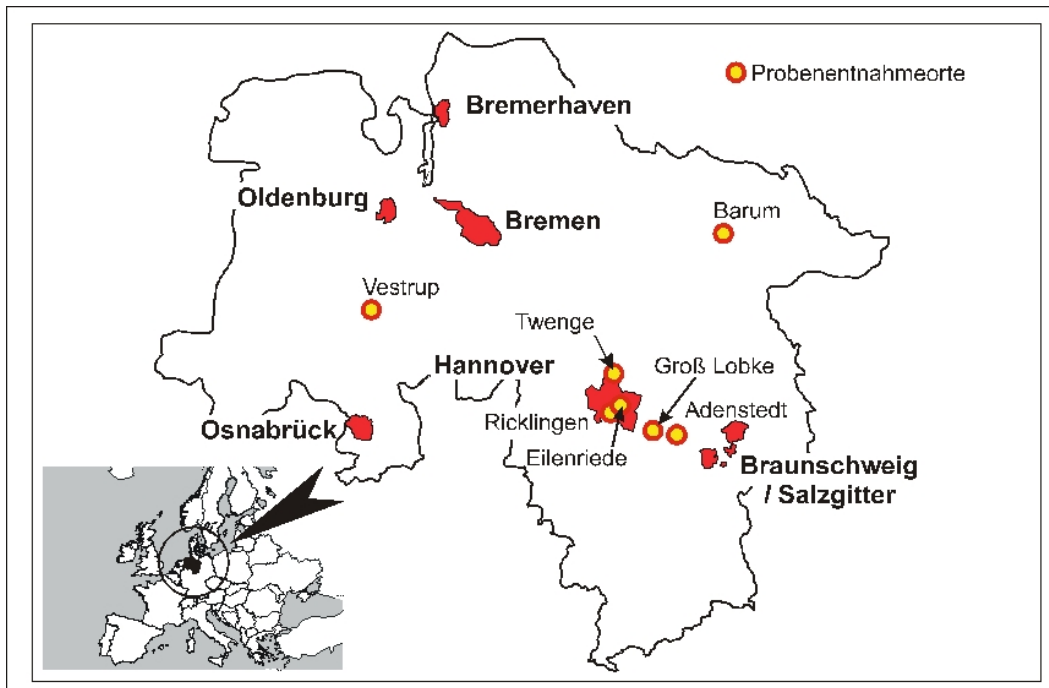


Abbildung 4.1: Standorte der Probennahme in Niedersachsen

4.2.2 Ukraine

The State University of Agriculture and Ecology aus Zhitomir (Ukraine) sammelte in den Jahren 1995 eine Vielzahl von Tiefenprofilen in den verschiedenen Zonen um Tschernobyl und in den Jahren 2001-2003 Boden-, Nahrungsmittel-, Knochen- und Zahnproben in einem Dorf der Zone II, mit Namen Christinowka. Die Proben wurden dem Zentrum für Strahlenschutz und Radioökologie zur Messung von ^{137}Cs , ^{90}Sr und Plutonium zur Verfügung gestellt.

Bei den Tiefenprofilen entnahm man auf einer Fläche von einem Quadratmeter die Erde bis zu einer Tiefe von 50 cm, ließ aber auf einer Fläche von 20×20 cm eine Säule stehen. Vor der Entnahme säuberte und begradigte man diese. Nach optischen Aspekten wurde die Säule vertikal in Schichten eingeteilt, abgetragen und in Plastiktüten aufbewahrt. Die Tiefe von 50 cm wurde gewählt, da der Großteil des für die Dosisberechnung damals relevantesten Nuklids ^{137}Cs in ungestörten Böden in den oberen 40 cm zu erwarten war. Die Entnahme erfolgte ausschließlich auf Wiesen, die nach Aussage der Anwohner seit dem Reaktorunfall 1986 unberührt geblieben sind.

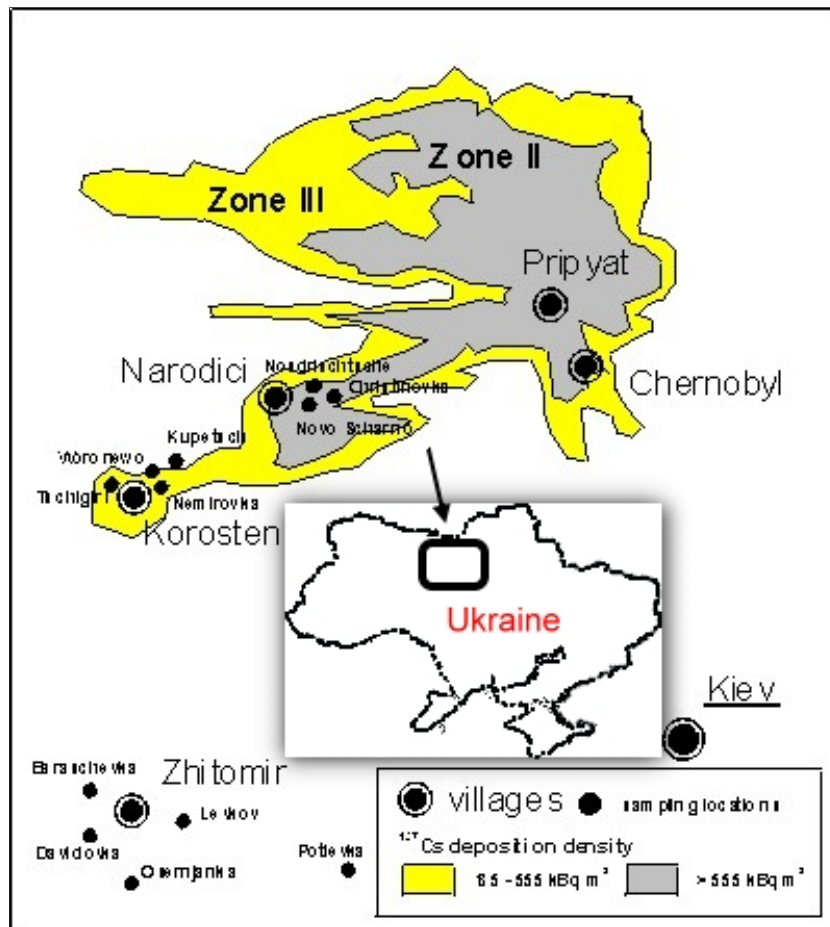


Abbildung 4.2: Standorte der Probennahme in der Ukraine

Die später genommenen Nahrungsmittel- und Organproben aus Christinowka stellten verschiedene Bewohner zur Verfügung und beinhalten Milch, Beeren, Pilze, Fisch, Gemüse, Obst, Gras, Heu, Gerste, Tabak und Knochen, sowie Leber, Niere, Zähne und Muskelfleisch verschiedener Tiere. Die Proben wurden vor Ort in Zhitomir gewogen, zerkleinert, getrocknet, teilweise erneut zerkleinert und in Plastiktüten verpackt. Milchproben entzog man mittels Gefriertrocknung das Wasser, um sie haltbarer zu machen. Zu Beeren- und Gemüsepflanzen lieferte man die dazugehörigen Böden und organischen Auflagen mit. Die Entnahmetiefe der Böden ist leider nicht bekannt, bezog sich aber vermutlich auf die obersten von Wurzeln durchsetzten Zentimeter.

4.3 Probenvorbereitung und Aufschluss

Die älteren Bodenproben aus der Ukraine von 1995 und die Bodenproben aus Niedersachsen lagen getrocknet und auf 2 mm Maschenweite gesiebt in PE-Flaschen vor. Neuere Bodenproben aus der Ukraine wurden zunächst noch im Trockenschrank bei 110 °C getrocknet. Anschließend wurden alle Bodenproben 48 h bei 550 °C in Porzellanschalen verascht. Diese Temperatur reicht, um ^{137}Cs aus der Probe über Aerosole abzutragen, nicht aber das ^{90}Sr . Die Temperatur musste so hoch gewählt werden, da sonst eine Extraktion des ^{90}Sr aus der Silikatmatrix nicht vollständig gewesen wäre.

Milchproben wurden nachträglich trotz der Vorbehandlung in der Ukraine erneut gefriergetrocknet, da das Milchpulver sich als hygroskopisch erwies. Die restlichen organischen Proben veränderte man mit Ausnahme der Veraschung nicht.

Fisch- und Fleischproben kamen tiefgekühlt und in PE-Beuteln in Deutschland an und wurden zunächst eingefroren. Bei Bedarf taute man eine Probe auf, verwarf sämtliche freiwerdende Flüssigkeit und zerkleinerte den Rest. Da die Proben zu Dosisberechnungen herangezogen werden sollten, empfahl sich, nur den essbaren Teil von Fleisch und Fisch zu nehmen. Die Knochen bzw. Greten wurden verworfen. Um trotzdem den ^{90}Sr -Gehalt in Knochen von Tieren näher zu untersuchen, wurden von Rehen, Schweinen, Wildschweinen und Rindern separat Knochen mitgeliefert.

Den Messanleitungen entsprechend mussten alle organischen Proben wegen der Brandgefahr langsam nach folgendem Programm verascht werden:

- Langsame Erhöhung auf 240 °C innerhalb von 24 Stunden unter Stickstoffspülung
- Langsame Erhöhung auf 300 °C innerhalb von 12 Stunden und verweilen bei dieser Temperatur für weitere 12 Stunden unter Stickstoffspülung
- Erhöhung auf 350 °C ohne Stickstoffspülung innerhalb kurzer Zeit
- Erhöhung auf 450 °C innerhalb eines Tages ohne Stickstoffspülung
- Verweilen für 12 Stunden unter diesen Bedingungen.

Eine noch höhere Temperatur, wie bei den Böden, konnte hier nicht gewählt werden, da diese Proben teilweise auch auf die Aktivität des ^{137}Cs untersucht werden sollten, welches, wie beschrieben, bei Temperaturen über 450°C teilweise aus der Probe in Form von Aerosolen emittiert wird.

Probleme gab es bei Leberproben und Knochenproben. Die Leber führte bei Temperaturen um 400°C aufgrund des hohen Salzgehaltes zu Sinterungsprozessen. Das mit der Porzellanschale so verschmolzene Material ließ sich auch mit Säuren nicht wieder entfernen. Die Proben mussten verworfen werden. Knochenproben waren bei 450°C zwar porös geworden - aber noch nicht verascht. Daher wurden die Knochenproben im Anschluss an die Veraschung noch mit einer Schwingscheibenmühle (Retsch RS-1; 1400 U min^{-1}) gemahlen.

Maximal 100 g der so veraschten Proben wurden dann einem sauren Aufschluss unterzogen. Eine ca. 18 %ige Salzsäure-Lösung (1:1 Wasser : konz. HCl) wurde mit Träger, Tracer und Probe versehen und 2 Stunden unter Rückfluss in einem 500 ml Rundkolben bei Siedetemperatur gehalten.

Der Träger besteht aus 10 ml einer Lösung mit 30 mg inaktivem Strontium und 10 ml einer Lösung mit 50 mg Calciumnitrat. Bei organischen Proben wie Gras, Heu u.a. wurde auf die Zugabe des Calciumträgers verzichtet, da in der Probe erfahrungsgemäß selber genug Träger vorhanden ist. Der Träger dient dazu, genug Erdalkalimetalle für Fällungsschritte aufzuweisen und das Einlagern größerer Mengen von radioaktivem ^{90}Sr und ^{85}Sr in Laborgerätematerialien zu verhindern. Die in Kapitel 2.3 beschriebene Ausbeutebestimmung erfolgt mittels so genanntem radioaktivem Tracer durch Zugabe von ca. $100\text{ Bq }^{85}\text{Sr}$ (Herkunft: Physikalisch Technische Bundesanstalt - Braunschweig bzw. Amersham Laboratories - Buckinghamshire, England). ^{85}Sr ist ein schwacher γ -Strahler und emittiert mit der höchsten Emissionswahrscheinlichkeit bei 514 keV .

Eine Vielzahl der Probenarten sollten auch auf Plutoniumisotope untersucht werden. Aufgrund mangelnder Materialmenge musste daher bei einigen Proben die Analyse mit einer Bestimmung von Plutonium kombiniert werden. Die Probelösung, bestehend aus Sr-Träger, ^{85}Sr -Tracer, ^{232}U -Tracer, ^{242}Pu -Tracer, ^{243}Am -Tracer (alles Nitrate bzw. salpetersaure Lösungen) wird zur Trockne eingedampft. Der Rückstand wird in 15 ml 3 M Salpetersäure + 1 M Aluminiumnitratlösung gelöst. Die Lösung versetzt man mit 3 ml 0,6 M Eisensulfamat-

lösung, um die Oxidationsstufe des Plutonium zu stabilisieren, und mit 200 mg Ascorbinsäure. Die Lösung wird über einen 0,22 µm Membranfilter filtriert und mit einer Geschwindigkeit von 1 ml min⁻¹ durch eine konditionierte (3 M Salpetersäure) UTEVA (für Uran und vierwertige Kationen)- und TRU-Säule (für Transurane) gezogen (Formeln Anhang B). Nach vollständiger Probenaufgabe wird das Becherglas mit 5 ml 3 M Salpetersäure ausgespült und diese Lösung ebenfalls auf die Säulen gegeben. Anschließend werden die Säulen direkt mit 5 ml 3 M Salpetersäure gewaschen. Das Strontium wird von den Säulen nur geringfügig zurückgehalten, sodass die ersten Fraktionen des „Abfalles“ der Plutoniumtrennsäulen für die Strontium-Analytik weiterverwendet werden können. Diese Analyse entspricht weitgehend der Vorschrift ACW03 VBS Rev. 1.4 von Eichrom und wird so auch nach *Analytica Chimica Acta* 443 (2001) 81-90 für die Bestimmung von ⁹⁰Sr in Sedimentproben benutzt.

4.4 Trennungsgang

Nach dem Aufschluss lässt man die heiße Lösung mittels Eis auf ca. 60°C abkühlen und filtriert die Matrix über eine Porzellannutsche ab. Die Matrix wird gesammelt, radiologisch kontrolliert und entsorgt. Nach Zugabe von 15 ml 96 %iger Schwefelsäure (H₂SO₄) und kurzem Aufkochen wird die zurückgebliebene Lösung eine Stunde im Eisbad gekühlt. Die Sulfate der Erdalkalimetalle fallen aus und können über Zellulosenitratfilter (0,45 µm Porendurchmesser) abgetrennt werden. Hierbei verliert man die meisten Alkali- und Übergangsmetalle; auch die bei der Detektion sonst evtl. störenden Bleiisotope werden isoliert.

Der Niederschlag wird in einen 500 ml Rundkolben überführt mit 15 g Natriumcarbonat (Na₂CO₃) versehen und auf ca. 200 ml mit gesättigter Na₂CO₃-Lösung überschüttet. Dieses Gemisch wird zwei Stunden unter Rückfluss gekocht, wodurch die Erdalkalisulfate in die Carbonate überführt werden. Von den Carbonaten hat SrCO₃ ein 50 mal niedrigeres Löslichkeitsprodukt ($1 \cdot 10^{-10}$) als BaCO₃ und CaCO₃ ($5 \cdot 10^{-9}$) [Ayl86]. Ein Großteil des Calciums und Bariums geht so in Lösung und kann vom Strontium getrennt werden. Die Trennung der calcium- und bariumhaltigen Lösung von der festen Phase erfolgt erneut über einen Zellulosenitratfilter (0,2 µm Porendurchmesser). Das so erhaltene feste SrCO₃ mit Spuren von Calcium und Barium wird in 8 M Salpetersäure-Lösung (HNO₃) aufgenommen.

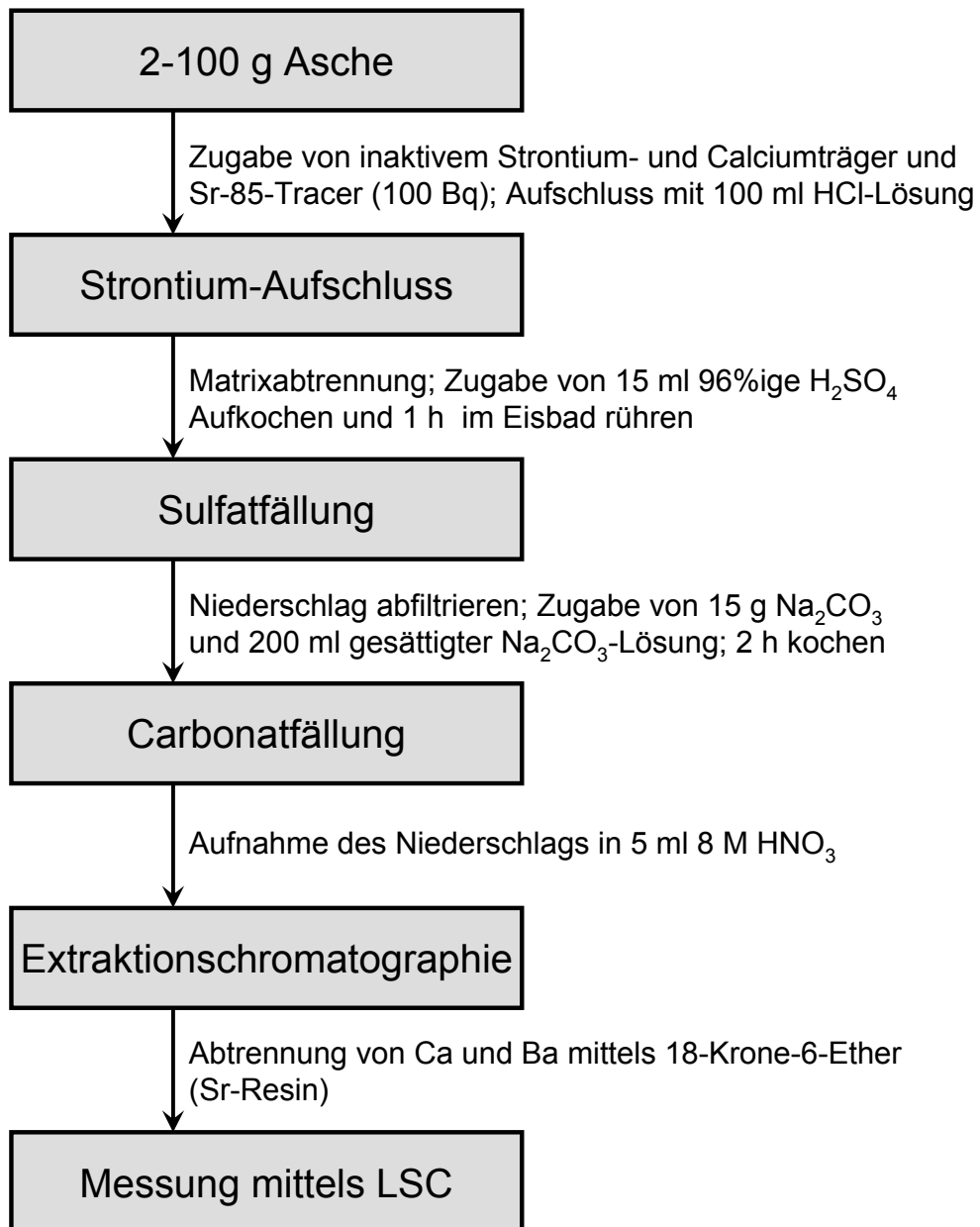


Abbildung 4.3: Trennungsgang

Die Trennung der restlichen Erdalkalimetalle vom Strontium erfolgt mittels Extraktionschromatographie. Die Säule besteht aus 3 g eines 4,4'(5')-Bis-(tert-butylcyclohexano)-18-Krone-6-Ether (150 µm Partikelgröße) in 1-Octanol, der von der Firma EiChrom (Darien, Illinois) für die Strontiumanalyse produziert wird. Die Kurzform des Austauscherharzes ist Sr-Resin. Ein freies Säulenvolumen entspricht ca. 6,5 ml, 65 % des Bettvolumens [Die91]. Die funktionellen Gruppen des Kronenethers sind so konzipiert, dass das Volumen des Strontiums optimal in den „Käfig“ des dreidimensionalen Gerüsts passt.

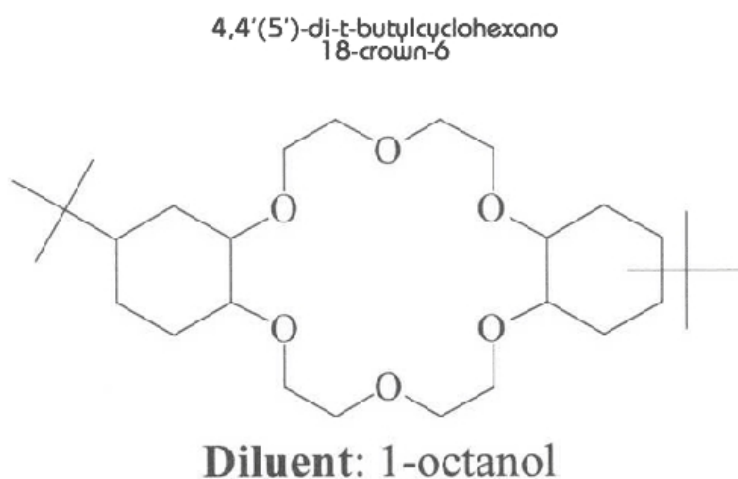


Abbildung 4.4: Kronenether

Das selbst generierte 10 cm hohe Säulenbett wird zunächst mit Wasser gespült und mit 30 ml einer 3 M HNO₃-Lösung konditioniert. Die 3 M HNO₃ ist mit 1-Octanol gesättigt, was laut dem Hersteller EiChrom die Lebensdauer der Säule verlängert. Im Anschluss erfolgt die Aufgabe der strontiumhaltigen Probe. Um das mit dem ⁹⁰Sr im Gleichgewicht befindliche ⁹⁰Y abzutrennen, wird mit 20 ml der 3 M HNO₃-Lösung gespült. Durch Zugabe von 10 ml Wasser werden die auf der Säule zurückgehaltenen Erdalkalimetalle eluiert. Aufgrund der großen bedingten geringen Wechselwirkungen mit der Säule wird zuerst das Barium von der Säule gespült. Es folgen das Strontium und das noch schwerer zu eluierende Calcium. Die eluierten Lösungen werden in 1,5 ml Fraktionen aufgefangen. Bei allen Spül-, Trenn- und Elutionsvorgängen der einzelnen Lösungen ist es wichtig, eine Elutionsgeschwindigkeit von ca. 0,8 ml min⁻¹ nicht zu überschreiten. Mittels der γ -Emission vom ⁸⁵Sr werden die Frak-

tionen mit den Strontiumisotopen kurz (2 min) auf einem Halbleiterdetektor identifiziert. Die zumeist zwei oder drei Fraktionen werden in einem kaliumarmen LSC-Gläschen (Vial) vereinigt und mit 15 ml Szintillatorflüssigkeit (Ultima Gold AB, Fa. Perkin Elmer Life Sciences) versetzt. Mit Wasser füllt man auf 20 ml auf und misst drei Wochen später nach Einstellung des Gleichgewichts zwischen Mutternuklids ^{90}Sr und Tochternuklids ^{90}Y die Aktivität mit Hilfe eines Flüssig-Szintillations-Zählers (LSC).

4.5 Anpassung und Versuch der Optimierung

Die oben beschriebene Methode der Probenvorbereitung und radiochemischen Trennung erfolgt hauptsächlich nach M. Filß [Fil98]. In einigen Punkten wurde die Methode jedoch modifiziert.

So wird bei der Sulfatfällung nach Filß der pH-Wert mit 30 %iger Natronlauge auf 1,8 eingestellt, um Teile der überschüssigen Schwefelsäure zu neutralisieren. Versuche zeigten, dass dies auf die Fällungsreaktion und die weiteren Schritte keinen Einfluss hat und somit weglassen werden kann.

Nach Filß ist bei einigen Proben nach Abtrennung der Sulfate eine Reduzierung des Bariumgehaltes durch Oxalatbildung nötig, da ^{140}Ba ein starker β^- -Strahler ist und so eine Auswertung anderer Betastrahler stören kann. Mit einer Halbwertszeit des ^{140}Ba von 12,75 Tagen spielt es bei Proben, die durch den Kernwaffenfallout der 60er Jahre oder durch Tschernobyl bestimmt sind, allerdings keine Rolle mehr. Der Anteil an inaktivem Barium in der Probe ist aufgrund seines geringen natürlichen Vorkommens unwesentlich. Eine Abtrennung über die Oxalate kann also zu einer Verkleinerung der Salzfracht für die Säule führen, was die Ausbeute des Strontium erhöhen kann, ist aber nicht erforderlich. In dieser Arbeit wurde darauf verzichtet.

Eine Vielzahl der Parameter lassen sich variieren, wie das Volumen H_2SO_4 , die Masse Na_2CO_3 , Trägermengen und Ausfällungszeiten. Für die verschiedenen Probenmatrices müsste man diese jeweils anpassen, um eine optimale Ausbeute von üblicherweise 60 % zu erhalten. Da eine jeweilige Anpassung aus Zeitgründen nicht möglich ist, werden für alle Proben die gleichen Versuchsparameter verwendet und Schwankungen der Ausbeute von 30 % - 60 % akzeptiert.

Es wurde versucht, den teuren (25 g: 917 Euro) Kronenether Sr-Resin durch ein anderes Säulenmaterial zu ersetzen. Aufgrund von Literaturobwertung bezüglich der Absorption von Strontium wurden Versuche mit einem natürlichen Zeolithen namens Clinoptilolit und mit dem Molekularsieb Typ 4A ($\text{Na}_{12}[(\text{AlO}_2)_{12}(\text{SiO}_2)_{12}] \cdot x\text{H}_2\text{O}$) durchgeführt. Clinoptilolit ist als Absorptionsmittel nach dem Unfall von Tschernobyl eingesetzt worden. Das Molekularsieb 4A ist bekannt für den leichten Austausch der Natriumionen gegen Calciumionen. Die Versuche ergaben für beide, dass bei jeweils eingesetzten 3 g die Trennstufenzahl zu niedrig ist, also keine ausreichende Trennung erfolgt. Erhöht man die Materialmenge der Säule können ausreichende Trennstufenzahlen zwar erreicht werden, die Volumina zum Spülen und damit die Anzahl der Fraktionen werden jedoch zu groß. Eine zusätzliche Erhöhung der Geschwindigkeit der mobilen Phase wäre nur mit Druck möglich. Zudem ist das freie Säulenvolumen deutlich größer; es müsste mehr eluiert werden, was bei maximal 5 ml für die LSC-Vials ein zusätzliches Einengen nach der Trennung erforderlich machen würde. Mit anderen Korngrößen der Zeolithe und Unter- bzw. Überdruck wäre ein Ersatz des Kronenethers evtl. möglich, konnte aber im Rahmen dieser Arbeit aus Zeitgründen nicht weiter verfolgt werden.

Der von M. Filß eingesetzte Szintillator Ultima Gold wurde ersetzt durch Ultima Gold AB, da dieser bessere Eigenschaften bei der Alpha-Beta-Diskriminierung, Verträglichkeit mit Mineralsäuren, der Quenchresistenz und der Probenkapazität aufweist.

4.6 Flüssigszintillationsmessungen

Für die Quantifizierung des ^{90}Sr in den Umweltproben wird ein Ultra-Low-Level-Liquid-Szintillation-Counter mit Namen Quantulus 1220 (Firma Wallac) eingesetzt und mittels der DOS-Software Queue Manager Version 1.0.1. (Firma Wallac) ausgewertet.

4.6.1 Prinzip

Eine Probe befindet sich nach dem chemischen Trennungsgang in wässriger Phase. Auch in dieser findet, wie vorher bei der Matrix, eine fast vollständige Absorption der durch den Betazerfall emittierten Elektronen statt. Um die Elektronen nachweisen zu können, muss daher eine direkte Umwandlung der Energie erfolgen, weshalb man einen sogenannten Szintillator in flüssiger Form zufügt. Der in dieser Arbeit verwendete Szintillator, auch Cocktail genannt, mit der Bezeichnung Ultima Gold AB, besteht zu 57-67 % aus Di-isopropylnaphthalin (DIN), 24-34 % Nonylphenoethoxylat, 2-(2-Butoxyethoxy)ethanol, 2,5-Diphenoloxazol (PPO) und 1-4-Bis(2-methylstyryl)benzol (bis-MSB) (Formeln s. Anhang B) [Per98]. Der Hauptbestandteil dient als Lösemittel, die nächsten beiden als Vermittler für polare Proben und das PPO und bis-MSB als Fluoreszenzmittel. Die durch den Betastrahler emittierten Elektronen regen in nächster Nähe die Lösemittelmoleküle (DIN) an, was durch die Anhebung eines Elektrons auf ein höheres Energieniveau oder sogar durch Ionisierung erfolgen kann, wobei die ionisierten Moleküle sehr schnell mit Elektronen zu angeregten Molekülen rekombinieren. Etwa 90 % der angeregten Zustände kehren strahlungslos durch thermische Prozesse in niedrigere Energiezustände zurück und spielen für die Szintillation keine Rolle mehr. Die übrigen 10 %, zumeist aus dem Grundzustand S_0 in S_{1x} -Zustand angeregt, gelangen durch innere Konversion auf das S_{10} Niveau zurück und emittieren beim Übergang zurück zum Grundzustand innerhalb von ca. $3 \cdot 10^{-8}$ Sekunden ein Photon (Fluoreszenz).

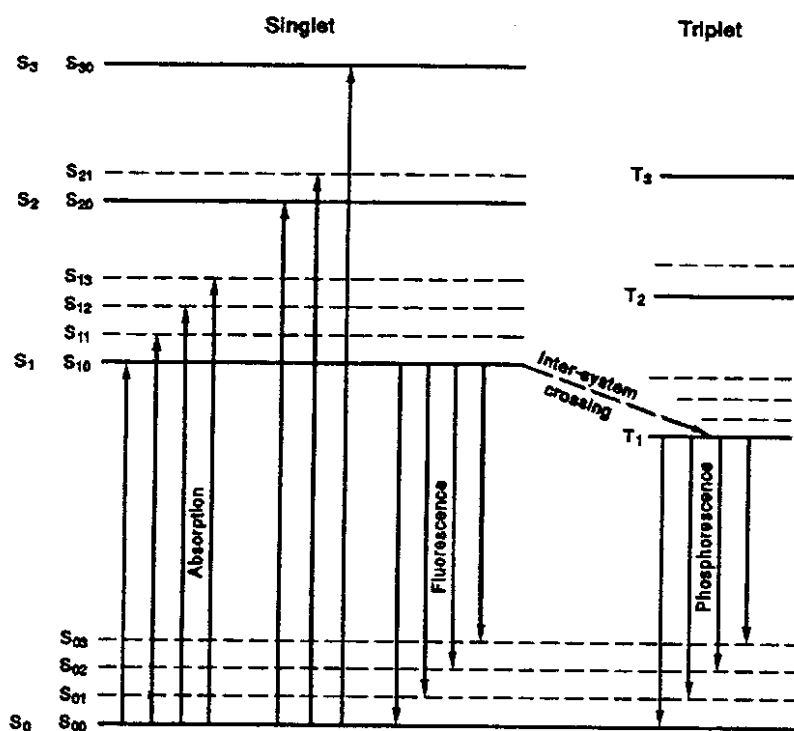


Abbildung 4.5: Jablonski-Term-Schema

Die Energie der emittierten Photonen liegt im Röntgenbereich. Mit ihrer Hilfe wird das Fluoreszenzmittel PPO auf gleiche Weise wie die Lösemittelmoleküle angeregt. In einigen Fällen kommt auch eine direkte Anregung der Fluoreszenzmoleküle durch angeregte Lösemittelmoleküle durch Dipol-Dipol-Wechselwirkungen vor. Das Fluoreszenzmittel emittiert im Anschluss bei Abregung in den Grundzustand ebenfalls ein Photon, welches dieses Mal jedoch eine Energie im niedrigen UV-Bereich bzw. hochenergetischen VIS-Bereich aufweist. So kann aus der Emission eines Elektrons mit kurzer Reichweite ein Photon deutlich niedrigerer Energie mit weiter Reichweite geschaffen werden. Die Höhe der Energie bestimmt die Anzahl der dabei angeregten Moleküle und der daraus resultierenden Photonen. Zur Ermittlung der Energie des Elektrons muss man also die Anzahl der annähernd gleichzeitig emittierten Photonen messen, nicht die Energie der Photonen. Um die Energie der Photonen nun in einen für die Detektion durch Photomultiplier optimalen Arbeitsbereich zu bringen, wird ein zweites Fluoreszenzmittel bis-MSB verwendet, welches das Photon vom PPO aufnimmt und mit anderer, zumeist mit höherer Wellenlänge, wieder abstrahlt. Wegen dieser Eigenschaft nennt man das bis-MSB auch sekundäres Fluoreszenzmittel oder „wavelength shifter“.

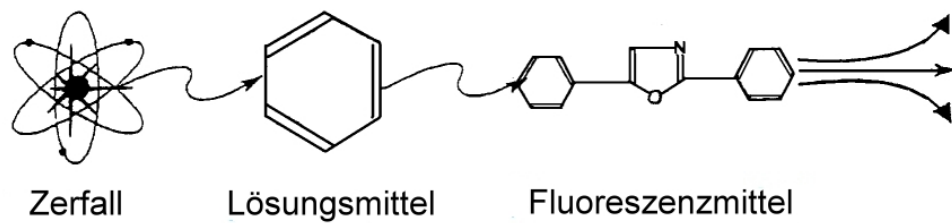


Abbildung 4.6: Szintillationsprozess; Grafik nach Brandt [Bra93]

Dies ist der optimierte Vorgang, den man Szintillation nennt. Es kann hierbei jedoch zu einer Reihe weiterer Übergänge kommen. Lösemittelmoleküle können andere Lösemittelmoleküle direkt oder über die emittierten Photonen anregen (Solvent-Solvent-Transfer), angeregte Fluoreszenzmittelmoleküle können Lösemittelmoleküle anregen, Abregung aller beteiligter Moleküle durch thermische Prozesse sind möglich und auch Reaktionen der Photonen oder angeregten Moleküle mit Fremdpartikeln müssen berücksichtigt werden, was in Kapitel 4.6.2 erläutert wird. Das Verhältnis der Anzahl der emittierten Photonen zu der Anzahl der ursprünglich angeregten Moleküle wird als „fluorescence quantum efficiency“ bezeichnet und liegt zumeist zwischen 8 % bis 10 %.

Die entstandenen niederenergetischen Photonen lassen sich nun mit einem Photomultiplier erfassen. Die Photonen treffen hierbei auf eine Photokathode (z.B. Cadmium) und schlagen aufgrund des Photoeffektes, proportional zu ihrer Anzahl, Elektronen heraus. Diese werden durch elektrische Felder beschleunigt, in den SEV (Sekundärelektronenvervielfältiger) geleitet und schlagen aus den Dynoden weitere Elektronen heraus. Auf die Art entsteht eine Lawine an Elektronen, die einen Stromimpuls ergeben. Bei dieser Verstärkung kann es durch sogenannten Dunkelstrom - zusätzlich ausgelöste Elektronen durch Temperatur - zu Verfälschung des Messergebnisses führen, weshalb man gelegentlich den Photomultiplier kühlt (nicht bei dem für diese Arbeit verwendeten Gerät).

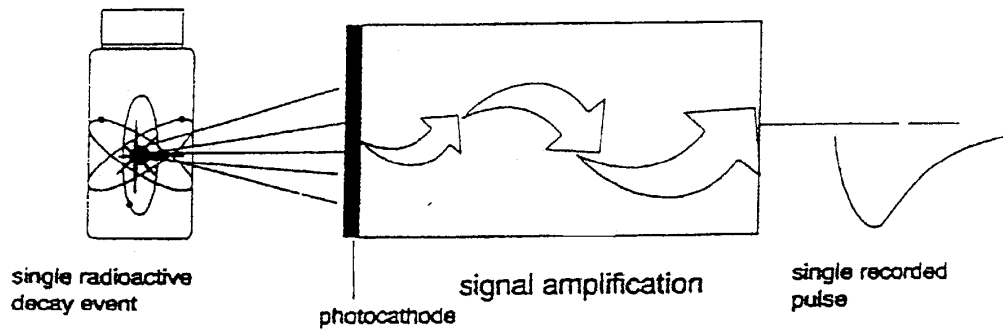


Abbildung 4.7: Detektion der Photonen mittels Photomultiplier [Bra93]

4.6.2 Quenching

Das Messgerät zählt den Stromstoß als einen Count. Die Anzahl der Elektronen im Photomultiplier gibt die Energie des beim Betazerfall emittierten Elektrons wieder. Im idealen Fall sollte die Anzahl der registrierten Counts der Anzahl der Zerfälle entsprechen, die bei geeigneter Kalibrierung die Aktivität der Probe widerspiegelt. Eine Reihe von Effekten mit Fremdpartikeln in der Lösung sorgt jedoch für eine Verstärkung bzw. Schwächung des Signals oder für eine Verschiebung der Energien. Man teilt diese „Quenching“ genannten Effekte in drei Kategorien:

Farbquenching

Die Moleküle oder Atome im Cocktail absorbieren die von den Lösemittelmolekülen oder Fluoreszenzmittelmolekülen emittierten Photonen, wodurch es zu einer geringeren mittleren freien Weglänge der Photonen und einer damit verbundenen Erniedrigung der Anzahl der Photonen kommt. Die Ausbeute verringert sich.

Chemisches Quenching

Verunreinigungen oder Probenbestandteile, die elektrophile Moleküle oder Atome enthalten, füllen ihre eigenen äußeren Schalen mit den durch den Betazerfall entstandenen Elektronen auf. Die dadurch angeregten oder ionisierten Moleküle oder Atome geben ihre Elektronen nicht wieder ab und emittieren auch keine Photonen mehr. Reduktion und Verlust des Lichtes und der damit verbundenen Ausbeute sind die Folge.

Physikalisches Quenching

Bei diesem Effekt konkurrieren die Fluoreszenzmittel mit anderen nicht-fluoreszierenden Molekülen im Cocktail. Diese nehmen die vom Lösemittel emittierten Photonen auf und reagieren sich über strahlungslose Prozesse wie Translation, Vibration und Intersystem-Crossing (Grafik 4.5: S1 zu T1) ab, was auf makroskopischer Ebene einer geringfügigen Erwärmung der Probe entspricht. Ein weiterer physikalischer Quenchprozess ist die Lichtstreuung an Fremdpartikeln.

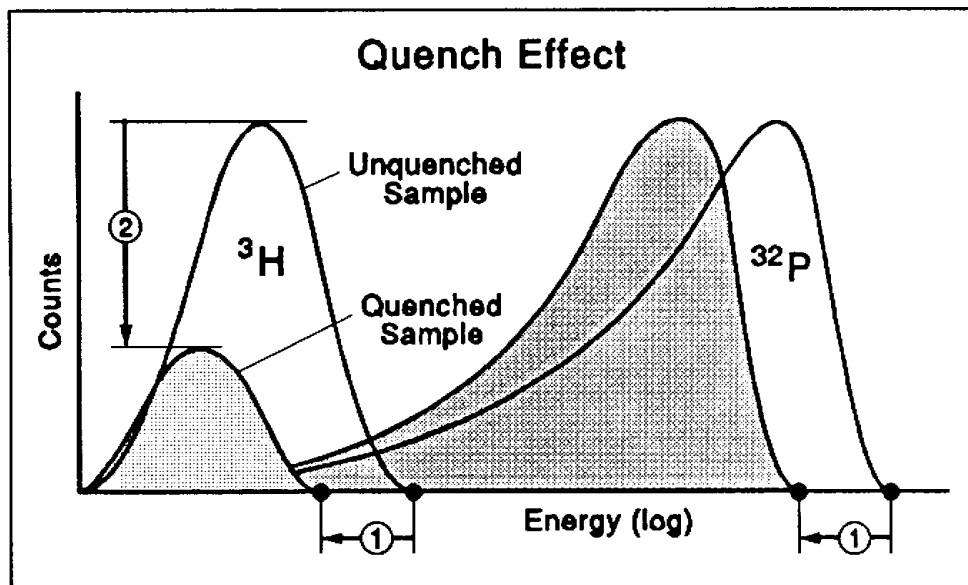


Abbildung 4.8: Quenchkurven mit Erniedrigung der Energien (1) und der Anzahl der Ereignisse (2)

Um diese Effekte bei der Auswertung berücksichtigen zu können, wird eine Quenchkalibrierung durchgeführt. Dabei werden künstlich verschiedene Verunreinigungsgrade hergestellt und für jede Verunreinigung eine Kalibrierung ermittelt. Um diese Verunreinigung mit einer unbekannt Probe zu korrelieren, muss nun ein Maß für die Verunreinigung gefunden werden. Dies geschieht durch eine externe ^{226}Ra -Quelle ($A=370$ kBq), dessen α -Zerfall kurzzeitig aufgezeichnet wird. Die Quelle ist so stark, dass dabei die Zerfallsprozesse der Probe keinen Einfluss haben. Das Maximum des α -Spektrums wird registriert und der entsprechende Kanal als sogenannter Standard-Quench-Parameter (SQP) ausgegeben. Zu jedem

Verunreinigungsgrad gibt es eine so bestimmbare andere Ausbeute. Auf diese Art wird eine Funktion ermittelt, die für einen beliebigen SQP-Wert mittels Interpolation eine Ausbeute widerspiegelt. In Abbildung 4.9 ist mit der Auftragung der Ausbeute über den SQP-Wert eine solche Quenchkalibrierung zu sehen. Die Kurve verläuft in diesem Fall linear (Linearitätstest nach Mandel: $PW < F$; F-Test: $f_1=1$, $f_2=N-3$; $P=99\%$), kann aber auch wie beispielsweise oftmals bei Tritium exponentiell verlaufen.

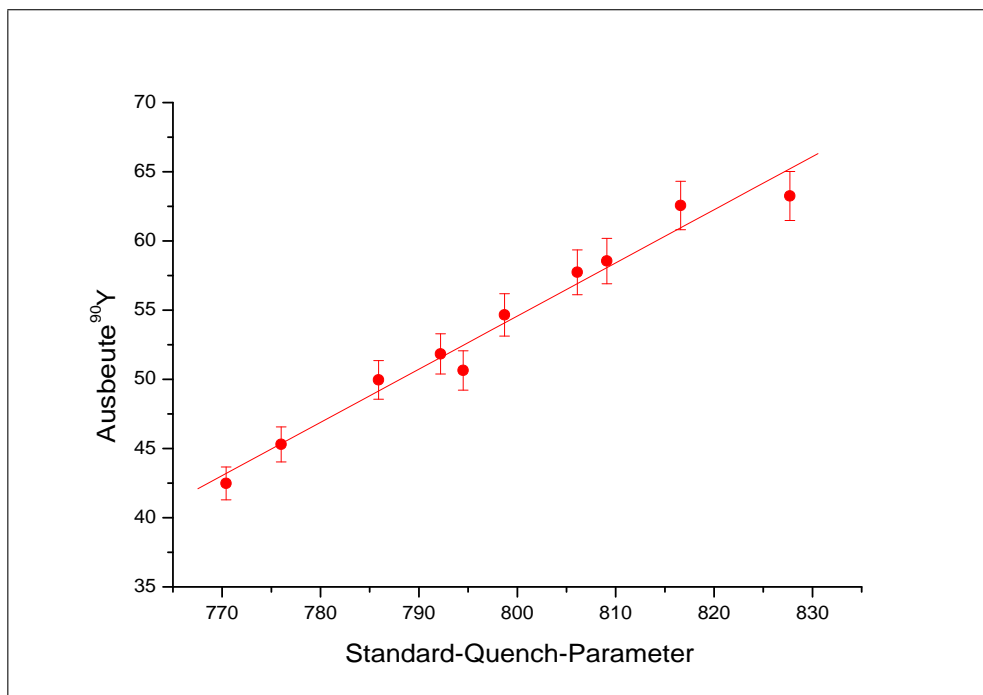


Abbildung 4.9: Ausbeute (Efficiency) in Abhängigkeit der Verunreinigung, gemessen als SQP-Wert

4.6.3 Chemolumineszenz

Die bisher betrachteten Effekte haben zur Folge, dass die Ausbeute sinkt und das Betaspektrum zu niedrigeren Energien verschoben wird. Eine Erhöhung der Ausbeute, also die Messung von radioaktiven Zerfällen, die gar nicht stattgefunden haben, ist ebenfalls möglich, und basiert auf der Anregung von Lösemittelmolekülen durch chemische Prozesse. Diese Chemolumineszenz wird überwiegend durch oxidierende Säuren und Peroxide verursacht. Während die durch radioaktiven Zerfall ausgelösten Prozesse gleichzeitig mehrere Photonen proportional zur Energie des Elektrons auslösen, handelt es sich bei der Chemolumineszenz um ein einmaliges Ereignis. Daher verwendet man zumeist zwei Photomultiplier. Detektiert man in nur einem Photomultiplier ein Ereignis, stammt es mit hoher Wahrscheinlichkeit von der Chemolumineszenz; detektiert man dagegen in beiden Photomultipliern gleichzeitig ein Ereignis (koinzident) stammt dieses vom radioaktiven Zerfall. Dieser Koinzidenzbereich beträgt bei modernen Geräten um die 20 Nanosekunden. Mit steigender Chemolumineszenz in einer Probe steigt die Wahrscheinlichkeit, dass zwei Ereignisse, die durch Chemolumineszenz ausgelöst wurden, innerhalb dieser 20 Nanosekunden von je einem Photomultiplier registriert werden. Diese würden fälschlicherweise als radioaktiver Zerfall gezählt werden. Heutzutage liegen bei modernen Geräten solche Ereignisse bei einer Rate von 0,01 cpm (Count per Minute).

4.6.4 Aufbau

Der Untergrund oder Background einer Messung mittels LSC entsteht durch

- Kosmische Höhenstrahlung (siehe Kap.1.3.1)
- Radioaktive Nuklide in der Umgebung (siehe Kap. 1.3.1)
- Zufällige Koinzidenzen (siehe Kap. 4.6.3)
- Crosstalk: durch elektrische Entladungen und Cerenkov-Strahlung, die in einem der Photomultiplier entstehen, können Photonen emittiert werden, die in dem anderen Photomultiplier detektiert werden. Dieser Effekt macht ca. ein Drittel des Untergrundes aus. Signale, die auf Crosstalk beruhen, sind koinzident, allerdings lassen sie sich durch ihre Amplituden unterscheiden und sind so oft durch einen Pulsamplitudenvergleich (PAC) von den Zerfallsprozessen zu unterscheiden.

Zur Verringerung des Untergrundes verwendet man bei dem in dieser Arbeit eingesetzten Low-Level-LSC eine passive und aktive Abschirmung.

Die passive Abschirmung (Passiv Guard) besteht hauptsächlich aus einer Bleischicht, die die kosmische Strahlung reduzieren soll. Eine dünne Cadmiumschicht schirmt thermische Neutronen und die durch die Bleiabschirmung entstehende Röntgenstrahlung ab. Eine ebenfalls dünne Schicht Kupfer verringert die in der Cadmiumschicht entstandene Strahlung und restliche Höhenstrahlung.

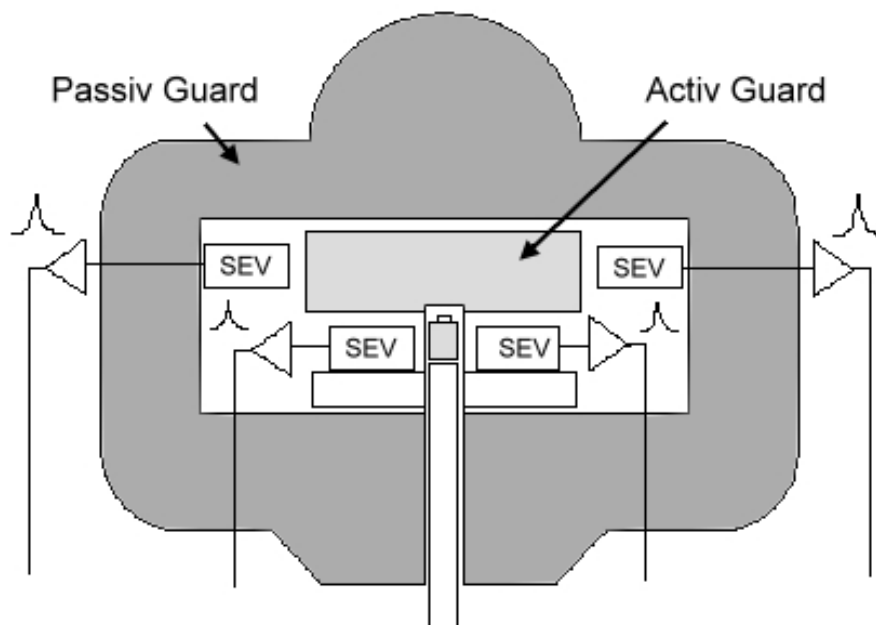


Abbildung 4.10: Aufbau eines Flüssig-Szintillations-Zählers mit Passiv- und Activ Guard

Trotz dieser Maßnahmen kommen weiterhin Teile des Photonenstroms der Höhenstrahlung bei der Messzelle an. Um diese von den Ereignissen des Zerfalls in der Probe zu unterscheiden, besitzt das Gerät eine aktive Abschirmung (Active Guard). Diese besteht aus zwei weiteren Photomultipliern und einem Tank mit einer auf Mineralöl basierenden Szintillatorflüssigkeit, die über der eigentlichen Messzelle angeordnet sind. Wird ein Signal in der Messzelle und wiederum koinzident im Active Guard detektiert, wird es der Höhenstrahlung zugeordnet. Nur ein Signal das koinzident in beiden Photomultipliern der Messzelle und nicht im Active Guard gesehen wird, stammt mit hoher Wahrscheinlichkeit vom radioaktiven

Zerfall.

4.7 Auswertung

4.7.1 Aktivitätsbestimmung mittels LSC

Die durch die Photomultiplier gemessenen Signale werden mittels A/D-Wandler logarithmisch umgewandelt, so dass die Spektren über einen größeren Kanalbereich gespreizt werden, was eine höhere Auflösung bei niedrigen Energien zur Folge hat.

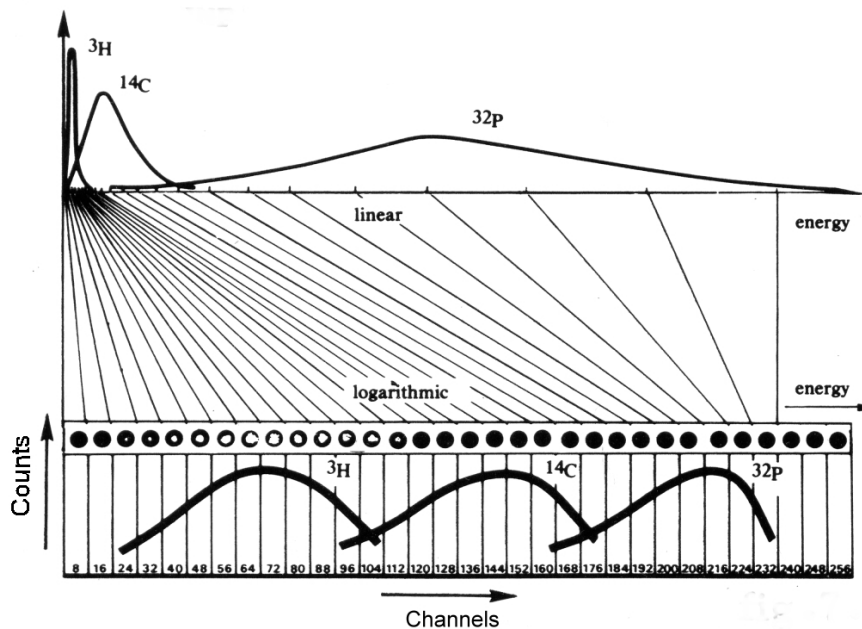


Abbildung 4.11: Energieaufteilung eines LSC-Spektrums [Wal86]

Die Signale werden in insgesamt 1024 Energiebereichen bzw. Kanälen wiedergegeben. Die Auswertung kann in vorgegebenen Teilen des Spektrums, sogenannten Fenstern, durch Integration erfolgen.

Die von dem LSC ausgegebene Aktivität A für eine beliebige Messung errechnet sich aus der Zählrate ρ und der durch die Quenchkalibrierung ermittelten Geräteausbeute ε :

$$A = \frac{\rho}{\varepsilon} \quad (4.1)$$

Die so ermittelte Aktivität wird in Form von DPM (Disintegrations per Minute) wiedergegeben und läßt sich durch Division mit dem Faktor 60 direkt in Bq umrechnen.

Die Auswertung solcher Messwerte und deren Unsicherheit werden nach DIN 1319 Teil 3 - Grundlagen der Messtechnik - bestimmt. Die Kombination der Messgrößen und deren Nomenklatur sind im „Guide to the expression of uncertainty in measurement“ beschrieben [Deu96, Int95].

Im Falle nicht korrelierter und von einander unabhängiger Messgrößen berechnet man die Standardunsicherheit eines Modells als positive Wurzel der kombinierten Varianz, auch als quadratisches Fehlerfortpflanzungsgesetz bekannt mit

$$u^2(y) = \sum_{i=1}^m \left(\frac{\partial G}{\partial X_i} \right)^2 u^2(x_i). \quad (4.2)$$

Danach ergibt sich für Formel 4.1 die Standardmessunsicherheit

$$u(A) = \frac{1}{\varepsilon} \cdot \sqrt{u^2(\rho) + A^2 \cdot u^2(\varepsilon)}. \quad (4.3)$$

Diese Berechnung stimmt mit der vom Hersteller des LSC angegebenen Berechnung der ausgegebenen Unsicherheit überein und kann somit direkt übernommen werden.

4.7.2 Ausbeute

Nach der chromatographischen Trennung werden die Fraktionen, die ^{85}Sr enthalten, wie in Kapitel 4.4 beschrieben, ausgewählt. Die Bestimmung der Aktivität des ^{85}Sr erfolgt jedoch

im Anschluss aufgrund geringeren Untergrundes und besserer Ausbeute (Efficiency) mit dem Flüssig-Szintillations-Zähler. Die 514 keV-Linie des ^{85}Sr findet sich in den Kanälen 100-300 (Grafik 4.12 Fenster 1) wieder und überschneidet sich nur geringfügig mit den Spektren von ^{90}Sr und ^{90}Y . Die Messung ist ebenfalls von der Trübung abhängig, sodass auch hier die Quenckkalibrierung durchgeführt wird. Ein als konstant betrachteter Untergrund von ca. 9 cpm (Counts per Minute) wird automatisch abgezogen. Die gemessene Aktivität des ^{85}Sr einer Probe wird ins Verhältnis gesetzt zu der Aktivität an ^{85}Sr , die zu Beginn des Trennungsganges der Probe zugegeben wurde:

$$\varepsilon_c = \frac{A_{Sr-85-E} - A_0}{A_{Sr-85-A}} \quad (4.4)$$

mit

- $A_{Sr-85-E}$: Aktivität des ^{85}Sr am Ende nach chemischer Trennung
- A_0 : Aktivität des Untergrundes
- $A_{Sr-85-A}$: pipettierte Aktivität vor Beginn der chemischen Trennung

Die Unsicherheit der Ausbeute nach Formel 4.2 lässt sich berechnen zu

$$u(\varepsilon_c) = \frac{1}{A_{Sr-85-A}} \cdot \sqrt{\varepsilon_c^2 \cdot u^2(A_{Sr-85-A}) + u^2(A_{Sr-85-E}) + u^2(A_0)} \quad (4.5)$$

$A_{Sr-85-A}$ und ε_c lassen sich errechnen, $u(A_{Sr-85-E})$ und $u(A_0)$ werden vom LSC nach Formel 4.3 vorgegeben.

4.7.3 ^{90}Sr -Aktivität

Nach Ablauf von ca. 8 Halbwertszeiten des Tochternuklids ^{90}Y (3 Wochen) kann man davon ausgehen, dass sich zwischen Mutter- und Tochternuklid ein Gleichgewicht eingestellt hat und die Aktivitäten gleich sind (Kap. 1.2.1). Als Messzeit werden 18 Stunden gewählt, da selbst bei niedrig kontaminierten Proben so einige tausend Ereignisse detektiert werden und damit bei einer angenommenen Poisonverteilung ($n \Rightarrow \infty$, $p \Rightarrow 0$) die relative Standardunsicherheit unter 1 % liegt. Für die Messung einer Probe, die ^{85}Sr , ^{90}Sr und ^{90}Y enthält, ergibt sich die in Abbildung 4.12 dargestellte Verteilung.

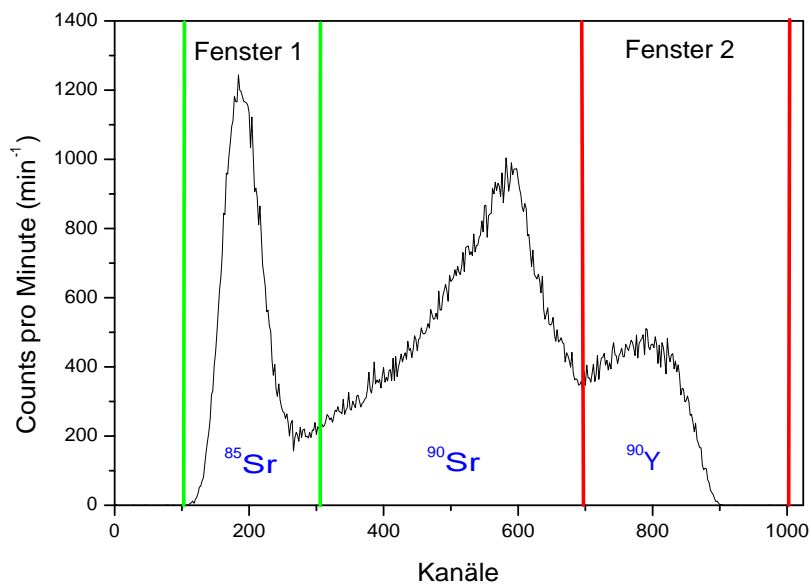


Abbildung 4.12: Spektrum von ^{85}Sr , ^{90}Sr und ^{90}Y mit Fenstersetzung

Aus den folgenden drei Gründen wird eine Messung der ^{90}Sr -Aktivität über das ^{90}Y in den Kanälen 700-1000 (Fenster 2) durchgeführt, was einem Energiebereich von etwa 1450-2300 keV entspricht:

- ^{90}Y und ^{90}Sr überlagern sich im Bereich von 500-700 Kanälen stark.
- Reines ^{85}Sr weist in den Kanälen 300-650 einen Comptonuntergrund auf und in geringem Maße bei 650-700 Kanälen einen Effekt, der vermutlich auf Paarbildung zurückzuführen ist (Spektrum ^{85}Sr siehe Anhang B Grafik B.8).
- Zudem findet sich im Bereich von 100-800 Kanälen der Hauptanteil des Untergrundes (siehe Anhang B Grafik B.8). Das einzig störende Nuklid in diesem Fenster könnte das ^{89}Sr sein, welches ebenfalls durch Kernspaltungsprozesse entsteht, allerdings mit einer Halbwertszeit von 50,5 Tagen bei den untersuchten Proben keine Rolle spielt.

Untersucht man Proben mit sehr geringen Gehalten an ^{90}Sr , ist es auch möglich für die Bestimmung des ^{90}Y , die Wahl des Kanalbereichs auf 800-1000 Kanäle einzuengen. Da dort

weniger Untergrund zu finden ist, senken sich so die Erkennungs- und Nachweisgrenze ab. Die Zählrate wird jedoch auch gesenkt, was höhere Unsicherheiten zur Folge hat.

Ist es erforderlich, ein schnelles Messergebnis zu erhalten, kann auch auf die Einstellung des säkularen Gleichgewichtes verzichtet werden und ca. 2 Tage nach der chemischen Trennung des Yttriums vom Strontium eine sich wiederholende Messung gestartet werden. Über die Kinetik des Aufbaus des ^{90}Y kann dann die Identifikation, Reinheit und Aktivität erfasst werden. In den ersten Stunden verläuft dabei der Aufbau des ^{90}Y fast linear mit ca. 1 % pro Stunde.

Wie bei der Ausbeutebestimmung wurde mittels ^{226}Ra ein SQP-Wert ermittelt und eine geeignete Kalibrierung automatisch gewählt. Durch Blanks konnte festgestellt werden, dass der Untergrund über die Monate nicht konstant war. Eine vermutlich langsame Kontamination der Glasgeräte im Labor führte zu einer leichten Erhöhung, so dass eine Korrektur des ^{90}Sr Messwertes für jede Probe einzeln und nachträglich erfolgen musste. Näheres zu der Problematik ist in Kapitel 4.9.3 beschrieben.

Die spezifische ^{90}Sr -Aktivität ergibt sich aus dem Berechnungsmodell:

$$A_s = \frac{1}{m \cdot \varepsilon_c} \cdot DPM_{netto} = \frac{1}{m \cdot \varepsilon_c} \cdot (DPM_{brutto} - DPM_0) \quad (4.6)$$

Hierbei ist m die ursprüngliche Masse der Probe, ε_c die Ausbeute nach der Probenaufbereitung und die DPM-Werte die vom Gerät ausgegebenen, integrierten und kalibrierten Aktivitäten. Nach Formel 4.2 ergibt sich für die Standardmessunsicherheit:

$$u(A_s) = A \cdot \sqrt{u_{rel}^2(m) + u_{rel}^2(\varepsilon_c) + u_{rel}^2(DPM_{netto})}. \quad (4.7)$$

4.8 Nachweis- und Erkennungsgrenze

Um bei der Analyse einer Probe eine Aussage über die Richtigkeit einer Probe zu beschreiben, ist es erforderlich Grenzen festzulegen, ab denen ein Messwert signifikant einen Probenanteil enthält und ab wann dieser quantifiziert werden kann. Hierzu dienen DIN-Vorschriften, die keine gesetzliche Grundlage darstellen, aber als Regel nach „Stand und Technik“ Anwendung finden. Für den Bereich der chemischen Analytik gilt die DIN 32645 - Nachweis-, Erfassungs- und Bestimmungsgrenze, im Bereich der Qualitätssicherung und Statistik die DIN 55350 Teil 34 und für den Bereich der Kernstrahlungsmessungen DIN 25482 [Deu03]. Letztere findet in dieser Arbeit Anwendung. Zurzeit gibt es noch keine einheitliche Definition der beschriebenen Grenzen, so dass es bei den Vorschriften zu unterschiedlichen Deklarationen und Grundlagen für die Berechnung der Grenzen kommt. Nach DIN 25482 - „Nachweis-, Erkennungs- und Vertrauensgrenzen bei Kernstrahlungsmessungen“ - ist der kritische Wert, ab dem ein Signal einem Probenbeitrag zugeschrieben wird, als Erkennungsgrenze (EKG) definiert. Für den Fall, dass ein Probenbeitrag erkannt wird, aber nicht vorliegt, macht man einen Fehler 1. Art, dessen Wahrscheinlichkeit mit α angegeben wird. Nimmt man dagegen an, keinen Probenbeitrag zu haben, obwohl einer vorhanden ist, handelt es sich um einen Fehler 2. Art. Dieser Fehler stellt die Grundlage für die Definition der Nachweisgrenze (NWG) dar, die den kleinsten wahren Wert der Messgröße repräsentiert, für den bei Vorliegen der oben definierten Erkennungsgrenze die Wahrscheinlichkeit für den Fehler 2. Art durch Festlegung eines Wertes β gilt.

Bei mehrfach wiederholten Messungen zeigt sich eine Häufigkeitsverteilung, die im idealen Fall symmetrisch ist, wie beispielsweise bei der Normalverteilung. Sie wird beschrieben durch einen Erwartungswert μ und eine Standardabweichung σ . Bei einer endlichen Zahl von Messungen kann der Erwartungswert durch das arithmetische Mittel

$$\bar{x} = \frac{1}{n} \cdot \sum_{i=1}^n x_i \quad (4.8)$$

als besten Schätzer für den wahren Wert ermittelt werden. Die Standardabweichung ergibt sich aus der mittleren quadratischen Abweichung der Messwerte vom Mittelwert. Multipliziert man die Standardabweichung σ mit einem Faktor k kann ein Anteil $1-p$ der Messwerte festgelegt werden, der mit $k \cdot \sigma$ um \bar{x} verteilt ist. Der prozentuale Anteil p liegt außerhalb

dieses Bereiches. Auf die Art werden sogenannte einseitige Quantile definiert, mit Hilfe derer die Nachweis-, und Erkennungsgrenze festgelegt werden kann. Die Vertrauensgrenze, die zur Charakterisierung eines Messergebnisses einen Vertrauensbereich einschließt, wird durch zweiseitige Quantile beschrieben. Diese Faktoren k werden aus standardisierten Normalverteilung mit einem Erwartungswert von 0 und einer Standardabweichung von 1 berechnet und finden sich tabelliert in verschiedener Literatur (z. B. [Mic99]). Nach der neuen vorläufigen DIN 25482-1 vom September 2003 sollte man für die Fehler 1. und 2. Art α , β den Wert 0,05 verwenden. Hieraus ergibt sich für den Faktor $k_{1-\alpha}$ wie $k_{1-\beta}$ ein Wert von 1,645.

Eine mit diesem Faktor definierte Erkennungsgrenze bewirkt die Annahme, dass bei Überschreitung eines Schätzers für die Erkennungsgrenze bei einer Messung ein Probenbeitrag vorliegt. Mit einer Wahrscheinlichkeit von 5 % (α) liegt jedoch kein Probenbeitrag vor. Dementsprechend führt bei Verwendung dieses Faktors bei der Nachweisgrenze eine Probe mit Probenbeitrag in 5 % (β) der Fälle zu der fälschlichen Annahme, es läge kein Probenbeitrag vor [Mic99].

4.8.1 Festlegung der Erkennungsgrenze

Ein Messergebnis x muss bei der vorgewählten Irrtumswahrscheinlichkeit α größer sein als die Erkennungsgrenze

$$Y^* = k_{1-\alpha} \cdot \tilde{u}(0) \quad (4.9)$$

Mit $\tilde{u}(0)$: Standardunsicherheit des wahren und in der Regel nicht bekannten Wertes.

Meist genügt die Näherung, dass die Standardunsicherheit des Messwertes gleich der Standardunsicherheit des wahren Wertes ist, womit

$$Y^* = k_{1-\alpha} \cdot u(0) \quad (4.10)$$

gilt.

4.8.2 Festlegung der Nachweisgrenze

Die Nachweisgrenze η^* ist der kleinste wahre Wert der Messgröße, der nachgewiesen werden kann. Sie liegt soweit über der Erkennungsgrenze, dass die Wahrscheinlichkeit des Fehlers 2. Art wie beschrieben höchstens gleich β ist. Daher gilt:

$$\eta^* = Y^* + k_{1-\beta} \cdot \tilde{u}(\eta^*) \quad (4.11)$$

Da η^* von seiner eigenen Standardunsicherheit abhängt, ist dies nur durch Iteration lösbar. Konvergiert die Iteration nicht oder ist der Wert kleiner als die Erkennungsgrenze, existiert die Nachweisgrenze nicht. Unter Verwendung einer rasch konvergierenden Newton-Iteration, bei der es sich um ein Näherungsverfahren zur Berechnung einer Nullstelle einer Funktion $f(x)$ handelt, lässt sich folgende Näherung angeben:

$$\eta^* = \frac{y^* + k_{1-\beta} \cdot (\tilde{u}(\eta^*) - \eta^* \cdot \tilde{u}'(\eta^*))}{1 - k_{1-\beta} \cdot \tilde{u}'(\eta^*)}. \quad (4.12)$$

Mit einer linearen Interpolation ergibt sich

$$\eta^* = \phi + \sqrt{\phi^2 + (k_{1-\beta}^2 - k_{1-\alpha}^2) \cdot \tilde{u}^2(0)}. \quad (4.13)$$

ϕ ergibt sich aus

$$\phi = k_{1-\alpha} \cdot \tilde{u}^2(0) + \frac{1}{2}(k_{1-\beta}^2/y)(u^2(y) - \tilde{u}^2(0)). \quad (4.14)$$

Wenn $\alpha = \beta$ ist, folgt $\eta^* = 2 \cdot \phi$. Diese Näherung findet speziell dann Anwendung, wenn nur die Standardunsicherheit des Untergrundes und die Unsicherheit des Messwertes bekannt sind. Sämtliche in dieser Arbeit vorkommenden Nachweisgrenzen sind vom Messergebnis abhängig und wurden mit Formel 4.13 berechnet.

4.9 Qualitätssicherung

Ziel jeder analytischen Arbeit muss es sein, zuverlässige Analysenergebnisse definierter Qualität zu erhalten. Qualitätsmerkmale des Analyseverfahrens sind:

- die Spezifität: Sie beschreibt die Fähigkeit des Verfahrens, nur den oder die gesuchten Analyten zu erfassen, wobei andere in der Probe anwesende Bestandteile das Messergebnis nicht beeinflussen,
- die Empfindlichkeit: Sie gibt die angezeigte Messwertänderung pro Konzentrationsänderung bzw. Aktivitätsänderung an,
- die Genauigkeit: Sie ist eine qualitative Aussage über das Ausmaß der Annäherung von Analysenergebnissen an den Bezugswert, wobei dieser einen wahren, richtigen oder Erwartungswert darstellen kann. Die Genauigkeit beinhaltet die Präzision und Richtigkeit,
- die Präzision: Sie ist eine Bezeichnung für das Ausmaß der Annäherung voneinander unabhängiger Messergebnisse bei mehrfacher Anwendung desselben Verfahrens. Man unterscheidet die Wiederholpräzision (Messung des gleichen Objektes mit demselben Verfahren in kurzer Zeit hintereinander) und die Vergleichspräzision (Messung derselben Proben oder eines Aliquots in verschiedenen Laboren mit demselben Messprinzip) und
- die Richtigkeit: Sie ist eine qualitative Bezeichnung für die Annäherung des Erwartungswertes des Messergebnisses an den Bezugswert. Richtigkeit setzt das Fehlen von systematischen Fehlern voraus. Ein Maß für die Richtigkeit kann somit die systematische Ergebnisabweichung vom Erwartungswert sein, auch Unrichtigkeit genannt. Bei einigen Analysen kann der richtige Wert auch ein nach Stand der Wissenschaft festgelegter Wert sein.

In der Praxis findet häufig das 4-Phasen-Modell der Qualitätssicherung Anwendung:

- Phase 1: ein neues Analyseverfahren wird auf seine Qualitätsmerkmale hin untersucht, gegebenenfalls verbessert und beschrieben.
- Phase 2: das Analyseverfahren wird für die Routineanalytik vorbereitet. Hierzu gehören in erster Linie das Erreichen und die Wahrung einer ausreichenden Analysenqualität vor Eintreten in die Routineanalytik.
- Phase 3: die gewählten Kontrollmechanismen begleiten die Routineanalytik und gewährleisten die Aufrechterhaltung der Zuverlässigkeit und die Dokumentation der Messergebnisse. Die Kontrollen können sowohl laborintern als auch -extern erfolgen.
- Phase 4: es erfolgt eine laborexterne analytische Qualitätssicherung in Form von Ringversuchen.

Das 4-Phasen-Modell wird in der Wirtschaft oftmals als Akkreditierungswerkzeug verwendet und beinhaltet eine Vielzahl weiterer in dieser Arbeit nicht erwähnter Kontrollkriterien. Es soll hier aber herangezogen werden, um die Reproduzierbarkeit und Richtigkeit der Messungen zu beschreiben und zu bestätigen.

4.9.1 Phase 1

Die Auswahl des zur ^{90}Sr -Bestimmung gewählten Verfahrens ist, wie in Kapitel 4.4 beschrieben, von dem Kollegen Dr. Martin Filß am Zentrum für Strahlenschutz und Radioökologie vorgegeben und wurde lediglich in einigen Punkten der chemischen Trennung verbessert. Es folgten die Beschreibung des Verfahrens durch ein Rechenmodell (Formel 4.6) und die Aufstellung einer Kalibrierung. Letzteres erfolgte durch einen flüssigen ^{90}Sr -Standard der PTB (Physikalisch Technische Bundesanstalt - Braunschweig). 15 ml Szintillator wurden mit 5 ml einer wenige Becquerel ^{90}Sr enthaltenden Lösung unterschiedlicher Säurekonzentration versetzt. Die unterschiedlichen pH-Werte bewirken Quencheffekte, die direkt für die Quenchkalibrierung (Kapitel 4.6.2) verwendet werden. Grafik 4.13 zeigt zu verschiedenen Zeitpunkten aufgestellten Quenchkalibrierungen, die sich kaum unterscheiden. Eine deutlich schwächere Ausbeute bei gleichem Quenchwert ist jedoch von Dr. Filß 1998 gefunden worden, was auf das von ihm verwendete andere Szintillationsmittel zurückzuführen ist.

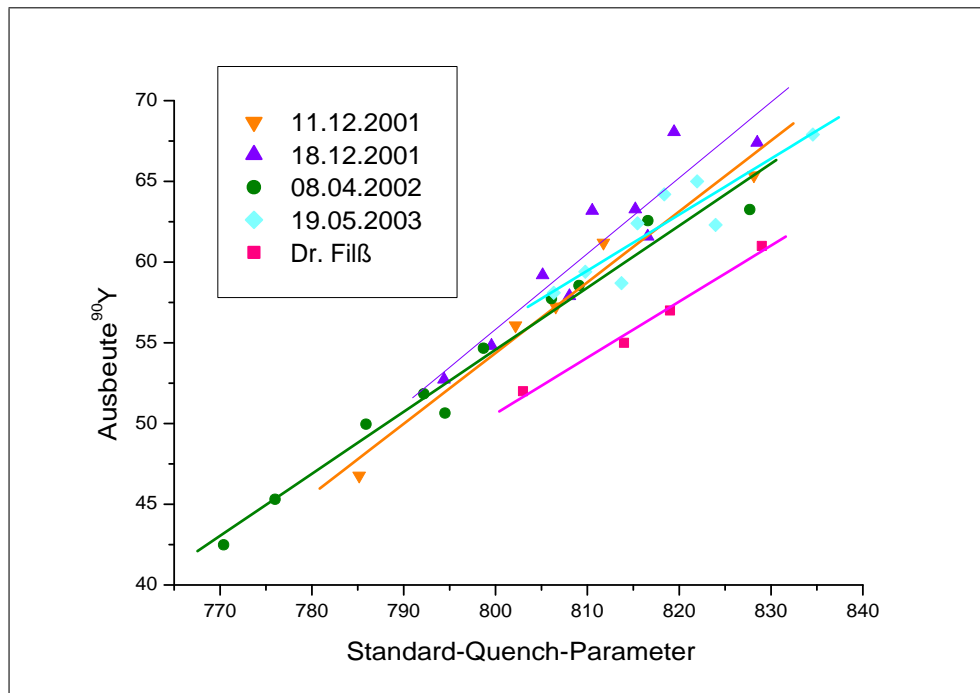


Abbildung 4.13: Quenchkurven, ermittelt zu verschiedenen Zeiten; Vergleich mit Quenchkurve von Dr. Filß

Alle Kurven weisen nach dem Anpassungstest nach Mandel eine bessere Beschreibung des Kurvenverlaufes durch eine Kalibrierfunktion erster Ordnung (linear) als durch eine Kalibrierfunktion zweiter Ordnung (Nach Mandel; F-Test: $f_1=1$, $f_2=N-3$; $P=99\%$) auf. Es konnten keine Ausreißer gefunden werden (Grubbs-Test; F-Test: $f_1=1$, $f_2=N2-2$, $P=95\%$) [Fun92]. Neben dem Aufstellen des Analyseverfahrens, einer Modellbeschreibung und der Kalibration mit Linearitätstest und Ausreißertest gehört noch die Bestimmung in Kapiteln 4.8.1 und 4.8.2 beschriebenen Nachweisgrenze und Erkennungsgrenze zu den Aufgaben der Phase 1. Diese Grenzen sind probenabhängig und werden später näher interpretiert.

4.9.2 Phase 2

Diese Phase dient der Vorbereitung für die Analytik und beschränkt sich auf das Einüben routinemäßiger Abläufe der chemischen Aufbereitung, Detektion und Auswertung.

Teil dieser Phase ist auch die Überprüfung, ob die gewählte Methode geeignet ist und richtige Ergebnisse produziert. Hierfür wurde ein Tiefenprofil aus Kupetsch-Tscherjanka gemessen.

Der Ort liegt in der Zone 3 um Tschernobyl, also in einem nicht evakuiertem Bereich. Die gleichen Proben sind 1998 von Dr. Filß untersucht worden und können somit nach erfolgter Zerfallskorrektur für einen direkten Vergleich herangezogen werden.

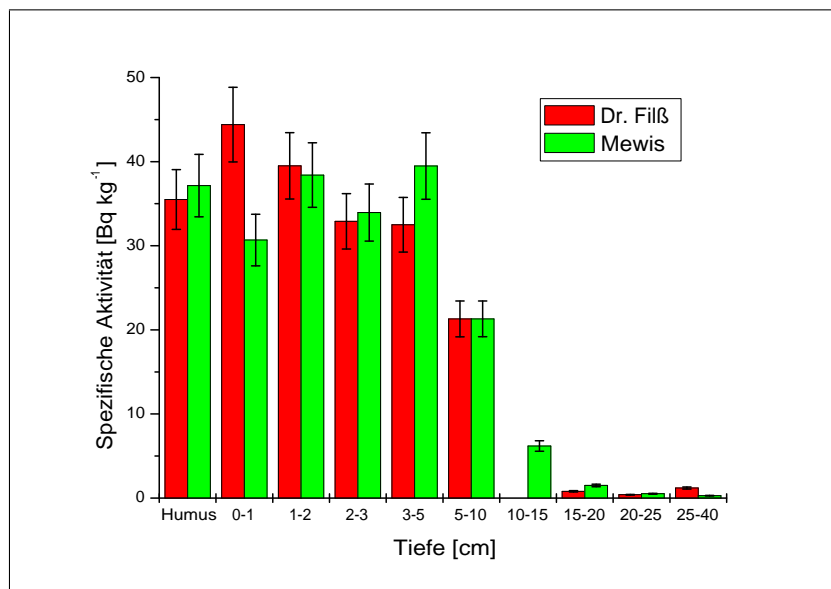


Abbildung 4.14: Tiefenprofil von Kupetsch-Tscherjanka mit Vergleichsmessung

Die spezifischen Aktivitäten zeigen gute Übereinstimmungen. Lediglich bei den Tiefenschichten 0-1 cm und 3-5 cm sind größere Abweichungen festzustellen. In der Schicht von 3-5 cm liegen die Unterschiede in dem Bereich der Unsicherheiten, die für die Proben um die 4 % betragen. Die Differenz in der Schicht von 0-1 cm ist nicht näher zu klären, könnte jedoch auf ein falsches Messergebnis zurückzuführen sein oder auf Inhomogenität in der Ausgangsprobe. Eine Wiederholung der Messung bestätigte das von mir zuerst gemessene Ergebnis.

Eine weitere Vergleichsmessung wurde mit laborexternen Ringversuchen aus den Jahren 2000 und 2001 durchgeführt, bei denen der Sollwert vor Beginn der Messung bereits bekannt war.

Tabelle 4.1: Ringversuch 01.2000; BfS [Obr00]

	Bq kg ⁻¹	Unsicherheit	Sollwert	σ -Bereich der Ringversuchsmessungen	NWG
Modellwasser	2,036	0,140	2,98	0,994	0,114
Modellwasser	2,560	0,143	2,98	0,994	0,134
Realwasser	0,306	0,023	0,572	0,208	0,075
Realwasser	0,437	0,031	0,572	0,208	0,084

Die gemessenen spezifischen Aktivitäten für Sr-90 liegen im Bereich der Standardabweichung des Sollwertes und bestätigen die Anwendbarkeit des Verfahrens auch bei sehr niedrigen spezifischen Aktivitäten in der Nähe der Nachweisgrenzen.

4.9.3 Phase 3

Bei Eintritt in die Routineanalytik ist es erforderlich, mittels regelmäßig wiederkehrender, laborinterner Qualitätskontrollen von Standards und Blindwerten die Qualität der Ergebnisse zu garantieren. Um dies zu erreichen, wurde im monatlichen Zeitabstand eine Blindwertmessung (Blank) durchgeführt. Dabei werden alle Reagenzien wie bei einer realen Proben eingesetzt und statt der Probe ca. 100 ml destilliertes Wasser verwendet. Da in dem Wasser selbst kein Calcium und Strontium vorhanden war, wurden die Menge des Calcium- und Strontiumträgers auf die doppelte Menge erhöht. So ist ausreichend Material für die Fällungsreaktion der chemischen Abtrennung vorhanden. Bei der Überprüfung über Monate ergab sich, wie in Abbildung 4.15 zu sehen ist, von dem Zeitpunkt an, ab dem höher kontaminierte Ukraineproben gemessen wurden (ab 08.2002), ein kontinuierlicher Anstieg des Untergrundes. Nach einigen Untersuchungen konnte dieses Phänomen der kontinuierlichen Kontamination der Glasapparaturen- und Geräte im Labor zugeschrieben werden.

Es boten sich die Möglichkeiten die Glasgeräte nach einer Messung nicht nur auszuwaschen, sondern mit einer geeigneten Säure (HCl) auszukochen oder die Glassachen durch Kunststoffgefäße zu ersetzen, da diese weit weniger Nuklide in ihrer Oberfläche einlagern. Da diese beiden Möglichkeiten mit Kosten und großem Zeitaufwand verbunden gewesen wären und zur Kontrolle zusätzliche Untergrundmessungen vor jeder Probe erfordert hätten, wurde darauf verzichtet. Die gegebene Kontamination erwies sich bei mehrfacher Kontrolle linear und reproduzierbar steigend; selbst mehrere direkt hintereinander folgende Messungen von

Blanks ergaben keine kurzzeitige Absenkung des Untergrundes. So war es möglich, die gegebene Kontamination in die Berechnungen zu integrieren.

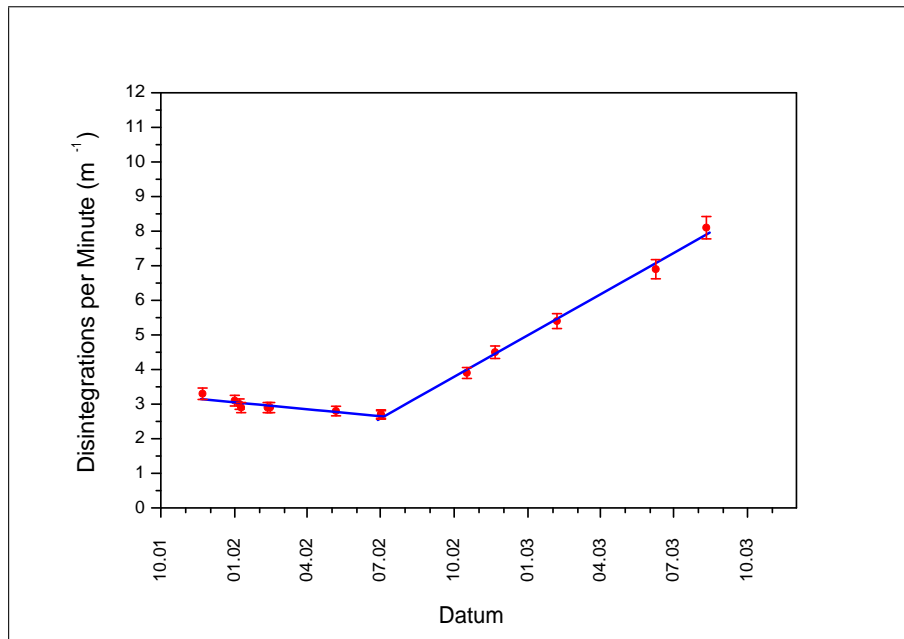
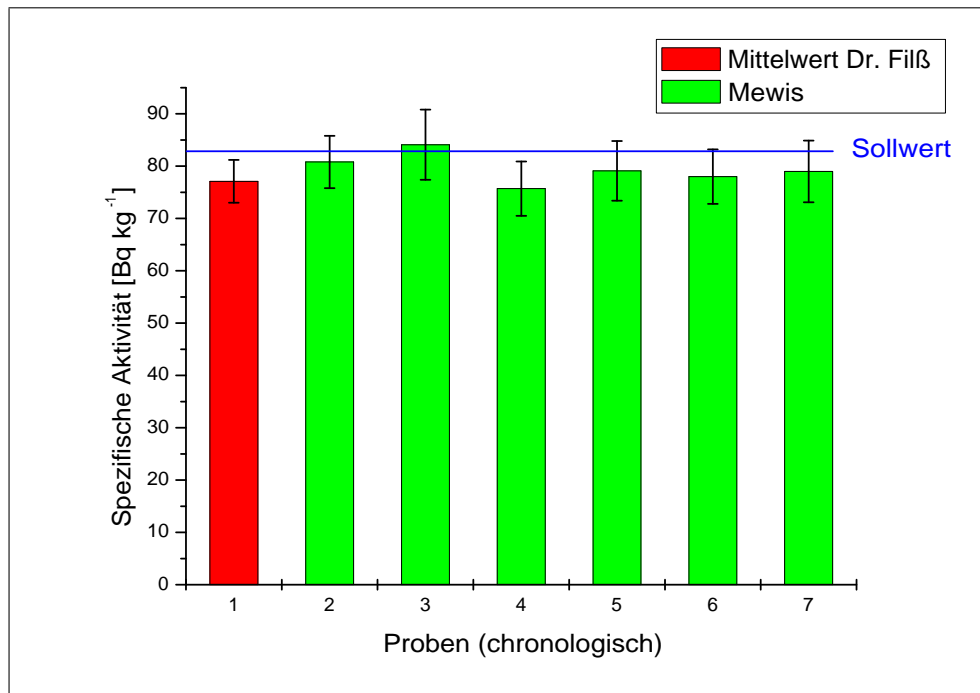


Abbildung 4.15: Erhöhung des Untergrundes durch Kontamination der Glasgeräte

Der größte Nachteil der Akzeptanz einer kontinuierlichen Untergrunderhöhung ist die damit verbundene Erhöhung von Nachweis- und Erkennungsgrenze.

Neben der Betrachtung des Untergrundes fand eine regelmäßige Messung eines Standardbodens mit der Bezeichnung IAEA-0375 [Int96] von der IAEA (International Atomic Energy Agency) statt. Für diesen Boden ist eine spezifische Aktivität von 108 Bq kg^{-1} und einem Vertrauensintervall von $101\text{-}114 \text{ Bq kg}^{-1}$ ($\gamma=0,05$) angegeben, bezogen auf den 31.12.1991. In regelmäßigen Abständen wurden auch hier die spezifischen Aktivitäten mit eingesetzten Massen zwischen 10 g und 100 g bestimmt, auf das Datum 01.01.2003 umgerechnet und mit dem Sollwert verglichen.



Proben	spezifische Aktivität [Bq kg ⁻¹]	Unsicherheit [Bq kg ⁻¹]	NWG [Bq kg ⁻¹]
1	77,1	5,3	
2	80,8	5	
3	84,1	6,7	
4	75,7	5,2	
5	79,1	5,7	
6	78	5,2	
7	79	5,9	

Tabelle 4.2: Qualitätskontrolle durch wiederholende Messung eines Standardbodens; bezogen auf den 01.01.2003

Diese so einer Qualitätsregelkarte entsprechenden Kontrolle ermöglicht es bei größeren Abweichungen und Tendenzen Fehler schneller zu erkennen und zu reagieren. In diesem Fall liegen alle spezifischen Aktivitäten mit einem Mittel von $79,5 \text{ Bq kg}^{-1}$ ($\sigma = 2,8$) signifikant unter dem Sollwert von $82,7 \text{ Bq kg}^{-1}$. Die Unsicherheiten der eigenen Messungen liegen zwischen $5,0$ und $6,7 \text{ Bq kg}^{-1}$. Der in der Grafik 4.2 mit Rot dargestellte Balken spiegelt den Mittelwert der von Filß [Fil98] am ZSR zuvor gemessenen Werte wieder und liegt mit $77,1 \text{ Bq kg}^{-1}$ und einer empirischen Varianz von $5,3 \text{ Bq kg}^{-1}$ ($5,5 \%$) ebenfalls unter dem

Sollwert.

Der IAEA-375-Boden stammt von einer Farm aus Russland (Brjansk) und ist nach Trocknung und Homogenisierung durch einen Ringversuch im Jahre 1990 bestimmt worden. Das Nuklid ^{90}Sr haben dabei 45 Laboratorien untersucht; 39 Laboratorien nutzten die Betazählung über Proportionalzähler, die restlichen 6 einen LSC. 33 % der Ergebnisse der Teilnehmer wurden als Ausreißer nicht in die Berechnung miteinbezogen. Die gewerteten Messergebnisse weisen hohe Unsicherheiten (siehe Anhang B Abbildung B.11) auf und liegen noch zu einem Drittel außerhalb des Vertrauensbereichs.

Die am ZSR ermittelten Messergebnisse liegen innerhalb des Vertrauensbereiches des Sollwertes, weisen eine niedrige Standardabweichung auf und zeigen über einen Messzeitraum von knapp 2 Jahren keine Tendenzen auf. Die kontinuierliche Abweichung zu niedrigeren Werten wird bestätigt durch die von Filß gemessenen Proben und lässt bei hoher Unsicherheit und hoher Ausreißerquote bei der Bestimmung des Standardbodens auf einen zu hoch angesetzten Sollwert der IAEA schließen.

4.9.4 Phase 4

Die Erfassung von Standardproben ermöglicht eine Überprüfung der internen Vergleichbarkeit und Zuverlässigkeit. Um zukünftig externe Vergleiche führen zu können, ist es jedoch wichtig, externe Proben zu untersuchen, ohne zuvor die Ergebnisse zu kennen. Um das zu erreichen, führt man Ringversuche durch. Eine Doppelbestimmung zweier Ringversuche, von der Bundesanstalt für Milchforschung initiiert, wurde durchgeführt und die spezifischen Aktivitäten mit den Ergebnissen anderer Laboratorien verglichen (siehe Anhang B Grafik B.9-B.10). Die Sollwerte, Messergebnisse mit Unsicherheiten und Nachweisgrenzen ($\alpha = \beta = 0,05$) sind in folgender Tabelle zusammengefasst:

Tabelle 4.3: Ringversuch 01.2002; BfS [Obr02]

	Bq kg ⁻¹	Unsicherheit	Sollwert	σ -Bereich der Ringversuchsmessungen	NWG
Modellwasser	0,97	0,068	0,975	0,136	0,091
Modellwasser	1,14	0,076	0,975	0,136	0,095
Realwasser	0,59	0,042	0,545	0,105	0,051
Realwasser	0,58	0,041	0,545	0,105	0,051

Die besten Schätzer für den wahren Wert liegen innerhalb der einfachen Standardabweichung des Sollwertes und zeigen nur sehr kleine Differenzen. Die Durchführung der Ringversuche kann damit als erfolgreich angesehen werden.

Mittels der positiven Ringversuchergebnissen und der wiederkehrenden Kontrolle des Standardbodens konnte eine ausreichende Qualität der Analyseergebnisse gesichert werden.

5 Auswertung niedersächsischer Böden

Die in Kapitel 4.2.1 bereits beschriebenen Bodenproben aus Niedersachsen sollten zum Migrationsverhalten des Radionuklides ^{90}Sr herangezogen werden. Um diese zu interpretieren, gibt es die klassische Migrationstheorie der Bodenkunde, die in verschiedener Literatur zu finden ist (z.B. [Bun96]) und eine relativ geringe Beweglichkeit von Kationen und Anionen durch starke Physisorption ($< 50 \text{ KJ mol}^{-1}$) oder Chemisorption ($> 50 \text{ KJ mol}^{-1}$) zu Grunde legt. Eine weitere Theorie, von Ernst [Ern03] aufgestellt, beschreibt das Verhalten von Nukliden komplett mit der Hydrologie des Bodens und einer hohen Beweglichkeit von Adsorptiven. Die Theorien sind in Kapitel 1.7.7 vorgestellt.

5.1 Tiefenprofile

Im Folgenden werden die grundlegenden Unterschiede in den Eigenschaften der Böden beschrieben. Eine genauere Betrachtung erfolgt im Rahmen der Interpretation in den Kapiteln 5.1.1 bis 5.1.6 .

- **Weide Vestrup:** Natürliche Bewuchsdecke mit flach wurzelnden Gräsern. Hauptbestandteile des Bodens sind Sand und Geschiebelehm. Der Boden wird als Podsol-Gley-Pseudogley-Podsol-Typ eingestuft (siehe Kapitel 1.7.5).
- **Rasen Ricklingen:** Grünland eines Friedhofgeländes. Dieser Boden ist eine Pseudogley Parabraunerde (Kapitel 1.7.5), besteht aus Sandlöß und ist sehr flach durchwurzelt.
- **Eilenriede:** Laubwald auf Sand. Der Boden gehört zu den Pseudogley-Gleyen und weist bereits bei geringen Tiefen (ca. 40 cm) Grundwasser auf und ist stark versauert.
- **Acker Twenge:** Durch Aufbringung von Grassoden, die als Stalleinstreu benutzt wurden, entstand eine ca. 40 cm tiefe Humusschicht, auch Plaggenesch-Horizont genannt. Der sandige Boden ist stark sauer und gehört zu den Gley-Podsol Böden.

- **Acker Adenstedt:** Ebenfalls ein Gley Podsol-Boden. Dieser Acker führt ab 1 m Grundwasser, welches gelegentlich auch bis zu 50 cm ansteigt. Dies erkennt man an rostbraunen Flecken im mittelsandhaltigem Boden dieser Schicht.
- **Acker Groß Lobke:** Nutzboden für Weizen-Weizen-Zuckerrüben. Der Mittlere-Pseudogley-Schwarzerde-Parabraunerde-Boden besteht aus Sandlöß mit einer tiefen Wurzel-schicht.

Die genauen Beschreibungen der einzelnen Bodenhorizonte sind in Anhang A Tabelle A.2-A.7 aufgelistet.

Abbildung 5.1 gibt die dazugehörigen spezifischen Aktivitäten des ^{90}Sr der einzelnen Bodenschichten graphisch wieder. Die Böden weisen zumeist in den obersten Bodenschichten mit spezifischen Aktivitäten von 1-4 Bq kg^{-1} die höchsten Werte auf und nehmen dann mit zunehmender Tiefe ab. Ausnahmen sind hier die Böden Eilenriede, Groß Lobke und Adenstedt, bei denen bei ca. 40 cm ein kurzer Anstieg zu verzeichnen ist. Die tiefsten nachweisbaren Aktivitäten an ^{90}Sr finden sich bei 50-60 cm. Darunter sinken die Messwerte innerhalb von weiteren 10 cm nicht nur unter die Nachweisgrenze ($0,2\text{-}0,8 \text{ Bq kg}^{-1}$), sondern sogar unter die Erkennungsgrenze (ca. $0,004 \text{ Bq kg}^{-1}$).

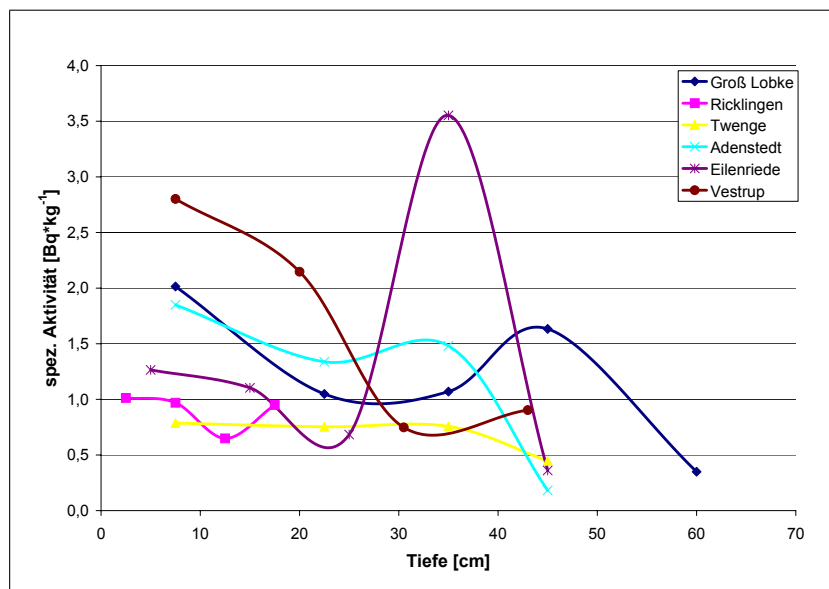


Abbildung 5.1: Tiefenprofile von sechs niedersächsischen Böden

5.1.1 Weide Vestrup

Die Weide weist in den oberen Schichten ca. $2,5 \text{ Bq kg}^{-1}$ mit Unsicherheiten um die $0,2 \text{ Bq kg}^{-1}$ (7 %) auf, fällt danach stark ab, was auf eine Akkumulation in den oberen Schichten hindeutet und reichert sich noch einmal bei 40-50 cm Tiefe an. Die Akkumulation in den ersten 15 cm des Bodens lässt sich durch die starke Wurzelbildung in dieser Region erklären. Diese Schicht entspricht auch nach [Sch84] dem Oberboden. Das ^{90}Sr wird von den Pflanzen über dem Phloem (siehe Kapitel 1.7.6) der Pflanze aufgenommen und über die Einlagerung in die Pflanze, den Tod der Pflanze und die Verwitterung in dieser Schicht gehalten. Im Anschluß an den Ah-Horizont folgt eine sandig, schluffige Schicht, die mit Eisenflecken durchsetzt ist und ein schwach ausgeprägtes Kittgefüge (Geschiebedecksand) besitzt. Die Eisenflecken weisen auf einen zumindest kurzzeitigen Anstieg der tieferliegenden Stauwasserzone und des Grundwassers bis in diesen Bereich hin. Die beschriebene Struktur des Bodens ist mit einem niedrigen Tongehalt verbunden und ermöglicht einen relativ schnellen Transport von Bodeninhaltsstoffen in tiefere Schichten. Eine zusätzliche Akkumulation in dem Bereich um 50 cm Tiefe ist durch das beginnende Stauwasser und der damit verbundenen Behinderung des vertikalen Wasserabflusses zu erklären.

5.1.2 Rasen Ricklingen

Der Boden Ricklingen weist zusammen mit dem aus Twenge die niedrigsten spezifischen Aktivitäten insgesamt auf. Über die oberen 30 cm finden sich mit 1 Bq kg^{-1} gleiche spezifische Aktivitäten. Schon nach ca. 30 cm ist kein ^{90}Sr mehr nachweisbar (NWG $0,78 \text{ Bq kg}^{-1}$). Durch die flache Durchwurzelung konnte das ^{90}Sr hier nicht in den obersten Schichten gehalten werden. Die Frage, ob in tieferen Schichten ^{90}Sr zu finden ist, welches aufgrund der Nachweisgrenze nur nicht detektiert werden konnte, oder ob in den vergangenen 40 Jahren eine Abtragung oder Umschüttung des Bodens stattgefunden hat, womit eine Verringerung des ^{90}Sr -Gehaltes im Boden erklärbar wäre, konnte nicht ermittelt werden. Die Vermutung einer künstlichen Beeinflussung des Bodens wird bestätigt durch den Fund einiger Tonscherben zum Zeitpunkt der Probenahme im Oberboden.

5.1.3 Laubwald Eilenriede

Da auf diesem Boden ein Laubwald steht und dieser Laubwald nach Angaben der Bodenkundlichen Gesellschaft [Deu99] seit der Kernwaffentests auch nicht verändert worden ist, stellt dieser Boden den einzigen wirklich unberührten Boden dieser Arbeit dar. Die oberste Bodenschicht weist $1,3 \text{ Bq kg}^{-1}$ auf. Darunter fällt die spezifische Aktivität ab und steigt dann bei 30-40 cm Tiefe auf über $3,5 \text{ Bq kg}^{-1}$ an. Da dieser Wert so prägnant von dem Verhalten der üblichen Tiefenprofile abweicht, wurde eine Wiederholung der Messung durchgeführt und der Wert bestätigt. Der Oberboden besteht in den oberen 10 cm aus grobsandigem Mittelsand mit hohem Humusgehalt, was für Waldböden typisch ist, und einer anschließend lehmigen Schicht bis 40 cm Tiefe. Die Adsorptionsfähigkeit des Lehms und der Wasserstau durch darunter folgendes Grundwasser des Unterboden führen zu einer starken Akkumulation in diesem Bereich und erklären das Maximum der ^{90}Sr -Aktivitäten um die 40 cm. Im Laufe der Zeit ist hier eine Verdünnung und ein schneller Abtransport in tiefere Schichten zu erwarten, es sei denn, die Bildung von komplexen ^{90}Sr -Verbindungen verhindert diesen Vorgang.

5.1.4 Acker Twenge

Dieser teilweise künstliche Boden gehört zu den Gley-Podsolen und ist damit sehr sandig und wenig lehmig. Der Oberboden geht durch die künstliche Aufschüttung bis zu 60 cm Tiefe. Die spezifischen Aktivitäten liegen über den gesamten Oberboden bei ca. $0,8 \text{ Bq kg}^{-1}$. Da nach Eintrag des ^{90}Sr in den 1960er Jahren durch die oberirdischen Kernwaffentests eine kontinuierliche Verlagerung des ^{90}Sr zu erwarten ist, sollte die Konzentration mit steigender Tiefe auch kontinuierlich abnehmen. Da wir aber über den gesamten Oberboden die gleichen Aktivitäten finden, muss ein schneller Transport durch den Oberboden erfolgen, was bei dem geringen Lehmanteil nicht verwundert. Zudem kommt es zu einer Akkumulation im unteren Bereich des Oberbodens, was an den Bodeneigenschaften nicht weiter geklärt werden konnte. Möglicherweise ist eine derart homogene Verteilung auch auf die künstliche Bearbeitung und Aufstockung zurückzuführen. Wann dies erfolgte, ist leider nicht bekannt. Ein direkter Übergang des Oberbodens zum Grundwasser ermöglicht einen schnellen Abtransport von Nukliden in tiefere Schichten. Daher ist in den nächsten Jahrzehnten mit einer Verringerung der spezifischen Aktivität in den oberen Schichten und einer vermutlichen Abnahme der nachweisbaren Depositionsdichte zu rechnen.

5.1.5 Acker Adenstedt

Die spezifischen Aktivitäten dieses Gley-Podsol-Bodens liegen bei 2 Bq kg^{-1} in den obersten 30 cm und sinken darunter stark ab. Das Ausschlaggebende bei diesem Boden scheint die Durchwurzelung zu sein. In diesen oberen 30 cm ist diese sehr stark und resultiert in einer Akkumulation des ^{90}Sr in dem Bereich. Mit der Abnahme der Durchwurzelung unter 30 cm nimmt auch der ^{90}Sr -Gehalt stark ab. Erst bei Tiefen unter 40 cm sind keine Wurzeln und auch kein ^{90}Sr mehr nachweisbar. Grundwasser oder Stauwasser findet man bei diesem Boden erst unterhalb von einem Meter.

5.1.6 Acker Groß Lobke

Dieser Acker weist in der obersten Schicht eine spezifische Aktivität von 2 Bq kg^{-1} auf. Die Aktivität halbiert sich etwa auf den nächsten 20 cm, um dann wieder anzusteigen. Dieser Anstieg lässt sich durch den Übergang des Oberbodens zum stauwasser-geprägten Unterboden erklären. Dieser Stauwasserbereich entsteht durch das nahe Grundwasser und den hohen Lehmgehalt unter 40 cm Tiefe. Der Boden gehört zu den Mittleren Pseudogley-Schwarzerde-Parabraunerden, die in der Regel einen hohen Nährstoffgehalt aufweisen und für den Ackerbau gerne eingesetzt werden. Weitere Vorteile sind die günstige Korngrößenverteilung, hohe Kationenaustauschkapazität und die durch den Lößboden bedingten langen Feuchtperioden.

5.2 Bestimmung der Depositionsdichte

Die Depositionsdichte (DD) spiegelt die Aktivität eines Nuklides unter einer definierten Fläche wieder und ist damit ein Maß für die abgelagerte Gesamtmenge. Sie wird errechnet aus:

$$A_f = DD = \sum_0^{d_{max}} A_s(d) \cdot \rho(d) \cdot d \quad (5.1)$$

mit

A_f : Flächenaktivität in Bq m^{-2}

A_s : spezifische Aktivität in Bq kg^{-1}

d : Tiefe einer Bodenschicht

d_{max} : maximale Tiefe, in der das Nuklid nachweisbar ist

ρ : mittlere Dichte der jeweiligen Schicht

Die Summe gibt nur die vollständige Depositionsdichte unter einer Fläche wieder, wenn alles ^{90}Sr erfasst wurde und kein Verlust im Probenraum der Tiefenprofile zu tieferen Schichten hin aufgetreten ist. Für die niedersächsischen Tiefenprofile ergaben sich die in Tabelle 5.1 wiedergegebenen Depositionsdichten. Im Vergleich dazu sind die am Zentrum für Strahlenschutz und Radioökologie ermittelten ^{137}Cs -Depositionsdichten zu sehen [Har03]. Da die beiden auf lange Sicht dosisrelevantesten Nukliden in Niedersachsen meist denselben Ursprung haben, nämlich die oberirdischen Kernwaffentests, und ^{90}Sr und ^{137}Cs bei den jeweiligen Tests homogen über Niedersachsen verteilt wurden, sollte man ein gleiches Verhältnis $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ erwarten.

Tabelle 5.1: Depositionsdichten der sieben niedersächsischen Tiefenprofile

Ort	^{90}Sr	^{137}Cs	$^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$
	DD [Bq m^{-2}]	DD [kBq m^{-2}]	
Adenstedt	767	4,2	0,183
Eilenriede	929	5,7	0,163
Vestrup	1065	5,4	0,197
Groß Lobke	1016	7,3	0,139
Barum	1116	2,8	0,399
Ricklingen	1243	3,7	0,336
Twenge	1714	5,6	0,306

Von dem Boden Barum, einem Acker mit hoher Feldkapazität (Pflanzenverfügbarkeit von im Boden gespeichertem Wasser), wurde lediglich eine Mischprobe hergestellt, den Volumenanteilen der einzelnen Schichten entsprechend. So konnte mit einer einzigen Messung die Depositionsdichte bestimmt werden. Aufgrund der hohen Aktivitäten in den oberen Zentimetern eines Bodens und der kleinen Schichthöhen von 1-5 cm entsteht hierbei jedoch eine hohe Unsicherheit des Ergebnisses und kann nur bei ausreichender Homogenität kleinster Mengen eine ausreichende Genauigkeit wiedergeben.

Die Depositionsdichte des Bodens Twenge ist deutlich erhöht. Dies ist auf die künstliche Aufschüttung von Stalleinstreu und der damit verbundenen Zufuhr von ^{90}Sr zurückzuführen. Ebenfalls auffällig ist der Acker Adenstedt mit der niedrigsten Depositionsdichte. Der Boden weist, wie beschrieben, organische Durchsetzungen aus Vegetationsbränden auf. Feuer wäre eine mögliche Ursache für den Abtransport von Radionukliden in Form von Aerosolen. Die

restlichen Depositionsdichten liegen zwischen 930 und 1250 Bq m⁻² und dürften im Bereich der natürlichen Schwankungen liegen ($\mu=1074$; $\sigma=105$). Da Eilenriede als Laubwald die Jahrzehnte über unberührt war, spiegelt die gemessene Depositionsdichte hier am realsten die Beaufschlagung wieder.

Das Verhältnis von ⁹⁰Sr zu ¹³⁷Cs ist in Spalte 3 Tabelle 5.1 berechnet. Die Werte liegen zwischen 0,2 und 0,4. Diese Schwankung um den Faktor 2 wird in erster Linie durch die starken Unterschiede in den Depositionsdichten des ¹³⁷Cs bestimmt. Dies erklärt sich durch die inhomogene Verteilung des Radionuklids ¹³⁷Cs in Niedersachsen durch die Quelle Tschernobyl neben der homogenen Verteilung der oberirdischen Kernwaffentests. ⁹⁰Sr dagegen rührt nur von den Kernwaffentests her, wodurch sich homogenere Depositionsdichten ergeben.

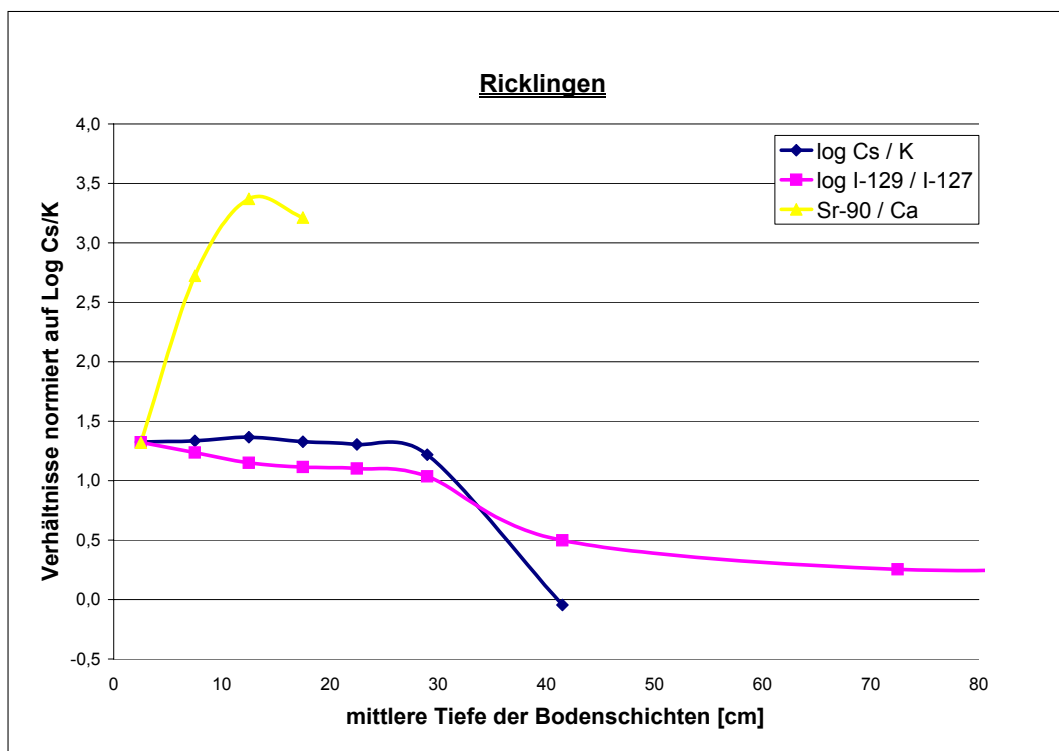
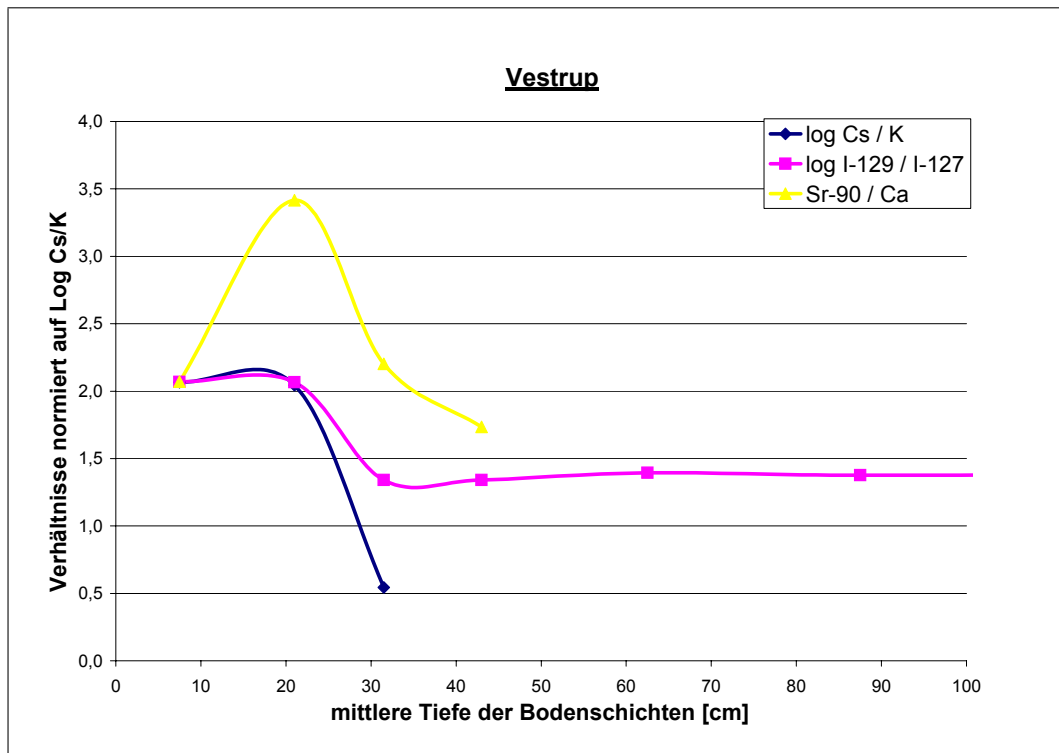
Bei den Untersuchungen stellt sich desweiteren die Frage, ob mit ca. 1000 Bq m⁻² das durch die oberirdischen Kernwaffentests in Niedersachsen deponierte ⁹⁰Sr voll erfasst wurde. In Kapitel 1.4.2 ist die durch die Tests freigesetzte Menge ⁹⁰Sr mit 3·10¹⁷ Bq berechnet worden. Für die Korrelation des freigesetzten ⁹⁰Sr mit der Depositionsdichte wird nach [UNS82] für die gemäßigte Zone Niedersachsens ein Faktor von 3,6·10⁻¹⁵ Bq m⁻² pro produziertem Bq angegeben. Daraus ergibt sich eine rechnerische Depositionsdichte von 1080 Bq m⁻². Dieser Wert stimmt gut überein mit den gefundenen 930-1250 Bq m⁻², so dass man schließen kann, dass der Großteil des ⁹⁰Sr seit Deposition in den gemessenen Bodenschichten bis 50 cm verblieben ist.

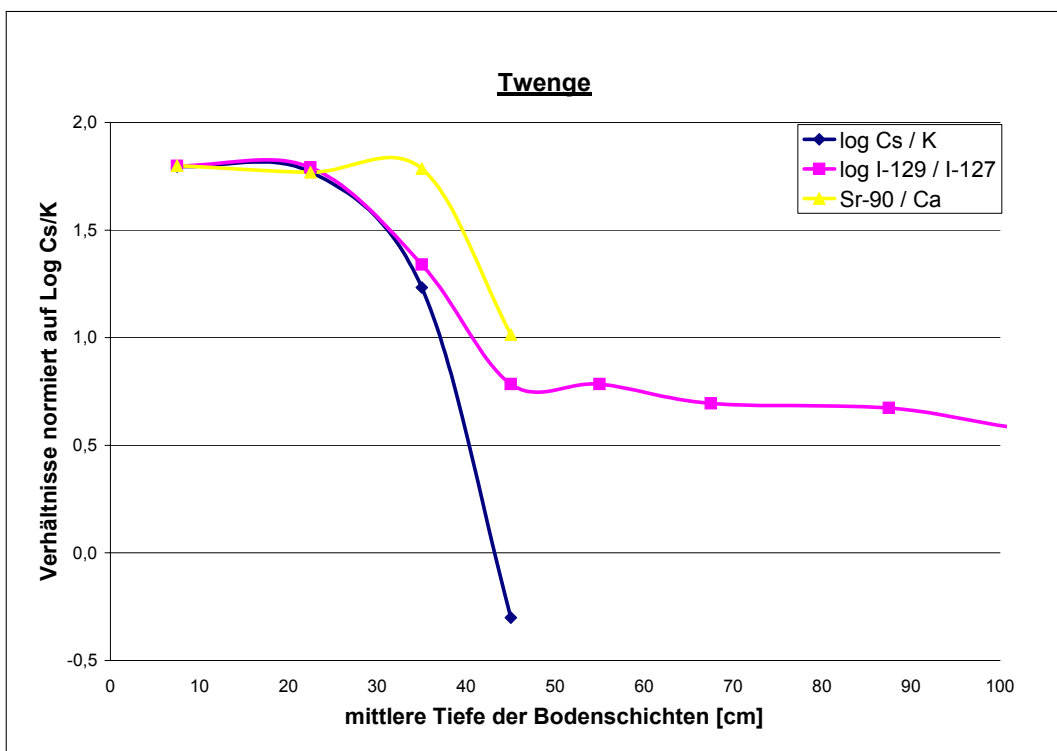
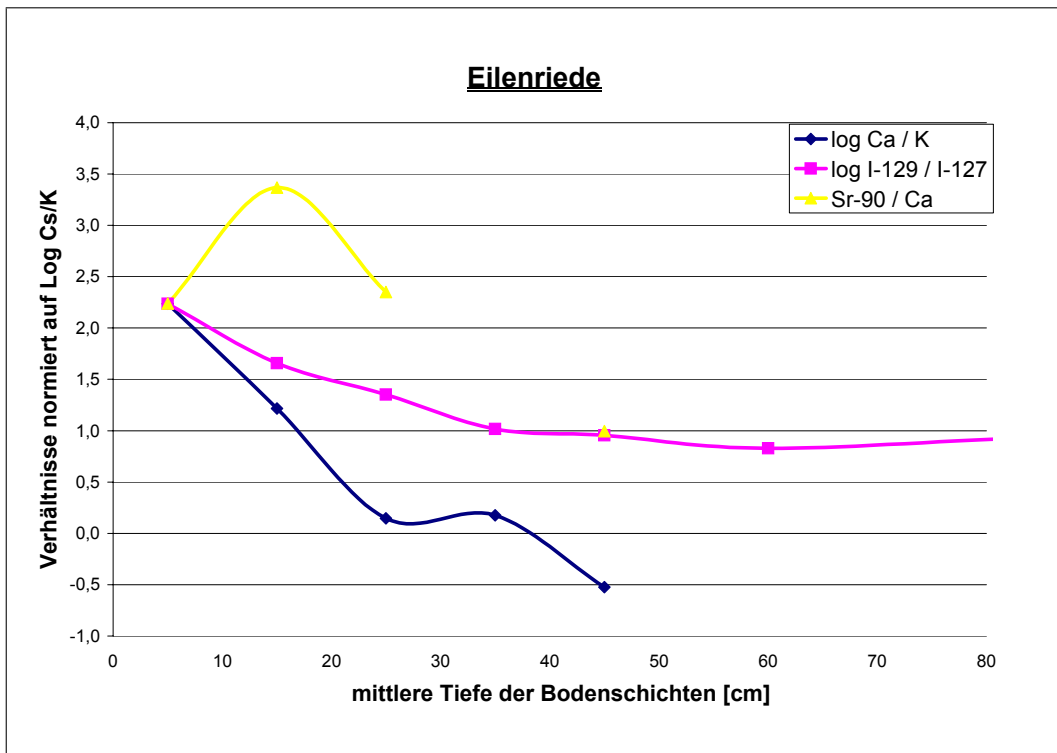
5.3 Co-Adsorptive

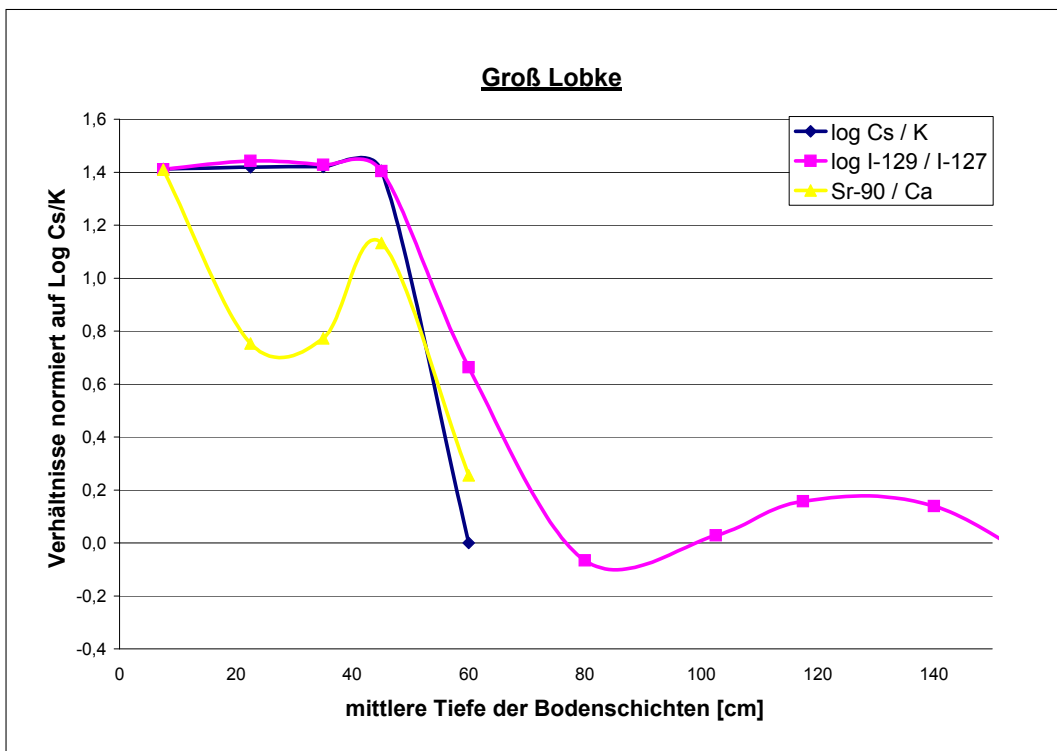
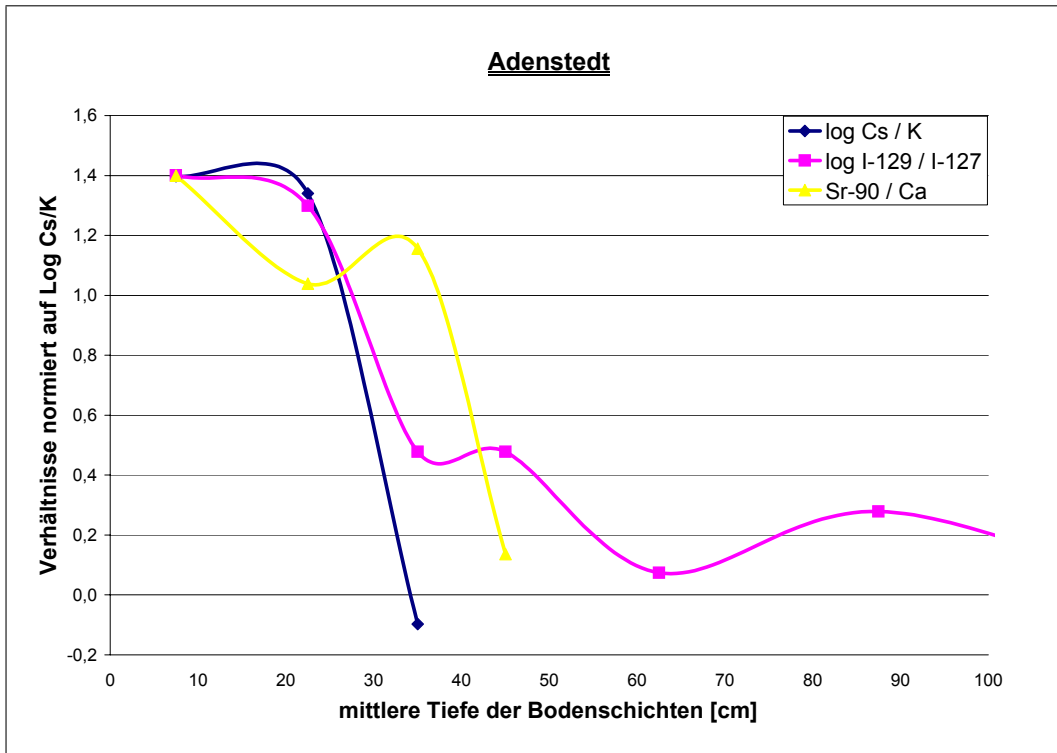
Da die Migration hauptsächlich über das Fluid bestimmt wird, ist die Wasserlöslichkeit eines Nuklids entscheidend. Zudem sind die Wechselwirkungen zwischen Kationen und Tonmineralien wichtig; sie sind in erster Linie stereospezifisch und nicht nuklidspezifisch. Die Konkurrenz zu den Nukliden liefern die Co-Adsorptive (siehe Kapitel 1.7.7). Für das Strontium ist dies das Calcium, beim dosisrelevanten Nuklid ¹³⁷Cs das Kalium und für das von Ernst [Ern03] untersuchte Nuklid ¹²⁹I das stabile ¹²⁷I. In der Arbeit von Ernst sind für die Verhältnisse der Nuklide zu ihren Co-Adsorptiven gute Übereinstimmungen in den Tiefenprofilen der Böden zu erkennen. Das anthropogene ¹²⁹I zeigt keine spezifischen Bindungen im Boden und konnte seit Eintrag vor 50 Jahren so bis in Tiefen von 2,50 m vordringen. Stabiles

Kalium, welches über sein Gleichgewichtsverhältnis zum primordialen ^{40}K leicht durch γ -Spektrometrie messbar ist, zeigt die gleichen Radien der Hydrate wie ^{137}Cs und verhält sich bei der Adsorption an Tonminerale daher ähnlich. Das Homologe zum Strontium ist das Calcium; beide haben ebenfalls ähnliche Ionenradien aufzuweisen (Calcium = 99 pm; Strontium = 118 pm). Da die drei anthropogenen Radionuklide ^{90}Sr , ^{137}Cs und ^{129}I die gleiche Zeit hatten, in Konkurrenz zu treten mit den jeweiligen Homologen, die thermodynamisch bevorzugte Bindungsplätze im Boden eingenommen haben sollten, sind ähnliche Verhältnisse in den Tiefenprofilen der Böden zu erwarten. Die Calciumwerte der einzelnen Böden wurden in Zusammenarbeit mit dem Institut für Bodenkunde an der Universität Hannover bestimmt. Dabei wurde zudem der sogenannte KAK_{eff} -Wert (effektive Kationenaustauschkapazität) berechnet, welcher nur das von entscheidendem Interesse frei bewegliche Calcium registriert.

Die Verläufe der einzelnen Verhältnisse sind im Anhang B Grafik B.12-B.14 wiedergegeben. Hier werden in folgenden Grafiken die Verhältnisse in Relation zum obersten Messwert der einzelnen Böden näher untersucht:







Die Verhältnisse vom Kalium/ ^{137}Cs und $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ weisen deutlichere Veränderungen auf als das $^{90}\text{Sr}/\text{Calcium}$ -Verhältnis. Daher werden die ersten beiden logarithmisch und zur Verdeutlichung das $^{90}\text{Sr}/\text{Calcium}$ -Verhältnis linear dargestellt. Die Übereinstimmungen der Verhältnisse von Kalium/ ^{137}Cs und $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ sind bemerkenswert. In den Bereichen um die 30-60 cm fallen die Werte bei diesen Nukliden ab und kennzeichnen so den Übergang zwischen Ober- und Unterboden. Auch beim $^{90}\text{Sr}/\text{Calcium}$ -Verhältnis ist dieser Übergang zu erkennen. Das Verhalten in den oberen Schichten der Böden weist hier jedoch mal mehr mal weniger zum Verhalten von ^{129}I und Kalium auf. Dies kann an der besonderen Bedeutung des Calciums für die Pflanzen und der damit verbundenen nuklidspezifischen Immobilisierung liegen, da die benötigte Menge Calcium je nach Pflanzenart stark schwankt und so das Gleichgewicht zum ^{90}Sr gestört wird. Um weitere Parallelen zu finden, müsste man also pflanzenunabhängige tiefere Bereiche untersuchen. Dies ist aufgrund der Nachweisgrenzen für ^{137}Cs und ^{90}Sr jedoch nicht möglich.

5.4 Diskussion

Die spezifischen Aktivitäten des ^{90}Sr in niedersächsischen Böden liegen in den obersten Schichten bei $1\text{-}4\text{ Bq kg}^{-1}$ und die Depositondichten bei $900\text{-}1200\text{ Bq m}^{-2}$. Die Tiefenverläufe lassen sich gut über den Wasserhaushalt, die Bodeneigenschaften, den Tonanteil und die Wurzeltiefen erklären. Die Voraussage der Tiefenwanderung von [Fil98] (siehe Kapitel 1.7.7) mit 10 cm pro Dekade nach Beaufschlagung vor 50 Jahren durch die oberirdischen Kernwaffentests auf der Oberfläche eines Bodens stimmt gut mit in größter Tiefe bestimm- baren Aktivitäten von ^{90}Sr überein.

Da das Strontium bei den untersuchten Böden mit Ausnahme von Twenge den Grundwasser- bzw. Stauwasserbereich inzwischen erreicht hat, ist jedoch nicht davon auszugehen, dass die Migrationsgeschwindigkeit beibehalten wird. Wo das Grundwasser erreicht wird, kann ein schneller Abtransport in tiefere Schichten erfolgen, also eine Erhöhung der Migrationsgeschwindigkeit, verbunden mit einer so starken Verdünnung, dass die zu bestimmenden Aktivitäten unter der Nachweisgrenze des Verfahrens liegen. Da die Abschätzung der Depositondichte in Kapitel 5.2 allerdings übereinstimmt mit den gefundenen Depositondichten, scheint dies noch nicht der Fall zu sein. Das Erreichen von Stauwasserbereichen dagegen führt, bei den Böden Eilenriede, Adenstedt und Groß Lobke gut zu erkennen, zu einer Akkumulation in diesem Bereich, also einer Erniedrigung der Migrationsgeschwindigkeit. Dies

kann dadurch zustande kommen, dass die zweiwertigen Strontiumionen komplex gebunden werden, dann auf dem Sicker- bzw. Grundwasser aufschwimmen oder die Strontiumhydrate durch die zumeist tonreichen Gebiete stark bis irreversibel adsorbiert werden. Es kann also je nach Vorhandensein von Grund- bzw. Stauwasser zu einer Erhöhung oder Erniedrigung der Migration in tieferen Schichten kommen. Die Abschätzung von 10 cm Tiefenwanderung pro Dekade kann somit nur im Falle frischer Kontaminationen auf Böden herangezogen werden - bis zum Erreichen tieferer Schichten - Jahrzehnte später.

Die Bodenschichten der tiefsten nachweisbaren ^{137}Cs - und ^{90}Sr -Depositionen stimmen überein, so dass von einer ähnlichen Migrationsgeschwindigkeit auszugehen ist. Das von Ernst untersuchte Iod hingegen weist kaum Tendenzen zu spezifischen Bindungen auf. Eine hohe Mobilität ist die Folge. Der Versuch der Übertragung seiner Migrationstheorie (siehe Kapitel 1.7.7) würde für ^{137}Cs und ^{90}Sr in einer Deposition in Tiefen unter 60 cm resultieren, die nur aufgrund nicht ausreichender Nachweisgrenzen unbeobachtet bliebe. Dagegen sprechen die Abschätzungen und Berechnungen der Depositionsdichten des ^{90}Sr . Eine hohe Mobilität der Nuklide Cäsium und Strontium ähnlich des Nuklides Iod ist daher nicht gegeben, sodass hier der klassischen Theorie (siehe Kapitel 1.7.7) von beispielsweise [Bun96] beigeplichtet werden muss.

Die Verhältnisse der Radionuklide ^{90}Sr , ^{137}Cs und ^{129}I zu ihren Co-Adsorptiven Calcium, Kalium und ^{127}I stimmen gut überein und werden lediglich durch den hohen Calciumbedarf der Pflanzen für das ^{90}Sr /Calcium-Verhältnis gestört. Gut zu erkennen ist der starke Abfall bei 40-60 cm, der durch den Übergang von Ober- zu Unterboden erklärbar ist und damit neben den Wechselwirkungen mit dem Bodenkörper die Hydrologie als den Hauptfaktor der Migration nach der Theorie von Ernst bestätigt. Die Komplett Migration lässt sich jedoch nicht allein mit der Hydrologie des Bodens erklären.

Anhand von Bodeneigenschaften und dem Zeitpunkt einer Kontamination kann mit den erworbenen Kenntnissen eine Voraussage über die Migrationsgeschwindigkeit, über die Bereiche von Akkumulationen und über die maximalen Verlagerungstiefen für das Radionuklid ^{90}Sr getroffen werden. Mit geographischen bzw. pedologischen Kenntnissen und Pflanzeigenschaften lassen sich dann auch die Resuspension, Winderosion und der Transfer in Pflanzen abschätzen.

6 Ukrainische Proben

6.1 Tiefenprofile

Aus der Ukraine sind ebenfalls Tiefenprofile untersucht worden. Hier war das Hauptziel nicht, das Strontiumverhalten im Boden zu erforschen, sondern die Depositionsdichte zu bestimmen. Die einzelnen Probenahmestandorte sind in Karte 4.2 wiedergegeben und teilen sich in drei verschiedene Bereiche ein.

- Der erste Bereich liegt in dem als nicht kontaminiert eingeteilten Bereich um die zweitgrößte Stadt der Ukraine, Zhitomir. Von denen auf der Karte angegebenen Probenahmestandorten zur Untersuchung der ^{90}Sr -Deposition wurde der Ort Lewkow ausgewählt.
- Die Ukraine wurde nach dem Reaktorunfall von Tschernobyl den Depositionsdichten des ^{137}Cs entsprechend in vier verschiedene Zonen eingeteilt. Der zweite Probenahmebereich liegt in der Zone III ($185\text{-}555\text{ kBq m}^{-2}\text{ }^{137}\text{Cs}$) um eine Region mit dem Namen Korosten. Die Auswahl fiel auf die Tiefenprofile der Ortschaften Tschigiri, Kupetsch-Tscherjanka und Woronewo.
- Aus der Zone II ($555\text{-}1480\text{ kBq m}^{-2}\text{ }^{137}\text{Cs}$) um Tschernobyl wurden zwei verschiedene Profile aus dem Ort Christinowka ausgewählt. Hier entnahm man ein Tiefenprofil einer Wiese und ein Tiefenprofil eines Flussufers am nahegelegenen Fluss Usch (russ. Ringelnatter). Dieser Ort Christinowka ist auch für die später folgende Dosisabschätzung der Bewohner der Zone II durch Ingestion von ^{90}Sr herangezogen worden.

Die Tiefenprofile der ersten beiden Standorte um Zhitomir und aus der Korostenregion sind in Abbildung 6.1 logarithmisch wiedergegeben. Die spezifischen Aktivitäten von Lewkow sind erwartungsgemäß mit $4\text{-}5 \text{ Bq kg}^{-1}$ in der Humusschicht und den obersten Bodenschichten gering und entsprechen in etwa den in Niedersachsen gemessenen Werten. Die drei Böden aus Korosten zeigen in den obersten Bodenschichten ca. 30 Bq kg^{-1} und fallen schnell - ab einer Tiefe von ca. 20 cm - auf unter 2 Bq kg^{-1} ab. Ein Großteil der Deposition findet sich somit innerhalb der oberen Zentimeter, was bei einer durchschnittlichen Migrationsgeschwindigkeit von 10 cm pro Dekade (siehe Kapitel 1.7.7) und einer Beaufschlagung vor ca. 17 Jahren durch den Reaktorunfall zu erwarten war. Die maximal nachweisbaren Tiefen liegen bei ca. 30 cm. Unter diesen Tiefen ist ein Einfluss der oberirdischen Kernwaffentests zwar erkennbar; die Messergebnisse liegen hier jedoch unter der Nachweisgrenze ($0,4\text{-}0,8 \text{ Bq kg}^{-1}$) und sind somit nicht angegeben. Diese über der Erkennungsgrenze liegenden Werte ziehen sich wie bei den niedersächsischen Proben bis zu einer Tiefe von ca. 60 cm hin, was erneut die durchschnittliche Migrationsgeschwindigkeit von 10 cm pro Dekade bestätigt. Erst darunter kann die Nullhypothese ([Mic99]) nicht abgelehnt werden.

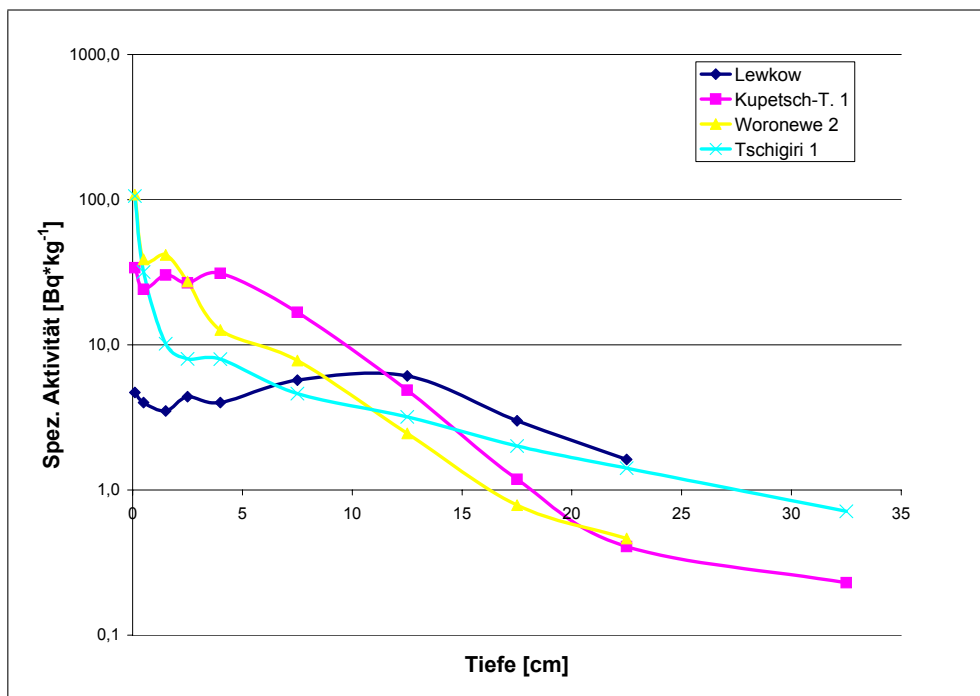


Abbildung 6.1: Tiefenprofile aus der Zhitomirumgebung und Korostenregion

Die in Christinowka (Zone II) genommenen Bodenprofile weisen höhere spezifische Aktivitäten auf (siehe Grafik 6.2) als in der Korostenregion (Zone III). Die spezifische Aktivität des Flussuferprofils liegt dabei mit ca. 330 Bq kg^{-1} in der Humusschicht von allen gemessenen Böden am höchsten. Der Abfall der Aktivitäten verläuft schneller als bei den Proben aus Zone III und endet ebenfalls mit nachweisbaren Größen im Bereich von 20-30 cm Tiefe.

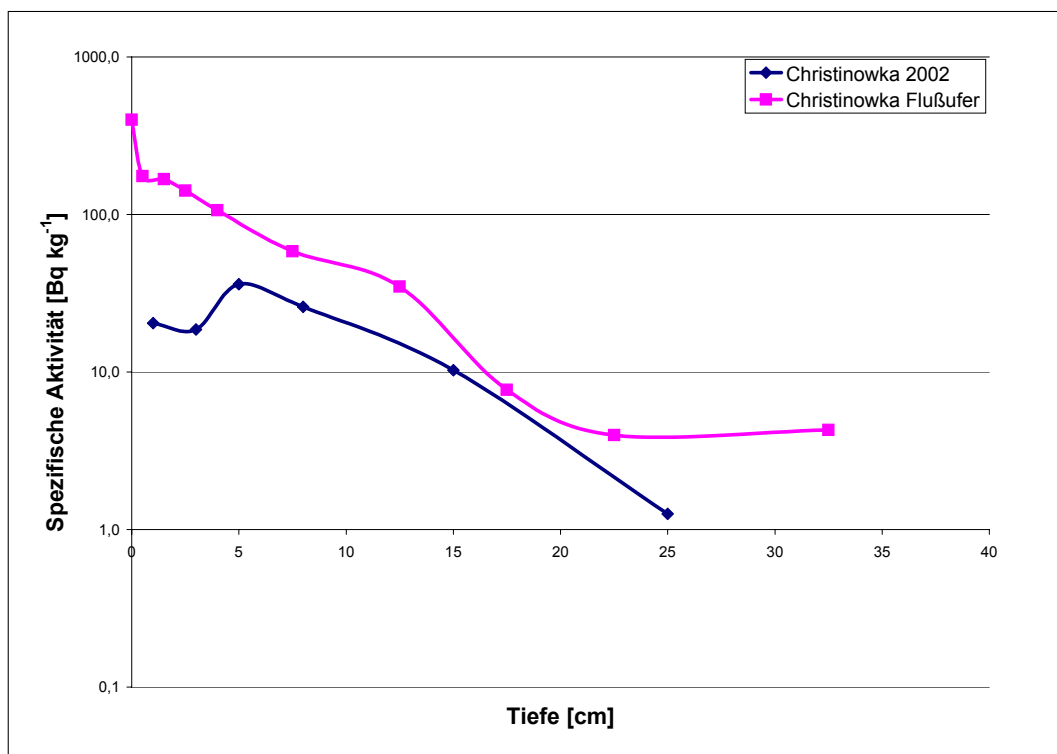


Abbildung 6.2: Tiefenprofile von Wiese und Ufer Christinowka

Zu den Böden sind leider keine näheren bodenkundlichen Daten verfügbar, so dass eine Interpretation der Tiefenverläufe nicht möglich ist. Die spezifischen Aktivitäten sind als Zahlenwerte in Anhang A Tabelle A.11 und A.13 nachzulesen.

6.2 Depositionsdichten der ukrainischen Böden

Die Depositionsdichten ergeben sich aus der in Kapitel 5.2 angegebenen Formel 5.1 und sind für die ukrainischen Tiefenprofile in Tabelle 6.1 aufgelistet. Zum Vergleich findet man erneut die Depositionsdichten aus Niedersachsen, die Depositionsdichten von ^{137}Cs und die Verhältnisse zum ^{90}Sr .

Tabelle 6.1: ^{90}Sr -Depositionsdichten in Niedersachsen und in der Ukraine

Ort	^{90}Sr	^{137}Cs	$^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$
	DD [Bq m^{-2}]	DD [kBq m^{-2}]	
Adenstedt	767	4,2	0,183
Eilenriede	929	5,7	0,163
Vestrup	1065	5,4	0,197
Groß Lobke	1016	7,3	0,139
Barum	1116	2,8	0,399
Ricklingen	1243	3,7	0,336
Twenge	1714	5,6	0,306
Charkov	1690	4,7	0,360
Dawidowka	1646	4,6	0,358
Lewkow	1194	5,3	0,225
Baraschewka*	1530	5,2	0,294
Nemirowka	2970	394	0,008
Nemirowka	2970	394	0,008
Kupetsch-Tscherjanka 1*	5103	332	0,015
Kupetsch-Tscherjanka 2	3860	332	0,012
Kupetsch-Tscherjanka 2*	3573	332	0,011
Tschigiri	3075	320	0,010
Woronewe	3825	375	0,010
Christinowka 2003	5912	738	0,008
Christinowka Flussufer	21220	4218	0,005
Nowe Scharno	30258	3480	0,009

*gemessen von Filß [Fil98]

Die beiden Böden Dawidowka und Lewkow liegen, wie der Ort Charkov, in dem nicht durch Tschernobyl beeinflussten Gebiet in der Ukraine und weisen, wie die Böden in Niedersachsen, ein Verhältnis von ^{90}Sr zu ^{137}Cs von 0,2 - 0,4 auf. Dawidowka und Lewkow befinden sich in der Nähe von Zhitomir, südlich von Tschernobyl, und der Ort Charkov liegt im Osten der Ukraine, südöstlich von Tschernobyl. Charkov blieb von den Hauptwindrichtungen nach dem Unfall von Tschernobyl verschont (siehe Kapitel 1.5.7) und stellt damit einen nicht durch Tschernobyl kontaminierten ukrainischen Referenzboden dar.

Die weiteren aufgelisteten Böden sind dagegen von ihrer ^{90}Sr -Deposition überwiegend durch den Reaktorunfall von Tschernobyl beeinflusst und weisen daher mit 0,005-0,012 ein niedrigeres Verhältnis auf. Dieses entspricht nicht dem Verhältnis, welches nach [UNS00] durch Tschernobyl freigesetzt worden ist (0,11) und deutet damit auf eine ungleichmäßige Verteilung der verschiedenen Radionuklide hin. Die Depositionsdichten der Böden aus der Zone III - Nemirowka, Kupetsch-Tscherjanka, Tschigiri und Woronewo - liegen zwischen ca. 3-4 kBq m^{-2} und damit um den Faktor 3-4 höher als die ausschließlich durch oberirdische Kernwaffentests beeinflussten Böden gleichen Breitengrades. Mit 21 kBq m^{-2} und 30 kBq m^{-2} wurde in den Ortschaften Christinowka und Nowe Scharno die höchste Ablagerung an ^{90}Sr der untersuchten Böden gefunden. Solche Werte müssen jedoch nicht repräsentativ für die Zone II sein. Die Ortschaften liegen an der Grenze zur Zone III und dürften daher eher niedrigere Depositionsdichten in der Zone II widerspiegeln.

6.3 Spezifische Aktivitäten

Ziel der weiteren Arbeit ist eine Abschätzung der zusätzlichen jährlichen Dosis von in Zone II lebenden Menschen. Hierfür wurden aus der Ortschaft Christinowka, welche zurzeit ca. 100 Einwohner hat (vor dem Unfall 400), eine Reihe von Pflanzen und die dazugehörigen Böden untersucht. Die aus diesen Proben ermittelten spezifischen Aktivitäten ergeben sich aus den gemessenen Aktivitäten dividiert durch das Trockengewicht der Probe. Man wählt das Trockengewicht, da in der Literatur angegebene Werte sich zumeist ebenfalls darauf beziehen und so ein Vergleich möglich ist. Die Probenarten wurden den typischen Nahrungsmitteln in dieser Region entsprechend gewählt und wurden von verschiedenen Dorfbewohnern gesammelt. Da das Dorf klein ist, kann von einer gleichmäßigen Deposition des ^{90}Sr ausgegangen und einzelne gemessene spezifische Aktivitäten für die gesamte Region angenommen werden. In Tabelle 6.3 sind die arithmetischen Mittel der spezifischen Aktivitäten

von gemessenen Proben mit den zugehörigen Unsicherheiten und die Anzahl der Proben (n) angegeben. Die Unsicherheiten beziehen sich auf die Messungen, liegen im Bereich von 6 % und sagen nichts über eine mögliche Verteilung und die damit verbundene Schwankung um das arithmetische Mittel aus.

Tabelle 6.2: Spezifische Aktivitäten von ^{90}Sr in Proben aus Christinowka

Probe	A_s [Bq kg $^{-1}$]	u(rel)	n
Milch	5,7	0,062	4
Ziegenmilch	10,7	0,065	1
Heu	100,5	0,063	2
Gras	29,8	0,060	2
Boden	92,4	0,066	2
Schleie	1,89	0,065	1
Karpfen	2,00	0,061	1
Karausche	8,16	0,063	1
Barsch	0,65	0,067	1
Flusssand	<NWG*	0,072	1
Flussschlamm	4,45	0,067	1

*NWG: 1,0 Bq kg $^{-1}$

Obwohl man erwarten könnte, dass Milchproben, die viel Calcium enthalten (40 Gew.-%), auch mit dem Homologen Strontium angereichert sind, liegen die Werte mit 5,7 bzw. 10,7 Bq kg $^{-1}$ im Vergleich zu anderen Lebensmitteln niedrig. Warum die Heuproben sich von den Grasproben so stark unterscheiden, obwohl Heu als getrocknetes Gras definiert ist und die angegebenen Werte sich ja auf die Trockengewichte beziehen, konnte nicht geklärt werden. Die 100 Bq kg $^{-1}$ für das Heu liegen dabei um den Faktor 100 über den laut Literatur [Vah04] in Deutschland gefundenen Werten. Bei genommenen Bodenproben handelt es sich um die obersten Zentimeter von Böden ohne Bewuchs. Die ermittelten 92 Bq kg $^{-1}$ stimmen überein mit den spezifischen Aktivitäten der zuvor untersuchten obersten Bodenschichten der Tiefenprofilen in dieser Region. Keine der untersuchten Fisch-, Flusssand- oder Flussschlammproben weisen erhöhte Werte auf und liegen teilweise bei oder unter der Nachweisgrenze.

Tabelle 6.3: Spezifische Aktivitäten von ^{90}Sr in Proben aus Christinowka

Probe	A_s [Bq kg $^{-1}$]	u(rel)	n
Gurken	9,8	0,100	1
Boden Gurken	31,9	0,066	1
Sauerampfer	100,5	0,063	1
Boden Sauerampfer	13,9	0,066	1
Kohl	219,3	0,059	1
Boden Kohl	77,9	0,059	1
Möhrrchen	115,3	0,062	1
Boden Möhrrchen	83,8	0,064	1
Kartoffeln	212,4	0,088	1
Boden Kartoffeln	75,7	0,062	1
Rote Beete	170,1	0,062	1
Boden RB	65,9	0,062	1
Weizen	10,7	0,063	2
Boden Weizen	43,8	0,068	2
Roggen	2,3	0,065	2
Boden Roggen	17,9	0,060	2
Tabak	382,7	0,062	1
Boden Tabak	31,6	0,063	1

Von den Pflanzenarten und den zugehörigen Böden sind in erster Linie die Kartoffeln und der Kohl mit über 200 Bq kg $^{-1}$ auffällig. Der hier zur Vollständigkeit mit angegebene Tabakwert ist zwar mit 382 Bq kg $^{-1}$ ebenfalls hoch, spielt für die Ingestion von ^{90}Sr jedoch keine Rolle. Eine Inhalation des ^{90}Sr aus dem Tabak ist genauso unwahrscheinlich, da Strontium keine leichtflüchtigen Verbindungen bildet und so höchstens Aerosolgetragen in die Lunge geraten könnte. Auffällig sind weiter die besonders niedrigen Werte in Weizen und Roggen, womit eine niedrige Ingestion des ^{90}Sr über den Verzehr von Brot verbunden ist.

Tabelle 6.4: Spezifische Aktivitäten von ^{90}Sr in Proben aus Christinowka

Probe	A_s [Bq kg $^{-1}$]	u(rel)	n
Waldhimbeeren	363,1	0,057	2
OA* Waldh	920,6	0,125	2
Boden Waldhimbeeren	39,9	0,059	2
Haushimbeeren	106,8	0,061	1
Boden Haushimbeeren	27,6	0,062	1
Heidelbeeren	76,0	0,062	2
OA Heidelbeeren	959,4	0,092	2
Boden Heidelbeeren	24,9	0,065	2
Steinpilze	25,6	0,063	1
OA Steinpilze	8166,0	0,058	1
Boden Steinp	14,1	0,058	1
Pfifferlinge	31,9	0,061	1
OA Pfifferlinge	1041,6	0,069	1
Boden Pfifferlinge	45,5	0,060	1
Zähne Schwein	36,4	0,060	1
Knochen Schwein	24,8	0,063	1
Zähne Reh	286,3	0,058	1
Knochen Reh	192,0	0,058	1

*Organische Auflage

Die Beeren und Pilze sind hier ebenfalls untersucht, obwohl die Verzehrsmengen eher gering sind, aber diese nach Botsch [Bot99] für die hauptsächliche Dosis durch das ^{137}Cs verantwortlich sind. Hierbei fällt auf, dass die organischen Auflagen mit bis zu 8166 Bq kg $^{-1}$ die höchsten Werte aufweisen. Das im Boden befindliche ^{90}Sr wird demnach von den Mycelien der Pilze aufgenommen, aber nicht in die Pilze selber, die letztlich die Früchte darstellen, transportiert. Dies bestätigt Bruchertseifer in „Literatur von Strontium-90 in Waldökosystemen“ [Bru01]. Da nur die Pilze und nicht das Wurzelgeflecht gegessen werden, findet das ^{90}Sr über Ingestion von Pilzen nicht verstärkt den Weg zum menschlichen Körper. Anders ist dies bei dem Nuklid ^{137}Cs ; hier findet sich mehr in den Pilzen als in den zugehörigen organischen Auflagen.

Des Weiteren wurden Knochen- und Zahnproben analysiert: zum Einen von Schweinen, da diese dem menschlichen Organismus in vielen Aspekten ähneln, zum Anderen von Rehen, da

diese sich überwiegend von im Wald befindlichen Pflanzen und Beeren ernähren. Aufgrund der Filterwirkung der Wälder ist an diesen Standorten besonders viel ^{90}Sr zu erwarten. So verwundert es auch nicht, dass mit 192 Bq kg^{-1} bzw. 286 Bq kg^{-1} die Werte um den Faktor 7-8 höher liegen als bei den Hausschweinen.

6.4 Transferfaktoren

Ein Transferfaktor (T_f) gibt das Verhältnis von in einem Nahrungsmittel gefundenen spezifischen Aktivität ($A_{s,n}$) zur im Boden gefundenen spezifischen Aktivität ($A_{s,b}$) an.

$$T_f = \frac{A_{s,n}}{A_{s,b}} \quad (6.1)$$

Hierbei sollte für die spezifische Aktivität des Bodens die Tiefe der Wurzelung gewählt werden. Da diese für die einzelnen Pflanzen nicht leicht bestimmbar ist, nimmt man in der Regel den Boden der oberen 30 cm. Bei Böden mit starken organischen Auflagen werden diese als Hauptlieferant für die Pflanze angesehen und zur Berechnung herangezogen. In der Regel ist T_f dimensionslos ($\text{Bq kg}^{-1} / \text{Bq kg}^{-1}$). Bei Lebensmitteln wie Milch, Milchprodukten und Fleisch hingegen ergibt sich der Transferfaktor aus dem Quotienten der spezifischen Aktivität des Nahrungsmittels und der spezifischen Aktivität des Futters ($A_{s,f}$) sowie der täglich gefütterten Menge (\dot{V}) des Tieres:

$$T_f = \frac{A_{s,n}}{A_{s,f} \cdot \dot{V}} \quad (6.2)$$

Die Einheit hierfür ergibt sich zu d kg^{-1} für Fleisch bzw. zu d L^{-1} für Milch. In ähnlicher Weise lässt sich die Nuklidkonzentration im Fleisch zum Zeitpunkt des Verzehrs berechnen:

$$A_{s,n} = A_{s,f} \cdot \dot{V} \cdot T_f \cdot e^{-\lambda_r \cdot t_{vs}} \quad (6.3)$$

mit:

λ_r : physikalische Zerfallskonstante des Nuklids r in s^{-1}

t_{vs} : Zeit zwischen Schlachten und Fleischverzehr in s

In Tabelle 6.5 sind die ermittelten Transferfaktoren mit der relativen Unsicherheit, die zwischen 8 % und 12 % schwankt, angegeben.

Tabelle 6.5: Transferfaktoren mit relativen Unsicherheiten

	$T_F(^{90}\text{Sr})$	$u_{rel}(T_F)$
Gras	0,46	0,08
Heu	1,1	0,09
Milch / Gras [$d\ l^{-1}$]	0,026	0,06
Fleisch (Kuh) [$d\ kg^{-1}$]	0,041	0,08
Fleisch (Schwein) [$d\ kg^{-1}$]	0,27	0,06
Roggen	0,20	0,07
Weizen	0,59	0,07
Kartoffeln	2,8	0,11
Sauerampfer	7,2	0,09
Gurken	0,31	0,12
Mohrrübe	1,4	0,09
Rote Beete	2,6	0,09
Kohl	2,8	0,08
Tabak	12	0,09
Haushimbeeren (Boden)	3,9	0,09
Heidelbeeren	0,085	0,11
Waldhimbeeren	0,67	0,13
Steinpilze	0,003	0,09
Pfifferlinge	0,03	0,09

Die Angaben zum Fleisch von Kühen beinhalten eine Verzehrsmenge von 16,1 kg und eine Futterzusammensetzung von Gras (30 %), Heu, Mais und Zuckerrüben. Für das aus Getreide, Kartoffeln und Soja bestehende Schweinefutter wird eine Verzehrsmenge von 2,4 kg für ein 110 kg schweres Schwein geschätzt. Diese Werte entsprechen der Abschätzung nach der IAEA - „Handbook of Parameter Values for the Prediction of Radionuclide Transfer in Temperate Environments“ [Int94].

Die Transferfaktoren der meisten Pflanzen und Gemüse liegen im Bereich von 0,3-3, die des Fleisch/Futter-Pfades und der Beeren bzw. Pilze bei niedrigeren Werten.

Ausnahmen findet man bei

- Himbeeren, die durch ihren Bezug auf den Boden und nicht auf eine organische Auflage höhere Werte aufweisen,
- Tabak, der als reines Inhalationmittel nicht die Dosis durch Ingestion beeinflusst und
- Sauerampfer.

Von den Gemüsearten weisen Kartoffeln, Kohl und Rote Beete mit 2,6-2,8 hohe Werte auf.

6.4.1 Vergleich mit ^{137}Cs

Zum Vergleich sind in folgender Tabelle zusätzlich die ^{137}Cs -Werte angegeben, die ebenfalls am Zentrum für Strahlenschutz und Radioökologie ermittelt wurden [Kal03].

Tabelle 6.6: Vergleich der Transferfaktoren von ^{90}Sr und ^{137}Cs

	^{90}Sr	^{137}Cs	Verhältnis $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$
Gras	0,46	0,21	2,19
Heu	1,1	0,78	1,41
Milch / Gras [d l^{-1}]	0,026	0,08	0,32
Fleisch (Kuh) [d kg^{-1}]	0,041	0,01	3,70
Fleisch (Schwein) [d kg^{-1}]	0,27	0,07	3,74
Roggen	0,20	0,013	15,38
Weizen	0,59	0,003	196,67
Kartoffeln	2,8	0,015	186,67
Sauerampfer	7,2	0,12	59,02
Gurken	0,31	0,08	3,88
Mohrrübe	1,4	0,04	40,00
Rote Beete	2,6	0,15	17,33
Kohl	2,8	0,03	93,33
Tabak	12	0,35	34,57
Haushimbeeren (Boden)	3,9	0,19	20,37
Heidelbeeren	0,085	0,56	0,15
Waldhimbeeren	0,67	0,15	4,47
Steinpilze	0,003	0,32	0,01
Pfifferlinge	0,03	1,87	0,02

Bis auf wenige Ausnahmen (Heidelbeeren, Pilze und Milch) sind die Transferfaktoren von ^{90}Sr höher als vom ^{137}Cs . Nach Bruchertseifer in [Bru01] ist der Transfer von ^{90}Sr generell höher als vom ^{137}Cs , was dies bestätigt. Dieselbe Literatur begründet auch die stark niedrigeren Transferfaktoren bei den Pilzen mit der Akkumulation von ^{90}Sr in den Micellen und mit einem geringem Transport in die Fruchtkörper.

Die Begründung des höheren Transferfaktors von ^{90}Sr lässt sich zum Einen durch den hohen Bedarf der Pflanzen an Calcium und der damit verbundenen unspezifischen Aufnahme von Erdalkalimetallen und zum Anderen durch die geringere Adsorptionsfähigkeit der Tone bezüglich Strontium begründen. Im Vergleich zu Cäsium wird Strontium nämlich weniger stark am Boden fixiert als ^{137}Cs . Es dringt zwar auch in die Zwischenschichten von Tonmineralen ein, verliert dort jedoch wegen seiner höheren elektrischen Ladung (2+) die das Strontium umgebende Wasserhülle nicht. Das Strontium kann so wieder aus den aufgeweiteten Tonmineralien heraustreten und steht dem Bodenwasser und dem damit verbundenen Transportprozess wieder zur Verfügung [Hen00].

6.4.2 Literaturvergleich

In einer Reihe von Literaturstellen sind Transferfaktoren für das Nuklid ^{90}Sr angegeben. Die Ergebnisse sind aufgrund des hohen chemischen Aufwandes dann jedoch zumeist nur für einige wenige Pflanzen oder Tiere vorhanden, was einen Vergleich erschwert. Die umfangreichsten sechs Literaturstellen sind in der Tabelle 6.7 zusammengefasst.

Die mit 1 bezeichnete Literaturstelle stammt von Fliegl mit dem Titel „Kritische Literaturauswertung zum Transfer Futter/Fleisch“ [Fli81]. Dem Titel entsprechend handelt es sich um eine Reihe von Tieren, dessen Fleisch in Bezug zur Futtermenge und -aktivität gestellt wird. Dabei ist zu beachten, dass die Transferfaktoren sich aus Feuchtgewichten des Futters berechnen und nicht wie bei den Christinowkproben dieser Arbeit aus Trockengewichten. So lassen sich auch die deutlich niedrigeren Werte aufgrund der höheren Verzehrsmengen erklären. Eine Umrechnung in Trockengewichte ist wegen Fehlens der Beschreibung der Futterzusammensetzung nicht möglich. Die meisten Proben, die für diese Literaturzusammenfassung herangezogen wurden, stammen aus der Sowjetunion, weshalb dies als Standort angegeben ist. Da die Literatur von 1981 stammt, sind die Werte von Tschernobyl unbeeinflusst.

Tabelle 6.7: Literaturvergleich von ^{90}Sr -Transferfaktoren

Ort	Christinowka 2002	1 Sowjet- union	2 Süd- deutschland	3 Kiel	4 Bayern	5 Sammlung [Int94]	6 Sammlung [Rob03]
Gras / Boden	0,46			0,34		1,1-3,4	
Heu / Boden	1,1				0,5-2,7		
Milch / Gras (d/l)	0,026			0,14		0,003	
Milch / Futter					0,002	0,001-0,003	0,01-0,026
Fleisch / Futter (Kuh)	0,041	0,003			0,0004	0,003-0,008	0,0008
Fleisch / Futter (Schwein)	0,273	0,00036				0,002-0,04	0,021
Fleisch / Futter (Dammwild)							
Fleisch / Futter (Geflügel)		0,018				0,01-4	0,06
Getreide / Boden				0,33		0,1	
Roggen / Boden	0,13-0,27			0,34			
Weizen / Boden	0,59						
Kartoffeln / Boden	2,8			0,1	< = 0,8		
Sauerampfer / Boden	7,2						
Gurken / Boden	0,3						
Karotte / Boden	1,4				0,22		
Rote Beete / Boden	2,6						
Kohl / Boden	2,8					2,7	
Tabak / Boden	12,1						
Blaubeeren / OA							
Haushimbeeren / Boden	3,9		0,19-0,25				
Heidelbeeren / OA	0,085		0,08-0,3			0,02-0,04	
Waldhimbeeren / OA	0,67						
Steinpilze / OA	0,003					0,003-3	
Pfifferlinge / OA	0,03					0,01-0,6	
Pilze / Boden	0,003-0,03				0,04-0,18		
Hafer / Boden				0,34	3,43-4,34		
Mais / Boden				0,52	1,08-1,88		
Zuckerrübe / Boden				0,77	0,76		

Im Auftrag des Bundesamtes für Strahlenschutz (BfS) veröffentlichten 2001 Bruchertseifer et.al. „Das Verhalten von Strontium-90 in Waldökosystemen“ [Bru01]. Die vergleichbaren Proben bestehen aus Heidelbeeren und Himbeeren, die in den süddeutschen Ortschaften Hochstadt, Siegenburg und Garching genommen wurden. Sowohl bei dem Futter als auch bei den Böden bzw. organischen Auflagen handelt es sich wie bei den angegebenen Proben aus der Ukraine um Trockengewichte. Für die Heidelbeeren wurden Transferfaktoren bestimmt, die mit 0,08 denen von Christinowka entsprechen. Die Werte für die Himbeeren sind dagegen in [Bru01] deutlich geringer. Dies lässt sich erklären durch die Tatsache, dass es sich

bei den Christinowka-Himbeeren, wie erwähnt, um Haushimbeeren ohne organische Auflage handelt. Weil bei allen Beeren und Pilzen (siehe Kapitel 6.3) die organischen Auflagen als Quelle für den Transfer deutlich mehr ^{90}Sr enthalten als die darunter befindlichen Böden, verwundert es nicht, dass der Transferfaktor der Haushimbeeren durch den Bezug auf den Boden höher liegt.

Der dritte Literaturvergleich „Field studies of the transfer factors soil plant of Cs-137 and Sr-90“ wurde 1982 von Heine und Wiechen veröffentlicht [Hei82]. Es sind keine Angaben zu den Probenahmeorten gemacht; da die Literatur jedoch von der heutigen Bundesanstalt für Milchforschung stammt, ist anzunehmen, dass die Proben im Umkreis von Kiel genommen worden sind. Die hier berechneten Transferfaktoren von Pflanzen sind auf nicht getrocknete Proben bezogen und damit wiederum nur schwer vergleichbar. Gerade Angaben über Gras führen bei Probenahme zu verschiedenen Zeiten zu extrem unterschiedlichen Feuchtgehalten. Die Werte für Gras, Milch/Gras und Roggen stimmen trotzdem von der Größenordnung mit den in dieser Arbeit ermittelten Werten überein. Auffällig ist der deutlich niedrigere Transferfaktor der Kartoffeln (0,1 statt 2,8).

Henkelmann veröffentlichte 2000 durch die Bayerische Landesanstalt für Bodenkultur und Pflanzenbau die Literatur „Strahlenschutzvorsorge in der Landwirtschaft“ mit einer Darstellung über die Kontamination durch verschiedene Radionuklide wie ^{137}Cs , ^{90}Sr und ^{129}I , sowie deren Auswirkungen und Massnahmen gegen die Dosisbelastung durch diese Nuklide im Falle einer Kontamination [Hen00]. Die zur Bestimmung der Transferfaktoren herangezogenen Böden wurden gesiebt, der Feuchtgehalt bestimmt und im Anschluss sofort gemessen. Der Wertebereich des Heus schließt mit 0,5-2,7 den für Christinowka mit ein (1,1). Die Fleischwerte sind ähnlich der Literatur von Fliegl, was darauf schließen lässt, dass auch diese Werte sich auf Feuchtgewichte des Futters beziehen. Der dritte Transferfaktor für die Kartoffeln liegt mit 0,8 zwischen denen im Rahmen dieser Arbeit gemessenen und von Heine und Wiechen berechneten Wert. Zum Vergleich mit letzterer Arbeit sind noch die Transferfaktoren von Hafer, Mais und Zuckerrüben angegeben und stimmen einerseits überein, sind andererseits allerdings auch um einen Faktor 10 unterschiedlich.

Die letzten beiden Literaturstellen von der IAEA „Parameter Values“ [Int94] und von der U.S.Nuclear Regulatory Commission „Literature Review and Assessment of Plant and Animal Transfer Factors Used in Performance Assessment Modeling“ [Rob03] stellen Samm-

lungen da und gehen nicht weiter auf den Bezug zu Trocken- oder Feuchtgewichten bzw. Standorten ein. Daher ergeben sich auch hier Bereichsangaben die bis zu einem Faktor von 1000 (Steinpilze) schwanken.

Aufgrund der großen Schwankungsbreite selbst bei vergleichbar ermittelten Massen von Futter und Pflanzen ist die Frage zu stellen, ob ein Vergleich der Transferfaktoren für ^{90}Sr überhaupt möglich bzw. sinnvoll ist. Es scheint andere Parameter wie Bodeneigenschaften und Futterzusammensetzung zu geben, die einen für einen Vergleich zu großen Unterschied bewirken. Grundsätzlich ist bei gleichen Bedingungen aufgrund der Quelle der ^{90}Sr -Kontaminationen kein Unterschied zu erwarten. Eine starke Deposition des ^{90}Sr durch den Reaktorunfall von Tschernobyl hätte somit keine Auswirkung auf den Transferfaktor und würde im gleichen Maße die spezifische Aktivität in den Pflanzen bzw. im Fleisch erhöhen, wie die spezifische Aktivität im Boden bzw. im Futter zunimmt. Hiergegen spricht jedoch bei der Aufnahme des Strontium bei Tieren und vermutlich letztlich auch für den Menschen die Aussage von [Rob03], das Strontium im Tierkörper homöostatisch aufgenommen wird, d.h. über den Stoffwechsel die Aufnahme von Strontium reguliert wird. So wird nur soviel Strontium aufgenommen, wie benötigt wird. Eine Zunahme im Futter hätte damit nicht zwingend eine Zunahme im Fleisch zur Folge. Aus diesem Grund wäre auch die Formel 6.3 zur Berechnung der spezifischen Aktivität eines Fleisches zum Zeitpunkt des Verzehrs durch den von der spezifischen Aktivität des Futters abhängigen Transferfaktor nur begrenzt gültig. Weiter zu beachten, ist die Feststellung von Fliegl, dass junge Tiere höhere Transferfaktoren aufweisen als ältere Tiere [Fli81].

Diese Aspekte zu klären, wäre nur mit einem Versuch unterschiedlich kontaminierter Böden bzw. kontaminiertem Futter bei sonst gleichen Umweltbedingungen möglich. Die starken Schwankungen in den Transferfaktoren wurden anhand unterschiedlicher Bodenparameter von [Bie78] untersucht und sind im folgenden Kapitel interpretiert.

6.4.3 Einfluss von Bodeneigenschaften auf den Transferfaktor

Die Literaturstudie [Bie78] von Biesold und Urbahn beschäftigt sich mit den Einflüssen verschiedener Bodenparameter auf die Transferfaktoren von ^{90}Sr . Hierfür wurden im Jahre 1978 Getreide, Gras, Klee, Kartoffeln, Tomaten, Möhren, Rettiche, Blattgemüse und Zwiebeln mit den dazugehörigen Böden im Bereich der Unterweser untersucht.

Der Transferfaktor steigt, wenn

- der Calciumgehalt im Boden sinkt: sinkt der Calciumgehalt erhöht sich das Verhältnis $^{90}\text{Sr}/\text{Ca}$ im Boden. Nimmt eine Pflanze unspezifisch Erdalkalimetalle auf, nimmt sie mehr Sr auf und der Transferfaktor steigt. Diese negative Korrelation ist von [Hei79] und [Rob03] bestätigt worden. Der negative lineare Korrelationsfaktor wurde von [Hei79] mit -0,61 berechnet. [Rob03] haben darüber hinaus gefunden, dass zwischen der Aufnahme von Calcium im Futter und dem Transferfaktor für den Pfad Tier/Futter ebenfalls eine negative Korrelation besteht.
- die Kationenaustauschkapazität/Tongehalt sinkt: die Kationenaustauschkapazität (KAK) stellt die Menge an Kationen dar, die im Boden vor der Auswaschung geschützt sind, aber dennoch pflanzenverfügbar sind [Sch84]. Dieses wird in erster Linie durch Tone erreicht, so dass die KAK etwa den Tongehalt widerspiegelt. Das Kation Sr^{2+} stellt hierbei keine Ausnahme dar. Weniger Ton bedeutet somit weniger gebundenes Strontium und damit mehr in der Bodenlösung verfügbares freies Strontium. Da bei der Bestimmung des ^{90}Sr -Gehaltes im Boden nicht zwischen dem an Tonen gebundenen und dem Freien unterschieden wird, bleibt die spezifische Aktivität gleich. Durch leichter verfügbares Strontium in der Bodenlösung, erhöht sich die spezifische Aktivität in der Pflanze und der Transferfaktor steigt.
- der Gehalt an organischer Substanz sinkt: ^{90}Sr kann von Komplexen im Boden gehalten und für Pflanzen unzugänglich gemacht werden. Eine Abnahme des organischen Anteils und damit eine Abnahme der Komplexe bewirkt eine Erhöhung des frei verfügbaren Strontiums im Boden. Mehr Strontium kann von den Pflanzen aufgenommen werden.
- der pH-Wert sinkt: Im Boden herrschen verschiedene Puffersysteme vor. Zumeist sind die Böden neutral oder schwach sauer, sodass die schwerlöslichen Carbonate vorherrschen (Löslichkeitsprodukte siehe Kapitel 1.1). Kommt es zu einer Entkalkung also einer Auswaschung der CO_3^{2-} -Ionen, sinkt der pH-Wert - der Boden versauert - und Strontium geht löslichere Verbindungen ein. Mehr Strontium kann in die Pflanzen gelangen und der Transferfaktor steigt. Da Waldböden sehr oft saure Böden sind, kann man hier höhere Transferfaktoren erwarten. Auch dies ist neben dem Auswascheffekt von kontaminierten Wolken durch Bäume ein Grund für erhöhte spezifische Aktivitäten in Flora und Fauna von Wäldern.

6.4.4 Diskussion der Transferfaktoren

Beeren und Pilze weisen im Gegensatz zum Verhalten des ^{137}Cs beim ^{90}Sr sehr niedrige Werte auf, da die spezifischen Aktivitäten in den zugehörigen organischen Auflagen hoch sind. Die Transferfaktoren von Fleisch/Futter sind hauptsächlich durch unterschiedliche Verzehrsmengen von Schweinen und Kühen beeinflusst.

Grundsätzlich sind die ^{90}Sr -Transferfaktor erklärbar höher als vom ^{137}Cs - teilweise liegen die Verhältnisse der beiden Isotope über 100. Ausnahmen dieses Verhaltens findet man bei Pilzen, Haushimbeeren und Milch.

Nur wenige Literaturstellen stehen für einen Vergleich zur Verfügung. Hinzu kommt, dass die Transferfaktoren sich mal auf Trocken und mal auf Frischgewichte beim Futter und bei Pflanzen beziehen. Eine Umrechnung ist durch unbekannte Fütterungsmengen und Wassergehalte nicht möglich.

Auffällig ist jedoch, dass selbst bei der Bestimmung mehrerer Werte einer Literaturstelle einen große Schwankung zustande kommt (z.B. Literatur [Hen00]: Heu 0,5-2,7). Selbst bei gleicher Bestimmungsmethode, Berechnungsgrundlage und Probenahme sind also große Unterschiede feststellbar. Diese Schwankungen lassen sich evtl. durch unterschiedliche Bodenparameter für den Pfad Boden-Pflanze erklären. Hierbei hat sich gezeigt, dass eine Erniedrigung der KAK, des pH-Wertes, des Calciumgehaltes und des organischen Anteils eine Erhöhung des Transferfaktors zur Folge hat.

Eine Erhöhung der ^{90}Sr -Aktivität im Futter hat beim Futter-Fleisch-Pfad aufgrund der homöostatischen Eigenschaften des Stoffwechsels der Tiere nicht unbedingt eine Erhöhung der Aktivität im Tier zur Folge.

Aufgrund der Schwankungen in den Transferfaktoren und der Vielzahl von beeinflussenden Parametern ist eine Vorhersage eines Transferfaktors, wie in diesem Kapitel verdeutlicht, kaum möglich.

6.5 Exposition durch Ingestion

Die in Zone II illegal lebenden Menschen der Ukraine sind in erster Linie durch das Radionuklid ^{137}Cs einer zusätzlichen Strahlenexposition neben der natürlichen Strahlung ausgesetzt. Das wichtigste, weitere Radionuklid, welches die Strahlenexposition erhöht, ist das ^{90}Sr . Die Summe der beiden Expositionen ist entscheidend für die Frage einer eventuellen Wiederbesiedlung der Zone II in der Zukunft. Die ^{137}Cs -Exposition durch Direktstrahlung und Ingestion wurde von Botsch in [Bot99] am Zentrum für Strahlenschutz und Radioökologie mit Hilfe von Proben aus demselben Ort Christinowka abgeschätzt; die Ergebnisse werden in Kapitel 6.5.3 näher betrachtet. Zur Ermittlung der Strahlenexposition durch das ^{90}Sr ist, wie in Kapitel 1.3.3 beschrieben, der Pfad durch Ingestion ausschlaggebend. Die Abschätzung kann generell durch eine Direktmessung des Nuklids oder durch eine Modellierung über die Nahrungsaufnahme erfolgen. Da ^{90}Sr als Betastrahler nicht direkt am Körper messbar ist, wird die Exposition durch das Modell der AVV (Allgemeinen Verwaltungsvorschrift zu § 47 StrlSchV (Strahlenschutzverordnung))[AVV03] berechnet.

6.5.1 Modell

Für die Ermittlung der Strahlenexposition gilt die allgemeine Verwaltungsvorschrift zu § 47 Abs. 2 der StrlSchV. Die Berechnungen dienen zur Überprüfung, ob kerntechnische Anlagen oder Einrichtungen die Grenzwerte der jährlich zulässigen Dosis durch Ableitung von radioaktiven Stoffen nach StrlSchV § 47 Abs. 1 einhalten [Str01]. Die Berechnungen der Strahlenexposition nach dieser Vorschrift sind dabei so ausgelegt, dass die zu erwartende Exposition des Menschen überschätzt wird. Die Berechnung liefert also eher ein konservatives Ergebnis.

Das folgende Modell der Exposition durch Ingestion gilt für Organe und Gewebe T für Altersgruppen über 1 Jahr:

$$H_{T,g,r} = (U^{Pf} \cdot C_r^{Pf} + U^{Bl} \cdot C_r^{Bl} + U^{Mi} \cdot C_r^{Mi} + U^{Fl} \cdot C_r^{Fl}) \cdot g_{T,g,r} \quad (6.4)$$

- $H_{T,g,r}$: Jahresdosis im Organ oder im Gewebe T durch Ingestion des Radionuklids r in Sv
 U^{Pf} : Jährliche Verzehrsmenge an pflanzlichen Produkten ohne Blattgemüse in kg
 U^{Bl} : Jährliche Verzehrsmenge an Blattgemüse in kg
 U^{Mi} : Jährliche Verzehrsmenge an Milch und Milchprodukten in kg
 U^{Fl} : Jährliche Verzehrsmenge an Fleisch und Fleischwaren in kg
 C_r^{Pf} : Spezifische Aktivität des Radionuklids r in pflanzlichen Produkten ohne Blattgemüse in Bq kg⁻¹
 C_r^{Bl} : Spezifische Aktivität des Radionuklids r in Blattgemüse in Bq kg⁻¹
 C_r^{Mi} : Spezifische Aktivität des Radionuklids r in Milch und Milchprodukten in Bq kg⁻¹
 C_r^{Fl} : Spezifische Aktivität des Radionuklids r in Fleisch und Fleischwaren in Bq kg⁻¹
 $g_{T,g,r}$: Dosiskoeffizient für das Organ oder Gewebe T durch Ingestion des Radionuklids r in Sv Bq⁻¹

Die Summe der Produkte aus spezifischer Aktivität eines Lebensmittels und zugehöriger jährlicher Verzehrsmenge kann dabei beliebig erweitert werden. Bei der Abschätzung sind Dekontaminationseffekte durch Aufbereitung und Reinigung nicht berücksichtigt. Bei der Betrachtung von der Altersgruppe < 1 Jahr muss nach der AVV die Ingestion von Muttermilch berücksichtigt werden. Da spezifische Aktivitäten in Muttermilch in dieser Arbeit nicht untersucht wurden, erfolgt eine Abschätzung der Folgedosis für Personen < 1 Jahr durch Erhöhung der Verzehrsmengen von Milch.

6.5.2 Abschätzung der jährlichen effektiven Dosis durch ⁹⁰Sr

Zur Berechnung der Strahlenexposition durch Ingestion benötigt man die jährlichen Verzehrsgewohnheiten. Die AVV empfiehlt hierfür die in Anlage VII Teil B Tabelle 1 der Strahlenschutzverordnung angegebenen Werte [Str01]. Der Ingestionskoeffizient $g_{T,g,r}$ aus Formel 6.4 ist in Anhang 3 der AVV [AVV03] sowie in [EUR96] und [ICR96] für ⁹⁰Sr tabelliert. Für eine korrekte Dosisleistungsabschätzung muss auch der Koeffizient von dem Tochternuklid ⁹⁰Y durch Addition berücksichtigt werden. So ergibt sich der Ingestionsdosiskoeffizient für einen Erwachsenen zu $3,07 \cdot 10^{-8}$ Sv Bq⁻¹. In Tabelle 6.8 sind die spezifischen Aktivitäten

der Lebensmittel aus Kapitel 6.3, die Verzehrsgewohnheiten aus der StrlSchV und die daraus resultierenden jährlichen effektiven Dosen für die Bevölkerung der Zone 2 der Ukraine aufgelistet.

Tabelle 6.8: Zusätzliche jährliche effektive Dosis für einen Bewohner der Zone 2 mit Verzehrsgewohnheiten aus [Str01]

	A_s [Bq kg ⁻¹]	jährl. Verzehrsmenge [kg]	jährl. ⁹⁰ Sr Aufnahme [Bq]	Folgedosis [mSv a ⁻¹]	95% VB nach StrlSchV
Milch	0,7	130	91	0,003	0,006
Getreide	11,4	110	1254	0,038	0,077
Kartoffeln	47,1	55	2591	0,080	0,239
Blattgemüse	17,3	13	225	0,007	0,021
Gemüse	15	40	600	0,018	0,055
Fleisch	20	90	1800	0,055	0,111
Fisch	2	7,5	15	0,0005	0,002
Obst	15,9	35	557	0,017	0,051
Summe		480,5	6575	0,219	0,561

Zu beachten ist, dass die in dieser Tabelle angegebenen spezifischen Aktivitäten sich wie die Verzehrsgewohnheiten auf Frischgewichte und die in Kapitel 6.3 angegebenen spezifischen Aktivitäten sich auf Trockengewichte beziehen. Mit Hilfe von in der Literatur [Der00] aufgelisteten Wassergehalten ist eine Umrechnung erfolgt.

Die abgeschätzte jährliche Gesamtdosis durch ⁹⁰Sr für einen Erwachsenen beträgt somit:

$$\mathbf{0,22 \text{ mSv } (\pm 0,02)}.$$

Die Anlage VII Teil B Tabelle 1 der StrlSchV liefert neben den durchschnittlichen Verzehrsgewohnheiten noch in der Spalte 8 Faktoren, die durch Multiplikation mit den Verzehrsgewohnheiten einem 95 %-Percentil entsprechen. Das bedeutet, dass bei der Betrachtung einer Verteilung der Verzehrsgewohnheiten 5 % der Bevölkerung gleich oder mehr Nahrung zu sich nehmen. Diese erweiterten Verzehrsgewohnheiten werden nach der StrlSchV bei der

Planung von Anlagen oder Einrichtungen für Referenzpersonen eingesetzt. Danach beträgt die effektive jährliche Dosis durch Ingestion von ^{90}Sr :

$$0,56 \text{ mSv } (\pm 0,05).$$

Auf ähnliche Weise lassen sich mit den Ingestionsdosiskoeffizienten aus [AVV03] und mit den Verzehrsgewohnheiten aus der Strahlenschutzverordnung die effektiven jährliche Dosen für verschiedene Altersgruppen berechnen. Die Ergebnisse sind in folgender Tabelle zusammengefasst:

Tabelle 6.9: Ingestionsdosiskoeffizienten [Eur96] und altersabhängige Dosisabschätzung für Bewohner der Zone 2 nach Verzehrsgewohnheiten der StrlSchV in mSv a^{-1}

	<1a	1-2 a	2-7 a	7-12 a	12-17 a	> 17 a
$g(^{90}\text{Sr})[\text{Sv Bq}^{-1}]$	$2,3 \cdot 10^{-7}$	$7,3 \cdot 10^{-8}$	$4,7 \cdot 10^{-8}$	$6,0 \cdot 10^{-8}$	$8,0 \cdot 10^{-8}$	$2,8 \cdot 10^{-8}$
$g(^{90}\text{Y})[\text{Sv Bq}^{-1}]$	$3,1 \cdot 10^{-8}$	$2,0 \cdot 10^{-8}$	$1,0 \cdot 10^{-8}$	$5,9 \cdot 10^{-9}$	$3,3 \cdot 10^{-9}$	$2,7 \cdot 10^{-9}$
Summe	$26,1 \cdot 10^{-8}$	$9,3 \cdot 10^{-8}$	$5,7 \cdot 10^{-8}$	$6,59 \cdot 10^{-8}$	$8,33 \cdot 10^{-8}$	$3,07 \cdot 10^{-8}$
H	0,576*	0,342	0,328	0,449	0,603	0,219
H(95 %)	1,667*	0,971	0,876	1,192	1,574	0,561

* gilt nur, wenn nicht gestillt wird;

wird gestillt Abschätzung über Erhöhung des Milchverzehrs: 0,602 und 1,746 (95 %)

Eine andere Quelle zur Integration der Verzehrsgewohnheiten in Formel 6.4 ist in der Literatur von Botsch in [Bot99] zu finden. Die dort angegebenen Werte stammen aus einer detaillierten Umfrage von Dörfern aus der Zone II. Die jährliche Gesamtmenge der Verzehrsmengen liegt mit 975 kg um den Faktor 2 über den Verzehrsmengen, die in der StrlSchV für Referenzpersonen der Altersgruppe über 17 Jahre zitiert sind. Die deutlich höheren Mengen erklären sich durch die stärkere körperliche Arbeit, die bei der überwiegend durch Landwirtschaft geprägte Bevölkerung der Zone II zu erwarten ist. Durch Waschen, Kochen, Einlegen und Beschneiden reduzieren sich die vom Menschen aufgenommenen Aktivitäten noch. Dies kann durch die Literatur [Int94] mittels dort zitierter Faktoren berechnet werden, was in den Spalten 6 und 7 der folgenden Tabelle dargestellt ist:

Tabelle 6.10: Zusätzliche jährliche effektive Dosis für einen Bewohner der Zone 2
mit Verzehrsgewohnheiten aus [Bot99]

	A_s [Bq kg ⁻¹]	Verzehrm. [kg a ⁻¹]	jährl. ⁹⁰ Sr Aufn. [Bq]	⁹⁰ Sr Dosis [mSv a ⁻¹]	Verlust d. Aufbereit.	⁹⁰ Sr Dosis [mSv a ⁻¹]
Milch	0,7	365	256	0,008	7 %	0,007
Brot	11,4	146	1667	0,051	40 %	0,031
Kartoffeln	47,1	183	8613	0,264	0 %	0,264
Rüben	13,6	18	244	0,007	20 %	0,006
Kohl	17,3	18	311	0,010	70 %	0,003
Gartenfrüchte	15,0	146	2186	0,067	60 %	0,027
Fleisch	20	73	1460	0,045	50 %	0,022
Fisch	2	18	36	0,001	10 %	0,001
Waldbeeren*	238	4,0	952	0,029	30 %	0,020
Pilze*	29	3,6	104	0,003	80 %	0,001
Summe		975	15829	0,486		0,383

Die effektive Dosisleistung wird so auf

$$0,38 \text{ mSv a}^{-1} (\pm 0,03)$$

abgeschätzt. Der Wert vor Einbeziehung der haushaltsüblichen Zubereitung der Lebensmittel von 0,49 mSv stimmt etwa mit der Dosisleistung überein, die durch das 95 %-Perzentil der StrlSchV ermittelt worden ist. Die Unsicherheit des Berechnungsergebnisses und mögliche Verteilungen werden im Kapitel 6.5.5 Statistik näher untersucht.

Den Hauptanteil ($0,26 \text{ mSv a}^{-1} = 69 \%$) der jährlichen effektiven Dosis wird durch die Einnahme von Kartoffeln bewirkt, welches als eines der Grundnahrungsmittel aus der Nahrungsmittelzusammensetzung der Bevölkerung von Christinowka als unverzichtbar gilt. Neben den Kartoffeln dominieren noch die Expositionen von Brot, Fleisch und Gartenfrüchten.

Setzt man voraus, dass sich die in der StrlSchV tabellierten Verzehrsgewohnheiten für verschiedene Altersschichten ähnlich wie die Verzehrsgewohnheiten der Ukrainischen Bevölkerung verhalten, lässt sich ebenfalls eine altersabhängige Dosisleistung mit den Verzehrsgewohnheiten nach Botsch abschätzen:

Tabelle 6.11: Altersabhängige Dosisabschätzung für Bewohner der Zone 2 nach Verzehrsgewohnheiten der StrlSchV und nach Botsch in mSv a^{-1}

	<1a	1-2 a	2-7 a	7-12 a	12-17 a	> 17 a
H (StrlSchV)	0,576	0,342	0,328	0,449	0,603	0,219
H(95%)	1,667	0,971	0,876	1,192	1,574	0,561
H (Ukraine)	1,007*	0,599	0,574	0,785	1,054	0,383

* gilt nur, wenn nicht gestillt wird;

wird gestillt Abschätzung über Erhöhung des Milchverzehrs: $1,325 \text{ mSv a}^{-1}$

Die Ermittlung der Dosis für Referenzpersonen <1 Jahr lassen sich, wie bereits erwähnt, aufgrund des fehlenden Wissens der spezifischen Aktivität der Muttermilch nicht berechnen. Die StrlSchV unterscheidet bei der Ernährung von Kleinkinder zwischen der Nahrungsaufnahme durch Stillen oder durch künstliche Muttermilch. Im letzten Fall ist der Anteil der Muttermilch in der restlichen Gesamtnahrung integriert. Für den Fall des Stillens wird hier zur Berechnung der Dosis die Verzehrsmenge Milch mit der Verzehrsmenge Muttermilch erhöht. Diese Abschätzung ist konservativ, da die Literatur von Baratta [Bar69] gezeigt hat, dass Muttermilch in der Regel geringere spezifische Aktivität aufweist als Kuhmilch. Muttermilch hat zudem auch die einzigartige Fähigkeit, die Ausscheidung mancher Umweltgifte zu fördern. Nach [ADE04] bindet Phosphor ^{90}Sr im Körper. Durch einen sehr niedrigen Phosphorspiegel in der Muttermilch wird die Ausscheidung von ^{90}Sr gefördert. Babys, die mit $5 \text{ mg } ^{90}\text{Sr}$ geboren wurden, hatten es nach drei Monaten vollkommen ausgeschieden, wenn sie in dieser Zeit voll gestillt wurden. Bei Flaschennahrung hingegen hatte sich dieser Wert nach einem Monat verdoppelt [ADE04].

6.5.3 Vergleich der Strahlenexposition durch ^{90}Sr und ^{137}Cs

Bei der Betrachtung des wohl dosisbestimmten Radionuklids ^{137}Cs ist nicht nur wie beim ^{90}Sr die Ingestion sondern auch die Direktstrahlung zu berücksichtigen. Die Direktstrahlung ist dabei abhängig

- von der durchschnittlichen Depositionsdichte, welche durch Entnahme von Bodenprofilen ermittelt werden kann,
- von einem zeitabhängigen und auf die Depositionsdichte normierten Dosisfaktor und

- von einem altersabhängigen Aufenthaltsfaktor, der angibt, wieviel Zeit sich eine Referenzperson im Laufe eines Jahres auf welcher Fläche aufhält.

Besonders die Aufenthaltszeiten schwanken jahreszeitlich bedingt stark und bewirken eine große Varianz der Direktstrahlung. In der Arbeit von Botsch [Bot99] sollte der Dosisfaktor mit Hilfe der Ortsdosisleistung an den Entnahmestellen der Tiefenprofile ermittelt werden. Aufgrund starker Schwankungen in der Ortsdosisleistung wurde jedoch auf ein einfaches Modell, welches hier nicht näher beschrieben werden soll, zurückgegriffen und der Dosisfaktor so auf $0,90 \mu\text{Sv m}^2 \text{ h}^{-1} \text{ MBq}^{-1}$ abgeschätzt. Die Unsicherheit liegt bei ca. 30 %. Eine Literatur von Likhtarev [Lik96] bestätigte mit einem Dosisfaktor knapp unter eins bei gleicher Einheit den Faktor. Die so ermittelten Modellparameter ergeben für eine Person der Zone 2 nach Botsch eine durchschnittliche externe jährliche Dosis von $H_{\text{extern}} = 4,7 \text{ mSv}$ (bezogen auf 2003). Im späteren Verlauf der Arbeit von Botsch war es möglich, die Exposition durch Direktstrahlung von ^{137}Cs durch das Tragen von Dosimetern betroffener Personen durchzuführen. Nach Korrektur durch Abzug der Höhenstrahlung ergab sich eine mittlere externe Exposition durch Direktstrahlung von

$$\mathbf{H_{\text{extern}} = 0,42 \text{ mSv a}^{-1} (\pm 0,12) \text{ (bezogen auf 2003).}}$$

(Maximalwert für eine Einzelperson $H_{\text{extern}} = 3,2 \text{ mSv a}^{-1}$)

Vergleicht man die mittlere externe Exposition mit der externen Exposition, die von Arkhipov in [Ark00b] für Bewohner der Zone 1 ermittelt worden ist, erscheint dieser Wert realistisch. Die Abweichung mit dem Faktor 10 zum modellierten Wert begründet sich nach Botsch in den konservativen (zu hoch angenommenen) Ortsdosisleistungen und Aufenthaltszeiten im Freien.

Die Ingestion wurde von Botsch mit den bereits erwähnten und durch Schätzungen erhaltenen Verzehrsgewohnheiten und spezifischen Aktivitäten der Lebensmittel durchgeführt. Daraus ergab sich nach Formel 6.4 eine Dosisleistung von $10,71 \text{ mSv a}^{-1}$ (bezogen auf 1998). Den Hauptanteil an dieser Dosis bewirkt die Aufnahme von Pilzen, in geringerem Umfang von Beeren.

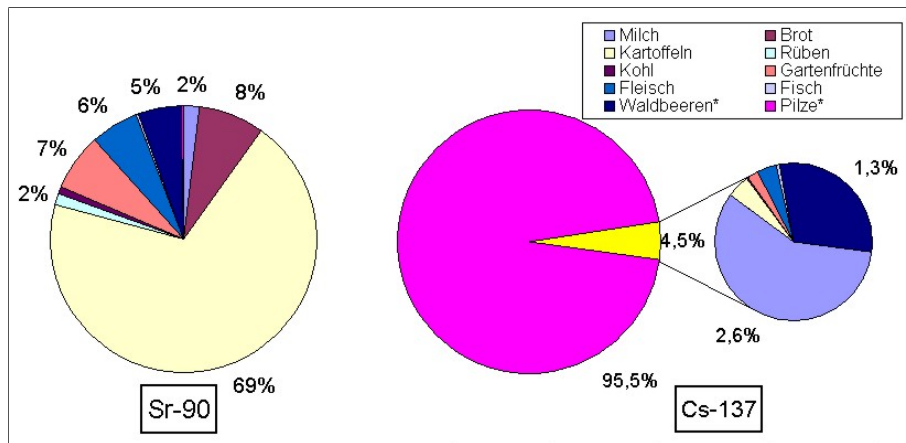


Abbildung 6.3: Vergleich der Lebensmittelanteile an der Dosis von ⁹⁰Sr und ¹³⁷Cs

Im Laufe der Dissertation von Botsch [Bot99] wurden weitere Untersuchungen bezüglich des Verzehrs von Pilzen und Beeren gemacht. Dabei wurde keine erneute Abschätzung des Verzehrs von den Bewohnern herangezogen, sondern eine Protokollierung des wahren Verzehrs ausgewählter Versuchspersonen. Die Verzehrsmengen der Beeren stimmten überein mit der Abschätzung. Von den Pilzen verzehrte man überwiegend Steinpilze. Die Mengenangaben der so ermittelten Pilze lagen jedoch mit 325 g Pilzen pro Jahr um eine Zehnerpotenz unter den durch die Befragung ermittelten Zahlen (3650 g). Berücksichtigt man diese realistischere Ermittlung der Pilzverzehrsmengen sinkt die jährliche Dosis durch Ingestion von ¹³⁷Cs auf 1,2 mSv (bezogen auf 2003) ab.

Nach diesen Modellierungen wurde eine vierteljährliche Messung der Gesamtkörperaktivität verschiedener Bewohner des Dorfes Christinowka durchgeführt. Die Messungen erfolgten mit einem mobilen Ganzkörperzähler, einem Na(I)-Detektor, der auf dem Körper der zu messenden Person aufgesetzt wird. Die Höhenstrahlung wurde auch hier durch einen zweiten Detektor ermittelt und vom Versuchsergebnis subtrahiert. Mit einem Umrechnungsfaktor von 0,038 mSv a⁻¹ pro kBq nach [Hil96] kann die interne Exposition abgeschätzt werden. Das Mittel dieser Untersuchung lag bei

$$H_{intern} = 0,27 \text{ mSv a}^{-1} (\pm 0,19) \text{ (bezogen auf 2003).}$$

(Maximalwert für eine Einzelperson $H_{intern} = 15,6 \text{ mSv a}^{-1}$)

Die Modellierung für die Ingestion von ^{137}Cs ist stark beeinflusst durch die großen Schwankungen der spezifischen Aktivitäten von Pilzen. Hinzu kommen jahreszeitlich bedingte Schwankungen in den Pilzverzehrsmengen. Im Spätsommer und Herbst werden die Pilzvorräte gebildet, durch Trocknen haltbar gemacht und bis zum Frühjahr verzehrt. Durch diese Schwankungen kommt es individuell zu unterschiedlichen Expositionen.

Die letzte Methode der direkten Bestimmung der internen Exposition durch ^{137}Cs ist dagegen von den Nahrungsmitteln in der Ermittlung unbeeinflusst und damit realistischer als die Modellierung.

Bei der Ingestion von ^{90}Sr ist eine Direktmessung nicht möglich. Die in Kapitel 6.5.2 durchgeführte Modellierung für die Exposition ist im Vergleich zu ^{137}Cs jedoch eher anwendbar, da hier die höchsten Dosen von Kartoffeln, Brot und Fleisch herrühren, die wiederum auf den hohen Verzehrsgewohnheiten dieser Lebensmittel basieren. Es ist zu erwarten, dass diese Verzehrsgewohnheiten der genannten Grundnahrungsmittel nicht so stark wie die spezifischen ^{137}Cs -Aktivitäten der Pilze schwanken. Daher spiegelt hier die Modellierung für das ^{90}Sr eine realistische Abschätzung wieder.

Die jährliche zusätzliche Exposition durch die Radionuklide ^{137}Cs und ^{90}Sr ergibt sich aus der Summe der direkt gemessenen Teildosis von ^{137}Cs und der modellierten Teildosis von ^{90}Sr :

$$H_{\text{gesamt}} = H_{\text{extern},^{137}\text{Cs}} + H_{\text{intern},^{137}\text{Cs}} + H_{\text{intern},^{90}\text{Sr}} \quad (6.5)$$

$$\mathbf{H}_{\text{gesamt}} = \mathbf{0,42} + \mathbf{0,27} + \mathbf{0,38} = \mathbf{1,07 \text{ mSv a}^{-1} (\pm 0,23)}.$$

(Die angegebene Unsicherheit bezieht sich auf das Messergebnis und sagt nichts über eine mögliche Verteilung aus.)

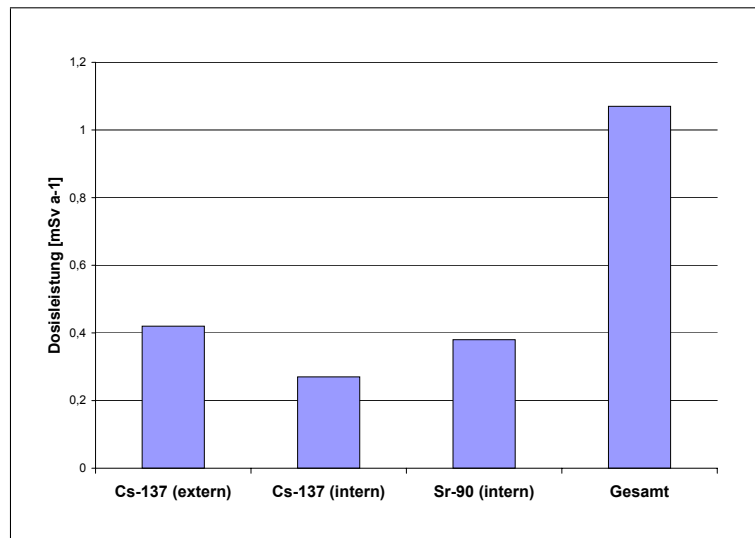


Abbildung 6.4: Die effektive jährliche Dosis von ^{90}Sr durch Modellierung und von ^{137}Cs durch Direktmessung

6.5.4 Lebenszeit-Folgedosis

Als Anhaltspunkt für eine mögliche Wiederbesiedlung der Zone II kann die jährliche zusätzliche Dosis oder die daraus resultierende Lebenszeit-Folgedosis herangezogen werden. Nach Euratom Grundnorm [Eur96] beträgt dabei der Grenzwert der Lebenszeitdosis für eine strahlenexponierte Person 400 mSv. Bei der Berechnung der Folgedosis ist der physikalische Zerfall und theoretisch auch die vertikale Migration der Radionuklide ^{137}Cs und ^{90}Sr im Boden zu berücksichtigen.

Für die externe Exposition durch ^{137}Cs ist von Botsch eine Folgedosis von **9,2 mSv** ermittelt worden. Für einige Personen mit extremen Lebensgewohnheiten (hohe Aufenthaltszeiten im Freien und in Flussufernähe) ergibt sich jedoch eine Folgedosis von 84 mSv. Durch die Tiefenverlagerung des Radionuklids seit dem Reaktorunfall 1986 bis zur Arbeit von Botsch 1995 konnte eine effektive Halbwertszeit der Ortsdosisleistung abgeschätzt werden. Entscheidend für die Vorhersage der zeitlichen Entwicklung der ^{137}Cs -Migration ist die Erkenntnis, dass selbst 9 Jahre nach dem Unfall über 90 % des ^{137}Cs in den oberen 10 cm und damit im Wurzelraum der Pflanzen zu finden waren. Messungen am Zentrum für Strahlenschutz und Radioökologie im Jahre 2002 bestätigten diese Annahme [Har04]. Die Arbeit von Botsch

ging aufgrund einer bis zum Zeitpunkt 1995 nicht signifikant feststellbaren Tiefenverlagerung, aufgrund des Homogenisierens durch Pflügen und aufgrund der Möglichkeit durch Wurzelaufnahme von einer kaum merklichen Tiefenverlagerung des ^{137}Cs aus.

Gleiches gilt für die Ermittlung der internen Strahlenexposition für die folgenden 50 Jahre durch ^{137}Cs . Hier wurde eine bei Botsch nur geringfügige Migration in die Tiefe und damit verbundene fast konstante spezifische Aktivitäten in den Pflanzen - bei gleich bleibenden Transferfaktoren - vorausgesetzt. Die 50-Jahre-Folgedosis durch Ingestion von ^{137}Cs wurde im Jahre 1998 auf **6 mSv** durch die Ganzkörpermessungen abgeschätzt. Diese Abschätzung gilt für durchschnittliche Verzehrsgewohnheiten. In Einzelfällen konnten bis zu 200 mSv 50-Jahre-Folgedosis errechnet werden.

Die wirkliche Verzehrsmenge von Pilzen in diesem Gebiet hat eine starke Auswirkung auf die jährliche zusätzliche Dosis und die 50-Jahre-Folgedosis. Dabei ist das zukünftige Verhalten der ^{137}Cs -Konzentration in Pilzen noch unklar. Das Bundesamt für Strahlenschutz [BfS97] geht in den nächsten zehn Jahren von einer Halbierung der spezifischen Aktivitäten aus. Durch die langsame Tiefenverlagerung des ^{137}Cs könnte jedoch die spezifische Aktivität in einigen Pilzsorten, wie dem Frauentäubling, wieder steigen, da diese ihre Nährstoffe aus tieferen mineralischen Bodenschichten beziehen.

Für das ^{90}Sr ist jedoch die Ingestion alleine entscheidend. Die unterschiedlichen möglichen Pilzverzehrsmengen spielen hierbei kaum eine Rolle (siehe Kapitel 6.5.3). Da über das zukünftige Migrationsverhalten unterhalb von 50 cm (Stauwasser und Grundwasserbereich der meisten Böden) keine einheitliche Aussage möglich ist und die Auswirkungen der Tiefenverlagerung auf die Aktivitätskonzentrationen in Nahrungsmitteln nicht bekannt sind, muss hier von der konservativsten Annahme ausgegangen werden. Das bedeutet, die Abnahme der Konzentration in den Nahrungsmitteln kann lediglich über die physikalische und biologische Halbwertszeit des ^{90}Sr von durchschnittlich 20 Jahren gefolgert werden (siehe Kapitel 1.1). Mit Hilfe von Dosiskoeffizienten aus der ICRP-72-Publikation [ICR96], die für die Bevölkerung bei Ingestion von Radionukliden gelten, lassen sich für verschiedene Altersgruppen die Lebenszeit-Folgedosen berechnen. Dabei wird bis zu einem Alter von 70 Jahren die jährliche effektive Dosis summiert. Für einen Erwachsenen wird die konservative Annahme eines Alters von 20 Jahren und dementsprechend für ein drei Monate altes Baby eine Folgedosis für 69 Jahre und 9 Monate gewählt. In der folgenden Tabelle sind die Dosiskoeffizienten für

verschiedene Altersgruppen von ^{90}Sr und ^{90}Y angegeben. Bei der Berechnung der jährlichen effektiven Dosen sind, wie erwähnt, lediglich die physikalische und biologische Halbwertszeit, nicht die Migration des ^{90}Sr einbezogen.

Tabelle 6.12: Die Lebenszeit-Folgedosis für verschiedene Altersgruppen für Bewohner der Zone 2 in mSv

Alter	3M	1 J.	5 J.	10 J.	15 J.	Erwachsen
$g(50,\text{Sr-90})$	$2,3 \cdot 10^{-7}$	$7,3 \cdot 10^{-8}$	$4,7 \cdot 10^{-8}$	$6,0 \cdot 10^{-8}$	$8,0 \cdot 10^{-8}$	$2,8 \cdot 10^{-8}$
$g(50,\text{Y-90})$	$3,1 \cdot 10^{-8}$	$2,0 \cdot 10^{-8}$	$1,0 \cdot 10^{-8}$	$5,9 \cdot 10^{-9}$	$3,3 \cdot 10^{-9}$	$2,7 \cdot 10^{-9}$
Summe	$2,6 \cdot 10^{-7}$	$9,3 \cdot 10^{-8}$	$5,7 \cdot 10^{-8}$	$6,6 \cdot 10^{-8}$	$8,3 \cdot 10^{-8}$	$3,1 \cdot 10^{-8}$
Folgedosis	77,6	27,8	17,0	19,7	24,7	9,3 mSv

Die gesamte Folgedosis für einen Erwachsenen durch die wichtigsten Radionuklide ^{90}Sr und ^{137}Cs ergibt sich aus der Summe der einzelnen Dosen:

$$\begin{aligned} H_{\text{gesamt},50a} &= H_{\text{extern},^{137}\text{Cs},50a} + H_{\text{intern},^{137}\text{Cs},50a} + H_{\text{intern},^{90}\text{Sr},50a} \\ &= \mathbf{9,2+6,0+9,3 = 24,5 \text{ mSv.}} \end{aligned}$$

Die Lebenszeit-Folgedosis durch die Radionuklide beträgt danach mit Modellierung und Direktmessung 24,5 mSv. (Für Einzelpersonen sind jedoch durch extreme Lebensweisen deutlich höhere Folgedosen möglich. Im Extremfall sind das bis zu ca. 500 mSv.) Eine zusätzliche jährliche effektive Dosis und damit Erhöhung der 50-Jahre-Folgedosis kann die Ingestion von α -Strahlern wie $^{238/239}\text{Pu}$, ^{238}U , und ^{241}Am bewirken. Eine Untersuchung der spezifischen Aktivitäten dieser Nuklide für das Dorf Christinowka wird zurzeit am ZSR durchgeführt.

Durch die natürliche Strahlenexposition von 2,1 mSv pro Jahr liegt die natürliche 50-Jahre-Folgedosis bei

$$H_{\text{nat},50a} = 50a \cdot 2,1 \text{ mSv a}^{-1} = 105 \text{ mSv.}$$

Durch natürliche Schwankungen, vor allem durch Rn-222 bedingt, kann die Jahresdosis bis auf 10 mSv steigen:

$$H_{\text{nat},50a} = 50a \cdot 10 \text{ mSv a}^{-1} = 500 \text{ mSv.}$$

Hinzu kommt eine 50-Jahre-Folgedosis durch medizinische Untersuchungen im Mittel von 2 mSv a^{-1} , die allerdings individuell stark schwankt:

$$H_{med,50a} = 50a \cdot 2 \text{ mSv a}^{-1} = 100 \text{ mSv.}$$

Der Vergleich zeigt, dass selbst die Abschätzung der 50-Jahre-Folgedosis im Extremfall im Bereich der natürlichen Exposition liegt.

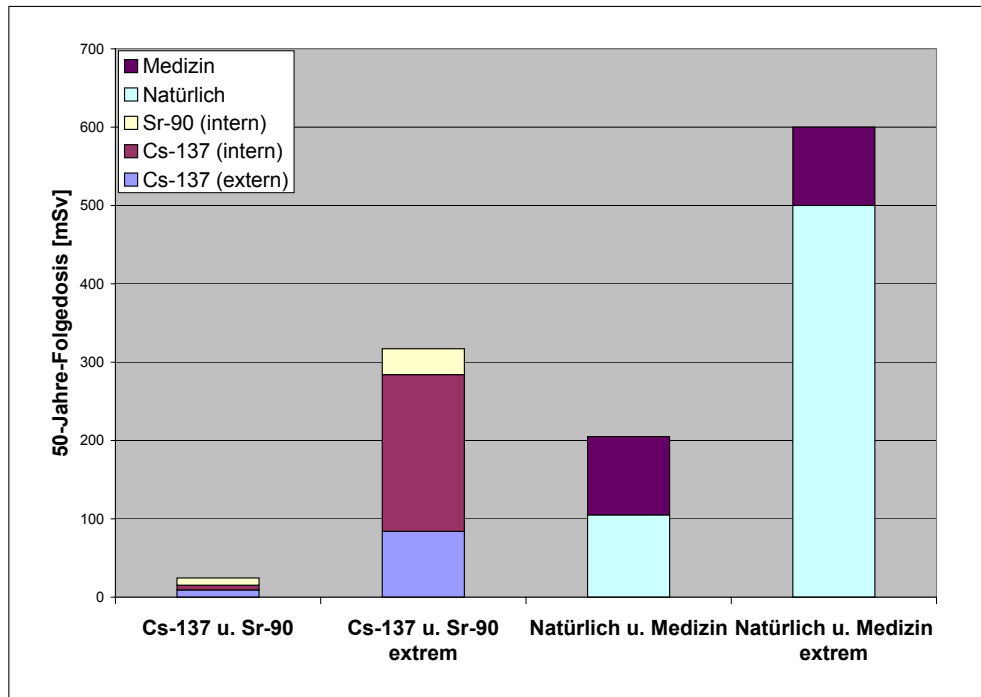


Abbildung 6.5: Die Lebenszeit-Folgedosis von ^{90}Sr und ^{137}Cs im Vergleich zu natürlicher und zivilisatorischer Exposition und zu Extremwerten

6.5.5 Statistik

Alle bisher in dieser Arbeit aufgezeigten Aktivitäten und Dosen sind Punktschätzer, die aus einem Wert oder einigen wenigen Werten gebildet wurden. Hierbei wird bei den einzelnen Parametern nicht auf eine in der Natur üblichen Verteilung eingegangen, so dass extreme Lebensweisen, zufällige Schwankungen und besondere biologische Funktionen zur Erhöhung von Verzehrsmengen, von spezifischen Aktivitäten in Lebensmitteln und sogar Dosiskoeffizienten führen können. So sind deutlich höhere effektive jährliche Dosen und Lebenszeitdosen für einzelnen Individuen vorstellbar. Grenzwerte für Expositionen der Bevölkerung und spezieller Arbeitsgruppen sind in Vorschriften, wie der StrlSchV, ebenfalls nur als konkrete Werte angegeben. Eine erste Ausnahme ist die in der StrlSchV Anlage VII Teil B Tabelle 1

Spalte 8 angegebenen Faktoren der Verzehrsmengen, die ein 95 %-Percentil darstellen. International geht der Trend in die Richtung, in Zukunft auch Angaben über Verteilungen mit in Grenzwertbetrachtung einzubeziehen. Aus diesem Grund wird an dieser Stelle versucht, die Verteilung der Exposition durch ^{90}Sr in der nördlichen Ukraine wiederzugeben.

Um für ein Modell, wie die Dosisberechnung (Formel 6.4), eine Verteilung abzuschätzen, müssen den einzelnen Parametern Verteilungen zugewiesen werden. Die anschließende Berechnung ist aufgrund von Faltungen unterschiedlicher Verteilungen oftmals rechnerisch nicht mehr möglich, so dass eine Monte-Carlo-Simulation durchgeführt werden muss. Für das Microsoft Office Programm Excel steht hierfür ein Makro mit dem Namen Crystall-Ball zur Verfügung, bei dem sich die einzelnen Verteilungen der Parameter durch eine Simulation fortpflanzen und eine Gesamtverteilung ergeben. Aus dieser lassen sich dann beliebige Percentile berechnen. Bei dem Programm wurden jeweils für eine Simulation 20.000 Versuche mit der Monte-Carlo-Methode durchgeführt. Die Gesamtverteilung kann im Anschluss durch das Programm auf verschiedene bekannte Verteilungsmuster getestet werden. Als Parameter für die Güte eines Tests wird ein χ^2 -Kriterium gewählt.

Für eine Abschätzung der Verteilung, die eine Exposition durch Ingestion von ^{90}Sr beschreibt, müssen vorab einige Annahmen getroffen werden:

- Da für die spezifischen Aktivitäten weder Zeit noch Material zur Verfügung standen, eine Verteilung empirisch zu bestimmen, muss hier eine Verteilung angenommen werden. In der Literatur [Vah04] sind für verschiedene natürliche Radionuklide in Nahrungsmitteln Verteilungen ermittelt worden. Für die meisten dieser Nuklide konnte eine logarithmische Normalverteilung mit einer geometrischen Standardabweichung von 2 nachgewiesen werden. Die Literatur [Ark00b], welche sich mit der Messung von ^{90}Sr in der Zone 1 beschäftigt, ermittelte Standardabweichungen zwischen 1,1 und 2,1. Aus diesen beiden Literaturstellen wird der konservative Schluss gefolgert, dass die Verteilung von spez.- ^{90}Sr -Aktivitäten in Lebensmitteln logarithmisch normalverteilt ist und eine geometrische Standardabweichung von 2 besitzt. Als Konsequenz aus dieser Annahme einer solchen rechtsschiefen Verteilung ergibt sich ein Erwartungswert (EW), der größer ist als der bisher in Kapitel 6.3 angegebene Mittelwert der spezifischen Aktivität der einzelnen Verzehrarten. Für eine logarithmische Normalverteilung gelten

folgende Formeln:

$$EW = e^{\mu + \frac{\sigma^2}{2}} \quad (6.6)$$

$$V = e^{2\mu + \sigma^2} \cdot (e^{\sigma^2} - 1) \quad (6.7)$$

$$P_{1-\alpha} = e^{\mu + k_{1-\alpha} \cdot \sigma} \quad (6.8)$$

Mit :

- μ : Geometrischer Mittelwert
- σ : Geometrische Standardabweichung
- V: Varianz
- $P_{1-\alpha}$: einseitige Erweiterungsfaktor zum Percentil

- Für die Ermittlung der jährlichen zusätzlichen Dosis der Bevölkerung ist es sinnvoller, die Verzehrsgewohnheiten der Arbeit von Botsch heranzuziehen. Für diese sind leider keine Verteilungen, geometrischen Standardabweichungen oder Faktoren, die ein 95 %-Percentil beschreiben, angegeben. Als Verteilung wird auch hier eine logarithmische Normalverteilung angenommen, da diese nach [Lim01] und [Vah04] für die Verzehrsgewohnheiten sinnvoll erscheint.
- Für den Dosiskoeffizient des Radionuklids ^{131}I ist von [Har03] eine logarithmische Normalverteilung mit einer Standardabweichung von 2 beschrieben worden. Für das Nuklid ^{90}Sr sind in der Literatur keine Angaben bekannt. Daher wird bei den Simulationen mit einem Punktschätzer nach Euratom Grundnorm [Eur96] gerechnet.

Aus den angenommenen Verteilungen und geometrischen Standardabweichungen ergibt sich eine, wie in Grafik 6.6 für die Altersgruppe > 17 a dargestellte, Verteilung.

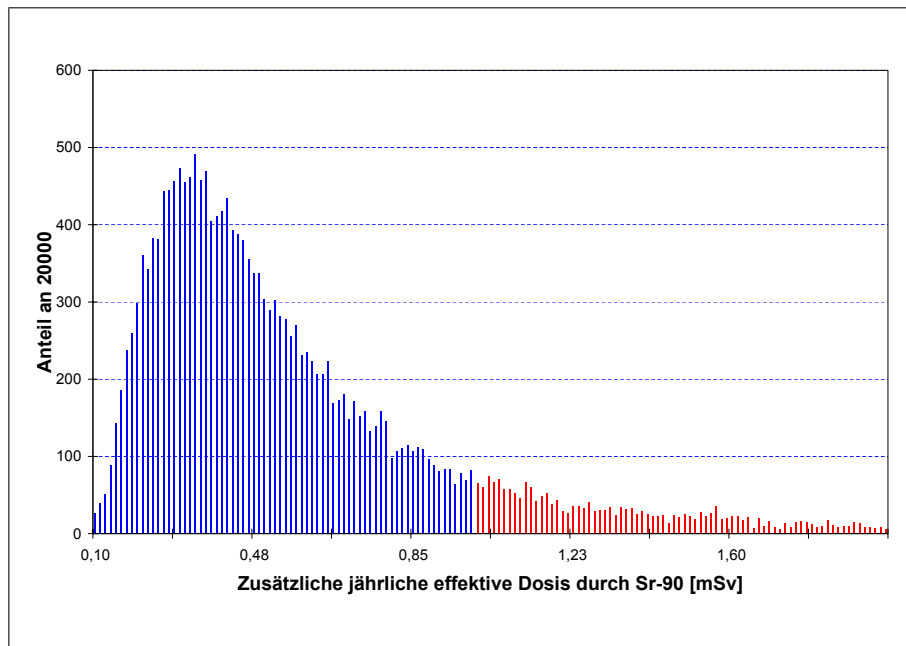


Abbildung 6.6: Verteilung der effektiven jährlichen Dosis für Bewohner der Zone 2 mit konservativen Annahmen

Das geometrischen Mittel liegt bei der angenommenen Verteilung bei $0,49 \text{ mSv a}^{-1}$ mit einer geometrischen Standardabweichung von 1,8. Daraus errechnet sich ein Erwartungswert für die jährliche effektive Dosis durch Ingestion des Radionuklids ^{90}Sr von :

0,6 mSv.

Mit dem Programm Crystall Ball wurden mehrere mögliche Verteilung auf das Ergebnis getestet. Mit einem χ^2 von 463 konnte eine logarithmische Normalverteilung als das Optimum angenähert werden. 13 % der Bevölkerung bekämen nach dieser Verteilung mehr als 1 mSv a^{-1} durch Ingestion von ^{90}Sr . Das 95 % Percentil liegt bei $1,53 \text{ mSv a}^{-1}$.

Weitere Parameter der Verteilung finden sich in Anhang A Tabelle A.19.

6.5.6 Zusammenfassung und Bewertung der Expositionsabschätzung

Die Abschätzung der Strahlenexposition durch Ingestion von ^{90}Sr für Bewohner der Zone 2 kann mit einer Modellierung nach AVV durchgeführt werden. Hierfür sind die spezifischen Aktivitäten der Lebensmittel, die Verzehrsgewohnheiten aus der Arbeit von Botsch [Bot99] und die Ingestionsdosiskoeffizienten aus [Eur96] herangezogen worden.

Teilweise sind für ein Lebensmittel nur ein oder zwei Messergebnisse ermittelt worden. Die Auswahl der untersuchten aus einer Vielzahl von Proben begründet sich allerdings durch eine Wahl von Proben mit mittleren bekannten ^{137}Cs -Konzentrationen. So kann bei ähnlichem Verhältnis der Isotope davon ausgegangen werden, dass die Messwerte den Erwartungswerten entsprechen.

Die zusätzliche jährliche effektive Dosis durch ^{90}Sr für einen Erwachsenen beträgt **0,38 mSv** (siehe Tabelle 6.10). Eine altersabhängige Abschätzung erfolgte über die Verhältnisse der Verzehrsgewohnheiten aus der StrlSchV. Danach erhalten Jugendliche im Alter von 12-17 Jahren die höchste Dosisleistung (ca. 1 mSv a^{-1}). Begründen lässt sich dieses durch das starke Wachstum in dieser Phase und der damit verbundenen höheren Einlagerung von ^{90}Sr im Knochen. Eine ebenfalls hohe Dosisleistung errechnet sich für die Altersgruppe < 1 Jahr. Aufgrund des Fehlens von spezifischer Aktivität der in diesem Zeitraum sehr bestimmenden Muttermilch und der Erhöhung der Kuhmilch um die Verzehrsmenge der Muttermilch ist dieser Wert sehr konservativ und voraussichtlich überschätzt.

Die Exposition setzt sich zu fast 70 % aus dem Verzehr von Kartoffeln und zusätzlich aus Brot, Gartenfrüchten und Fleisch zusammen (Abbildung 6.5.3). Diese Grundnahrungsmittel decken 89 % des Verzehrskorbes ab und sind für die Bevölkerung unentbehrlich. Der überraschend hohe Anteil der Ingestion von Kartoffeln an der Exposition bestätigt Arkhipov in [Ark00b] in seiner Untersuchung der ^{90}Sr -Exposition für die Zone 1 um Tschernobyl mit einem Anteil von 40 %.

Das momentan dosisrelevanteste Nuklid für die Exposition der Bevölkerung in der nördlichen Ukraine ist das ^{137}Cs . Daher wird es hier zur Ermittlung der Strahlenexposition hinzugezogen. Erste Untersuchungen von Botsch [Bot99] durch eine Modellierung der Exposition mittels Verzehrsgewohnheiten aus Befragungen zeigten, dass der Verzehr von Pilzen die höchste Exposition liefert (Abbildung 6.5.3). Eine anschließende genauere Erfassung der

Verzehrgewohnheiten führte zwar zu reduzierten Pilzverzehrsmengen um den Faktor 10; die Pilze bleiben allerdings weiter dosisbestimmend. Hierbei liegt eine hohe Schwankungsbreite spezifischer Aktivitäten und individueller Verzehrsmengen von Pilzen vor. Anders als beim ^{90}Sr sind demnach nicht Grundnahrungsmittel für die Exposition entscheidend. Dennoch ist eine Reduzierung der Exposition nur schwer möglich, da die Bevölkerung den Verzehr der als Delikatessen angesehenen Pilze nicht einschränken würde. Eine Lösung wäre hier evtl. ein staatlich subventionierter Import von Pilzen in die Zone.

Die generell beste Möglichkeit zur Bestimmung einer Exposition liegt in der Messung der Direktstrahlung, welche beim ^{90}Sr nicht möglich ist, wohl aber beim ^{137}Cs . So konnte die externe Exposition mit Hilfe von Dosimetern von Botsch auf $0,42 \text{ mSv a}^{-1}$ abgeschätzt werden. Die mittels Ganzkörperzähler ermittelte interne Exposition beläuft sich auf $0,27 \text{ mSv a}^{-1}$. In beiden Fällen kam es bei der Untersuchung von Einzelpersonen zu starken Abweichungen.

Die Gesamtexposition der Nuklide ^{137}Cs und ^{90}Sr wird so auf 1 mSv a^{-1} abgeschätzt.
(bezogen auf 2003)

Dieser Wert kann durch Einbeziehung der Exposition durch Alphastrahler noch ansteigen.

Aus den jährliche effektiven Dosen durch ^{137}Cs und ^{90}Sr lassen sich mittels der physikalischen und biologischen Halbwertszeiten die 50-Jahre-Folgedosen berechnen. Nicht in die Extrapolation integriert ist die Migration der Nuklide im Boden und der damit verbundenen zusätzlichen Abnahme der spezifischen Aktivitäten in Lebensmitteln für die nächsten Jahrzehnte. Die 50-Jahre-Folgedosis für Bewohner der Zone 2 wird auf **24,5 mSv** abgeschätzt. Dieser Wert liegt um eine Zehnerpotenz unter der natürlichen Strahlenexposition. Durch die starken Schwankungen der einzelnen Folgedosen lässt sich allerdings auch eine 50-Jahre-Folgedosis von bis zu 500 mSv für einzelne Individuen annehmen.

Die Annahme einer logarithmischen Normalverteilung für die Verzehrgewohnheiten und spezifischen Aktivitäten führt zu einer logarithmischen Normalverteilung der Exposition. Der geometrische Mittelwert steigt durch die Annahme der Verteilung auf $0,49 \text{ mSv a}^{-1}$ an. Der Erwartungswert liegt bei $0,6 \text{ mSv a}^{-1}$. Über 10 % der Bewohner der Zone 2 erhalten nach

dieser Verteilung allein durch ^{90}Sr eine zusätzliche Dosis von mehr als 1 mSv im Jahr.

Die Annahmen für die Verteilung sind konservativ, weshalb auch das Ergebnis als konservativ angesehen werden muss. Das Beispiel zeigt gut, dass es in Zukunft erforderlich sein wird, bei der Betrachtung von Grenzwerten auch derartige Verteilungen und Percentile mit einzubeziehen.

Setzt man voraus, dass sowohl die Verzehrsgewohnheiten der Bevölkerung in der Ukraine als auch die Transferfaktoren in diesem Gebiet sich nicht groß unterscheiden, können über aggregierte Transferfaktoren mit dem Wissen über die Depositionsdichten (DD) eine Exposition durch ^{90}Sr bzw. eine Gesamtexposition berechnet werden. Für ein Verhältnis der DD der Zone 2 zu Zone 3 von einem Faktor 3 ergibt sich eine Exposition durch Ingestion von ^{90}Sr von $0,13 \text{ mSv a}^{-1}$; nimmt man hier eine logarithmische Verteilung an, erhalten weniger als 1 % der Bevölkerung durch ^{90}Sr mehr als 1 mSv im Jahr. Die Gesamtexposition liegt bei ca. $0,34 \text{ mSv a}^{-1}$ für die Zone 3. Ähnlich lässt sich bei einem Faktor von 10 zwischen den DD der Zone 2 und Zone 1 eine jährliche ^{90}Sr -Exposition von 3,8 mSv (99 % $> 1 \text{ mSv a}^{-1}$) und eine jährliche Gesamtexposition durch ^{90}Sr und ^{137}Cs von ca. 10 mSv für Zone 1 abschätzen. Zu Beachten ist jedoch, dass die Aufnahme von ^{90}Sr , wie in Kapitel 6.4.2 beschrieben, in Tieren homöostatisch geregelt wird und daher bei Übertragung dieser Annahme auf den menschlichen Organismus zu niedrigeren biologischen Halbwertszeiten und niedrigeren Expositionen führen kann.

Die abgeschätzten jährlichen Dosen und 50-Jahre-Folgedosen liegen in einem Bereich, über den beim gegenwärtigem Stand der Forschung keine Angaben über eine Dosis-Risiko-Beziehung gemacht werden kann. Der Grenzwert für deterministische Schäden von ca. 500 mSv wird nicht erreicht und die Erhöhung des Risikos für stochastische Schäden bei geringen Strahlendosen bewirkt keine sichtbaren Effekte. Eine eventuelle Erhöhung von Krebszahlen durch die zusätzliche Exposition von ^{90}Sr und ^{137}Cs ist zu gering, um sich signifikant von den zu erwartenden Krebsfällen in der Bevölkerung unterscheiden zu können.

Aufgabe dieser Arbeit ist eine Abschätzung der jährlichen effektiven Dosis in Zusammenhang mit einer möglichen offiziellen Wiederbesiedlung der Zone 2. Die Euratom Grundnorm [Eur96] gibt für die maximale zusätzliche effektive Dosis für die Bevölkerung einen Grenzwert von **1 mSv** an. Den gleichen Wert liefert die Literatur „Gesetz der Ukraine über den Schutz des Menschen vor der Wirkung ionisierender Strahlung - Grenzwerte der Dosisbe-

lastung“. Nach Kapitel 2 „Grenzwerte für die Strahlungsbelastung und Interventionslevels“ soll die effektive Personendosis für die Bevölkerung 1 mSv pro Jahr nicht überschreiten. Unter diesen Voraussetzungen ist bei einer Exposition von 1 mSv a^{-1} allein durch ^{137}Cs und ^{90}Sr und einer zusätzlichen Exposition durch α -Strahler eine **Wiederbesiedlung nicht zu empfehlen**. Der Anteil der Exposition durch ^{90}Sr an der ermittelten Exposition von 1 mSv macht deutlich, dass eine Einbeziehung des Radionuklids auch in zukünftige Untersuchungen notwendig ist.

Sollte die Abschätzung der zusätzlichen effektiven Dosis durch ^{137}Cs und ^{90}Sr mittels aggregierten Transferfaktor für die Zone 1 realistisch sein, ist abzusehen, dass der genannte Grenzwert von 1 mSv a^{-1} auch in den nächsten 40 Jahren dort nicht unterschritten wird.

7 Zusammenfassung

Aufgabe dieser Arbeit war es, einen Überblick über das weltweite Vorkommen des anthropogenen Radionuklids ^{90}Sr zu schaffen, sein Migrationsverhalten im Boden zu untersuchen und eine Abschätzung der Folgedosis für Personen in der nördlichen Ukraine liefern zu können. Die wichtigsten Erkenntnisse sind in folgenden Punkten zusammengefasst:

1. Die beiden hauptsächlichen Quellen für die Verbreitung des Radionuklids ^{90}Sr in unserer Umwelt sind global und breitenabhängig die **oberirdischen Kernwaffentests** der 1960er Jahre und lokal **Unfälle**. Zu den relevantesten Unfällen zählen die Ereignisse in Tschernobyl, Windscale und in der Nähe von Mayak. Eine gute Übersicht liefert die Weltkarte in Abbildung 1.16. Emissionen von Kernkraftwerken und Wiederaufbereitungsanlagen spielen im Vergleich keine Rolle und können höchstens, wie am Beispiel der Nordsee gezeigt, als Umweltracer eingesetzt werden.
2. Die ausschließlich durch die oberirdische Kernwaffentests beeinflussten Böden, wie die in **Niedersachsen** und der Umgebung von Zhitomir in der Ukraine gemessenen, weisen in den oberen Schichten **1-4 Bq kg⁻¹ ^{90}Sr** auf. Die Tiefenverläufe lassen sich über den Wasserhaushalt, die Bodeneigenschaften, den Tonanteil und die Wurzeltiefen erklären. Der Nachweis von ^{90}Sr in Tiefen bis zu 60 cm bestätigt die durchschnittliche **Migrationsgeschwindigkeit von 10 cm pro Dekade**. Der weitere Verlauf der Migration ist jedoch durch das Erreichen von Stau- und Grundwasserbereiche nicht vorhersagbar.
3. Die **Depositionsdichten** liegen in Niedersachsen bei ca. **1000 Bq m⁻²**, was übereinstimmt mit der Abschätzung der Deposition aus der Gesamtmenge der durch Kernwaffentests emittierten ^{90}Sr -Aktivität. Die Depositionsdichten der Zone 3 in der nördlichen Ukraine liegen durch den Einfluss des Reaktorunglücks von Tschernobyl um den **Faktor 3** höher und in der Zone 2 um den **Faktor 30** höher als in Niedersachsen.

4. Aus der Zone 2 wurden für die Dosisabschätzung Lebensmittel aus dem Ort Christinowka untersucht. Dabei weisen besonders Kohl, Kartoffeln und organische Auflagen von Pilzen bzw. Beeren hohe spezifische Aktivitäten auf. Die sich aus den Lebensmitteln und den dazugehörigen Böden resultierenden **Transferfaktoren** sind vergleichbar mit einer Reihe von Literaturwerten. Allerdings **schwanken** diese insgesamt stark und ermöglichen so kaum eine Vorhersage ohne genaue Kenntnisse über die Eigenschaften des Bodens. Es konnte festgestellt werden, dass eine generelle Absenkung des KAK-Wertes, des pH-Wertes, des Calciumgehaltes und des organischen Anteil in einem Boden den Transferfaktor von ^{90}Sr erhöht.
5. Mit den untersuchten Lebensmitteln und Verzehrsgewohnheiten aus der Ukraine lässt sich die zusätzliche jährliche effektive Dosis durch Ingestion von ^{90}Sr durch Modellierung nach AVV auf **0,38 mSv** für einen Erwachsenen abschätzen. Besonders kritisch ist mit über 1 mSv a^{-1} die Dosisleistung für Jugendliche. Der Hauptanteil an der Strahlenexposition liefern die Grundnahrungsmittel **Kartoffeln**, Fleisch und Brot. Das für die Strahlenexposition relevanteste weitere Spaltprodukt ist das ^{137}Cs . Die externe und interne Exposition durch dieses Nuklid wurde von Botsch [Bot99] durch Messungen mit $0,42 \text{ mSv a}^{-1}$ bzw. $0,27 \text{ mSv a}^{-1}$ angegeben. Die Ingestion von ^{137}Cs schwankt stark durch die sehr unterschiedliche Verzehrsmenge von Pilzen einzelner Individuen. Die jährliche **Gesamtexposition** der beiden Radionuklide ^{90}Sr und ^{137}Cs lässt sich somit auf **1 mSv** abschätzen. Dies entspricht zwar etwa der Hälfte der natürlichen jährlichen Dosis allerdings auch gerade dem Grenzwert der Euratom Grundnorm für die zusätzliche erlaubte Dosis für die Bevölkerung bei kerntechnischen Anlagen im Normalbetrieb. Die Anwendung dieses Grenzwertes würde bedingen, dass eine mögliche legale **Wiederbesiedlung der Zone 2 nicht empfohlen werden kann**. Die Frage, ob auch nach Unfallsituationen dieser Grenzwert mit Berücksichtigung sozialer, ökonomischer und anderer Faktoren sinnvoll ist, kann in dieser Arbeit nicht entschieden werden. Die Lebenszeitfolgedosis für einen Erwachsenen kann zu ca. 25 mSv angenommen werden. Durch extreme Lebensweisen sind hier jedoch bis zu 500 mSv für Einzelpersonen denkbar.
6. Die in Grenzwertbetrachtung nicht integrierte Verteilung der Dosisabschätzung wurde in dieser Arbeit für die Ingestion von ^{90}Sr durchgeführt und bewirkt durch eine gefundene **logarithmische Normalverteilung** mit einer Standardabweichung von 1,8 einen **Erwartungswert von $0,6 \text{ mSv a}^{-1}$** . Die Betrachtung der Verteilung zeigt, dass eine

Einbeziehung von Verteilungen grundsätzlich sinnvoll und notwendig ist, da sonst bei Angabe eines Punktschätzers trotzdem ein großer Teil der Bevölkerung eine deutlich höhere Strahlenexposition erhalten könnte. Der Nachteil einer gesetzlich geforderten Untersuchung von Verteilungen wäre in vielen Bereichen jedoch ein höherer Messaufwand durch steigende Probenzahlen.

7. Aggregierte Transferfaktoren lassen für die Zone 3 absehen, dass eine Strahlenexposition durch ^{137}Cs und ^{90}Sr die genannte Grenze von 1 mSv a^{-1} nicht annähernd erreicht. Für **Zone 1** dagegen ist abzuschätzen, dass **auch in einigen Jahrzehnten** ohne Änderung der Grenzwerte **keine offizielle Wiederbesiedlung** stattfinden kann.
8. **Die Bewertungen zeigten, dass eine Einbeziehung der Strahlenexposition von ^{90}Sr in die Diskussion der Wiederbesiedlung auch in Zukunft unbedingt erforderlich ist.**

8 Ausblick

In Hinsicht auf zukünftige Untersuchung des ^{90}Sr in verschiedenen Umweltproben sollte versucht werden, den sehr teuren Kronenether Sr-Resin durch andere Säulenmaterialien zu ersetzen. Die in Kapitel 4.5 erwähnten Materialien Clinoptilolit und Zeolith 4A weisen gute Adsorptionsfähigkeiten für Strontium auf und sind evtl. durch Veränderung der Korngröße und dem Einsatz von Druck zur Erhöhung der Elutionsgeschwindigkeit einsetzbar.

Das ^{90}Sr hat bei den meisten in dieser Arbeit untersuchten Proben mittlerweile den Stau- und Grundwasserbereich erreicht. Die Migrationsgeschwindigkeit in diesem Bereich ist noch ungeklärt und für Fragestellungen bezüglich der weiteren Verfügbarkeit von Pflanzenwurzeln und des Erreichens von Grundwasser in den kommenden Jahren zu klären.

Die große Vielfalt der in dieser Arbeit untersuchten Proben bewirkte, dass von den meisten Lebensmitteln nur ein oder zwei Messungen durchgeführt werden konnten. Die große Schwankungsbreite der Transferfaktoren, die in verschiedener Literatur gefunden wurde, lässt bereits vermuten, dass die Verteilung von Aktivitäten in Lebensmitteln ebenfalls stark schwankt. Zur Bestimmung des Erwartungswertes wäre es somit erforderlich, mehr Proben eines Lebensmittels zu untersuchen. Hiermit könnte auch die konservative Annahme einer geometrischen Standardabweichung von 2 der angenommenen logarithmischen Normalverteilung besser abgeschätzt werden. Betrachtet man die Verteilungen genauer, ist es auch erforderlich, den als Punktgröße angenommenen Ingestionsdosiskoeffizienten bezüglich des Nuklids ^{90}Sr auf eine Verteilung hin zu prüfen.

Um auch die Strahlenexposition der Altersgruppe <1 Jahr zu ermitteln, müsste die spezifische Aktivität in Muttermilch gemessen werden.

Die berechneten Strahlenexpositionen dieser Arbeit wurden für das Dorf Christinowka durchgeführt, welches beispielhaft für die Zone 2 steht. Ob dies wirklich repräsentativ ist, wäre

durch Bestimmung weiterer Depositionsdichten von Ortschaften der Zone 2 zu überprüfen. Um die Abschätzung der Strahlenexposition für die Zone 2 zu verfeinern ist es des weiteren erforderlich, die in Kapitel 6.5.4 aufgelisteten α -Strahler in die Berechnungen zu integrieren.

Die ermittelte Strahlenexposition durch ^{90}Sr kann überprüft werden, indem der ^{90}Sr -Gehalt in menschlichen Knochen von Verstorbenen gemessen wird und über die Dosiskorrelationsfaktoren für Knochen die Ganzkörperexposition abgeschätzt wird. Diese Probenart stand für diese Arbeit nicht zur Verfügung.

In der Frage der Wiederbesiedlung der Zone 2 ist der Grenzwert der Euratom Grundnorm bzw. des ukrainischen Gesetzes von 1 mSv a^{-1} herangezogen worden. Eine Mehrheit der bereits heute illegal in die Zone 2 zurückkehrenden Menschen sind weit über 20 Jahre alt und erhalten damit nicht mehr die dem Grenzwert zugrunde liegende Folgedosis. Hier wäre evtl. eine altersabhängige Erlaubnis der Wiederbesiedlung möglich, aus soziale Gründen jedoch kaum vorstellbar. Sollte dennoch aus radiologischer Sicht in der Zukunft eine Wiederbesiedlung möglich sein, wird zudem eine Abschätzung der sozialen und ökonomischen Folgen für die Zurückkehrenden erforderlich sein.

A Tabellen

Tabelle A.1: Jährliche Emissionen des ^{90}Sr und ^{137}Cs von La Hague und Sellafield

	La Hague			Sellafield		
	^{90}Sr	^{137}Cs	Sr/Cs	^{90}Sr	^{137}Cs	Sr/Cs
	TBq a ⁻¹	TBq a ⁻¹		TBq a ⁻¹	TBq a ⁻¹	
1966	1,1	7,3	0,15	34	180	0,19
1967	0,4	16,4	0,03	52	150	0,35
1968	1,4	28,4	0,05	50	370	0,14
1969	0,7	20,2	0,03	110	440	0,25
1970	2,0	89,1	0,02	230	1200	0,19
1971	8,3	243,0	0,03	460	1300	0,35
1972	16,1	32,9	0,49	560	1300	0,43
1973	18,9	69,3	0,27	280	770	0,36
1974	52,0	56,0	0,93	390	4100	0,10
1975	37,6	34,5	1,09	470	5200	0,09
1976	20,0	34,7	0,57	380	4300	0,09
1977	36,4	50,8	0,72	427	4480	0,10
1978	70,0	39,1	1,79	597	4090	0,15
1979	56,0	22,5	2,49	250	2600	0,10
1980	29,5	26,8	1,10	352	3000	0,12
1981	27,1	38,5	0,70	280	2400	0,12
1982	86,0	50,5	1,70	319	2000	0,16
1983	141,5	23,0	6,15	204	1200	0,17
1984	109,5	29,8	3,67	72	434	0,17
1985	47,0	29,4	1,60	52	325	0,16
1986	68,5	9,6	7,14	18,3	17,9	1,02
1987	57,0	7,6	7,50	15,0	11,8	1,27
1988	39,5	8,5	4,66	10,1	13,3	0,76
1989	28,5	12,6	2,26	9,2	28,6	0,32
1990	15,8	12,5	1,26	4,2	23,5	0,18
1991	29,8	5,6	5,32	4,1	15,6	0,26
1992	17,5	3,0	5,91	4,2	15,3	0,27
1993	24,7	4,4	5,64	17,1	21,9	0,78
1994	15,7	10,5	1,49	28,9	13,8	2,09
1995	14,8	4,6	3,20	28	12,0	2,33
1996	5,3	2,4	2,20	16	10,0	1,60
1997	0,9	2,5	0,38	37	7,9	4,68
1998	2,5	2,5	1,00	18	7,5	2,35
1999	0,8	1,3	0,66	31	9,1	3,42
2000	0,5	0,9	0,60	20	6,9	2,90
2001				26	9,6	2,72

Tabelle A.2: Bodenkundliche Daten des Bodens aus Eilenriede

Proben- tiefe	Horizontbezeichnung		Textur	Merkmale	Sand %	Schluff %	Ton %	Schütt- dichte g cm ⁻²	⁹⁰ Sr Bq kg ⁻¹	rel. Unsicherheit Bq kg ⁻¹	NWG Bq kg ⁻¹
	cm										
+1	L	n.FAO Oi	Blattstreu								
+1	Of	Oa									
0-10	Aeh	Ah	grob sandiger Mittelsand	sehr schwach kiesig und steinig, braungrau, mittel humos, mittlere Lagerungsdichte	97,7			1,5	1,27	0,072	0,32
10-20	Aeh		mittel lehmiger Sand, sehr	braungrau, mittel humos, mittlere Lagerungsdichte	76,1	13,4	10,5	1,4	1,10	0,068	0,43
20-30	Ah-Go		schwach kiesig und steinig	gelbbraun, sehr schwach humos, sehr schwach eisenfleckig, mittlere Lagerungsdichte	80,3	12	7,7	1,4	0,68	0,066	0,36
30-40		B1						1,4	3,55	0,068	0,37
40-50	Go-Sw			graugelb, schwach eisenfleckig, mittlere Lagerungsdichte	83,8	8,8	7,4	1,4	0,36	0,069	0,33
50-70	Go Swd	B2	grob sandiger Mittelsand	marmoriert, mittel eisenfleckig, hohe Lagerungsdichte	97,4			1,3	<NWG		0,31
70-100								1,3	<NWG		0,35
100- 150	Gro		sandig toniger Lehm	sehr schwach kiesig und steinig, grau, schwach eisenfleckig, mittlere Lagerungsdichte	72,8	14	13,3	1,1	<NWG		n.b.

Tabelle A.3: Bodenkundliche Daten des Bodens aus Twenenge

Proben- tiefe cm	Horizontbezeichnung		Textur	Merkmale	Sand %	Schluff %	Ton %	Schüttdichte g cm ⁻²	⁹⁰ Sr Bq kg ⁻¹	rel. Unsicherheit Bq kg ⁻¹	NWG Bq kg ⁻¹
	n.FAO	Ap									
0-15	Ap	Ap	Feinsand mittel sandig	schwarzbraun, mittel humos, geringe Lagerungsdichte, Kohärenzgefüge Schwarzbraun, humos, geringe Lagerungsdichte, Kohärenzgefüge, Holzkohle und Ziegelbrocken	88,7	6,0	5,3	1,4	0,79	0,073	0,32
								1,4	0,75	0,075	0,37
15-30								1,3	0,76	0,081	0,45
30-40											
40-50	E	E			86,2	8,7	5,1	1,3	0,45	0,077	0,39
50-60	fAe	Bh (Abh)	Mittelsand feinsandig	dunkelrostfarbenbraun, schwach humos, mittlere Lagerungsdichte				1,4	<NWG	0,085	0,48
60-75	Bs/Bhs			rostbraunfarben, mittlere Lagerungsdichte	89,1	5,9	4,1	1,3	<NWG	n.b.	n.b.
75-100	BS Go	B1	Mittelsand	gelbgrau, schwach eisenfleckig, mittlere Lagerungsdichte	91	4,9	4,1	1,5	n.b.	n.b.	n.b.
100-125	Go	Bc2	Mittelsand grob-sandig	In Linsen Schluff sandig, gelbgrau, in Linsen grau, schwach eisenfleckig, mittlere Lagerungsdichte	95,3	3,0	1,7	1,7	n.b.	n.b.	n.b.
125-150			Mittelsand	schwach kiesig, gelbgrau, schwach eisenfleckig, mittlere Lagerungsdichte	99,5	0,5	0	1,8	n.b.	n.b.	n.b.

Tabelle A.4: Bodenkundliche Daten des Bodens aus Adenstedt

Proben-tiefe	Horizontbezeichnung		Textur	Merkmale	Sand	Schluff	Ton	Schütt-dichte	⁹⁰ Sr	rel. Unsicherheit	NWG
	cm	n.FAO									
0-15	Axp	Ahp	stark toniger Schluff	dunkelgrau, mittel humos, geringe Lagerungsdichte	6,8	75,9	17,3	1,2	1,85	0,071	0,36
15-30											
30-40	Axh			grau, mittlere Lagerungsdichte	5,4	77,7	16,9	1,3	1,48	0,070	0,64
40-50	Sw	B1	mittel toniger Schluff, gelblichgrau, marmoriert mit okker, schwach eisenfleckig	gelblichgrau, durchsetzt mit schwarz, mittel eisenfleckig, mittlere Lagerungsdichte	3,6	75,8	20,6	1,2	0,18	0,073	0,18
50-75											
75-100	Sw			fein geschichtet, Eisenausfällung an Wurzelröhren, mittel carbonathaltig, mittlere Lagerungsdichte	3	77	20	1,2	<NWG	n.b.	n.b.
100-150	fGo+IC kc-Sw / fGo+ lcc	Br2/Cr		grau, mittlere Lagerungsdichte	4	84	12	1,2	n.b.	n.b.	n.b.
150-200	fGo+ lcv-Sw	Cr		zum Teil Eisenfällungen an Wurzelröhren, mittel	8,1	82,7	9,2	1,3	n.b.	n.b.	n.b.
200-250	fGo+ lcv-Sd		schwach lehmiger Sand	zum Teil Mittelsand bis mittel schluffiger Ton, unten zunehmend, schwach schluffiger Ton, hellgrau, sehr schwach carbonathaltig	45,7	41,1	13,2	1,4	n.b.	n.b.	n.b.

Tabelle A.5: Bodenkundliche Daten des Bodens aus Ricklingen

Proben- tiefe cm	Horizontbezeichnung		Textur	Merkmale	Sand %	Schluff %	Ton %	Schütt- dichte g cm ⁻²	⁹⁰ Sr Bq kg ⁻¹	rel. Unsicherheit Bq kg ⁻¹	NWG Bq kg ⁻¹
	n.FAO	Ap1									
0-5	RAP +	Ah	schluffig- lehmiger Sand	dunkelbraun, mittel humos, mittlere Lagerungsschicht	42,9	46,8	10,3	1,3	1,01	0,075	0,57
5-10								1,3	0,97	0,075	0,59
10-15								1,3	0,65	0,075	0,62
15-20								1,2	0,95	0,077	0,78
20-25								1,3	<NWG	0,081	0,86
25-33					1,3	<NWG	n.b.	n.b.			
33-60	AI	At2	sandiger lehmiger Schluff	fahlbraun, sehr schwach humos, mittlere Lagerungsschicht	34,2	56,2	9,6	1,4	n.b.	n.b.	n.b.
60-85	IIsw- Bt	Bt1	mittel schluffiger Sand	in Nestern stark lehmiger Sand, bräunlichgrau, schwach eisenfleckig, mittlere Lagerungsschicht	58,7	32,9	8,4	1,3	n.b.	n.b.	n.b.
85-120	Sw	B2	schwach lehmiger Sand	zum Teil Mittelsand grobsandig, bräunlichgrau, schwach eisenfleckig, mittlere Lagerungsschicht	81,5	13,4	5,1	1,4	n.b.	n.b.	n.b.
120-170	Sw Sd	B3	Mittelsand grobsandig	bis 150 cm schwach kiesig, braungrau, geringe Lagerungsschicht; bis 170 cm sandig toniger Lehm, schwach kiesig, zum Teil stark lehmiger Sand und schwach toniger Lehm, gelbbraun, hohe Lagerungsschicht	98,3/45,2	1,7/19,4	0/35,4	1,4	n.b.	n.b.	n.b.

Tabelle A.6: Bodenkundliche Daten des Bodens aus Vestrup

Proben- tiefe	Horizontbezeichnung		Textur	Merkmale	Sand	Schluff	Ton	Schütt- dichte	⁹⁰ Sr	rel. Unsicherheit	NWG
	n.FAO										
cm		n.FAO									
0-15	rAep+ Aeh	Ahp	Sand schwach schluffig, sehr schwach	rötlichdunkelbraungrau, stark humos, geringe Lagerungsdichte, sehr schwach ausgeprägtes Krümelgefüge, rötlichschwarz, mittel humos, stark eisenfleckig, mittlere Lagerungsdichte, schwach ausgeprägtes Kittgefüge	81,2	13,9	4,9	1,2	2,8	0,070	0,36
15-27	Bsh	Bhs			83	12,8	3,9	1,2	2,15	0,063	0,33
27-36	Bhs		Sand schwach schluffig, schwach kiesig	Rotfarbenbraun, mittel eisenfleckig, mittlerer Lagerungsdichte, schwach ausgeprägtes Kittgefüge, hellrotfarbenbraun, schwach eisenfleckig, mittlere Lagerungsdichte, Einzelkorn-, zum Teil Kohärenzgefüge; bis 45 cm Sand mittel lehmig, bräunlichhellgrau, zum Teil beige, mittlere Lagerungsdichte, Einzelkorn-, zum Teil Kohärenzgefüge	82,3	13,9	3,8	1,4	0,75	0,071	0,17
36-50	Bs Sw	Bs			77,4	18,5	4,1	1,5	0,9	0,102	0,85
50-75	Sw	Bcr	Sand stark lehmig, sehr schwach kiesig und steinig	grünlichhellgrau, schwach eisenfleckig, mittlerer Lagerungsdichte, grünlichhellgrau, stark eisenfleckig, hohe Lagerungsdichte, Kluftfüllung aus Sand schwach schluffig, Kohärenzgefüge	70,4	12,6	17	1,5	<NWG		n.b.
75-100	Sw							1,4	<NWG		n.b.
100-140	Go-Sd Go		Linsen aus Feinsand schwach schluffig, grünlichhellgrau, mittel eisenfleckig, mittlere Lagerungsdichte		72,2	12	15,8	1,6	<NWG		n.b.
140-180	Go				74,2	10,8	15	1,5	n.b.	n.b.	n.b.
160-180	Gro				71,4	15,6	13	1,5	n.b.	n.b.	n.b.

Tabelle A.7: Bodenkundliche Daten des Bodens aus Groß Lobke

Proben- tiefe cm	Horizontbezeichnung		Textur	Merkmale	Sand %	Schluff %	Ton %	Schutt-dichte g cm ⁻³	ρ ₉₀ kg kg ⁻¹	rel. Unsicherheit Bq kg ⁻¹	NWG Bq kg ⁻¹
	n.FAO	Ahp									
0-15	Alp	Ahp	Sandiger lehmiger Schluff	dunkelbraungrau, schwach humos, geringe Lagerungsdichte	32,3	54,5	13,2	1,3	2,02	0,072	0,52
15-30								1,2	1,05	0,073	0,33
30-40	Axh-AI				31,5	55,1	13,5	1,2	1,07	0,065	0,33
40-50	Sw- Axh- Bht		Schluffig lehmiger Sand	zum Teil schwach schluffiger Sand, schmutzig braun, sehr schwach humos, sehr schwach eisen- und manganfleckig, Konkretionen, mittlere Lagerungsdichte	35,3	49,6	15	1,3	1,63	0,086	0,49
50-70	Sw-Bht	Bht1						1,5	0,35	0,076	0,34
70-90	Sw-Bht		schwach toniger Schluff	mit 2 cm starken Lagen aus stark lehmigem Mittelsand, grau ockermarmoriert, zum Teil schwarz, sehr schwach humos, mittel eisenfleckig, wechsellegend mit schwach tonigem Mittelsand, grau dunkelockermarmoriert, mittel eisenfleckig, mittlere Lagerungsdichte	69,4	17,8	12,7	1,3	<NWG	0,083	0,35
90-105								1,4	n.b.	n.b.	n.b.
105-130					18,1	70,1	11,7	1,2	n.b.	n.b.	n.b.
130-150	Sw- Bhtv	Bt2			65,7	25,4	9	1,3	n.b.	n.b.	n.b.

Tabelle A.8: Horizontabkürzungen [Sch84]

Bodenlagen	
Organische Lagen	
L	Streu, weitgehend (über 90 %) unzersetztes org. Ausgangsmaterial (engl. Litter)
O	Organischer Horizont, dem Mineralboden aufliegend (n. FAO > 35 % org. S.)
Mineralische Lagen	
A	Mineralhorizont im Oberboden mit akkumuliertem Humus und/oder an Mineral(stoff)en verarmt
E	Eluvialhorizont, gegenüber A durch Auswaschen an Huminstoffen, Ton bzw. Fe, Mn verarmt
B	Mineralhorizont im Unterboden mit verändertem Mineralbestand durch Einlagerung aus Oberboden und/oder Verwitterung in situ (m. unter 75 Vol.-% Festgesteinsresten und Farbänderung gegenüber Ausgangsgestein)
G	Mineralhorizont im Grundwasserbereich mit redoximorphen Merkmalen
C	Lockergestein mit grabbarer Feinerde [monomineralische Härte unter 2 (z.B.Kalk), sonst m Calgon in 15 h dispergierbar]
Vorangestellte Kleinbuchstaben zur näheren Charakterisierung des Gesteins	
f	fossiler Horizont
r	reliktischer Horizont
II, III	Gesteinsschichten, aus denen die darüber liegenden Bodenhorizonte nicht entstanden (z.B. A-IIB)
Horizontmerkmale	
f	fermentiert: m. vielen (30-9 % d. org. S.) zerkleinert, geschwärzten Pflanzenresten (Verwendung als Of, Hf)
h	huminstoffakkumuliert: und zwar mit über 0,6 (b. Sanden), 0,9 (b. Lehmen) bzw. 1,2 (b. Tonen) Gew.-% humifizierter org. Substanz und als Bh m. Quotienten aus pyrophosphatlösl. C und Fe von über 10, oder als Oh bzw. Hh m. über 70% d. org. S. Feinhumus
r	reduziert: überwiegend anaerobe Verhältnisse (an über 300 Tagen rH-Wert unter/gleich 19) und Reduktionsfarben (über 95 Vol-% Munsell-Farbtone N oder blauer 5Y); Verwendung als Gr, Br (z.B. neben Mülldeponien), Cr
o	oxidiert: rostfleckiger (bes. Aggregatoberflächen) bzw kalkfleckiger Horizont über Grundwasser gelegen (oder drainiert)
s	sesquioxidakkumuliert: durch Fe-Anreicherung Munsell-Farbtone mindestens 1 Stufe roter als benachbarte Horizonte und als Bs m. Quotienten aus pyrophosphatlösl. C und Fe von unter 3 oder Gso m. mindestens 2 cm großen FeMn-Konkretionen oder 1 cm dicken Schwarten mit jeweils über 10% Flächenanteil
e	sauergebleicht: an FeMn durch Podsolierung verarmt (Munsell-Farbwert >4, Farbwert: Farbtiefe >2,5), d.h. über Bh bzw. Bs gelegen (u. mit diesen diagn. H. d. Podsole)
Sw	nassgebleicht (Munsell-Farbwert

Tabelle A.9: Altersabhängige Verzehrsmengen nach StrISchV mit 95%-Perzentil (Spalte 8)

1	2	3	4	5	6	7	8
Altersgruppe Lebensmittel	<= 1 Jahr	1-2 Jahre	2-7 Jahre	7-12 Jahre	12-17 Jahre	> 17 Jahre	
Trinkwasser	553)	100	100	150	200	350	2
Muttermilch, Milchprodukte, Trinkw.	1453,4)	-	-	-	-	-	3
Milch, Milchprodukte	45	160	160	170	170	130	3
Fisch5	0,5	3	3	4,5	5	7,5	5
Fleisch, Wurst, Eier	5	13	50	65	80	90	2
Getreide, Getreideprodukte	12	30	80	95	110	110	2
einheim. Obst, Obstprodukte, Säfte	25	45	65	65	60	35	3
Kartoffeln, Wurzelgemüse, Säfte	30	40	45	55	55	55	3
Blattgemüse	3	6	7	9	11	13	3
Gemüse, Gemüseprodukte, Säfte	5	17	30	35	35	40	3

3) Mengenangabe in [L a⁻¹]. Zur jährlichen Trinkwassermenge des Säuglings von 55 [L a⁻¹], wenn angenommen wird, dass der Säugling nicht gestillt wird, sondern nur Milchfertigprodukte erhält, die überregional erzeugt werden und als nicht kontaminiert anzusetzen sind. Dabei wird angenommen, dass 0,2 kg Konzentrat (entspricht 1 L Milch) in 0,8 L Wasser aufgelöst werden.

4) Je nach Nuklidzusammensetzung ist die ungünstigste Ernährungsvariante zugrunde zu legen.

5) Der Anteil an Süßwasserfisch am Gesamtfischverzehr beträgt im Mittel ca. 17 % und ist den regionalen Besonderheiten anzupassen.

Tabelle A.10: Niedersächsische Tiefenprofile

Probenummer	Masse Asche [kg]	Aktivität [Bq kg ⁻¹]	u(x) rel.	EKG [Bq]	NWG [Bq kg ⁻¹]
G. Lobke 0-15	0,1	2,01	0,072	0,004	0,515
G. Lobke 15-30	0,1	1,05	0,073	0,004	0,330
G. Lobke 30-40	0,1	1,07	0,065	0,004	0,333
G. Lobke 40-50	0,1	1,63	0,086	0,004	0,494
G. Lobke 50-70	0,1	0,35	0,076	0,004	0,343
Ricklingen 0-5	0,1	1,01	0,075	0,004	0,573
Ricklingen 5-10	0,1	0,97	0,075	0,004	0,597
Ricklingen 10-15	0,1	0,65	0,075	0,004	0,619
Ricklingen 15-20	0,1	0,95	0,077	0,004	0,781
Ricklingen 20-25	0,1	0,00	0,076	0,004	k.A.
Twenge 0-15	0,1	0,79	0,073	0,004	0,323
Twenge 15-30	0,1	0,75	0,075	0,004	0,366
Twenge 30-40	0,1	0,76	0,081	0,004	0,451
Twenge 40-50	0,1	0,45	0,077	0,004	0,387
Adenstedt 0-15	0,1	1,85	0,071	0,004	0,358
Adenstedt 15-30	0,1	1,34	0,069	0,006	0,455
Adenstedt 30-40	0,10006	1,48	0,070	0,006	0,644
Adenstedt 40-50	0,09186	0,18	0,073	0,006	0,177
Adenstedt 50-75	0,01004	0,00	0,075	0,006	k.A.
Barum-Mischprobe	0,1	1,08	0,073	0,004	0,361
Eilenriede 0-15	0,1	1,26	0,072	0,004	0,323
Eilenriede 15-20	0,09013	1,10	0,068	0,007	0,433
Eilenriede 20-30	0,0904	0,68	0,066	0,007	0,360
Eilenriede 30-40	0,09	3,55	0,068	0,007	0,372
Eilenriede 40-50	0,085	0,36	0,069	0,007	0,334
Vestrup 0-15	0,1	2,80	0,070	0,004	0,361
Vestrup 16-25	0,06323	2,15	0,063	0,005	0,326
Vestrup 26-36	0,10014	0,75	0,071	0,005	0,167
Vestrup 3750	0,1	0,90	0,102	0,005	0,845
Vestrup 5075	0,10003	0,00	0,126	0,005	k.A.
Vestrup 75100	0,10017	0,00	0,150	0,005	k.A.
Vestrup 100140	0,09988	0,00	0,082	0,005	k.A.

Tabelle A.11: Ukrainische Tiefenprofile (Zone 3 und Korostenregion)

Probenummer	Masse Asche [g]	Aktivität [Bq⁻¹]	u(x) rel.	EKG [Bq]	NWG [Bq⁻¹]
Lewkow Humus	15,00	4,7	0,077	0,004	1,580
Lewkow 0-1	15,00	4,0	0,078	0,004	k.A.
Lewkow 1-2	15,10	3,5	0,079	0,004	2,085
Lewkow 2-3	15,00	4,4	0,076	0,004	1,811
Lewkow 3-5	15,10	4,0	0,077	0,004	2,379
Lewkow 5-10	15,30	5,7	0,074	0,004	1,914
Lewkow 10-15	10,03	6,1	0,086	0,004	3,291
Lewkow 15-20	10,02	0,0	0,080	0,004	k.A.
Lewkow 20-25	10,02	1,6	0,078	0,004	1,567
Lewkow 25-40	10,00	0,0	0,152	0,004	k.A.
Ku-Tsch Humus	10,07	33,9	0,075	0,004	3,422
Ku-Tsch 0-1	10,71	24,2	0,074	0,004	2,716
Ku-Tsch 1-2	10,10	30,2	0,075	0,004	2,810
Ku-Tsch 2-3	15,10	26,7	0,072	0,004	1,969
Ku-Tsch 3-5	15,50	31,1	0,073	0,004	1,988
Ku-Tsch 5-10	15,30	16,8	0,074	0,004	2,242
Ku-Tsch 10-15	55,80	4,9	0,104	0,004	0,696
Ku-Tsch 15-20	56,76	1,2	0,076	0,004	0,488
Ku-Tsch 20-25	57,40	0,4	0,079	0,004	0,353
Ku-Tsch 25-40	100,02	0,2	0,083	0,004	0,226
Woro Humus	10,00	108,1	0,070	0,004	2,981
Woro 0-1	10,47	38,7	0,071	0,004	1,989
Woro 1-2	15,26	41,7	0,084	0,004	3,444
Woro 2-3	15,18	27,3	0,138	0,004	4,062
Woro 3-5	15,23	12,7	0,127	0,004	2,752
Woro 5-10	100,05	7,8	0,089	0,004	0,823
Woro 10-15	100,00	2,5	0,075	0,004	0,343
Woro 15-20	100,00	0,8	0,079	0,004	0,302
Woro 20-25	100,23	0,5	0,076	0,004	0,207
Woro 25-40	100,06	-0,3	0,144	0,004	3,239

Tabelle A.12: Ukrainische Tiefenprofile, Teil 2 (Zone 3 und Korostenregion)

Probenummer	Masse Asche [g]	Aktivität [Bq ⁻¹]	u(x) rel.	EKG [Bq]	NWG [Bq ⁻¹]
Tschi Humus	10,00	105,9	0,079	0,006	7,608
Tschi 0-1	10,00	31,7	0,071	0,005	1,536
Tschi 1-2	20,65	10,2	0,083	0,005	1,874
Tschi 2-3	15,53	6,0	0,079	0,005	1,627
Tschi 3-5	15,21	8,0	0,082	0,005	2,207
Tschi 5-10	100,07	4,6	0,075	0,005	0,425
Tschi 10-15	100,02	3,2	0,079	0,004	0,395
Tschi 15-20	99,97	2,0	0,073	0,004	0,212
Tschi 20-25	100,02	1,4	0,082	0,004	0,428
Tschi 25-40	103,84	0,7	0,074	0,004	0,177

Tabelle A.13: Ukrainische Tiefenprofile (Zone 2)

Probenummer	Masse Asche [g]	Aktivität [Bq ⁻¹]	u(x) rel.	EKG [Bq]	NWG [Bq ⁻¹]
Christinowka2002-0-2	50,1	20,4	0,069	0,006	0,58
Christinowka2002-2-4	53,4	18,7	0,069	0,006	0,52
Christinowka2002-4-6	49,8	36,1	0,080	0,006	1,87
Christinowka2002-6-10	100,6	25,9	0,069	0,006	0,53
Christinowka2002-10-20	100,6	10,3	0,066	0,006	0,53
Christinowka2002-20-30	100,6	1,3	0,070	0,006	0,28
Christinowka2002-30-42	100,6	0,0	0,078	0,006	k.A.
Christinowka2002-42-52	100,6	0,0	0,077	0,005	k.A.
Christinowka Flußufer Humus	21	332,2	0,069	0,005	5,79
Christinowka Flußufer 0-1	43,2	184,2	0,071	0,005	4,88
Christinowka Flußufer 1-2	90,3	184,7	0,071	0,005	4,91
Christinowka Flußufer 2-3	92,1	157,9	0,136	0,007	26,71
Christinowka Flußufer 3-5	100,6	119,4	0,069	0,005	3,31
Christinowka Flußufer 5-10	88,2	67,1	0,077	0,005	5,34
Christinowka Flußufer 10-15	112,9	39,9	0,066	0,005	0,92
Christinowka Flußufer 15-20	118,2	8,9	0,068	0,005	0,72
Christinowka Flußufer 20-25	100,3	4,5	0,069	0,005	0,61
Christinowka Flußufer 25-40	106,3	5,0	0,067	0,005	0,31

Tabelle A.14: Ukrainische Lebensmittelproben, zugehörige Böden und Knochenproben

Probenummer	Masse Asche [g]	Aktivität [Bq ⁻¹]	u(x) rel.	EKG [Bq]	NWG [Bq ⁻¹]
ZSR 6 Milch	6,1	5,7	0,062	0,008	0,46
ZSR 7 Milch	16	15,7	0,064	0,008	0,82
ZSR 12 Ziegenmilch	5,1	10,7	0,065	0,008	0,81
ZSR 16 Heu	3,3	100,5	0,063	0,009	2,24
ZSR 21 Heu	4,8	49,1	0,062	0,010	1,51
ZSR 25 Schwein, Muskeln	1,9	-0,3	0,077	0,010	0,39
ZSR 29 Schwein, Knochen	84,8	24,8	0,063	0,010	0,49
ZSR 34 Schwein Muskeln	40,16	0,2	0,069	0,006	0,13
ZSR 39 Schwein, Knochen	6,1	7,8	0,063	0,010	0,18
ZSR 61Gras	4,1	29,8	0,060	0,009	2,07
ZSR 62 Gras	4	32,5	0,060	0,009	1,63
ZSR 72 Boden	95,3	92,4	0,066	0,008	1,76
ZSR 80 Boden	95,4	43,7	0,066	0,008	1,04
ZSR 86 Sauerampfer	4,6	100,5	0,063	0,010	4,26
ZSR 96 B. Sauerampfer	99,3	13,9	0,066	0,008	0,70
ZSR 106 Hecht	3,1	0,0	0,072	0,006	0,42
ZSR 109 Schleie	1,8	1,9	0,065	0,006	0,16
ZSR 110 Karpfen	1,8	2,0	0,061	0,006	0,12
ZSR 111 Karausche	3,5	8,2	0,063	0,006	0,64
ZSR 112 Rotfeder	1,8	0,0	0,075	0,006	k.A.
ZSR 113 Barsch	1,55	0,7	0,067	0,006	0,38
ZSR 119 Flussalgen	2,6	0,9	0,069	0,006	0,77
ZSR 124 Flusssand	110,2	0,0	0,072	0,006	k.A.
ZSR 126 Flussschlamm	113,8	4,4	0,067	0,008	0,54
ZSR 132 Milch	7,3	17,5	0,061	0,009	0,42
ZSR 195 Waldhimbeeren	3,1	363,1	0,057	0,009	3,41
ZSR 197 Waldhimbeeren	2,1	129,9	0,062	0,006	1,81
ZSR 199 OA Waldh	7	920,6	0,125	0,008	39,32
ZSR 203 OA Waldh	33,1	136,8	0,062	0,006	2,15
ZSR 204 B Waldh	106,2	39,9	0,059	0,008	0,63
ZSR 207 B Waldh	93,9	24,0	0,061	0,006	1,38
ZSR 210 Haushimbeeren	3,6	106,8	0,061	0,009	1,66
ZSR 211 B Haush	136,5	27,6	0,062	0,010	1,00
ZSR 213 Heidelbeeren	1,4	76,0	0,062	0,006	1,27
ZSR 214 Heidelbeeren	1,5	22,7	0,063	0,009	0,86
ZSR 219 OA Heidelb	5,4	257,5	0,063	0,009	3,82
ZSR 221 OA Heidelb	9,3	959,4	0,092	0,006	22,48
ZSR 225 B Heidelb	92,9	24,9	0,065	0,006	2,13
ZSR 228 B Heidelb	115,4	4,8	0,067	0,006	1,36

Tabelle A.15: Ukrainische Lebensmittelproben, zugehörige Böden und Knochenproben 2

Probenummer	Masse Asche [g]	Aktivität [Bq ⁻¹]	u(x) rel.	EKG [Bq]	NWG [Bq ⁻¹]
ZSR 233 Steinpilze	2,5	25,6	0,063	0,006	7,24
ZSR 240 OA Steinpilze	116,2	8166,0	0,058	0,010	81,64
ZSR 250 B Steinp	116,2	14,1	0,058	0,006	0,36
ZSR 253 Pfifferlinge	5,6	31,9	0,061	0,010	3,20
ZSR 258 OA Pfifferl	17,8	1041,6	0,069	0,010	13,86
ZSR 262 B Pfifferl	88,3	45,5	0,060	0,008	0,74
ZSR 283 Gurken	3,9	9,8	0,100	0,009	7,54
ZSR 288 B Gurken	107,1	31,9	0,066	0,008	0,77
ZSR 294 Tabak	9,1	382,7	0,062	0,006	4,39
ZSR 301 B Tabak	114,2	31,6	0,063	0,006	2,71
ZSR 302 Weizen	1,8	10,7	0,063	0,008	0,78
ZSR 303 Weizen	1,9	28,5	0,064	0,008	0,97
ZSR 307 B Weizen	104,9	43,8	0,068	0,008	0,84
ZSR 310 B Weizen	117,5	30,3	0,059	0,008	0,66
ZSR 312 Roggen	2,1	2,3	0,065	0,010	1,18
ZSR 313 Roggen	1,6	11,5	0,063	0,009	0,70
ZSR 317 B Roggen	107,5	17,9	0,060	0,008	0,79
ZSR 319 B Roggen	97	42,5	0,059	0,008	0,66
ZSR 436 Möhrchen	11,4	115,3	0,062	0,011	1,59
ZSR 437 Möhrchen	11,4	43,3	0,062	0,007	0,67
ZSR 442 Boden Möhrchen	128,9	83,8	0,064	0,010	1,92
ZSR 449 Kohl	6	24,7	0,065	0,007	0,85
ZSR 450 Kohl	6	219,3	0,059	0,011	3,45
ZSR 458 Boden Kohl	114	77,9	0,059	0,011	1,24
ZSR 468 Kartoffeln	11,22	212,4	0,088	0,011	10,98
ZSR 476 Boden Kartoffeln	116,9	75,7	0,062	0,011	1,27
ZSR 484 Rote Beete	13,78	42,2	0,062	0,007	0,68
ZSR 485 Rote Beete	13,78	170,1	0,062	0,011	3,34
ZSR 492 Boden RB	122,2	65,9	0,062	0,011	1,20
ZSR 506 Wildschw. Leber	4,3	0,0	0,093	0,004	k.A.
ZSR 512 Schwein Leber	23,8	0,0	0,095	0,004	k.A.
ZSR 518 Zähne Schwein	84,8	36,4	0,060	0,011	1,56
ZSR 553 Knochen Reh	84,8	192,0	0,058	0,011	2,92
ZSR 554 Zähne Reh	84,8	286,3	0,058	0,011	4,00

Tabelle A.16: Ringversuche 2002 und 2001

Probennummer	Masse Asche [kg]	Aktivität [Bq/kg]	u(x) rel.	EKG [Bq]	NWG [Bq/kg]
Ringversuch 2002					
Modellwasser1	0,49837	0,97	0,070	0,004	0,091
Modellwasser2	0,49819	1,14	0,079	0,004	0,095
Realwasser1	0,49754	0,58	0,183	0,004	0,051
Realwasser2	0,49863	0,59	0,069	0,004	0,051
Ringversuch 2001					
Modellwasser1	0,3843	2,04	0,069	0,004	0,114
Modellwasser2	0,3657	2,56	0,072	0,004	0,118
Realwasser1	0,4944	0,31	0,074	0,004	0,075
Realwasser2	0,483	0,44	0,083	0,000	0,086

Tabelle A.17: IAEA-Standard 375

Probennummer	Masse Asche [kg]	Aktivität [Bq/kg]	u(x) rel.	EKG [Bq]	NWG [Bq/kg]
IAEA-Standard	0,02	80,87	0,062	0,004	4,350
IAEA-Standard 2	0,0203	84,15	0,080	0,004	3,829
IAEA-Standard 3	0,0104	75,67	0,069	0,004	5,781
IAEA-Standard 4	0,0153	78,06	0,073	0,004	4,091
IAEA-Standard 5	0,017	78,07	0,067	0,004	1,636
IAEA-Standard 6	0,01987	74,01	0,081	0,004	3,382
Filß 1*	k.A.	96,00	k.A.	k.A.	k.A.
Filß 2*	k.A.	91,00	k.A.	k.A.	k.A.
Filß 3*	k.A.	101,00	k.A.	k.A.	k.A.
Filß 4*	k.A.	102,00	k.A.	k.A.	k.A.
Filß 5*	k.A.	89,00	k.A.	k.A.	k.A.
Filß 6*	k.A.	97,00	k.A.	k.A.	k.A.

*bezogen auf 31.12.1995

Tabelle A.18: Statistische Daten der ermittelten Verteilung für Zone 1

Zone1		Percentile	Value
Statistic	Value	0%	0,828
Trials	20.000	10%	2,318
Mean	6,184	20%	2,879
Median	4,645	30%	3,42
Mode	—	40%	3,999
Standard Deviation	5,533	50%	4,645
Variance	30,616	60%	5,458
Skewness	4,86	70%	6,53
Kurtosis	47,44	80%	8,186
Coeff. of Variability	0,89	90%	11,37
Range Minimum	0,828	100%	102,864
Range Maximum	102,864	Geo. Mittelw.	4,926
Range Width	102,035	Geo. Stabw.	1,884
Mean Std. Error	0,039	EW	6,02

Tabelle A.19: Statistische Daten der ermittelten Verteilung für Zone 2

Zone2		Percentile	Value
Statistic	Value	0%	0,072
Trials	20.000	10%	0,23
Mean	0,614	20%	0,285
Median	0,464	30%	0,337
Mode	—	40%	0,393
Standard Deviation	0,528	50%	0,459
Variance	0,279	60%	0,541
Skewness	4,28	70%	0,641
Kurtosis	36,91	80%	0,78
Coeff. of Variability	0,86	90%	1,094
Range Minimum	0,057	100%	7,589
Range Maximum	8,72	Geo. Mittelw.	0,492
Range Width	8,663	Geo. Stabw.	1,876
Mean Std. Error	0,004	EW	0,6

Tabelle A.20: Statistische Daten der ermittelten Verteilung für Zone 3

Zone 3		Percentile	Value
Statistic	Value		
		0%	0,02
Trials	20.000	10%	0,077
Mean	0,205	20%	0,096
Median	0,154	30%	0,114
Mode	—	40%	0,133
Standard Deviation	0,183	50%	0,154
Variance	0,034	60%	0,181
Skewness	5,01	70%	0,214
Kurtosis	50,84	80%	0,27
Coeff. of Variability	0,9	90%	0,377
Range Minimum	0,02	100%	3,698
Range Maximum	3,698	Geo. Mittelw.	0,163
Range Width	3,678	Geo. Stabw.	1,878
Mean Std. Error	0,001	EW	0,20

B Grafiken

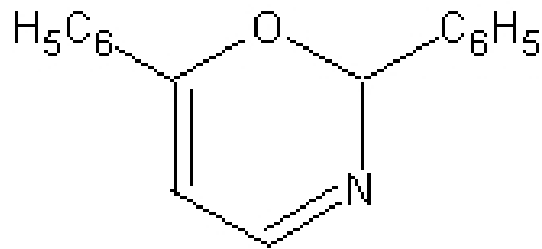


Abbildung B.1: 2,5-Diphenyloxazole (Primärer Szintillator)

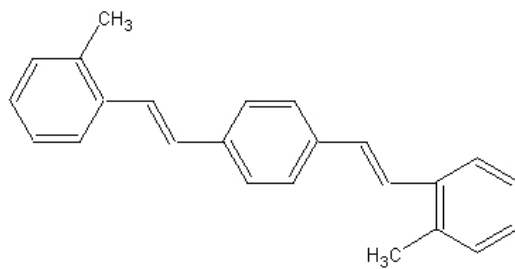


Abbildung B.2: 1,4-Bis(2-methylstyryl)benzene (Sekundärer Szintillator)



Abbildung B.3: (2-(2-Butoxyethoxy)ethanol (Lösungsmittel)

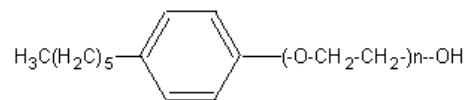


Abbildung B.4: Nonylphenolethoxylat (Lösungsmittel)

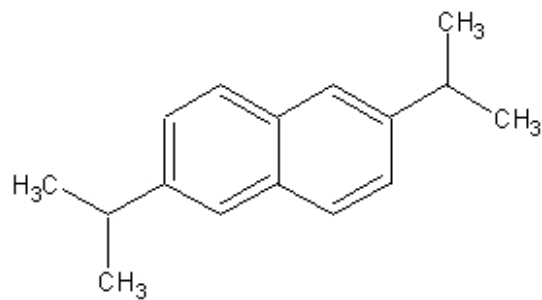


Abbildung B.5: Di-iso-propylnaphthalene (Lösungsmittel)

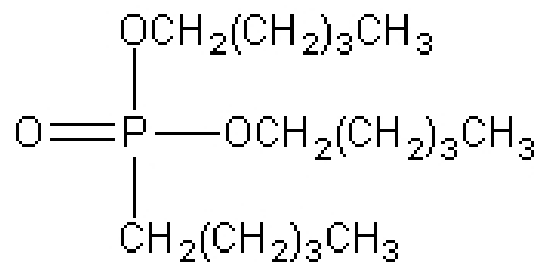


Abbildung B.6: UTEVA-Säulenmaterial:ipentyl, pentylphosphonate (DAAP)

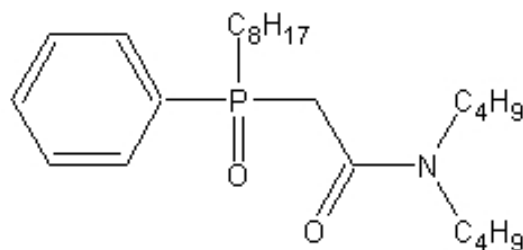


Abbildung B.7: TRU-Säulenmaterial: Octylphenyl-N,N-di-isobutyl carbamoylphosphine oxide in tri-n-butyl phosphate

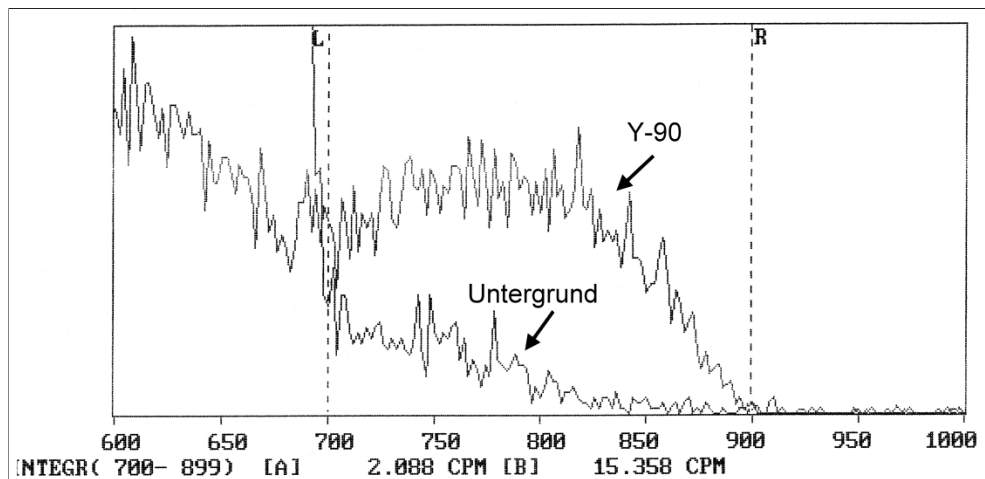
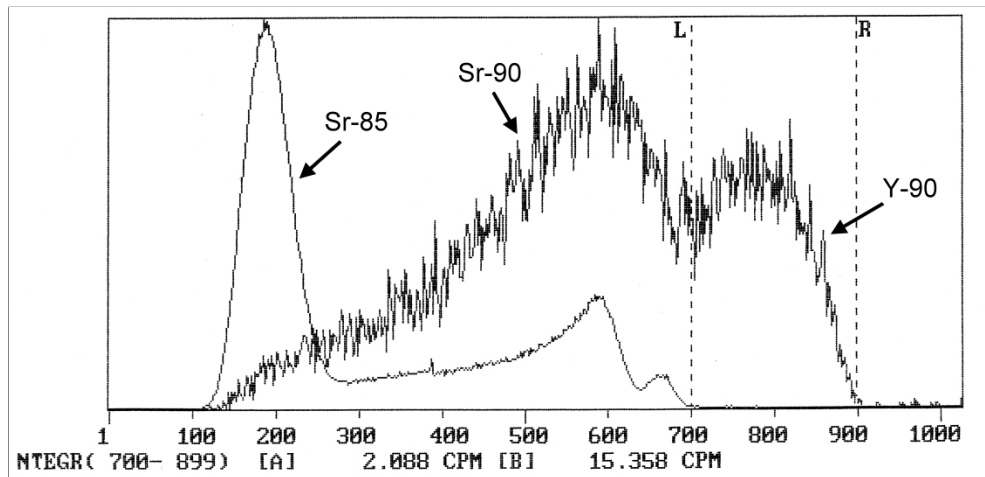


Abbildung B.8: LSC-Spektrum von ^{85}Sr , ^{90}Sr und ^{90}Y (oben) und vom ^{90}Y -überlagertem Untergrund (unten)

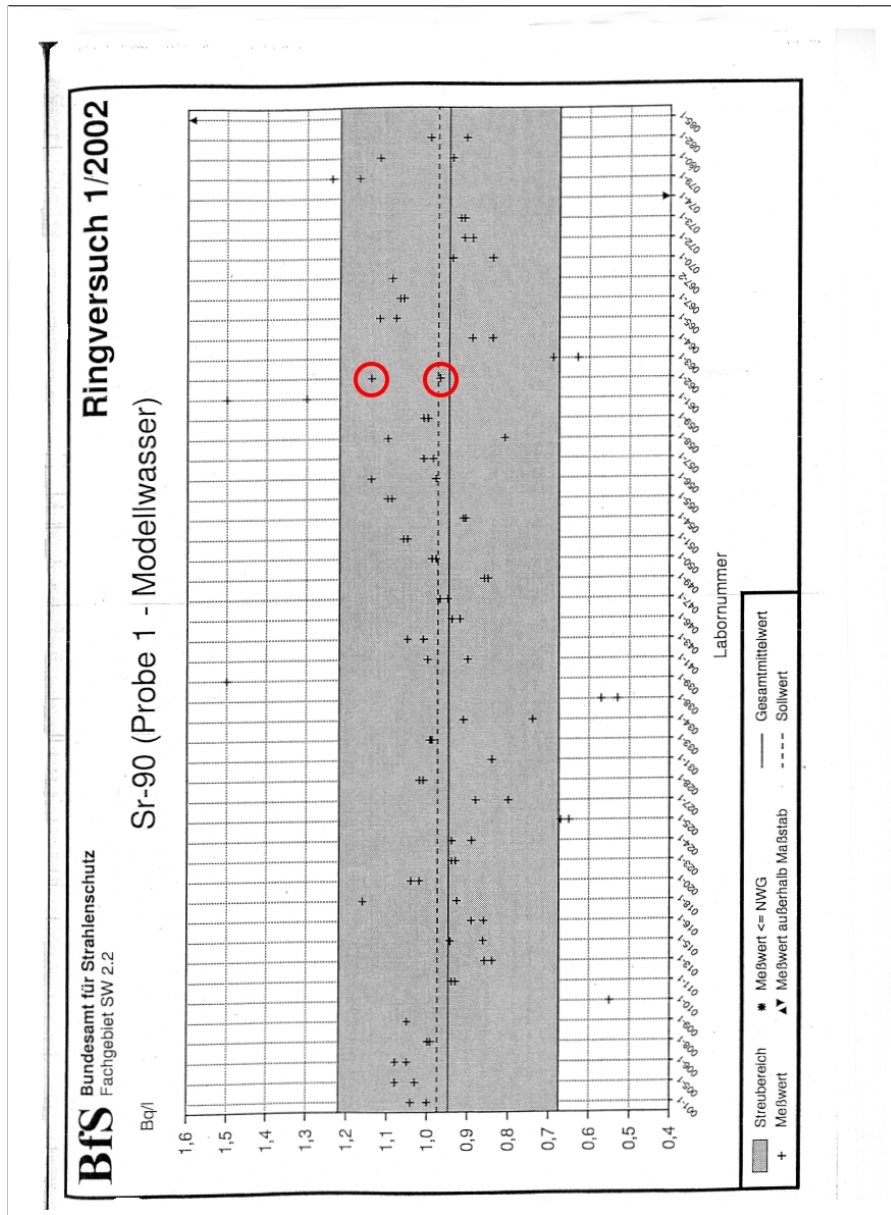


Abbildung B.9: Ringversuch 2002; Modellwasser; ^{90}Sr -Messung; Vergleich aller Messergebnisse (Bereich entspricht $2 \cdot \sigma$)

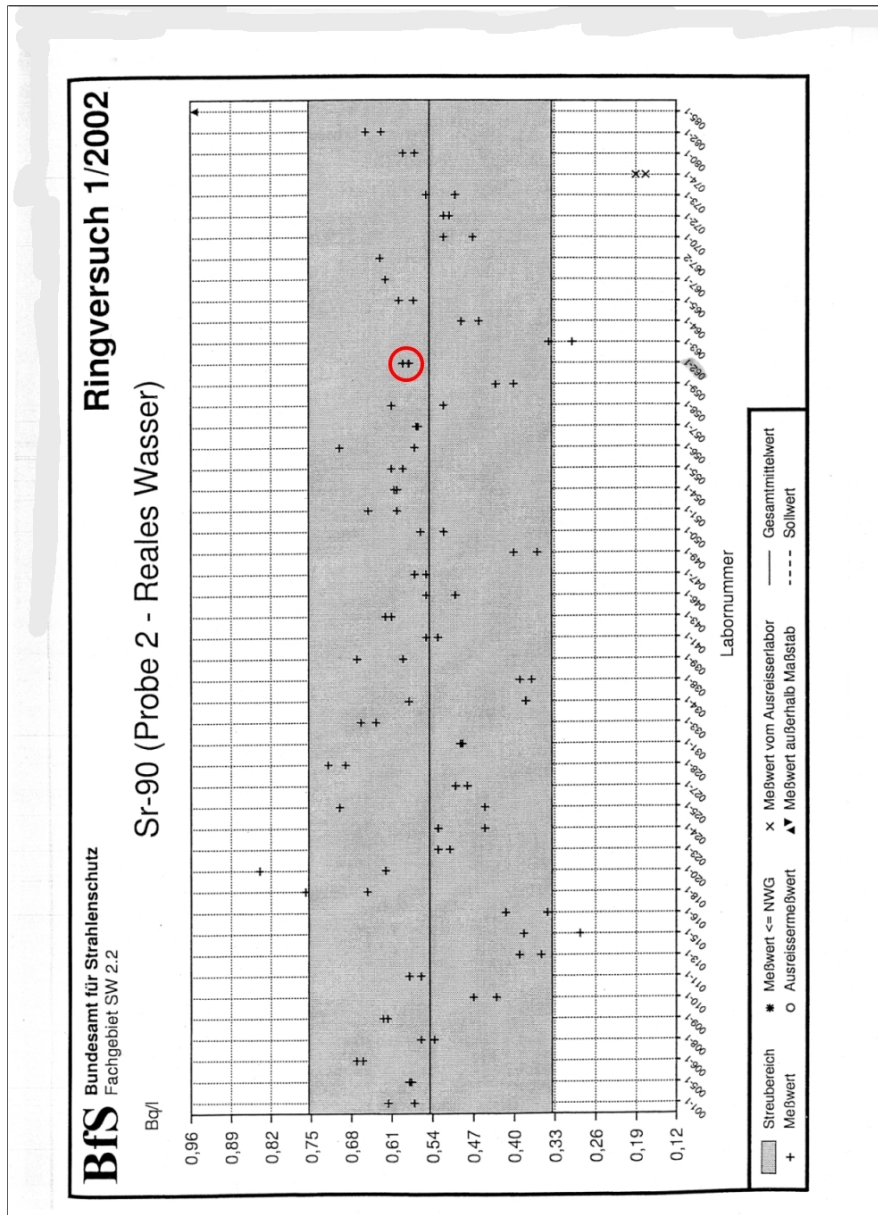


Abbildung B.10: Ringversuch 2002; Realwasser; ⁹⁰Sr-Messung; Vergleich aller Messergebnisse (Bereich entspricht 2·σ)

Sr-90 in IAEA-375, Bq/kg
Mean Value: 108
95% Confidence Interval: 101 to 114

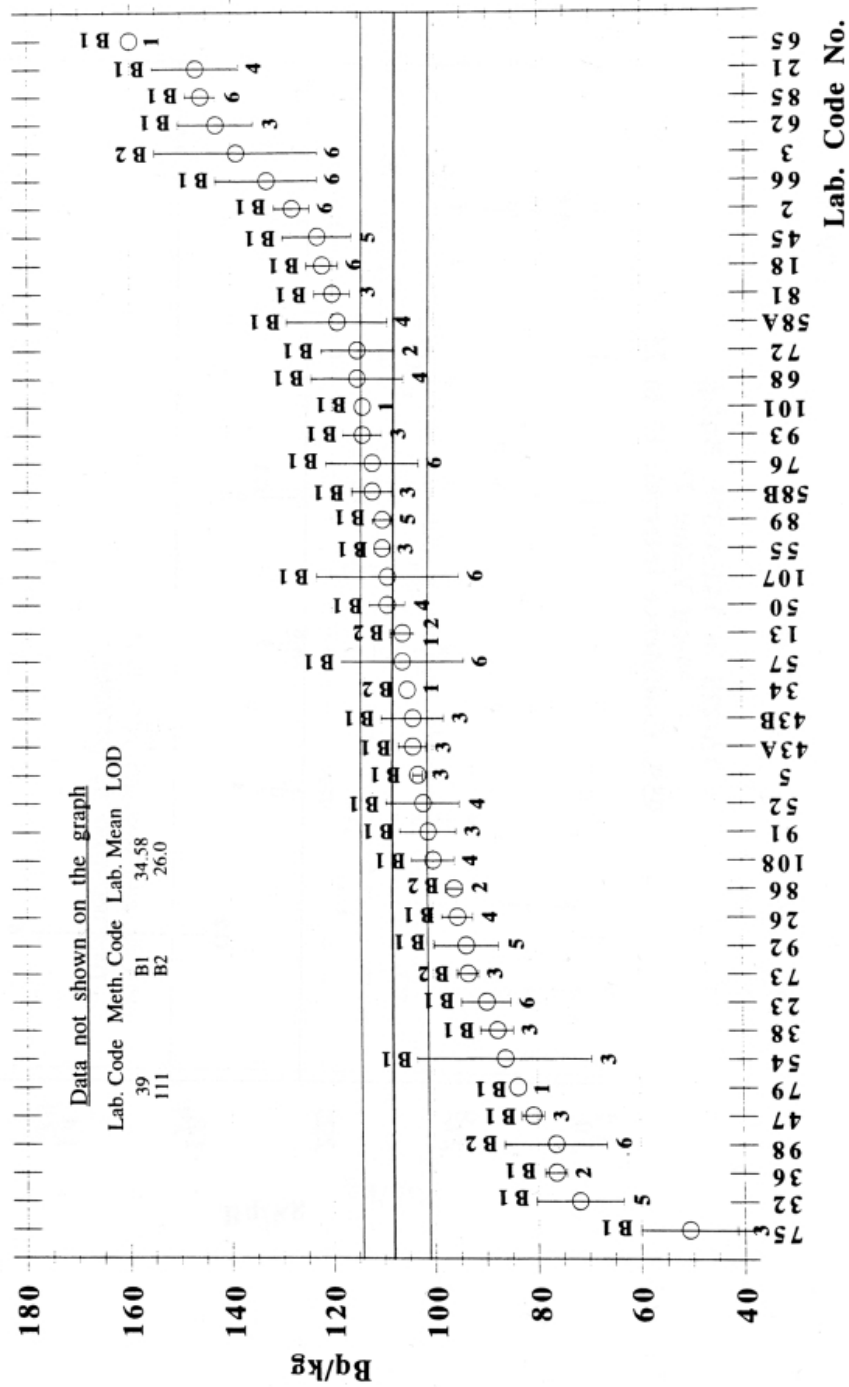


Abbildung B.11: Messungen der Laboratorien von Standardboden IAEA-375

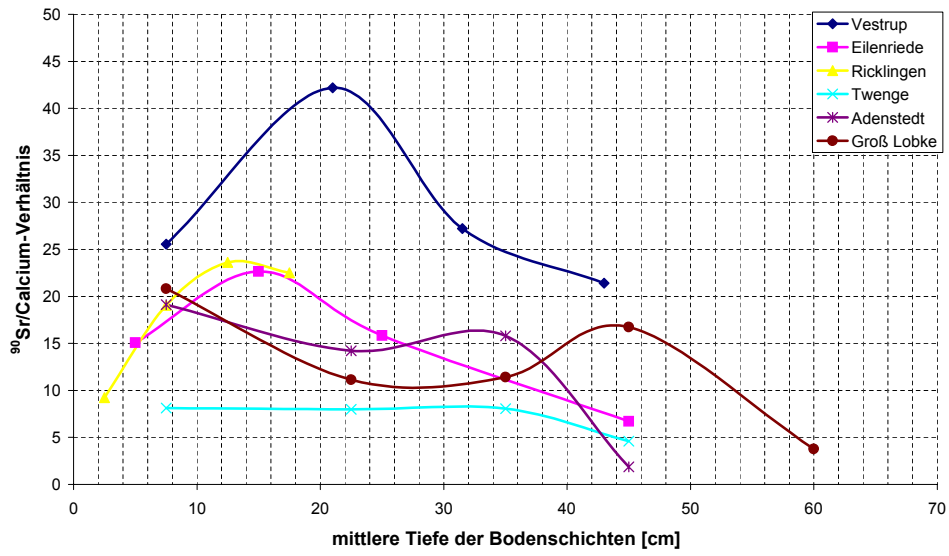


Abbildung B.12: Tiefenverläufe von ^{90}Sr und Calcium

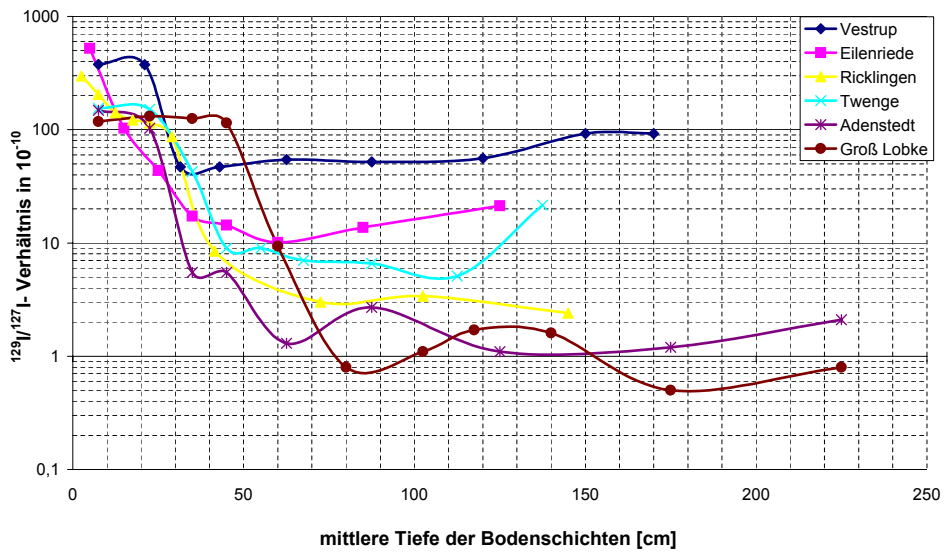


Abbildung B.13: Tiefenverläufe von ^{129}I und ^{127}I

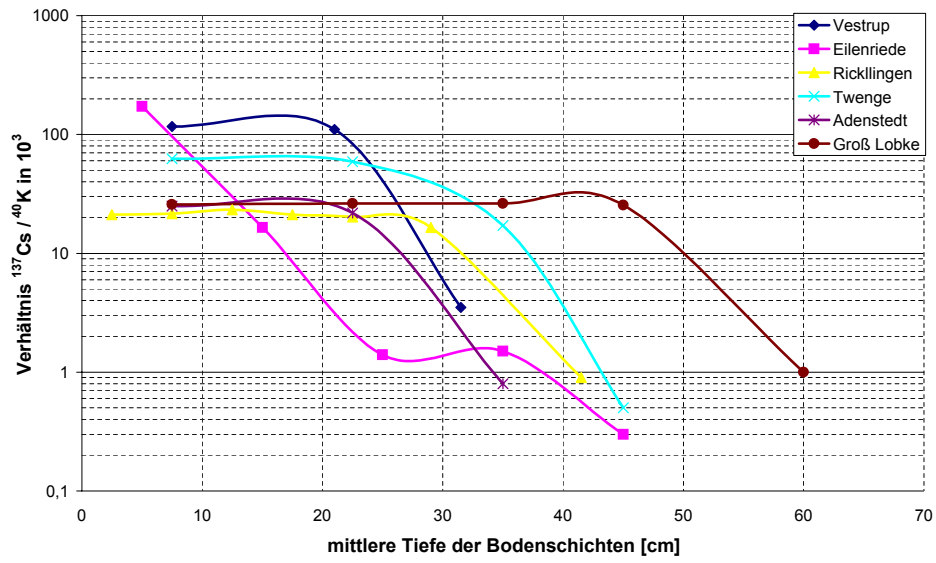


Abbildung B.14: Tiefenverläufe von ^{137}Cs und ^{40}K

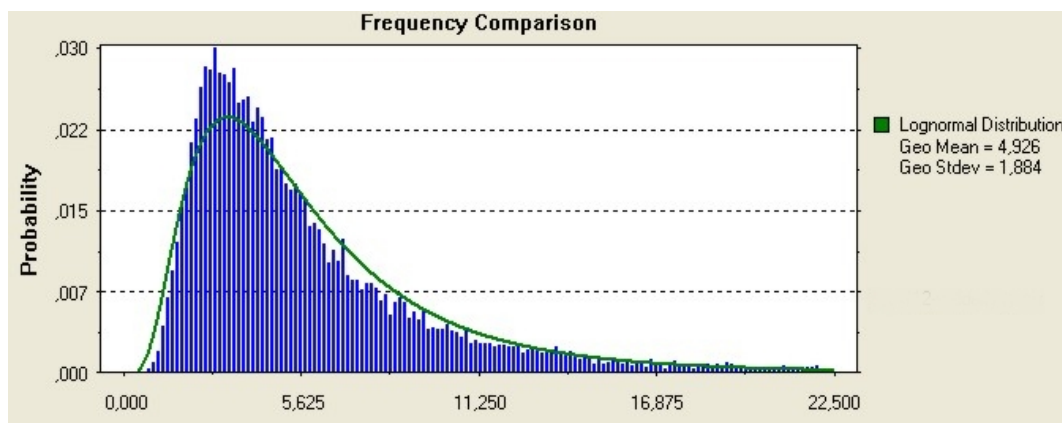
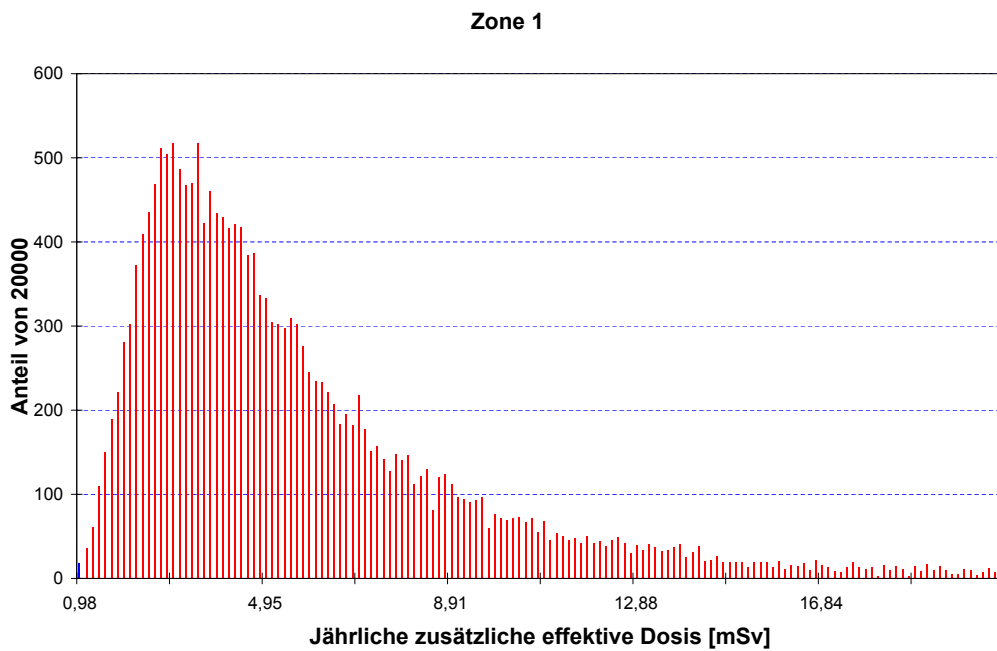


Abbildung B.15: Verteilung der Strahlenexposition für Zone 1 und Überlagerung einer logarithmischen Normalverteilung (Rot: $> 1 \text{ mSv a}^{-1}$)

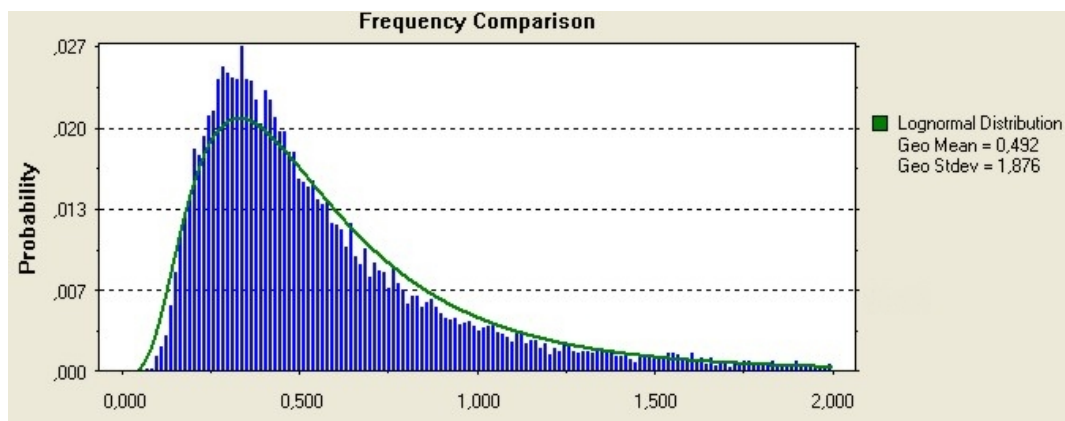
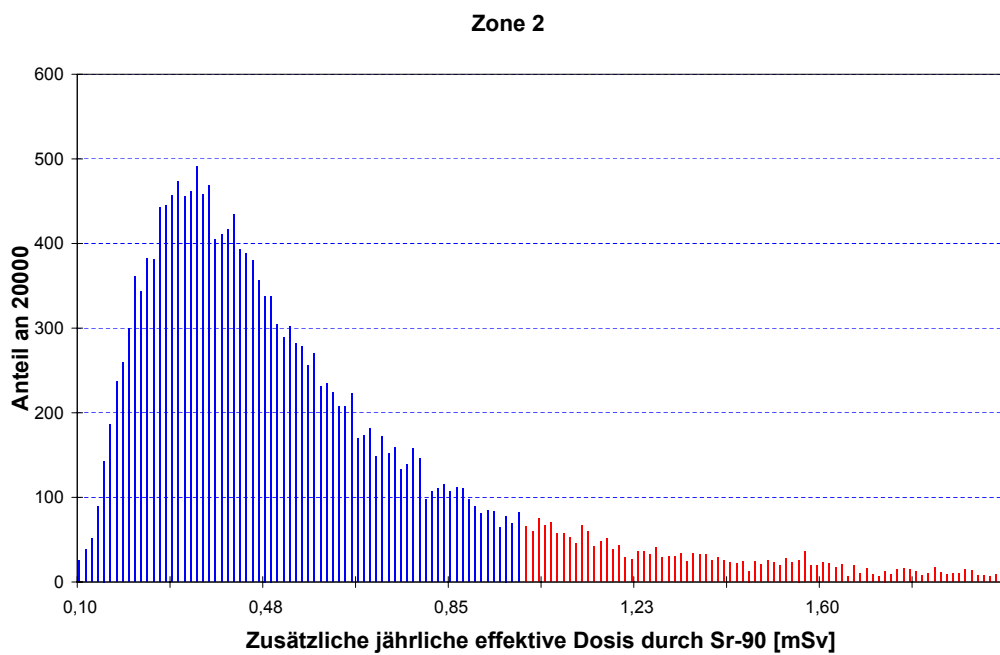


Abbildung B.16: Verteilung der Strahlenexposition für Zone 2 und Überlagerung einer logarithmischen Normalverteilung (Rot: $> 1 \text{ mSv a}^{-1}$)

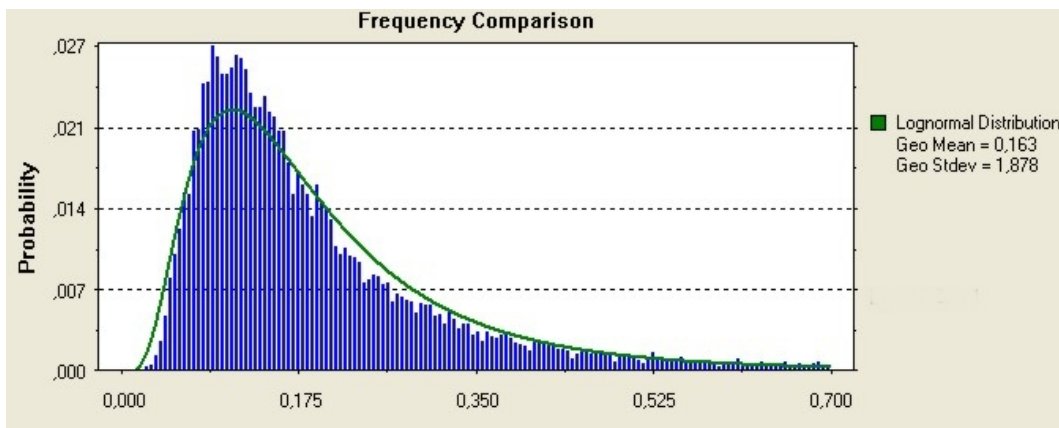
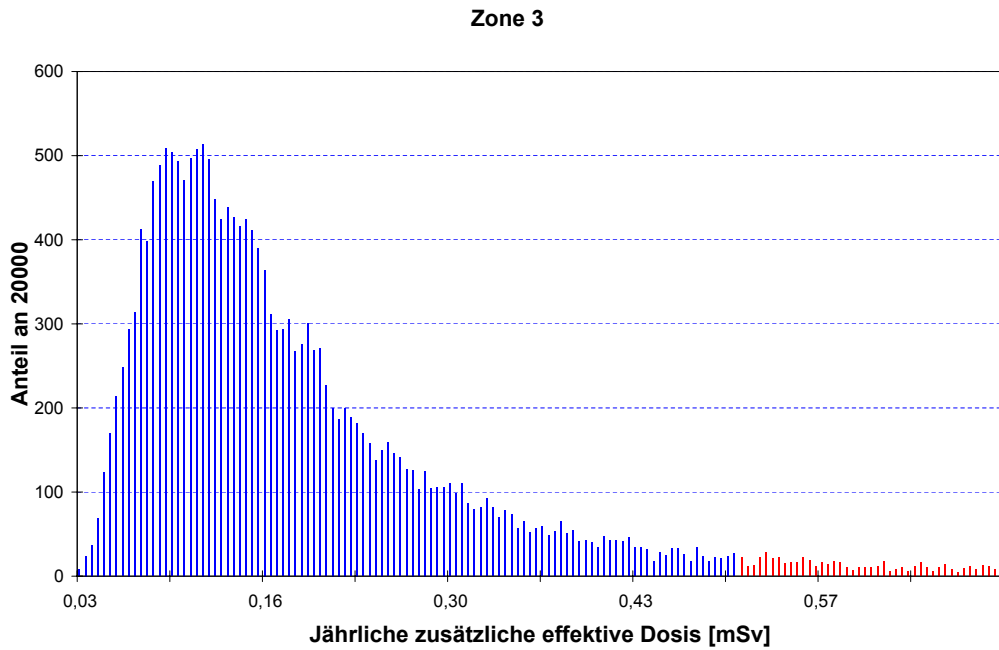


Abbildung B.17: Verteilung der Strahlenexposition für Zone 3 und Überlagerung einer logarithmischen Normalverteilung (Rot: 95 %-Perzentil)

C Verwendete Chemikalien und Geräte

Chemikalie	Kennzeichnung und Hersteller
^{85}Sr -Lsg	Physikalisch Technische Bundesanstalt 2 MBq und 5,2 MBq, Braunschweig, D
^{90}Sr -Lsg.	Physikalisch Technische Bundesanstalt 85 kBq, Braunschweig, D
Referenzboden	IAEA-375, Seibersdorf, Österreich
Austauscherharz	Sr-Resin; Fa. EiChrom Industries Inc.; Darien, IL, USA
Szintillatorflüssigkeit	Ultima Gold AB 2*5 Liter; Fa. Packard; Dreieich, D
Laborchemikalien	Reinheitsgrad: puriss. p.a. oder purum p.a.; Fa. Fluka (Sigma Aldrich Chemie GmbH); Taufkirchen, D
Reinstwasser	Purelab Classic (Ionenaustauscher); Fa. USF Elga; 18,2 MQ-cm; Bucks, England

Messgerät	Typ und Hersteller
Germanium-Detektor	GMX-30200-P, Fa. EG&G Ortec, München, D
Flüssigszintillationszähler	1220 Quantulus, Fa. Wallac (Perkin Elmer Life Sciences), Rodgau-Jügesheim, D
Muffelofen	K 1253, Fa. Heraeus, Hanau, D
Schwingscheibenmühle	Retsch RS-1; Haan, D

D Formelzeichen

A	Aktivität
A_f	Flächenbezogene Aktivität; Deposition (Messgröße)
A_s	Spezifische Aktivität (Messgröße)
$A_{Sr-85-A}$	Aktivität des Sr-85 am Anfang
$A_{Sr-85-E}$	Aktivität des Sr-85 am Ende
A_0	Aktivität des Untergrundes
α	Wahrscheinlichkeit für den Fehler 1. Art
b	Als Indice für Boden
β	Wahrscheinlichkeit für den Fehler 2. Art
CPM	Counts per Minute
C_r	Spezifische Aktivität des Radionuklids r
d	Tiefe einer Bodenschicht
DD	Depositionsdichte
DIN	Deutsches Institut für Normung
DPM	Disintegration per Minute
DPM_{netto}	DPM-Messwert abzüglich DPM-Untergrund
e	Elektron

ε	Ansprechvermögen; Ausbeute
ε_c	Chemische Ausbeute
EW	Erwartungswert
f	Als Indice für Futter
f_1, f_2, f_3	Freiheitsgrade
G	Modellfunktion
$g_{T,g,r}$	Dosiskoeffizient für das Organ oder Gewebe T durch Ingestion des Radionuklids r
$1-\gamma$	Wahrscheinlichkeit zum Vertrauensbereich
H oder H_{gesamt}	Jährliche effektive Dosis
H_{extern}	Externe jährliche effektive Dosis
H_{intern}	Interne jährliche effektive Dosis
η	wahrer Wert der Messgröße
η^*	Nachweisgrenze für die Messgröße
i, m, n	Indices; ganze natürliche Zahlen
k_p	Quantil zur standardisierten Normalverteilung zur Wahrscheinlichkeit p
λ	Zefallswahrscheinlichkeit
m	Masse
μ	Geometrischer Mittelwert
N	Anzahl der Teilchen
n	Als Indice für Nahrungsmittel
n	Neutron
$\tilde{\nu}$	Antineutrino

P	Statistische Wahrscheinlichkeit
p	Proton
PW	Prüfwert
$P_{1-\alpha}$	Einseitiger Erweiterungsfaktor zum Percentil
ρ	Dichte oder Zählrate
S	Sand
σ	Standardabweichung
T	Ton
t	Zeit, Messdauer
T_f	Transferfaktor
t_{vs}	Zeit zwischen Schlachten und Fleischverzehr
$T_{1/2}$	Halbwertszeit
U	Schluff
$\tilde{u}(\eta)$	Standardmessunsicherheit des Schätzers Y als Funktion des wahren Wertes η der Messgröße
$\tilde{u}'(\eta)$	Ableitung der Standardmessunsicherheit des Schätzers Y
U_r	jährliche Verzehrsmenge des Radionuklids r
u_{rel}	relative Standardmessunsicherheit
$u(x)$	Standardmessunsicherheit der Messgröße X zum primären Messergebnis x
V	Varianz
\dot{V}	Gefütterte Menge pro Zeit
X	Messgröße

x	primäres Ergebnis der Messgröße X
\bar{x}	arithmetischer Mittelwert der Messungen
y	ermittelter Wert des Schätzers Y ; primäres Messergebnis für die Messgröße
y^*	Erkennungsgrenze für die Messgröße
Z	Ordnungszahl

Literaturverzeichnis

- [ADE04] ADEBA.DE: <http://www.menschenskinder-online.de/baby/stillen/plaedoy.html> (2004).
- [Alf95] J. ALFARO, T. APFEL, H. DIERKS, A. KNÖCHEL ET AL.: Spurenbestimmung der Radionuklide Sr-90 und Sr-89 in Umweltproben. In: *Angew. Chem.*, Bd. 107(207) (1995).
- [Ark00a] A. ARKHIPOV: Estimation by modelling the intensity of vertical migration of the Cs-137 and Sr-90 in soils in Chernobyl NPP exclusion zone (2000).
- [Ark00b] A. ARKHIPOV, N. ARKHIPOV, A. MELESHIN ET AL.: Agricultural produce (new comebackers) (2000).
- [AVV03] AVV: Verwaltungsvorschrift der Bundesregierung: *Allgemeine Verwaltungsvorschrift zu § 47 StrlSchV; Stand 17.4.03; Ermittlung der Strahlenexposition durch die Ableitung radioaktiver Stoffe aus kerntechnischen Anlagen oder Einrichtungen* (2003).
- [Ayl86] G. AYLWARD und T. FINDLEY: *Datensammlung Chemie in SI-Einheiten*, Bd. 2., neu bearbeitete Auflage (VCH Verlagsgesellschaft GmbH, Weinheim, 1986).
- [Bac82] H. BACHHUBER, K. BUNZL, W. SCHIMMAK und I. GANS: The migration of Cs-137 and Sr-90 in multilayered soils: results from batch, column and fallout investigations. In: *Nucl. Tech.*, Bd. 59: S. 291 (1982).
- [Bar69] E. BARATTA und T. REAVEY: Rapid determination of Sr-90 in tissue, food, biota and other environmental media by tributylphosphate. In: *Agr. Food Chem.*, Bd. 17: S. 1337 (1969).

- [BfS97] BfS: BUNDESAMT FÜR STRAHLENSCHUTZ: Pilzsaison. BfS Infoblatt (1997).
- [Bie78] H. BIESOLD und H. URBAHN: *Literaturstudie über die Ermittlung von Transferfaktoren für die Radionuklide Sr und Cs für Weidevegetation anhand standortspezifischer Bodenparameter für die Umgebung des Kernkraftwerkes Unterweser* (Gesellschaft für Reaktorsicherheit, Köln, 1978).
- [Bit92] U. BITTNER: *Über radiometrische und nicht-radiometrische Bestimmungsverfahren für die umweltrelevanten Radionuklide Iod-129 und Strontium-90*. Dissertation, TU München (1992).
- [Bor82] N. BORUS-BÖSZÖRMENYI und J. KOVACS: Bestimmung des Gehalts an Sr-90 und Sr-89 in Proben tierischer und pflanzlicher Herkunft. In: *Radioanal. Chem.*, Bd. 68(23) (1982).
- [Bot99] W. BOTSCH: *Untersuchungen zur Strahlenexposition von Einwohnern kontaminierter Ortschaften der nördlichen Ukraine*. Dissertation, Universität Hannover (1999).
- [Bra93] A. BRANDT: Untersuchung der Strahlenexposition durch natürlich erzeugtes und aus kerntechnischen Anlagen freigesetztes Tritium. Staatsexamensarbeit, Universität Hannover (1993).
- [Bru01] F. BRUCHERTSEIFER, M. STEINER, H. L. ET AL.: *Literatur von Strontium-90 in Waldökosystemen* (Bundesamt für Strahlenschutz; Institut für Strahlenhygiene, Neuherberg, 2001).
- [Bun91] K. BUNZL und W. KRACKE: A simple radiochemical determination of Sr-90 in environmental samples. In: *Radioanal. Nucl. Chem.*, Bd. 148: S. 115 (1991).
- [Bun96] K. BUNZL: *Handbuch der Bodenkunde: Radionuklide*, Bd. 3. Ergänzungslieferung (Neuherberg, 1996).
- [Der00] DER BUNDESMINISTER FÜR UMWELT, NATURSCHUTZ UND REAKTORSICHERHEIT: *Messanleitungen für die Überwachung der Radioaktivität in der Umwelt und zur Erfassung radioaktiver Emissionen aus kerntechnischen Anlagen* (Gustav-Fischer-Verlag, Stuttgart, 2000).

- [Deu96] DEUTSCHE NORM E.V.: DIN 1319-3, Grundlagen der Meßtechnik; Auswertung von Messungen einer einzelnen Meßgröße; Meßunsicherheit (1996).
- [Deu99] DEUTSCHE BODENKUNDLICHE GESELLSCHAFT: *Mitteilung der Deutschen Bodenkundlichen Gesellschaft*, Bd. 60 (Deutsche Bodenkundliche Gesellschaft, 1999). Exkursionsführer.
- [Deu03] DEUTSCHE NORM E.V.: DIN 25482; Nachweis und Erkennungsgrenze bei Kernstrahlungsmessung (2003).
- [Die91] M. DIETZ, E. HORWITZ, D. NELSON und M. WAHLGREN: An improved method for determining Sr-89 and Sr-90 in urine. In: *Health Physics*, Bd. 67: S. 871 (1991).
- [Ern03] T. ERNST: *Anthropogenes Iod-129 als Tracer für Umweltprozesse. Ein Beitrag zum Verhalten von Spurenstoffen bei der Migration in Böden und beim atmosphärischen Transport*. Dissertation, Universität Hannover (2003).
- [Eur96] EURATOM GRUNDNORM: Richtlinie 96/29/Euratom des Rates vom 13. Mai 1996 zur Festlegung der grundlegenden Sicherheitsnormen für den Schutz der Gesundheit der Arbeitskräfte und der Bevölkerung gegen die Gefahren ionisierender Strahlung. AB1.EG,L159/1 (1996).
- [Fac85] Fachverband für Strahlenschutz: *Strahlenexposition der Bevölkerung*. 18. Jahrestagung des Fachverbandes für Strahlenschutz e.V. (1985).
- [Fil98] M. FILSS: *Analytik und Radioökologie von Strontium-90*. Dissertation, Universität Hannover (1998).
- [Fli81] E. FLIEGL, R. SCHELENZ und E. FISCHER: *Kritische Literaturlauswertung zum Transfer Futter/Fleisch von Strontium, Radium und Technetium bei Nutztieren*, Bd. 4 (Berichte der Bundesforschungsanstalt für Ernährung, Karlsruhe, 1981).
- [For95] FORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE GMBH: *Karlsruher Nuklidkarte*. 6. Auflage (1995).
- [Fou69] H. FOURIE und J. GHIJSELS: Radiostrontium in biological material: A precipitation and extraction procedure eliminating the use of fuming nitric acid. In: *Health Physics*, Bd. 17: S. 685 (1969).

- [Fun92] W. FUNK, V. DAMMANN und G. DONNEVERT: *Qualitätssicherung in der Analytischen Chemie* (VCH Verlagsgesellschaft GmbH, Weinheim, 1992).
- [Har03] R. HARVEY, D. HAMBY und R. BENKE: Age-specific uncertainty of the I-131 ingestion dose conversion factor. In: , Bd. 84(3): S. 334 (2003).
- [Har04] S. HARB: *Natural and anthropogenic radionuclides in soils*. Dissertation, Universität Hannover (2004).
- [Hei79] K. HEINE und A. WIECHEN: Untersuchungen zum Übergang von Sr-90 und anderen Fall out-Radionukliden in der Nahrungskette Boden-Bewuchs-Milch in der Umgebung von Gorleben. In: *Bundesanstalt für Milchforschung*, Bd. 31(4): S. 285. Verlag Th. Mann (1979).
- [Hei82] K. HEINE und A. WIECHEN: Field Studies of the transfer factors soil plant of Cs-137 and Sr-90. In: *I U R Workshop - Comparing soil plant transfer factors of radionuclides*. Institut of Chemistry and Physics; Federal Dairy Research Centre (1982).
- [Hen00] G. HENKELMANN: *Strahlenschutzvorsorge in der Landwirtschaft: Organisation, Ergebnisse und Maßnahmen* (Bayerische Landesanstalt für Bodenkultur und Pflanzenbau (LBP), München, 2000).
- [Hil96] R. HILLE: Messung der Strahlenexposition der Bevölkerung in den hochkontaminierten Gebieten um Tschernobyl. In: A. BAYER, A. KAUL und C. REINERS, (Hg.) *Zehn Jahre nach Tschernobyl, eine Bilanz*, 3. Auflage (Gustav Fischer Verlag, Stuttgart, 1996).
- [Hol85] A. HOLLEMANN und N. WIEBERG: *Lehrbuch der Anorganischen Chemie* (de Gruyter Verlag, Berlin, 1985). 91.-100. Auflage.
- [ICR96] ICRP: INTERNATIONAL COMMISSION ON RADIOECOLOGICAL PROTECTION: Age-dependent doses to the members of the public from intake of radionuclides (1996).
- [Int94] International Atomic Energy Agency: *Handbook of parameter values for the prediction of radionuclide transfer in temperate environments*, Bd. Technical Reports Series No. 364, Produced in collaboration with the International Union of Radioecologists (1994).

- [Int95] International Organization for Standardization: *Guide to the expression of uncertainty in measurement* (1995).
- [Int96] International Atomic Energy Agency: *Report on the Intercomparison Rund; IAEA-0375* (1996).
- [Jan95] JANDER-BLASIUS: *Lehrbuch der analytischen und präparativen anorganischen Chemie*, Bd. 14. Auflage (S.Hirzel Verlag, Stuttgart, 1995).
- [Kal03] U. KALINOWSKI: Transfer von Radionukliden in die Nahrungskette in der nördlichen Ukraine. Examensarbeit, Universität Hannover (2003).
- [Kam71] H. KAMADA, M. MITA und M. SAIKI: Rapid methods for measurement of radioactivity in the environment. In: *IAEA Symp.*, Bd. STI/PUB/289: S. 427 (1971).
- [Ker02] KERNENERGIE: Kernenergie Weltreport. In: *Kernenergie*, Bd. atw 48(4) (2002).
- [Kir92] G. KIRCHNER und D. BAUMGARTNER: Migration rates of radionuclides deposited after the Chernobyl accident in various north German soils. In: *Analyst*, Bd. 117: S. 475 (1992).
- [Köl01] A. KÖLZER: *Lexikon der Kernenergie* (Forschungszentrum Karlsruhe; Technik und Umwelt, Karlsruhe, 2001).
- [Kru94] S. KRUGLOV, N. VASILEVA, A. KURINOV und R. ALEKSAKHIN: Leaching of radionuclides in Chernobyl fallout from soils by mineral acids. In: *Radiochemistry*, Bd. 36: S. 598 (1994).
- [Kru96] F. KRUEGER, L. ALBRECHT, E. SPODEN und W. WEISS: Der Ablauf des Reaktorunfalls Tschernobyl 4 und die weiträumige Verfrachtung des freigesetzten Materials: Neuere Erkenntnisse und ihre Bewertung. In: A. BAYER, A. KAUL und C. REINERS, (Hg.) *Zehn Jahre nach Tschernobyl, eine Bilanz*, 3. Auflage (Gustav Fischer Verlag, Stuttgart, 1996).
- [Lar81] I. LARSEN: Report ORNL/TL-7760. In: *Environment Sciences Division*, S. 1701 (1981).
- [Lie91] K. LIESER: *Einführung in die Kernchemie*, Bd. 3., neubearbeitete Auflage (VCH Verlagsgesellschaft mbH, Weinheim, 1991).

- [Lik96] I. LIKHTAREV und H. PARETZKE: Exposure of different population groups of ukraine after the Chernobyl accident and main health-risk assessments. In: A. BAYER, A. KAUL und C. REINERS, (Hg.) *Zehn Jahre nach Tschernobyl, eine Bilanz*, 3. Auflage (Gustav Fischer Verlag, Stuttgart, 1996).
- [Lim01] E. LIMPERT, W. STAHEL und M. ABBT: Log-normal distributions across the science: Keys and clues. In: *Bioscience*, Bd. 51(5): S. 341 (2001).
- [Mak85] E. MAKRLIK und P. VANURA: Extraction separation of strontium from calcium in the water-nitrobenzene system. In: *Radioanal. Nucl. Chem.*, Bd. 96: S. 451 (1985).
- [Men84] MENGEL, L.: *Ernährung und Stoffwechsel in Pflanzen* (Gustav Fischer Verlag, Gießen, 1984).
- [Mic99] R. MICHEL und K. KIRCHHOFF: *Nachweis-, Erkennungs- und Vertrauensgrenzen bei Kernstrahlungsmessungen* (TÜV-Verlag, Köln, 1999).
- [Mic01] R. MICHEL: 15 Jahre nach dem Unfall von Tschernobyl. In: *Zentrum für Strahlenschutz und Radioökologie* (2001).
- [Min01] Ministerium für Finanzen und Energie des Landes Schleswig-Holstein: *15 Jahre nach der Katastrophe; Tschernobyl Gefahr vorbei?* (2001).
- [Mon96] M. MONETTI: Worldwide deposition of Sr-90 through 1990. In: *US Department of Energy*, Bd. USDOE-Report EML-579 (1996).
- [Nie98] H. NIES, D. OBRIKAT und J. HERRMANN: Die Ableitungen aus den Wiederaufbereitungsanlagen La Hague und Sellafield der letzten Jahre und die daraus folgenden Konzentrationen an Radionukliden in der Nordsee und angrenzenden Meeresgebieten. In: *BMU 10. Fachgespräch zur Überwachung der Umweltradioaktivität*, S. 377 (Hamburg, 1998).
- [Obr00] D. OBRIKAT, H. VIERTEL, I. WINTERFELDT und K. SCHMIDT: Ringversuch 01.2000; Bestimmung des Radionuklidgehaltes im Wasser . In: *Bundesamt für Strahlenschutz, Institut für Angewandten Strahlenschutz* (2000).
- [Obr02] D. OBRIKAT, H. VIERTEL, I. WINTERFELDT und K. SCHMIDT: Ringversuch 01.2002; Bestimmung des Radionuklidgehaltes im Wasser . In: *Bundesamt für Strahlenschutz, Institut für Angewandten Strahlenschutz* (2002).

- [Ora88] J. ORAVEC und I. NAVARCIK: Determination of Cs-137 and Sr-90 in milk by the static method with an ion exchanger. In: *Radioanal. Nucl. Chem.*, Bd. 121: S. 331 (1988).
- [Oug93] D. OUGHTON, B. SALBU, T. BRAND, J. DAY und A. AARKROG: Underdetermination of Strontium-90 in soils containing particles of irradiated oxide fuel. In: *Analyst.*, Bd. 118: S. 1101 (1993).
- [Per98] PERKIN ELMER, LIFE AND ANALYTICAL SCIENCES: Ultima Gold AB: Material Safety Data Sheet (1998).
- [Pet67] C. PETERSEN: Cyclic polyethers and their complexes with metal salts. In: *Anal. Chem.*, Bd. 89: S. 7017 (1967).
- [Pil72] H. PILTINGRUD und J. STENCEL: k.A. In: *Health Physics*, Bd. 23(1): S. 121 (1972).
- [Pim95] M. PIMPL: Sr-89/Sr-90-determination in soils and sediments using crown ethers for Ca/Sr-seperation. In: *Radioanal. Nucl. Chem.*, Bd. 194: S. 311 (1995).
- [Ran75] R. RANDOLPH: Report. In: *Int. J. Appl. Radiat. Isotopes*, Bd. 26(9) (1975).
- [Rey80] S. REYNOLDS und J. ELDRIDGE: Liquid scintillation counting recent applications and development. In: *Physics Aspects, Academic Press*, Bd. 1 (1980).
- [Rob03] D. ROBERTSEN, D. CATALDO, B. NAPIER ET AL.: *Literature review and assessment of plant and animal transfer factors used in performance assessment modeling* (Pacific Northwest National Laboratory, Washington, DC, 2003).
- [Sch84] F. SCHEFFER und P. SCHACHTSCHNABEL: *Lehrbuch der Bodenkunde* (Enke-Verlag, Stuttgart, 1984).
- [Str91] X. STRASBURGER: *Lehrbuch der Botanik*. 33. Auflage (Gustav Fischer Verlag, Gießen, 1991).
- [Str01] STRAHLENSCHUTZVERORDNUNG: Verordnung für die Umsetzung von Euratom-Richtlinien zum Strahlenschutz. Bundesgesetz Nr. 38 am 20.07.2001, Artikel 1 Verordnung über den Schutz vor Schäden durch ionisierende Strahlen. 6. Auflage (2001).

- [Tai97] D. TAIT, G. HAASE und A. WIECHEN: A fast method for the determination of Sr-90 in liquid milk by solid phase extraction with Cryptand 222 on cation exchange resin. In: *Kerntechnik*, Bd. 62: S. 96 (1997).
- [Tra93] A. TRAPEZNIKOV, V. POZOLOTINA, M. CHEBOTINA ET AL.: Radioactiv contamination of the Techa river, the Urals. In: *Health Physics*, Bd. 65: S. 481 (1993).
- [UNS82] UNSCEAR: UNITED NATIONS SCIENTIFIC COMMITTEE ON THE EFFECTS OF ATOMIC RADIATION: Ionizing radiation: sources and biological effects (1982 report to the general assembly, with annexes.). United Nations, New York (1982).
- [UNS88] UNSCEAR: UNITED NATIONS SCIENTIFIC COMMITTEE ON THE EFFECTS OF ATOMIC RADIATION: Ionizing radiation: sources and biological effects (1982 report to the general assembly, with annexes.). United Nations, New York (1988).
- [UNS00] UNSCEAR: UNITED NATIONS SCIENTIFIC COMMITTEE ON THE EFFECTS OF ATOMIC RADIATION: Ionizing radiation: sources and biological effects (1982 report to the general assembly, with Annexes.). United Nations, New York (2000).
- [Vah04] J.-W. VAHLBRUCH: *Über den Transfer von natürlichen Radionukliden in terrestrischen Ökosystemen und die realistische Modellierung der natürlichen Strahlenexposition in Norddeutschland*. Dissertation, Universität Hannover (2004).
- [Wal86] WALLAC, PERKIN ELMER LIFE SCIENCES: Rack Beta: Instrumental Menue. Turku(Finnland) (1986).
- [Wor83] WORLD HEALTH ORGANIZATION: UNSCEAR: United Nations Environment Programme, International Labour Organization and World Health Organization Ionizing Radiation; Selected Radionuclides (1983).

Danksagung

Diese Arbeit wurde im Zeitraum von Januar 2001 bis April 2004 am Zentrum für Strahlenschutz und Radioökologie (ZSR) der Universität Hannover unter der Leitung von Herrn Prof. Dr. Rolf Michel angefertigt.

Als erstes möchte ich Herrn Prof. Dr. Gerold Wunsch vom Institut für Analytische Chemie und Herrn Prof. Dr. Rolf Michel (ZSR) für die freundliche Unterstützung und die gute Zusammenarbeit zwischen den Instituten danken.

Desweiteren danke ich den Mitarbeiter des ZSR für ihre stets prompte und freundliche Unterstützung bei der Bewältigung organisatorischer und fachlicher Probleme. Nennen möchte ich hier Dr. Michael Täschner für die Hilfe in EDV-Belangen, Dr. Dieter Jakob für die zahlreichen Diskussion, auch bezüglich außerfachlicher Fragen, und diverse Diplomanden und Doktoranden, die bei graphischen Problemen und Bearbeitungen mit LaTeX stets hilfsbereit waren.

Bezüglich der Arbeiten im Labor danke ich Frau Monika Gorny und Frau Gabriele Bunnenberg für die tatkräftige, praktische Unterstützung.

Durch einen Vergleich mit Bodeneigenschaften, die die Deutsche Bodenkundliche Gesellschaft ermittelte, war eine Interpretation niedersächsischer Bodenproben möglich. In diesem Zusammenhang danke ich auch Dr. Thomas Ernst für die Diskussionsbereitschaft bezüglich der Migration der genannten Proben.

Der Großteil der Proben lieferte „The State University of Agriculture and Ecology“ aus Zhitomir - Ukraine. Mein besonderer Dank gilt der Kontaktperson dieser Einrichtung - Frau Lyudmila Rumantschuk -, die die Probenahme organisiert hat und uns eine Untersuchung vor Ort des Reaktors Tschernobyl ermöglichte. Mein Dank gilt auch Arthur Meleshyn, der als Übersetzer und Kollege die Arbeit mit der Ukraine erleichterte.

Ich danke sowohl Herrn Prof. Dr. Rolf Michel und Dr. Dieter Jakob als auch meiner Freundin Isa Birkholz für das Korrekturlesen dieser Arbeit.

Den Mitarbeitern der Werkstatt bin ich zu Dank verpflichtet, da sie bei besonderen Problemen schnell und unproblematisch helfen und mit Bereitstellen von Wurst und Cola wöchentlich Grundbedürfnisse befriedigen.

Abschließend möchte ich ein weiteres Mal meiner Freundin Isa Birkholz für das Verständnis danken, dass ich für diese Arbeit Teile unserer gemeinsamen Zeit geopfert habe.

Lebenslauf

Persönliche Angaben

Name: Arne Mewis
Geburtsdatum: 07.06.1975
Geburtsort: Kiel
Familienstand: ledig

Berufsbild

Diplomingenieur Technische Chemie (FH)

Ausbildung

08.1985-06.1994 Abitur (Gymnasium Kronshagen)
07.1994-07.1995 Bundeswehr
08.1995-01.1996 Praktikum in Bundesanstalt für
Milchforschung, Kiel
02.1996-07.1999 Studium Technische Chemie, FH Lübeck
02.1998-07.1998 Praktikum bei Dräger Sicherheitstechnik
GmbH, Lübeck
10.1999-03.2000 Diplomarbeit bei Dräger
Sicherheitstechnik GmbH, Lübeck
Thema: Untersuchung der bei der
Beaufschlagung von TEDA imprägnierter
Aktivkohle mit Chlor entstehenden Gase
ab 01.2001 Promotion an der Universität Hannover,
Fachbereich Anorganische Chemie, in
Zusammenarbeit mit dem Zentrum für
Strahlenschutz und Radioökologie
Thema: Strontium-90 in der Umwelt:
Migrationsverhalten im Boden, Transfer in
die Nahrungskette und Strahlenexposition
in der nördlichen Ukraine

Abschlüsse

Abitur: 2,7
Vordiplom: 1,6
Diplom: 2,1

Hiermit erkläre ich, dass ich diese Arbeit selbständig verfasst und benutzte
Hilfsmittel und Quellen sowie zu Hilfsleistungen herangezogene
Institutionen vollständig angegeben habe.

Zudem erkläre ich, dass diese Arbeit nicht schon als Diplomarbeit oder
ähnliche Prüfungsarbeit verwendet worden ist.