

Über den Transfer von natürlichen Radionukliden in terrestrischen Ökosystemen und die realistische Modellierung der natürlichen Strahlenexposition in Norddeutschland

Von dem Fachbereich Physik der Universität Hannover
zur Erlangung des Grades eines

DOKTORS DER NATURWISSENSCHAFTEN

- Dr. rer. nat. -

genehmigte Dissertation

von

Jan-Willem Vahlbruch

geboren am 03.05.1974 in Frankfurt am Main

(2004)

Referent: Prof. Dr. Rolf Michel
Korreferent: PD. Dr. Ingo Leya

Tag der Promotion: 30. April 2004

Zusammenfassung

Als Folge der 1996 erlassenen EURATOM-Grundnormen finden sich in der aktuellen Strahlenschutzverordnung vom August 2001 erstmalig auch Regelungen zum Schutz der Bevölkerung vor einer zusätzlichen Strahlenexposition durch natürliche radioaktive Stoffe. Diese Bestimmungen beinhalten sowohl die aus natürlichen Radionukliden stammende Strahlenexposition bei der Ausübung von Arbeiten als auch den Schutz der Bevölkerung vor einer zusätzlichen Strahlenexposition aus den Rückständen dieser Arbeiten.

Ziel der Untersuchungen dieser Arbeit war es, mit Hilfe der γ -Spektrometrie die bestehende Datengrundlage und damit das Wissen um das Verhalten von natürlichen Radionukliden in terrestrischen Ökosystemen zu verbessern. Dazu wurden umfangreiche Untersuchungen zum Gehalt und Transfer von natürlichen Radionukliden in und zwischen verschiedenen Kompartimenten wie Boden, Weide- und Wiesenbewuchs, Getreide, Gemüse, Fleisch und Milch durchgeführt. Da sich existierende Untersuchungen dieser Art überwiegend auf Gegenden erhöhter natürlicher Radioaktivität beschränken, wurde in dieser Arbeit mit Niedersachsen ein Gebiet vergleichsweise geringer Umweltradioaktivität ausgewählt. Aus diesem Grund bewegten sich die ermittelten Messwerte häufig im Bereich der Erkennungs- und Nachweisgrenzen des Messverfahrens, so dass ein Schwerpunkt der Arbeit auf der exakten Bestimmung der Messunsicherheiten zusammen mit den charakteristischen Grenzen (Erkennungs- und Nachweisgrenzen und Grenzen des Vertrauensbereiches) lag.

Zusätzlich zu diesen Untersuchungen wurde mit Hilfe von Monte-Carlo-Simulationen die Schwankungsbreite der natürlichen Strahlenexposition in Niedersachsen ermittelt. Dabei wurden alle relevanten Expositionspfade berücksichtigt, wobei für die zu modellierenden Parameter nicht Punktgrößen, sondern auf Verteilungen basierende Erwartungswerte mit den zugehörigen Varianzen angenommen wurden. Mit Hilfe dieses probabilistischen Ansatzes konnte die Schwankungsbreite der natürlichen Strahlenexposition sowohl für Niedersachsen als auch für die gesamte Bundesrepublik Deutschland ermittelt werden. Durch diese Vorgehensweise wird ein Weg aufgezeigt, durch den bei der Abschätzung der Strahlenexposition durch natürliche Radionuklide der von den EURATOM-Grundnormen geforderte Realismus einer Modellierung erfüllt werden kann.

Schlagworte

Strahlenexposition, natürliche Radionuklide, Transfer

Abstract

In August 2001 the new German Radiation Protection Ordinance (Strahlenschutzverordnung) was amended as consequence of the implementation of the Euratom Basic Safety Standards. It now includes, for the first time, provisions for the protection of workers and of the general population against the danger arising from natural radiation exposures during work activities.

For that reason the main goal of the investigations described in this work was to improve the knowledge about the behavior of natural radionuclides in terrestrial ecosystems using γ -spectrometry. For that purpose extensive investigations concerning the concentration and transfer of natural radionuclides in and between different compartments like soil, meadow, grain, vegetables, meat, and milk were performed. Because most of the previously available data are biased with respect to the investigation of areas with increased natural radioactivity, the investigations presented in this work took place in Lower Saxony, an area that is known for low natural radioactivity. Due to the low concentrations of natural radionuclide in samples from this area, the results frequently are of the same order of magnitude as the decision thresholds and detection limits of the measurement procedure. Thus, an important task of this work was the precise determination of the uncertainties of measurement results and the characteristic limits (decision thresholds, detection limits, and limits of the confidence intervals).

In addition, the variability of the radiation exposure due to natural radionuclides for each relevant exposure path was investigated using Monte-Carlo-techniques. This was done by assuming for each parameter of the model a distribution described by an expectation value and a variance instead of using only a point estimator. With this new approach, the variability of the radiation exposure due to natural radionuclides was calculated for Lower Saxony and entire Germany. Using such an approach, it is possible to perform realistic estimates of the radiation exposure due to natural radionuclides as demanded in the Euratom Basic Safety Standards.

keywords

radiation exposure, natural radionuclides, transfer

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Natürliche Radionuklide	5
2.1	Herkunft und Vorkommen natürlicher Radionuklide	5
2.1.1	Kalium	6
2.1.2	Thorium	6
2.1.3	Uran	7
2.1.4	Radium	8
2.2	Gleichgewichte und Ungleichgewichte	8
2.2.1	Säkulares Gleichgewicht	10
2.2.2	Transientes Gleichgewicht	11
2.2.3	Kein Gleichgewicht	12
3	Probenahme	13
3.1	Einleitung	13
3.2	Boden	14
3.3	Futtermittel	15
3.4	Getreide	16
3.5	Gemüse	16
3.6	Fleisch	17
3.7	Milch	17
3.8	Gesamtnahrung	18
4	γ-Spektrometrie von natürlichen Radionukliden	21
4.1	Nachweis natürlicher Radionuklide	21
4.1.1	Wechselwirkung von γ -Strahlung mit Materie	22
4.1.2	γ -Strahlung natürlicher Radionuklide	26
4.2	Reinst-Germanium-Halbleiterdetektoren	28
4.2.1	Planare HPGe-Detektoren	29
4.2.2	Koaxiale HPGe-Detektoren	30
4.3	Nulleffekt	32
4.4	Kalibrierung der Probenmessungen	35
4.4.1	Energiekalibrierung	35

4.4.2	Efficiency	35
4.4.3	Summationskorrekturen	42
4.5	Berechnung von Aktivität, Unsicherheiten und charakteristische Grenzen	51
4.5.1	Aktivität	51
4.5.2	Unsicherheiten	52
4.5.3	Berechnung der charakteristischen Grenzen: Grundlagen	56
4.5.4	Charakteristische Grenzen nach DIN 25482-10	59
4.6	Qualitätssicherung	63
4.6.1	BfS Ringversuch 1/2001	63
4.6.2	IAEA - Proficiency Test	65
4.6.3	Ringversuch BfS-V Boden	65
5	Spezifische Aktivitäten natürlicher Radionuklide in Lebensmitteln	69
5.1	Allgemeines	69
5.2	Behandlung von Messwerten unterhalb der Nachweis- und Erkennungsgrenzen	73
5.2.1	Verfahren nach HELSEL und COHN im Falle einer einzigen charakteristischen Grenze	74
5.2.2	Verfahren nach HELSEL und COHN im Falle mehrerer charakteristischen Grenzen	75
5.3	Weide- und Wiesenbewuchs	77
5.4	Fleisch	78
5.5	Milch	80
5.6	Getreide	83
5.7	Gemüse	87
5.7.1	Wurzelgemüse	93
5.7.2	Blattgemüse	97
5.8	Beeren und Pilze	102
5.8.1	Beeren	102
5.8.2	Pilze	103
5.9	Gesamtnahrung	103
5.10	Trinkwasser	106
5.11	Zusammenfassung	107
6	Transfer von natürlichen Radionukliden	111
6.1	Allgemeines	111
6.2	Transfer von Boden in Weide- und Wiesenbewuchs	117
6.3	Transfer Boden - Getreide	122
6.4	Transfer Boden - Gemüse	126
6.4.1	Wurzelgemüse	126
6.4.2	Blattgemüse	130
6.5	Transfer Boden - Obst	133
6.5.1	Beeren	133

6.5.2	Pilze	134
6.6	Transfer in Fleisch	134
6.6.1	Rinder	136
6.6.2	Schaf	140
6.6.3	Schwein	140
6.6.4	Pute	141
6.7	Transfer in Milch	143
6.8	Zusammenfassung	144
7	Strahlenexposition durch natürliche Radionuklide	149
7.1	Existierende Modelle	151
7.1.1	Allgemeine Verwaltungsvorschrift (AVV)	151
7.1.2	Berechnungsgrundlagen - Bergbau	151
7.1.3	FARMLAND	152
7.1.4	PATHWAY	152
7.1.5	ECOSYS-87	153
7.2	CRYSTAL-BALL [®]	153
7.3	Dosis durch Ingestion	154
7.4	Dosis durch Direktingestion von Boden	168
7.5	Dosis durch Inhalation von ²²² Rn und Folgeprodukten	172
7.6	Dosis durch Inhalation von Staub	176
7.7	Dosis durch externe Bestrahlung	178
7.8	Ergebnisse und Diskussion	183
8	Zusammenfassung und Ausblick	189
8.1	Zusammenfassung der wichtigsten Ergebnisse	189
8.2	Ausblick	191
9	Danksagung	195
A	Tabellen	197
B	Abkürzungen	247
C	Formelzeichen	249
D	Lebenslauf	255

Abbildungsverzeichnis

2.1	Die drei Zerfallsreihen	11
3.1	Standorte der Probenahme in Niedersachsen.	14
4.1	Wechselwirkungen von γ -Strahlung mit Materie	24
4.2	Energieabhängigkeit der verschiedenen Wechselwirkungen	25
4.3	Schematische Darstellung des Messsystems.	29
4.4	Schematische Darstellung eines planaren HPGe-Detektors	30
4.5	Schnittdarstellung eines p-type und n-type koaxialen HPGe-Detektor .	32
4.6	Zählrate des Nulleffekts für ^{226}Ra und ^{235}U bei 186 keV.	33
4.7	Vergleich der Nulleffektspektren unterschiedlicher Detektoren	34
4.8	Beispielhafte Efficiency einer Bodenprobe	36
4.9	Efficiency für Boden unterschiedlicher Masse	40
4.10	Interpolation der Efficiency von ^{210}Pb über unterschiedliche Massen .	41
4.11	Vergleich der Efficiency durch Spiken und der durch die Flächenstandardpräparatmethode	43
4.12	Vergleich der Efficiency durch Spiken und der durch die Flächenstandardpräparatmethode für Energien unter 200 keV	44
4.13	Vergleich der Efficiency der drei unterschiedlichen Detektoren	45
4.14	Unterscheidung zwischen systematischen und zufälligen Summationseffekten	46
4.15	Vergleich der Efficiencies mit und ohne Summationskorrektion in der Petrischalengeometrie	47
4.16	Vergleich der Efficiencies mit und ohne Summationskorrektion in der Marinelli-Geometrie	48
4.17	Zoom auf die 1173 keV Linie in Abbildung 4.16	49
5.1	QQ-Plot für die ^{210}Pb -Aktivität in Weide- und Wiesenbewuchs.	79
5.2	QQ-Plot für die ^{226}Ra -Aktivität in Weide- und Wiesenbewuchs.	79
5.3	QQ-Plot für die ^{228}Ra -Aktivität in Weide- und Wiesenbewuchs.	79
5.4	QQ-Plot für die ^{228}Th -Aktivität in Weide- und Wiesenbewuchs.	79
5.5	QQ-Plot für die ^{40}K -Aktivität in Weide- und Wiesenbewuchs.	80
5.6	QQ-Plot für die ^{137}Cs -Aktivität in Weide- und Wiesenbewuchs.	80
5.7	QQ-Plot für die ^{210}Pb -Aktivität in Gemüseproben.	89

5.8	QQ-Plot für die ^{226}Ra -Aktivität in Gemüseproben.	89
5.9	QQ-Plot für die ^{228}Ra -Aktivität in Gemüseproben.	90
5.10	QQ-Plot für die ^{228}Th -Aktivität in Gemüseproben.	90
5.11	QQ-Plot für die ^{40}K -Aktivität in Gemüseproben.	90
5.12	QQ-Plot für die ^{137}Cs -Aktivität in Gemüseproben.	90
5.13	QQ-Plot für die ^{228}Th -Aktivität in Blattgemüse.	101
6.1	Einfluss der Radionuklidkonzentration auf den Transferfaktor	112
6.2	Transferfaktoren Boden-Wiesenbewuchs bezogen auf das Trockenge- wicht der Pflanzen	118
6.3	Transferfaktoren Boden-Wiesenbewuchs bezogen auf das Feuchtge- wicht der Pflanzen	120
6.4	Transferfaktoren Boden - Getreide	125
6.5	Transferfaktoren Boden - Wurzelgemüse	127
6.6	Transferfaktoren Boden - Blattgemüse	132
6.7	Verteilung des Transferfaktors von ^{40}K in Rindfleisch für HLW	137
6.8	Verteilung des Transferfaktors von ^{40}K in Rindfleisch für Neßmerpolder	140
7.1	Anteile der einzelnen Expositionspfade an der Dosis durch Ingestion.	168
7.2	Anteile der unterschiedlichen Nuklide an der Dosis durch Ingestion.	169
7.3	Verteilung der effektiven Jahresdosis durch Ingestion	169
7.4	IMIS ODL-Kartierung für Deutschland	179
7.5	QQ-Plot der Ortsdosisleistung eines beispielhaften IMIS-Datensatzes.	180
7.6	Vergleich der Strahlenexposition in Niedersachsen zu der im gesamten Bundesgebiet	184
7.7	Prozentuale Anteile der einzelnen Expositionspfade an der gesamten Strahlenexposition	185
7.8	Anteile der einzelnen Expositionspfade an der effektiven Jahresdosis	186
8.1	Erwartungswerte der zusätzlichen Strahlenexposition durch Steinkoh- lebergbau entlang der Lippe.	192

Tabellenverzeichnis

4.1	γ -Übergänge von natürlichen Radionukliden	27
4.2	Charakterisierung der Halbleiterdetektoren.	31
4.3	Charakterisierung der Abschirmung der γ -Detektoren.	34
4.4	1. Zusammenstellung der Summationskorrekturen für ^{152}Eu	50
4.5	2. Zusammenstellung der Summationskorrekturen für ^{152}Eu	50
4.6	Mittlere Unsicherheiten der Aktivität in %	56
4.7	Fallunterscheidung bei der Berechnung der charakteristischen Grenzen	62
4.8	Mittlere Erkennungs- und Nachweisgrenzen	64
4.9	BfS Ringversuch Wasser	66
4.10	IAEA-Proficiency-Test	67
4.11	Ringversuch Bf/ST2.3/Boden	67
5.1	Spezifische Aktivität von Weide- und Wiesenbewuchs	78
5.2	Spezifische Aktivität von Fleisch	81
5.3	Spezifische Aktivität von Milch	82
5.4	Zusammenstellung der untersuchten Getreideproben.	84
5.5	Spezifische Aktivität von Getreide	85
5.6	Vergleich der spezifischen Aktivitäten von verschiedenen Getreidesorten	87
5.7	Zusammenstellung der untersuchten Gemüseproben.	88
5.8	Statistische Auswertung Gemüse (Wurzel- und Blattgemüse) 1	91
5.9	Statistische Auswertung Gemüse (Wurzel- und Blattgemüse) 2	92
5.10	Statistische Auswertung der spezifischen Aktivität von Wurzelgemüse.	94
5.11	Zusammenstellung der spezifischen Aktivität der verschiedenen Wurzelgemüsearten	96
5.12	Statistische Auswertung der spezifischen Aktivität von Blattgemüse. . .	98
5.13	Zusammenstellung der spezifischen Aktivität der verschiedenen Blattgemüsearten	100
5.14	Spezifische Aktivität von Brom- und Himbeeren	102
5.15	Spezifische Aktivität von Pilzen	104
5.16	Spezifische Aktivität von Gesamtnahrung	105
5.17	Spezifische Aktivität von Trinkwasser	107
5.18	Zusammenfassung der ermittelten spezifischen Aktivitäten	108
5.19	Verbleibender Aktivitätsanteil nach der Zubereitung	110

6.1	Transferfaktoren für Weide- und Wiesenbewuchs.	119
6.2	Transferfaktoren für Getreide	122
6.3	Vergleich der Transferfaktoren für verschiedene Getreidearten	123
6.4	Transferfaktoren für Wurzelgemüse	128
6.5	Transferfaktoren für Blattgemüse	131
6.6	Transferfaktoren für Him- und Brombeeren sowie Pilze	135
6.7	Parameter des Transfers in Rindfleisch (HLW).	137
6.8	Parameter des Transfers in Rindfleisch (Neßmerpolder).	139
6.9	Transferfaktoren für Rindfleisch.	141
6.10	Parameter und errechneter Transferfaktor für ⁴⁰ K in Schaffsfleisch (HLW), Schweinefleisch (HLW) und Putenfleisch (Schessinghausen).	142
6.11	Transferfaktoren für ⁴⁰ K in Kuhmilch.	143
6.12	Zusammenfassung der Transferfaktoren aus dieser Arbeit. Für Felder ohne Eintrag konnte kein Messwert oberhalb der Erkennungsgrenze ermittelt und somit kein Transferfaktor angegeben werden	145
7.1	Dosisfaktoren für Ingestion nach [ICR96] in Sv/Bq	155
7.2	Zusammenhang zwischen f und der geometrischen Standardabweichung	159
7.3	Mathematisch möglichen Verteilungen der Verzehrsgewohnheiten	160
7.4	Modellannahmen für die Verzehrsgewohnheiten bei der Ingestion von Lebensmitteln.	161
7.5	Zur Modellierung verwandte spezifische Aktivitäten in Gesamtnahrung	162
7.6	Zur Modellierung verwandte spezifische Aktivitäten in Säuglingsnah- rung	163
7.7	Zur Modellierung verwandte spezifische Aktivitäten in Trinkwasser	164
7.8	Verzehrgewohnheiten von Trinkwasser für Deutschland und Nieder- sachsen in kg/a.	165
7.9	Transferierte Bruchteile in die Muttermilch	166
7.10	Effektive Jahresdosis durch Ingestion für Niedersachsen und Deutsch- land	167
7.11	Zur Modellierung verwandte spezifische Aktivität des Bodens in Bq/kg.	170
7.12	Aufenthaltszeiten im Freien und in Gebäuden	171
7.13	Bodenaufnahmeraten in mg/h	171
7.14	effektive Jahresdosis durch Direktingestion von Boden in mSv.	172
7.15	Parameter der Modellierung zur Abschätzung der Dosis durch Radon	173
7.16	Altersabhängige Atemraten, [ICR95] entnommen.	174
7.17	Aktivitätskonzentration von ²²² Rn in der Atemluft	175
7.18	Effektive Jahresdosis durch Inhalation von Radon und Folgeprodukte	175
7.19	Parameter zur Modellierung der Dosis durch die Inhalation von Staub.	177
7.20	Dosisfaktoren für Inhalation nach [ICR96] in Sv/Bq	177
7.21	Effektive Jahresdosis durch Inhalation von Staub	178
7.22	Kennwerte eines durch IMIS ermittelten Tagessatzes der <i>ODL</i>	181
7.23	Parameter der Modellierung der Dosis durch externe Bestrahlung.	182

7.24 Effektive Jahresdosis durch externe Bestrahlung	182
7.25 Effektive Jahresdosis durch natürliche Radionuklide in Niedersachsen und Deutschland	183
7.26 Vergleich der effektiven Jahresdosis für verschiedene Gebiete	185
7.27 Strahlenexposition für Niedersachsen und Deutschland unter der An- nahme von Parametern nach Tabelle 7.28	186
7.28 Zusammenstellung der angenommenen Verteilungen bei Parametern, für die keine weiteren Informationen vorlagen.	188
A.1 Zusammensetzung der Gesamtnahrung.	197
A.2 Beispielhaftes EXCEL-Auswertblatt (I)	203
A.3 Beispielhaftes EXCEL-Auswertblatt (II)	204
A.4 Spezifische Aktivität aller Proben bezogen auf das Feuchtgewicht . . .	205
A.5 Aschgewicht, Trockengewicht und Feuchtgewicht von Gemüse	212
A.6 Aschgewicht, Trockengewicht und Feuchtgewicht von Pilzen und Beeren	213
A.7 Trocken- und Feuchtgewicht der untersuchten Milchproben.	214
A.8 Aschgewicht, Trockengewicht und Feuchtgewicht von Getreidekorn .	215
A.9 Aschgewicht, Trockengewicht und Feuchtgewicht von Getreidestroh .	216
A.10 Aschgewicht, Trockengewicht und Feuchtgewicht von Weide- und Wie- senbewuchs	217
A.11 Asch- und Feuchtgewicht der Gesamtnahrung	218
A.12 Charakterisierung des Multielementstandard QCY48	219
A.13 Charakterisierung des Multielementstandard QCYB40	219
A.14 Beschreibung der Probennahmeorte	220
A.15 Spezifische Aktivitäten in Fleisch (Literaturangaben)	221
A.16 Spezifischen Aktivitäten in Getreidekorn im Vergleich mit der Literatur	222
A.17 Spezifischen Aktivitäten in Wurzelgemüse im Vergleich mit der Literatur	225
A.18 Spezifischen Aktivitäten in Blattgemüse im Vergleich mit der Literatur	229
A.19 Transferfaktor für Getreidekorn im Vergleich mit der Literatur	233
A.20 Vergleich der Transferfaktoren verschiedener Getreidesorten	236
A.21 Transferfaktor für Wurzelgemüse im Vergleich mit der Literatur . . .	237
A.22 Transferfaktoren für Blattgemüse im Vergleich mit der Literatur . . .	241

1 Einleitung

Nicht allein in Rechnungssachen
soll der Mensch sich Mühe machen;
sondern auch der Weisheit Lehren
muß man mit Vergnügen hören.

*Wilhelm Busch
Max und Moritz (4. Streich)*

Zum ersten Mal seit der Festsetzung von Regelwerken zum Strahlenschutz wurde in den so genannten EURATOM-Grundnormen [EUR96] die Strahlenexposition durch natürliche radioaktive Stoffe bei Arbeiten berücksichtigt. Dies wurde notwendig, da die Existenz von natürlichen Radionukliden zu einer erheblichen Erhöhung der Strahlenexposition führen kann, die nicht nur in derselben Größenordnung wie die Exposition durch künstliche Radionuklide liegt, sondern die zuletzt genannte zum Teil deutlich übertreffen kann. Dabei wird in den EURATOM-Grundnormen zwischen Tätigkeiten und Arbeiten unterschieden:

- **Tätigkeiten** sind menschliche Betätigungen, die die Strahlenexposition von Einzelpersonen aus einer künstlichen Strahlenquelle oder bei der Verarbeitung natürlicher Radionuklide *auf Grund deren Radioaktivität, Spaltbarkeit oder Brüteneigenschaften* erhöhen können.
- **Arbeiten** hingegen stellen Handlungen dar, die, ohne Tätigkeiten zu sein, bei natürlicher vorkommender Radioaktivität die Strahlenexposition erhöhen können.

Während also bei Tätigkeiten Handlungen auf Grund der natürlichen Radioaktivität eines Stoffes erfolgen, sind bei Arbeiten Strahlenexpositionen durch natürliche Radionuklide möglich, ohne dass die natürliche Radioaktivität des betreffenden Stoffes zielgerichtet eingesetzt wurde. Zusätzlich wird in den EURATOM-Grundnormen (Artikel 45, Absatz a) gefordert, dass die Abschätzung der Strahlenexposition „so *realistisch wie möglich*“ vorgenommen werden muss.

Als Umsetzung der EURATOM-Grundnormen hielten diese Bestimmungen durch die Novellierung der Strahlenschutzverordnung [Str01] im August 2001 Einzug in die bundesdeutsche Gesetzgebung. Dabei finden neben den natürlich vorkommenden ra-

radioaktiven Stoffen an Arbeitsplätzen (§ 95) und dem Schutz des fliegenden Personals vor Expositionen durch kosmische Strahlung (§ 103), auf die im Rahmen dieser Arbeit nicht weiter eingegangen wird, auch der Schutz der Bevölkerung bei natürlich vorkommenden radioaktiven Stoffen (§§ 97 - 102) Berücksichtigung. Dort wurde als Richtwert für die Strahlenexposition einer Einzelperson der Bevölkerung aufgrund von Überwachungsbedürftigen Rückständen als Folge der Ausübung von Arbeiten in § 97 (1) die effektive Dosis von 1 mSv im Kalenderjahr festgelegt. Arbeitsfelder, die zu Überwachungsbedürftigen Rückständen dieser Art führen, findet man in Anlage XII Teil A der StrlSchV. Dort werden genannt:

1. Schlämme und Ablagerungen aus der Gewinnung von Erdöl und Erdgas;
2. Nicht aufbereitete Phosphogipse, Schlämme aus deren Aufbereitung sowie Stäube und Schlacken aus der Verarbeitung von Rohphosphat (Phosphorit);
 - a) Nebengestein, Schlämme, Sande, Schlacken und Stäube
 - i. aus der Gewinnung und Aufbereitung von Bauxit, Columbit, Pyrochlor, Mikrolyth, Euxenit, Kupferschiefer-, Zinn-, Seltene-Erden- und Uranerzen,
 - ii. aus der Weiterverarbeitung von Konzentraten und Rückständen, die bei der Gewinnung und Aufbereitung dieser Erze und Mineralien anfallen, sowie
 - b) den o.g. Erzen entsprechende Mineralien, die bei der Gewinnung und Aufbereitung anderer Rohstoffe anfallen;
3. Stäube und Schlämme aus der Rauchgasreinigung bei der Primärverhüttung in der Roheisen- und Nichteisenmetallurgie.

Aber auch hier nicht genannte Arbeitsfelder wie z.B. der Steinkohlebergbau können zu einer Erhöhung der Strahlenexposition der Bevölkerung führen, worauf in aller Kürze im Ausblick und detaillierter in [Vah02] eingegangen wird. Zusammengefasst muss also festgestellt werden, dass seit in Kraft treten der aktuellen Strahlenschutzverordnung die durch Arbeiten bedingte Strahlenexposition für Einzelpersonen der Bevölkerung so realistisch wie möglich zu ermitteln ist. Damit ergeben sich unmittelbar folgende Fragestellungen:

- Was bedeutet „so realistisch wie möglich“ in der Praxis, d.h. wie gut sind unsere Kenntnisse über das Verhalten von natürlichen Radionukliden in der Umwelt? Die Ermittlung der zusätzlichen Strahlenexposition durch Rückstände von Arbeiten bedarf Messungen und Modellierungen. Je größer die Anzahl der gemessenen Parameter und je geringer die Anzahl der modellierten Größen ist, desto realistischere Ergebnisse sollte die Abschätzung der zusätzlichen Strahlenexposition durch Arbeiten ergeben. Aber selbst bei umfangreichen Messungen wird man gezwungen sein, Annahmen in Form von Transferfaktoren oder in

Gestalt von Parametern, die das Verhalten der exponierten Person beschreiben (Verzehrgewohnheiten, Aufenthaltszeiten an bestimmten Orten usw.) festzulegen. Aber wie gut entsprechen aus der Literatur entnommene Parameter der zu untersuchenden Situation, so dass die Forderung nach Realismus hinreichend erfüllt ist?

- Natürliche Radioaktivität ist allgegenwärtig. Um den Anteil der Strahlenexposition durch die bei den Arbeiten angefallenen Rückständen so realistisch wie möglich abschätzen zu können, bedarf es der möglichst exakten Kenntnis der natürlicherweise vorhandenen Radioaktivität. Diese „background“-Aktivität ist aber keinesfalls konstant sondern variiert sowohl räumlich als auch zeitlich. Folglich sollte für die durchzuführenden Untersuchungen die Variabilität der natürlichen Strahlenexposition bekannt sein.

Bei dem Versuch, diese Fragen zu beantworten, stellt man fest, dass die Datengrundlage für natürliche Radionuklide im Vergleich zu künstlichen recht dünn ist. Beispielsweise findet man eine Zusammenstellung der wichtigsten Faktoren zur Abschätzung einer Strahlenexposition bezüglich des Transfers von Radionukliden in [TRS94]. Die dort präsentierten Werte sind Ergebnisse einer weltweiten von der Internationalen Atom Energie Behörde (IAEA) in Zusammenarbeit mit der International Union of Radioecology (IUR) durchgeführten Literaturrecherche. Inwieweit diese Parameter als für Deutschland repräsentativ angesehen werden können, ist dabei je nach Datengrundlage für viele Parameter durchaus fraglich. Veröffentlichte Untersuchungen zur Strahlenexposition durch natürliche Radionuklide und daraus gewonnene Erkenntnisse zur Radioökologie derselben fanden bisher zumeist in Gegenden erhöhter natürlicher Radioaktivität statt und können somit nicht zwangsläufig auf Gebiete mit geringer natürlicher Radioaktivität übertragen werden. Als mittlere Strahlenexposition durch natürliche Radionuklide gibt das United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation (UNSCEAR) eine effektive Jahresdosis von 2,4 mSv an [UNS00]; ebenfalls 2,4 mSv gibt das Bundesamt für Strahlenschutz (BfS) in [BfS01] an¹. Allerdings findet man sowohl in [UNS00] als auch in [BfS01] keine präzisen Angaben über die Schwankungsbreite der natürlichen Strahlenexposition.

Es ist daher Ziel dieser Arbeit, einen Beitrag zum besseren Verständnis des Verhaltens von natürlichen Radionukliden in terrestrischen Ökosystemen in Gegenden geringer Radioaktivität zu leisten. Aus diesem Grund wurden umfangreiche Untersuchungen in Niedersachsen unter Berücksichtigung der Aktivität in Böden, Weide- und Wiesenbewuchs, Blatt- und Wurzelgemüse, Getreide (Korn und Stroh), Fleisch (Rind, Schwein, Schaf, Wildschwein), Milch und Gesamtnahrung durchgeführt. Darüber hinaus wird in dieser Arbeit mit Hilfe einer Monte-Carlo-Simulation die natürliche Strahlenexposition in Niedersachsen zusammen mit ihrer Schwankungsbreite bestimmt.

¹Durch die Berücksichtigung des epidemiologischen Ansatzes für die Strahlenexposition durch Radon und Folgeprodukte ergibt sich eine mittlere effektive Dosis von 2,1 mSv.

Man findet in Kapitel 2 eine allgemeine Einführung in Grundkenntnisse und Begrifflichkeiten der natürlichen Radionuklide. Kapitel 3 behandelt die Probennahme, während in Kapitel 4 die Analysemethode, nämlich die γ -Spektrometrie, ausführlich besprochen wird. In Kapitel 5 findet man die spezifischen Aktivitäten der untersuchten Proben zusammen mit einem ausführlichen Vergleich der in der Literatur bereits vorhandenen Daten. Kapitel 6 behandelt den Transfer von natürlichen Radionukliden zwischen den einzelnen Kompartimenten, wobei ebenfalls ein umfangreicher Vergleich mit der Literatur dargestellt wird. Kapitel 7 beinhaltet schließlich die Modellierung der für Niedersachsen repräsentativen Strahlenexposition, wobei durch Monte-Carlo-Simulationen die Variabilität der Parameter berücksichtigt und eine möglichst realistische Abschätzung der Schwankungsbreite der Strahlenexposition vorgenommen werden konnte.

2 Natürliche Radionuklide

2.1 Herkunft und Vorkommen natürlicher Radionuklide

In der Natur kommen etwa 80 Radionuklide in messbaren Konzentrationen vor [Sie96], die man im Wesentlichen in *kosmogene, primordiale* oder einer *Zerfallsreihe* zugehörige Nuklide einteilen kann.

Die ca. 15 kosmogenen Radionuklide werden durch Wechselwirkung entweder zwischen der primären kosmischen Strahlung und Atomen in der Atmosphäre oder durch Wechselwirkung zwischen den sekundären Neutronen der kosmischen Strahlung gebildet. Von diesen kosmogen erzeugten Radionukliden spielen für die menschliche Strahlenexposition höchstens ^3H sowie ^7Be , ^{14}C und ^{22}Na eine Rolle [Tyk95]. ^{14}C findet in der Datierung eine weit reichende Anwendung und führt im Mittel nach [UNS93] zu einer effektiven Jahresdosis von $12\ \mu\text{Sv}$ für Erwachsene. Die Dosisbeiträge der anderen drei genannten Radionuklide liegen um Größenordnungen tiefer [UNS93].

Als primordiale Radionuklide bezeichnet man solche, die eine so große Halbwertszeit haben, dass sie noch in messbaren Mengen auf der Erde zu finden sind. Neben ^{40}K , das für die Strahlenexposition des Menschen durch Ingestion eine bedeutende Rolle spielt, sind noch ^{238}U , ^{235}U und ^{232}Th hervorzuheben, da sie jeweils die Ausgangsnuklide der nach ihnen benannten und in Abbildung 2.1 gezeigten Zerfallsreihen sind¹. Dabei sind 45 der 80 natürlichen Radionuklide Mitglieder einer dieser drei Zerfallsreihen. Die ursprünglich noch vorhandene $^{241}\text{Pu}/^{237}\text{Np}$ -Zerfallsreihe enthält Radionuklide, deren Halbwertszeit klein gegenüber geologischen Vorgängen ist, so dass diese vierte Zerfallsreihe und ihre Mitglieder ausgestorben sind.

Im Folgenden wird kurz auf die Verteilung und die Geochemie einiger wichtigen natürlicher Radionuklide eingegangen.

¹Man findet für die ^{238}U -Reihe auch häufig die Bezeichnung „Uran-Radium-Reihe“, wo hingegen die ^{235}U -Reihe auch als „Uran-Actinium-Reihe“ in der Literatur anzutreffen ist.

2.1.1 Kalium

Kalium gehört mit einer Häufigkeit von 2,3 % nach Sauerstoff, Silizium, Aluminium, Eisen, Magnesium und Calcium zu den häufigsten Elementen der Erde. Dabei liegt Kalium auf der Erde zu 93,2 % als ^{39}K , zu 6,73 % als ^{41}K und nur mit einer Häufigkeit von 0,0117 % als primordiales, radioaktives Isotop ^{40}K mit einer Halbwertszeit von $1,28 \cdot 10^9$ Jahren vor. Es zerfällt als β -Strahler entweder zu stabilem ^{40}Ca oder wandelt sich durch Neutroneneinfang zum stabilen ^{40}Ar um [Pfe95].

Kalium stellt ein wichtiges Kation bei der Bildung der verschiedenen gesteinsbildenden Silikate dar, wobei vor allem Feldspate, Glimmer und Tonminerale zu nennen sind. In Gesteinen ist Kalium in einer breiten Spanne vertreten, die Gehalte reichen von 0,004 % in Ultrabasit bis über 5 % in einigen Graniten und Tonsteinen [Kem96].

Nach [Ell02] weisen Böden einen geringeren Kaliumgehalt als das Ausgangsgestein auf. Da jedoch bei Verwitterung ein Kaliumverlust durch Hydrolyse der Silikate und durch anschließende Verlagerung des mobilen Kations mit dem Sicker- und Porenwasser stattfinden kann, berichtet [Kem96] im Gegensatz zu [Ell02], dass Kalium in Böden gegenüber dem Ausgangsgestein in den meisten Fällen angereichert vorliegt. Auf Grund der großen Schwankungsbreite in Gesteinen, variieren auch die mittleren Gehalte an ^{40}K in Böden erheblich. So werden in [Bun97] die mittlere spezifische Aktivität von ^{40}K mit 440 Bq/kg mit einer Schwankungsbreite von 0,2 bis 1200 Bq/kg angegeben.

Kalium nimmt als Kation K^+ sehr intensiv am biologischen Kreislauf teil und wird dabei bevorzugt in Pflanzen eingebaut [Kem96]. Dabei ist vor allem das wasserlösliche, austauschbare, aber zum Teil auch das in Schicht-Silikaten gebundene, mit NH_4^+ nicht austauschbare K^+ , leicht pflanzenverfügbar [Sch89].

2.1.2 Thorium

In den oben genannten Zerfallsreihen kommen sechs Thorium-Isotope vor. Dabei hat ^{232}Th als Ausgangsnuklid der Thorium-Reihe mit $1,41 \cdot 10^{10}$ Jahren die mit Abstand längste Halbwertszeit [Pfe95]. In dieser Zerfallsreihe (siehe Abbildung 2.1 auf Seite 11) entsteht als Tochternuklid ^{228}Th mit einer Halbwertszeit von 1,9 Jahren. Aus der ^{238}U -Reihe stammen ^{234}Th ($t_{1/2} = 24,1$ d) und ^{230}Th ($t_{1/2} = 75\,400$ a) und auch die ^{235}U -Reihe enthält mit ^{231}Th ($t_{1/2} = 25,4$ h) und ^{227}Th ($t_{1/2} = 18,2$ d) zwei Thoriumisotope. Dabei ist Thorium mit einem angenommenen mittleren Gehalt in der Erdkruste von 13 ppm (von geologischen Anomalitäten abgesehen) ungefähr fünfmal häufiger als Uran. Thorium besitzt mit der Oxidationsstufe vier vorliegend als Th(IV) einen mit $1,1 \text{ \AA}$ ähnlichen Ionenradius im Vergleich zu Uran. Dies hat zur Folge, dass Thorium in den Hauptmineralien nur in Spurengehalten von einigen wenigen ppm vorliegt [Kem96]. Wie Uran auch, zeigt Thorium einen stark lithophilen Charakter [Dur86].

Allerdings ist Thorium im Gegensatz zu Uran mit der Oxidationsstufe +VI (s.u.) in natürlichen Wässern nur sehr schwer löslich und zeigt dementsprechend eine geringe Mobilität, wobei der effektivste Transport als Suspension mit feinkörnigen Gesteinsdetritus stattfindet. Man findet hohe Gehalte an Thorium u.a. in Bauxiten, Bentoniten, pelagischen Tonen und Mangan-Knollen, was sich durch seine gute Adsorptionsfähigkeit an Tonmineralien, Oxiden und Hydroxiden sowie Kolloiden und organischem Material erklären lässt [Kem96].

In Böden liegt Thorium im Vergleich zum Ausgangsmaterial meist angereichert vor [Kem96]. Häufig beobachtet man dabei eine Migration des Thoriums in den B-Horizont des Bodens, was einerseits durch eine Mobilisierung des Thoriums durch Komplexbildung mit organischen Bestandteilen des Bodens [Ell02] und andererseits mit der Verlagerung von Tonmineralien bei der Entstehung des Bodens [Kem96] erklärt wird.

2.1.3 Uran

Natürliches Uran besteht zu 99,275 % aus ^{238}U , zu 0,72 % aus ^{235}U und nur zu 0,005 % aus ^{234}U . Dabei bilden ^{238}U ($t_{1/2} = 4,5 \cdot 10^9$ a) und ^{235}U ($t_{1/2} = 7,0 \cdot 10^8$ a) die Ausgangsnuklide der nach ihnen benannten Zerfallsreihen (s.o.) [Pfe95]. Uran liegt in der Natur in zwei Oxidationsstufen, nämlich +IV und +VI, vor. Ob es in der schwer löslichen vierwertigen oder in der leichtlöslichen sechswertigen Form vorliegt, hängt dabei stark vom chemischen Milieu ab. Das bei der Oxidation von U(IV) entstandene U(V) ist lediglich in Bereichen mit sehr niedrigem Redoxpotenzial stabil und wird daher in aller Regel sehr schnell zu U(VI) weiteroxidiert [Kem96]. Uran kommt in Oxiden, Hydroxiden, Phosphaten, Carbonaten, Sulfaten, Arsen-, Vanadium-, Molybdän- und Siliziumverbindungen vor, wobei die Bindung zumeist ionisch ist [Dur86]. Liegt es sechswertig als Uranyl-Kation (UO_2^{2+}) vor, wird es leicht mit anorganischen Anionen wie z.B. OH^- , CO_3^{2-} oder PO_4^{3-} komplexiert und gewinnt dabei an Mobilität [Ell02], wobei das freie UO_2^{2+} -Kation nur bei niedrigen pH-Werten unter 3 bis 4 existieren kann. Da Uran, ähnlich dem Thorium, einen großen Ionenradius aufweist (U(IV) = 1,05 Å, U(VI) = 0,80 Å), ist es ein geochemisch inkompatibles Element [Kem96], das in der Erdkruste mit einem durchschnittlichen Gehalt von 2,5 ppm zu finden ist [Fra02]. Uran-Anreicherungen erklären sich in aller Regel durch das chemische Ausfällen von Uranverbindungen aus wässrigen Lösungen. Dabei spielen Änderungen im pH-Wert des Milieus, ein Wechsel von oxidierenden zu reduzierenden Bedingungen oder Temperaturschwankungen eine Rolle [Kem96]. Hohe Urangehalte findet man in siliziumhaltigen Gesteinen, die aus abkühlender Magma entstanden sind. Der Uran-Gehalt in Sedimentgesteinen schwankt: Hohe Konzentrationen findet man in Schwarzschiefer, phosphathaltigen Gesteinen sowie Kupferschiefer [Dur86], wohingegen die Konzentration von Uran in Kalken eher gering ist, was unter anderem auf die gute Löslichkeit von Carbonaten in Wässern zurückzuführen ist. Silikatreiche Gesteine wie Granite und Pegamite bilden die wichtigsten primären Quellen des

Urans. So findet man in Albit-Riebeckit-Graniten in Vermont und Colorado (USA) Urankonzentrationen von bis zu 130 ppm und im Kirchberger Granit aus Sachsen von bis zu 20 ppm [Kem96].

2.1.4 Radium

Es existieren nach heutigem Kenntnisstand 25 Isotope des Erdalkalimetalls Radium, die alle radioaktiv sind. Von besonderem Interesse sind die in den natürlichen Zerfallsreihen auftretenden Isotope ^{224}Ra ($t_{1/2} = 3,7$ d) und ^{228}Ra ($t_{1/2} = 5,8$ a) aus der ^{232}Th -Zerfallsreihe, ^{223}Ra ($t_{1/2} = 11,4$ d) aus der ^{235}U -Zerfallsreihe und vor allem ^{226}Ra ($t_{1/2} = 1600$ a) aus der ^{238}U -Zerfallsreihe. Dabei ist auf Grund seiner Halbwertszeit lediglich ^{226}Ra von geologischer Bedeutung. In aller Regel liegen Radiumisotope in Gesteinen im Gleichgewicht mit den Mutternukliden vor, wohingegen es in Böden auf Grund geochemischer Prozesse zu Ungleichgewichten kommen kann [Kem96]. Die Löslichkeit von Radium hängt von der Form der chemischen Bindung ab: Als Chlorid ist es leicht, als Carbonat oder Sulfat nur schwer löslich. In carbonat- oder sulfathaltigen Wässern kommt es daher vor allem in Gegenwart des chemisch ähnlichen und in höheren Konzentrationen vorliegenden Bariums zur Mitfällung von Radium.

^{226}Ra ist dabei auch aus radioökologischer Sicht hervorzuheben, da es das direkte Mutternuklid von ^{222}Rn ($t_{1/2} = 3,8$ d) ist, einem Edelgas, das für einen Großteil der Strahlenexposition aus natürlichen Quellen verantwortlich ist. Des Weiteren tritt als Tochter des ^{222}Rn nach einer Reihe von kurzlebigen Nukliden ($t_{1/2} < 30$ min) mit ^{210}Pb ($t_{1/2} = 22,3$ a) ein weiteres Leitnuklid auf, das mit ^{210}Po ein für die Strahlenexposition durch Ingestion bedeutsames Tochternuklid erzeugt. Da die Zeitskalen zur Bildung der Tochternuklide von ^{226}Ra wie oben geschildert klein gegenüber geologischen Zeiträumen sind, kommt der Konzentration von ^{226}Ra in Umweltmedien eine besondere Bedeutung zu.

Ebenfalls für die Strahlenexposition durch Ingestion bedeutsam ist ^{228}Ra , das sich im Vergleich zu ^{226}Ra durch einen höheren Dosiskoeffizienten für Ingestion hervorhebt [EUR96].

2.2 Gleichgewichte und Ungleichgewichte

Radioaktiver Zerfall ist ein stochastischer Prozess. Betrachtet man hinreichend viele radioaktive Atome N , so gilt für die Zerfallsrate dN/dt :

$$-\frac{dN}{dt} = N\lambda = A. \quad (2.1)$$

Dabei wird λ als Zerfallskonstante bezeichnet und steht mit der Halbwertszeit $t_{1/2}$ über

$$t_{1/2} = \frac{\ln 2}{\lambda} \quad (2.2)$$

in Zusammenhang. Integriert man Gleichung (2.1), so erhält man als Lösung:

$$N(t) = N(0) \cdot e^{-\lambda \cdot t}, \quad (2.3)$$

wobei $N(0)$ die Anzahl der Kerne zu einem Zeitpunkt $t = 0$ ist.

Betrachtet man innerhalb einer Zerfallsreihe zwei aufeinander folgende Nuklide, also $(1) \rightarrow (2)$, so gilt für die Bildungsrate des Tochternuklids

$$\frac{dN_2(t)}{dt} = \lambda_1 \cdot N_1 - \lambda_2 \cdot N_2. \quad (2.4)$$

Diese lineare Differentialgleichung erster Ordnung hat die Lösung [Lie91]:

$$N_2(t) = N_1(0) \frac{\lambda_1}{(\lambda_2 - \lambda_1)} \left(e^{-\lambda_1 \cdot t} - e^{-\lambda_2 \cdot t} \right) + N_2(0) \cdot e^{-\lambda_2 \cdot t}. \quad (2.5)$$

Man kann diese Überlegungen auf eine größere Anzahl von Nukliden ausdehnen, die dann eine Zerfallsreihe bilden können:

$$(1) \rightarrow (2) \rightarrow (3) \rightarrow (4) \rightarrow \dots \rightarrow (n).$$

Das radioaktive Gleichgewicht, das sich zwischen den Folgeprodukten und dem Mutternuklid einstellt, kann ebenso behandelt werden wie das radioaktive Gleichgewicht zwischen zwei Nukliden.

Man erhält dann in Analogie zu Gleichung (2.4) einen Satz von linearen Differentialgleichungen erster Ordnung:

$$\begin{aligned} \frac{dN_1}{dt} &= -\lambda_1 N_1 \\ \frac{dN_2}{dt} &= \lambda_1 N_1 - \lambda_2 N_2 \\ \frac{dN_3}{dt} &= \lambda_2 N_2 - \lambda_3 N_3 \\ &\vdots \\ \frac{dN_n}{dt} &= \lambda_{n-1} N_{n-1} - \lambda_n N_n. \end{aligned} \quad (2.6)$$

Die Lösungen der Gleichungen (2.6) sind als so genannte Batemann-Gleichungen bekannt und können [Lie91] oder [Cho01] entnommen werden.

Betrachtet man vereinfachend nur den Fall zweier Nuklide, so ergeben sich aus Gleichung (2.5), je nachdem, wie das Verhältnis zwischen den Halbwertszeiten von Mutter- und Tochternuklid sind, unterschiedliche Konsequenzen, die im Folgenden kurz diskutiert werden sollen.

2.2.1 Säkulares Gleichgewicht

Für den Fall, dass die Halbwertszeit des Mutternuklids sehr viel größer ist als die Halbwertszeit der Tochter, also $t_{1/2}(1) \gg t_{1/2}(2)$ und unter der Voraussetzung, dass zum Zeitpunkt $t = 0$ eine quantitative Trennung von Mutter- und Tochterkernen stattgefunden hat, folgt aus Gleichung (2.5)

$$N_2(t) \approx \frac{\lambda_1}{\lambda_2} N_1(0) \cdot e^{-\lambda_1 t} \left(1 - e^{-(\lambda_2 - \lambda_1)t}\right) \quad (2.7)$$

$$\approx \frac{\lambda_1}{\lambda_2} N_1(t) \left(1 - e^{-(\lambda_2 - \lambda_1)t}\right). \quad (2.8)$$

Da $t \gg (\lambda_2 - \lambda_1)^{-1}$ folgt

$$N_2(t) = \frac{\lambda_1}{\lambda_2} N_1(t) \quad (2.9)$$

und schließlich

$$A_2 = \lambda_2 \cdot N_2(t) = \lambda_1 \cdot N_1(t) = A_1, \quad (2.10)$$

was bedeutet, dass die Aktivität der Mutter gleich der Aktivität der Tochter ist.

Für den Fall, dass auf das Tochternuklid noch weitere Zerfälle folgen, wobei die Halbwertszeiten der Zerfallsprodukte klein sind gegenüber der Halbwertszeit des Mutternuklids (also $\lambda_1 \ll \lambda_2, \lambda_3, \dots, \lambda_n$), gilt dann $A_1 = A_k$ für $k = 2, \dots, n$.

Dies hat bei der praktischen Bestimmung der Aktivität von natürlichen Radionukliden aus Zerfallsreihen eine weit reichende Bedeutung, denn dann lassen sich unter der Voraussetzung, dass sich ein säkulares Gleichgewicht eingestellt hat und keine der Töchter aus dem Umweltkompartiment entfernt wurde, die Aktivität der Mutter über die Aktivität einer der kurzlebigen Töchter bestimmen. Als Beispiel mag hier die Bestimmung der Aktivität des Leitnuklides ^{226}Ra dienen, dessen Folgeprodukte mit Ausnahme der direkten Tochter ^{222}Rn ($t_{1/2} = 3,8$ d) bis zum ^{210}Pb Halbwertszeiten in der Größenordnung von Minuten oder darunter besitzen (siehe Abb. 2.1). ^{226}Ra selber weist im

Zerfallsschema lediglich einen γ -Übergang bei einer Energie von 186,10 keV mit einer Emissionswahrscheinlichkeit von 3,51 % [Sch98b] auf. Da ^{235}U bei 185,72 keV γ -Quanten mit einer Wahrscheinlichkeit von 57,2 % emittiert und der Abstand der beiden Linien immer unterhalb des Auflösungsvermögens des Detektors liegt, scheidet die 186,1 keV Linie des ^{226}Ra immer dann zur direkten Bestimmung der ^{226}Ra -Aktivität aus, wenn das Vorkommen von ^{235}U in der Probe nicht ausgeschlossen werden kann - was praktisch immer der Fall ist. Deshalb bietet es sich an, das säkulare Gleichgewicht zwischen ^{226}Ra und seinen Zerfallsprodukten bis zum ^{210}Pb abzuwarten und dann die Aktivität eines dieser Zerfallsprodukte zu bestimmen. In diesem Fall kann in der Praxis nach sechs bis sieben Halbwertszeiten von einem säkularen Gleichgewicht ausgegangen werden, was also einer Zeitspanne von mindestens drei Wochen entspricht. Eine genaue Auflistung der zur Auswertung benutzten Linien eines γ -Spektrums findet man in Tabelle 4.1 auf Seite 27.

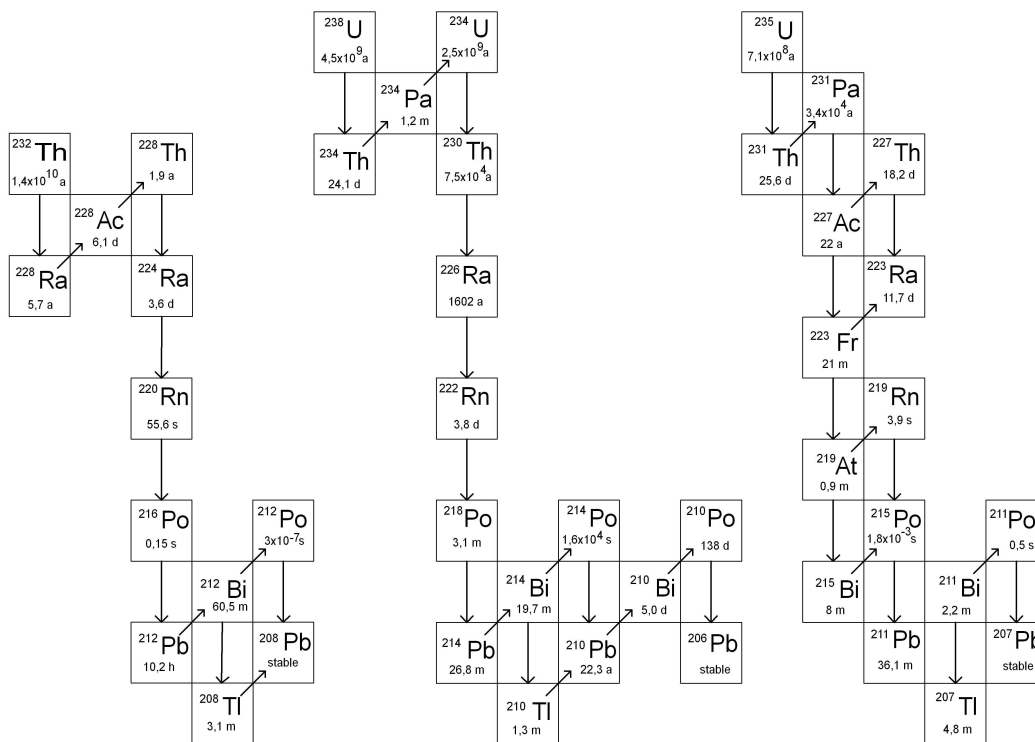


Abbildung 2.1: Die drei noch existierenden Zerfallsreihen. Links die ^{232}Th -Reihe, in der Mitte die ^{238}U -Reihe und rechts die ^{235}U -Reihe (entnommen aus [Val00]).

2.2.2 Transientes Gleichgewicht

Von einem transienten Gleichgewicht spricht man dann, wenn der Zerfall des Mutternuklids nicht mehr, wie beim säkularen Gleichgewicht, vernachlässigt werden kann [Lie91]. In diesem Fall ist dann $t_{1/2}(1) > t_{1/2}(2)$, so dass Gleichung (2.5) wie folgt genähert werden kann:

$$N_2(t) \approx \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_1(t) \left(1 - e^{-(\lambda_2 - \lambda_1)t}\right). \quad (2.11)$$

Wegen $t \gg (\lambda_2 - \lambda_1)^{-1}$ folgt dann

$$N_2(t) = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_1(t) \quad (2.12)$$

und somit

$$\frac{A_2(t)}{A_1(t)} = \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1}. \quad (2.13)$$

Während im säkularen Gleichgewicht die Aktivitäten von Mutter und Tochter also gleich groß sind, ist im transienten Gleichgewicht die Aktivität des Tochternuklids größer als die des Mutternuklids, und zwar um so mehr, je größer die Differenz zwischen λ_2 und λ_1 ist.

2.2.3 Kein Gleichgewicht

Ist die Halbwertszeit der Mutter kleiner als die der Tochter, gilt also $t_{1/2}(1) < t_{1/2}(2)$, so stellt sich kein radioaktives Gleichgewicht ein. Gleichung (2.5) kann dann durch

$$N_2(t) = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} \cdot N_1(0) \cdot e^{-\lambda_2 t} \left(e^{-(\lambda_1 - \lambda_2)t} - 1 \right) \quad (2.14)$$

$$= \frac{\lambda_1}{\lambda_1 - \lambda_2} \cdot N_1(0) \cdot e^{-\lambda_2 t} \left(1 - e^{-(\lambda_1 - \lambda_2)t} \right) \quad (2.15)$$

genähert werden. Folglich gilt $\frac{N_1(t)}{N_2(t)} \neq const$ und somit $\frac{A_1(t)}{A_2(t)} \neq const$.

3 Probenahme

3.1 Einleitung

In der Kette der Arbeitsabläufe von der Probenahme bis hin zum Messergebnis kommt der Probenahme zweifelsohne eine besondere Bedeutung zu. Unterlaufen nämlich bei der Probenahme Fehler oder werden wichtige Informationen nicht oder nur unzureichend dokumentiert, so ist das später erhaltene Messergebnis wertlos. Aus diesem Grund weist z.B. die Staatliche Landwirtschaftliche Untersuchungs- und Forschungsanstalt (LUF) in Münster darauf hin, dass nach Möglichkeit die Probenahme „geschulten Probenehmern“ überlassen werden sollte [LUF01]. Da dies im Rahmen dieser Doktorarbeit nicht möglich war, wurde versucht, die in [Mes00d] beschriebene Vorgehensweise umzusetzen. Prinzipiell orientiert sich die Probenahme und der damit einhergehende Aufwand immer am eigentlichen Zweck der Untersuchung und an der im Anschluss zu treffenden Aussage [Tsc98].

Zur Dokumentation wurde eine Datenbank im MS-ACCESS[®]-Format angelegt, in der alle relevanten Parameter wie z.B. die Art der Probenbehandlung, Feuchtgewicht (FG), Trockengewicht (TG), Aschgewicht (AG) oder der Ort der Lagerung festgehalten wurden. Damit wird zum einen gewährleistet, dass die notwendigen Angaben vollständig dokumentiert vorliegen und zum anderen die Möglichkeit geschaffen, die bereits γ -spektrometrisch untersuchten Proben später anderen Analyseverfahren (z.B. α - oder β -Spektrometrie) zugänglich zu machen.

Der Zeitraum der Probenahme erstreckte sich vom Mai 2001 bis Mai 2003. Dabei wurden an insgesamt 11 verschiedenen Standorten in Niedersachsen Proben gesammelt und in das ZSR zur weiteren Verarbeitung verbracht. Abbildung 3.1 zeigt die wichtigsten Probenahmeorte; detailliertere Angaben befinden sich in Tabelle A.14 im Anhang auf Seite 220.

Die Auswahl der an der Probenahme beteiligten landwirtschaftlichen Betriebe versucht, die unterschiedlichen Regionen in Niedersachsen repräsentativ zu vertreten. Durch die Betriebe „Neßmerpolder“ und „Gründeich“ standen zwei küstennahe Standorte, durch die Höfe „Schessinghausen“, „Gestorf“, „Hermannsdorfer Landwerkstätten (HLW)“ und „Jeinsen“ Standorte um Hannover und mit „Schlewecke“ ein Betrieb im Harzvorland als Probenahmeorte zur Verfügung. Eine grobe bodenkundliche Einschätzung der Standorte, die anhand von [Ben97] und der dazu gehörigen digitalen

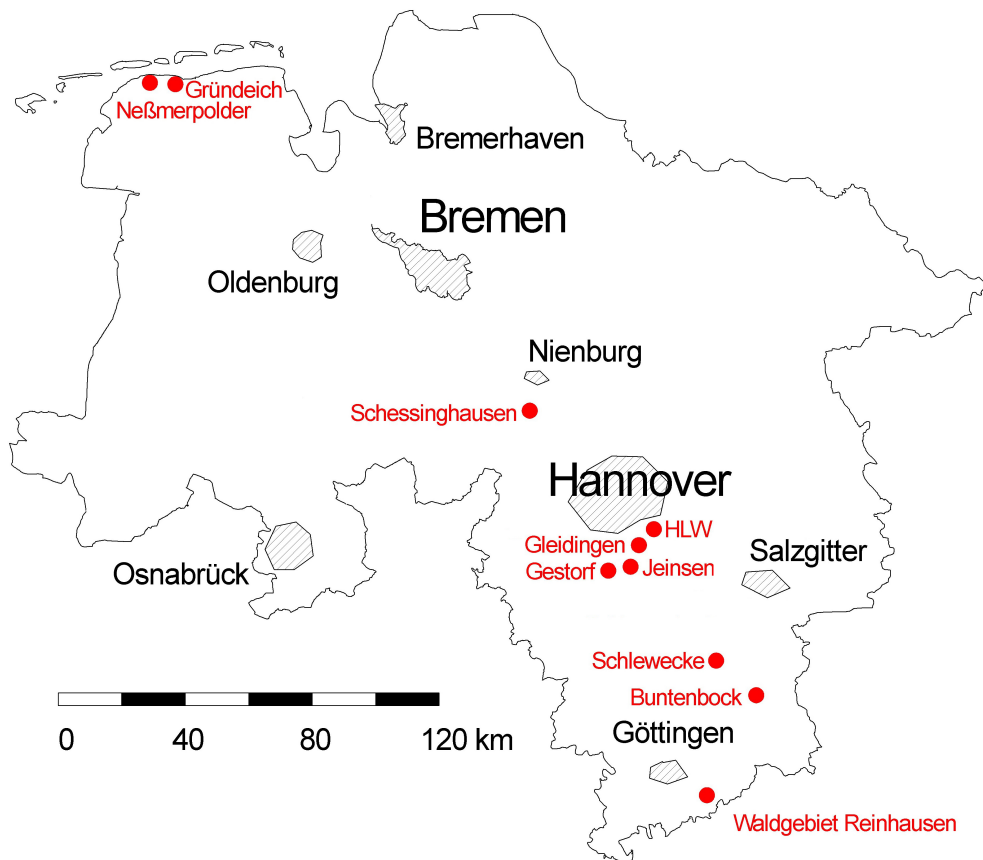


Abbildung 3.1: Standorte der Probenahme in Niedersachsen.

bodenkundlichen Übersichtskarte erfolgte, ist ebenfalls in Tabelle A.14 im Anhang zu finden.

Insgesamt wurden in den zwei Jahren ca. 220 Proben entnommen und am ZSR γ -spektrometrisch untersucht.

3.2 Boden

Verfahren zur repräsentativen Entnahme von Boden werden z.B. in [Mes00c] und [Bre94] beschrieben. Dabei wird das zu beprobende Gelände in einem Zickzackkurs möglichst gleichmäßig abgeschritten und mit Hilfe einer Kernrammsonde (Bohrstock) an verschiedenen Stellen aus den oberen 30 cm eine Bodenprobe entnommen. Diese unterschiedlichen Einzelproben werden anschließend gründlich vermischt und homogenisiert, um somit eine für das zu beprobende Gelände repräsentative *Bodenmischpro-*

be zu erhalten. Dabei ist darauf zu achten, dass die Gesamtzahl der zu nehmenden Einzelproben 20 nicht unterschreiten darf. Dies entspricht im wesentlichen einem von GILBERT in [Gil87] unter der Bezeichnung „simple random sampling“ vorgestellten Verfahren. Grenzbereiche zu Straßen, Wegen und Gräben wurden von der Probennahme ausgeschlossen.

Alternativ zum oben beschriebenen Verfahren wurde an den Probenahmeorten, an denen der Bewuchs einem Standort exakt zugeordnet werden konnte, eine so genannte *Bodeneinzelprobe* entnommen. Dabei wird unter der Berücksichtigung der Wurzeltiefe des Bewuchses, in aller Regel allerdings nicht tiefer als 30 cm, an der zu beprobenden Stelle mit Hilfe einer Handschaufel sorgfältig Boden entnommen. Dieses Verfahren bietet sich z.B. bei der Beprobung von solchen Böden an, auf denen Gemüse angebaut wird.

Anschließend wurde der Boden entweder als Misch- oder Einzelprobe ans ZSR verbracht, dort grob zerkleinert und in einem Trockenschrank bei 50 °C bis zur Gewichtskonstanz getrocknet. Danach wurde mit Hilfe einer Mörserschale und eines Stößels der Boden weiter zerkleinert, größere organische Anteile und Steine entfernt und durch ein Sieb mit 2 mm Maschenweite gesiebt. Der so vorbehandelte Boden wurde nochmals homogenisiert und zur Messung in einen 1 L-Marinelli-Becher gefüllt, der anschließend luftdicht verklebt wurde.

Prinzipiell wurden Bodenproben zusammen mit weiteren Proben wie z.B. Bewuchs, Gemüse oder Getreide genommen, um die Berechnung eines Transfer- oder Konzentrationsfaktors zu ermöglichen.

3.3 Futtermittel

Zu den Futtermitteln zählen allgemein Weide- und Wiesenbewuchs, also Klee, Gras oder Luzerne, aber auch Heu- und Maissilage. Sowohl der Hof „Neßmerpolder“ als auch die „Hermannsdorfer Landwerkstätten (HLW)“ bauten Futtermittel an und wurden folglich auch beprobt. Vom Hof „Schessinghausen“ wurde Maissilage untersucht.

Bei der Beprobung von Weide- und Wiesenbewuchs wurde zum Zeitpunkt des 1. Schnittes (Neßmerpolder 2001 und 2002, HLW nur 2002) und des 2. Schnittes (Neßmerpolder und HLW 2001 und 2002) mit Hilfe einer Sense, analog zu den Orten der Probenahme einer Bodenmischprobe, Bewuchsproben entnommen und eine Mischprobe angefertigt. Diese wurde ans ZSR verbracht und bis zur Gewichtskonstanz getrocknet. Anschließend erfolgte die Veraschung der Probe in einem Muffelofen beginnend bei 200 °C unter einer Stickstoff-Atmosphäre, um eine Verschwelung zu erreichen und eine offene Flammenbildung zu vermeiden. In Schritten von 50 °C wurde dann die Temperatur langsam bis 400 °C erhöht, bis schließlich der Verschwelungsvorgang so weit fortgeschritten war, dass die Luftzufuhr des Ofens geöffnet werden

konnte. Eine Erhöhung der Veraschungstemperatur wiederum in 50 °C-Schritten bis 600 °C sorgte für eine möglichst vollständige Veraschung, bei der als Endprodukt eine helle Asche entsteht. Dabei war die Geschwindigkeit der Veraschung sowohl von der zu veraschenden Probenmenge als auch von der Probe selber abhängig und musste daher individuell angepasst werden. Bei einer zu schnellen Erhöhung der Temperatur geht man das Risiko einer unvollständigen Verschmelzung und damit nach dem Öffnen des Luftschiebers das Risiko einer Flammenbildung ein. Eine langsame Erhöhung der Veraschungstemperatur gefährdet zwar nicht den Veraschungsprozess als solchen, kostet aber viel Zeit. Allgemein muss bei pflanzlichen Proben mit einer Masse von ca. 4 kg mit einer Dauer von drei bis fünf Tagen gerechnet werden. Die so erhaltenen Asche wurde mit Hilfe einer Pressvorrichtung in eine Petrischale gepresst, die wiederum luftdicht verschlossen wurde. Bei Aschemassen unter 35 g wurde eine „kleine“ Petrischale ($\varnothing \approx 5$ cm), bei Aschemassen über 35 g eine „große“ Petrischale ($\varnothing \approx 10$ cm) verwendet.

3.4 Getreide

Getreideproben wurden hauptsächlich von den Höfen „Schlewecke“, „Schessinghausen“ und „Neßmerpolder“ jeweils zur Reifezeit bezogen. Somit konnten Hafer, Gerste, Weizen, Triticale, Roggen und Raps an einem oder mehreren Standorten untersucht werden. Dabei lässt sich Getreide prinzipiell in Korn und Stroh unterscheiden, wobei natürlich dem Getreidekorn als Teil der Nahrungskette größere Bedeutung zukommt. Trotzdem wurde dort, wo es möglich war, neben einer Kornmischprobe auch eine Strohmischnprobe entnommen. Die Beprobung des Kornes erfolgte analog zum bei [Mes00e] beschriebenen Vorgehen direkt beim Landwirt, indem Teilproben des Kornes vom Mähdrescher oder Anhänger genommen und zu einer Mischprobe vereinigt wurden. Das Stroh, das vom selben abgeernteten Feld oder Bereich eines Feldes stammen musste, wurde bei der Anfertigung der dazugehörigen Bodenmischprobe (s.o.) statistisch aufgelesen und zu einer für diesen Bereich repräsentativen Mischprobe vereinigt. Sowohl das Korn als auch das Stroh wurden dann ans ZSR verbracht, bis zur Gewichtskonstanz getrocknet und mit oben geschilderter Veraschungsprozedur verascht, wobei das Stroh vor dem Einführen in den Muffelofen noch per Häckselmaschine zerkleinert wurde. Die so erhaltene Asche wurde dann wiederum mittels Pressvorrichtung in eine Petrischale gepresst, die ihrerseits wieder luftdicht verschlossen wurde.

3.5 Gemüse

Gemüse konnte im Wesentlichen von den Betrieben „Jeinsen“ und „Gründeich“ bezogen werden. Beide Höfe haben sich auf Gemüsebau spezialisiert und bieten ein

umfangreiches Angebot an. Folgende Gemüsesorten wurden dabei, teilweise auf beiden Höfen, beprobt: Kopfsalat, Kohlrabi, Knollenpetersilie, Petersilie, Einlegegurken, Lauch, Rote Bete, Blumenkohl, Mangold, Wirsingkohl, Weißkohl, Brokoli, Rosenkohl und Kartoffeln. Dabei lag der Zeitpunkt der Probenahme in der Regel kurz vor der Erntereife. Das Vorgehen bei der Aufbereitung der Proben orientierte sich im wesentlichen an [MES00f], wo genauere Details nachgeschlagen werden können. Im Wesentlichen wurde der zum Verzehr bestimmte Anteil des Gemüses normiert gewaschen und gewogen, die Proben bis zur Gewichtskonstanz im Trockenschrank getrocknet und anschließend analog zum oben beschriebenen Prozess für Futtermittel verascht. Die so erhaltene Asche wurde dann wiederum in eine Petrischale gepresst und später γ -spektrometrisch analysiert.

Vom Betrieb „Gleidigen“ konnten Himbeeren und Brombeeren bezogen werden. Das Präparieren dieser Proben entsprach der Vorgehensweise bei Gemüse.

In [MES00f] wird allerdings lediglich die Probenvorbereitung für zum Verzehr geeignete Pflanzenbestandteile beschrieben. In der vorliegenden Arbeit wurden zusätzlich auch nicht zum Verzehr bestimmte Pflanzenteile präpariert, wenn eine wissenschaftlich interessante Fragestellung zu beachten war. Die Vorbereitung dieser Pflanzenteile erfolgte im Wesentlichen so wie die der zum Verzehr geeigneten Teile. So wurden z.B. Deckblätter von Pflanzen, die nicht verzehrt werden, im Probenaufbereitungsprozess behandelt wie innen liegende Pflanzenblätter, die sehr wohl Teil der Nahrung sein können.

3.6 Fleisch

Im Rahmen dieser Arbeit konnte Fleisch vom Rind, Wildschwein und Pute aufbereitet und schließlich auch γ -spektrometrisch untersucht werden. Rindfleisch wurde von den Rindern der „Hermannsdorfer Landwerkstätten“ und des Betriebes „Neßmerpolder“ untersucht. Der Hof „Neßmerpolder“ war außerdem in der Lage, Innereien eines frisch geschlachteten Rindes zur Verfügung zu stellen, so dass neben dem zum Verzehr geeigneten Fleisch auch noch Herz, Lunge, Niere, Leber und Knochen γ -spektrometrisch untersucht werden konnten. Zum Verzehr geeignetes Fleisch von Pute und Wildschwein (in dem Fall Rücken) konnten vom Hof „Schessinghausen“ bezogen werden. In Analogie zu [MES00f] wurde Muskelfleisch der oben beschriebenen Veraschung zugeführt und die Asche wiederum in Petrischalen gepresst.

3.7 Milch

Die beiden Milchkühe haltenden Betriebe waren küstennah der Betrieb „Neßmerpolder“ und küstenfern der Hof „Hermannsdorfer Landwerkstätten“. Von dort wurden

von Mai 2001 (Neßmerpolder) bzw. September 2001 (HLW) bis Oktober 2002 (Neßmerpolder) bzw. Juli 2002 (HLW) monatlich Milchproben bezogen. Die Entnahme von einem Liter frischer Milch erfolgte dabei nach [MES00g] direkt aus dem Sammel-tank des jeweiligen Betriebes. Diese Milch wurde anschließend mit einer Gefrier-trocknungsanlage (Modell BETA 1-16, Fa. Christ) gefriergetrocknet. Das so erhaltene Milchpulver wurde mit der bereits erwähnten Pressvorrichtung in große Petrischalen gepresst und diese anschließend luftdicht verschlossen.

Zusätzlich konnte vom Hof „Buntenbock“ 1 L Ziegenmilch bezogen werden. Die Probenbehandlung erfolgte analog zu der von Kuhmilch.

3.8 Gesamtnahrung

Im Frühjahr, Sommer und Herbst 2002 konnte für je eine Woche das Mittagessen der Hauptmensa der Universität Hannover beprobt werden. Dabei wurden vier der fünf angebotenen Gerichte (Eintopf, Bio-Linie-Menü, Hauptmenü vegetarisch, Hauptmenü nicht vegetarisch) zu einer Tagesprobe zusammengefügt und mit Hilfe eines Kompaktwolfes (R 70, Fa. Krefft Küchenmaschinen) homogenisiert. Anschließend erfolgte die Veraschung dieser Mischproben, wobei aufgrund des relativ hohen Fettanteils bei diesen Proben auf einen langsamen und behutsamen Anstieg der Veraschungstemperatur zu achten war. Die so erhaltenen Asche wurde in Petrischalen gepresst und diese luftdicht verschlossen. Die Zusammensetzung und Einwaagen des untersuchten Mensaeßens können Tabelle A.1 im Anhang auf Seite 197 entnommen werden.

Da somit lediglich das Mittagessen abgedeckt war, wurden mit Hilfe von [EBe00] und [CMA99] ein für die deutsche Bevölkerung möglichst repräsentatives Frühstück und Abendessen zusammengestellt und wie die andere Gesamtnahrung verascht. Die Zusammensetzung des Frühstücks und Abendessens kann ebenfalls Tabelle A.1 im Anhang entnommen werden.

Die Angaben der Feuchtgewichte, Trockengewichte und Aschgewichte der einzelnen Proben findet man zusammengefasst im Anhang in den Tabellen A.5 bis A.11. Dabei konnte das Feuchtgewicht, falls es nicht ermittelt wurde, unter Zuhilfenahme von [Far88] oder [Mes00h] rekonstruiert werden. Abgesehen von Gemüse ist der Sinn der Ermittlung des Feuchtgewichtes, vor allem bei Proben wie Gras oder Stroh, zweifelhaft, weil Schwankungen der Luftfeuchtigkeit kurz vor der Probenahme zu Variationen im Feuchtgewicht um einen Faktor zwei führen können. Allerdings ist die Kenntnis des Feuchtgewichtes manchmal zur Vergleichbarkeit mit anderen Studien von Nutzen (siehe Kapitel 6). Schwankungen im Verhältnis von Trockengewicht zu Aschgewicht können aus einem unvollständigen Veraschungsprozess resultieren. Bei einer präzisen Bestimmung des Trockengewichtes spielen diese Schwankungen dann aber keine Rolle, da die gewünschte Einengung der Probenvolumina auch bei unvollständiger Vera-

schung erreicht werden kann.

Inwieweit unterschiedliche Probenaufbereitung den Gehalt an Radionukliden beeinflussen kann, ist dabei noch Gegenstand von Untersuchungen. Durch „normiertes Waschen“ nach [MES00f] kann zumindest die Vergleichbarkeit einzelner Messwerte untereinander gewährleistet werden. Allerdings wird in [MB80] beschrieben, dass die Zubereitung von Mahlzeiten den Gehalt an ^{226}Ra möglicherweise deutlich reduzieren kann. Ebenso wird in [Dji02] berichtet, dass das Waschen von Blättern der Pflanze „*Populus nigra (Italica)*“ den Gehalt von ^{40}K kaum verändert, während rund 63 % des ^{137}Cs -Gehaltes dadurch entfernt wurden. Die Frage, inwieweit die Probenaufbereitung wie Waschen aber auch die realistische Probenzubereitung, wie z.B. Kochen, die tatsächliche Strahlenexposition durch Ingestion beeinflusst, ist also von Interesse und wird kurz am Ende von Kapitel 5 behandelt - konnte aber in dieser Arbeit nicht im Rahmen von eigenen Experimenten untersucht werden.

4 γ -Spektrometrie von natürlichen Radionukliden

4.1 Nachweis natürlicher Radionuklide

Für den Nachweis von Radionukliden stehen, je nach Zerfallsart, unterschiedliche Verfahren zur Verfügung, die sich in Aufwand und Präzision, also in der Unsicherheit und den charakteristischen Grenzen, zum Teil deutlich von einander unterscheiden. Allein am Zentrum für Strahlenschutz und Radioökologie werden mit der α -Spektrometrie für Actinoide wie Plutonium und Americium, der Flüssig-Szintillation-Spektrometrie für β -Strahler wie ^{90}Sr und dem Nachweis von ^{127}I bzw. ^{129}I durch Neutronenaktivierungsanalyse bzw. Beschleunigermassenspektrometrie in Verbindung mit Ionenchromatographie bzw. ICP-Massenspektrometrie eine Reihe an physikalischen und chemischen Verfahren zum Nachweis von künstlichen und natürlichen Radionukliden angewandt.

Die Halbleiter- γ -Spektrometrie kann als Zugpferd beim Nachweis von natürlichen Radionukliden bezeichnet werden und ist die in dieser Arbeit ausschließlich angewandte Methode. Diese zerstörungsfreie Messung ermöglicht eine relativ schnelle und im Vergleich zu anderen chemischen Analysemethoden unkomplizierte Probenaufbereitung. Außerdem erhält eine Messung in ihrem Spektrum die Information über einen ganzen Satz an Nukliden, so dass ein kompletter Nuklidvektor, bestehend aus ungefähr zehn Nukliden, mit einer Messung ermittelt werden kann. Durch verbesserte Technologie im Bereich der Reinheit des Halbleiterkristalls und durch eine Optimierung der verwendeten Materialien kann mit modernen Detektoren ein Energiebereich von einigen keV bis hin zu mehreren MeV durch Halbleiter- γ -Spektrometrie abgedeckt werden. Dabei geht der Emission eines γ -Quanten fast immer ein α - oder β -Zerfall voraus, so dass zur Bestimmung der Aktivität eines Nuklides mehrere Verfahren zur Anwendung kommen könnten. Der Nachteil der γ -Spektrometrie im Vergleich zur α - oder β -Spektrometrie sind höhere Nachweis- und Erkennungsgrenzen. Man bewegt sich somit im Spannungsfeld zwischen dem Wunsch, eine möglichst große Anzahl von Proben untersuchen zu können und der Anforderung, möglichst kleine Erkennungs- und Nachweisgrenzen zu erzielen. Es liegt auf der Hand, dass der korrekten Bestimmung der charakteristischen Grenzen somit eine besondere Bedeutung zukommt, worauf im Abschnitt 4.5.4 detailliert eingegangen wird. Das in dieser Arbeit verwendete

Verfahren der Halbleiter- γ -Spektrometrie mit Reinstgermanium-Detektoren wird dabei ausführlich in Kapitel 4.2 vorgestellt.

4.1.1 Wechselwirkung von γ -Strahlung mit Materie

Bei der Wechselwirkung von Strahlung mit Materie kommt im Wesentlichen drei Effekten eine nennenswerte Bedeutung zu: Dem Photoeffekt, dem Compton-Effekt und der Paarbildung.

Photoeffekt

Trifft ein Photon auf ein gebundenes Elektron in der Hülle, so kann es das Elektron aus der Hülle herausschlagen und dabei seine gesamte Energie an das Elektron abgeben. Die Energie E_e dieses Photoelektrons beträgt dann

$$E_e = E_\gamma - E_B, \quad (4.1)$$

wobei E_B die Bindungsenergie des Elektrons im Atomverband darstellt. Das entstandene Loch in der Atomschale wird unter Emission von Röntgenstrahlung oder Auger-Elektronen von energetisch höher gelegenen Elektronen anschließend wieder gefüllt. Dabei kann der Wechselwirkungsquerschnitt für den Photoeffekt nicht analytisch angegeben werden. Allerdings gilt die empirische Formel [Deb88]

$$\tau = \text{const} \cdot Z^{4,5} \cdot E_\gamma^{-3}. \quad (4.2)$$

Folglich hängt die Wahrscheinlichkeit für den Photoeffekt stark von der mittleren Kernladungszahl Z ab und nimmt mit steigender Energie E_γ der Photonen deutlich ab.

Comptoneffekt

Beim Comptoneffekt gibt das einfallende Photon nicht seine gesamte, sondern nur einen Teil seiner Energie an ein Hüllenelektron (Comptonelektron) ab. Das im Winkel Θ im Vergleich zur Einfallsrichtung gestreute Photon wird dann als Comptonphoton bezeichnet. Berücksichtigt man Impuls- und Energieerhaltung, so folgt für die Energie E' des gestreuten Comptonphotons mit m_0c^2 als Ruheenergie eines Elektrons (511 keV):

$$E' = \frac{E_\gamma}{1 + \frac{E_\gamma}{m_0c^2} (1 - \cos\Theta)}. \quad (4.3)$$

Für die Energie des Comptonelektrons E_e gilt dann

$$E_e = E_\gamma - E', \quad (4.4)$$

wobei die maximale Energie des Comptonelektrons $E_{e,max}$ dann für $\Theta = -180^\circ$ mit

$$E_{e,max} = E_\gamma - \frac{E_\gamma}{1 + 2 \frac{E_\gamma}{m_0 c^2}} \quad (4.5)$$

gegeben ist. Da die Wahrscheinlichkeit für den Comptoneffekt von der Anzahl der pro Atom vorhandenen Elektronen in der Hülle abhängt, steigt die Wechselwirkungswahrscheinlichkeit σ für den Comptoneffekt linear mit der Kernladungszahl Z und kann näherungsweise mit

$$\sigma = const \cdot Z \cdot E^{-1} \quad (4.6)$$

beschrieben werden.

Paarbildung

Für γ -Quanten mit Energien von einigen MeV ist die Paarbildung der dominierende Prozess bei der Wechselwirkung mit Materie. Dabei bildet sich bei Anwesenheit eines elektromagnetischen Feldes ein Elektron-Positron Paar, wofür eine Mindestenergie äquivalent der doppelten Ruhemasse von Elektron und Positron, also 1,022 MeV, benötigt wird. Falls zusätzliche Energie vorhanden ist, also $E_\gamma - 2m_0 c^2 > 0$, wird diese den beiden Teilchen als kinetische Energie mitgegeben. Positron und Elektron reagieren dann mit dem sie umgebenden Material und das Positron zerstrahlt durch Rekombination mit einem Elektron unter Aussendung zweier 511 keV γ -Quanten. Diese können dann entweder den Detektor verlassen oder von diesem nachgewiesen werden, wo sie einen Peak bei 511 keV oder 1022 keV (falls beide γ -Quanten vom Detektor registriert werden) erzeugen. Der Wechselwirkungsquerschnitt κ für die Paarbildung ist ungefähr proportional zu Z^2 und dominiert die Wechselwirkung von γ -Quanten mit Materie ab 10 MeV. In Abbildung 4.1 sind die dominierenden Wechselwirkungen in Abhängigkeit von der Energie zusammenfassend dargestellt.

Elastische Streuung

Eine weitere Form der Wechselwirkung ist die elastische Streuung zwischen Photon und Elektron, die so genannte „Rayleigh“-Streuung. Dabei gibt das Photon keine Energie an das Elektron ab, sondern wechselt lediglich seine Richtung, weswegen der Pro-

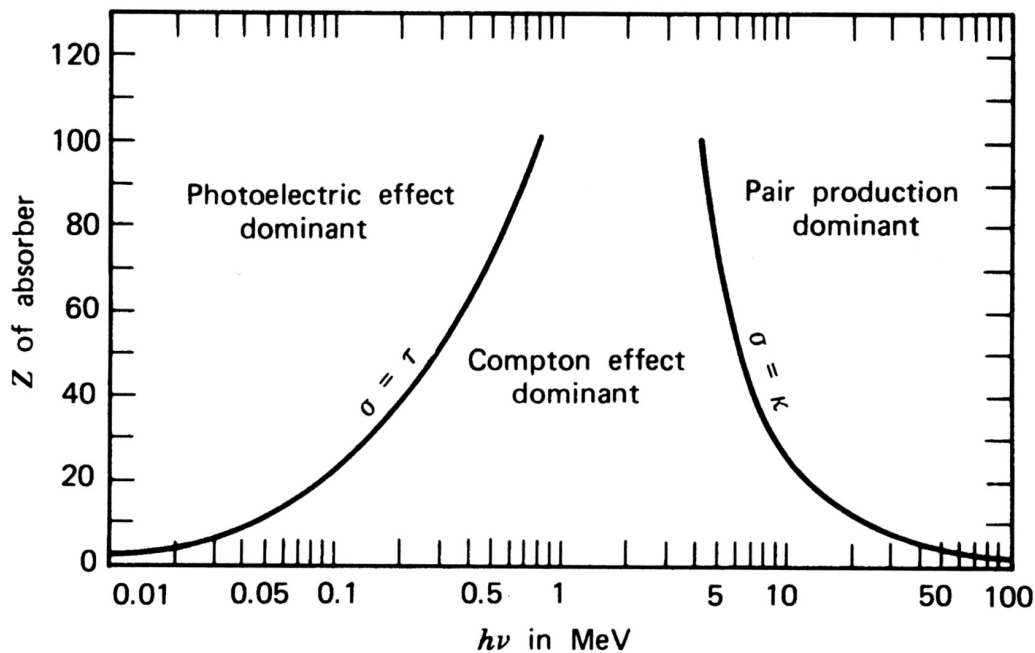


Abbildung 4.1: Die relative Bedeutung der drei wichtigsten Wechselwirkungen von γ -Strahlung mit Materie. Die Linien zeigen die Werte von Z und E , bei denen die Wahrscheinlichkeit zweier benachbarter Prozesse gleich groß ist (entnommen aus [Kno00]).

zess bei weiteren Betrachtungen der Wechselwirkung zwischen Photonen und Materie häufig nicht berücksichtigt wird.

Photonen-Streuung

Betrachtet man einen kollimierten Strahl von N_0 γ -Quanten, die auf ein Absorber-Material der Dicke d treffen, so beobachtet man einen exponentiellen Abfall der Anzahl der transmittierten Photonen N , also

$$N = N_0 e^{-\mu d}, \quad (4.7)$$

wobei der lineare Photonen-Schwächungskoeffizienten μ als

$$\mu = \mu_\tau + \mu_\sigma + \mu_\kappa \quad (4.8)$$

definiert wird. Eine grafische Darstellung von μ und den einzelnen Komponenten findet man beispielhaft in Abbildung 4.2.

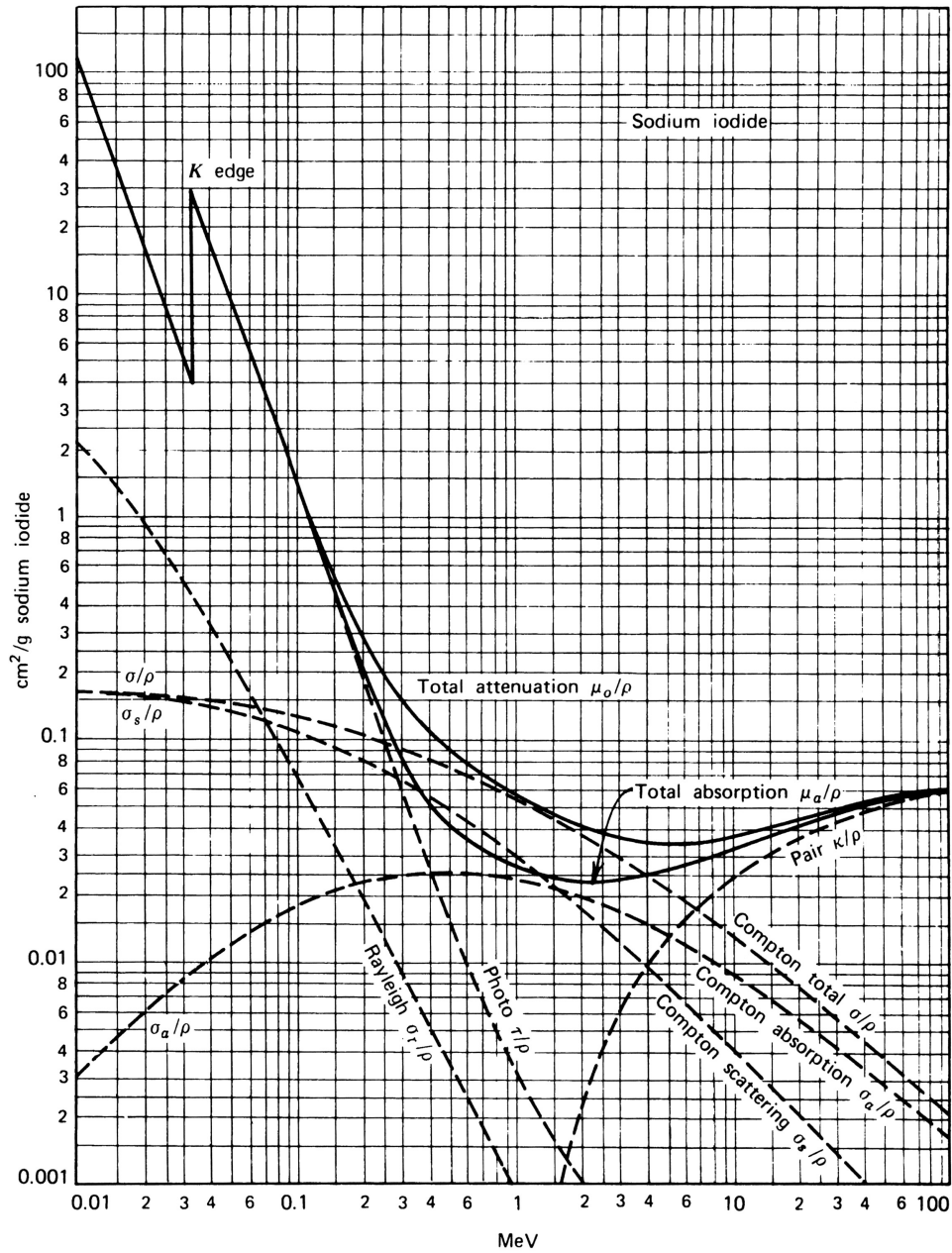


Abbildung 4.2: Energieabhängigkeit der verschiedenen Wechselwirkungen am Beispiel der Wechselwirkung von γ -Quanten mit Natrium-Iodid (entnommen aus [Kno00]).

4.1.2 γ -Strahlung natürlicher Radionuklide

Die in dieser Arbeit betrachteten natürlichen Radionuklide besitzen eine Vielzahl von γ -Linien, von denen die wichtigsten in Tabelle 4.1 dargestellt sind. Der Vollständigkeit halber sind dort auch Summationskorrekturen aufgeführt, auf die in Kapitel 4.4.3 detailliert eingegangen wird.

Da eine genaue Beschreibung der Auswertung dieser Linien in [Mes00a] zu finden ist, wird an dieser Stelle auf eine ausführliche Darstellung verzichtet. Allerdings soll noch auf ein paar Besonderheiten bei der γ -Spektrometrie von natürlichen Radionukliden eingegangen werden, die zu beachten sind.

- ^{238}U besitzt keine γ -Linien und kann über das säkuläre Gleichgewicht von ^{234}Th oder ^{234m}Pa bestimmt werden. Allerdings eignet sich die Doppellinie von ^{234}Th bei 92,6 keV (bestehend aus zwei Einzellinien bei 92,4 und 92,8 keV) aufgrund der Interferenz mit verschiedenen Röntgenlinien ($Th(k_{\alpha 1}), U(k_{\alpha 2}), Rn(k_{\beta 1})$) nicht oder nur unter Zuhilfenahme von speziellen Fit-Algorithmen [GT03] zur Auswertung. Da die beiden Linien des ^{234m}Pa nur eine geringe Emissionswahrscheinlichkeit besitzen, muss zur Bestimmung von ^{238}U die 63,3 keV Linie des ^{234}Th benutzt werden.
- Bei einigen Energien kommt es zur Überlagerung zweier oder mehrerer Peaks, so dass eine Auflösung des Summenpeaks unmöglich oder nur durch den Einsatz von Entfaltungsalgorithmen möglich ist. In diesen Fällen kann durch Information aus anderen Linien eine Auswertung eines solchen Summenpeaks erfolgen, was anhand der 186 keV Doppellinie des ^{235}U und des ^{226}Ra kurz erläutert werden soll. Da die Aktivität von ^{226}Ra , wie oben geschildert, auch mit Hilfe des säkularen Gleichgewichts mit seinen Töchtern wie z.B. ^{214}Pb oder ^{214}Bi ermittelt werden kann, bestimmt sich die Aktivität des ^{235}U zu

$$A_{\text{U}235} = A_{\text{unkorr}} - A_{\text{Ra}226} \cdot \frac{I_{\text{Ra}226}}{I_{\text{U}235}} \quad (4.9)$$

mit

- $A_{\text{U}235}$ = zu bestimmende Aktivität von ^{235}U ,
- A_{unkorr} = berechnete, nicht korrigierte Aktivität, deren Netto-Peakfläche sowohl Zählereignisse von ^{235}U als auch von ^{226}Ra enthält,
- $A_{\text{Ra}226}$ = unter Zuhilfenahme einer alternativen γ -Linie bestimmte Aktivität von ^{226}Ra ,
- $I_{\text{Ra}226}$ = Intensität I der 186,1 keV Linie von ^{226}Ra ,
- $I_{\text{U}235}$ = Intensität I der 185,7 keV Linie von ^{235}U .

Für den Fall, dass alternative Linien keinen Beitrag oberhalb der Erkennungsgrenzen liefern, kann auf diese Art und Weise die spezifische Aktivität von ^{235}U

Tabelle 4.1: Zusammenstellung der wichtigsten γ -Übergänge von natürlichen Radionukliden (entnommen aus [Sch98b]).

Nuklid	$t_{1/2}$ Leitnuklid	Nachweis durch	Energie in keV	$t_{1/2}$	I^a	Störung durch	Summ.-korr. [Deb90] ^b	[GT01] ^c
²³⁸ U	4,5 · 10 ⁹ a	²³⁴ Th	63,28	24,1 d	0,041		1,00	1,00
		^{234m} Pa	766,37	1,17 m	0,003		1,00	1,00
			1001,03		0,008		1,00	1,00
²²⁶ Ra	1600 a	²²⁶ Ra	186,10	1600 a	0,035	²³⁵ U	1,00	1,00
		²¹⁴ Pb	295,22	26,8 m	0,182		1,00	1,00
			351,93		0,351		1,00	1,00
			609,31	19,9 m	0,446		1,14	1,13
		²¹⁴ Bi	1120,29		0,147		1,16	1,16
²¹⁰ Pb	22,3 a	²¹⁰ Pb	46,54	22,3 a	0,042		1,00	1,00
²³⁵ U	7 · 10 ⁸ a	²³⁵ U	143,76	7 · 10 ⁸ a	0,110		1,03	k.A. ^d
			163,33		0,051		1,03	k.A. ^d
			185,72		0,572	²²⁶ Ra	1,00	k.A. ^d
			205,31		0,005		0,99	k.A. ^d
²²⁸ Ra	5,75 a	²²⁸ Ac	209,25	6,15 h	0,039		1,10	k.A. ^d
			328,00		0,030		1,15	k.A. ^d
			338,32		0,113		1,02	k.A. ^d
			911,20		0,258		1,03	1,09
			968,97		0,158		1,03	1,05
²²⁸ Th	1,91 a	²¹² Pb	238,63	10,6 h	0,433	²²⁴ Ra	1,00	1,00
		²⁰⁸ Tl	583,19	3,05 m	0,304		1,18	1,18
⁴⁰ K	1,3 · 10 ⁹ a	⁴⁰ K	1460,83	1,3 · 10 ⁹ a	0,107		1,00	1,00
¹³⁷ Cs	30,17 a	¹³⁷ Ba	661,66	2,55 m	0,850		1,00	1,00
⁷ Be	53,23 d	⁷ Be	477,60	53,2 d	0,104		1,00	1,00

^a Intensität oder Entkommwahrscheinlichkeit des betreffenden Kernübergangs [Sch98b].

^b Summationskorrektur nach [Deb90] für eine Petrischalengeometrie und einen Ge(Li)-Detektor mit einem 30 %igen relativen Ansprechvermögen im Vergleich zu dem eines 3" x 3" NaI(Tl)-Detektors.

^c Summationskorrektur nach [GT01] für eine Petrischalengeometrie und einen n-type-HPGe-Detektor mit einem 28,3 %igen relativen Ansprechvermögen im Vergleich zu dem eines 3" x 3" NaI(Tl)-Detektors.

^d k.A. steht für keine Angaben.

in der Probe abgeschätzt werden. Ein analoges Vorgehen bietet sich für die Linie von ^{212}Pb bei 238,6 keV an, die durch eine Linie des ^{214}Ra gestört wird. Was speziell die Aktivität von ^{235}U angeht, so kann, falls ^{238}U in der Probe nachgewiesen wurde, auch das natürliche Aktivitätsverhältnis von $A_{U238} = 21,7 \cdot A_{U235}$ herangezogen werden.

- Bei den niederenergetischen Linien des ^{210}Pb bei 46,5 keV und (mit Einschränkungen) auch des ^{234}Th bei 63,3 keV ist die Selbstabsorption der γ -Quanten in der Probe zu berücksichtigen. Auf diese Problematik wird ausführlich in Abschnitt 4.4.2 eingegangen.
- Wie Tabelle 4.1 entnommen werden kann, bedürfen einige Linien einer Summationskorrektur auf Grund von systematischen (Kaskaden-) Summationseffekten. Erläuterungen zu diesen Korrekturen findet man in Kapitel 4.4.3.

4.2 Reinst-Germanium-Halbleiterdetektoren

Das Kernstück eines Messsystems zum Nachweis von natürlichen Radionukliden mittels γ -Spektrometrie bildet der Kristall des Reinst-Germanium-Halbleiterdetektors (HPGe für High-Purity Germanium). Wurden in den 70er Jahren Reinheiten des Kristalls von weniger als 10^{10} Fremdatomen pro cm^3 erreicht, sind heute Reinheiten von unter 10^9 Fremdatomen pro cm^3 realisiert. Je nachdem, ob die verbleibenden Verunreinigungen Akzeptoren oder Donatoren sind, spricht man von p-type (oder, zur Unterscheidung von dotierten Halbleitern) von π -type- bzw. n-type (ν -type) HPGe-Detektoren. Dabei stellt Germanium mit einer Energiedifferenz von 0,75 eV (bei 0 K) zwischen Valenzband und Leitungsband ein bevorzugtes Material dar, das mit seiner Ordnungszahl von $Z=32$ gegenüber Silizium ($Z=14$) nach Gleichung (4.2) zusätzlich eine deutlich höhere Wechselwirkungswahrscheinlichkeit für den Photoeffekt besitzt. Dringt nun ein Photon in das Kristall ein, so wird eine Vielzahl von Elektronen-Loch-Paaren durch Anhebung von Elektronen aus dem Valenzband gebildet. Dabei wird pro Elektronen-Loch-Paar eine Energie von 2,96 eV benötigt, da Schwingungsenergie an die Kristallstruktur abgegeben wird. Die Anzahl der entstandenen Elektronen-Loch-Paare ist proportional zur primären Energie des Photons und beträgt für ein 1 MeV-Quant $6,8 \cdot 10^4$ [Kno00], was die hervorragende Energieauflösung von Halbleiterdetektoren erklärt. Die so erzeugten Ladungsträger werden durch eine an den Kristall angelegte Hochspannung abgesaugt und bewirken in dem im Detektorkopf befindlichen Vorverstärker einen Ladungsimpuls, der anschließend von dem Vorverstärker in einen Spannungsimpuls umgewandelt und verstärkt wird. Dieser Spannungsimpuls wird von einem linearen Hauptverstärker weiterverarbeitet, der eine Ausgangsamplitude in der Größenordnung von 10 V erzeugt. Dieses Signal wird anschließend mit einem Analog-Digital-Wandler (ADC) digitalisiert und die Pulshöhe einem von 4096 Kanälen des MCA (Multi-Channel-Analyzer) zugeordnet. Zusammen mit einem Per-

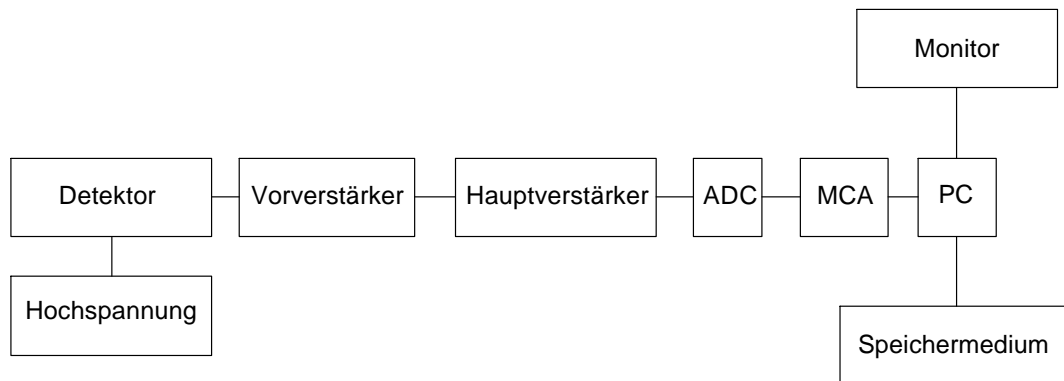


Abbildung 4.3: Schematische Darstellung des Messsystems.

sonalcomputer und der entsprechenden Treibersoftware (TMCA[®]) werden dann die einzelnen Impulse vom MCA zu einem Impulshöhenspektrum verarbeitet. Diese kurz zusammengefasste Beschreibung des Messsystems ist schematisch in Abbildung 4.3 dargestellt.

Die in dieser Arbeit verwendeten Halbleiter-Detektoren besaßen entweder planar oder koaxial geformte Kristalle (siehe Tabelle 4.2), so dass diese unterschiedlichen Typen kurz vorgestellt werden sollen.

4.2.1 Planare HPGe-Detektoren

Am ZSR ist mit Detektor 3 ein planarer n-type HPGe-Detektor vorhanden. Bei planaren HPGe-Detektoren werden die elektrischen Kontakte an den Stirnseiten des planaren Kristalls angebracht. Dabei kann der n^+ -Kontakt entweder durch Evaporation und anschließende Diffusion von Lithium auf den Germanium-Wafer oder durch direkte Implantation von Donor-Atomen mittels Beschleuniger realisiert werden. Gegenüber der Diffusion besitzt die Implantationstechnik den Vorteil, dass die Kontakt-Schicht sehr dünn und dadurch eine verbesserte Durchlässigkeit für niederenergetische Photonen gegeben ist. Allerdings besteht bei n-type-HPGes die Gefahr, dass durch die mit der Implantation verbundenen Strahlung Akzeptor-Stellen im Germanium erzeugen werden können, so dass außer der Implantation von Phosphor, bei der durch einen zusätzlichen Schritt die Donor-Atome elektrisch aktiviert werden müssen, Diffusion von Lithium die gängige Praxis darstellt [Kno00]. In Abbildung 4.4 ist der Aufbau eines planaren Kristalls schematisch dargestellt.

Allgemein kann festgestellt werden, dass planare n-type-HPGe-Detektoren auf Grund

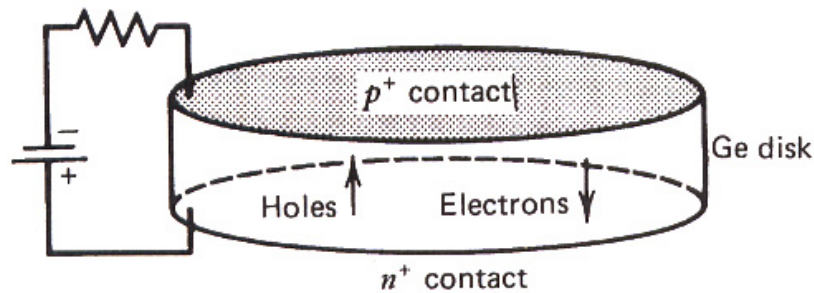


Abbildung 4.4: Schematische Darstellung eines planaren HPGe-Detektors (aus [Kno00]).

ihrer geringen Totschicht ein hohes Ansprechvermögen für niederenergetische Photonen haben und sich damit hervorragend zum Nachweis von niederenergetischer γ -Strahlung eignen.

4.2.2 Koaxiale HPGe-Detektoren

Bei planaren Kristallen beträgt der Durchmesser des Zylinders, aus dem der Wafer geschnitten wird, in der Regel nicht mehr als ein paar Zentimeter, so dass die Tiefe der an Ladungsträgern verarmte Zone nicht größer als 1 bis 2 cm sein kann. Daraus folgt unmittelbar, dass das aktive Volumen bei planaren HPGe-Detektoren 10 bis 30 cm³ nicht überschreiten kann. Um Detektoren mit einem größeren aktiven Volumen herzustellen, verwendet man eine zylindrische oder koaxiale Form des Kristalls. In diesem Fall wird dann eine Elektrode an der äußeren Oberfläche eines langen zylindrisch geformten Kristalls angebracht, während sich der zweite Kontakt an der Innenseite der Bohrung in der Mitte des Kristalls befindet. Auf diese Weise können aktive Volumina bis zu 750 cm³ erreicht werden. Wie in Abbildung 4.5 dargestellt, befindet sich im Fall eines p-type-Detektors der n⁺-Kontakt an der Außen- und der p⁺-Kontakt an der Innenfläche des zylindrischen Kristalls; bei n-type-Detektoren sind diese Anschlüsse entsprechend invertiert [Kno00].

Am ZSR standen mit den Detektoren 1 ein koaxialer n-type, mit Detektor 2 ein koaxialer p-type und mit Detektor 3 ein planarer n-type HPGe-Detektor dem Messsystem zur Verfügung.

In Tabelle 4.2 sind weitere Herstellerangaben zu den 3 verwendeten Detektoren zusammengestellt worden.

Tabelle 4.2: Charakterisierung der Halbleiterdetektoren.

	1	2	3
Typ	n-Type koaxial	p-Type koaxial	n-Type planar
Hersteller	EG & G Ortec	Canberra	Canberra
Modell-Nr.	GMX-30200-P	GX3018	GL2820R
Efficiency ^a	33,1 %	35 %	-
Bias ^b	-2500 V	+4500 V	-3000 V
Kristalllänge	53,5 mm	53,5 mm	20 mm
Kristalldurchmesser	59,9 mm	60,0 mm	60 mm
A-Volumen ^c	-	-	2800 mm ²
Kappe ^d	Be: 0,5 mm	Kunststoff: 0,5 mm	Carbon Epoxy: 0,5 mm
Totschicht ^e	0,3 μm	-	-
FWHM (1,33 MeV) ^f	1,84 keV	1,78 keV	
FWHM (122 keV) ^f	-	0,852 keV	0,739 keV
FWHM (5,9 keV) ^f	0,792 keV	-	0,352 keV
P/C Ratio ^g	58,2	64,3	-

^a relatives Ansprechvermögen im Vergleich zu dem eines 3'' x 3'' NaI(Tl)-Detektors.

^b vom Hersteller empfohlene Betriebsspannung.

^c Aktives Volumen des Kristalls nach Hersteller.

^d Material und Dicke der Endkappe.

^e Dicke der inaktiven Schicht des Germaniumkristalls.

^f Halbwertsbreiten der Photopeaks von ⁶⁰Co, ⁵⁹Co und ⁵⁶Fe bei den angegebenen Energien.

^g Peak-to-Compton-Verhältnis.

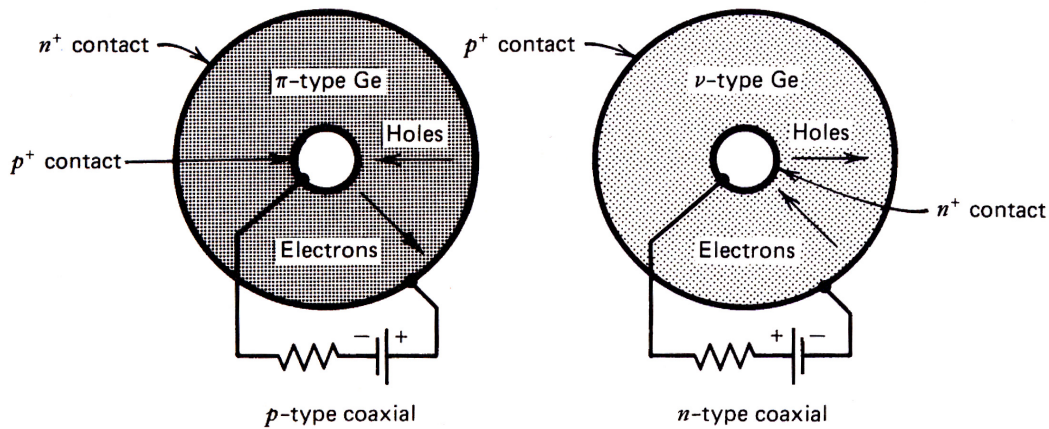


Abbildung 4.5: Schnittdarstellung eines p-type und n-type koaxialen HPGe-Detektor (aus [Kno00]).

4.3 Nulleffekt

Da für den Nachweis von natürlichen Radionukliden in den untersuchten Medien zum Teil sehr niedrige Nachweisgrenzen erforderlich sind (siehe Abschnitt 4.5.4), kommt der exakten Bestimmung und wenn möglich der Reduktion des natürlicherweise vorhandenen Strahlungshintergrundes eine besondere Rolle zu. Als Ursache des Nulleffekts unterscheidet KNOLL in [Kno00] fünf verschiedene Quellen:

1. Radioaktives Material des Detektors (z.B. ^{210}Pb -haltiges Lötzinn im Vorverstärker).
2. Natürliche radioaktive Substanzen in der unmittelbaren Umgebung des Detektors, z.B. radioaktive Spurenstoffe in der Bleiburg.
3. Terrestrische Strahlung, die aus der Umweltradioaktivität der Baumaterialien des Labors oder anderen weiter entfernten Strukturen emittiert wird.
4. Radioaktive Folgeprodukte in der Luft um den Detektor.
5. Die primäre und sekundäre Komponente der kosmischen Strahlung.

Am ZSR wurde zur Qualitätssicherung alle zwei bis drei Monate ein Nulleffektspektrum für jeden Detektor aufgenommen, um eventuelle Verunreinigungen des Detektors oder des Inneren der Bleiburg schnell zu erkennen und um die Konstanz des Nulleffektes zu verifizieren. Als Beispiel mag Abbildung 4.6 dienen, in der die Nulleffektzählrate für Detektor 2 bei 186 keV dargestellt ist.

Alle drei am ZSR für diese Arbeit verwendeten Detektoren besaßen eine Bleiburg, die den Detektorkopf samt Vorverstärker, nicht aber den Dewar für den flüssigen Stickstoff

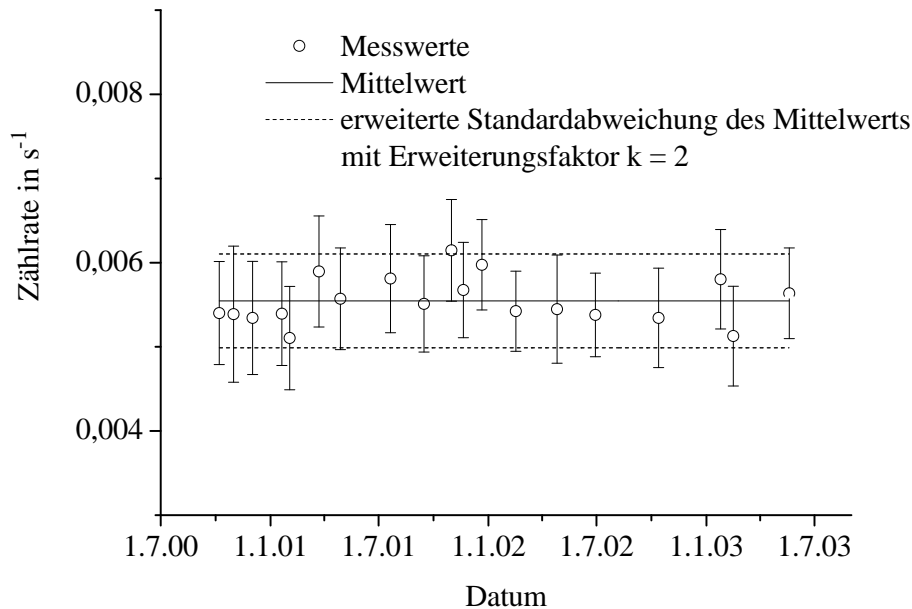


Abbildung 4.6: Zählrate des Nulleffekts für ^{226}Ra und ^{235}U bei 186 keV.

umfasste. Allerdings war die Reinheit des Bleis unterschiedlich: Wurden für Detektor 1 Bleiziegel zu einer Abschirmung gestapelt und außen mit Blech verkleidet, so bestand die Bleiburg für die Detektoren 2 und 3 aus gegossenem, kommerziell für diesen Zweck erworbenem und damit deutlich reinerem Blei. Bei allen Detektoren betrug der Abstand des Detektorkopfes zur Bleiburg mehr als 10 cm, um auftretenden Streustrahleffekte zu verringern. Mit einer Kupferverkleidung im Innenraum der Bleiburg 1 wurde dabei der Nulleffekt bzgl. ^{210}Pb zwar um 20 % verringert, liegt aber immer noch deutlich über den der Detektoren 2 und 3, wie auch Abbildung 4.7 entnommen werden kann.

Dabei wird deutlich, dass der Hauptanteil des Nulleffektes durch Folgeprodukte aus den Zerfallsreihen gebildet wird. So fallen oberhalb von 100 keV die Peaks von ^{235}U und ^{226}Ra bei 186 keV, von ^{212}Pb bei 238 keV, von ^{214}Pb bei 295 keV und 351 keV sowie von ^{214}Bi bei 609 keV auf. Unter 100 keV dominieren die $k_{\alpha 1}$, $k_{\alpha 2}$, $k_{\beta 1}$ und $k_{\beta 2}$ Röntgenlinien des Bleis zusammen mit einer Doppellinie des ^{234}Th bei 94 keV. Aber auch ^{210}Pb konnte, im Gegensatz zu künstlichen Radionukliden wie z.B. ^{137}Cs , ebenfalls bei allen drei Detektoren im Nulleffekt nachgewiesen werden.

Informationen zur Abschirmung, den verwendeten Materialien usw. können Tabelle 4.3 entnommen werden.

4 γ -Spektrometrie von natürlichen Radionukliden

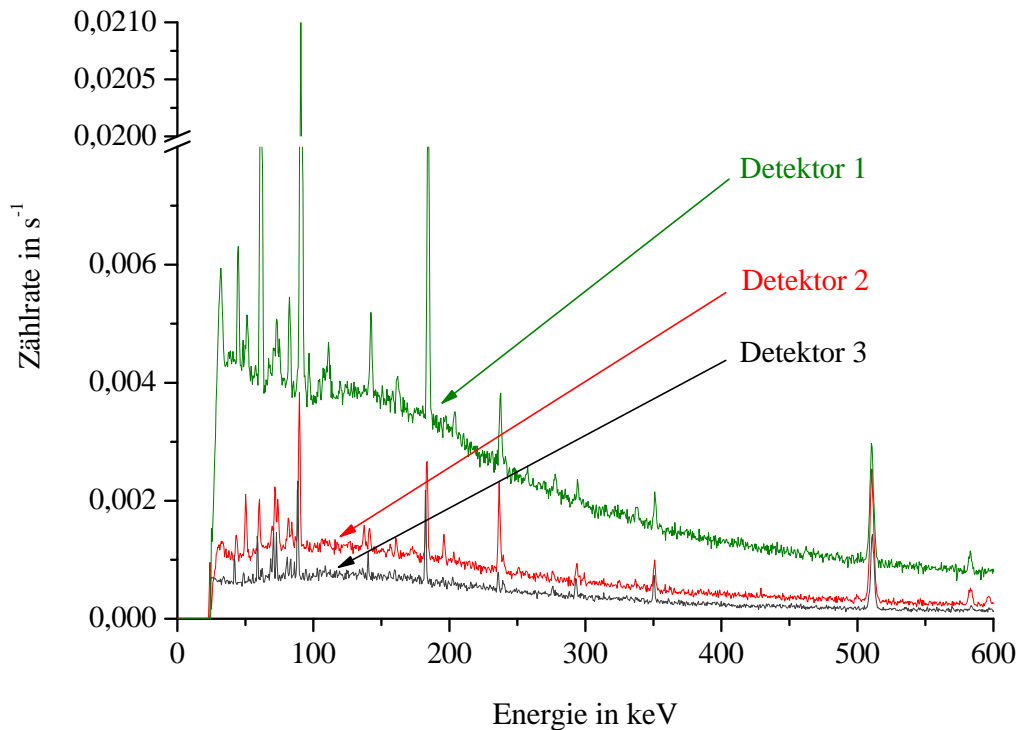


Abbildung 4.7: Vergleich der Nulleffektspektren von Detektor 1, 2 und 3. Die Messzeiten lagen zwischen 324 000 und 432 000 Sekunden.

Tabelle 4.3: Charakterisierung der Abschirmung der γ -Detektoren.

Name	1	2	3
Geometrie	vertikal	vertikal	vertikal
Beladung	oben	vorne	vorne
Dicke der Bleiabschirmung	100 mm	110 mm	110mm
Maße des Innenraums in mm ³	300×290×300	290×390×305	290×390×305
Kupferabschirmung	10 mm	-	-

Allgemein wurden die im Nulleffekt vorhandenen diskreten γ -Linien bei der Probenauswertung berücksichtigt, indem sie möglichst genau vermessen und anschließend die Netto-Zählrate einer Linie von der entsprechenden Netto-Zählrate der γ -Linie im Probenspektrum subtrahiert wurde.

4.4 Kalibrierung der Probenmessungen

In diesem Abschnitt wird die Kalibrierung der Detektoren beschrieben, die es ermöglicht, aus einem Messergebnis eine spezifische Aktivität der Probe zu ermitteln.

4.4.1 Energiekalibrierung

Um den 4096 Kanälen des MCA eine Energie zuzuordnen zu können, ist zunächst eine Energiekalibrierung erforderlich. Da in guter Näherung davon ausgegangen werden kann, dass dieser Zusammenhang durch eine lineare Funktion beschrieben wird, genügen zur Kalibrierung ein niederenergetischer und ein hochenergetischer Kalibrierpunkt. Am ZSR wurden als niederenergetischer Referenzstrahler eine ^{241}Am -Punktquelle mit einer Energie bei 59 keV und als hochenergetischer Referenzstrahler z.B. eine ^{60}Co -Punktquelle mit Energien bei 1177 keV und 1333 keV verwandt. Dabei unterstreicht die Messung mit drei Kalibrierpunkten die Linearität der Beziehung durch einen Fit mit einem hohen R^2 -Wert von nahezu 1. Es besteht ebenfalls die Möglichkeit der Kalibrierung mit mehreren Nukliden, wobei die Anpassung an eine quadratisch-lineare Funktion der Form $E = a + bK + cK^2$ mit E =Energie in keV und K =Kanalnummer einen Wert von c nahe Null liefert, so dass wiederum die Linearität der Kalibrierung als gegeben bezeichnet werden kann.

4.4.2 Efficiency

Als entscheidend für die exakte Bestimmung der spezifischen Aktivität in einer Probe kann die Bestimmung der Zählhausbeute oder Efficiency bezeichnet werden. Dabei spielt für die Bestimmung der Aktivität in einer Probe ausschließlich die so genannte „Photopeak-Efficiency“ eine Rolle, die deshalb im Folgenden kurz als „Efficiency“ bezeichnet und mit ε abgekürzt wird. Sie ist definiert als das Verhältnis der vom Detektor im Photopeak bei der Energie E_γ registrierten Anzahl der Photonen (N_{reg}) zu der Anzahl der im selben Zeitraum von der Probe emittierten Photonen (N_{em}), also:

$$\varepsilon = \frac{N_{\text{reg}}}{N_{\text{em}}}, \quad (4.10)$$

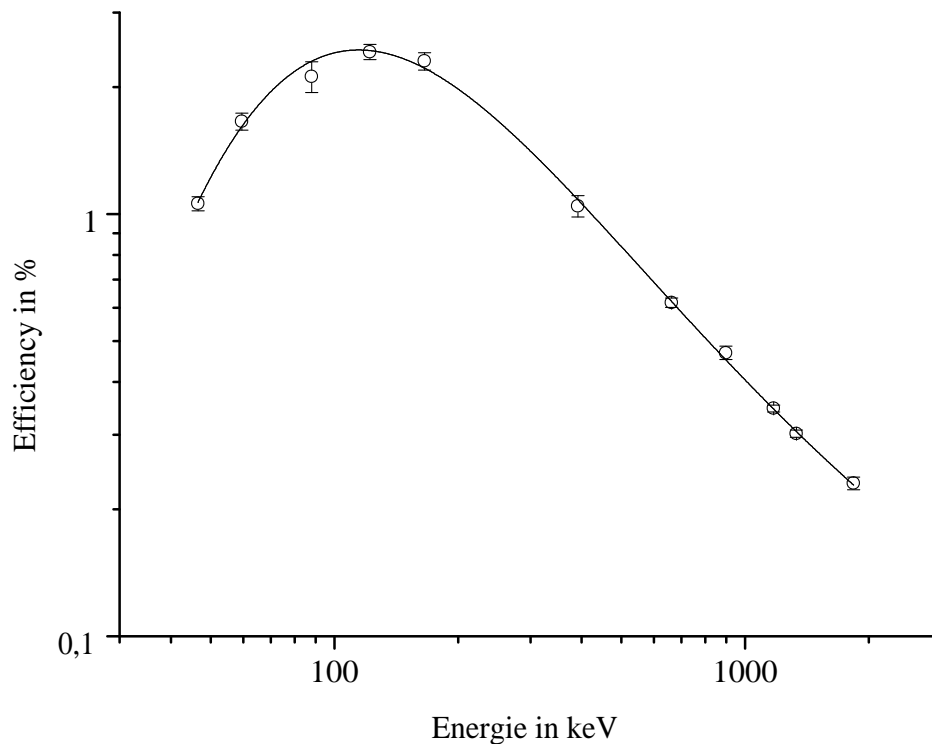


Abbildung 4.8: Efficiency einer Bodenprobe der Masse $m=1161$ g in einem 1 L-Marinelli gemessen auf Detektor 3.

Dabei wird die Efficiency am ZSR normalerweise im „Spiking-Verfahren“ berechnet. Das bedeutet, dass für eine Probe oder eine Klasse von Proben (z.B. Boden) ein so genanntes „Standardmaterial“ („Standardboden“) hergestellt wird, dem eine bekannte Menge an radioaktiven Isotopen zugesetzt wird. Das Verhältnis der Zerfälle im Standardmaterial zu der Anzahl der detektierten Quanten entspricht nach Gleichung (4.10) dann der Efficiency ε . Dabei ist darauf zu achten, dass die Beschaffenheit des Standardmaterials und die der zu analysierenden Proben so weit wie möglich übereinstimmt.

Zum Spiken des unbehandelten Standardmaterials werden am ZSR zwei Multielementlösungen (QCY48 und QCYB40) verwendet, deren genaue Zusammensetzung in den Tabellen A.12 und A.13 im Anhang auf Seite 219 eingesehen werden kann. Mit diesen beiden Lösungen kombiniert, wird durch zehn Nuklide der Energiebereich von 45 keV (^{210}Pb) bis 1836 keV (^{88}Y) abgedeckt. Die Linien der Nuklide ^{60}Co und ^{88}Y müssen dabei in manchen Geometrien bezüglich Summationseffekte korrigiert werden, worauf im Abschnitt 4.4.3 detailliert eingegangen wird. Um die Konzentration herabzusetzen und gleichzeitig ein größeres Volumen der Spiking-Lösung zu erhal-

ten, wurden beide Lösungen mit Salzsäure (4M HCl) auf 250 mL verdünnt. Von den so verdünnten Standardlösungen wurde dann eine bestimmte Menge (in der Regel einige mL) dem Standardmaterial zugesetzt und dieses anschließend γ -spektrometrisch untersucht.

Dabei muss beachtet werden, dass die in den Standardlösungen vorhandenen Radionuklide zerfallen und die Anzahl N_i der Zerfälle des Nuklides i pro Zeiteinheit in der Lösung bezüglich des Referenzdatums durch

$$N_i = N_{i,0} \cdot e^{-\lambda_i \Delta t} \quad (4.11)$$

korrigiert werden muss, wobei $N_{i,0}$ für die Anzahl der Zerfälle des Nuklides i zum Zeitpunkt des Referenzdatums, λ_i für die Zerfallskonstante des betreffenden Nuklides und Δt für die Zeitspanne zwischen Referenzdatum und Messung stehen.

Insgesamt erhält man für ausgedehnte Quellen eine Efficiency, die der in Abbildung 4.8 ähnelt. Das Abfallen zu geringeren Energien resultiert dabei aus dem oben erwähnten Einfluss der Selbstabsorption in der Probe bzw. der Absorption im Kristall in der inaktiven Zone und der Z-Abhängigkeit des Photoeffektes. Die Abnahme zu höheren Energien entsteht, weil die Wahrscheinlichkeit, dass ein Photon durch Wechselwirkung mit dem Halbleiterkristall dort seine gesamte Energie deponiert, mit zunehmender Energie sinkt.

Interpolation-Algorithmen

Die in Abbildung 4.8 vorgenommene Interpolation ermöglicht die Efficiency-Bestimmung zwischen den erhaltenen Messpunkten. Dabei werden in der Literatur verschiedene Ausgleichsfunktionen vorgeschlagen.

Ein häufig erwähnter Ansatz ist der so genannte Gray-Ahmad-Fit, der vor allem für den niederenergetischen Bereich zufriedenstellende Ergebnisse liefert [Gra85], [Deb88], [Raj02]. Dies entspricht einer Ausgleichsfunktion der Form

$$\varepsilon(E) = \frac{P_1 + P_2 \cdot \ln(E) + P_3 \cdot \ln^2(E) + P_4 \cdot \ln^3(E) + P_5 \cdot \ln^5(E) + P_6 \cdot \ln^7(E)}{E}, \quad (4.12)$$

wobei die sechs frei zu wählenden Parameter P_i mit $i = \{1, \dots, 6\}$ über die Minimierung der Summe der Fehlerquadrate iterativ bestimmt werden können. Dazu liefern verschiedene Softwarepakete wie GNU PLOT[®] oder ORIGIN[®] vorgefertigte fit-Module, in der die entsprechende Funktion implementiert werden kann.

Für den Energie-Bereich oberhalb von 200 keV kann der Fit nach Gleichung (4.12) physikalisch unsinnigen Schwankungen unterliegen, wobei die Schwankungsbreite

von der Verteilung der einzelnen Messwerte abhängt. Als Alternative kann der Ausgleich mit einer Potenzfunktion, also einer Funktion der Form

$$\varepsilon(E) = a \cdot E^b \quad (4.13)$$

berechnet werden. Verwendet man Gleichung (4.12) für den Fit von ε bei Energien unterhalb 200 keV und Gleichung (4.13) für den Fit oberhalb von 200 keV, so erhält man als Kombination insgesamt ein sehr gutes Ergebnis.

Als Alternative hierzu bietet sich die so genannte „Jäckel-Westmeier-Funktion“ an, die in der Auswertesoftware GAMMA-W[®] Anwendung findet und in [Jäc87] beschrieben wird. Hierbei handelt es sich um eine empirisch gewonnene Funktion der Form

$$\varepsilon(E) = e^{(P_1 + P_2 \cdot \ln(E) + P_3 \cdot \ln^2(E)) \frac{2}{\pi} \cdot \arctan\left(e^{(P_4 + P_5 \cdot \ln(E) + P_6 \cdot \ln^3(E))}\right) - 25} \quad (4.14)$$

Diese auf den ersten Blick unübersichtliche Funktion berücksichtigt im ersten Teil mit

$$e^{(P_1 + P_2 \cdot \ln(E) + P_3 \cdot \ln^2(E))} \quad (4.15)$$

den Bereich über 200 keV durch Anpassung an eine quadratische Funktion in doppellogarithmischer Darstellung. Der zweite Teil, also

$$e^{\frac{2}{\pi} \cdot \arctan\left(e^{(P_4 + P_5 \cdot \ln(E) + P_6 \cdot \ln^3(E))}\right) - 25} \quad (4.16)$$

fittet den niederenergetischen Bereich mit einer arctan-Funktion, die durch $\frac{2}{\pi}$ normiert und um den Wert 25 in den positiven Wertebereich verschoben wurde. Das Produkt aus beiden Teilen ergibt dann Gleichung (4.14), was eine für den gesamten Energiebereich vernünftige Anpassung an die experimentellen Daten liefert. Allerdings ist diese Funktion empfindlich gegenüber der Wahl der Startparameter P_1, \dots, P_6 .

Als dritte und im Rahmen dieser Arbeit allerdings nicht umgesetzte Methode empfiehlt sich der Ausgleich mit kubischen Splines [Jan90]. Dieses Verfahren weist gute Fiteigenschaften auf (2-fach stetig-differenzierbar) und ist sogar in der Lage, Röntgen-Absorptionskanten in der Efficiency unterhalb von 40 keV zu fitten.

Die Efficiency hängt sowohl von zahlreichen Detektoreigenschaften wie z.B. Detektortyp (n- oder p-type) oder Kristallform (planar oder koaxial) als auch von Probeneigenschaften wie Dichte und mittlere Kernladungszahl Z des Materials sowie der Messgeometrie ab. Während die Detektoreigenschaften als gegeben und damit konstant angesehen werden können, unterscheiden sich die Probeneigenschaften von Probe zu Probe und können dabei über weite Bereiche schwanken. Man versucht daher, beim Spiking-Verfahren wie oben beschrieben, möglichst ähnlich geartete Proben (also mit gleicher Dichte und gleichem Z) in gleichen Geometrien zu vermessen und mit

einer oder mehreren Kalibrierproben die Efficiency zu bestimmen. Dabei spielen Unterschiede in der mittleren chemischen Zusammensetzung und der Dichte der Probe vor allem für den Verlauf der Efficiency bei niedrigen Energien eine Rolle. Das liegt einerseits an der Z -Abhängigkeit des Photoeffektes (siehe Gleichung (4.2)), der wie oben beschrieben, bei niedrigen γ -Energien dominiert und andererseits daran, dass der Effekt der Selbstabsorption bei einer Volumenquelle für niedrige Energien abhängig von der Dichte des Probenmaterials ist. Beide Prozesse bestimmen den Verlauf der Efficiency bei niedrigen Energien entscheidend, was bei der Kalibrierung für ^{210}Pb zu beachtlichen Schwierigkeiten führen kann.

Dieses Verfahren, also die Kalibrierung mit Standards, die sich nur in einem Einflussfaktor unterscheiden und somit eine Interpolation ermöglichen, soll kurz für die Probenkategorie „Boden“ vorgestellt werden. Eine ausführlichere Beschreibung der Efficiency-Kalibrierung für Bodenproben findet man in [Har03a].

Boden

Die in dieser Arbeit verwendeten spezifischen Aktivitäten von Bodenproben basieren auf von HARB in [Har03a] veröffentlichten Untersuchungen.

Insgesamt wurde bei der Probennahme ausreichend Material genommen, so dass nach der oben beschriebenen Trocknung bis zur Gewichtskonstanz und den sich anschließenden Aufbereitungsschritten wie Sieben und Entfernen von groben organischen Bestandteilen noch deutlich mehr als 1000 g Masse des Materials zur Verfügung stand. Daher wurde für alle Bodenproben als optimale Geometrie die 1 L-Marinelli-Becher Geometrie gewählt. Nimmt man nun in guter Näherung an, dass sich die chemische Zusammensetzung der Proben nicht allzu sehr unterscheidet, so bleibt als einzige veränderliche Größe die Dichte der Probe. Dabei schwankten die Massen der Böden in den Marinelli-Bechern zwischen 1100 g und 1300 g bei einem konstanten Behältervolumen von 1 L. Um dies zu berücksichtigen, wurden zwei Böden mit einer Masse von 1161 g und einer Masse von 1287 g mit je 3 mL der beiden Standardlösungen gespikt. Anschließend wurde der Boden getrocknet und vermischt, um eine homogene Verteilung der Standardlösung im Boden zu gewährleisten. Nach dem Verfüllen in den Marinelli-Becher kann der so präparierte Standardboden γ -spektrometrisch untersucht werden. Mit ^{210}Pb und ^{137}Cs befinden sich zwei Isotope im Multielementstandard, die in jeder Bodenprobe in messbaren spezifischen Aktivitäten vorliegen. Folglich muss der Boden in der gewählten Messgeometrie vor der Zugabe der Standardlösung vermessen werden, um bei der Messung nach Zugabe der Standardlösung den geogenen Anteil von ^{210}Pb und ^{137}Cs von dem aus der Lösung resultierenden Anteil zu unterscheiden. Dabei erhält man den schon weiter oben in Abbildung 4.8 dargestellten Verlauf der Efficiency.

In Abbildung 4.9 wurde zum Vergleich von zwei Proben mit unterschiedlicher Masse die Efficiency für die 1 L-Marinelli Geometrie für Detektor 3 aufgetragen. Man erkennt

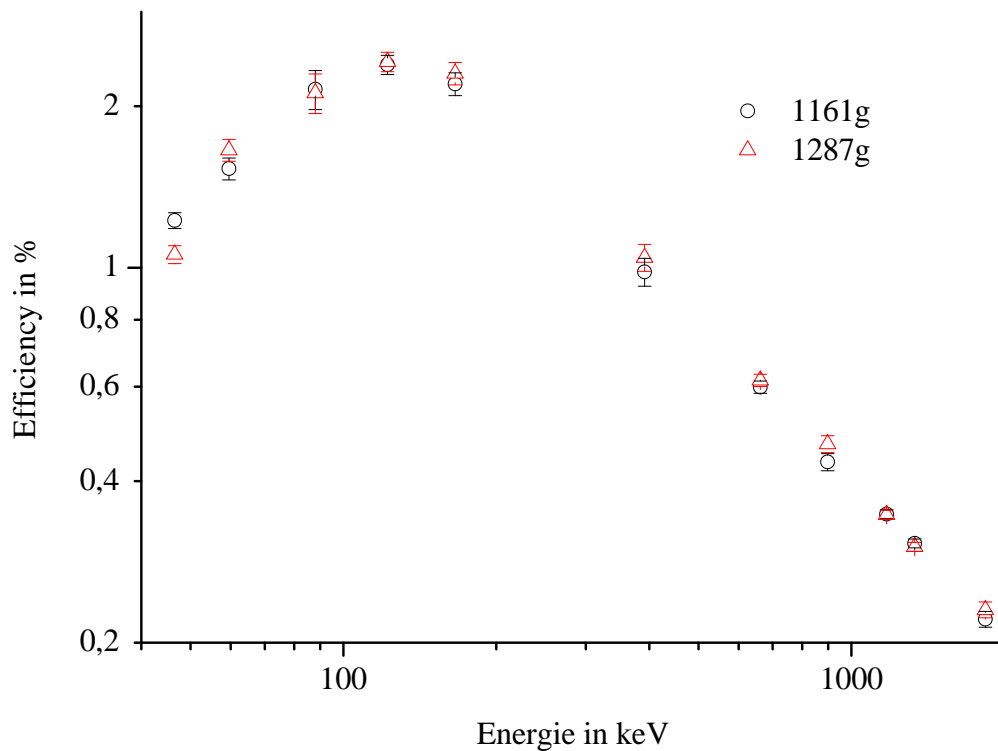


Abbildung 4.9: Vergleich der Efficiency für Bodenproben mit 1161 g und 1287 g Masse in der 1 L-Marinelli-Geometrie für Detektor 3.

recht deutlich, dass sich die Dichteunterschiede lediglich im niederenergetischen Bereich bemerkbar machen, wohingegen sich die Verläufe der Efficiency ab einer Energie von ca. 150 keV decken.

Um den veränderten Verläufen der Efficiency vor allem für ^{210}Pb Rechnung zu tragen, wurde mit Hilfe eines zusätzlichen dritten Standardbodens eine Kalibrierkurve für ^{210}Pb aufgenommen, die somit noch einen Wert für die ^{210}Pb -Efficiency bei einer Masse von 969 g enthält. Diese lineare Interpolation über unterschiedliche Massen ermöglicht dann die Bestimmung der Efficiency für ^{210}Pb in der 1 L-Marinelli Geometrie (siehe Abbildung 4.10).

Sonstige Proben

Abgesehen von Boden wurden die meisten in Kapitel 3 beschriebenen Proben verascht oder, wie im Fall von Milch beispielsweise, gefriergetrocknet. Das bedeutet eine erhebliche Reduktion der Masse auf im Mittel ca. 1 % der ursprünglichen Masse (siehe Tabellen A.5 bis A.11 im Anhang, in denen die Asch- und Trockengewichte aufgeli-

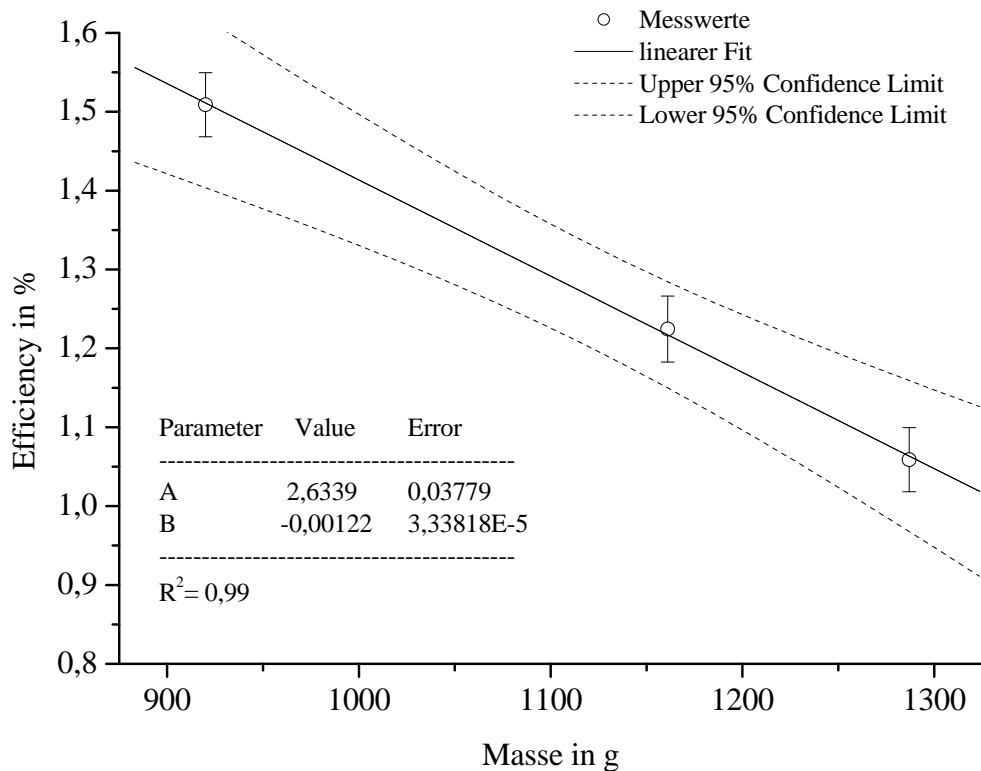


Abbildung 4.10: Interpolation der Efficiency von ^{210}Pb über unterschiedliche Massen (Detektor 3).

stet sind). Aus diesem Grund wurde die erhaltene Asche in Petrischalen verpresst und diese dann γ -spektrometrisch untersucht. Dabei sind im Wesentlichen zwei Aspekte zu berücksichtigen, die zu Schwierigkeiten bei der Bestimmung der spezifischen Aktivität führen können:

1. Der merkbliche Einfluss von Summationskorrekturen bei der Petrischalen-Geometrie und
2. Die unbekannte stoffliche Zusammensetzung der Asche, also die Tatsache, dass die mittlere Kernladungszahl Z nicht mehr bekannt ist.

Auf den ersten Punkt wird in Abschnitt 4.4.3 ausführlich eingegangen. Der zweite Punkt spielt bei der Bestimmung der Efficiency für ^{210}Pb eine entscheidene Rolle. Da man beim Spiking-Verfahren versucht, Proben in Klassen möglichst ähnlicher Stoffeigenschaften einzuteilen, um dann für eine solche Klasse eine begrenzte Anzahl von Standardproben herzustellen, stellt eine unbekannte stoffliche Zusammensetzung ein Problem dar. Als Konsequenz müsste man entweder eine Analyse der stofflichen Zusammensetzung durchführen oder für (fast) jede Probe ein eigenes Standardmaterial herstellen. Da ersteres im Rahmen dieser Arbeit nicht möglich war und zweiteres

sehr zeit- und kostenintensiv gewesen wäre, schied hier das Spiking-Verfahren zur Bestimmung der Efficiency aus. Um dieses Problem zu lösen, wurden sowohl für die kleine Petrischalengeometrie ($\varnothing \approx 50$ mm) als auch für die große ($\varnothing \approx 100$ mm) runde Segmente aus Filterpapier (Schleicher & Schüll, S&S Rundfilter, 589³ Blauband) ausgeschnitten, mit je 1 mL der beiden Multielementlösungen versetzt und mit Einklebefolie versiegelt. Mit diesem so hergestellten Flächenstandardpräparat wurde dann nach der Messung der Probe durch Platzieren der Filterfolie auf der Probe ein weiteres Spektrum der Efficiency aufgenommen. Da beim Spiking-Verfahren die zugesetzte Aktivität homogen in der Probe verteilt war, wurde als zweite Efficiencymessung ein Spektrum mit der Folie direkt auf dem Detektorkopf aufgenommen. Durch Mittelung der Zählraten dieser beiden Spektren (also einmal in der Geometrie „Detektor-Probe-Filter“ und einmal in der Geometrie „Detektor-Filter-Probe“) kann dann die Efficiency für die Messung abgeschätzt werden. Zur Überprüfung dieser Idee wurde zunächst eine Ascheprobe in zwei Aliquote unterteilt, von denen der eine gespikt und der andere mit der „Flächenstandardpräparatmethode“ vermessen wurde. Das Ergebnis ist in Abbildung 4.11 zu sehen.

Insgesamt stimmen die durch das Spiking-Verfahren berechnete und die durch die Absorptionsexperimente mit Flächenstandardpräparaten berechnete Efficiency gut überein. In Abbildung 4.12 zeigt sich auch die gute Übereinstimmung im niederenergetischen Bereich.

Im Vergleich der drei benutzten Detektoren untereinander zeichnen sich alle drei mit einer guten Efficiency im Niedrigenergiebereich aus. Als planarer n-type Detektor mit geringerem aktiven Volumen fällt die Efficiency für Detektor 3 mit zunehmender Energie steiler ab als für die Detektoren 1 und 2. Detektor 1 besitzt eine sehr gute Efficiency für niedrige Energien, die über der von Detektor 2 liegt und ungefähr mit der von Detektor 3 übereinstimmt. Leider gehen die leichten Vorteile der guten Efficiency durch den hohen Nulleffekt wieder verloren, da dieser die Nachweis- und Erkennungsgrenzen merklich nach oben verschiebt (siehe Kapitel 4.5). Als Beispiel sind die Efficiencykurven einer Milchprobe (getrocknetes Milchpulver) in der großen Petrischalengeometrie der drei Detektoren im Vergleich in Abbildung 4.13 dargestellt. Dabei erzielt Detektor 2 als p-type HPGe-Detektor auf Grund des sehr dünnen Kunststofffensters auch im niederenergetischen Bereich noch sehr gute Ergebnisse.

4.4.3 Summationskorrekturen

Da die spezifische Aktivität von natürlichen Radionukliden in Umweltmedien in nicht anthropogen beeinflussten Gebieten meist im Bereich der Nachweis- und Erkennungsgrenzen liegt und zusätzlich das Probenvolumen durch Veraschung oder Gefriertrocknung stark reduziert wird, liegt es nahe, Proben so dicht wie möglich am Kristall positioniert zu messen, um eine hohe Efficiency zu gewährleisten. Eine Ausnahme bildet in dieser Hinsicht der Boden, dessen Veraschung zur γ -Spektrometrie nicht notwendig

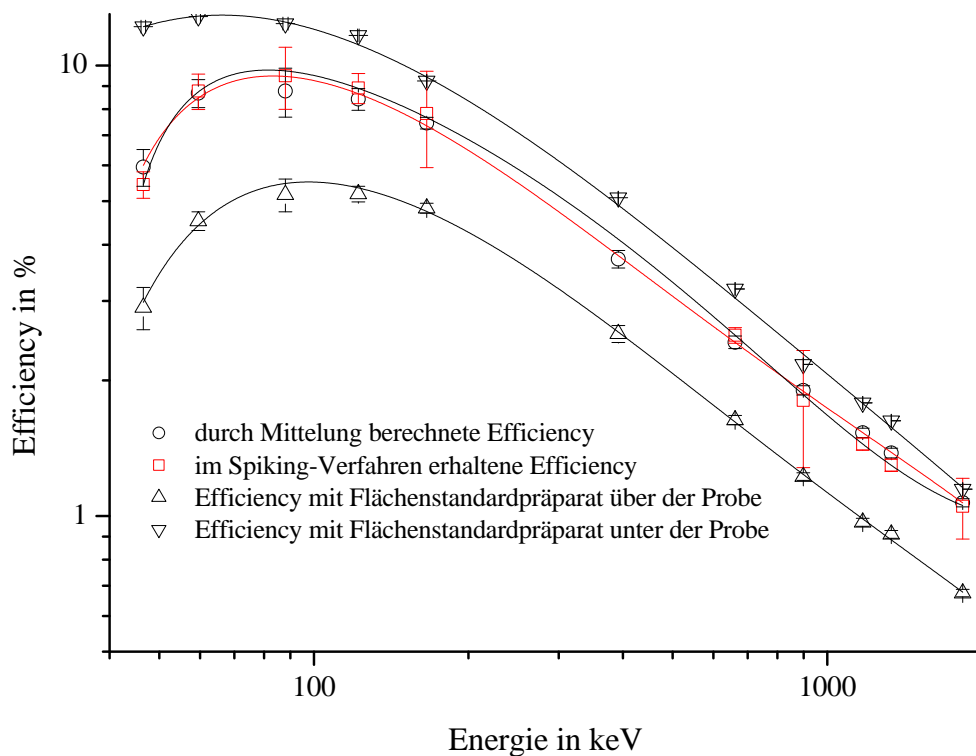


Abbildung 4.11: Vergleich der Efficiencies erhalten durch das Spiking-Verfahren (rote Linie) mit der durch Mittelung der Efficiencies mit Flächenstandardpräparat (schwarze Linien) erhaltenen (Detektor 2). Fit nach Gleichung (4.14).

ist und bei dem Dank des größeren Probenvolumens die Marinelli-Geometrie als optimal angesehen werden kann. Positioniert man jedoch eine Probe z.B. mit Hilfe einer Petrischale direkt auf den Detektorkopf, treten so genannte Summationseffekte auf, die zu berücksichtigen sind. Man unterscheidet dabei in

- Zufällige Summationseffekte und
- Systematische oder Kaskaden-Summationseffekte.

In beiden Fällen werden zwei oder mehrere γ -Quanten vom Detektor gleichzeitig registriert und im Impulshöhenspektrum damit ein Impuls bei der Summe der Energien anstatt im full-energy-peak aufgezeichnet, der somit unterschätzt wird (summing-out). Der umgekehrte Prozess, nämlich dass ein full-energy-peak gerade der Summe zweier einzelner, zeitlich nicht aufgelöster, γ -Quanten entspricht und damit einen Beitrag aus Summationseffekten erhält, nennt man entsprechend „summing-in“. Bei den zufälligen Summationseffekten werden zwei aus *unterschiedlichen* Zerfällen stammende γ -Quanten gleichzeitig detektiert, wohingegen bei den systematischen oder Kaskaden-

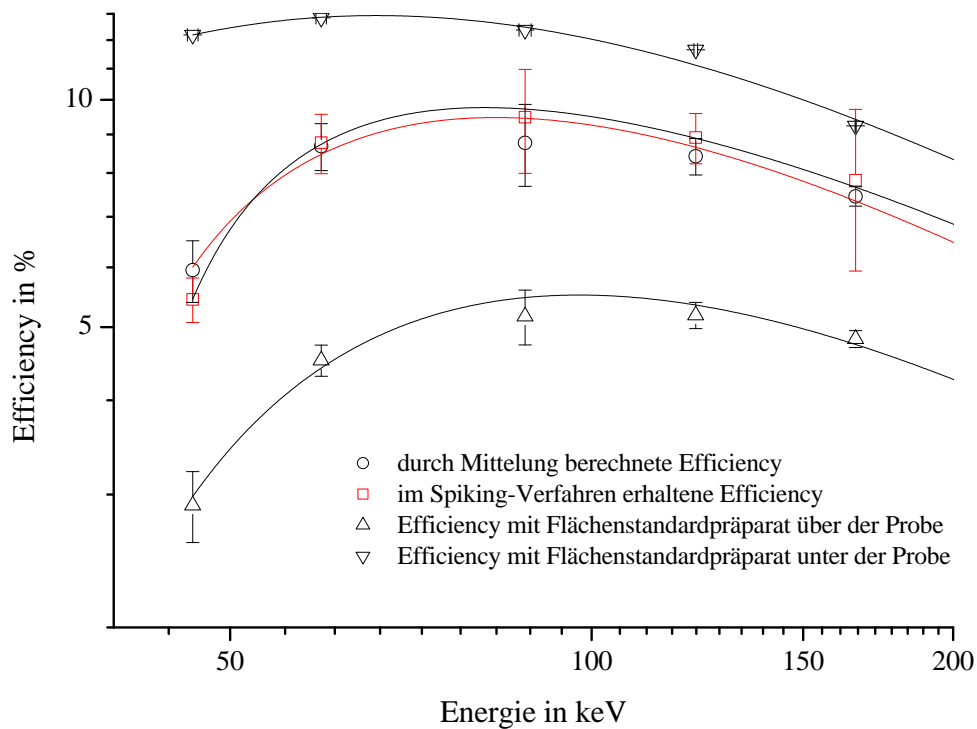


Abbildung 4.12: Vergleich der Efficiencies unter 200 keV erhalten durch das Spiking-Verfahren (rote Linie) mit der durch Mittelung der Efficiencies mit Flächenstandardpräparat (schwarze Linien) erhaltenen (Detektor 2). Fit nach Gleichung (4.12).

Summationseffekten beide γ -Quanten aus *einem* Zerfallsprozess, der kaskadenartig verläuft, stammen. Dieser wichtige Unterschied wird in Abbildung 4.14 dargestellt.

Während zufällige Summationseffekte von der Zählrate abhängen und mit steigender Zählrate zunehmen, sind die Kaskaden-Summationseffekte vollkommen unabhängig von der Zählrate und daher lediglich eine Funktion der Geometrie und der Detektoreigenschaften. Somit spielen zufällige Summationseffekte in dieser Arbeit wegen der durchweg geringen Aktivitäten der Proben auch keine Rolle. Wenn im Folgenden also von Summationseffekten gesprochen wird, ist immer die Kaskaden-Summation gemeint, wobei natürlich je nach Kernkonfiguration Zerfälle unterschiedlicher Kerne auch verschiedene Summationskorrekturen erfordern. Allgemein wird in der Literatur auf die Bedeutung von Summationskorrekturen gerade für detektornaher Geometrien hingewiesen [Deb79], [Kor93], [Qui95], [DF02], wobei fast ausschließlich die Korrekturen für künstliche Radionuklide wie ^{152}Eu , ^{133}Ba , ^{88}Y , ^{60}Co oder ^{134}Cs betrachtet werden.

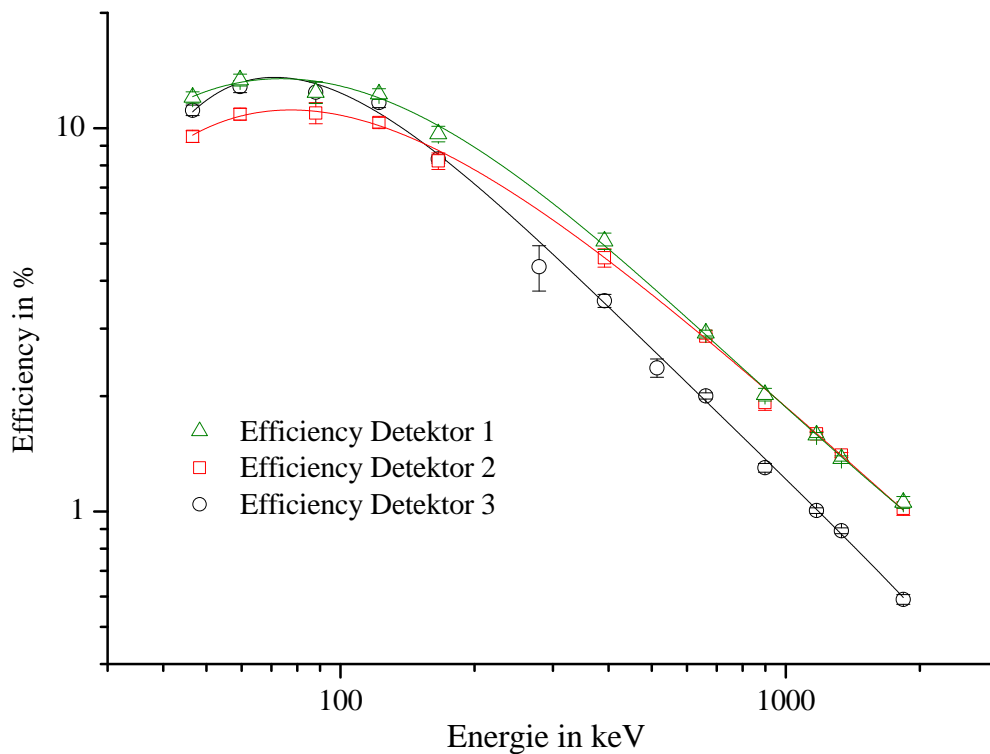


Abbildung 4.13: Vergleich der Efficiency der drei Detektoren für eine Milchprobe (getrocknetes Milchpulver) in der großen Petrischalengeometrie

Allerdings wird in [GT01] explizit auf die Notwendigkeit von Korrekturen auch bei natürlichen Radionukliden hingewiesen. So wurden in [GT01] für einen n-type-HPGe-Detektor Korrekturen für die Marinelli- und die Petrischalen-Geometrie experimentell bestimmt. Dabei besteht für die Linien von ^{214}Bi aus der ^{238}U -Reihe, von ^{228}Ac und ^{208}Tl aus der ^{232}Th -Reihe und von ^{235}U die Notwendigkeit von Summationskorrekturen, die z.T. in der Größenordnung von bis zu 25 % liegen können. Frei von Summationseffekten sind nach [GT01] außer allen 1-Linien-Nukliden die Linien von ^{214}Pb aus der ^{238}U -Reihe, und auch für die Linien des ^{228}Ac bei 338 keV, 911 keV oder 969 keV liegen die Korrekturen nur in der Größenordnung von einigen wenigen Prozent. In [Deb90] findet man eine Übersicht über Summenkorrektionsfaktoren bei verschiedenen Geometrien für u.a. Ge(Li)-Detektoren. Obwohl dort darauf aufmerksam gemacht wird, dass bei n-type-HPGe-Detektoren aufgrund der Nachweisbarkeit von Röntgenlinien im Vergleich zu p-type-HPGe- oder Ge(Li)-Detektoren zusätzliche Summationseffekte auftreten können, besteht zwischen den in [GT01] für n-type HPGe- und in [Deb90] für Ge(Li)-Detektoren angegebenen Summationskorrekturen für die Petrischalengeometrie eine sehr gute Übereinstimmung. Die einzelnen angegebenen Werte für die Summationskorrektur sowohl von [Deb90] als auch von [GT01] können dabei Tabelle 4.1 auf Seite 27 entnommen werden. Des Weiteren fallen nach

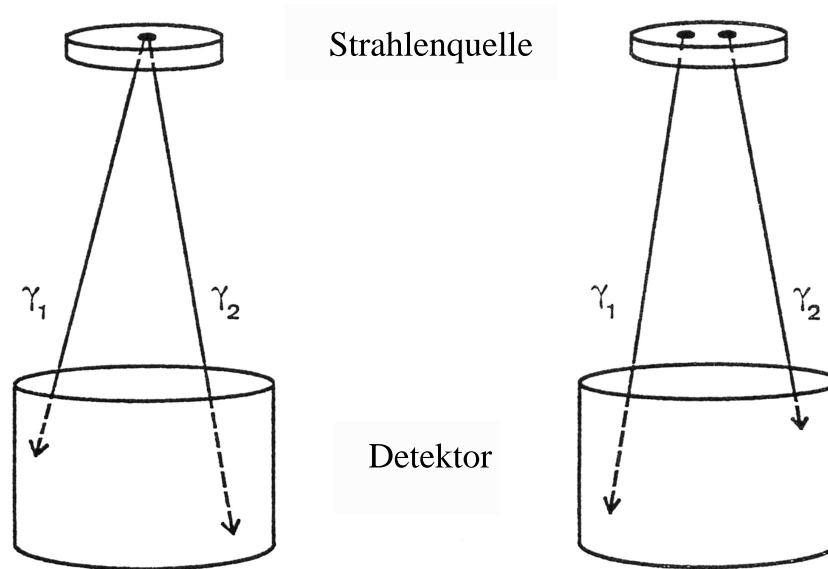


Abbildung 4.14: Unterscheidung zwischen systematischen Summationseffekten (links, gleichzeitiger Nachweis zweier Quanten von einem Zerfall) und zufälligen Summationseffekten (rechts, gleichzeitiger Nachweis zweier Quanten verschiedener Zerfälle), entnommen aus [Deb90].

[Deb90] die in der Marinelli-Geometrie beobachteten Summationskorrekturen deutlich geringer aus im Vergleich zur Petrischalengeometrie. Mit diesen in [Deb90] oder [GT01] angegebenen Korrekturfaktoren ist in erster Näherung eine angemessene Berücksichtigung von Summationseffekten möglich.

Neben der Summationskorrektur bei natürlichen Radionukliden spielen allerdings in dem oben beschriebenen Messverfahren auch Summationskorrekturen von ^{88}Y und ^{60}Co bei der Efficiency-Bestimmung eine Rolle. Wie Tabelle A.12 im Anhang auf Seite 219 entnommen werden kann, besteht der Multielementstandard QCY48 bis auf ^{88}Y und ^{60}Co aus Nukliden mit nur einem γ -Übergang. Bei ^{88}Y und ^{60}Co hingegen treten sehr wohl Summationseffekte auf, die die Efficiency-Kurve im höherenergetischen Bereich beeinflussen. In Abbildung 4.15 ist der Unterschied des in doppellogarithmischer Darstellung linearen Verlaufes der Efficiency bei Energien oberhalb von 200 keV zwischen einer nicht korrigierten und einer mit den Werten aus [Deb90] korrigierten Efficiency dargestellt. Wie weiter unten noch gezeigt wird, sind für die Petrischalengeometrie die [Deb90] entnommenen Korrekturfaktoren eine gute Näherung für die Berücksichtigung der Summationseffekten von ^{88}Y und ^{60}Co .

Da bei vielen in dieser Arbeit untersuchten Proben auf Grund der geringen spezifischen Aktivitäten die Unsicherheit der Nettozählrate den Großteil der kombinierten Standardunsicherheit ausmachte, fiel eine mit 10 % Unsicherheit behaftete Abschätzung

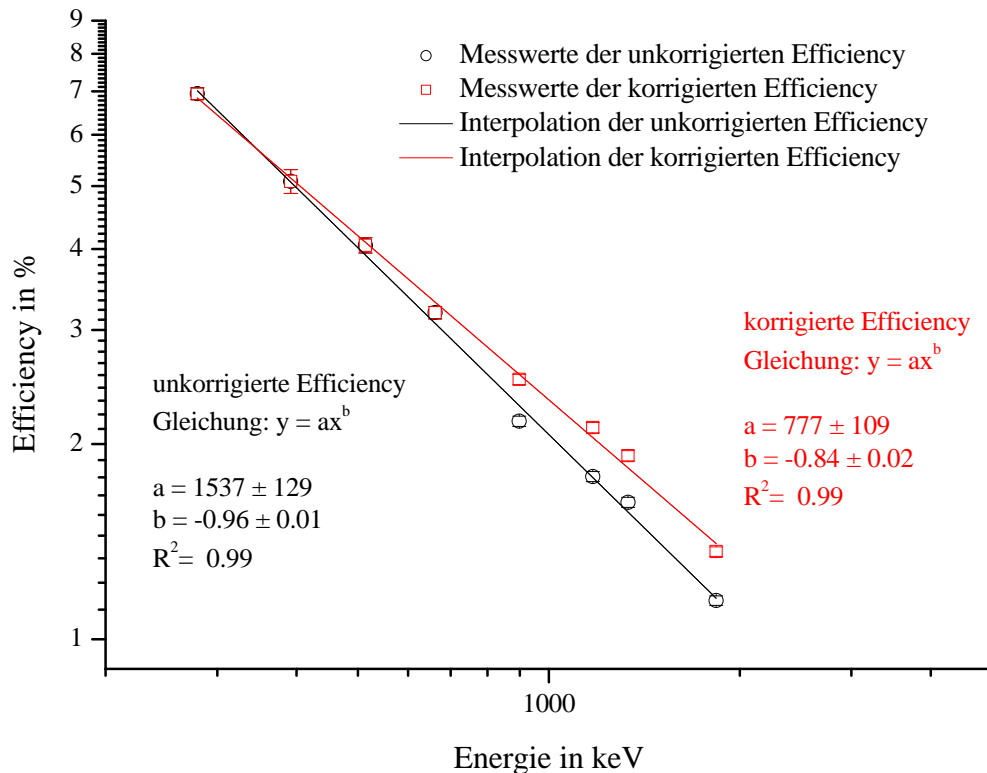


Abbildung 4.15: Efficiency in der Petrischalen-Geometrie einmal mit Summenkorrektur für ^{88}Y und ^{60}Co nach [Deb90] und ohne.

der Summationskorrektur nicht ins Gewicht. Daher wurden in dieser Arbeit die Korrekturfaktoren für die Messung [Deb90] entnommen und mit einer Unsicherheit von 10 % versehen, was in der Regel eine recht konservative Abschätzung sein dürfte. Zusätzlich benötigen manche Nuklide trotz Kaskadenzerfalls keine (^{214}Pb) oder nur geringe Korrekturen (^{228}Ac), so dass auf diese Nuklide zurückgegriffen werden kann, wenn man die Genauigkeit der Summationskorrekturen in Frage stellt. Begnügt man sich jedoch nicht mit einer Abschätzung dieser Art oder bedarf es aus anderen Gründen einer exakteren Bestimmung der Korrekturfaktoren, so besteht die Möglichkeit, mit höherem Aufwand die Summationskorrekturen genauer abzuschätzen.

Während in [Qui95] eine empirische Methode zur Bestimmung der Summationskorrekturen empfohlen wird, versuchen verschiedene andere Autoren mit Hilfe von Monte-Carlo-Simulationen für verschiedene Detektor-Typen und Geometrien die Summationskorrekturen rechnerisch auf Grundlage des Kernschemas zu ermitteln [Kol97], [Arn01], [Kos01], [Sim01], [Abb02], [Sim02a]. Diese Methoden versprechen zwar gute Ergebnisse, sind aber recht aufwändig oder müssen käuflich erworben werden. Eine andere, nicht wirklich exakte, aber immerhin genauere Abschätzung als die bloße Verwendung der Summationskorrekturen nach [Deb90], wird ebendort beschrieben. Bei

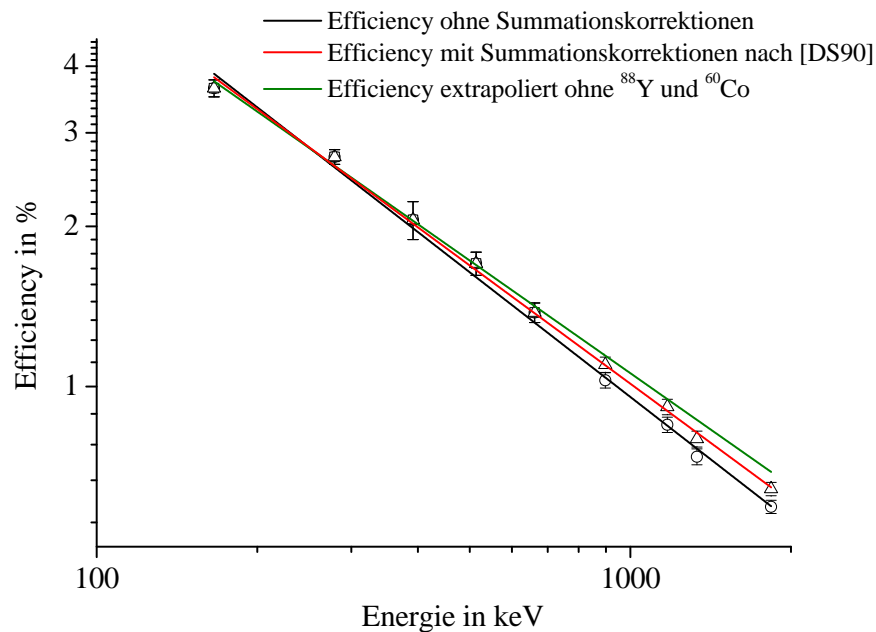


Abbildung 4.16: Vergleich der Summationseffekte bei der Bestimmung der Efficiency von Detektor 2 für destilliertes Wasser in der 1 L-Marinelli-Geometrie.

dieser Methode benutzt man die Differenz zwischen der korrigierten und der unkorrigierten Efficiency von z.B. ^{60}Co , um mit Hilfe der Formel

$$\frac{k_{C,M} - 1}{k_{C,T} - 1} = \frac{k_{X,M} - 1}{k_{X,T} - 1} \quad (4.17)$$

mit

- $k_{C,M}$ = Korrektionsfaktor für ^{60}Co in der realen Messung M ,
- $k_{C,T}$ = Korrektionsfaktor für ^{60}Co aus der Tabelle im Anhang von [Deb90], der am ehesten den Bedingungen der realen Messung M entspricht,
- $k_{X,M}$ = Korrektionsfaktor für die auszuwertende Linie des Nuklides X in der realen Messung M ,
- $k_{X,T}$ = Korrektionsfaktor für die auszuwertende Linie des Nuklides X aus der Tabelle im Anhang von [Deb90], der am ehesten den Bedingungen der realen Messung M entspricht,

die Größe des Summationseffektes abzuschätzen. Gesucht ist also $k_{X,M}$, das durch Umstellung von Gleichung (4.17) berechnet werden kann.

Der unbekannte Wert $k_{C,M}$, also die wahre Summationskorrektion in der eigenen realen Messung, kann dabei aus der experimentell erhaltenen Efficiency-Kurve geschätzt werden. Dabei macht man sich zu Nutze, dass, wie oben schon erwähnt, in der Lösung

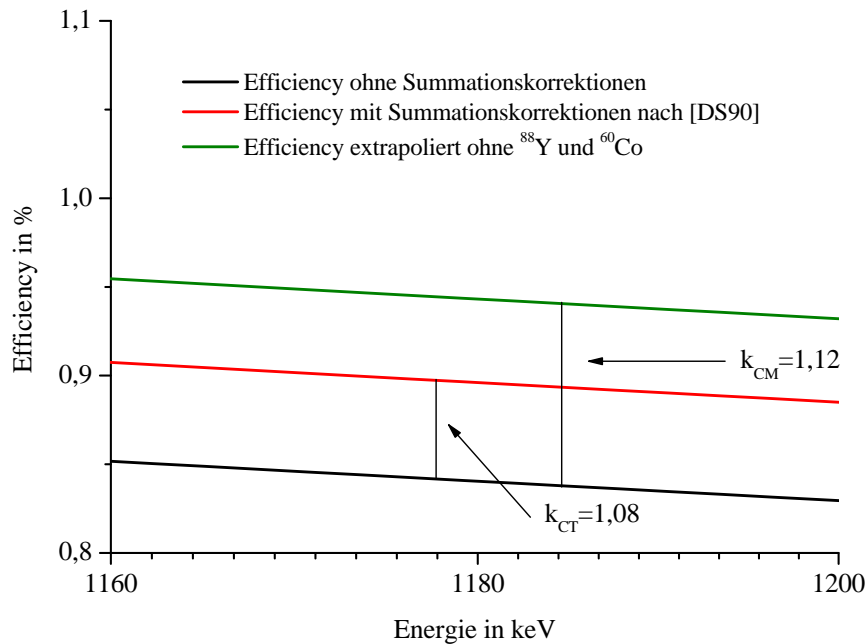


Abbildung 4.17: Zoom auf die 1173 keV Linie des ^{60}Co in Abbildung 4.16.

QCY48 außer ^{60}Co und ^{88}Y nur Nuklide mit einem einzigen γ -Übergang vorhanden sind. Die Differenz zwischen der Interpolationskurve, die nur diese Nuklide berücksichtigt und der Interpolationskurve, die auch ^{60}Co und ^{88}Y beinhaltet, ist ein Maß für die wahre Größenordnung der Summationskorrektur der Efficiency. In Abbildung 4.16 sind die Unterschiede zwischen der Efficiency ohne Summationskorrektur, der mit Summationskorrektur und der Efficiency ohne ^{60}Co und ^{88}Y dargestellt.

Vergrößert man nun diese Abbildung, so erkennt man die Abweichung der Efficiency mit den aus [Deb90] berechneten Werten und der ohne Berücksichtigung von ^{60}Co und ^{88}Y geschätzten Efficiency. Dieser Sachverhalt ist zusammen mit den Korrekturfaktoren $k_{C,M}$ und $k_{C,T}$ in Abbildung 4.17 dargestellt.

Mit Gleichung (4.17) lassen sich nun für beliebige andere Nuklide die Summationskorrekturen für diese spezielle Messgeometrie herleiten. Als Beispiel mag die Bestimmung von ^{152}Eu in einer wässrigen Lösung dienen. Als Teil eines IAEA-Proficiency-Tests wurde eine wässrige Lösung, die mit einer unbekanntem Menge künstlicher Radionuklide gespiked war, am ZSR γ -spektrometrisch untersucht. Während eine Vernachlässigung der Summationseffekte zu einem im Vergleich mit den Angaben der IAEA nicht akzeptablen Ergebnis führt, stellt die Abschätzung mit den Korrekturfaktoren nach [Deb90] eine deutliche Verbesserung des Ergebnisses dar. Eine weitere Annäherung an den Vergleichswert der IAEA erhält man schließlich wie oben beschrieben durch Verwendung von Gleichung (4.17). Allerdings beträgt der Unterschied zwischen der Korrektur nach [Deb90] und der gemäß Gleichung (4.17) nur

4 γ -Spektrometrie von natürlichen Radionukliden

knapp 2 %. In Tabelle 4.4 sind die Summationskorrekturen und in Tabelle 4.5 die ermittelten Aktivitäten von ^{152}Eu mit den jeweiligen Summationskorrekturen angegeben.

Tabelle 4.4: Zusammenstellung der Summationskorrekturen für ^{152}Eu in der 1-L-Marinelli-Geometrie für Detektor 1.

Energie von ^{152}Eu in keV	keine SK ^a k_s ^b	SK nach [Deb90] k_s	SK nach Gl. (4.17) k_s
244,7	1,00	1,13	1,21
344,3	1,00	1,06	1,09
778,9	1,00	1,10	1,16
964,1	1,00	1,07	1,11
1408	1,00	1,06	1,10

^a SK steht für Summationskorrektur.

^b k_s steht für Summationskorrektionsfaktor (siehe Gleichung (4.20)).

Tabelle 4.5: Spezifische Aktivitäten für ^{152}Eu mit den in Tabelle 4.4 angegebenen Summationskorrekturen.

Energie in keV	keine SK ^a A in Bq/g	SK nach [Deb90] A in Bq/g	SK nach Gl. (4.17) A in Bq/g	IAEA A in Bq/g
244,7	13,35	14,06	15,16	
344,3	14,35	15,11	15,46	
778,9	13,55	14,29	14,56	
964,1	13,01	13,23	13,15	
1408	13,43	13,31	13,01	
Mittelwert	13,31	14,00	14,27	14,60
Standardabw.	0,7	0,7	0,7	0,15

^a SK steht für Summationskorrektur.

Natürlich setzt das Verfahren voraus, dass der Multielementstandard jung genug ist, so dass von den recht kurzlebigen Isotopen wie ^{139}Ce ($T_{1/2} = 138$ d), ^{203}Hg ($T_{1/2} = 47$ d), ^{113}Sn ($T_{1/2} = 115$ d) und ^{85}Sr ($T_{1/2} = 65$ d) noch ausreichend Aktivität vorhanden ist, um für diesen Zweck auswertbare γ -Linie im Efficiency-Spektrum zu erhalten. Außerdem wäre ein Multielementstandard mit einem 1-Linien-Nuklid oberhalb von 1000 keV, also z.B. mit ^{65}Zn ($E_\gamma = 1165$ keV), wünschenswert, um die Genauigkeit der Interpolation zu erhöhen.

Insgesamt zeigt sich für die Petrischalen-Geometrie, dass der Unterschied in der Efficiencykurve zwischen den Korrekturen von [Deb90] und der Korrektur nach Gleichung (4.17) in der Regel vernachlässigbar klein ist, so dass die Faktoren von [Deb90] eine gute Abschätzung für die Größe der Korrektur darstellen und folglich mit diesen Werten gearbeitet wurde.

4.5 Berechnung von Aktivität, Unsicherheiten und charakteristische Grenzen

4.5.1 Aktivität

Bei bekannter Efficiency und bekanntem Nulleffektbeitrag kann die Aktivität A in Bq aus der Nettozählrate der Probenmessung durch

$$A = \frac{\frac{N_{P,n}}{t_P} - \frac{N_{0,n}}{t_0}}{I \cdot \varepsilon} \quad (4.18)$$

mit

- A = Aktivität in Bq,
- $N_{P,n}$ = Nettopeakfläche im Probenspektrum,
- t_P = Messzeit der Probe in s,
- $N_{0,n}$ = Nettopeakfläche im Nulleffektspektrum,
- t_0 = Messzeit des Nulleffekts in s,
- I = Intensität und
- ε = Efficiency (Zählausbeute)

berechnet werden. Entsprechend ist die spezifische Aktivität A_{spez} in Bq/kg als

$$A_{spez} = \frac{\frac{N_{P,n}}{t_P} - \frac{N_{0,n}}{t_0}}{m \cdot I \cdot \varepsilon} \quad (4.19)$$

mit

$$m = \text{Masse der Probe in kg}$$

definiert.

Sind für die Linie Summationskorrekturen erforderlich, so erweitert sich Gleichung (4.19) zu

$$A_{\text{spez}} = \frac{N_{P,n} - N_{0,n}}{t_P - t_0} \cdot k_s \quad (4.20)$$

mit

$$k_s = \text{Summationskorrektionsfaktor.}$$

4.5.2 Unsicherheiten

Der Berechnung der Unsicherheiten basiert im Wesentlichen auf [GUM95]. Dabei ergibt sich die kombinierte Varianz als Quadrat der kombinierten Standardunsicherheit u_y einer Veränderlichen $y = f(x_i)$ mit $i = 1, \dots, N$ nach [GUM95] zu

$$u^2(y) = \sum_{i=1}^N \left(\frac{\partial f}{\partial x_i} \right)^2 u^2(x_i). \quad (4.21)$$

Dabei wird der Faktor $c_i := \frac{\partial f}{\partial x_i}$ auch als Sensitivitätskoeffizient bezeichnet.

Aus Gleichung (4.21) folgt damit für die kombinierte Varianz der spezifischen Aktivität unter Berücksichtigung der evtl. erforderlichen Summationskorrekturen:

$$\begin{aligned} u^2(A_{\text{spez}}) &= \frac{k_s^2}{(\varepsilon \cdot I \cdot m)^2} \cdot \left[\left(\frac{u(N_{P,n})}{t_P} \right)^2 + \left(\frac{u(N_{0,n})}{t_0} \right)^2 \right] \\ &+ A_{\text{spez}}^2 \cdot \left[u_{\text{rel}}^2(\varepsilon) + u_{\text{rel}}^2(I) + u_{\text{rel}}^2(m) + u_{\text{rel}}^2(k_s) \right]. \end{aligned} \quad (4.22)$$

Dabei wurden die Unsicherheiten der Messzeiten vernachlässigt, also $u(t_P) = u(t_0) = 0$ gesetzt.

Im Folgenden wird die Abschätzung der einzelnen Einflussgrößen von Gleichung (4.22) beschrieben.

Unsicherheit der Nettopeakflächen

Die Unsicherheit der Nettopeakflächen, also $u(N_{P,n})$ und $u(N_{0,n})$ ergibt sich bei angenommener Poisson-Verteilung der Zählraten zu $u^2(N_n) = N_n + 2 \cdot N_{Cu}$, wobei mit N_n die Anzahl der Zählereignisse im Nettopeak und mit N_{Cu} die Anzahl der Zählereignisse im (Compton)-Untergrund eines Peaks gemeint sind.

Unsicherheit der Efficiency

Für die relative kombinierte Standardunsicherheit der Efficiency ε gilt nach den Gleichungen (4.10) und (4.21) mit $R_{\text{reg}} = N_{\text{reg}}/t$ und $R_{\text{em}} = N_{\text{em}}/t$

$$u_{\text{rel}}(\varepsilon) = \sqrt{u_{\text{rel}}^2(R_{\text{reg}}) + u_{\text{rel}}^2(R_{\text{em}})}, \quad (4.23)$$

wobei sich $u(R_{\text{reg}})$ als Unsicherheit einer Nettozählrate eines Full-energy-Peaks unter der Vernachlässigung der Unsicherheit der Zeitmessung wieder als

$$u^2(R_{\text{reg}}) = \frac{N_{\text{reg},n} + 2 \cdot N_{\text{reg,Cu}}}{t^2} \quad (4.24)$$

schätzen lässt. Aus

$$u_{\text{rel}}(x) = \frac{u(x)}{x} \quad (4.25)$$

folgt dann unmittelbar $u_{\text{rel}}^2(R_{\text{reg}})$.

Für R_{em} gilt:

$$R_{\text{em}} = R_Z \cdot \frac{m_1}{m_2} \cdot e^{-\lambda \Delta t} \quad (4.26)$$

mit

- R_Z = Angabe der Zerfälle pro Sekunde in der Standardlösung nach Zertifikat des Herstellers des Multielementstandards (siehe Tabellen A.12 und A.13 im Anhang),
- m_1 = Masse des Teils von m_2 , der zur Herstellung einer Standardprobe der Lösung mit Masse m_2 entnommen wurde,
- m_2 = Masse der 4-molaren Salzsäure, auf die die ursprüngliche Standardlösung verdünnt wurde (siehe Tabellen A.12 und A.13 im Anhang),
- λ = Zerfallskonstante des betreffenden Nuklides und
- Δt = Zeitraum zwischen Referenzdatum und Datum der Messung in s.

Unter Vernachlässigung der Unsicherheit der Masse der verdünnten Lösung m_2 und der Unsicherheit der Zeit Δt ergibt sich wiederum:

$$u_{rel}^2(R_{em}) = u_{rel}^2(m_1) + u_{rel}^2(R_Z). \quad (4.27)$$

Während $u_{rel}(R_Z)$ in den Tabellen A.12 und A.13 der entsprechenden Standardlösungen im Anhang nachgeschlagen werden kann, wurde $u_{rel}(m_1)$ durch mehrfaches Pipettieren mit $u_{rel}(m_1) = 0,45\%$ abgeschätzt.

Somit ist es möglich, die Unsicherheiten der Efficiency für die Energien derjenigen Radionuklide zu bestimmen, die in den beiden Standardlösungen vorhanden waren. Diese kombinierte Standardunsicherheit schwankt je nach Nuklid zwischen 1 % und 3 %, wobei 3 % nicht überschritten werden. Die anschließend durchzuführende Interpolation der Efficiency (s.o.) weist im Allgemeinen einen R^2 -Wert von $R^2 > 0,99$ auf, so dass sich die Gesamtunsicherheit der Efficiency durch die Interpolation nicht entscheidend erhöht. Insgesamt wurde daher abdeckend für Nuklide mit einer Energie über 150 keV mit einer Unsicherheit von 5 % für die Efficiency gerechnet. Für ^{210}Pb bei 46 keV konnte die Efficiency ohne Interpolation berechnet werden, da ^{210}Pb in der Standardlösung QCYB40 direkt enthalten war.

Bei der Messung der Efficiency mit der „Flächenstandardpräparatmethode“ wurden zwei Efficiency-Messungen durchgeführt, eine mit dem Standardpräparat auf der Probe ϵ_{oben} und eine mit dem Standardpräparat unter der Probe ϵ_{unten} (s.o.). Die Mittelung der beiden Efficiencykurven führt dann zu einer kombinierten Standardunsicherheit von

$$u(\epsilon) = \frac{1}{2} \cdot \sqrt{u^2(\epsilon_{oben}) + u^2(\epsilon_{unten})}. \quad (4.28)$$

Unsicherheit der Intensität

Die Unsicherheiten der Intensitäten I wurden [Sch98b] entnommen. Sie sind verglichen mit der Unsicherheit der Zählraten, der Efficiency oder der Summationskorrekturen klein und tragen nur unwesentlich zur kombinierten Standardunsicherheit bei.

Unsicherheit der Masse

Die Unsicherheiten der Bestimmung der Massen hängen mit dem Messbereich der benutzten Waage zusammen. Da zur Vermessung der Masse eine digitale Waage mit einer Anzeige im Gramm-Bereich mit einer Nachkommastelle verwendet wurde, bestimmt sich die Unsicherheit der Masse nach [GUM95] zu

$$u(m) = \frac{0,05\text{g}}{\sqrt{3}}. \quad (4.29)$$

Nicht berücksichtigt wurden die Unsicherheiten des Feuchtgewichtes, der Masse beim Trocknen und der Masse beim Veraschen der Proben.

- Wie oben beschrieben, wurde Gemüse vor der Bestimmung der Masse normgewaschen [Mes00h]. Da es sich um ein normiertes Verfahren handelt, wurde die Frage, in wie weit das so ermittelte Feuchtgewicht dem tatsächlichen Feuchtgewicht entspricht, außer Acht gelassen.
- Nicht behandelt wurde des Weiteren die Frage, ob der Trocknungsprozess vollständig war. Prinzipiell wurden Proben bis zur Gewichtskonstanz getrocknet. Da das Speichervermögen von Pflanzen für Wasser im Vergleich zu Boden beim Trocknungsverfahren als gering angesehen werden kann, wurde von einer vollständigen Trocknung ausgegangen.
- Durch die Benutzung von Transparentpapier als Unterlage in den Veraschungsschalen kann der Veraschungsvorgang als quantitativ angesehen werden, da ein Anhaften oder Einbrennen von Probenmaterial in die Gefäßwand verhindert wird [Mes00h]. Dabei war die Veraschung häufig, aber nicht immer, vollständig in dem Sinne, als dass der Kohlenstoff-Gehalt maximal bis zum Erhalt von weißer Asche reduziert werden konnte. Dies erklärt Abweichungen in den Tabellen A.5 bis A.11 im Anhang von Literaturwerten, hat aber keinen Einfluss auf die Genauigkeit der γ -Spektrometrie.

Unsicherheit der Summationskorrektion

Summationskorrekturen wurden ausführlich im Abschnitt 4.4.3 behandelt. Da die exakte Abschätzung der Summationskorrekturen in der Petrischalengeometrie für jede Messung einen recht hohen zusätzlichen Aufwand bedeutet hätte, wurde den [Deb90] entnommenen Summationskorrekturen eine relative Standardunsicherheit von 10 % zugeordnet, was als konservativ angesehen werden kann. Es sei aber nochmals darauf hingewiesen, dass für jedes Nuklid, das in dieser Arbeit untersucht wurde (mit Ausnahme von ^{228}Ac), γ -Linien existieren, die keiner Summationskorrektion bedürfen. Falls eine solche Linie herangezogen werden kann, verringert sich die kombinierte Standardunsicherheit, da der Beitrag der Summationskorrektion wegfällt.

Gesamtheit der Unsicherheiten

In Tabelle 4.6 sind die arithmetischen Mittelwerte der relativen Unsicherheiten aller Messungen mit Ausnahme der Bodenproben angegeben.

Diese recht hohen Unsicherheiten bedürfen einiger Erläuterungen:

- Im Falle von spezifischen Aktivitäten nahe der Erkennungs- oder Nachweisgrenzen (siehe Abschnitt 4.5.4) dominiert die Unsicherheit auf Grund der Zählstati-

Tabelle 4.6: Mittlere Unsicherheiten der Aktivität in %

^{210}Pb	^{226}Ra	^{228}Ra	^{228}Th	^{40}K
12,9	13,3	19,5	13,2	5,2

stik. Als Beispiel mag die 295 keV-Linie des ^{214}Pb der Probe „GIObMPBb01“ dienen, deren Auswertung als EXCEL[®]-Formblatt im Anhang auf Seite 203 dargestellt wird. Man findet dort in der rechten Spalte den prozentualen Anteil der einzelnen Einflussgrößen an der kombinierten Standardabweichung und erkennt, dass etwa 80 % dieser Unsicherheit aus den Nettopeakunsicherheiten der Probe und des Nulleffekts stammen. Eine Reduzierung der insgesamt in diesem Beispiel recht hohen relativen Unsicherheit von knapp 27 % wäre effektiv nur durch eine verlängerte Messdauer zu erreichen. Da diese bei dem vorliegenden Beispiel jedoch schon 345 600 s, also 96 h betrug, war dies im Rahmen dieser Arbeit nicht möglich. Insgesamt lag die Messdauer mit Ausnahme der Bodenproben zwischen 83 204 s und 517 420 s mit einer durchschnittlichen Messzeit von 314 524 s. Eine Reduzierung der Unsicherheit der Efficiency von 5 % auf 1 % würde sich mit einer Verringerung in der Gesamtunsicherheit auf 26,5 % kaum bemerkbar machen.

- Lag die Aktivität deutlich über der Erkennungs- oder Nachweisgrenze, dominierte die Unsicherheit der Kalibrierfaktoren. Als Beispiel dient hier zum Vergleich wiederum die 295 keV-Linie des ^{214}Pb der Probe „JeGeEPMg01“, deren Auswertung man Tabelle A.3 im Anhang entnehmen kann. Insgesamt beträgt die kombinierte Standardunsicherheit 6,4 %, wobei 45 % dieser kombinierten Standardunsicherheit die Unsicherheit der Efficiency ausmacht. Wollte man die kombinierte Standardunsicherheit reduzieren, so wäre folglich eine exaktere Bestimmung der Efficiency am wirksamsten. Muss die γ -Linie summationskorrigiert werden, fließen die oben angenommenen 10 % Unsicherheit mit ein und bewirken wiederum eine Vergrößerung der kombinierten Standardunsicherheit.

4.5.3 Berechnung der charakteristischen Grenzen: Grundlagen

Bei der Berechnung der charakteristischen Grenzen existieren zwei unterschiedliche Ansätze, nämlich den der „konventionellen“-Statistik und den der „Bayes“-Statistik. Grundlegende Arbeiten zur Bayes-Statistik und deren Anwendung auf die Bestimmung von charakteristischen Grenzen bei Kernstrahlungsmessungen findet man in [Wei99], [Wei95], [Mic99] oder [DIN00]. Beide Ansätze, also der konventionelle und der nach Bayes, unterscheiden sich dabei in ihrer Vorstellung über den Begriff der Wahrscheinlichkeit $P(A)$ ($0 \leq P(A) \leq 1$) eines zufälligen Ereignisses A .

Die konventionelle Statistik, die auch als Häufigkeits- oder objektive Statistik bezeichnet wird, fasst dabei die Wahrscheinlichkeit $P(A)$ als relative Häufigkeit auf, mit der das Ereignis A bei hinreichend vielen wiederholenden Messungen auftritt. In der Bayes-Statistik hingegen wird die Wahrscheinlichkeit $P(A)$ als Grad des Vertrauens für das Eintreten des Ereignisses A unter Einbeziehung aller verfügbaren Informationen aufgefasst, bevor die Messung überhaupt durchgeführt wurde. Dies entspricht dem klassischen Wahrscheinlichkeitsbegriff nach Bernoulli und Laplace.

Damit befasst sich die konventionelle Statistik mit Fragen der Form: „Gegeben der wahre Wert η einer Messgröße X , wie ist die Wahrscheinlichkeitsverteilung der Messwerte x ?“. Die Bayes-Statistik hingegen versucht Antworten auf die Frage: „Gegeben die beobachteten Messwerte x , wie ist die Wahrscheinlichkeit dafür, dass die Messgröße X den wahren Wert η besitzt?“ zu finden [Mic99].

Diese unterschiedlichen Betrachtungsweisen können mathematisch mit Einführung der bedingten Wahrscheinlichkeit $P(A|B)$, also der Wahrscheinlichkeit für ein Ereignis A gegeben das Ereignis B , behandelt werden. Dabei gilt das Bayessche Theorem:

$$P(A|B) \cdot P(B) = P(B|A) \cdot P(A) = P(AB), \quad (4.30)$$

wobei $P(AB)$ die Wahrscheinlichkeit für das Eintreten der Ereignisse A und B bezeichnet.

Auf das Messverfahren übersetzt bedeutet dies, dass die konventionelle Statistik Wahrscheinlichkeiten in der Form $f(x|\eta;y)$ angibt, also als Wahrscheinlichkeit für das Auftreten des Messwertes x bei gegebenen wahren Wert η und den Randbedingungen y . Die Bayes-Statistik hingegen trifft Aussagen der Form $f(\eta|x;y)$, also Aussagen über die Wahrscheinlichkeit für den wahren Wert η gegeben den Messwerten x unter den Randbedingungen y . Man kann die Bayessche Sichtweise als insofern der konventionellen überlegen bezeichnen, als dass der wahre Wert η prinzipiell unbekannt ist, und somit die eigentliche Aufgabe des Experimentes darin besteht, Aussagen über $f(\eta|x;y)$ zu treffen [Mic99].

Um die Wahrscheinlichkeit $f(\eta|x;y)$ beschreiben zu können, werden in der Bayeschen Theorie zwei Ansätze verfolgt, die hier kurz skizziert werden sollen. Die detaillierte Beschreibung dieser Ansätze kann zusammen mit der Herleitung [Wei99] oder [Wei92] entnommen werden.

- Die Funktion $f(\eta|x;y)$ kann in ein Produkt zweier Wahrscheinlichkeiten, nämlich in

$$f(\eta|x;y) = f_0(\eta|x;y) \cdot f(\eta) \quad (4.31)$$

zerlegt werden. Dabei fasst $f_0(\eta|x;y)$ alle aus dem aktuellen Experiment gewonnenen Daten zusammen und wird somit als „Daten-Prior“ bezeichnet. $f(\eta)$ hingegen beinhaltet alle Informationen, die bekannt sind, bevor das Experiment

überhaupt durchgeführt wurde und wird daher als „Modell-Prior“ bezeichnet [Mic99].

- Zur Berechnung von $f(\eta|x;y)$ kann das Prinzip der maximalen (Informations-) Entropie herangezogen werden. Als mathematische Folgerung, und nicht aus der Annahme von Verteilungen über Messwerte, ergibt sich dabei für den Daten-Prior eine Normalverteilung $\mathcal{N}(x, u(x))$ und man erhält:

$$f(\eta|x;y) = C \cdot f(\eta) \cdot \exp \left[\frac{-(\eta - x)^2}{2 \cdot u^2(x)} \right]. \quad (4.32)$$

Im Fall von Kernstrahlungsmessungen wird dabei von einer nicht-negativen Messgröße ausgegangen, die den Effekt quantitativ beschreibt und den Wert Null annimmt, wenn der Effekt nicht vorliegt. Ein durch eine Messung erhaltener Wert x ist dann als primäres Messergebnis ein Schätzwert der Messgröße und stellt zusammen mit der ihm zugehörigen primären Messunsicherheit $u(x)$ das vollständige primäre Messergebnis für die Messgröße nach DIN 1319 dar [Mic99].

Mit diesem primären Messergebnis können nun charakteristische Grenzen wie die Erkennungsgrenze, die Nachweisgrenze und der Vertrauensbereich bestimmt werden, wobei eine ausführlichere Beschreibung in [Wei95] zu finden ist.

Erkennungsgrenze

Das wie oben ermittelte primäre Messergebnis weist dann signifikant darauf hin, dass der wahre Wert der Messgröße von Null verschieden ist, wenn er unter der Hypothese $H_0 : \eta = 0$ genügend unwahrscheinlich ist. Daher muss das Messergebnis x zu einer vorgegebenen Irrtumswahrscheinlichkeit α des Fehlers 1. Art größer sein als die Erkennungsgrenze

$$x^* = k_{1-\alpha} \cdot \tilde{u}(0), \quad (4.33)$$

wobei mit $\tilde{u}(\eta)$ die Unsicherheit als Funktion des wahren Wertes η gegeben ist.

Nachweisgrenze

Die Nachweisgrenze ist der kleinste wahre Wert der Messgröße η^* , der mit dem angewandten Messverfahren noch zuverlässig nachgewiesen werden kann. Die Nachweisgrenze wird dadurch festgelegt, dass die Wahrscheinlichkeit für einen Fehler 2. Art gleich β ist:

$$\eta^* = x^* + k_{1-\beta} \cdot \tilde{u}(\eta^*). \quad (4.34)$$

(4.34) kann als implizite Gleichung durch Iteration numerisch gelöst werden, wobei sich als Anfangsnäherung $\eta^* = 2x^*$ empfiehlt.

Vertrauensbereich

Als Begrenzung des Vertrauensbereiches einer Messgröße zur Wahrscheinlichkeit $1 - \gamma$ dienen die obere und untere Vertrauensgrenze (η_u bzw. η_l), die wie folgt definiert sind:

$$\eta_l = x - k_p \cdot u(x) \quad \text{mit} \quad p = \sigma \cdot (1 - \gamma/2), \quad (4.35)$$

$$\eta_u = x + k_q \cdot u(x) \quad \text{mit} \quad q = 1 - \sigma \cdot \gamma/2, \quad (4.36)$$

$$\sigma = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{\frac{x}{u(x)}} \exp\left(-\frac{z^2}{2}\right) dz = \Phi\left(\frac{x}{u(x)}\right). \quad (4.37)$$

Dabei liegt die Funktion $\Phi(x)$ tabelliert in [Koh96] oder [Mic99] vor.

Gilt $x > 2 \cdot k_{1-\gamma/2} \cdot u(x)$, so können $\eta_{l,u}$ durch

$$\eta_{l,u} = x \pm k_{1-\gamma/2} \cdot u(x) \quad (4.38)$$

genähert werden.

Abschließend wird das primäre Messergebnis x mit der Erkennungsgrenze x^* verglichen, wobei der durch die Messgröße beschriebene Effekt als erkannt gilt, wenn $x > x^*$ gilt. Für diesen Fall berechnet man den besten Schätzer z für die Messgröße durch

$$z = x + \frac{u(x) \cdot \exp\left(\frac{-x^2}{2u^2(x)}\right)}{\sqrt{2\pi}\sigma} \quad (4.39)$$

mit der zugehörigen Standardunsicherheit

$$u(z) = \sqrt{u^2(x) - (z - x) \cdot z}. \quad (4.40)$$

Gilt $x \gg u(x)$, kann näherungsweise auch $z = x$ und $u(z) = u(x)$ gesetzt werden.

4.5.4 Charakteristische Grenzen nach DIN 25482-10

Mit den so gegebenen Definitionen der Erkennungs- und Nachweisgrenzen bzw. des Vertrauensintervalls ist die Bestimmung der charakteristischen Grenzen nach DIN

25482-10 auf Grundlage der Bayes-Statistik möglich. Dabei reduziert sich die Bestimmung von Erkennungs- und Nachweisgrenze sowie des Vertrauensintervalls auf die Berechnung von $\tilde{u}(0)$. Diese soll nun detailliert für den Fall der Gammaskpektrometrie mit vorhandenem Untergrund (Nulleffekt) vorgestellt werden. Nach Gleichung (4.19) gilt:

$$A_{spez} = \frac{\frac{N_{P,n}}{t_P} - \frac{N_{0,n}}{t_0}}{m \cdot I \cdot \varepsilon}. \quad (4.41)$$

Obwohl der Nulleffekt bei der Erfassung von natürlichen Radionukliden berücksichtigt werden muss, soll zunächst der Einfachheit halber der Fall eines nicht vorhandenen Nulleffekts diskutiert werden.

Erkennungs- und Nachweisgrenzen der γ -Spektrometrie ohne Nulleffekt

Liegt bei einer auszuwertenden γ -Linie im Probenspektrum kein Beitrag aus dem Nulleffekt vor, so ist $N_{0,n} = 0$ zu setzen und das Modell der Auswertung vereinfacht sich zu:

$$A_{spez} = \frac{N_{P,n}}{t_P \cdot m \cdot I \cdot \varepsilon}. \quad (4.42)$$

Dabei gilt für die Nettopeakfläche der Probe $N_{P,n} = N_{P,b} - N_{P,Cu}$, also

$$A_{spez} = \frac{N_{P,b} - N_{P,Cu}}{t_P \cdot m \cdot I \cdot \varepsilon},$$

wobei mit $N_{P,b}$ nach DIN 25482-5 die Anzahl der Ereignisse im Bruttopeak und mit $N_{P,Cu}$ die Anzahl der Ereignisse im Comptonuntergrund des γ -Spektrums gemeint sind. Allgemeiner kann dieses Modell mit $R_{P,b} = \frac{N_{P,b}}{t_P}$, $R_{P,Cu} = \frac{N_{P,Cu}}{t_P}$ und $R_{P,n} = \frac{N_{P,netto}}{t_P}$ auch als

$$A_{spez} = \tau \cdot (R_{P,b} - R_{P,Cu}) = \tau \cdot R_{P,n}$$

geschrieben werden. Dabei werden im Faktor τ mit der Standardunsicherheit $u(\tau)$ alle in Gl. (4.18) genannten Kalibrierfaktoren zusammengefasst (also m, I und ε), wobei allerdings auch in (4.18) nicht explizit aufgeführte Korrekturfaktoren für Summationseffekte mit eingeschlossen werden können. Es folgt dann nach [GUM95]

$$u^2(A_{spez}) = R_{P,n}^2 \cdot u^2(\tau) + \tau^2 \cdot u^2(R_{P,n}),$$

wobei mit der Annahme einer Poisson-Verteilung der Zählimpulse

$$u^2(R_{P,n}) = \frac{N_{P,b} + N_{P,Cu}}{t_P^2}$$

gilt. Folglich erwartet man für den wahren Wert der Messgröße η und wegen $\rho_{P,n} = \frac{\eta}{\tau}$

$$\tilde{u}^2(\eta) = \frac{\eta^2}{\tau^2} \cdot u^2(\tau) + \tau^2 \left(\frac{N_{P,b} + N_{P,Cu}}{t_P^2} \right). \quad (4.43)$$

Aus

$$\eta = \tau \left(\frac{N_{P,b} - N_{P,Cu}}{t_P} \right)$$

folgt

$$N_{P,b} = N_{P,Cu} + \frac{\eta t_P}{\tau}$$

und somit

$$\begin{aligned} \tilde{u}^2(\eta) &= \eta^2 \cdot u_{rel}^2(\tau) + \tau^2 \left(\frac{1}{t_P^2} \left(\frac{\eta t_P}{\tau} + 2N_{P,Cu} \right) \right) \\ &= \eta^2 \cdot u_{rel}^2(\tau) + \tau^2 \left(\frac{\eta}{t_P \tau} + \frac{2N_{P,Cu}}{t_P^2} \right). \end{aligned} \quad (4.44)$$

Damit gilt für $\eta = 0$

$$\tilde{u}^2(0) = \frac{2\tau^2 N_{P,Cu}}{t_P^2}. \quad (4.45)$$

Mit der Kenntnis von $\tilde{u}^2(0)$ können nun die charakteristischen Grenzen angegeben werden. Es ergibt sich somit für die Erkennungsgrenze x^*

$$x^* = k_{1-\alpha} \cdot \tilde{u}(0) = k_{1-\alpha} \cdot \tau \sqrt{\frac{2 \cdot N_{P,Cu}}{t_P^2}} \quad (4.46)$$

und für die Nachweisgrenze η^*

$$\eta^* = x^* + k_{1-\beta} \cdot \tilde{u}(\eta^*) = x^* + k_{1-\beta} \cdot \sqrt{\eta^{*2} \cdot u_{rel}^2(\tau) + \tau^2 \left(\frac{\eta^*}{t_P \tau} + \frac{2N_{P,Cu}}{t_P^2} \right)}. \quad (4.47)$$

Erkennungs- und Nachweisgrenze der γ -Spektrometrie mit Nulleffekt

Im Folgenden wird der Fall der γ -Spektrometrie behandelt, bei dem neben der eigentlichen Probenmessung (Index P) mit der Messdauer t_P auch eine Nulleffektmessung (Index 0) mit der Messdauer t_0 durchgeführt wird. $N_{P,n}$ und $N_{0,n}$ sind dann die dazu gehörigen Nettopeakflächen der betrachteten γ -Linie. Damit wird es erforderlich, vier Fälle nach Tabelle 4.7 zu unterscheiden.

Tabelle 4.7: Fallunterscheidung bei der Berechnung der charakteristischen Grenzen der γ -Spektrometrie bei vorhandenem Nulleffekt.

	$N_{0,n} < N_{0,n}^*$	$N_{0,n} \geq N_{0,n}^*$
$N_{P,n}^* \geq N_{P,n}^*$	Gleichungen (4.46) und (4.47)	Formeln im Folgenden abgeleitet
$N_{P,n} < N_{P,n}^*$	kein Probenbeitrag festgestellt	kein Probenbeitrag festgestellt

Dabei sind $N_{0,n}^*$ und $N_{P,n}^*$ die Erkennungsgrenzen bei der Bestimmung von $N_{0,n}$ und $N_{P,n}$ nach DIN 25482-5. Es gilt also für den Fall des linearen Untergrundabzugs $N_{0,n} = N_{0,b} - N_{0,Cu}$ mit $u^2(N_{0,n}) = N_{0,b} + 2 \cdot N_{0,Cu}$ und $N_{P,n} = N_{P,b} - N_{P,Cu}$ mit $u^2(N_{P,n}) = N_{P,b} + 2 \cdot N_{P,Cu}$.

Mit $N_{P,n}$ und $N_{0,n}$ oberhalb der Erkennungsgrenzen ergibt sich als Modell der Auswertung wieder (4.18), also

$$A_{spez} = \frac{\frac{N_{P,n}}{t_P} - \frac{N_{0,n}}{t_0}}{m \cdot I \cdot \varepsilon} = \tau \left(\frac{N_{P,n}}{t_P} - \frac{N_{0,n}}{t_0} \right).$$

Damit folgt für $u^2(A_{spez})$ wieder nach [GUM95]

$$u^2(A_{spez}) = \left(\frac{N_{P,n}}{t_P} - \frac{N_{0,n}}{t_0} \right)^2 \cdot u^2(\tau) + \tau^2 \cdot \left(\frac{u^2(N_{P,n})}{t_P^2} + \frac{u^2(N_{0,n})}{t_0^2} \right). \quad (4.48)$$

Für den wahren Wert der Messgröße η gilt

$$\eta = \tau \left(\frac{N_{P,n}}{t_P} - \frac{N_{0,n}}{t_0} \right) \quad (4.49)$$

und somit nach Gl. (4.48)

$$\begin{aligned} \tilde{u}^2(\eta) &= \frac{\eta^2}{\tau^2} \cdot u^2(\tau) + \tau^2 \cdot \left(\frac{u^2(N_{P,n})}{t_P^2} + \frac{u^2(N_{0,n})}{t_0^2} \right) \\ &= \eta^2 \cdot u_{rel}^2(\tau) + \tau^2 \left(\frac{N_{P,n} + 2N_{P,Cu}}{t_P^2} + \frac{N_{0,n} + 2N_{0,Cu}}{t_0^2} \right). \end{aligned} \quad (4.50)$$

Aus Gl. (4.49) folgt

$$N_{P,n} = t_P \cdot \left(\frac{\eta}{\tau} + \frac{N_{0,n}}{t_0} \right) \quad (4.51)$$

und damit

$$\begin{aligned}\tilde{u}^2(\eta) &= \eta^2 \cdot u_{rel}^2(\tau) + \tau^2 \left(\frac{t_P \cdot \left(\frac{\eta}{\tau} + \frac{N_{0,n}}{t_0} \right) + 2N_{P,Cu}}{t_P^2} + \frac{N_{0,n} + 2N_{0,Cu}}{t_0^2} \right) \quad (4.52) \\ &= \eta^2 \cdot u_{rel}^2(\tau) + \tau^2 \left(\frac{1}{t_P} \cdot \left(\frac{\eta}{\tau} + \frac{N_{0,n}}{t_0} \right) + \frac{2N_{P,Cu}}{t_P^2} + \frac{N_{0,n} + 2N_{0,Cu}}{t_0^2} \right).\end{aligned}$$

Dann gilt

$$\tilde{u}^2(0) = 0 + \tau^2 \left(\frac{N_{0,n}}{t_P \cdot t_0} + \frac{2N_{P,Cu}}{t_P^2} + \frac{N_{0,n} + 2N_{0,Cu}}{t_0^2} \right). \quad (4.53)$$

Mit Gl. (4.33) folgt somit für die Erkennungsgrenze x^*

$$x^* = k_{1-\alpha} \cdot \tau \sqrt{\frac{N_{0,n}}{t_P \cdot t_0} + \frac{2N_{P,Cu}}{t_P^2} + \frac{N_{0,n} + 2N_{0,Cu}}{t_0^2}} \quad (4.54)$$

und nach Gl. (4.34) für die Nachweisgrenze η^*

$$\eta^* = x^* + k_{1-\beta} \cdot \sqrt{\eta^{*2} \cdot u_{rel}^2(\tau) + \tau^2 \left(\frac{1}{t_P} \cdot \left(\frac{\eta^*}{\tau} + \frac{N_{0,n}}{t_0} \right) + \frac{2N_{P,Cu}}{t_P^2} + \frac{N_{0,n} + 2N_{0,Cu}}{t_0^2} \right)}.$$

Dies geht im Spezialfall des nicht vorhandenen Nulleffektes, also für $N_{0,n} = N_{0,Cu} = 0$ wieder in Gleichung (4.47) über.

Diese Art der Berechnung der Nachweis- und Erkennungsgrenzen liefert für jede einzelne Messung die zugehörigen charakteristischen Grenzen. Eine Zusammenstellung der in dieser Arbeit erzielten Nachweis- und Erkennungsgrenzen findet man in Tabelle 4.8, in der arithmetische Mittelwerte der charakteristischen Grenzen aufgeführt sind.

4.6 Qualitätssicherung

Zur Qualitätssicherung wurde im Rahmen dieser Arbeit an zwei Ringversuchen teilgenommen.

4.6.1 BfS Ringversuch 1/2001

Dieser Ringversuch diente der Bestimmung des Radionuklidgehaltes im Wasser. Dazu wurden je zwei vom BfS angefertigte Wässer, ein so genanntes Modellwasser und ein so genanntes Realwasser, γ -spektrometrisch am ZSR untersucht. Auch wenn in dieser Arbeit wässrige Proben nicht Gegenstand γ -spektrometrischer Untersuchungen waren,

Tabelle 4.8: Arithmetische Mittelwerte der Erkennungsgrenzen (EG) und Nachweisgrenzen (NWG) bezogen auf das Feuchtgewicht. Alle Angaben in Bq/kg.

	²¹⁰ Pb		²²⁶ Ra		²²⁸ Ra		²²⁸ Th		²³⁸ U		²³⁵ U		⁴⁰ K	
	EG	NWG	EG	NWG	EG	NWG	EG	NWG	EG	NWG	EG	NWG	EG	NWG
Gesamtnahrung ^a	0,12	0,24	0,02	0,05	0,04	0,09	0,01	0,02	0,08	0,18	0,01	0,02	0,13	0,26
Getreide -Korn- ^a	0,20	0,41	0,03	0,05	0,05	0,11	0,02	0,04	0,13	0,29	0,03	0,06	0,15	0,32
Getreide -Stroh- ^a	0,53	1,06	0,06	0,13	0,14	0,27	0,05	0,11	0,35	0,77	0,03	0,06	0,37	0,75
Weide/Wiesenbewuchs ^a	0,34	0,68	0,04	0,09	0,09	0,17	0,02	0,05	0,22	0,48	0,03	0,06	0,22	0,45
Gemüse ^a	0,28	0,58	0,06	0,12	0,11	0,21	0,03	0,06	0,19	0,44	0,02	0,05	0,34	0,77
Milch ^b	0,39	0,79	0,10	0,20	0,17	0,35	0,07	0,13	0,49	1,08	0,06	0,12	0,60	1,22
Fleisch ^a	0,16	0,33	0,03	0,06	0,06	0,12	0,02	0,04	0,13	0,28	0,02	0,03	0,18	0,37
Fleisch ^b	1,83	3,71	0,39	0,79	0,60	1,22	0,24	0,49	2,38	5,23	0,20	0,41	2,46	5,00
Innereien ^a	0,18	0,37	0,05	0,10	0,11	0,23	0,02	0,05	0,14	0,31	0,02	0,04	0,29	0,51
Knochen ^a	0,75	1,52	0,10	0,21	0,22	0,44	0,06	0,13	0,42	0,92	0,04	0,09	0,63	1,29
Obst ^a	0,07	0,13	0,02	0,03	0,01	0,02	0,01	0,01	0,05	0,11	0,00	0,01	0,08	0,17
Pilze ^a	0,25	0,50	0,05	0,10	0,09	0,18	0,04	0,07	0,24	0,52	0,02	0,05	0,31	0,62
Insgesamt	0,35	0,71	0,07	0,15	0,13	0,26	0,04	0,09	0,32	0,71	0,04	0,07	0,41	0,86

^a verascht.
^b gefriergetrocknet.

so konnte mit Hilfe des Ringversuches doch die prinzipielle Eignung des Messsystems überprüft werden.

Dabei wurden, wie Tabelle 4.9 entnommen werden kann, von allen am ZSR untersuchten Nukliden die Aktivitäten im Rahmen der Unsicherheiten ohne Ausreißer bestimmt (siehe auch [Obr01]).

4.6.2 IAEA - Proficiency Test

Ein weiterer Ringversuch, an dem das in dieser Arbeit verwandte Messsystem getestet wurde, war der schon oben erwähnte IAEA-Proficiency-Test („Determination of Anthropogenic γ -emitting Radionuclides in a Mineral Matrix“). Ein Teil des Ringversuches war eine von der IAEA mit künstlichen Radionukliden gespikte Flugasche, die in der Petrischalen-Geometrie gemessen wurde. Zur Efficiency-Bestimmung kam in diesem Fall das Spiking-Verfahren zur Anwendung. Die Ergebnisse dieses Ringversuches sind in Tabelle 4.10 dargestellt.

Insgesamt zeigt sich eine gute Übereinstimmung mit den gemessenen Werten.

4.6.3 Ringversuch BfS-V Boden

Da sowohl der Ringversuch zur Bestimmung von Radionukliden in Wasser als auch der IAEA-Proficiency-Test lediglich die Quantifizierung von künstlichen Radionukliden erforderte, wurde als dritte qualitätssichernde Maßnahme die Bestimmung der Aktivität von natürlichen Radionukliden in der Petrischalengeometrie getestet. Dies geschah mit Hilfe eines Standardbodens, für den als BfS-Ringversuch (BfS/St2.2/Boden/V-98) Vergleichswerte vorlagen [Sch98a], wobei in diesem Fall die Efficiencybestimmung mit Hilfe des Flächenstandardpräparates durchgeführt und somit auf ihre Gültigkeit überprüft werden konnte. Dazu wurde der Boden in eine Petrischalengeometrie überführt und die Efficiency mit Hilfe des Flächenstandardpräparates wie oben beschrieben ermittelt. Die Ergebnisse des Vergleichs sind exemplarisch für Detektor 2 in Tabelle 4.11 aufgeführt.

Auch hier kann insgesamt von einer guten Übereinstimmung der Messwerte mit den vom BfS in [Sch98a] angegebenen Werten gesprochen werden.

Tabelle 4.9: Ergebnisse des BfS-Ringversuches 1/2001 BfS (Bestimmung des Radionuklidgehaltes im Wasser) im Vergleich. Alle Angaben in Bq/kg.

Reales Wasser

Nuklide	PTB		\bar{x}		ZSR	
	A	$u(A)$	A^a	$u(A)^b$	A	$u(A)^c$
^{54}Mn	0,20	0,01	0,22	0,09	0,20	0,05
^{57}Co	0,34	0,01	0,33	0,08	0,29	0,08
^{60}Co	4,31	0,13	4,35	0,50	4,34	0,45
^{125}Sb	7,28	0,22	7,16	1,04	6,79	1,02
^{134}Cs	0,35	0,01	0,35	0,10	0,37	0,07
^{137}Cs	3,58	0,11	3,56	0,41	3,43	0,25

Modellwasser

Nuklide	Sollwert	\bar{x}		ZSR	
	A	A^a	$u(A)^b$	A	$u(A)^c$
^{54}Mn	7,90	7,84	0,87	7,57	0,55
^{59}Fe	12,8	12,7	35,0	12,1	1,20
^{60}Co	6,54	6,37	0,72	6,35	0,65
^{106}Ru	8,28	7,33	1,61	7,16	0,63
^{134}Cs	4,91	4,51	0,61	4,40	0,47
^{137}Cs	7,88	7,73	0,76	7,26	0,53
^{241}Am	1,99	1,98	0,65	1,65	0,18

^a Mittelwert aus allen ausreißerfreien Messwerten.

^b Streubereich (statistische Sicherheit 95 %).

^c erweiterte kombinierte Standardunsicherheit mit $k=1,96$.

Tabelle 4.10: Ergebnisse des IAEA-Proficiency-Test im Vergleich, alle Angaben in Bq/kg.

Radionuklide	IAEA		ZSR	
	A	$u(A)^a$	A	$u(A)^a$
^{54}Mn	36,5	1,80	40,5	2,51
^{57}Co	33,9	1,71	32,0	1,84
^{60}Co	145	7,06	156	15,3
^{65}Zn	23,0	1,39	26,0	2,73
^{88}Y	34,9	1,82	33,6	2,57
^{134}Cs	76,0	3,72	73,0	5,65
^{137}Cs	160	9,02	160	10,6
^{241}Am	64,0	3,14	57,0	4,16

^a erweiterte kombinierte Standardunsicherheit mit $k=1,96$.

Tabelle 4.11: Vergleich der Ergebnisse des Ringversuches Bf/ST2.3/Boden, alle Angaben in Bq/kg.

Radionuklide	Vergleich ^a		ZSR		PTB	
	A ^b	$u(A)^c$	A	$u(A)$	A	$u(A)$
^{238}U	331	11,4	347	45	340	13
^{235}U	16,1	1,75	17,6	1,6	16,3	0,7
^{226}Ra	249	15,2	250	16	258	13
^{210}Pb	190	27,2	254	12	260	40
^{228}Ra	56,1	5,60	55,2	4,6	62,4	2,1
^{228}Th	58,7	10,4	58,3	6,5	60,6	1
^{137}Cs	32,4	6,60	30,6	1,5	32,5	1,2
^{40}K	847	7,20	821	19	850	43

^a Gesamtheit der teilnehmenden Labore.

^b Gesamtmittelwert aller Teilnehmer.

^c relative Vergleichsstandardabweichung aller Teilnehmer.

5 Spezifische Aktivitäten natürlicher Radionuklide in Lebensmitteln

5.1 Allgemeines

Etwa 12 % der Strahlenexposition der Bevölkerung in Deutschland resultiert aus der Ingestion von natürlichen Radionukliden [BfS01]. Dabei schwanken die Aktivitäten in pflanzlichen und tierischen Produkten beträchtlich, da zum einen der geogene Untergrund selber und zum anderen menschliche Tätigkeiten (und Arbeiten), wie z.B. Uran- oder auch Kohlebergbau, zu einer massiven Veränderung des Inventars von natürlichen Radionukliden in der Umwelt führen können. Zur Beurteilung dieser Veränderungen ist aber die Kenntnis der normalerweise vorhandenen spezifischen Aktivität von natürlichen Radionukliden in Pflanzen und vor allem auch deren Schwankungsbreite unabdingbar. Derartige Untersuchungen konzentrierten sich bislang auf solche Gegenden, in denen entweder auf Grund des geogenen Untergrundes oder auf Grund von anthropogenen Tätigkeiten eine im Vergleich mit dem Mittel erhöhte Strahlenexposition vorlag. Dabei kann die Datenlage bezüglich natürlichen Radionukliden im Vergleich zu künstlichen Nukliden nach wie vor als dünn bezeichnet werden. So findet man in [Car01b], [GN03], [Lal80], [Mao95], [Rad96], [San02], [Shi97], [Yu99] oder [Ven99] zwar Angaben über spezifische Aktivitäten verschiedener pflanzlicher oder tierischer zum Verzehr geeigneter Lebensmittel aus Brasilien, New York, Indien, Iran, Hongkong oder der Ukraine. Weitere Daten werden in [UNS00] angegeben, allerdings lassen sich diese Werte auf Grund der vollkommen unterschiedlichen klimatischen und geologischen Bedingungen nicht ohne weiteres mit mitteleuropäischen Werten vergleichen. In [Chi00], [Kir98], [Mau89] oder [PF97] wurden Ergebnisse aus Polen und Großbritannien veröffentlicht, die zwar von den klimatischen und geologischen Bedingungen mit denen in Deutschland verglichen werden können, jedoch decken diese Veröffentlichungen weder alle hier betrachteten Radionuklide noch alle pflanzlichen oder tierischen Kompartimente ab. Als vollständiger Vergleich zu den in dieser Arbeit durchgeführten Untersuchungen bieten sich daher nur die im Jahresbericht des Bundesamtes für Strahlenschutz 2001 [BfS01] veröffentlichten spezifischen Aktivitäten an.

Während auf den Transfer von natürlichen Radionukliden in die Pflanze detailliert in Kapitel 6 eingegangen wird, sollen hier kurz die Mechanismen der Verteilung von

Radionukliden in unterschiedlichen Pflanzenteilen betrachtet werden. Dieser Prozess, Translokation genannt, ist für die Modellierung der Dosis von Interesse, da in der Regel nur bestimmte Pflanzenteile zum Verzehr geeignet sind. Bei Pflanzen, die als Ganzes verzehrt werden können, spielt Translokation nur in soweit eine Rolle, als dass Nuklide von der Blattoberfläche ins Pflanzeninnere transportiert und somit durch Verwitterung nicht mehr abgewaschen werden können. Der Translokationskoeffizient ist in [TRS94] definiert als

$$TLF = \frac{\text{spezifische Aktivität im essbaren Teil der Pflanze zur Ernte (Bq/kg)}}{\text{Aktivität von } 1 \text{ m}^2 \text{ der Blattoberfläche zur Zeit der Deposition (Bq/m}^2\text{)}} \quad (5.1)$$

und beschreibt die Translokation von Radionukliden nach der Deposition auf der Pflanzenoberfläche. Der *TLF* ist lediglich im Experiment bestimmbar und kann auf Grund von Unterschieden in der Physiologie von Pflanzen, der Wetterlage (Abwaschen der Nuklide von der Blattoberfläche durch Regen vor der Aufnahme durch die Pflanze), dem eventuellen Vorhandensein von Pflanzenkrankheiten und der chemischen Form der deponierten Nuklide erheblich variieren. So wird in [TRS94] eine Anwendung des *TLF* in Modellen lediglich für Caesium, Strontium, Molybdän und Eisen in Betracht gezogen.

Insgesamt beeinflusst neben dem physiologischen Verhalten der Pflanze vor allem der Zeitpunkt der Deposition im Verhältnis zur Wachstumsphase der Pflanze den Transport in diese entscheidend [Prö03]:

- Unterschiedliche Physiologie kann zu An- und Abreicherungen innerhalb der Pflanze führen. Prinzipiell existieren in einer Pflanze zwei Transportmechanismen, das Xylem und das Phloem. Im Xylem werden durch Transpiration aus dem Boden stammendes Wasser und darin gelöste Mineralstoffe von tiefer in höher gelegene Pflanzenteile transportiert. Sind Stoffe, z.B. durch Aufnahme über die Wurzel, im Xylemsystem angelangt, kann die Pflanze dort nicht zwischen ihnen differenzieren. Da die Bewegung im Xylem durch Transpiration verursacht wird, verläuft die Transportrichtung ausschließlich vom Wurzelbereich in höher gelegene Pflanzenteile und nicht umgekehrt. Die Hauptfunktion des Phloems besteht im Transport von bei der Photosynthese in den Blättern hergestellten Kohlehydraten in das Speichermedium der Pflanze, z.B. die Wurzel oder Knolle. Transport im Phloem ist in beiden Richtungen möglich und elementspezifisch. Alkalimetalle, Magnesium, Schwefel, Chlor und Phosphate können im Phloem transportiert werden, wohingegen Erdalkalimetalle, Blei, Lanthanoide und Aktinoide aus physiologischen Gründen dies nicht können [Str91].
- Für den Fall der Deposition auf äußeren Pflanzenteilen beeinflusst der Zeitpunkt dieser Deposition den Transport innerhalb der Pflanze erheblich, da in unterschiedlichen Wachstumsphasen die physiologische Aktivität der Pflanze stark

variieren kann. Die wenigen Untersuchungen zur Zeitabhängigkeit des Transportes innerhalb der Pflanze bestätigen dies u.a. für Getreide, wo die Translokation von Caesium um zwei Größenordnungen variieren kann und ihr Maximum bei der Reifung der Ähren erreicht. Dies wiederum fällt zeitlich mit dem Maximum der Umwandlung von Kohlendioxid durch Photosynthese und der Verlagerung der Kohlehydrate von den Blättern in den Ährenbereich zusammen [Prö03].

Zusammenfassend kann festgestellt werden, dass das Wissen um Translokation vor allem im Bereich von natürlichen Radionukliden als sehr begrenzt angesehen werden kann. Erschwerend kommt allerdings hinzu, dass die Aufnahme von natürlichen Radionukliden im Gegensatz zu einer Fall-out Situation kontinuierlich sowohl über den Wurzelpfad als auch über Resuspension und im Fall von Radon und Radonfolgeprodukten durch direkte Aufnahme aus der bodennahen Luft über Pflanzenblätter erfolgen kann. Da alle diese Prozesse gleichzeitig stattfinden können, ist eine Bewertung der Bedeutung der einzelnen Vorgänge kaum möglich.

Als weiterer wichtiger Punkt, neben der Translokation natürlicher Radionuklide in Pflanzen, ist die Schwankungsbreite der spezifischen Aktivitäten in vergleichbaren Kompartimenten aus zwei Gründen von Bedeutung:

- Die spezifische Aktivität fließt in die Berechnung der effektiven Dosis ein (siehe Kapitel 7). Die Schwankungsbreite der spezifischen Aktivität spiegelt sich somit in der Schwankungsbreite der Dosis wider. Dies kann für einer Entscheidungsfindung bei Werten nahe eines Richt- oder Grenzwertes von entscheidender Bedeutung sein.
- Rechnet man mit Schätzwerten für die spezifische Aktivität, so hängen diese von der Schwankungsbreite natürlicher Radionuklide in vergleichbaren Kompartimenten ab.

Beide Punkte führen zu der Frage nach der Verteilung der spezifischen Aktivität in den einzelnen Kompartimenten. Durch die Wahl einer nicht abzulehnenden Verteilung und durch die Bestimmung der sie charakterisierenden Parameter ist sowohl der Erwartungswert als auch die Schwankungsbreite der spezifischen Aktivität festgelegt. Dabei beobachtet man in der Natur als Folge des multiplikativen Grenzwertsatzes der Statistik häufig logarithmische Normalverteilungen [Mic99], [Lim01]. Eine Größe Y ist dann logarithmisch normalverteilt ($Y \sim \Lambda(\mu, \sigma)$), wenn $X = \ln(Y)$ eine normalverteilte Zufallsgröße ($X \sim \mathcal{N}(\mu, \sigma)$) darstellt, wobei μ und σ der Erwartungswert bzw. die Standardabweichung von X sind. Aus der Dichte der Verteilung von Y

$$f_{\Lambda(\mu, \sigma)}(t) = \frac{1}{t \cdot \sigma \sqrt{2\pi}} \exp \left[-\frac{(\ln(t) - \mu)^2}{2\sigma^2} \right] \quad \text{mit} \quad t \geq 0 \quad (5.2)$$

folgt dann für den (wahren) Erwartungswert EW der Größe Y

$$EW = \int_0^{\infty} t \cdot f_Y(t) dt = \exp \left[\mu + \frac{\sigma^2}{2} \right]. \quad (5.3)$$

Als Schätzwert dieses wahren Erwartungswert bietet sich dann der so genannte Maximum-Likelihood-Schätzer

$$E_n^{(ML)} = \exp \left[\mu_n + \frac{\sigma_n^2}{2} \right] \quad (5.4)$$

mit

$$\mu_n = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n x_i \quad (5.5)$$

und

$$\sigma_n^2 = \frac{1}{n-1} \sum_{i=1}^n (x_i - \mu_n)^2 \quad (5.6)$$

an.

Ein Ziel dieser Arbeit war es somit, die Annahme einer logarithmischen Normalverteilung der spezifischen Aktivität von natürlichen Radionukliden in den untersuchten Kompartimenten zu überprüfen. Als einfache Methode zur Verifizierung dieser Annahme wurde der so genannte Quantil-Quantil-Plot, kurz QQ-Plot, verwendet. Dabei werden aus einem gemessenen und dann logarithmierten Datensatz die theoretisch zu erwartenden Quantile mit den experimentell erhaltenen Quantilen verglichen. Die Güte der anschließenden linearen Regression ist dann ein Maß für die Wahrscheinlichkeit, dass die Annahme einer Normalverteilung für diese logarithmierten Werte nicht abgelehnt werden kann. Dieses empirische Überprüfen einer Verteilung hat im Vergleich zu einer reinen Test-Statistik, wie z.B. den Kolmogorov-Smirnov- oder Shapiro-Wilk-Test, den Vorteil, Gründe für eine eventuelle Abweichung von der angenommenen Verteilung schnell visuell erkennen zu können. Fehlen z.B. Messwerte in unteren oder oberen Quantilen, so dass die Werte im QQ-Plot dort von der Interpolationsgeraden abweichen, kann dies als Hinweis auf eine durch die Pflanze regulierte Aufnahme des Radionuklides gedeutet werden. Eine solche Verteilung kann tatsächlich bei ^{40}K häufig beobachtet werden. Bestand die Möglichkeit, dass die Annahme einer Verteilung durch subjektives Beurteilen des QQ-Plots abzulehnen wäre, so wurde die Nullhypothese mit Hilfe des Shapiro-Wilk-Tests mit einem Signifikanzniveau von $\alpha = 0,05$ getestet.

Dabei arbeitet der Shapiro-Wilk-Test ebenfalls durch Vergleiche der empirisch ermittelten und theoretisch zu erwartenden Quantilen in Abhängigkeit vom Stichprobenumfang und eignet sich daher auch bei kleinen Stichprobenumfängen. Für weiterführende Literatur siehe [Sha65] oder [Roy82].

5.2 **Behandlung von Messwerten unterhalb der Nachweis- und Erkennungsgrenzen**

Je nach Probenart, Probenmasse, Dauer der Messung und verwendetem Detektor existiert eine schwankende Anzahl von Messergebnissen, die unterhalb der Nachweis-, aber auch unterhalb der Erkennungsgrenze liegen. Nach der Definition der charakteristischen Grenzen können Werte zwischen Erkennungs- und Nachweisgrenze nicht mehr als quantitatives Messergebnis angesehen werden, wenn auch die Nullhypothese abzulehnen ist. Im Fall von Werten unterhalb der Erkennungsgrenze hingegen kann die Nullhypothese nicht mehr abgelehnt werden, was bedeutet, dass das Messverfahren als unzureichend angesehen werden muss. Trotzdem würde ein Gleichsetzen der Werte unterhalb der Erkennungsgrenze mit Null und die Berücksichtigung dieser „Nullen“ die statistische Auswertung wie Mittelwertbildung, Berechnung der Schwankungsbreite, Verteilungstests und Schätzung des Erwartungswertes verfälschen. Andererseits kann das Ignorieren dieser Werte zu einer erheblichen Überschätzung von Mittelwerten oder Erwartungswerten führen, wenn nur der rechte Teil einer gegebenen Verteilung messtechnisch erfassbar ist und zur statistischen Auswertung herangezogen wird. Daher wurde ein von HELSEL und COHN entwickeltes und in [Mes00b] bzw. [Joh70] und [Hel88] beschriebenes Verfahren benutzt, um eine sinnvolle Schätzung des Erwartungswertes und der Schwankungsbreite der spezifischen Aktivität zu erhalten. Dieses Verfahren basiert auf der Extrapolation einer ermittelten Verteilung im Wahrscheinlichkeits-Plot (also der aufgetragenen kumulativen Häufigkeitswahrscheinlichkeit) zu niedrigen Werten hin und wird im Folgenden kurz vorgestellt. Dabei sind zwei unterschiedliche Fälle zu behandeln, nämlich

1. Das Verfahren nach HELSEL und COHN im Falle einer einzigen charakteristischen Grenze und
2. das Verfahren nach HELSEL und COHN im Falle mehrerer (verschiedener) charakteristischen Grenzen G_i .

Die Implementierung dieses Algorithmus in ein Computerprogramm erfolgte durch Dipl. Phys. G. KANISCH an der Bundesforschungsanstalt für Fischerei, der dieses freundlicherweise für Anwendungen im Rahmen dieser Arbeit zur Verfügung stellte. Zunächst wird der erste Fall betrachtet, in dem Werte unterhalb einer charakteristischen Grenze G mit nur einer einzigen numerisch verschiedenen charakteristischen Grenze auftreten.

5.2.1 Verfahren nach HELSEL und COHN im Falle einer einzigen charakteristischen Grenze

Sei n die Anzahl der gemessenen Werte y_i ($i = 1, \dots, n$), von denen k Werte unterhalb einer charakteristischen Grenze G liegen. Dann kann wie folgt vorgegangen werden:

- Man sortiere die natürlichen Logarithmen $\ln(y_i)$ der gemessenen Werte y_i aufsteigend der Größe nach.
- Anschließend wird allen n Messwerten die empirische Plot-Wahrscheinlichkeit $p_i = i/(n+1)$ zugeordnet.
- Damit kann über das Inverse der (integralen) Verteilungsfunktion Θ der Normalverteilung die Quantile der Normalverteilung z_i durch $z_i = \Theta^{-1}(p_i)$ berechnet werden¹.
- Ersatzwerte q_i für die k Werte unterhalb der charakteristischen Grenze G können dann durch $q_i = \exp(a + b \cdot z_i)$ mit $i \leq k$ berechnet werden, wobei a und b durch gefittete Parameter der Ausgleichsgeraden im Wahrscheinlichkeits-Plot gegeben sind.
- Zusammen mit den schon bekannten Werten y_i ergeben die so ermittelten Ersatzwerte q_i einen vollständigen Datensatz, für den in üblicher Weise statistische Kennwerte berechnet werden können.

Dieses Verfahren ist ein robustes Verfahren, das relativ unempfindlich gegenüber Abweichungen von einer logarithmischen Normalverteilung ist. Allerdings müssen folgende Voraussetzungen erfüllt sein [Mes00b] :

- Mindestens zwei (besser drei) signifikante, von einander verschiedene, Messwerte müssen oberhalb der charakteristischen Grenze G vorliegen.
- Mindestens vier Messungen sollten vorgenommen worden sein, d.h. $n \geq 4$.
- Es dürfen nicht mehr als 80 % der Werte unterhalb der charakteristischen Grenze G liegen.

Etwas komplexer ist die in [Hel88] und [Hir87] beschriebene Weiterentwicklung dieses Verfahrens, bei dem verschiedene Nachweisgrenzen existieren dürfen und die im folgenden Abschnitt beschrieben wird. Die Darstellung dieses Verfahrens orientiert sich dabei an [Mes00b].

¹Diese Berechnungsvorschrift kann zum Beispiel einfach und unproblematisch in EXCEL[®] durch den Befehl „=STANDNORMINV(ZELLE)“ ausgeführt werden.

5.2.2 Verfahren nach HELSEL und COHN im Falle mehrerer charakteristischen Grenzen

In diesem Fall können unterschiedliche charakteristische Grenzen G_i vorliegen, wobei nach der Sortierung des Datensatz sich nicht-signifikante Messwerte (also Messwerte mit $y_i < G_i$) und signifikante Messwerte (also Messwerte mit $y_i > G_i$) in beliebiger Reihenfolge abwechseln dürfen. Es dürfen also in diesem Fall signifikante Werte auch unterhalb der kleinsten Nachweisgrenze oder nicht-signifikante oberhalb des größten signifikanten Wertes liegen.

Sei also wiederum ein Datensatz mit insgesamt n Elementen y_i gegeben, der k nicht-signifikante Werte mit $y_i < G_i$ beinhaltet. Dann kann wie folgt vorgegangen werden:

- Man sortiere die Elemente y_i des Datensatzes aufsteigend, wobei nicht-signifikante Werte durch die entsprechende charakteristische Grenze G_i ersetzt werden.
- Seien X_1, X_2, \dots, X_m m numerisch voneinander verschiedene charakteristische Grenzen zu den dazugehörigen nicht-signifikanten Werten y_i . Dann gilt $X_1 < X_2 < \dots < X_m$, wobei $X_{m+1} := \infty$. Für jede dieser numerisch verschiedenen charakteristischen Grenzen X_j ($j = 1, \dots, m$) werden durch Abzählen der sortierten Werte folgende numerischen Größen A_j , B_j und C_j bestimmt:

A_j = Anzahl der signifikanten Werte y_i , die oberhalb der j -ten und unterhalb der nächst-höheren charakteristischen Grenze liegen, also: $X_j \leq y_i < X_{j+1}$.

B_j = Anzahl aller Werte y_i (signifikante und nicht signifikante), die unterhalb der j -ten charakteristischen Grenze bis hinunter zum kleinsten Wert des kompletten Datensatzes liegen, also: $y_i \leq X_j$.

C_j = Multiplizität der charakteristischen Grenze X_j , falls X_j mehrfach vorkommt.

- Die empirischen Wahrscheinlichkeiten pe_j für die Überschreitung der charakteristischen Grenze X_j ist als $pe_j = P(y \geq X_j)$ definiert und berechnet sich zu:

$$pe_j = pe_{j+1} + (1 - pe_{j+1}) \cdot \frac{A_j}{A_j + B_j}. \quad (5.7)$$

Dabei werden die empirischen Überschreitungswahrscheinlichkeiten iterativ beginnend mit der höchsten bestimmt, wobei $pe_{m+1} := \infty$ gesetzt wird.

- Damit sind die empirischen Plot-Wahrscheinlichkeiten p_i für die A_j signifikanten Werte oberhalb der j -ten und unterhalb der $(j + 1)$ -ten charakteristischen Grenze durch

$$p_i = (1 - pe_j) + (pe_j - pe_{j+1}) \cdot \frac{r}{A_j + 1} \quad (5.8)$$

gegeben, wobei r der Rang des i -ten signifikanten Wertes aus den A_j Werten zwischen X_j und X_{j+1} darstellt.

- Die empirische Plot-Wahrscheinlichkeiten pc_i für die j -te charakteristische Grenze X_j ergeben sich dann als

$$pc_i = (1 - pe_j) \cdot \frac{r}{C_j + 1}. \quad (5.9)$$

Dabei ist durch r der Rang der i -ten charakteristischen Grenze mit demselben Wert gegeben, sofern die j -te Nachweisgrenze mehrfach mit der Multiplizität C_j vorkommt.

- Wie bei dem Verfahren mit nur einer charakteristischen Grenze werden nun den Plot-Wahrscheinlichkeiten p_i bzw. pc_i Quantile der Normalverteilung $z_i = \Theta^{-1}(p_i)$ und $z_i = \Theta^{-1}(pc_i)$ zugeordnet. Mit Hilfe der aus den signifikanten Werten stammenden $z_i = \Theta^{-1}(p_i)$ können dann wiederum durch $\ln(y_i) = a + b \cdot z_i$ Regressionsparameter a und b und somit wegen $q_i = \exp(a + b \cdot z_i)$ Ersatzwerte q_i bestimmt werden.
- Durch die signifikanten Werten y_i einerseits und die bestimmten Ersatzwerte q_i andererseits liegt nun wiederum ein vollständiger Datensatz vor, für den statistische Kennwerte bestimmt werden können.

Auch für diesen Algorithmus gelten die in Abschnitt 5.2.1 genannten Bedingungen bezüglich der Anwendbarkeit. Des Weiteren existieren zusätzliche Verbesserungen für den Fall, dass nach der Sortierung der Daten mehrere charakteristische Grenzen aufeinander folgen, ohne dass ein signifikanter Wert zwischen diesen liegt oder für den Fall, dass die Anzahl $(n - k)$ der signifikanten Werte klein ist. Auf eine ausführliche Beschreibung dieser zusätzlichen Ergänzungen des Algorithmus, die auch die Überarbeitung eines berechneten Datensatzes, bei dem Ersatzwerte größer sind als die ihnen zugeordnete charakteristischen Grenzen, beinhaltet, wird an dieser Stelle nicht weiter eingegangen und stattdessen auf [Hel88] und [Joh70] verwiesen.

Für die Durchführung dieser Berechnung von Ersatzwerten stand am ZSR ein an der Bundesforschungsanstalt für Fischerei von Dipl.-Phys. G. KANISCH entwickeltes Computerprogramm zur Verfügung, in dem neben dem in diesem Kapitel beschriebenen Algorithmus auch die erwähnten Verbesserungen implementiert sind. **Somit wurden für all diejenigen Datensätze, die einen oder mehrere Werte unterhalb der betreffenden charakteristischen Grenze beinhalteten, Ersatzwerte bestimmt und diese bei der statistischen Auswertung berücksichtigt.** Die Ergebnisse dieser statistischen Auswertung findet man in den entsprechenden Kapiteln. Sie bilden die Grundlage für die Diskussion der Messergebnisse.

Als charakteristische Grenze G kommen in dieser Arbeit Erkennungs- oder Nachweisgrenze in Frage. Während Messwerte oberhalb der Nachweisgrenze im Gegensatz zu Messwerten zwischen Erkennungs- und Nachweisgrenze als quantitatives Ergebnis einer Messung angesehen werden können, fußt die Schätzung einer Verteilung bei Zunahme der Werte zwischen Erkennungs- und Nachweisgrenzen auf einer größeren

Anzahl n der Messwerte, womit sich auch die Anzahl der Stützpunkte für die beschriebene Abschätzung der Ersatzwerte q_i erhöht. Aus diesem Grund wurden Werte zwischen Erkennungs- und Nachweisgrenze ebenfalls berücksichtigt, womit $G =$ Erkennungsgrenze gesetzt wird.

Im Folgenden werden im Rahmen dieser Arbeit durchgeführte Untersuchungen zur spezifischen Aktivität in verschiedenen Kompartimenten vorgestellt und mit den in der Literatur verfügbaren Erkenntnissen verglichen. Tabellen, in denen die Ergebnisse einzelner Messungen dargestellt sind (z.B. Tabelle 5.11 auf Seite 96), beinhalten fett oder normal gedruckte Einträge. **Fett gedruckte Messergebnisse lagen oberhalb der Nachweisgrenze, in normaler Schrift abgebildete Einträge stehen für Werte zwischen der Erkennungs- und Nachweisgrenze. Leere Felder hingegen symbolisieren Messergebnisse unterhalb der Erkennungsgrenze, so dass an dieser Stelle kein qualitatives oder quantitatives Ergebnis angegeben werden konnte.**

5.3 Weide- und Wiesenbewuchs

Untersuchungen von Weide- und Wiesenbewuchs fanden an zwei Standorten (Neßmerpolder und HLW) statt, an denen an neun Tagen insgesamt 13 Weide- und Wiesenbewuchsproben entnommen wurden. Eine Zusammenstellung der ermittelten spezifischen Aktivitäten bezogen aufs Trockengewicht findet man in Tabelle 5.1. Dabei wurden zur Bestimmung der statistischen Kenndaten nach dem oben beschriebenen Verfahren von HELSEL und COHN für die Anzahl der Messwerte, die unterhalb der Erkennungsgrenzen lagen, Ersatzwerte bestimmt. Den in Tabelle 5.1 dargestellten Daten liegen also jeweils 13 (zum Teil reale, zum Teil geschätzte) Messwerte zu Grunde.

Dabei fällt eine im Vergleich mit den anderen Nukliden hohe ^{210}Pb -Konzentration auf. Ein mögliche Erklärung ist die relativ große Oberfläche von Weide und Wiesenbewuchs, so dass die Deposition von ^{210}Pb als Folgeprodukt des emanierten ^{222}Rn als wahrscheinlich bezeichnet werden kann. Diese Vermutung wird in [PF95] bestätigt. Dort wurden Gras und Luzerne unter ansonsten identischen Bedingungen in einem (belüfteten) Gewächshaus und im Freien untersucht. Es ergaben sich deutlich niedrigere ^{210}Pb -Werte für den überdachten Wiesenbewuchs, was im Wesentlichen auf die Abwesenheit von nasser Deposition zurückgeführt wird. Auch scheint der Transport von ^{210}Pb innerhalb der Pflanze dann effektiver zu sein, wenn nasse Deposition stattgefunden hat, was sich wiederum mit der größeren Mobilität von in Wasser gelöstem Blei im Vergleich zu nicht gelöstem erklären lässt. Erwähnenswert ist, dass die in [PF95] ermittelten Ergebnisse für die spezifische Aktivität von ^{210}Pb in Gras und Luzerne (Mittelwert $10,6 \pm 1,9$ Bq/kg) gut mit den in dieser Arbeit ermittelten übereinstimmen.

Insgesamt liegen die geometrischen Standardabweichungen mit Ausnahme der des

Tabelle 5.1: Spezifische Aktivitäten von Weide- und Wiesenbewuchs in Bq/kg bezogen auf das Trockengewicht. Insgesamt wurden 13 Proben untersucht (n = 13).

	^{210}Pb	^{226}Ra	^{228}Ra	^{228}Th	^{238}U	^{235}U	^{40}K
N ^a	13	11	11	13	4	8	13
arithm. MW.	12,0	0,67	0,80	0,57	0,34	0,05	580
arithm. Stabw.	7,8	0,75	0,57	0,41	0,30	0,03	196
geo. MW.	9,4	0,48	0,63	0,43	0,26	0,04	547
geo. Stabw.	2,3	2,2	2,1	2,2	2,0	2,0	1,4
EW (log) ^b	13,0	0,65	0,83	0,60	0,34	0,05	585

^a Anzahl der Messwerte oberhalb der Erkennungsgrenze.

^b Erwartungswert bei angenommener logarithmischer Normalverteilung.

^{40}K in der Größenordnung von einem Faktor zwei. Bei ^{40}K beträgt die geometrische Standardabweichung lediglich 1,4, was darauf schließen lässt, dass ^{40}K als Isotop eines essentiellen Elementes regulativ von Pflanzen über den Wurzelpfad aufgenommen werden kann (siehe Kapitel 6, Seite 111).

In den Abbildungen 5.1 bis 5.6 sind die oben beschriebenen QQ-Plots dargestellt, wobei lediglich Werte oberhalb der Erkennungsgrenze berücksichtigt wurden. Dabei ist die Güte der Regression mit einem R^2 -Wert von $R^2 > 0,95$ (mit Ausnahme von ^{226}Ra) als gut zu bezeichnen, so dass die Annahme einer logarithmischen Normalverteilung nicht abgelehnt werden kann. Folglich findet man in Tabelle 5.1 neben dem arithmetischen und geometrischen Mittel auch den nach Gleichung (5.4) definierten Erwartungswert bei angenommener logarithmischer Normalverteilung.

5.4 Fleisch

Als zum Verzehr geeignete Fleischproben wurden zwei Proben Muskelfleisch vom Rind (je eine Probe vom Standort Neßmerpolder und HLW) und je eine Probe von Wildschwein (Rücken), Pute (Muskelfleisch), Schaf (Muskelfleisch) und Schwein (Muskelfleisch) nach oben beschriebener Veraschung γ -spektrometrisch untersucht. Dabei wurden Werte oberhalb der Erkennungs- und Nachweisgrenzen lediglich für

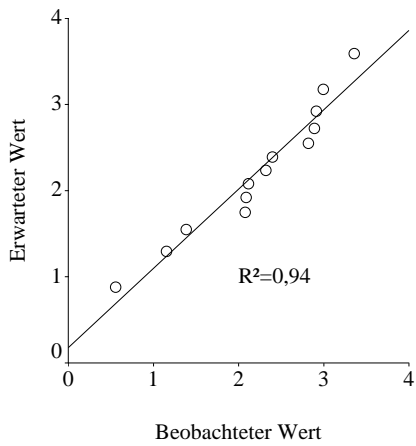


Abbildung 5.1: QQ-Plot für die ^{210}Pb -Aktivität in Weide- und Wiesenbewuchs.

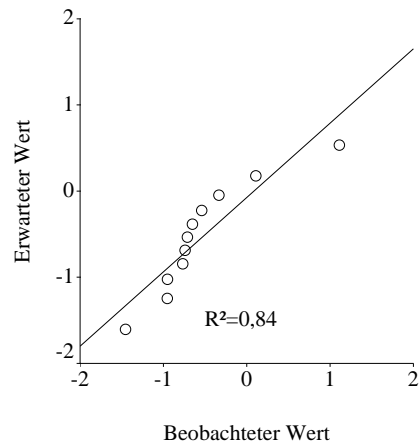


Abbildung 5.2: QQ-Plot für die ^{226}Ra -Aktivität in Weide- und Wiesenbewuchs.

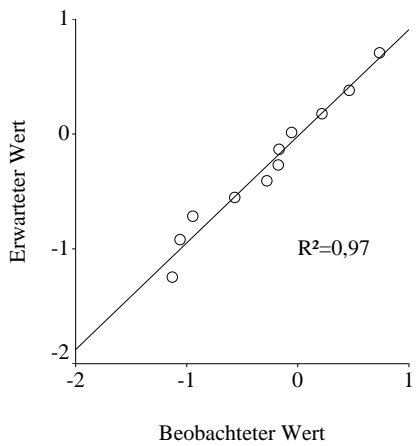


Abbildung 5.3: QQ-Plot für die ^{228}Ra -Aktivität in Weide- und Wiesenbewuchs.

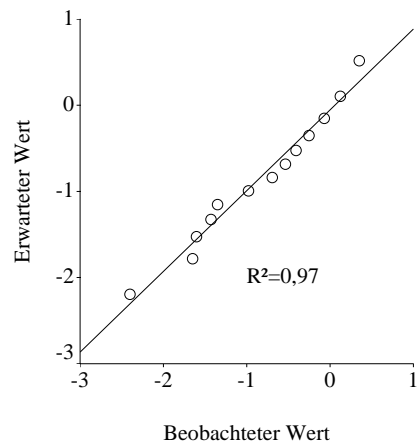


Abbildung 5.4: QQ-Plot für die ^{228}Th -Aktivität in Weide- und Wiesenbewuchs.

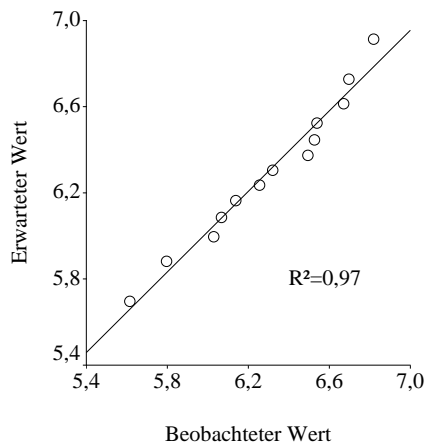


Abbildung 5.5: QQ-Plot für die ^{40}K -Aktivität in Weide- und Wiesenbewuchs.

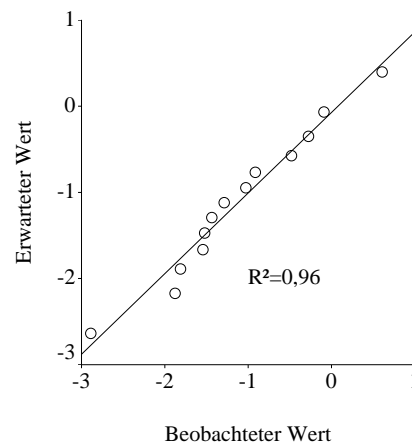


Abbildung 5.6: QQ-Plot für die ^{137}Cs -Aktivität in Weide- und Wiesenbewuchs.

^{40}K gemessen; diese Werte können Tabelle 5.2 entnommen werden. Aussagen über mögliche Verteilungen von ^{40}K konnten wegen der geringen Probenzahl nicht getroffen werden. Allerdings liegen in diesem Fall durch [BfS01], [Mau89] und [Mao95] Vergleichswerte vor, die ebenfalls in Tabelle 5.2 angegeben wurden. Dabei zeigt sich eine gute Übereinstimmung zwischen den in dieser Arbeit ermittelten ^{40}K -Gehalten und den Literaturwerten.

FRINDIK gibt in [Fri92] Gehalte von Thorium und Uran in Lebensmitteln tierischer Herkunft an. Da die spezifischen Aktivitäten von Thorium und Uran in Fleisch mittels γ -Spektrometrie nicht ermittelt werden konnten, stehen für diese Angaben keine Vergleichswerte aus dieser Arbeit zur Verfügung.

Für andere natürliche Radionuklide findet man in der Literatur Angaben über die spezifische Aktivität in Fleisch, die mit unterschiedlichen Analysemethoden, zumeist radiochemischen Verfahren, ermittelt wurde. Soweit dem Autor bekannt, sind diese in Tabelle A.15 im Anhang auf Seite 221 zusammengestellt.

5.5 Milch

Milch konnte, wie oben beschrieben, von den Höfen Neßmerpolder und Hermannsdorfer Landwerkstätten bezogen werden. Von insgesamt 25 Proben lagen lediglich die spezifischen Aktivitäten von ^{40}K bei allen Messungen oberhalb der Nachweisgrenze. Eine Zusammenstellung der Messwerte und Vergleichswerte aus der Literatur findet man in Tabelle 5.3.

Tabelle 5.2: Spezifischen Aktivitäten von Fleisch in Bq/kg bezogen auf das Feuchtgewicht.

Code	Beschreibung	^{40}K	
		A	$u(A)$
HLWRiEPF01	HLW -Rindfleisch-	102	5
HLWSaeF01	HLW -Schafsfleisch-	128	7
HLWSceF01	HLW -Schweinefleisch-	109	6
PoRiEPHf01	Neßmerpolder -Rindfleisch-	90	5
ScWsEPRü01	Schessinghausen -Wildschwein-	115	6
ScPuEPHä01	Schessinghausen -Pute-	75	4
	arithmetischer Mittelwert	103	
	Standardabweichung	19	
<i>Literaturwerte</i>			
Quelle	Beschreibung	A	$u(A)$
[BfS01]	Fleisch allgemein	90	60-120 ^a
[Mau89]	Fleisch allgemein	100	
[Mao95]	Rind	84	2
[Mao95]	Pute	76	2
[Mao95]	Schwein	100	2

^a Zitierter Wertebereich.

Tabelle 5.3: Spezifischen Aktivitäten von Kuhmilch in Bq/kg bezogen auf das Feuchtwicht (n=25).

	^{40}K	^{137}Cs	^{226}Ra	^{238}U	^{210}Pb
N ^a	25	10	5	0	0
arithm. MW.	46	0,05	0,11		
arithm. Stabw.	04	0,03	0,04		
geo. MW.	46	0,04	0,10		
geo. Stabw.	1,1	1,8	1,4		
EW ^b	46	0,05	0,11		
Literaturwerte					
[Mau89]	40		0,01-0,03		0,03
[BfS01]	35-65		0,001-0,130		0,004-0,260
[Shu94]	36-52	0,14			
[Rad96]	72	0,06	0,030		
[Yu99]	41-61	0,05	0,035		
[Shi97]	40-48	54			
[MB80]			0,003-0,010		0,011
[Wat83]			0,003-0,040		
[PF97]			0,008-0,012		0,018
[Fri86]				0,0003	
[Fri92]				0,0002	
[Tho03]				0,0001-0,0006	
[Lad73]					0,02

^a Anzahl der Messwerte oberhalb der Erkennungsgrenze.

^b Erwartungswert bei angenommener logarithmischer Normalverteilung.

Daneben konnte lediglich für ^{137}Cs und ^{226}Ra in einigen Messungen spezifische Aktivitäten oberhalb der jeweiligen Erkennungsgrenze detektiert werden. Die Schwankungsbreite der ^{40}K -Aktivität ist mit einer geometrischen Standardabweichung von 1,1 recht klein, was aufgrund der regulierenden Mechanismen bezüglich der Kaliumaufnahme mit der Physiologie von Rindern erklärt werden kann. Auch unterscheiden sich arithmetisches und geometrisches Mittel sowie der Erwartungswert bei angenommener logarithmischer Normalverteilung nur geringfügig. Insgesamt befinden sich die Messwerte für ^{40}K innerhalb der in der Literatur zu findenden Schwankungsbreite.

Für ^{137}Cs wurden zehn Messwerte oberhalb der Erkennungsgrenze ermittelt. Mit einem Erwartungswert von 0,05 Bq/kg Feuchtgewicht befinden sich die in dieser Arbeit berechneten Werte in guter Übereinstimmung mit denen aus [Rad96] und [Yu99]. Da sowohl [Shu94] als auch [Shi97] Untersuchungen aus der Ukraine beschreiben, sind die im Vergleich recht hohen Angaben (vor allem in [Shi97]) plausibel, da vom Tschernobyl-Unfall beeinflusste Gegenden beprobt wurden. Im Fall von ^{226}Ra standen lediglich fünf Messwerte oberhalb der Erkennungsgrenze zur Verfügung. Damit liegen 80 % der Messwerte unterhalb der Erkennungsgrenze, so dass das Verfahren von HELSEL und COHN zur Bestimmung von Ersatzwerten kaum noch anwendbar ist. Berechnet man dennoch Ersatzwerte, so ergibt sich ein Erwartungswert der spezifischen Aktivität von 0,11 Bq/kg. Dies liegt über den meisten in der Literatur gemachten Angaben aber innerhalb der in [BfS01] angegebenen Schwankungsbreite.

5.6 Getreide

Getreide konnte von den Standorten Gestorf (Weizen), Neßmerpolder (Weizen, Gerste, Hafer und Raps), Schessinghausen (Weizen, Triticale, Roggen und Raps) und Schlewecke (Weizen, Gerste und Raps) bezogen werden. Wo möglich, wurde, wie oben beschrieben, auch das zu dem Korn gehörige Stroh beprobt und γ -spektrometrisch untersucht. Eine Zusammenstellung aller genommenen Getreideproben kann Tabelle 5.4 entnommen werden.

Mit Raps wurde der Vollständigkeit halber ein Getreide untersucht, das zwar nicht unmittelbar Teil der menschlichen Nahrungskette ist, zu geringen Prozentsätzen allerdings als Speiseöl verarbeitet wird. Während sich die Angaben der spezifischen Aktivität für das Korn auf das Feuchtgewicht beziehen, wurde für das Stroh die Aktivität pro kg Trockengewicht berechnet. Die Ergebnisse der statistischen Analyse sind in Tabelle 5.5 dargestellt.

Insgesamt ergaben die meisten Messungen Ergebnisse oberhalb der Erkennungsgrenze. Im Korn konnten allerdings ^{238}U in keiner und ^{235}U lediglich in vier Proben nachgewiesen werden, wobei diese Werte zwar oberhalb der Erkennungs- aber unterhalb der Nachweisgrenze lagen. Die höchsten spezifischen Aktivitäten findet man

Tabelle 5.4: Zusammenstellung der untersuchten Getreideproben.

Code	Datum	Ort	Beschreibung	Korn	Stroh
GeKoMPWe01	15.08.2001	Gestorf	Weizen	✓	✓
PoKoMPGe01	27.08.2001	Neßmerpolder	Gerste	✓	
PoKoMPHa01	27.08.2001	Neßmerpolder	Hafer	✓	✓
PoKoMPHa02	27.08.2001	Neßmerpolder	Hafer	✓	✓
PoKoMPWe01	27.08.2001	Neßmerpolder	Weizen	✓	✓
PoKoMPRa01	27.08.2001	Neßmerpolder	Raps	✓	
ScKoMPRo01	16.08.2001	Schessinghausen	Roggen	✓	✓
ScKoMPTr01	16.08.2001	Schessinghausen	Tritikale	✓	✓
ScKoMPTr02	11.09.2001	Schessinghausen	Tritikale	✓	✓
ScKoMPWe01	11.09.2001	Schessinghausen	Weizen	✓	
ScKoMPWe02	11.09.2001	Schessinghausen	Weizen	✓	
ScKoMPRa01	13.08.2001	Schessinghausen	Raps	✓	
SIKoMPGe02	21.07.2001	Schlewecke	Gerste	✓	✓
SIKoMPGe01	21.07.2001	Schlewecke	Gerste	✓	✓
SIKoMPWe01	06.08.2001	Schlewecke	Weizen	✓	✓
SIKoMPWe02	20.08.2001	Schlewecke	Weizen	✓	✓
SIKoMPRa01	27.07.2001	Schlewecke	Raps	✓	

wiederum bei ^{40}K , wohingegen für Mitglieder der natürlichen Zerfallsreihen die spezifische Aktivität von ^{210}Pb deutlich die der anderen Zerfallsprodukte übersteigt. Die Annahme der logarithmischen Normalverteilung kann für fast alle Nuklide mit hoher Wahrscheinlichkeit nicht abgelehnt werden (R^2 -Werte mit $R^2 > 0,95$ für ^{210}Pb , ^{226}Ra , ^{228}Ra und ^{228}Th). In Tabelle 5.5 sind als Vergleich die in [BfS01] angegebenen Werte aufgeführt. Dabei zeigt sich eine gute Übereinstimmung mit den am ZSR bestimmten Daten. Eine Auflistung weiterer Daten aus der Literatur, in denen auch vereinzelt Messwerte für ^{228}Th gefunden werden können, ist im Anhang in Tabelle A.16 auf Seite 222 dargestellt. Zum Vergleich mit der Literatur ist folgendes anzumerken:

- Wie oben schon bemerkt, liegen die am ZSR gemessenen Werte für ^{210}Pb innerhalb der in [BfS01] angegebenen Schwankungsbreite. Andere Veröffentlichungen berichten von geringeren Konzentrationen, geben aber keine Schwankungsbreite an und spiegeln somit lediglich die Ergebnisse von Einzelmessungen wider. Unterteilt man die Gesamtheit der untersuchten Kornproben in die einzelnen Getreidearten (siehe Tabelle 5.6), so findet sich für Gerste eine sehr

Tabelle 5.5: Spezifische Aktivitäten von natürlichen Radionukliden in Getreide-Korn und Getreide-Stroh zusammen mit den statistischen Kenndaten.

	^{210}Pb	^{226}Ra	^{228}Ra	^{228}Th	^{238}U	^{235}U	^{40}K
Getreide - Korn (bezogen aufs FG, n = 17)							
N ^a	13	16	13	15	0	4	17
arithm. MW in Bq/kg	0,70	0,11	0,17	0,08		0,007	135
arithm. Stabw. in Bq/kg	0,81	0,06	0,09	0,06		0,008	57
geo. MW in Bq/kg	0,38	0,09	0,15	0,06		0,004	125
geo. Stabw.	3,1	1,9	1,7	2,2		2,5	1,5
EW (log) in Bq/kg	0,72	0,11	0,17	0,08		0,007	135
R ² (log-normal)	0,97	0,97	0,99	0,95			0,94
[BfS01]	0,04-10,2	0,04-1,54					87-246
Getreide - Stroh (bezogen aufs TG, n = 11)							
N ^a	11	11	10	11	1	5	11
arithm. MW in Bq/kg	12,69	1,09	1,40	0,77	1,38	0,03	357
arithm. Stabw. in Bq/kg	4,49	0,61	0,66	0,40		0,03	143
geo. MW in Bq/kg	12,08	0,90	1,25	0,66		0,02	330
geo. Stabw.	1,4	2,0	1,7	1,8		2,2	1,5
EW (log) in Bq/kg	12,78	1,14	1,42	0,79		0,03	358
Faktor Stroh / Getreide ^b							
arithmetisches Mittel	18,2	10,3	8,4	9,6		3,5	2,1
EW	14,3	10,6	8,4	9,4		4,6	2,1

^a Anzahl der Messwerte oberhalb der Erkennungsgrenze.

^b Quotient aus spezifischer Aktivität im Stroh und der spezifischen Aktivität im Getreide, beides bezogen aufs Trockengewicht.

gute Übereinstimmung mit den in [PF95] angegebenen Werten. Insgesamt ist die Schwankungsbreite der im Rahmen dieser Arbeit gemessenen ^{210}Pb Messwerte mit einer geometrischen Standardabweichung von 3,1 recht groß.

- Bezüglich ^{226}Ra kann von einer sehr guten Übereinstimmung mit Literaturdaten gesprochen werden. Der in dieser Arbeit berechnete Erwartungswert der spezifischen Konzentration liegt innerhalb der in [BfS01] und [Mau89] angegebenen Schwankungsbreite und stimmt gut mit den in [Mor71], [Fis70], [Fis87] oder [PF97] dargestellten Werten überein. Für ^{228}Ra konnte kein Vergleichswert in der Literatur gefunden werden.
- Untersuchungen zu ^{228}Th findet man in [Fri89]. Die dort ermittelten spezifischen Aktivitäten stimmen für Weizen sehr gut und für Gerste und Roggen bis auf einen Faktor zwei mit den in dieser Arbeit ermittelten überein.
- Für Uran konnten γ -spektrometrisch keine Werte oberhalb der Nachweisgrenze gemessen werden. Der Mittelwert von vier ^{235}U -Werten lag deutlich über den in [Fis87] genannten Konzentrationen, wobei weitere vergleichbare Literaturwerte dem Autor nicht bekannt sind. Allerdings ist die Bestimmung von Ersatzwerten nach HELSEL und COHN bei lediglich vier Werten oberhalb der Erkennungsgrenze fraglich, was sich auch in der großen geometrischen Standardabweichung von 2,5 widerspiegelt.
- Die in [BfS01] angegebene Schwankungsbreite von ^{40}K in Getreide umfasst den in dieser Arbeit ermittelten Wert und auch die in [Mau89] angegebene spezifische Aktivität von 100 Bq/kg liegt innerhalb der in dieser Arbeit ermittelten Variabilität der spezifischen Aktivität.

Bezüglich des Strohs lagen keine Literaturangaben vor, da in den meisten Fällen der zum Verzehr geeignete Anteil eines Produktes Gegenstand der Untersuchung war. Insgesamt zeigt sich, wie in Tabelle 5.5 unten dargestellt, eine deutlich Erhöhung der spezifischen Aktivität im Stroh im Vergleich zum Korn. Dabei ist der Quotient aus der spezifischen Aktivität im Stroh und der spezifischen Aktivität im Korn bei ^{210}Pb mit 14,3 am größten und beträgt bei ^{40}K als kleinsten Wert immerhin noch 2,1 (bezogen auf den Erwartungswert).

Unterteilt man die Gesamtheit der Getreidekornproben in die einzelnen Getreidesorten (Tabelle 5.6), so fällt vor allem ein im Vergleich zu anderen Getreidearten erhöhter ^{40}K -Gehalt bei Raps auf. Dies lässt sich durch den im Vergleich mit anderen Getreidesorten erhöhten Bedarf des Raps an Kalium erklären, das für die Frosthärte, die Blüten- und Schotenausbildung sowie den Wasserhaushalt eine entscheidene Rolle spielt [Krü01]. Aus diesem Grund ist auch die empfohlenen Düngemenge von Kali (K_2O) für Raps fast doppelt so hoch wie für andere Getreidesorten [Vet94].

Tabelle 5.6: Vergleich der spezifischen Aktivitäten von verschiedenen Getreidesorten. Alle Angaben in Bq/kg und bezogen auf das Feuchtgewicht.

	²¹⁰ Pb		²²⁶ Ra		²²⁸ Ra		²²⁸ Th		⁴⁰ K	
	A ^a	u(A) ^b	A	u(A)	A	u(A)	A	u(A)	A	u(A)
Gerste	0,97	0,44	0,12	0,08	0,21	0,16	0,12	0,09	099	15
Hafer	1,58	0,72	^d		0,05 ^c		0,03	0,01	099	39
Raps	0,47 ^c		0,13	0,09	0,23	0,06	0,10	0,10	244	10
Roggen	0,66 ^c		0,07 ^c		0,18 ^c		0,14 ^c		123	5
Triticale	0,30 ^c		0,14	0,06	0,19	0,05	0,11	0,10	146	1
Weizen	0,77	1,24	0,10	0,05	0,18	0,07	0,08	0,03	109	29

^a arithmetischer Mittelwert der Einzelmessungen.

^b Standardabweichung des Mittelwertes.

^c nur ein Messwert oberhalb der Erkennungsgrenze vorhanden.

^d kein Messwert oberhalb der Erkennungsgrenze vorhanden.

5.7 Gemüse

Gemüse konnte küstenfern vom Hof „Jeinsen“ und küstennah vom Betrieb „Gründeich“ bezogen werden. Eine Auflistung der Proben und deren Beschreibung findet man in Tabelle 5.7. Zusätzlich zu den Standorten „Jeinsen“ und „Gründeich“ wurden Kartoffeln aus Gestorf und Rhabarber aus Gümmer beprobt. Da keiner der Betriebe Karotten anbaute, wurden diese auf einem Wochenmarkt in Hannover-Linden erworben. Sie stammen von der Gärtnerei „Klages“ in Uetze-Katensen (Biolandbetrieb Nr. 31693). Zu diesen Karotten konnte keine Bodenprobe entnommen werden. Wenn möglich, wurden, wie oben beschrieben, auch nicht zum Verzehr geeignete Pflanzenteile untersucht, um Informationen über die Translokation der Radionuklide innerhalb der Pflanze zu gewinnen. Wurzelwerk wurde prinzipiell verworfen, da die Masse für eine γ -spektrometrische Analyse nicht ausreichte.

Betrachtet man die Gesamtheit der Proben, so kann die Verteilung von natürlichen Radionukliden in guter Näherung als logarithmische Normalverteilung beschrieben werden. So sind für die Gesamtheit aller Gemüseproben die QQ-Plots der Messergebnisse oberhalb der Nachweisgrenze in den Abbildungen 5.7 bis 5.12 dargestellt. Insgesamt zeigt sich eine gute Übereinstimmung, so dass die Annahme einer logarithmischen Normalverteilung nicht abgelehnt werden kann. Für ²³⁸U und ²³⁵U wurde kein Test auf eine Verteilung durchgeführt, da die Anzahl der Proben, bei denen die ermittelte spezifische Aktivität oberhalb der Nachweisgrenze lag, mit fünf bzw. vier zu gering war. Während sich für ²¹⁰Pb eine sehr gute Übereinstimmung mit der Hypothese einer logarithmischen Normalverteilung zeigt, kann man für ⁴⁰K eine Abweichung von

Tabelle 5.7: Zusammenstellung der untersuchten Gemüseproben.

Code	Datum	Ort	Beschreibung
GrGeEPBk01	02.10.2002	Gründeich	Blumenkohl
GrGeEPKa01	02.10.2002	Gründeich	Kartoffeln
GrGeEPKr01	03.09.2002	Gründeich	Kohlrabi
GrGeEPKs01	03.09.2002	Gründeich	Kopfsalat
GrGeEPLa01	02.10.2002	Gründeich	Lauch
GrGeEPMg01	03.09.2002	Gründeich	Mangold
GrGeEPPe01	02.10.2002	Gründeich	Petersilie
GrGeEPRd01	03.09.2002	Gründeich	Radieschen
GrGeEPRb01	02.10.2002	Gründeich	Rote Bete
GrGeEPWeK01	03.09.2002	Gründeich	Weißkohl
GrGeEPWk01	02.10.2002	Gründeich	Wirsingkohl
JeGeEPBk01	13.09.2001	Jeinsen	Blumenkohl
JeGeEPBr02	21.09.2001	Jeinsen	Brokoli
JeGeEPEg01	14.08.2001	Jeinsen	Einlegegurken
JeGeEPGk01	22.11.2001	Jeinsen	Grünkohl
JeGeEPKp01	14.08.2001	Jeinsen	Knollenpetersilie
JeGeEPKr01	14.08.2001	Jeinsen	Kohlrabi
JeGeEPKs01	14.08.2001	Jeinsen	Kopfsalat
JeGeEPLa02	21.09.2001	Jeinsen	Lauch
JeGeEPMg01	14.08.2001	Jeinsen	Mangold
JeGeEPPe02	21.09.2001	Jeinsen	Petersilie
JeGeEPRo02	21.09.2001	Jeinsen	Rosenkohl
JeGeEPRb01	14.08.2001	Jeinsen	Rote Bete
JeGeEPWeK01	13.09.2001	Jeinsen	Weißkohl
JeGeEPWK01	13.09.2001	Jeinsen	Wirsingkohl
LiGeEPKa01	02.11.2002	Uetze-Katensen	Karotten
GeGeEPKa01	15.08.2001	Gestorf	Kartoffeln
GuGeEPRh01	15.07.2001	Gümmer	Rhabarber

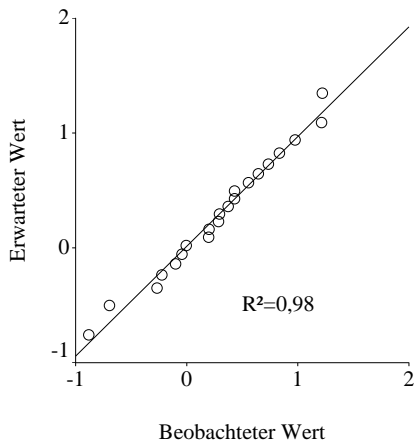


Abbildung 5.7: QQ-Plot für die ^{210}Pb -Aktivität in Gemüseproben.

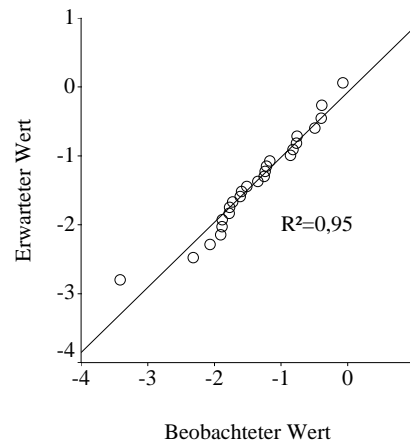


Abbildung 5.8: QQ-Plot für die ^{226}Ra -Aktivität in Gemüseproben.

der Interpolationsgeraden für kleine Werte erkennen. Dies lässt auf den regulativen Charakter der ^{40}K -Aufnahme von Pflanzen schließen. Da für alle anderen Nuklide die Anzahl der Messwerte oberhalb der Nachweisgrenze bedeutend kleiner war, sind für diese Nuklide Spekulationen über die Gründe der Abweichungen von einer logarithmischen Normalverteilung schwierig.

Die Verteilung der spezifischen Aktivitäten von nur zum Verzehr geeigneten Bestandteilen des untersuchten Gemüses findet man mit den dazugehörigen statistischen Kenndaten in Tabelle 5.8.

Hierbei fallen ungewöhnlich hohe geometrische Standardabweichungen auf, die eine genauere Betrachtung notwendig machen. In Tabelle 5.9 findet man eine detaillierte Untersuchung des in Tabelle 5.8 beschriebenen Datensatzes.

Dort wurde exemplarisch das zum Verzehr geeignete Blatt- und Wurzelgemüse einmal für Werte oberhalb der Erkennungs- und einmal lediglich für Werte oberhalb der Nachweisgrenzen statistisch analysiert. Zur Veranschaulichung der Veränderung von statistischen Kenndaten (Mittelwerte, Standardabweichungen, Erwartungswerte usw.) durch die Anwendung des Algorithmus von HELSEL und COHN geschah dies jeweils auf zwei verschiedene Arten, nämlich zunächst nur unter Berücksichtigung der signifikanten Werte und dann mit Hilfe des oben beschriebenen Algorithmus von HELSEL und COHN auch mit geschätzten Werten. Dabei wird folgendes deutlich:

- Die Erwartungswerte der spezifischen Aktivitäten unterscheiden sich, je nachdem, ob man Werte zwischen der Erkennungs- und Nachweisgrenze berücksichtigt, nicht erheblich. Allerdings steigt die geometrische Standardabweichung bei der Hinzunahme dieser Werte in der Regel, und zwar zum Teil deutlich (Bsp. ^{210}Pb von 1,8 auf 3,0).

5 Spezifische Aktivitäten natürlicher Radionuklide in Lebensmitteln

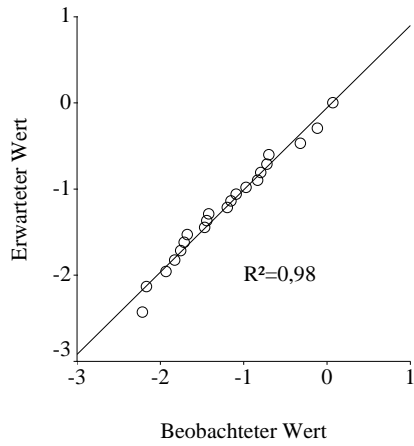


Abbildung 5.9: QQ-Plot für die ^{228}Ra -Aktivität in Gemüseproben.

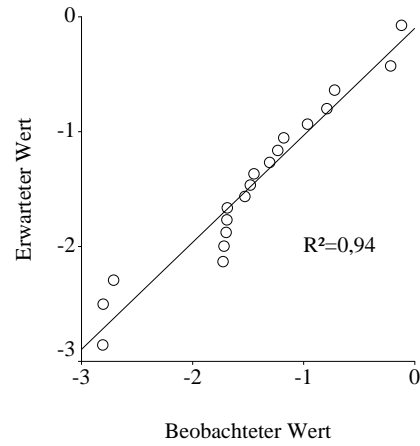


Abbildung 5.10: QQ-Plot für die ^{228}Th -Aktivität in Gemüseproben.

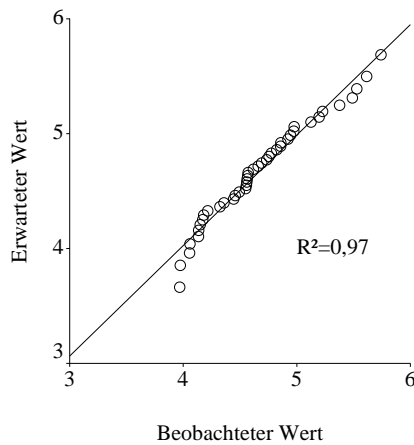


Abbildung 5.11: QQ-Plot für die ^{40}K -Aktivität in Gemüseproben.

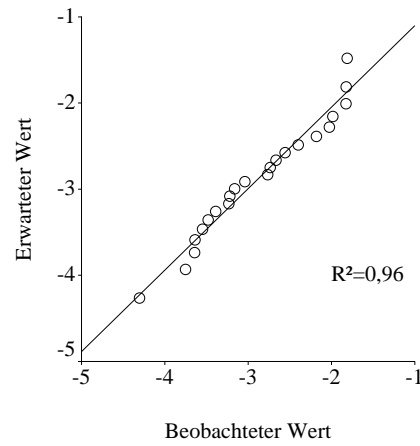


Abbildung 5.12: QQ-Plot für die ^{137}Cs -Aktivität in Gemüseproben.

Tabelle 5.8: Statistische Daten der spezifischen Aktivität von zum Verzehr geeigneten Gemüseproben ohne Unterscheidung in Wurzel- und Blattgemüse (n=28).

	^{210}Pb	^{226}Ra	^{228}Ra	^{228}Th	^{238}U	^{235}U	^{40}K
N ^a	13	22	14	15	6	7	28
arithm. MW. in Bq/kg	0,47	0,14	0,135	0,08	0,10	0,008	116
arithm. Stabw. in Bq/kg	0,67	0,15	0,14	0,12	0,14	0,008	64
geo. MW. in Bq/kg	0,15	0,08	0,06	0,02	0,015	0,006	102
geo. Stabw.	5,0	3,4	4,1	5,6	3,1	2,1	1,6
EW (log) in Bq/kg ^b	0,54	0,16	0,16	0,10	0,10	0,008	115
R ² (log-normal) ^c	0,96	0,93	0,96	0,92			0,95

^a Anzahl der Messwerte oberhalb der Erkennungsgrenze.

^b Erwartungswert bei angenommener logarithmischer Normalverteilung nach Gl. (5.4).

^c R² der Interpolation im QQ-Plot bei angenommener logarithmischer Normalverteilung.

- Durch die Anwendung des Verfahrens von HELSEL und COHN und die damit verbundene Berücksichtigung von Schätzwerten für Messwerte unterhalb der Erkennungsgrenze sinkt der Erwartungswert deutlich. Dieser (zu erwartende) Effekt hängt von der Anzahl k der Messwerte unterhalb der jeweiligen charakteristischen Grenze und vom Grad der Übereinstimmung zwischen angenommener und tatsächlich vorhandener logarithmischer Normalverteilung ab.
- Die Anwendung des HELSEL-COHN-Algorithmus führt in beiden Fälle zu einer erheblichen Vergrößerung der geometrischen Standardabweichung. Diese geometrische Standardabweichung entspricht also nicht der in den Proben tatsächlich gemessenen geometrischen Standardabweichung, sondern entsteht durch die Extrapolation der Verteilung in den Bereich unterhalb der entsprechenden charakteristischen Grenzen und spiegelt damit neben der Breite der Verteilung der spezifischen Aktivität auch den Grad der Unkenntnis über diese wider.
- Bei der Verwendung des HELSEL-COHN-Algorithmus mit Daten oberhalb der Nachweisgrenze ergeben sich etwas niedrigere Erwartungswerte im Vergleich zur Anwendung auf Daten, die zusätzlich Werte zwischen Erkennungs- und Nachweisgrenzen erhalten. Auch sind die geometrischen Standardabweichung der gemessenen Werte in diesem Fall deutlich niedriger. Allerdings sinkt somit auch die Zahl der Werte oberhalb der charakteristischen Grenze, so dass im Fall

Tabelle 5.9: Vergleich der statistischen Kenndaten der spezifischen Aktivität von zum Verzehr geeigneten Gemüseproben ohne Unterscheidung in Wurzel- und Blattgemüse (n=28).

	²¹⁰ Pb	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th	²³⁸ U	²³⁵ U	⁴⁰ K
<i>y_i > NWG</i>							
N ^a	9	13	10	9	3	2	28
geo. Stabw.	1,8	2,1	1,6	1,9	2,0	1,9	1,6
EW (log) in Bq/kg ^b	1,30	0,26	0,25	0,22	0,29	0,02	115
R ² (log-normal) ^c	0,96	0,93	0,96	0,92	-	-	0,95
<i>Verfahren nach HELSEL und COHN mit Werten y_i > NWG</i>							
N ^d	28	28	28	28	28	28	28
geo. Stabw.	3,7	3,3	2,3	4,9	-	-	1,6
EW (log) in Bq/kg ^b	0,40	0,13	0,12	0,09	-	-	115
<i>y_i > EG</i>							
N ^a	13	22	14	15	6	7	28
geo. Stabw.	3,0	2,6	1,8	3,9	1,8	2,0	1,6
EW (log) in Bq/kg ^b	1,15	0,19	0,25	0,19	0,33	0,02	115
R ² (log-normal) ^c	0,91	0,97	0,95	0,93	0,98	0,92	0,95
<i>Verfahren nach HELSEL und COHN mit Werten y_i > EG</i>							
N ^d	28	28	28	28	28	28	28
geo. Stabw.	5,0	3,4	4,1	5,6	3,1	2,1	1,6
EW (log) in Bq/kg ^b	0,54	0,16	0,16	0,10	0,10	0,008	115

^a Anzahl der Messwerte oberhalb der Erkennungsgrenze.

^b Erwartungswert bei angenommener logarithmischer Normalverteilung nach Gl. (5.4).

^c R² der Interpolation im QQ-Plot bei angenommener logarithmischer Normalverteilung.

^d Anzahl der berücksichtigten Messwerte (Summe aus signifikanten und geschätzten Messwerten oberhalb der Erkennungsgrenze).

von ^{238}U und ^{235}U eine Auswertung der Messergebnisse nicht mehr sinnvoll möglich ist.

- Aus diesen Gründen wurde, wie schon oben erwähnt, für alle Datensätze der spezifischen Aktivität auch Werte zwischen Erkennungs- und Nachweisgrenzen als Messergebnisse akzeptiert und auf Grundlage dieser Werte das Verfahren von HELSEL und COHN angewandt. Es sei nochmal darauf hingewiesen, dass die dabei berechneten und z.T. sehr großen geometrischen Standardabweichungen Ergebnisse des Extrapolationsvorgangs sind und nicht notwendigerweise die tatsächlich gegebene Schwankungsbreite der spezifischen Aktivitäten charakterisieren.
- Die mathematischen Grenzen der Anwendbarkeit des Verfahrens von HELSEL und COHN wurden oben beschrieben (siehe Seite 74). Allerdings ist die Extrapolation von Verteilungen, bei denen die Schätzungen von Kenndaten (Erwartungswert, geometrische Standardabweichung) auf wenigen Messwerten beruhen, auch dann mit großen Unsicherheiten behaftet, wenn die Durchführung des eigentlichen Algorithmus kein Problem darstellt - eben weil die Schätzung der Kenndaten einer Verteilung mit wenigen Messwerten unsicher ist. Darüber hinaus muss die Aussage, dass 20 % der Werte genügen, um die Verteilung der unbekanntenen 80 % zu schätzen, kritisch hinterfragt werden, da die (z.B. durch die Messunsicherheit gegebenen) Schwankungsbreite in diesen 20 % große Auswirkung auf die Verteilung der nicht bekannten 80 % haben kann.

Die Unterteilung in nicht essbare oder zum Verzehr geeignete Pflanzenteile berücksichtigt nicht die unterschiedliche Situation bei Wurzel- bzw. Blattgemüse. Bei Wurzelgemüse besteht ein ganz erheblicher pflanzenphysiologischer Unterschied zwischen der zum Verzehr geeigneten Wurzel oder Knolle und nicht essbaren Pflanzenteile wie z.B. Blättern. Bei Blattgemüse bestand der nicht essbarer Anteil in der Regel aus Deckblättern, die in ihrer Entstehung und vor allem Funktion den zum Verzehr geeigneten Pflanzenteilen gleichen. Deshalb wurden die vorliegenden Proben nochmals in Blattgemüse (Blumenkohl, Wirsingkohl, Weißkohl, Grünkohl, Brokoli, Kopfsalat, Mangold, Lauch, Petersilie, Rhabarber) und Wurzelgemüse (Kohlrabi, Rote Bete, Einleggurken, Knollenpetersilie, Karotten und Kartoffeln) eingeteilt. Kohlsorten wurde als Blattgemüse angesehen, um der Kategorie „Blattgemüse“ hinreichend viele Messwerte oberhalb der Erkennungs- und Nachweisgrenze zuordnen zu können.

5.7.1 Wurzelgemüse

Durch die Aufteilung in Wurzelgemüse und Blattgemüse und der notwendigen Unterscheidung zwischen dem essbaren und nicht essbaren Teil reduziert sich die Anzahl der Messwerte oberhalb der Erkennungsgrenze deutlich. Eine Zusammenfassung der Ergebnisse der Datenanalyse kann Tabelle 5.10 entnommen werden.

5 Spezifische Aktivitäten natürlicher Radionuklide in Lebensmitteln

Tabelle 5.10: Statistische Auswertung der spezifischen Aktivität von Wurzelgemüse.

	²¹⁰ Pb	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th	²³⁸ U	²³⁵ U	⁴⁰ K
essbar (n=10)							
N ^a	1	7	4	4	1	3	10
arithm. MW in Bq/kg	0,15	0,07	0,07	0,02	0,11	0,008	126
arithm. Stabw. in Bq/kg		0,06	0,09	0,04		0,003	78
geo. MW in Bq/kg		0,05	0,03	0,007		0,008	110
geo. Stabw.		2,4	3,7	4,1		1,4	1,7
EW (log) in Bq/kg^b		0,07	0,07	0,02		0,008	127
nicht essbar (n=6)							
N ^a	6	6	5	5	3	4	6
arithm. MW in Bq/kg	2,33	0,53	0,59	0,40	0,31	0,03	167
arithm. Stabw. in Bq/kg	0,99	0,24	0,33	0,28	0,27	0,01	78
geo. MW in Bq/kg ^b	2,13	0,48	0,51	0,26	0,22	0,03	153
geo. Stabw.	1,7	1,6	1,8	3,2	2,3	1,6	1,6
EW (log) in Bq/kg^b	2,40	0,54	0,60	0,52	0,32	0,03	170
Faktor nicht essbar / essbar							
arithm. MW	15,50 ^c	7,6	8,4	18,4	2,8 ^c	3,7	1,3
EW		7,7	8,4	27,0		3,8	1,3

^a Anzahl der Messwerte oberhalb der Erkennungsgrenze.

^b Erwartungswert bei angenommener logarithmischer Normalverteilung nach Gl. (5.4).

^c Diesem Verhältnis liegt nur ein Messwert zugrunde.

Man erkennt, dass die spezifischen Aktivitäten im zum Verzehr geeigneten Teil der Pflanzen deutlich unter denen im nicht essbaren Teil liegen, was im unteren Bereich von Tabelle 5.10 unter der Zeile „*Faktor essbar / nicht essbar*“ durch den Quotienten aus der spezifischen Aktivität in nicht essbaren zu essbaren Pflanzenbestandteilen quantifiziert wird. Dieser Faktor ist für ^{210}Pb und ^{228}Th besonders hoch, was im Fall von ^{210}Pb durch Deposition von luftgetragendem ^{210}Pb auf der Blattoberfläche des nicht zum Verzehr bestimmten Teils der Pflanze erklärt werden mag. Aber auch für andere Nuklide liegt der Unterschied der spezifischen Aktivität zwischen essbaren und nicht essbaren Teilen einer Pflanze bei einem Faktor deutlich über 1. Das lässt darauf schließen, dass diese Radionuklide hauptsächlich gelöst im Bodenwasser von der Pflanze aufgenommen und dann durch Transpiration im Xylem in die Blätter transportiert und dort eingebaut werden. Eine Ausnahme bildet das ^{40}K , das mit einem Verhältnis von 1,3 annähernd gleichverteilt wird. Das wiederum erklärt sich dadurch, dass Kalium als wichtiges Nährelement eine entscheidende Rolle bei Stoffwechselfvorgängen in der pflanzlichen Zelle spielt und somit gleichermaßen in Blättern und Wurzelwerk benötigt wird und auch im Phloem transportiert werden kann. Bestätigt wird diese Aussage in [Chi00], wo die Verteilung von ^{40}K in Lublin (Polen) in diversen Gemüsen bestimmt und dabei zwischen essbaren und nicht essbaren Bestandteilen unterschieden wird. Dort beschreiben CHIBOWSKI ET AL., dass in den Knollen von Karotten in etwa dieselbe spezifische Aktivität gemessen wurde wie in den Blättern. Insgesamt stimmt die dort ermittelte spezifische Aktivität von ^{40}K gut mit der am ZSR ermittelten überein (siehe auch Tabelle A.17 im Anhang auf Seite 225).

Ein Vergleich mit der Literatur ist in Tabelle 5.11 dargestellt. Dabei wurden dort mit [BfS01] und [Mau89] zwei Veröffentlichungen gewählt, die ihrerseits eine Datensammlung für Deutschland [BfS01] und eine Literaturrecherche in England [Mau89] präsentieren. Insgesamt liegen die am ZSR ermittelten Werte innerhalb der dort angegebenen Schwankungsbreite der spezifischen Aktivität. Eine ausführlichere Zusammenstellung der in der Literatur veröffentlichten und dem Autor bekannten Ergebnisse kann im Anhang in Tabelle A.17 eingesehen werden. Angaben, die sich auf das Trockengewicht bezogen, wurden mit Hilfe der in [MES00f] angegebenen Verhältnisse zwischen Trocken- und Feuchtgewicht umgerechnet, um die Vergleichbarkeit der Messwerte zu gewährleisten. Aufgrund der Fülle der Daten wird an dieser Stelle auf einen ausführlichen Vergleich zwischen den am ZSR ermittelten und in der Literatur präsentierten Daten verzichtet und nur die auffälligsten Erkenntnisse dargelegt:

- Für ^{210}Pb ergaben die Messungen am ZSR lediglich einen Wert oberhalb der Erkennungsgrenze (Einlegegurken). Dieser Wert liegt gut in der Schwankungsbreite der veröffentlichten Daten.
- Die größte Anzahl der veröffentlichten Messergebnisse findet man in der Literatur für ^{226}Ra . Diese Werte variieren, je nach Randbedingungen, um zwei bis drei Größenordnungen. Dabei ergibt sich eine gute Übereinstimmung mit Werten des ZSR, die auch bei der Differenzierung nach Karotten und Kartoffeln, für

Tabelle 5.11: Zusammenfassung der spezifischen Aktivitäten in Bq/kg bezogen auf das Feuchtgewicht in zum Verzehr geeignetem Wurzelgemüse im Vergleich mit der Literatur. Fettdruckte Werte lagen oberhalb der Nachweisgrenze.

	²¹⁰ Pb	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th	²³⁸ U	²³⁵ U	⁴⁰ K
N	1	7	4	4	1	3	10
EW (log) in Bq/kg	0,07	0,07	0,07	0,02		0,008	127
geo. Stabw.	2,4	2,4	3,7	4,1		1,4	1,7
Ort	Art						
Gründelich	Kartoffeln	0,04 ± 0,02					168 ± 09
Gründelich	Kohlrabi					0,012 ± 0,006	097 ± 05
Gründelich	Rote Bete	0,14 ± 0,06	0,29 ± 0,16	0,14 ± 0,04			095 ± 08
Gründelich	Radishesen	0,10 ± 0,02		0,03 ± 0,01			065 ± 03
Jeinsen	Einlegegurken	0,15 ± 0,05	0,03 ± 0,01			0,008 ± 0,004	063 ± 03
Jeinsen	Knollenpetersilie		0,14 ± 0,04				311 ± 16
Jeinsen	Kohlrabi		0,05 ± 0,02				058 ± 03
Jeinsen	Rote Beete		0,16 ± 0,08				186 ± 10
Uetze	Karotten	0,15 ± 0,01	0,11 ± 0,03	0,03 ± 0,01	0,11 ± 0,07	0,011 ± 0,005	109 ± 06
Gestorf	Kartoffeln	0,03 ± 0,01		0,010 ± 0,005			089 ± 05
<i>Literatur</i>							
[BfS01]	Kartoffeln	0,02 - 0,63	0,02 - 1,3			0,02 - 3,09	122 - 194
[BfS01]	Karotten	0,02 - 4,9	0,06 - 0,49			0,07 - 2,31	72 - 134
[BfS01]	übriges Gemüse	0,007 - 0,34	0,006 - 0,71			0,1 - 1,26	
[Mau89]	Kartoffeln	0,02	0,007 - 0,1				100
[Mau89]	Wurzel Gemüse allg.	0,008	0,01 - 0,2			0,03	130

die auf Grund der Verzehrsgewohnheiten die größte Anzahl an Daten vorliegen, bestehen bleibt. Für ^{228}Ra ist dem Autor lediglich eine Literaturquelle bekannt, in der die spezifische Aktivität von Gemüse untersucht wurde [Yu99]. Der dort veröffentlichte Wert von 0,15 Bq/kg stimmt liegt in derselben Größenordnung wie der am ZSR ermittelte Erwartungswert von 0,07 Bq/kg.

- Für ^{228}Th ist ebenfalls nur eine Literaturangabe bekannt [Fri89]. Die dort veröffentlichten Werte liegen unter den am ZSR bestimmten Werten (Abweichungen um ca. einen Faktor 3). Allerdings sind keine Informationen über die natürliche Schwankungsbreite der spezifischen Aktivität von ^{228}Th verfügbar. Zusätzlich ist die Anzahl der Messwerte oberhalb der Erkennungsgrenze mit vier so klein, so dass die Berechnung von Ersatzwerten fraglich ist (was im Übrigen auch für ^{228}Ra gilt). Dies drückt sich auch in der großen geometrischen Standardabweichung von 4,1 aus, so dass der am ZSR ermittelte Erwartungswert als recht unsicher angesehen werden kann.
- Einige Autoren veröffentlichten spezifische Aktivitäten von ^{238}U in Gemüse. Während am ZSR nur ein Messwert oberhalb der Erkennungsgrenze für ^{238}U ermittelt werden konnte (Karotten), sind auch in der Literatur kaum Angaben zu ^{235}U auffindig zu machen. Insgesamt liegen die meisten veröffentlichten Vergleichsergebnisse unter dem am ZSR bestimmten Wert. Allerdings fällt der ZSR-Wert in die Schwankungsbreite der in [Bfs01] und [Wic97] angegebenen spezifischen Aktivitäten. Anhand von einem Messwert sind repräsentative Aussagen zum Gehalt von ^{238}U jedoch sehr fraglich.
- Bezüglich ^{40}K kann von einer sehr guten Übereinstimmung der ermittelten Werte mit Literaturdaten gesprochen werden.

5.7.2 Blattgemüse

Insgesamt standen für Blattgemüse im Vergleich zu Wurzelgemüse mehr auswertbare Messergebnisse zur Verfügung. Eine Zusammenstellung der spezifischen Aktivitäten aufgeteilt in essbaren und nicht zum Verzehr geeigneten Gemüse findet man in Tabelle 5.12.

Dabei war die Konzentration von ^{40}K mit 110 Bq/kg bezogen auf das Feuchtgewicht etwa einhundert mal höher als die der anderen Nukliden, von denen die Konzentration des ^{210}Pb immerhin noch ungefähr viermal so groß war wie die der verbleibenden Nuklide. Höhere ^{210}Pb -Werte in Blattgemüse im Vergleich zu den anderen Produkten der ^{238}U -Zerfallsreihe lassen sich wiederum als Deposition des ^{210}Pb als Folgeprodukt des emanierten ^{222}Rn interpretieren. Die Unterscheidung in essbaren und nicht-essbaren Teil einer Pflanze bestand bei Blattgemüse im Wesentlichen aus der Trennung in nicht zum Verzehr geeignete Deckblätter und den darunter liegenden, jüngeren, und zum Verzehr bestimmten Blättern. Die Wurzeln einer Pflanze wurden verworfen, da

Tabelle 5.12: Statistische Auswertung der spezifischen Aktivität von Blattgemüse.

	²¹⁰ Pb	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th	²³⁸ U	²³⁵ U	⁴⁰ K
essbar							
N ^a	12	15	10	11	5	4	18
arithm. MW in Bq/kg	0,72	0,18	0,17	0,11	0,15	0,008	110
arithm. Stabw. in Bq/kg	0,72	0,16	0,15	0,13	0,16	0,010	56
geo. MW in Bq/kg	0,38	0,11	0,09	0,03	0,09	0,005	98
geo. Stabw.	3,4	3,3	3,5	5,8	2,6	2,6	1,6
EW (log) in Bq/kg ^b	0,80	0,22	0,20	0,16	0,15	0,008	110
nicht essbar							
N ^a	8	7	7	6	5	4	8
arithm. MW in Bq/kg	0,96	0,22	0,28	0,22	0,19	0,016	100
arithm. Stabw. in Bq/kg	0,48	0,20	0,20	0,25	0,14	0,009	23
geo. MW in Bq/kg	0,81	0,16	0,23	0,11	0,16	0,014	97
geo. Stabw.	2,0	2,5	1,8	3,3	1,8	1,6	1,3
EW (log) in Bq/kg ^b	1,03	0,24	0,28	0,23	0,18	0,016	100
Faktor nicht essbar / essbar							
arithm. MW	1,33	1,22	1,66	1,94	1,28	2,00	0,90
EW	1,29	1,08	1,40	1,43	1,27	2,00	0,91

^a Anzahl der Messwerte oberhalb der Erkennungsgrenze.

^b Erwartungswert bei angenommener logarithmischer Normalverteilung nach Gl. (5.4).

die Masse zur γ -spektrometrischen Bestimmung der Aktivität nicht ausreichte. Wie nach der so vorgenommenen Unterscheidung in essbaren und nicht essbaren Teil einer Pflanze zu erwarten war, unterscheiden sich die spezifischen Aktivitäten in den beiden Teilen nicht wesentlich. Der Quotient aus spezifischer Aktivität im nicht essbaren Teil und essbaren Teil ist in Tabelle 5.12 mit angegeben und schwankt für die verschiedene Nuklide um eins. In Tabelle 5.13 sind als Übersicht die einzelnen in dieser Arbeit ermittelten spezifischen Aktivitäten und Vergleichswerte aus [Bfs01] und [Mau89] angegeben. In Tabelle A.18 im Anhang auf Seite 229 sind analog zum Wurzelgemüse weitere in der Literatur zu findende Messergebnisse dargestellt.

Dazu ist folgendes anzumerken:

- Die höchsten Werte von ^{210}Pb befinden sich in Pflanzen mit großer Blattoberfläche wie Grünkohl, Wirsingkohl oder Mangold. Dabei liegen die spezifischen Aktivitäten von ^{210}Pb an der oberen Grenze der in der Literatur angegebene Schwankungsbreite. Lediglich in [Bfs01] und [Car95] wird von ähnlich hohen ^{210}Pb -Werte berichtet.
- Die Gehalte an ^{226}Ra liegen ebenfalls über den in der Literatur zu findenden durchschnittlichen spezifischen Aktivitäten. Allerdings befinden sie sich innerhalb der Schwankungsbreite der in [Bfs01], [Nal97] und [BMU94] für Deutschland dargelegten Werte und sind in guter Übereinstimmung mit [San02]. Noch wesentlich höhere spezifische Aktivitäten (Erhöhung um über einen Faktor 100 im Vergleich zu dieser Arbeit) werden in [GN03] erwähnt, wobei diese Untersuchungen auch in einem Gebiet stark erhöhter natürlicher Radioaktivität vorgenommen wurden (Ramsar, Iran). Bemerkenswerter Weise wurde der höchste ^{226}Ra Gehalt von allen untersuchten Blattgemüsen sowohl in [GN03] als auch in dieser Arbeit in Petersilie gefunden.
- Für ^{228}Ra standen mit [Rad96] und [Yu99] lediglich zwei Vergleichswerte aus der Literatur zur Verfügung. Diese befinden sich mit 0,15 Bq/kg in guter Übereinstimmung mit dem am ZSR durchschnittlich ermittelten Wert (0,20 Bq/kg).
- Der Erwartungswert der spezifischen Aktivität von ^{228}Th lag bei 0,16 Bq/kg. Die einzige dem Autor bekannte Vergleichsliteratur stellte dabei wie beim Wurzelgemüse [Fri89] dar. Die dort angegebenen Thorium-Konzentrationen liegen, ebenfalls wie beim Wurzelgemüse, deutlich unter den am ZSR ermittelten Werten. Allerdings kann in [Fri89] kaum eine Aussage über die Schwankungsbreite der spezifischen ^{228}Th -Aktivität in Pflanzen getroffen werden, da in der Regel jede Gemüsesorte nur einmal, maximal jedoch an zwei Standorten gemessen wurde. Im Vergleich zu anderen Gemüsearten findet FRINDIK die höchsten Konzentrationen von ^{228}Th in Petersilie, was mit denen in dieser Arbeit berechneten Werten in guter Übereinstimmung steht. Dabei wird auf den bedeutenden Einfluss der Probenvorbereitung hingewiesen: Messungen an Petersilie, die „haushaltsüblich“ gewaschen wurde, ergaben eine um 60 % höhere Aktivität

Tabelle 5.13: Zusammenfassung der spezifischen Aktivitäten für natürliche Radionuklide in Bq/kg bezogen auf das Feuchtgewicht in Blattgemüse im Vergleich mit der Literatur. Fettgedruckte Werte lagen oberhalb der Nachweisgrenze.

		²¹⁰ Pb	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th	²³⁸ U	²³⁵ U	⁴⁰ K	
ZSR	N	12	15	10	11	5	4	18	
	EW (log) in Bq/kg geo. Stabw.	0,80 3,4	0,22 3,3	0,20 3,5	0,16 5,8	0,15 2,6	0,008 2,6	110 1,6	
Ort	Art								
Gründerich	Blumenkohl	0,69 ± 0,28	0,26 ± 0,08					242 ± 13	
Jeinsen	Blumenkohl		0,13 ± 0,02					062 ± 03	
Jeinsen	Brokoli							062 ± 03	
Jeinsen	Grünkohl	1,22 ± 0,11	0,29 ± 0,01	0,23 ± 0,02	0,27 ± 0,02	0,21 ± 0,06	0,008 ± 0,003	106 ± 05	
Gründerich	Kopfsalat	0,41 ± 0,08	0,15 ± 0,01	0,11 ± 0,04	0,06 ± 0,01			058 ± 03	
Jeinsen	Kopfsalat	1,00 ± 0,13	0,46 ± 0,02	0,45 ± 0,04	0,45 ± 0,05	0,46 ± 0,13	0,03 ± 0,01	096 ± 05	
Gründerich	Lauch	0,50 ± 0,12	0,20 ± 0,03	0,32 ± 0,08	0,18 ± 0,02	0,30 ± 0,12		075 ± 04	
Jeinsen	Lauch			0,17 ± 0,08			0,04 ± 0,01	053 ± 03	
Gründerich	Mangold	1,91 ± 0,19	0,07 ± 0,02					145 ± 07	
Jeinsen	Mangold	0,77 ± 0,14	0,29 ± 0,02	0,24 ± 0,05	0,23 ± 0,02			181 ± 09	
Gründerich	Petersilie	1,45 ± 0,17	0,30 ± 0,05	0,30 ± 0,08	0,18 ± 0,03			119 ± 06	
Jeinsen	Petersilie	1,74 ± 0,24	0,61 ± 0,07	0,44 ± 0,17	0,29 ± 0,04	0,60 ± 0,26		216 ± 11	
Gümmer	Rhabarber	0,09 ± 0,04						053 ± 03	
Jeinsen	Rosenkohl	0,10 ± 0,05	0,02 ± 0,01		0,006 ± 0,004		0,006 ± 0,003	129 ± 07	
Gründerich	Weißkohl		0,20 ± 0,05					065 ± 04	
Jeinsen	Weißkohl		0,07 ± 0,03	0,14 ± 0,04	0,07 ± 0,01			078 ± 04	
Gründerich	Wirsingkohl	2,30 ± 0,17	0,17 ± 0,03	0,38 ± 0,11	0,18 ± 0,02	0,21 ± 0,10		124 ± 06	
Jeinsen	Wirsingkohl		0,05 ± 0,01		0,02 ± 0,01			116 ± 06	
Literatur									
[BFS01]	Kohl	0,004 - 1,28	0,01 - 0,68			0,02 - 0,75		59 - 196	
[BFS01]	übriges Gemüse	0,007 - 0,34	0,006 - 0,71			0,1 - 1,26			
[Mau89]	„green vegetables“	0,03	0,01 - 0,06					40 - 240	

(die sehr gut mit der des ZSR vergleichbar ist) als eine besonders gründlich gereinigte Petersilien-Probe. Diese im Vergleich erhöhten Konzentrationen werden in [Fri89] auf Resuspension zurückgeführt. Dies würde auch erklären, dass ^{228}Th und auch ^{238}U in dieser Arbeit hauptsächlich in den Pflanzen nachweisbar war, die entweder bodennah mit einer großen Blattoberfläche wachsen (Kopfsalat, Lauch, Petersilie) oder sich durch besonders lange Standzeiten auszeichnen (Grünkohl). Desweiteren weisen die am ZSR ermittelten Daten eine große geometrische Standardabweichung von 3,7 (experimentell) bzw. 5,8 (nach HELSEL-COHN-Verfahren) auf, so dass einige einzelne Messdaten in ihrer Größenordnung durchaus mit den in [Fri89] angegebenen Werten vergleichbar sind (z.B. Kopfsalat). Diese hohe geometrische Standardabweichung resultiert daraus, dass mit einem R^2 -Wert von 0,85 im QQ-Plot die Annahme der logarithmischen Normalverteilung nur bedingt verifiziert werden kann. Bei genauerer Betrachtung der Verteilung (siehe Abbildung 5.13) erkennt man, dass wahrscheinlich eine bimodale Verteilung vorliegt, die zu einer großen geometrischen Standardabweichung führt.

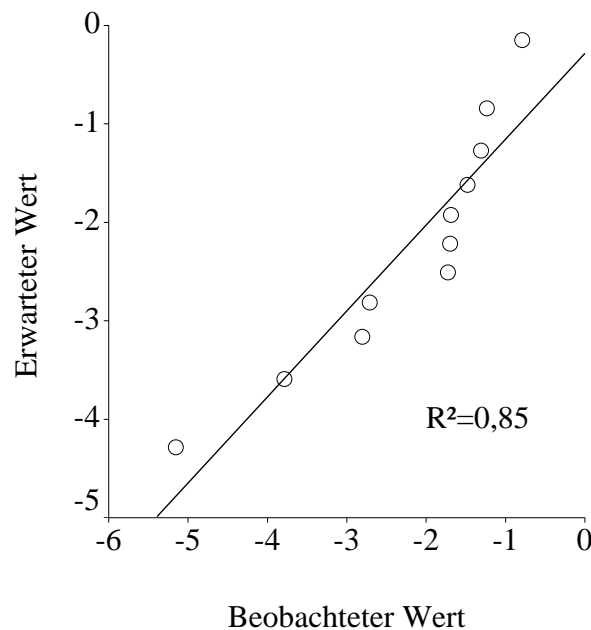


Abbildung 5.13: QQ-Plot für die ^{228}Th -Aktivität in Blattgemüse.

- Für ^{238}U standen lediglich fünf Messwerte oberhalb der Erkennungsgrenzen zur Verfügung. Während einige Autoren geringere ^{238}U Konzentrationen beschreiben, liegt der am ZSR ermittelte Erwartungswert der spezifischen Aktivität innerhalb der für Deutschland in [Bfs01], [Nal97] und [BMU94] angegebenen Schwankungsbreite. Allerdings ist die Aussagekraft eines auf lediglich fünf Messwerten beruhenden Erwartungswertes recht limitiert.

Tabelle 5.14: Spezifische Aktivitäten von Him- und Brombeeren im Vergleich. Alle Angaben in Bq/kg und bezogen auf das Feuchtgewicht. Werte oberhalb der Nachweisgrenze sind fettgedruckt.

Ort	Art	^{210}Pb	^{226}Ra	^{228}Th	^{238}U	^{40}K
Gleidingen	Himbeeren	0,19 ± 0,03	0,04 ± 0,01	0,008 ± 0,004		36 ± 2
Gleidingen	Brombeeren	0,14 ± 0,03	0,03 ± 0,01			47 ± 2
<i>Literatur</i>						
[BfS01]	Obst	0,02 - 2,29	0,01 - 2,12		0,02 - 2,89	23 - 164
[BfS01]	Beerenobst	1,2 - 14,8	0,03 - 5,38		0,06 - 1,8	107 - 190
[Mau89]	fresh fruit	0,02	0,01-0,02	0,02	0,03	50
[Shi97]	Cranberry				0,45 ± 0,01	22 ± 1
[Fis87]	fresh fruit		0,05		0,02	
[Car01b]	Obst	0,10				
[Chi00]	Himbeere					81

- Die ^{40}K -Gehalte in unterschiedlichen Proben schwanken mit einer geometrischen Standardabweichung von 1,6 doch recht erheblich. Insgesamt zeigen der berechnete Erwartungswert der spezifischen Aktivität mit 110 Bq/kg und auch die Schwankungsbreite der Einzelmesswerte eine gute Übereinstimmung mit den in der Literatur angegebenen Werten.

5.8 Beeren und Pilze

5.8.1 Beeren

In dieser Arbeit konnten lediglich Himbeeren und Brombeeren (Standort „Gleidingen“) untersucht werden. Die Ergebnisse dieser Analysen sind zusammen mit Angaben aus der Literatur in Tabelle 5.14 zu finden.

Dabei können die hohen Werte für ^{210}Pb und ^{40}K aus [BfS01] speziell für Beerenobst nicht bestätigt werden. Während die Messergebnisse des ZSR gut innerhalb der in [BfS01] angegebenen Schwankungsbreite für Obst liegen, werden speziell für Beerenobst deutlich höhere Werte angegeben. Allerdings liegen alle anderen in der Literatur verfügbaren Angaben deutlich unter denn von [BfS01] für Beeren, so dass mit dieser Ausnahme von einer vernünftigen Übereinstimmung mit Literaturdaten gesprochen

werden kann. Während sowohl ^{235}U als auch ^{238}U nicht nachgewiesen werden konnte, existiert für ^{228}Th ein Messwert oberhalb der Erkennungsgrenzen, der unter dem in [Mau89] angegebenen Vergleichswert liegt. Ein signifikanter Unterschied bezüglich der Gehalte an natürlichen Radionukliden zwischen Brom- und Himbeeren konnte nicht festgestellt werden.

5.8.2 Pilze

Zur Untersuchung von natürlichen Radionukliden in Pilzen standen drei Mischproben unterschiedlicher Pilzarten, nämlich von Maronen-Röhrlingen, Schirmlingen und Violetta-Ritterlingen, aus einem Waldgebiet nahe Reinhausen zur Verfügung (siehe Tabelle A.14). Pilze sind für die Akkumulation von ^{137}Cs bekannt, allerdings sind Angaben über die Aktivität von natürlichen Radionukliden eher selten. Messtechnisch kann bei einer sehr hohen ^{137}Cs -Konzentration der dadurch erzeugte Compton-Untergrund das Analysieren von Peaks unterhalb der dazu gehörigen Compton-Kante erschweren oder auch verhindern. Die in dieser Arbeit ermittelten spezifischen Aktivitäten können Tabelle 5.15 entnommen werden. Während sowohl für ^{210}Pb als auch für ^{40}K alle Messwerte oberhalb der Nachweisgrenze lagen, konnten für ^{228}Th , ^{238}U , ^{228}Ra und ^{235}U nur ein bzw. zwei Messwerte oberhalb der Erkennungsgrenze gefunden werden. ^{226}Ra konnte nicht nachgewiesen werden. Insgesamt zeigen die ermittelten Daten eine gute Übereinstimmung mit den in [BfS01] und [Kir98] angegebenen Werten. Sowohl die ^{210}Pb - als auch die ^{238}U - und ^{40}K -Gehalte liegen dabei im unteren Bereich der in [BfS01] angegebenen Schwankungsbreite.

5.9 Gesamtnahrung

Gesamtnahrung konnte, wie oben beschrieben, an drei Wochen mittags täglich von der Hauptmensa der Universität Hannover bezogen werden. Die genaue Zusammensetzung kann dabei ebenso wie die Bestandteile eines repräsentativen Frühstücks und Abendessens Tabelle A.1 im Anhang entnommen werden. Die Ergebnisse der γ -spektrometrischen Untersuchung sind in Tabelle 5.16 aufgeführt.

Dort findet man den Erwartungswert und die geometrische Standardabweichung der spezifischen Aktivitäten im Mittagessen sowie die Resultate der Einzelmessungen von Frühstück und Abendessen. Insgesamt zeigt sich eine recht gute Übereinstimmung mit den Literaturwerten.

- Der in dieser Arbeit nach der Berechnung der Ersatzwerte ermittelte Erwartungswert liegt innerhalb der in [BfS01] angegebenen Schwankungsbreite. Aber auch andere Veröffentlichungen wie [Shu94], [Lal80] oder [PF97] bestätigen den in dieser Arbeit ermittelten Wert. Die spezifischen ^{210}Pb Aktivitäten im Frühstück

Tabelle 5.15: Aktivitäten von Pilzen im Vergleich. Alle Angaben in Bq/kg und bezogen auf das Feuchtgewicht. Werte oberhalb der Nachweisgrenze sind fettgedruckt.

Ort	Art	^{210}Pb	^{226}Ra	^{228}Ra	^{228}Th	^{238}U	^{235}U	^{40}K
Reinhausen	Maronen-Röhrlinge	0,17 ± 0,03		0,04 ± 0,02	0,04 ± 0,01	0,07 ± 0,03		61 ± 03
Reinhausen	Violetta Ritterling	0,96 ± 0,27			0,11 ± 0,04	0,55 ± 0,31	0,06 ± 0,03	71 ± 04
Reinhausen	Schirmlinge	0,72 ± 0,04						28 ± 01
	MW. ^a	0,62		0,04	0,07	0,31	0,06	53
	Stabw. ^b	0,41			0,05	0,34		22
<i>Literatur</i>								
[BFS01]	Pilze	0,1 - 4,1	0,01 - 16					8 - 233
[Kir98]	Pilze ^c	0,4 - 3,6	1,0 - 8,5					

^a arithmetischer Mittelwert der drei Proben.

^b arithmetische Standardabweichung der drei Proben.

^c Mittelwert diverser Pilzsorten.

Tabelle 5.16: Spezifische Aktivitäten der untersuchten Gesamtnahrung im Vergleich. Alle Angaben in Bq/kg und bezogen auf das Feuchtgewicht. Werte oberhalb der Nachweisgrenze sind fettgedruckt.

Datum	^{210}Pb	^{226}Ra	^{228}Ra	^{228}Th	^{40}K
Hauptmensa					
08. Apr. 02		0,12 ± 0,02		0,02 ± 0,01	63 ± 03
09. Apr. 02		0,04 ± 0,01		0,02 ± 0,01	56 ± 03
10. Apr. 02	0,12 ± 0,06	0,07 ± 0,01		0,02 ± 0,01	67 ± 03
11. Apr. 02		0,13 ± 0,02	0,09 ± 0,02	0,09 ± 0,01	57 ± 03
12. Apr. 02		0,02 ± 0,01		0,01 ± 0,01	78 ± 04
12. Aug. 02		0,05 ± 0,02			64 ± 03
13. Aug. 02		0,04 ± 0,02			95 ± 05
14. Aug. 02					56 ± 03
15. Aug. 02			0,07 ± 0,03		50 ± 03
16. Aug. 02	0,14 ± 0,06	0,06 ± 0,01	0,06 ± 0,02	0,02 ± 0,01	51 ± 03
11. Nov. 02		0,17 ± 0,02		0,02 ± 0,01	54 ± 03
12. Nov. 02	0,17 ± 0,06	0,03 ± 0,01	0,08 ± 0,02	0,07 ± 0,02	77 ± 04
13. Nov. 02		0,09 ± 0,01			57 ± 03
14. Nov. 02	0,19 ± 0,08	0,04 ± 0,01		0,01 ± 0,01	65 ± 03
15. Nov. 02			0,08 ± 0,03		57 ± 03
EW (log.)^a	0,10	0,06	0,05	0,02	63
geo. Stabw.^b	1,4	2,2	1,5	2,2	1,2
Frühstück					
	0,21 ± 0,10	0,04 ± 0,01			55 ± 03
Abendessen					
	0,11 ± 0,05	0,08 ± 0,01	0,08 ± 0,04	0,01 ± 0,01	62 ± 03
Literatur					
[BfS01]	0,01 - 0,12	0,01 - 0,04	0,02 - 0,07		
[Shu94]	0,08	0,06		0,08	51
[Shi97]					85 ^c
[Lal80]	0,07				
[PF97]	0,12	0,08			

^a Erwartungswert bei angenommener logarithmischer Normalverteilung nach Anwendung des HELSEL-COHN-Algorithmus.

^b geometrische Standardabweichung.

^c angegebene geometrische Standardabweichung von 1,6.

und Abendessen liegen etwas höher, spiegeln aber wiederum nur Einzelmessungen wider.

- Der Erwartungswert der spezifischen Aktivität von ^{226}Ra liegt oberhalb der in [BfS01] angegebenen Schwankungsbreite. Allerdings stimmt er sehr gut mit den in [PF97] und [Shu94] veröffentlichten Vergleichsdaten überein, was auch für das Abendessen und das Frühstück zutrifft.
- ^{228}Ra konnte lediglich in Mensaessen und im Abendessen, nicht aber im Frühstück nachgewiesen werden. Der Erwartungswert für ^{228}Ra im Mittagessen der Hauptmensa liegt innerhalb der in [BfS01] angegebenen Schwankungsbreite und entspricht in etwa dem von ^{226}Ra .
- Die Konzentration von ^{228}Th lag etwas unter den in [Shu94] genannten Werten und war niedriger als die spezifische Aktivität von ^{228}Ra .
- Da für ^{235}U und ^{238}U nur je ein Wert oberhalb der Erkennungsgrenze ermittelt werden konnte, sind diese Nuklide in Tabelle 5.16 nicht aufgeführt.
- Für ^{40}K liegen alle Messergebnisse oberhalb der Nachweisgrenze. Die dabei ermittelten spezifischen Aktivitäten von ^{40}K befinden sich zwischen den in [Shu94] und den in [Shi97] angegebenen Werten. Die in dieser Arbeit ermittelte geometrische Standardabweichung von 1,2 liegt unter der in [Shi97] veröffentlichten geometrischen Standardabweichung von 1,6.

5.10 Trinkwasser

Trinkwässer konnten im Rahmen dieser Arbeit nicht untersucht werden. Um bei der Berechnung der Strahlenexposition in Kapitel 7 diesen Pfad trotzdem modellieren zu können, wurden [BfS01] die in Tabelle 5.17 dargestellten Werte entnommen.

Allerdings stammen diese Daten mit Ausnahme von ^{226}Ra , ^{222}Rn und ^{40}K aus Gebieten erhöhter natürlicher Radioaktivität, so dass die eigentlichen Messwerte nur als eingeschränkt repräsentativ gelten können. In Spalte 2 der Tabelle 5.17 sind daher in Klammern Schätzwerte für den Bereich nicht erhöhter natürlicher Radioaktivität angegeben.

Berücksichtigt wurden dabei nach [BfS01] nur so genannte Reinwässer und Wässer, die ohne weitere Aufbereitung als Trinkwasser genutzt werden können. Man erkennt, dass sich die Radionuklide aus der ^{238}U und ^{232}Th -Zerfallsreihen nicht im Gleichgewicht befinden, was auf den unterschiedlichen chemischen Charakter der einzelnen Zerfallsprodukte zurückzuführen ist [BfS01].

Tabelle 5.17: Spezifische Aktivitäten von Trinkwasser aus [BfS01] in mBq/l.

Radionuklid	Medianwert	Wertebereich ^a
²³⁸ U	16 (5) ^b	<0,5 - 210
²²⁶ Ra	5	<0,5 - 32
²²⁶ Ra (Mineralwasser)	23 ^b	<0,5 -310
²²⁸ Th	1 (0,4) ^b	<0,2 - 6
²²⁸ Ra	12 (3) ^b	<0,5 - 23
²²² Rn	5900	<1000 - 160 000
²¹⁰ Pb	7 (1,5) ^b	<0,2 - 170
²¹⁰ Po	2 (0,5) ^b	<0,1 - 40
⁴⁰ K	70	3 - 800
⁴⁰ K (Mineralwasser)	1500	30 - 16 000

^a Die oberen Grenzen für die angegebenen Wertebereiche werden durch die 95 %-Perzentile gebildet.

^b Bei den in Klammern angegebenen Werten handelt es sich um Schätzwerte für Gegenden nicht erhöhter natürlicher Radioaktivität, die sich aus dem Verhältnis der Werte aus Gegenden erhöhter Radioaktivität (Erzgebirge/Vogtland) zum Gesamtgebiet ergeben.

5.11 Zusammenfassung

Ein Überblick über die in dieser Arbeit berechneten spezifischen Aktivitäten in den unterschiedlichen Probearten findet man in Tabelle 5.18.

Zusammenfassend kann folgendes festgestellt werden:

- In den untersuchten Kategorien mit einer hinreichenden Anzahl von Messwerten oberhalb der Erkennungsgrenze (Weide- und Wiesenbewuchs, Getreide, Wurzelgemüse, Blattgemüse) kann in der Regel für fast alle Radionuklide von einer logarithmischen Normalverteilung ausgegangen werden. Damit ist der beste Schätzer des Erwartungswertes der spezifischen Aktivität durch Gleichung (5.4) gegeben.
- Insgesamt zeigt sich eine gute Übereinstimmung der in dieser Arbeit ermittelten spezifischen Aktivitäten mit Literaturangaben. Abweichungen von den in der Literatur zitierten Werten wurden in der Regel bei Nukliden mit einer geringen Anzahl von Messwerten oberhalb der Erkennungsgrenze festgestellt (meistens ²³⁵U oder ²³⁸U). Dies ist sehr wahrscheinlich darin begründet, dass die Extrapolation der Verteilung in den Bereich unterhalb der Erkennungsgrenze zur Bestimmung eines vollständigen Satzes an Messwerten immer dann als problematisch anzu-

Tabelle 5.18: Zusammenfassung der spezifischen Aktivität in Bq/kg. Für Felder ohne Eintrag konnte kein Messergebnis oberhalb der Erkennungsgrenzen ermittelt werden.

Art	²¹⁰ Pb	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th	²³⁸ U	²³⁵ U	⁴⁰ K
Weide- und Wiesenbewuchs ^a	<i>EW</i> ^b	13,0	0,65	0,83	0,60	0,34	0,05
	geo. Stabw. ^c	2,3	2,2	2,1	2,2	2,0	2,0
Getreidekorn ^d	<i>EW</i>	0,72	0,11	0,17	0,08	0,007	135
	geo. Stabw.	3,1	1,9	1,7	2,2	2,5	1,5
Wurzelgemüse ^d	<i>EW</i>	0,15 ^e	0,07	0,07	0,02	0,11 ^e	0,008
	geo. Stabw.		2,4	3,7	4,1		1,4
Blattgemüse ^d	<i>EW</i>	0,80	0,22	0,20	0,16	0,15	0,008
	geo. Stabw.	3,4	3,3	3,5	5,8	2,6	2,6
Beeren ^d	<i>EW</i>	0,17 ^f	0,04 ^f		0,01 ^e		42 ^f
	geo. Stabw.	1,3	1,5				1,2
Pilze ^d	<i>EW</i>	0,76		0,04 ^e	0,09 ^f	0,57 ^f	56
	geo. Stabw.	2,5			2,1	4,4	1,6
Fleisch ^d	<i>EW</i>						101
	geo. Stabw.						1,2
Milch ^d	<i>EW</i>		0,11				46
	geo. Stabw.		1,4				1,1
Gesamtnahrung ^{d, g}	<i>EW</i>	0,10	0,06	0,05	0,02	0,09 ^e	0,02 ^e
	geo. Stabw.	1,4	2,2	1,5	2,2		63

^a bezogen auf das Trockengewicht.
^b Erwartungswert bei angenommener logarithmischer Normalverteilung.
^c geometrische Standardabweichung.
^d bezogen auf das Feuchtgewicht.
^e lediglich ein Messwert oberhalb der Erkennungsgrenze.
^f lediglich zwei Messwerte oberhalb der Erkennungsgrenze.
^g nur Mensassess. kein Frühstück und Abendbrot.

sehen ist, wenn entweder die Anzahl der Messergebnisse oberhalb der Erkennungsgrenze deutlich kleiner ist als die unterhalb derselben (also $n - k \ll k$ gilt) oder wenn die Anzahl der Messwerte oberhalb der Erkennungsgrenze insgesamt gering ist (also $n - k < 10$ gilt). Die gesamte Anzahl der Messwerte für ^{238}U und ^{235}U oberhalb der Erkennungs- oder Nachweisgrenze ist gering, so dass die Eignung der γ -Spektrometrie für die Bestimmung der spezifischen Aktivität in Lebensmitteln für diese beiden Nuklide in Frage gestellt werden kann.

- Die höchsten spezifischen Aktivitäten findet man in Weide- und Wiesenbewuchs. Während die Gehalte der Radionuklide aus den Zerfallsreihen im Getreidekorn in etwa denen der essbaren Teile des Wurzelgemüses gleichen, entspricht die spezifische Aktivität dieser Nuklide im Getreidestroh eher der im Weide- und Wiesenbewuchs. Betrachtet man den zum Verzehr geeigneten Teil von Wurzel- und Blattgemüse im Vergleich, so weist Blattgemüse eine zwei bis dreimal größere spezifische Aktivität der Mitglieder der natürlichen Zerfallsreihen auf. Besonders hervorzuheben ist dabei das ^{210}Pb , dessen Aktivität in Blattgemüse im Vergleich zu anderen Radionukliden stark erhöht war (Faktor von vier bis fünf im Vergleich zu ^{226}Ra). Dies lässt auf eine verstärkte Deposition von ^{210}Pb auf der Blattoberfläche im Vergleich zur Aufnahme über die Wurzeln schließen.
- Bei Wurzelgemüse liegt die spezifische Aktivität in dem essbaren Teil der Pflanze, also in der Regel in der Wurzel selbst (im Fall der Kartoffel in der Knolle) deutlich unter der in den nicht zum Verzehr geeigneten Pflanzenteilen (meistens Blätter).
- Die Schwankungsbreite der spezifischen Aktivität in den untersuchten Proben ist auch bei vergleichbaren klimatischen und geologischen Bedingungen recht groß. Die in dieser Arbeit ermittelten geometrischen Standardabweichungen der Werte oberhalb der Erkennungsgrenzen schwanken um den Faktor zwei. Zieht man Werte aus der Literatur hinzu, so beträgt die Schwankungsbreite auch unter vergleichbaren Bedingungen in der Regel ein bis zwei Größenordnungen, in Gegenden erhöhter natürlicher Radioaktivität auch noch deutlich mehr. Durch das HELSEL-COHN-Verfahren erweiterte Datensätze besitzen in der Regel eine größere geometrische Standardabweichung als die signifikanten Messwerte selbst. Dies ist eine Folge des Extrapolationsverfahrens und spiegelt nicht unbedingt die tatsächliche Schwankungsbreite der spezifischen Aktivität wider.
- Der Probenaufbereitung kann, vor allem für Thorium und Uran, eine besondere Rolle zukommen, wenn der entscheidende Transferprozess durch Resuspension erfolgt. Unklar ist daher auch, in wie weit die Zubereitung von Mahlzeiten und die damit einhergehende Veränderungen der spezifischen Aktivität in dem schlussendlich verzehrten Lebensmittel Einfluss auf die effektive Dosis durch Ingestion haben. Diese Frage konnte im Rahmen dieser Arbeit nicht geklärt werden, so dass hier weiterer Forschungsbedarf gesehen wird. Allerdings kann [Jac89] ein Faktor, der die Reduzierung der spezifischen Aktivität durch

Tabelle 5.19: Verbleibender Aktivitätsanteil nach der Zubereitung, aus [Jac89].

Nahrungsmittel	verbleibender Aktivitätsanteil nach der Zubereitung
Getreide	0,75
Kartoffeln	0,90
Blattgemüse ^a	0,75
Wurzelgemüse	0,90
Kohlarten	0,90
Milch	1,00
Rindfleisch	1,00

^a Hier wurde das Blattgemüse als Ganzes betrachtet. Der Faktor spiegelt also im Wesentlichen die Reduktion der Aktivität durch das Entfernen der äußeren Blätter wider.

die Vor- und Zubereitung beschreibt, entnommen werden. Dieser Faktor, der z.B. das Schälen von Kartoffeln vor dem Verzehr oder die Entfernung der äußeren Kornsichten bei der Herstellung von Mehl berücksichtigt, ist in Tabelle 5.19 zu finden. Er ist allerdings eher als Anhaltspunkt für die Größenordnung des Effekts anzusehen, da er keine nuklidspezifische Differenzierung beinhaltet. Da allein dieser Faktor je nach Lebensmittel und Nuklid mit einer erheblichen Unsicherheit behaftet ist, sollte bei der Abschätzung der Dosis durch die Ingestion von Lebensmitteln auf Gesamtnahrung zurückgegriffen werden. Darauf wird noch ausführlicher in Kapitel 7 eingegangen werden.

6 Transfer von natürlichen Radionukliden

6.1 Allgemeines

Für Radionuklide wird im allgemeinen ein linearer Zusammenhang zwischen der Konzentration C_i^p eines Radionuklides i in einer Pflanze oder eines Teil einer Pflanze und der Konzentration C_i^s desselben Radionuklides i im Wurzelbereich des Bodens angenommen, d.h.

$$C_i^p = a + TF_i \cdot C_i^s. \quad (6.1)$$

Setzt man nun $a = 0$, so wird der Proportionalitätsfaktor TF_i in Gleichung (6.1) als Transferfaktor oder, genauer, als Boden-Pflanzen-Transferfaktor (engl. „soil-to-plant transfer factor“, „concentration factor“ oder auch „concentration ratio“) bezeichnet und ist definiert als

$$TF_i = \frac{\text{Aktivitätskonzentration des Nuklides } i \text{ in Bq / kg der Pflanze}}{\text{Aktivitätskonzentration des Nuklides } i \text{ in Bq / kg im Boden}}. \quad (6.2)$$

Diese in [Ehl02] gegebene Definition kann auf beliebige Kompartimente erweitert werden, so dass auch der Transfer von Radionukliden in Fleisch oder Milch beschrieben werden kann. Fasst man dabei mehrere Transferfaktoren zu einem zusammen, so nennt man diesen „aggregierter“ Transferfaktor. Eine Folgerung aus diesem Konzept des Transfers besteht darin, dass jede Änderung der Konzentration in einem Kompartiment eine proportionale Änderung im Folgekompartiment bewirkt.

Dabei ist offen, in wie weit dieses Modell universell anwendbar ist. Ein Grund dafür besteht darin, dass Organismen in der Lage sind, den Haushalt an essentiellen Spurenelementen aktiv zu regulieren, so dass Schwankungen der Konzentration eines Elementes im Boden nicht notwendigerweise linear proportional auf die Pflanze übertragen werden [Wir85]. Dabei unterscheidet man in der Botanik zwischen für Organismen in Mengen über 20 mg pro Liter Nährlösung unbedingt notwendigen Elementen, den so genannten Makronährelemente, und Stoffen, die in deutlich geringeren Mengen ebenfalls unentbehrlich sind, den so genannten essentiellen Spurenelementen oder Mikronährelementen. Zu ersteren zählt man C, O, H, N, S, P, K, Ca, Mg und Fe, wobei mit Eisen der Übergang zu den Spurenelementen wie Mn, B, Zn, Cu, Mo und Cl gegeben ist [Str91]. Dabei können von den Makronährelementen mit Ausnahme von

C, O und H die sieben letzten, also auch K, ausschließlich als Ionen im Nährmedium aufgenommen werden. Des Weiteren besteht die Möglichkeit, dass nicht essentielle Spurenelemente sich wie solche verhalten, da sie z.B. auf Grund ähnlicher chemischer Eigenschaften vom Organismus an Stelle der essentiellen Stoffe eingebaut oder aufgenommen werden [MA97]. Allgemein kann davon ausgegangen werden, dass der Transfer für nicht-essentielle Elemente über weite Größenordnungen unabhängig von der Konzentration im Boden ist. Nimmt jedoch die Konzentrationen von essentiellen Elementen im Boden stark ab, so kann dies zu einer Erhöhung des Transfers führen, da, wie oben geschildert, die Pflanze bestrebt ist, den Nährstoffhaushalt zu regulieren. Andererseits besteht die Möglichkeit, dass ab sehr großen Konzentrationen im Boden die unregelmäßige Aufnahme eines Nährstoffes für die Pflanze toxisch sein könnte und somit zu Vergiftung oder Tod der Pflanze führt [She85]. Diese Zusammenhänge sind in Abb. 6.1 dargestellt.

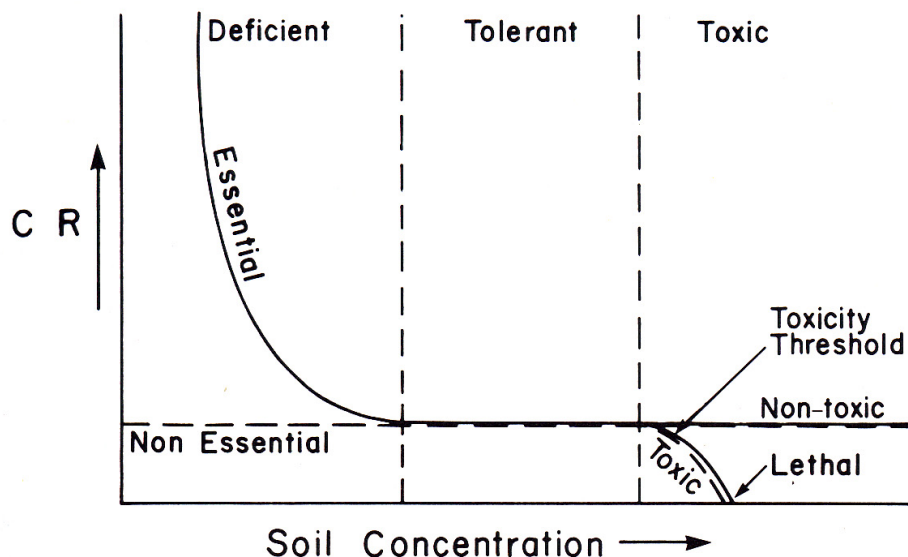


Abbildung 6.1: Hypothetischer Verlauf des TF (hier mit CR bezeichnet) im Verhältnis zur Konzentration von sowohl essentiellen als auch nicht-essentiellen Elementen von einer Defizit- bis zu einer toxischen Konzentration (entnommen aus [She85]).

SHEPPARD ET. AL zweifeln in [She88] auf Grund von Ergebnissen aus Lysimeter-Versuchen die Linearität des Transferfaktors u.a. für Uran stark an, wobei allerdings die Übertragbarkeit von Labor-Versuchen auf Freilandverhältnisse, in denen die Zeiträume entscheidend größer und die Nuklidkonzentrationen um Größenordnungen kleiner sind, mehr als fraglich ist. Dies wird durch die in [Lin89] getroffene Aussage bestätigt, dass Transferfaktoren für Freilandverhältnisse in der Regel um eine Größenordnung über denen unter Laborbedingungen liegen, da Resuspension und nasse Deposition im Labor ausgeschlossen werden können. Als kontroverses Beispiel mag hier

der Transfer von ^{226}Ra dienen: So wird in [Bun99] die Linearität des Transfer von ^{226}Ra bezweifelt, da auf Boden, der mit ^{226}Ra -haltiger Schlacke angereichert wurde, ein sinkender Transferfaktor beobachtet wurde. Unterstrichen wird diese Aussage durch [GN03], wo relativ geringe Transferfaktoren für ein Gebiet mit hoher natürlicher Radioaktivität (Ramsar im Iran) veröffentlicht wurden. Und auch in [Ham01] wird auf die Abhängigkeit des Transferfaktors von der Gesamtaktivität des ^{226}Ra im Boden hingewiesen. Hingegen berichten MADRUGA ET AL. in [Mad01] von Untersuchungen auf dem Gelände einer ehemaligen Uranmine bezüglich des Transfers in Bäume und Büsche, dass mit sinkendem ^{226}Ra -Gehalt der Transferfaktor Boden-Bewuchs abnimmt und bei höheren Gehalten im Boden relativ konstant bleibt. Schlussendlich wurde die Gültigkeit der Linearität des Transferfaktors von ^{226}Ra von RODRÍGUEZ ET AL. in [Rod02] nur dann bestätigt, wenn über weite Bereiche des Gehaltes von ^{226}Ra im Boden gemittelt wird. Aber auch für andere Nuklide wird die Linearität des Transfers in Frage gestellt. So wird in einer auf dem ehemaligen Gelände einer Uranmine durchgeführten Studie in [Mad01] und in [Mad02] darauf hingewiesen, dass der Transferfaktor für ^{210}Pb keinesfalls als konstant angesehen werden kann. Allerdings nähert er sich für Aktivitäten oberhalb von 1 Bq/g im Boden einer linearen Funktion in guter Übereinstimmung an [Mad02]. Ähnliches wird in [She85] beschrieben, wo eine Abhängigkeit des Uran-Transfers vom Gehalt im Boden für Konzentrationen unter ungefähr 20 μg Uran pro g Boden festgestellt wurde, wohingegen bei Konzentrationen oberhalb von ungefähr 20 μg Uran pro g Boden die Linearität des Transfers als gegeben angesehen werden kann.

Aus diesen eben genannten Gründen sind von der linearen Hypothese abweichende Modelle erarbeitet worden. So wird in [MA97] für Mitglieder der Uran-Radium-Zerfallsreihe beim Transfer Boden-Schlickgras einen Zusammenhang der Form

$$C_i^p = a(C_i^s)^b \quad (6.3)$$

oder, anders ausgedrückt,

$$TF_i = a(C_i^s)^{b-1} \quad (6.4)$$

entwickelt, der im Spezialfall $b = 1$ in eine lineare Funktion übergeht. Dieselbe Funktion wurde auch in [Tra83], [Bet88] und [Sim02b] als Alternative zu Gleichung (6.1) vorgeschlagen, wobei in [Bet88] und [Sim02b] für b deutlich von 1 abweichende Werte gefunden wurden. Deshalb warnen SIMON ET AL. in [Sim02b] auch ausdrücklich vor dem unreflektierten Gebrauch von Gleichung (6.1) vor allem für ^{40}K und ^{137}Cs .

Ein ähnliches Modell wie in Gleichung (6.4) wird in [She85] beschrieben, wobei dort für nicht essentielle Spurenelemente der Zusammenhang $C_i^p = a + bC_i^s$ angenommen wird. Mit Gleichung (6.2) folgt dann

$$TF_i = \frac{C_i^p}{C_i^s} = \frac{a + bC_i^s}{C_i^s} = \frac{a}{C_i^s} + b. \quad (6.5)$$

Für $a \neq 0$ folgt also, dass der Transferfaktor von der Konzentration des Nuklides i im Boden abhängt.

SIMON und IBRAHIM empfehlen hingegen in [Sim87] einen exponentiellen Abfall des Transferfaktors Boden-Pflanze mit

$$TF_i = \frac{f_1}{C_i^s} \left(1 - e^{-f_2 C_i^s}\right) + f_3, \quad (6.6)$$

wobei f_1, f_2 und f_3 numerisch zu bestimmende Konstante sind. Dabei erreicht die Konzentration des Radionuclides i in der Pflanze bei steigendem Gehalt desselben Radionuclides im Boden eine Sättigung, die exponentiell angenähert wird, was im groben Verlauf der Idee von Gleichung (6.5) recht nahe kommt. Insgesamt führt die Verwendung von Gl. (6.1) im Vergleich zu Gl. (6.5) und Gl. (6.6) zu einer Unterschätzung des Transferfaktors bei geringen Konzentrationen im Boden.

Eine begründete Abweichung von Gleichung (6.1) ist aber nur dann möglich, wenn die Datenlage dazu ausreichend ist. So geht der Arbeit von SIMON und IBRAHIM [Sim87] zwar eine umfassende Literaturrecherche voraus, doch wird bei der Bestimmung der Parameter f_1, f_2 und f_3 in Gleichung (6.6) über alle Pflanzenarten gemittelt. Möchte man den Transfer differenzierter für einige Pflanzenarten (Blattgemüse, Wurzelgemüse, Getreide usw.) betrachten, reicht die Datenmenge nicht mehr zur Bestimmung von f_1, f_2 und f_3 aus, so dass auf Gleichung (6.1) zurück gegriffen werden muss. Außerdem weisen SHEPPARD und SHEPPARD in [She85] darauf hin, dass für nicht-essentielle Spurenstoffe die Linearität des Transfers als gegeben angesehen werden kann.

Abgesehen von der Frage nach der Gültigkeit der Linearität des Transferfaktors hängt dieser von weiteren Parameter ab. So schwanken beispielsweise Transferfaktoren für ein Nuklid allein schon für den Transfer Boden-Pflanze über mehrere Größenordnungen. Die Gründe dafür sind vielfältig, denn der in Gleichung (6.1) definierte Transferfaktor ist eine makroskopische Größe, in der verschiedene chemische und physikalische Beschreibungen unterschiedlicher Böden, unterschiedlicher hydrologischer Bodenzustände und mit der Phase des Wachstums variierenden physiologischen Eigenschaften der Pflanze zusammengefasst werden [Ehl02], [Bet88], [Jac89]. Viele dieser Einflussgrößen können wiederum keineswegs als konstant angesehen werden, sondern unterliegen, um nur einige Möglichkeiten zu nennen, je nach Klima oder menschlichen Tätigkeiten (z.B. landwirtschaftliche Bearbeitung der Böden) ihrerseits wieder großen Schwankungen.

Ein wichtiger Punkt dabei ist das Angebot an chemisch verwandten Stoffen. So wird in [Kop84] darauf hingewiesen, dass der Transferfaktor von Radium von der Konzentration anderer Erdalkalimetalle wie Barium, Strontium und vor allem Kalzium beeinflusst werden kann. Dies wird von RODRÍGUEZ ET AL. in [Rod02] bestätigt, wo einen Zusammenhang zwischen dem Transfer von ^{226}Ra und der Konzentration von Eisen in der Pflanze und Erdalkalimetallen und Phosphor im Boden beschrieben wird. Zusätzlich zur Abhängigkeit des Radiumtransfers von der Kalziumkonzentration im Boden wird in [Sam95] noch auf den Einfluss des Tonanteils im Boden hingewiesen. Außerdem wird nach [Kop84] der Transferfaktor vom Verhältnis des austauschbaren zu

nicht austauschbaren Radium, dessen Anteil am Gesamt-Radium zwischen 3 und 30 % schwanken kann [MB80], um ein bis zwei Größenordnungen beeinflusst, was u.a. in [Mad01] und [Sam95] bestätigt wird.

Hinzu kommt, dass der Transfer eines Radionuklides vom Boden in eine Pflanze nicht ausschließlich über den Wurzelpfad, sondern auch über den schon oben erwähnten Weg der Resuspension stattfinden kann. Mehrere Autoren weisen darauf hin, dass für Pflanzen mit großer Blattoberfläche dieser Pfad, der stark von den jeweiligen Witterungsverhältnissen abhängt, als entscheidender Weg für die Verlagerung von Radionukliden in Pflanzen angesehen werden kann [Ham01], [Fri86], [Fri88], [Fri89]. Dabei kann nach der Deposition der Nuklide auf der Blattoberfläche die Barriere aus Epidermis und Kutikula durch Diffusion überwunden und somit Radionuklide ins Innere einer Pflanze transportiert werden. Ob und wie weit diese Nuklide dann innerhalb der Pflanzen durch Translokation weiter transportiert werden, hängt wiederum von der Mobilität innerhalb der Pflanze ab, auf die in Kapitel 5.1 eingegangen wurde. Diese Art des Transfers spielt dabei vor allem für im Nährmedium eher immobile Isotope wie Uran oder Thorium eine Rolle [Jac89].

Desweiteren weisen u.a. BAEZA ET AL. darauf hin, dass vor allem für mediterrane Ökosysteme der Transferfaktor auch zeitlich als keinesfalls konstant angesehen werden kann, da der Nährstoffbedarf der Pflanze starken jahreszeitlichen Schwankungen unterworfen ist [Bae96], [Bae01]. Dies wird in [Str02] für den Pfad Boden-Weide und die Nuklide ^{137}Cs und ^{40}K sowie in [Dji02] ebenfalls für ^{40}K bestätigt. Aus diesem Grund wird in [Sab02] eine dreiparametrische Funktion der Form

$$TF = TF(0) \left(e^{\alpha \cdot RGR \cdot t} - 1 \right) e^{-RGR \cdot t} \quad (6.7)$$

vorgestellt, die für den Spezialfall $\alpha = 1$ und $t \rightarrow \infty$ in einen konstanten (Gleichgewichts-)Transferfaktor $TF(0)$ übergeht. Dabei beschreibt α die Lage des Maximums der spezifischen Aktivität in Abhängigkeit von der Zeit und RGR als „Relative Growth Rate“ mit

$$RGR = \frac{1}{m(t)} \frac{dm(t)}{dt} \quad (6.8)$$

die relative Änderung der Masse mit der Zeit. Somit beschreiben SABBARESE ET AL. in [Sab02] durch iterative Anpassung dieser drei Variablen an die experimentell gewonnenen Daten den Transfer in Abhängigkeit von der Zeit.

Wurden für bestimmte Radionuklide, wie z.B. ^{90}Sr oder vor allem ^{137}Cs aufgrund ihrer besonderen Beitrag zur menschlichen Strahlenexposition nach dem Unfall von Tschernobyl eine größere Menge an Daten zum Transfer generiert und damit auch komplexere und detaillierte Modelle als die hier vorgestellten entwickelt, so trifft das auf natürliche Radionuklide i.a. nicht zu. Trotz aller Unzulänglichkeiten benutzt man daher die vereinfachende Vorstellung eines linearen Transfers zwischen den Kompartimenten.

Da die Transferfaktoren zum Teil über Größenordnungen schwanken, stellt sich die Frage ihrer Verteilung. Dabei gehen verschiedene Autoren von einer logarithmischen Normalverteilung der Transferfaktoren aus, da nach dem multiplikativen Grenzwertsatz der Statistik das Produkt hinreichend vieler, beliebig verteilter Zufallsvariablen gegen eine logarithmische Normalverteilung konvergiert, wenn die Anzahl der Zufallsvariablen gegen unendlich strebt [She88]. In diesem Fall wäre dann die geometrische Standardabweichung ein vernünftiges Maß für die Streuung der Transferfaktoren. Diese Fragestellung wurde in der vorliegenden Arbeit aufgegriffen und die Hypothese der log-Normalverteilung untersucht.

Leider besteht selbst über den einfachen, linearen Ansatz nach Gleichung (6.1) kein echter Konsens, da einige Autoren den Transfer auf die Trockenmasse der Pflanze und andere auf das Feuchtgewicht der Pflanze beziehen. Beide Ansätze besitzen Vor- und Nachteile: Bezogen auf die Trockenmasse der Pflanze lassen sich Transferfaktoren besser vergleichen, da die Schwankungsbreite der Trockenmasse im Vergleich zur Frischmasse erheblich geringer ist. In der Tat sind Schwankungen des Feuchtgewichtes eines pflanzlichen Produktes je nach Wetterlage vor der Probenahme um bis zu einem Faktor zwei durchaus möglich. Konsequenter Weise verzichtet daher die IAEA in [SRS01] und [TRS94] im Gegensatz zu [BGB99] oder [AVVa] auf die Angabe von auf das Feuchtgewicht bezogenen Transferfaktoren für Heu oder Gras. Betrachtet man jedoch weitergehende Modelle zur Berechnung einer effektiven Dosis, so fließen in die Modellierung der Strahlenexposition durch Ingestion Verzehrsgewohnheiten von Mensch und auch Tieren ein, die sich fast ausschließlich auf das Feuchtgewicht von Lebensmittel beziehen. Daher wird von den meisten Modellen auf Transferfaktoren zurück gegriffen, die sich auf das Feuchtgewicht beziehen. So verwenden neben [BGB99] und [AVVa] auch die IAEA in [SRS01] und [TRS94], die NCRP in [NCR96b] und NRPB in [Bro95] für den Transfer von natürlichen Radionukliden in zum Verzehr geeignete Lebensmittel wie Gemüse oder Getreide Transferfaktoren, die sich auf die Frischmasse der Pflanze beziehen. Hinzu kommt, dass keine einheitlichen Arbeitsanweisungen für die Trocknung von Böden und Pflanzen vorliegen. Was z.B. die Trocknung von Böden anbelangt, so schlagen die Messanleitungen zur Überwachung der Radioaktivität im Boden [Mes00c] eine Trocknung bei 50 °C bis zur Gewichtskonstanz vor. Andere Autoren berichten von Trocknungen bei 80 °C [Gre95] [Tom02], 85 °C [PF95], 90 °C [Bae96], 105 °C [Haa95], [Rad96] oder 110 °C [Bet88]. Da Boden je nach Anteil der Ton-, Schluff- oder Sandfraktion sehr wohl in der Lage sein kann, Wasser zu binden, das erst bei Temperaturen über 50 °C aus der Bodenmatrix entweicht, kann das Verhältnis von Feuchtgewicht zu Trockengewicht bei demselben Boden und unterschiedlicher Trocknung um einige Prozent schwanken.

In allen Bodenproben wurden spezifische Aktivitäten oberhalb der Nachweisgrenze ermittelt [Har03a]. Für den Fall, dass die spezifischen Aktivitäten des Bewuchses (respektive der Milch oder des Fleisches) unterhalb der entsprechenden Erkennungsgrenzen lagen, wurde analog zu der Auswertung der spezifischen Aktivitäten gemäß den in Kapitel 5.2.1 und 5.2.2 vorgestellten Verfahren ein vollständiger Datensatz durch

Extrapolation berechnet. Somit beziehen sich alle statistischen Angaben über Transferfaktoren in den folgenden Kapitel auf durch Zusatzwerte ergänzte Datensätze, falls ein oder mehrere Werte der in den Transferfaktor einfließende spezifischen Aktivität unterhalb der Erkennungsgrenze lag. Bevor die in dieser Arbeit berechneten Transferfaktoren vorgestellt werden, soll noch kurz auf die Besonderheit von ^{210}Pb eingegangen werden.

Mit einer Halbwertszeit von 22 Jahren tritt ^{210}Pb als Folgeprodukt von ^{226}Ra in der ^{238}U -Reihe auf. Der Expositionspfad für den Transfer Boden-Pflanze unterscheidet sich dabei ganz erheblich von den bisher betrachteten Nukliden, da mit ^{222}Rn ein Edelgas in der Zerfallsreihe zwischen dem ^{226}Ra und ^{210}Pb steht, das über den Luftpfad einen Transport auch seiner Folgeprodukte ermöglicht (siehe auch Abbildung 2.1). In Böden und Gesteinen kann ^{222}Rn durch Emanation vom Kristallgitter in den Porenraum übergehen und von dort auf Grund diffusiver oder advektiver Migration in die Atmosphäre exhalieren. Von denen nach einem Zerfall von ^{222}Rn bis zum ^{210}Pb gebildeten Folgeprodukte besitzt ^{214}Pb mit 27 min die längste Halbwertszeit. Findet ein solcher Zerfall nach der Exhalation von ^{222}Rn in der Atmosphäre statt, lagern sich an den entstehenden Zerfallsprodukten in Sekundenbruchteilen Wasserdampf oder andere Spurengase der Atmosphäre an und bilden Molekülverbände mit Durchmessern zwischen 0,5 und 5 nm, so genannte Cluster [Por96], die in der Atmosphäre sehr beweglich sind. Diese Cluster wiederum lagern sich an Aerosole (Durchmesser zwischen 100 und 1000 nm) an und können so über weite Strecke transportiert werden [Fig00]. Dabei findet die Anlagerung der Cluster an Aerosole mit einer Halbwertszeit von 10 bis 100 Sekunden statt, die klein gegenüber der physikalischen Halbwertszeit des radioaktiven Zerfalls der meisten Folgeprodukte ist. Obwohl die Möglichkeit der Desorption der Zerfallsprodukte von der Aerosoloberfläche durch den Rückstoß nach einem α -Zerfall (Recoil-Prozess) besteht, liegen die meisten Folgeprodukte des ^{222}Rn , einschließlich des ^{210}Pb an Aerosole gebunden in der Atmosphäre vor, da die Zeit nach einem Recoil-Prozess bis zur nächsten Anlagerung an ein Aerosol klein gegenüber der mittleren Verweildauer in der Atmosphäre ist, die in [Hil65] mit 20 bis 30 Tagen und mit 45 Tagen in [Lad73] angegeben wird. Insgesamt erfolgt also der Transfer von ^{210}Pb sowohl über den Wurzelpfad als auch über den Luftpfad. Verschiedene Autoren versuchen deswegen, den Anteil des luftgetragenen ^{210}Pb von dem über den Bodenzugpfad transportierten ^{210}Pb zu unterscheiden, um eine Vergleichbarkeit des klassischen Transferfaktors mit anderen Radionukliden zu gewährleisten.

6.2 Transfer von Boden in Weide- und Wiesenbewuchs

Die Ergebnisse der in dieser Arbeit ermittelten Faktoren für den Transfer von Boden in Weide- und Wiesenbewuchs können Tabelle 6.1 entnommen werden. Dabei wurde der Transferfaktor bezogen sowohl auf das Feuchtgewicht als auch auf das Trocken-

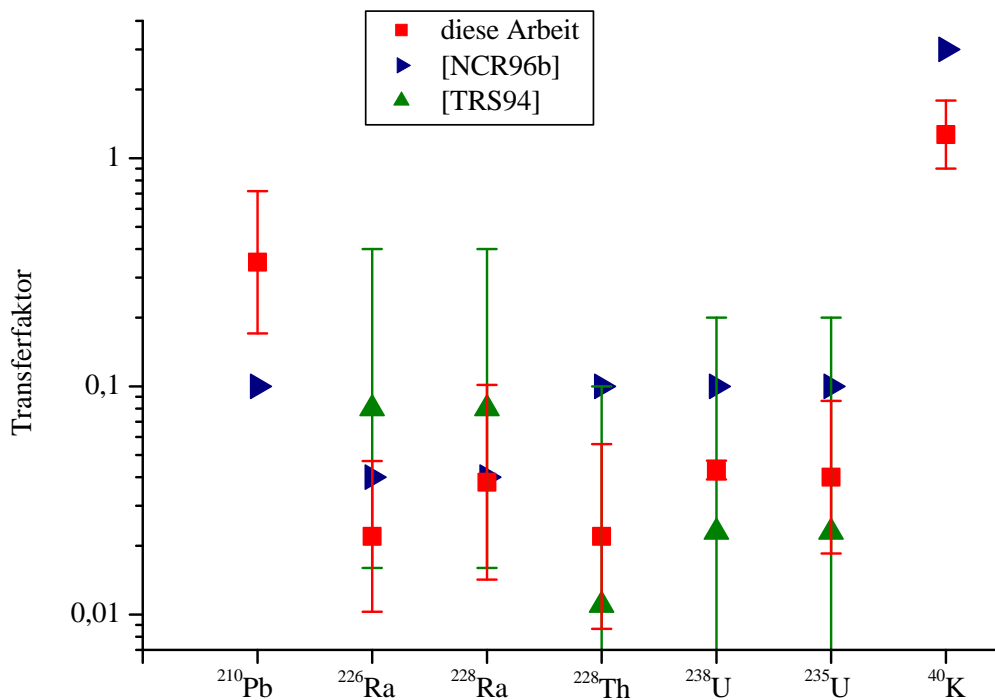


Abbildung 6.2: Vergleich der ermittelten Transferfaktoren Boden-Wiesenbewuchs mit Angaben in der Literatur bezogen auf das Trockengewicht der Pflanzen.

gewicht des Weide- und Wiesenbewuchs ermittelt, um die gewonnenen Daten mit denen aus der Literatur vergleichen zu können. Allerdings erscheint die Normierung auf das Trockengewicht sinnvoller, da, wie oben geschildert, das Feuchtgewicht erheblichen Schwankungen unterworfen sein kann.

Ein Vergleich mit Veröffentlichungen, die wiederum Ergebnisse verschiedener Arbeiten zusammenfassen und damit mehr als nur eine einzelne Untersuchung widerspiegeln, ist in den Abbildungen 6.2 und 6.3 dargestellt. Dazu ist folgendes anzumerken:

- Der Transferfaktor von ^{210}Pb liegt über den in der Literatur veröffentlichten Daten. Allerdings definieren einige Autoren den Transferfaktor als den Bruchteil der spezifischen Aktivität in der Pflanze zu spezifischer Aktivität im Boden, der *ausschließlich* über den Wurzelpfad in die Pflanze gelangt ist. So stellen MCDOWELL-BOYER ET AL. in [MB80] Transferfaktoren dieser Art zusammen, berichten aber in [MB79] von höheren Transferfaktoren, wenn der luftgetragene Anteil des ^{210}Pb berücksichtigt wird. Dieser Wert von 0,4 entspricht dem in dieser Arbeit erhaltenen Ergebnis. Ähnlich wird in [PF95] vorgegangen. Die dort veröffentlichten Transferfaktoren wurden in einem Experiment in einem Zelt unter Vernachlässigung von nasser und zum Teil auch trockener Deposition

Tabelle 6.1: Transferfaktoren für Weide- und Wiesenbewuchs.

	²¹⁰ Pb	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th	²³⁸ U	²³⁵ U	⁴⁰ K
bezogen aufs FG							
N	8	6	6	8	2	5	8
arithm. MW.	0,10	0,007	0,011	0,008	0,009	0,007	0,47
arithm. Stabw.	0,08	0,006	0,009	0,009	0,002	0,007	0,42
geo. MW.	0,07	0,005	0,008	0,004	0,009	0,004	0,35
geo. Stabw.	2,30	2,70	2,32	3,65	1,174	2,77	2,25
<i>EW</i> (log)	0,10	0,007	0,011	0,010	0,009	0,007	0,48
<i>R</i> ² (log-normal)	0,96	0,96	0,94	0,97	-	-	0,90
Literatur							
[AVVa]	0,08	0,03	0,03	0,01	0,05	0,05	
[BGB99]	0,01	0,01	0,01	0,002	0,003	0,003	
[Bro95]	0,01	0,01	0,01	0,0005			
[Bet88]		0,09-0,49					
[Pau86]		0,12±0,03	0,10±0,03				
bezogen aufs TG							
N	9	7	7	9	2	6	9
arithm. MW.	0,34	0,020	0,034	0,020	0,043	0,039	1,26
arithm. Stabw.	0,23	0,014	0,027	0,018	0,004	0,029	0,39
geo. MW.	0,27	0,016	0,023	0,014	0,043	0,030	1,20
geo. Stabw.	2,05	2,14	2,67	2,54	1,10	2,16	1,41
<i>EW</i> (log)	0,35	0,022	0,038	0,022	0,043	0,040	1,27
<i>R</i> ² (log-normal)	0,96	0,96	0,94	0,97	-	-	0,90
Literatur							
[SRS01]	0,1	0,4	0,4	0,1	0,2	0,2	
[TRS94]		0,02-0,40	0,02-0,40	0,001-0,11	0,002-0,23	0,002-0,23	
[NCR96b]	0,1	0,04	0,04	0,1	0,1	0,1	3
[MB80]	0,02-0,30 ^a	0,01-0,60					
[MB79]	0,4						
[PF95]	0,02-0,15 ^a						
[Rod02]		0,2					
[Tom03]		0,01-0,50		1,65	0,067		
[Wat83]		0,01-0,60					

^a Berücksichtigt wird lediglich der Wurzelpfad.

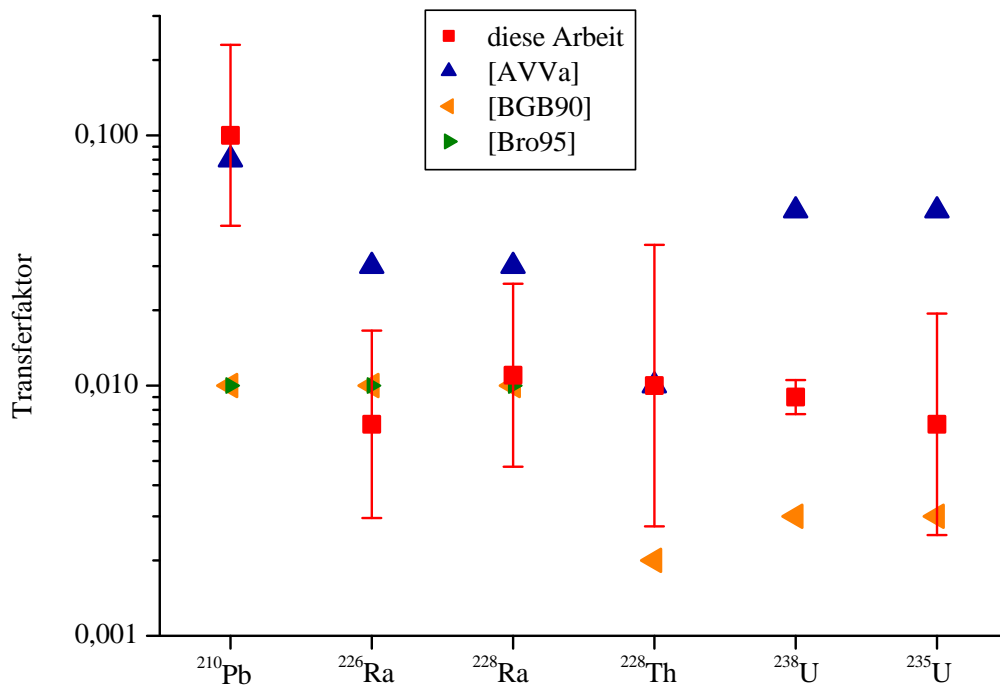


Abbildung 6.3: Vergleich der ermittelten Transferfaktoren Boden-Wiesenbewuchs mit Angaben in der Literatur bezogen auf das Feuchtgewicht der Pflanzen.

erhalten, wobei selbst Resuspension durch Spritzwasser bei Regen durch eine unterirdische Bewässerungsvorrichtung vermieden wurde. Diese Transferfaktoren sind in Tabelle 6.1 angegeben. Transferfaktoren, die für denselben Boden und dieselben Pflanzen, allerdings unter Freilandbedingungen, ermittelt wurden, ergeben einen Transferfaktor von 0,32 mit einer Standardabweichung von 0,22, was hervorragend mit den in dieser Arbeit ermittelten Daten übereinstimmt. In [SRS01] und [NCR96b] werden keine Angaben über die Vorgehensweise bei der Ermittlung der dort angegebenen Transferfaktoren gemacht, so dass die Vergleichbarkeit nur bedingt gegeben ist. Zusätzlich wird in [PF95] darauf hingewiesen, dass ein Waschen des Wiesen- und Weidebewuchses vor der Veraschung den Transferfaktor um einen Faktor von etwa 1,3 verringert. Für die weitere Bestimmung des Transfers in die Milch oder in das Muskelfleisch derjenigen Tiere, die sich von diesem Wiesen- bzw. Weidebewuchs ernähren, ist eine Ermittlung des Transferfaktors für gewaschenes Futter auch nicht sinnvoll. Steht jedoch die Frage nach dem eigentlichen Transfer in den Bewuchs im Vordergrund, sollte anhaftender Staub und Verunreinigungen durch Boden vor der Analyse entfernt werden.

- Die Transferfaktoren für ^{226}Ra und ^{228}Ra bezogen auf das Trockengewicht lie-

gen bei 0,022 und 0,038 und damit im unteren Bereich der in der Literatur angegebenen Schwankungsbreite. Bezogen auf das Feuchtgewicht findet sich eine sehr gute Übereinstimmung mit den in [BGB99] und [Bro95] angegebenen Werten. Untereinander ergibt sich ein höherer Transferfaktor für ^{228}Ra im Vergleich zu ^{226}Ra . Dasselbe Phänomen wird in [Pau86] beschrieben, bei dem der Transfer von ^{228}Ra in verschiedenen Pflanzen bis zu einer Größenordnung über dem von ^{226}Ra lag. Dabei haben Leaching-Experimente von Flusssedimenten mit unterschiedlichen Chlorid-Konzentrationen gezeigt, dass, wenn 10 % des ^{228}Ra ausgewaschen werden konnte, unter denselben Bedingungen lediglich 1 % des ^{226}Ra verfügbar ist. Insgesamt steht eine zufriedenstellende Erklärung für die höhere Pflanzenverfügbarkeit von ^{228}Ra im Vergleich zu ^{226}Ra noch aus.

- Der Transfer von ^{228}Th liegt in derselben Größenordnung wie der von Radium und damit innerhalb der in der Literatur zu findenden Variabilität. Allerdings ist ^{228}Th eine direkte Tochter des ^{228}Ra und wird bei Produkten mit langer Wachstums- und/oder Lagerungszeiten zu einem nicht unerheblichen Anteil in situ in der Pflanzen nachgebildet, so dass ein zu hoher Transferfaktor vorgetäuscht werden kann. Bezogen auf das Feuchtgewicht liegt der in dieser Arbeit berechnete Transferfaktor zwar unter der in [AVVa], allerdings über der in [BGB99] gemachten Angabe.
- Die Transferfaktoren für Uran liegen für beide untersuchten Isotope bei 0,05 (bezogen auf das Trockengewicht) und damit innerhalb der in [TRS94] angegebenen Schwankungsbreite, wobei in [BGB99] von einem geringeren Transfer ausgegangen wird. Insgesamt war die Anzahl der Messungen oberhalb der Erkennungs- bzw. Nachweisgrenzen vor allem für ^{238}U gering, so dass die Extrapolation nach HELSEL und COHN eigentlich nicht mehr anwendbar ist.
- ^{40}K ist das einzige Nuklid, das, bezogen auf das Trockengewicht, einen Transferfaktor größer 1 aufweist. Dieses wird in [NCR96b] mit einem Transferfaktor von 3 bestätigt.
- Mit Ausnahme des ^{40}K zeigen alle Nuklide eine gute Übereinstimmung mit der Hypothese der logarithmischen Verteilung von Transferfaktoren, so dass diese Annahme nicht abgelehnt werden kann. Für ^{238}U und ^{235}U lagen zu wenige Messwerte oberhalb der Erkennungsgrenzen vor, um eine Aussage über die Verteilung der Uranisotope zu treffen.
- Zusammenfassend muss festgestellt werden, dass sich sowohl die Bezugsgröße (Trocken- bzw. Feuchtgewicht der Pflanzen) als auch die Experimente, in denen Transferfaktoren ermittelt wurden, bedeutend unterscheiden können. Daher sind für eine angemessene Verwendung von Transferfaktoren aus der Literatur die Randbedingungen, unter denen diese bestimmt wurden, sorgfältig zu prüfen.

Tabelle 6.2: Statistische Daten der Transferfaktoren für Getreidekorn bezogen auf das Feuchtgewicht.

	^{210}Pb	^{226}Ra	^{228}Ra	^{228}Th	^{238}U	^{235}U	^{40}K
N ^a	13	16	13	15	0	4	17
arithm. MW.	0,018	0,005	0,009	0,004		0,006	0,377
arithm. Stabw.	0,022	0,003	0,008	0,004		0,011	0,274
geo. MW.	0,010	0,004	0,006	0,003		0,003	0,297
geo. Stabw.	2,9	2,1	2,8	2,5		3,4	2,0
EW (log)	0,018	0,005	0,010	0,004		0,006	0,382
R ² (log-normal)	0,98	0,98	0,92	0,96			0,95

^a Anzahl der Messwerte oberhalb der Erkennungsgrenze.

6.3 Transfer Boden - Getreide

Beim Transfer von natürlichen Radionukliden aus dem Boden in Getreide spielt der Transfer in das Korn die entscheidende Rolle, da dieser Teil des Getreides dem Verzehr dient. Die Ergebnisse für den Transfer in das Korn können Tabelle 6.2 entnommen werden. Diese Angaben beziehen sich auf das Feuchtgewicht, da sich bei zum Verzehr geeigneten Proben die sich anschließende Modellierung der Strahlenexposition (siehe Kapitel 7) auf Verzehrsgewohnheiten stützt, bei denen ebenfalls das Feuchtgewicht zu Grunde gelegt wird.

Eine detaillierte Darstellung der einzelnen ermittelten Transferfaktoren mit der wichtigsten vergleichenden Literatur findet man in Tabelle 6.3.

Dabei ist folgendes anzumerken:

- Der Transferfaktor für ^{210}Pb liegt innerhalb der in [TRS94] angegebenen Schwankungsbreite und unterhalb des in [AVVa] angegebenen Wertes. Eine Darstellung der einzelnen Transferfaktoren für unterschiedliche Getreidesorten kann Tabelle A.20 im Anhang auf Seite 236 oder Abbildung 6.4 entnommen werden; ein vollständiger Vergleich mit allen verfügbaren Literaturstellen findet man in Tabelle A.19 auf Seite 233. Dabei zeigt sich für ^{210}Pb mit einem in dieser Arbeit ermittelten Transferfaktor von 0,024 eine hervorragende Übereinstimmung mit in [PF95] veröffentlichten Angaben ($TF = 0,022$). Die in [MB80] angegebenen Werte liegen deutlich unter den Werten des ZSR, berücksichtigen jedoch

Tabelle 6.3: Transferfaktoren für den Transfer vom Boden in Getreidekorn im Vergleich mit der Literatur bezogen auf das Feuchtgewicht. Fettdruckte Werte resultieren aus Messwerten oberhalb der Nachweisgrenze.

ZSR	N	²¹⁰ Pb	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th	²³⁵ U	⁴⁰ K
	EW (log) des TF	13	16	13	15	4	17
	geo. Stabw.	0,018 2,9	0,005 2,1	0,010 2,8	0,004 2,5	0,006 3,4	0,382 2,0
Ort	Art						
Gestorf	Weizen		0,003 ± 0,0005	0,005 ± 0,001	0,0012 ± 0,00003		0,137 ± 0,009
Neßmerpolder	Weizen	0,005 ± 0,003	0,002 ± 0,0006		0,004 ± 0,0005	0,011 ± 0,005	0,240 ± 0,015
Schessinghausen	Weizen	0,002 ± 0,001	0,003 ± 0,0003	0,006 ± 0,001	0,004 ± 0,0003		0,197 ± 0,012
Schessinghausen	Weizen	0,08 ± 0,01	0,006 ± 0,0016	0,017 ± 0,007	0,008 ± 0,0014	0,046 ± 0,020	0,448 ± 0,028
Schlewecke	Weizen	0,004 ± 0,002	0,003 ± 0,0003	0,003 ± 0,0005	0,001 ± 0,0003		0,160 ± 0,010
Schlewecke	Weizen	0,004 ± 0,002	0,005 ± 0,0004	0,005 ± 0,0008	0,003 ± 0,0003		0,174 ± 0,011
Neßmerpolder	Gerste	0,044 ± 0,005	0,010 ± 0,0007	0,017 ± 0,0018	0,008 ± 0,0007		0,237 ± 0,015
Schlewecke	Gerste	0,017 ± 0,002	0,003 ± 0,0003	0,005 ± 0,0009	0,002 ± 0,0002		0,201 ± 0,012
Schlewecke	Gerste	0,011 ± 0,002	0,001 ± 0,0003	0,002 ± 0,0008		0,008 ± 0,004	0,097 ± 0,006
Neßmerpolder	Hafer	0,056 ± 0,011	0,002 ± 0,0006		0,001 ± 0,0003		0,255 ± 0,016
Neßmerpolder	Hafer	0,026 ± 0,005			0,001 ± 0,0005		0,142 ± 0,009
Schessinghausen	Roggen	0,013 ± 0,003	0,005 ± 0,0008	0,013 ± 0,003	0,011 ± 0,0012		0,772 ± 0,049
Schessinghausen	Triticale		0,009 ± 0,0016	0,017 ± 0,0049	0,004 ± 0,0013		0,650 ± 0,040
Schessinghausen	Triticale	0,008 ± 0,003	0,012 ± 0,0009	0,021 ± 0,0025	0,014 ± 0,009	0,016 ± 0,008	0,962 ± 0,062
Neßmerpolder	Raps	0,011 ± 0,003	0,002 ± 0,0012		0,001 ± 0,0004		0,508 ± 0,032
Schessinghausen	Raps		0,008 ± 0,0021	0,024 ± 0,006			0,838 ± 0,052
Schlewecke	Raps		0,008 ± 0,0009	0,006 ± 0,0019	0,005 ± 0,0007		0,393 ± 0,024
Literatur							
[TRS94]	Getreide allg.	0,0004-0,04				0,001	
[AVVa]	Getreide allg.	0,08	0,09	0,09	0,005	0,005	1
[Bro95]	Getreide allg.	0,01	0,001	0,001	0,0005	0,001	

nur den Wurzelpfad. Insgesamt ist der Transfer von ^{210}Pb im Vergleich zu dem in Weide- und Wiesenbewuchs eine Größenordnung kleiner. Dies kann darauf zurückgeführt werden, dass das Korn im Vergleich zu Gras durch die Spreu geschützt wird und somit Deposition von ^{210}Pb als unwahrscheinlicher angesehen werden kann [MB80].

- Die Anzahl der Vergleichsangaben aus der Literatur für ^{226}Ra und ^{228}Ra ist gering. So findet man in [AVVa] einen um mehr als eine Größenordnung höheren Transferfaktor im Vergleich zu dem in dieser Arbeit ermittelten. Auch in [Sam95] wird von einem deutlich größeren Transfer von ^{226}Ra berichtet, allerdings wird dort der Transferfaktor als Quotient von ^{226}Ra in der Pflanze und *aus-tauschbarem* ^{226}Ra im Boden definiert und sollte daher auch über den am ZSR berechneten Transferfaktoren liegen. Die in [MB80] veröffentlichte Schwankungsbreite des Transferfaktors beinhaltet den in dieser Arbeit ermittelten Wert. Der Transferfaktor für ^{228}Ra liegt, wie beim Weide- und Wiesenbewuchs, um einen Faktor 2 über den für ^{226}Ra . Eine Erklärung dazu steht noch aus, auch finden sich in der Literatur speziell für ^{228}Ra keine weiteren Angaben zum Transfer in Getreide.
- Der für ^{228}Th ermittelte Transferfaktor entspricht dem von ^{226}Ra . Vergleiche mit der Literatur ergeben eine Übereinstimmung mit den Werten aus [AVVa], wohingegen in [TRS94] und [Fri89] kleinere Transferfaktoren publiziert worden sind.
- Für ^{238}U konnten in dieser Arbeit kein Wert und für ^{235}U nur vier Werte oberhalb der Erkennungsgrenze ermittelt werden. Dadurch ist die Anwendbarkeit der HELSEL-COHN-Algorithmus fragwürdig und mit deutlichen Unsicherheiten behaftet. Der resultierende Transferfaktor bestätigt die Annahmen aus [AVVa], wohingegen sich in [TRS94] und [Bro95] kleinere Transferfaktoren wiederfinden. Da sowohl für ^{235}U als auch für ^{238}U Transferfaktoren, die unter Zuhilfenahme der mittleren Erkennungsgrenzen berechnet wurden, über den in der Literatur zu findenden Vergleichswerten liegen, muss die Eignung der γ -Spektrometrie für diesen Messzweck in Frage gestellt werden.
- Der für ^{40}K berechnete Erwartungswert des Transferfaktors von 0,39 liegt unter dem in [AVVa] angegebenen Wert von 1. Weitere vergleichende Literatur ist dem Autor nicht bekannt.
- Für fast alle Nuklide (ausgenommen ^{228}Ra) liegt der R^2 -Wert des QQ-Plots bei angenommener logarithmischer Normalverteilung über 0,95, so dass in der Regel die Annahme einer logarithmischen Normalverteilung nicht abgelehnt werden kann.

In Abbildung 6.4 sind die Transferfaktoren für unterschiedliche Getreidesorten dargestellt. Die diesen Graphiken zu Grunde liegenden Daten können Tabelle A.20 im

Anhang auf Seite 236 entnommen werden. Ein klarer Trend bezüglich der bevorzugten Aufnahme einzelner Radionuklide konnte dabei jedoch nicht festgestellt werden.

6.4 Transfer Boden - Gemüse

Analog zu dem Vorgehen bei der Untersuchung der spezifischen Aktivität in Gemüse wurde auch bei der Bestimmung des Transferfaktors die Gesamtheit der zum Verzehr geeigneten Gemüseproben in Wurzel- und Knollengemüse unterteilt, um eventuelle Unterschiede in dem Transferverhalten dieser beiden Gemüsesorten zu erkennen.

6.4.1 Wurzelgemüse

Die Analyse der berechneten Transferfaktoren kann sowohl für den essbaren als auch für den nicht essbaren Teil des Gemüses Tabelle 6.4 auf Seite 128 entnommen werden. Dabei zeigt sich ein erhöhter Transfer von allen Radionukliden in den nicht essbaren Teil von Wurzelgemüse, der in der Regel durch den oberirdischen, vegetativen Teil der Pflanze gegeben ist. Deutlich wird dies anhand der Quotienten aus den Erwartungswerten für den essbaren und nicht essbaren Teil einer Pflanze, die ebenfalls in Tabelle 6.4 zu finden sind und für alle betrachteten Nuklide größer 1 sind.¹ Besonders große Differenzen im Transferfaktor findet man dabei bei ^{210}Pb , was sich durch Deposition von ^{210}Pb auf oberirdische Pflanzenteile erklären lässt. So werden auch in [Ham01] deutlich größerer ^{210}Pb -Konzentrationen in den Blättern von Gemüse im Vergleich zu den Speicherorganen dokumentiert, was zu einem erhöhten Transferfaktor für Blätter führt. Allerdings liegt in dieser Arbeit für den essbaren Teil des Wurzelgemüses nur ein ^{210}Pb -Messwert vor, so dass der in Tabelle 6.4 angegebene Faktor eher als qualitative denn quantitative Aussage zu interpretieren ist. Als Erklärung für den erhöhten Transfer in den nicht-essbaren Teil von Wurzelgemüse kommen im Wesentlichen zwei Punkte in Betracht:

- Wie schon weiter oben angedeutet, ist die undifferenzierte Aufnahme der Radionuklide (mit Ausnahme des ^{40}K) im Xylem-System wahrscheinlich. Diese

¹Die hier angegebenen Quotienten unterscheiden sich von denen, die bei der Bestimmung der Aktivität in Tabelle 5.10 auf Seite 94 angegeben wurden. Dies mag zunächst verwundern, da sich die bei der Bestimmung des Transferfaktors verwendete spezifische Aktivität des Bodens bei essbaren und nicht-essbaren Pflanzenteilen bei der Quotientenbildung heraus kürzen sollte. Die Werte unterscheiden sich dennoch, da hier Quotienten aus **Mittelwerten** bzw. **Erwartungswerten** gebildet wurden. So können zum Mittelwert des Transferfaktors für nicht-essbare Pflanzenteile Gemüsesorten beitragen, für deren essbare Anteile sich keine Werte oberhalb der Erkennungsgrenze und damit auch keine Transferfaktoren bestimmen ließen. Bildete man den Quotienten aus essbaren und nicht-essbaren Teil für all jene Gemüsesorten, bei denen beide Anteile oberhalb der Erkennungsgrenzen lagen, so stimmten die gebildeten Quotienten aus essbaren und nicht-essbaren Anteil exakt überein.

6 Transfer von natürlichen Radionukliden

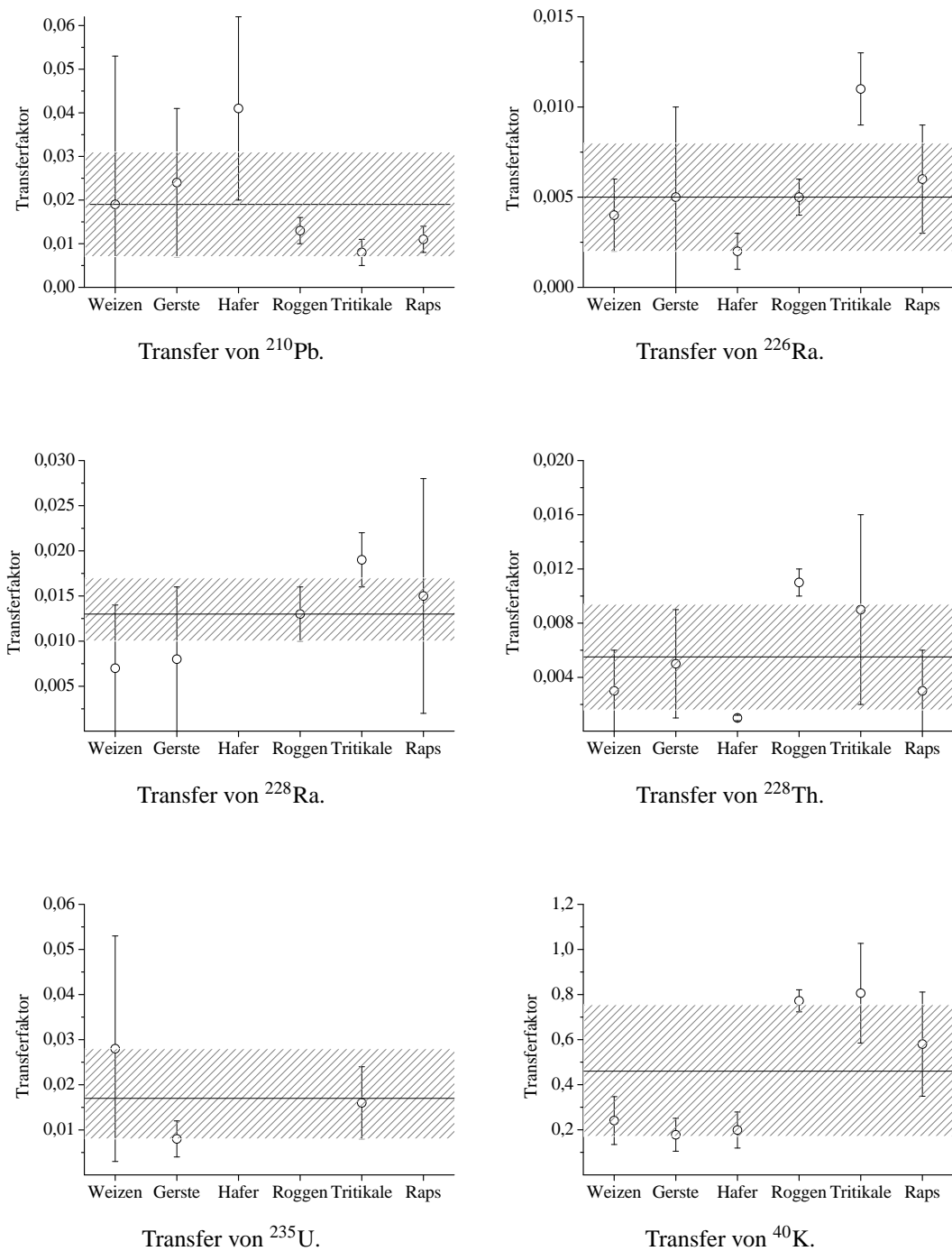


Abbildung 6.4: Vergleich der Transferfaktoren für natürliche Radionuklide in unterschiedliche Getreidesorten. Als Fehlerbalken ist die Schwankungsbreite der Transferfaktoren für eine Getreidesorte angegeben. Der schattierte Bereich kennzeichnet die Standardabweichung der Mittelwerte (Erweiterungsfaktor $k=1$) der einzelnen Getreidesorten. Der Gesamtmittelwert aller Getreidesorten wird durch die durchgezogene waagerechte Linie gekennzeichnet.

Nuklide werden dann durch den Transpirationssog in den vegetativen Teil der Pflanze transportiert und dort abgelagert.

- Außerdem besteht die Möglichkeit der Resuspension, also der staubgetragenen Ablagerung von Radionukliden auf dem Blättern und anschließender Translokation in das Innere der Pflanze, so dass auch durch Waschen der Pflanze ein Teil dieser Radionuklide nicht entfernt werden kann. Von einer Translokation über diesen Pfad wären die Wurzeln oder Knollen der Pflanzen kaum betroffen, da außer ^{40}K keines dieser Nuklide in größeren Mengen im Phloemsystem in das Speicherorgan der Pflanze transportiert werden kann.

Ein Vergleich mit den wichtigsten Angaben aus der Literatur ist in Abbildung 6.5 dargestellt. Die dazugehörigen Daten aller Einzelmessungen und ein kompletter Vergleich mit Literaturdaten findet man in Tabelle A.21 im Anhang auf Seite 237. Dabei ist erfreulicherweise die Anzahl der in der Literatur veröffentlichten Untersuchungen deutlich größer als z.B. beim Transfer in Getreide. Für den essbaren Teil des Wurzelgemüses ergaben sich aus den schon oben genannten Gründen nach der Extrapolation nach HELSEL und COHN aufgrund der geringen Anzahl der Werte oberhalb der Erkennungsgrenze für fast alle Nuklide sehr hohe geometrische Standardabweichungen, die deutlich über den experimentell ermittelten geometrischen Standardabweichungen liegen.

Insgesamt kann folgendes festgestellt werden:

- ^{210}Pb konnte nur in einer Probe, nämlich in Einlegegurken, oberhalb der Erkennungsgrenze detektiert werden. Dieser Wert liegt leicht unter den in [AVVa], [BGB99] und [Bro95] gemachten Angaben, befindet sich aber gut innerhalb der in [TRS94] oder [MB80] dokumentierten Schwankungsbreite.
- Auch der am ZSR ermittelte Transferfaktor für ^{226}Ra zeigt eine gute Übereinstimmung mit der Literatur [MB80], [Wat83], wobei in [AVVa] von deutlich, in [BGB99] von geringfügig höheren und in [Bro95] von deutlich geringen Transferfaktoren berichtet wird. Diese gute Übereinstimmung bleibt auch bei einer weiteren Differenzierung nach einzelnen Gemüsearten bestehen. So wird der in dieser Arbeit ermittelte Transferfaktor für Kartoffeln von 0,001 in [Vas87], [Ham01], [Lin89] und [Wat83] in sehr guter Übereinstimmung bestätigt; allerdings liegt der in [GN03] veröffentlichte Wert eine Größenordnung unter diesem. Neben dem Transferfaktor für Kartoffeln lag in dieser Arbeit lediglich der Transferfaktor für Radieschen oberhalb der Nachweisgrenze. Der dort berechnete Transferfaktor von 0,006 wird dabei auch in [Bun99] angegeben. Für ^{228}Ra ist die Anzahl der Literaturvergleiche deutlich geringer, zumal die meisten Publikation beim Transfer von Radium nicht zwischen ^{226}Ra und ^{228}Ra unterscheiden. Am ZSR konnten nur drei Transferfaktoren aus Messwerten oberhalb der Erkennungsgrenze gebildet werden. Dabei ist der Transfer in Kohlrabi und Rote Bete aus Jeinsen vergleichbar mit dem von ^{226}Ra . Bestimmt man Ersatzwerte für die

Tabelle 6.4: Transfer vom Boden in Wurzelgemüse mit Unterscheidung zwischen dem essbaren und nicht essbaren Anteil (bezogen auf das Feuchtgewicht der Pflanzen).

	²¹⁰ Pb	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th	²³⁸ U	²³⁵ U	⁴⁰ K
<i>Wurzelgemüse essbar</i>							
N ^a	1	5	3	3	0	2	8
arithm. MW	0,003	0,003	0,003	0,001		0,006	0,377
arithm. Stabw.		0,003	0,006	0,002		0,004	0,311
geo MW.	0,003	0,001	0,0005	0,0001		0,005	0,285
geo. Stabw.		3,2	6,5	7,6		1,8	2,2
<i>EW (log)</i>		0,003	0,003	0,001		0,006	0,389
<i>Wurzelgemüse nicht essbar</i>							
N ^a	6	6	5	5	3	4	6
arithm. MW	0,096	0,024	0,029	0,020	0,014	0,025	0,576
arithm. Stabw.	0,072	0,019	0,023	0,017	0,018	0,013	0,478
geo MW.	0,076	0,019	0,022	0,015	0,007	0,022	0,453
geo. Stabw.	2,2	2,1	2,3	2,1	3,4	1,6	2,1
<i>EW (log)</i>	0,102	0,025	0,031	0,020	0,014	0,024	0,592
<i>Faktor nicht essbar / essbar</i>							
arithm. MW.	32 ^c	8,6	9,7	20		4,2	1,5
<i>EW (log)</i>		8,6	10,3	20		4,0	1,5

^a Anzahl der Messwerte oberhalb der Erkennungsgrenze.

^b Erwartungswert bei angenommener logarithmischer Normalverteilung nach Gleichung (5.4).

^c Diesem Verhältnis liegt nur ein Messwert zugrunde.

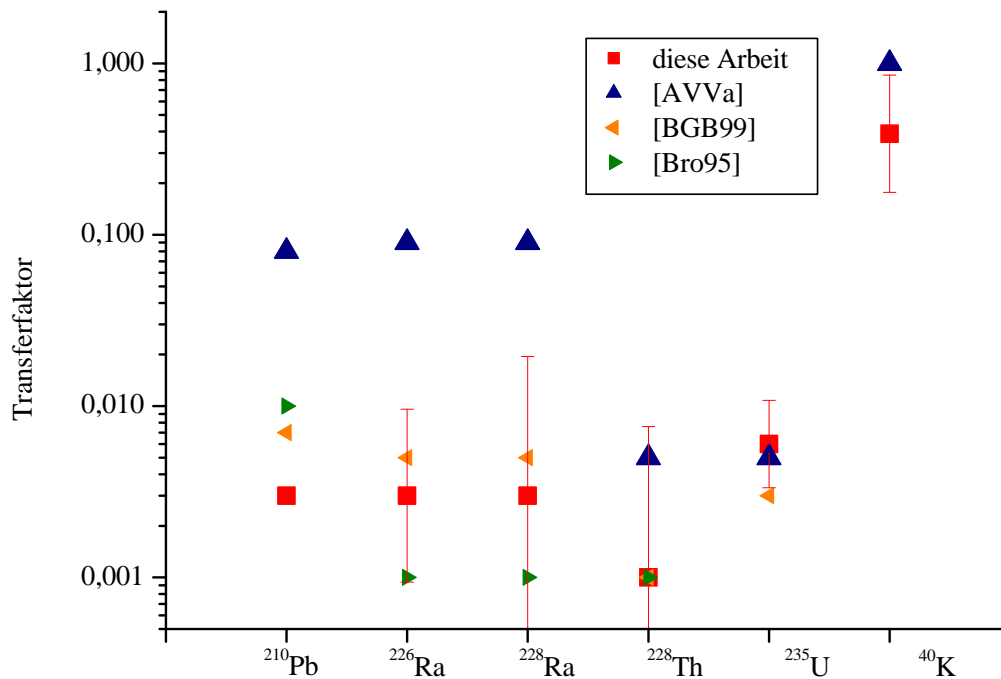


Abbildung 6.5: Vergleich der ermittelten Transferfaktoren Boden - Wurzelgemüse mit Angaben aus der Literatur bezogen auf das Feuchtgewicht der Pflanzen. Werte aus dieser Arbeit sind als Erwartungswerte bei angenommener logarithmischer Normalverteilung mit geometrischer Standardabweichung dargestellt.

Messergebnisse unterhalb der Erkennungsgrenze, so stimmen mit diesem komplettierten Datensatz die Transferfaktoren für ^{226}Ra und ^{228}Ra (mit jedoch beträchtlichen geometrischen Standardabweichungen) überein. Allerdings finden LINSALATA ET AL. in einer umfangreichen Untersuchung ([Lin89]) erstaunlicherweise einen doppelt so hohen Transfer von ^{228}Ra im Vergleich zu ^{226}Ra , ohne dies erklären zu können.

- Für ^{228}Th lagen lediglich drei Messwerte oberhalb der Erkennungsgrenzen und von diesen keiner oberhalb der Nachweisgrenzen. Das HELSEL-COHN-Verfahren ist hier im Grunde nicht mehr anwendbar, da die Schätzung einer Verteilung und deren Extrapolation bei drei Werten mehr als fraglich sind. Berechnet man dennoch auf diese Weise einen Transferfaktor, so deckt sich dieser Wert (der im übrigen in diesem Fall auch dem arithmetischen Mittelwert entspricht) mit den Angaben aus [BGB99], [SRS01], [Bro95] oder [NCR99].
- Während für ^{238}U kein Wert oberhalb der Erkennungsgrenze ermittelt werden konnte, lagen für ^{235}U zwei Werte zwischen der Erkennungs- und der Nachweisgrenze. In der Literatur findet man Angaben zum Transfer von ^{238}U bzw.

für Uran als Element ohne Unterscheidung nach Isotopen. Die dort zu finden Werte liegen in der Regel unter denen am ZSR ermittelten, allerdings findet man eine gute Übereinstimmung mit der in [TRS94] angegebenen Schwankungsbreite oder den Angaben aus [SRS01], [AVVa] oder auch [Bun99].

- Das einzige Nuklid, für das für jede Probe ein Transferfaktor basierend auf Messwerten oberhalb der Nachweisgrenze gefunden werden konnte, ist ^{40}K . Dabei schwanken die Angaben in der Literatur zwischen einem Transferfaktor von 0,3 [NCR99] und 1 [AVVa], wobei in [Dji02] und [Chi00] noch deutlich geringere Werte für den Transfer in Kartoffeln bzw. Karotten ermittelt wurden. Insgesamt liegen die am ZSR ermittelten Transferfaktoren innerhalb der in der Literatur angegebenen Schwankungsbreite.

6.4.2 Blattgemüse

Auch beim Transfer in Blattgemüse wurde nach essbaren und nicht essbaren Teil differenziert. Wie die Untersuchungen der spezifischen Aktivität von Blattgemüse vermuten lassen, besteht auch beim Transfer im Gegensatz zu Wurzelgemüse kein großer Unterschied zwischen nicht-essbaren und zum Verzehr geeigneten Gemüse. Der Quotient aus dem Transferfaktor für nicht-essbare und dem für essbare Pflanzenteile kann ebenso wie die statistische Auswertung Tabelle 6.5 entnommen werden. Dabei liegt dieser Quotient nahe 1. Insgesamt ist der Transfer in den essbaren Teil des Blattgemüses höher als in den des Wurzelgemüses, was besonders bei ^{210}Pb deutlich wird, da dort der Transfer um eine Größenordnung über den in Wurzelgemüse liegt. Eine Ausnahme bildet ^{40}K , das einen geringeren Transfer in Blattgemüse im Vergleich zu Wurzelgemüse aufweist.

Ein Vergleich der in dieser Arbeit ermittelten Transferfaktoren mit einer der Literatur entnommenen Auswahl ist in Abbildung 6.6 dargestellt. Eine Zusammenstellung aller ermittelten Transferfaktoren kann zusammen mit weiteren Literaturangaben im Anhang auf Seite 241 der Tabelle A.22 entnommen werden. Nuklidspezifisch kann folgendes festgestellt werden:

- Der in dieser Arbeit ermittelte Transferfaktor für ^{210}Pb liegt mit 0,024 über den in den meisten Quellen gemachten Angaben, auch wenn in [AVVa] ein Transferfaktor von 0,08 und in [TRS94] im Rahmen der dort präsentierten Literaturrecherche eine (sehr große) Schwankungsbreite angegeben wird. Allerdings dürfen Transferfaktoren für ^{210}Pb nicht unkritisch aus der Literatur entnommen werden, da unterschiedliche Definitionen und Versuchsbedingungen den Transferfaktor ganz erheblich beeinflussen können. Bei der Bestimmung von Transferfaktoren in Laborversuchen können Resuspension und Deposition von ^{210}Pb als Folgeprodukt von ^{222}Rn als Transferpfade im Vergleich zu realen Bedingungen vernachlässigt werden. Somit liegen Transferfaktoren, die unter realen

Tabelle 6.5: Transfer vom Boden in Blattgemüse mit Unterscheidung zwischen dem essbaren und nicht essbaren Anteil (bezogen auf das Feuchtgewicht der Pflanzen).

	²¹⁰ Pb	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th	²³⁸ U	²³⁵ U	⁴⁰ K
Blattgemüse essbar							
N ^a	12	15	10	11	5	4	18
arithm. MW	0,021	0,007	0,008	0,004	0,005	0,007	0,247
arithm. Stabw.	0,023	0,006	0,006	0,005	0,006	0,009	0,177
geo MW.	0,004	0,004	0,006	0,001	0,002	0,004	0,206
geo. Stabw.	3,9	3,4	2,1	5,3	2,9	2,7	1,8
EW (log) ^b	0,024	0,009	0,008	0,006	0,004	0,006	0,244
Blattgemüse nicht essbar							
N ^a	8	7	7	6	5	4	8
arithm. MW	0,021	0,008	0,010	0,007	0,007	0,012	0,206
arithm. Stabw.	0,009	0,005	0,007	0,008	0,005	0,007	0,060
geo MW.	0,019	0,007	0,008	0,005	0,006	0,010	0,200
geo. Stabw.	1,8	1,7	1,9	2,7	1,7	1,7	1,3
EW (log) ^b	0,023	0,008	0,010	0,008	0,007	0,012	0,207
Faktor nicht essbar / essbar							
EW (log.)	0,96	0,88	1,29	1,31	1,48	1,73	0,85
arithm. MW	1,00	1,07	1,31	1,64	1,49	1,63	0,84

^a Anzahl der Messwerte oberhalb der Erkennungsgrenze.^b Erwartungswert bei angenommener logarithmischer Normalverteilung nach Gleichung (5.4).

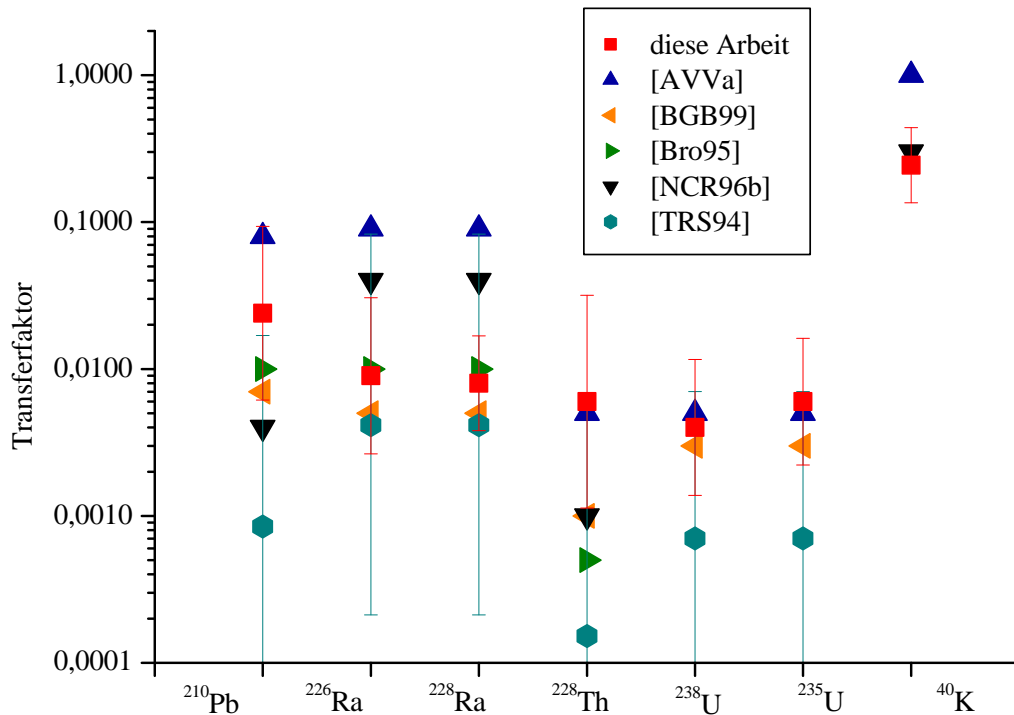


Abbildung 6.6: Vergleich der ermittelten Transferfaktoren Boden - Blattgemüse mit Angaben in der Literatur bezogen auf das Feuchtgewicht der Pflanzen. Angegeben sind der Erwartungswert bei angenommener logarithmischer Normalverteilung und die geometrische Standardabweichung.

Bedingungen gewonnen wurden, meist über denen aus Laborversuchen [Lin89]. Als Beispiel mag [PF95] dienen, wo einerseits, wie schon oben erwähnt, in einem Zelt und andererseits unter Freilandbedingungen Transferfaktoren für gleiche Pflanzenarten auf gleichem Boden bestimmt wurden. Die letztendlich dort veröffentlichten Werte (siehe Tabelle A.22) entsprechen den Transferfaktoren unter „Zeltbedingungen“ und quantifizieren den Transfer über den Wurzelpfad. Diese Angaben liegen eine Größenordnung unter der in dieser Arbeit ermittelten Werten. Berechnet man jedoch Transferfaktoren für die „Freilandsituation“, so ergibt sich aus den Werten für Spinat, Salat und Grünkohl ein Mittelwert von $0,031 \pm 0,012$, der sehr gut mit dem am ZSR ermittelten arithmetischen Mittel von $0,021 \pm 0,023$ übereinstimmt. Diese Übereinstimmung bleibt auch beim Vergleich der einzelnen Messwerte für Salat und Grünkohl bestehen, was insofern bemerkenswert ist, als dass die in [PF95] beschriebene Untersuchungen zum einen in Polen durchgeführt wurden und somit geologisch und klimatisch durchaus mit denen in Niedersachsen vergleichbar sind und als dass zum anderen dort radiochemische Verfahren verwendet wurden. Dies wieder-

um bestätigt, dass unter gegebenen Voraussetzungen die γ -spektrometrische Untersuchung durchaus als Alternative zu radiochemischen Verfahren angesehen werden kann. Ähnliches wird in [Bun99] berichtet, wo ein so genanntes „fractional concentration-ratio“ zur Quantifizierung der Aufnahme von ^{210}Pb und ^{226}Ra über den Wurzelpfad eingeführt wird. Während dieser Transferfaktor eine Größenordnung unter dem in dieser Arbeit ermittelt liegt, kann zwischen dem „konventionellen“ Transferfaktor, der Deposition von ^{210}Pb mit berücksichtigt und etwa 0,04 beträgt, und dem im Rahmen dieser Arbeit bestimmten Wert von einer vernünftigen Übereinstimmung gesprochen werden.

- Wie auch Abbildung 6.6 entnommen werden kann, liegen die Transferfaktoren für ^{226}Ra und ^{228}Ra innerhalb der in der Literatur angegebenen Schwankungsbreite. Dabei ist kein Unterschied im Transfer von ^{226}Ra und ^{228}Ra erkennbar. Insgesamt ist die Zahl der Transferfaktoren, die oberhalb der Erkennungsgrenze liegen, mit 15 für ^{226}Ra und 10 für ^{228}Ra bei 18 untersuchten Proben relativ hoch.
- Der in dieser Arbeit berechnete Transfer von ^{228}Th liegt über den meisten in der Literatur veröffentlichten Daten, aber noch innerhalb der in [TRS94] angegebenen Schwankungsbreite. Zudem stammen die meisten Vergleichswerte aus Modellvorschriften oder Literaturrecherchen, so dass über die Art und Weise der Bestimmung dieser Werte mit Ausnahme von [Fri89] keine Angaben vorliegen. Zu beachten ist außerdem, dass, wie oben erwähnt, sich ^{228}Th als Folgeprodukt von ^{228}Ra bildet und somit die Möglichkeit besteht, dass durch das Nachwachsen der Tochter ^{228}Th der Transferfaktor überschätzt wird [Tom03], [Fri89], [Lin89].
- ^{238}U konnte lediglich in Lauch, Wirsingkohl, Grünkohl, Kopfsalat und Petersilie nachgewiesen werden, wobei für ^{238}U und ^{235}U fünf bzw. vier Werte oberhalb der Erkennungs- und lediglich zwei bzw. ein Wert oberhalb der Nachweisgrenzen lagen. Die daraus berechneten Transferfaktoren befinden sich ähnlich dem ^{228}Th im oberen Bereich der in [TRS94] angeführten Schwankungsbreite. Wiederum ist jedoch darauf hinzuweisen, dass die Anwendung des HELSEL-COHN-Verfahrens bei derartig wenigen signifikanten Werten als problematisch angesehen werden kann. Auf Grund der geringen Anzahl der Ergebnisse oberhalb der Erkennungsgrenze kann die Eignung der γ -Spektrometrie zur Bestimmung von ^{238}U und ^{235}U in Umweltproben unter den am ZSR gegebenen Bedingungen und damit auch die Möglichkeit, Transferfaktoren für diese beiden Isotope zu ermitteln, angezweifelt werden.
- Der mittlere Transferfaktor von 0,24 für ^{40}K liegt in derselben Größenordnung wie Vergleichsdaten aus der Literatur, wobei in [AVVa] mit einem Transferfaktor von 1 der höchste Wert zu finden ist.

6.5 Transfer Boden - Obst

6.5.1 Beeren

Die in dieser Arbeit bestimmten Transferfaktoren für Brom- und Himbeeren können Tabelle 6.6 entnommen werden. Dabei liegen in der Literatur keine Vergleichsdaten für den Transfer von natürlichen Radionukliden in Früchte vor, obwohl im BIOMASS-Programm der IAEA der Transfer von Boden in Obst und dessen Modellierung berücksichtigt wird [Ven01], [Car01c]. Somit liegen Daten über die Verteilung von Radionukliden im Obst sowie für den Transfer und für die Modellierung der daraus resultierenden Dosis hauptsächlich für ^{137}Cs und mit Abstrichen für ^{90}Sr vor [Atk01], [Ful01], [OD01], [Ste01], [Kar01], [Car01b], [Gre01], [Mit01]. Die einzigen dem Autor bekannten Informationen über den Transfer von Uran und Thorium in Früchte befinden sich in [Car01a] und behandeln in dieser Arbeit nicht untersuchte Wassermelonen.

6.5.2 Pilze

Ebenso wie für Beeren sind die Transferfaktoren für Pilze in Tabelle 6.6 dargestellt. Dabei liegt der Transfer von ^{210}Pb in derselben Größenordnung wie ein Vergleichswert aus [Kir98]. Dort weisen KIRCHNER ET AL. darauf hin, dass der entscheidende Transferpfad für ^{210}Pb in Pflanzen nicht durch direkte Deposition oder indirekte Aufnahme durch von im Bodenwasser gelösten ^{222}Rn gegeben ist, sondern dass die direkte Verlagerung von im Bodenwasser gelösten ^{210}Pb den Transfer dominiert.

6.6 Transfer in Fleisch

Wie schon in Kapitel 5.4 beschrieben, wurde Muskelfleisch von Rindern, je einem Schaf, Schwein, Wildschwein und einer Pute γ -spektrometrisch untersucht. Da neben ^{137}Cs lediglich ^{40}K oberhalb der Erkennungsgrenzen detektiert werden konnte, wurden Transferfaktoren nur für ^{40}K bestimmt. Dabei ist der Transferfaktor $TF_{F,i}$ für ein Nuklid i in Fleisch nach [TRS94] definiert als

$$TF_{F,i} = \frac{\text{spez. Aktivität des Nuklides } i \text{ im Fleisch des Tieres in Bq/kg}}{\text{vom Tier pro Tag aufgenommene Aktivität des Nuklides } i \text{ in Bq/d}} \quad (6.9)$$

und wird folglich in der Einheit d/kg angegeben. Dieser Parameter schwankt mit dem Alter des Tieres, da bei jungen Tieren ein deutlich größerer Transfer im Vergleich zu erwachsenen Tieren beobachtet werden kann. Hinzu kommt, dass sich bei vielen Tieren zum Zeitpunkt der Schlachtung noch kein Gleichgewicht eingestellt hat, so dass der Transferfaktor zusätzlich vom Alter der Tiere abhängt [MB80], [TRS94]. Des

Tabelle 6.6: Transfer in Him- und Brombeeren und Pilzen im Vergleich. Alle Angaben bezogen auf das Feuchtgewicht. Transferfaktoren, die auf Werten oberhalb der Nachweisgrenze basieren, sind fett gedruckt.

Code	Art	^{210}Pb	^{226}Ra	^{228}Th	^{238}U	^{40}K
Beeren						
GIObMPBb01	Brombeeren	0,005 ± 0,001	0,0010 ± 0,0002	0,0002 ± 0,0001	0,003 ± 0,001	0,07 ± 0,01
GIObMPHb01	Himbeeren	0,004 ± 0,001	0,0009 ± 0,0003		0,021 ± 0,013	0,10 ± 0,01
	arithm. MW.	0,005 ± 0,001	0,0010 ± 0,0001			0,08 ± 0,02
Literatur						
[Chi00]	Himbeeren					0,13
Pilze						
RhPiMPMr01	Maronen-Röhrlinge	0,004 ± 0,001		0,0012 ± 0,0002	0,003 ± 0,001	0,11 ± 0,01
RhPiMPRV01	Violetta Ritterling	0,025 ± 0,007		0,0035 ± 0,0015	0,021 ± 0,013	0,13 ± 0,01
RhPiMPSc01	Schirmlinge	0,019 ± 0,002				0,05 ± 0,01
	arithm. MW.	0,016 ± 0,010		0,0024 ± 0,0017	0,012 ± 0,013	0,10 ± 0,04
Literatur						
[Kir98] ^a	Pilze ^b	0,004 - 0,014				

^a Ursprünglich auf das Trockengewicht bezogene Transferfaktoren wurden mit gemittelten Verhältnissen TG/FG für Pilze aus dieser Arbeit umgerechnet.

^b diverse Pilzsorten.

Weiteren wird in [How01] auf die Abhängigkeit des Transferfaktors in Fleisch und Milch von der Menge der pro Tag produzierten Milch und der Bewegungsfreiheit der Tiere hingewiesen. Insgesamt ist die Anzahl der veröffentlichten Transferfaktoren für natürliche Radionuklide in Fleisch und Milch gering. Allerdings können [Tho03] als Ergebnis einer Literaturrecherche Faktoren für den Transfer von Uran in Milch und Fleisch von Kühen, Schafen, Ziegen und Hühner entnommen werden.

6.6.1 Rinder

Die folgenden Überlegungen beziehen sich im konkreten Fall lediglich auf ^{40}K , da kein anderes Nuklid oberhalb der Erkennungsgrenzen nachgewiesen wurden, können aber problemlos auf andere Nuklide übertragen werden. Um die Menge des täglich aufgenommenen ^{40}K abschätzen zu können, musste außer der spezifischen Aktivität im Futter der Rinder auch deren Ernährungsgewohnheiten berücksichtigt werden. Dabei wird klar, dass die Menge an verzehrtem Futter keinesfalls als konstant oder beliebig genau bekannt angesehen werden kann. So schwanken die Angaben zum Verzehr von Weide- und Wiesenbewuchs durch Rinder nach [TRS94] zwischen 10 und 25 kg pro Tag bezogen auf das Trockengewicht, wobei ein Erwartungswert von 16,1 kg pro Tag angegeben wird. Sei also \dot{m}_{Fu} die pro Tag verzehrte Menge an Futter und $A_{spez,Fu}$ die spezifische Aktivität von ^{40}K im Futter. Dann ergibt sich die pro Tag aufgenommene Aktivität A von ^{40}K zu

$$A \left[\frac{\text{Bq}}{\text{d}} \right] = \dot{m}_{Fu} \left[\frac{\text{kg}}{\text{d}} \right] \cdot A_{spez,Fu} \left[\frac{\text{Bq}}{\text{kg}} \right]. \quad (6.10)$$

Für TF_F gilt dann im Fall der Rinder der Hermannsdorfer Landwerkstätten, die sich ausschließlich durch Weide- und Wiesenbewuchs (getrocknet Heu, abgekürzt: He) ernährten

$$TF_F = \frac{A_{spez,F}}{A} = \frac{A_{spez,F}}{\dot{m}_{Fu}(\text{He}) \cdot A_{spez,Fu}(\text{He})}, \quad (6.11)$$

wobei $\dot{m}_{Fu}(\text{He})$ die Verzehrsmenge von Weide- und Wiesenbewuchs in kg Trockenmasse pro Tag, $A_{spez,Fu}(\text{He})$ die spezifische Aktivität in getrocknetem Wald- und Wiesenbewuchs in Bq/kg und $A_{spez,F}$ die spezifische Aktivität im Fleisch darstellen. Die für diese Parameter getroffenen Annahmen bezüglich der Verteilungen sind in Tabelle 6.7 dargestellt.

Damit ergibt sich die Schwankungsbreite des Transferfaktors als Faltung der den Faktoren in Gleichung (6.11) zugeordneten Verteilungen. Diese resultierende Verteilung kann als Faltung einer Dreiecksverteilung und zweier logarithmischer Normalverteilungen nicht mehr analytisch berechnet werden. Daher wurde mit CRYSTAL BALL[®]

Tabelle 6.7: Parameter des Transfers in Rindfleisch (HLW).

Parameter	Verteilung	<i>min</i>	<i>EW</i>	<i>max</i>	<i>GM</i> ^a	<i>GS</i> ^b
Verzehrmenge Heu in kg/d ^{c,d}	Dreieck	10	16,1	25		
spez. A. von ⁴⁰ K im Heu in Bq/kg ^d	log.-normal				577	1,3
spez. A. von ⁴⁰ K in Fleisch in Bq/kg	log.-normal				102	2,0 ^e

^a *GM* steht für geometrischer Mittelwert.

^b *GS* steht für geometrische Standardabweichung.

^c [TRS94] entnommen.

^d Bezogen auf das Trockengewicht.

^e Geschätzt, da keine weiteren Informationen vorhanden.

eine in MS-EXCEL[®] implementierbare Monte-Carlo-Simulation zur Schätzung der Verteilung von TF_F verwendet. Auf die Funktionsweise von CRYSTAL BALL[®] bzw. der Anwendbarkeit von Monte-Carlo-Simulationen allgemein wird dabei ebenfalls in Kapitel 7.2 eingegangen. Als Beispiel ist in Abbildung 6.7 die für die Hermannsdorfer Landwerkstätten modellierte Verteilung mit dem 95 %igen Vertrauensbereich für den Transfer von ⁴⁰K in Rinderfleisch dargestellt.

Im Fall des Betriebes Neßmerpolder kann, da Zufütterung durch Kraftfuttergemisch stattfindet, mit einem täglichen Verzehr von 3,5 kg Weide- und Wiesenbewuchs pro Tag bezogen auf das Trockengewicht gerechnet werden. Allerdings schwankt die Masse des zugegebenen Kraftfuttergemisches zwischen 2 und 8 kg pro Tag, wobei 6 kg pro Tag die wahrscheinlichste Menge darstellt. Die dadurch gegebene Verteilung der Nahrungsmenge kann also am Besten durch eine Dreiecksverteilung mit diesen drei Parametern abgeschätzt werden. Das Kraftfuttergemisch setzte sich zu 65 % aus reinem Kraftfutter und zu 35 % aus Mehl, das wiederum zu je 50 % aus Weizen und Gerste bestand, zusammen. Da jeweils nur eine Probe des Kraftfutters und eine Probe des Weizen- und Gerstekorns γ -spektrometrisch untersucht werden konnten, andererseits die Schwankungsbreite der spezifischen Aktivitäten in diesen Proben nicht vernachlässigbar ist, wurde jeweils eine logarithmische Normalverteilung der spezifischen Aktivitäten angenommen. Diese Annahme stützt sich auf die in Kapitel 5.6 getroffenen Aussagen zur Verteilung der Radionuklide in Getreide, so dass die dort ermittelte geometrische Standardabweichung für Gerste und Weizen aller untersuchten Getreideproben dazu verwandt wurde, die Schwankungsbreite der zur Modellierung herangezogenen Proben vom Neßmerpolder zu charakterisieren. Da im Rahmen dieser Arbeit nur eine Kraftfutterprobe analysiert werden konnte, wurde auch hier eine logarithmische Normalverteilung mit einer geometrischen Standardabweichung von 2

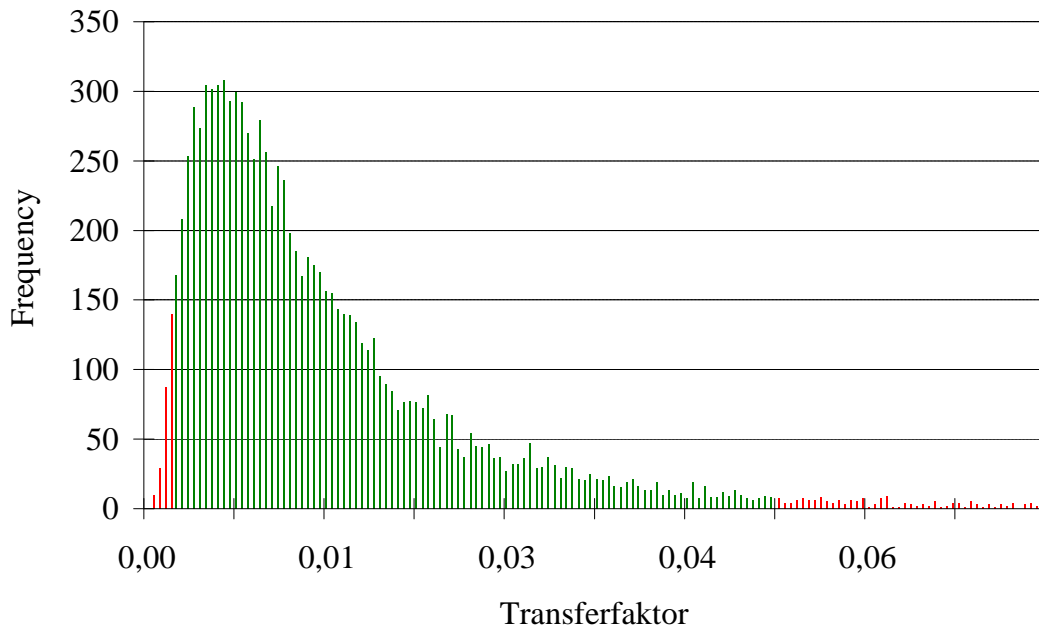


Abbildung 6.7: Verteilung des Transferfaktors für ^{40}K in Rindfleisch für die Hermannsdorfer Landwerkstätten. Der grün eingefärbte Bereich kennzeichnet den Vertrauensbereich zu einem Vertrauensniveau von 95 %.

angenommen. Eine Zusammenstellung der für den Betrieb Neßmerpolder angenommenen Parameter ist in Tabelle 6.8 dargestellt.

Für den Transfer in Fleisch für Rinder vom Standort Neßmerpolder ergibt sich somit

$$TF_F = \left[\frac{\dot{m}_{Fu}(\text{He}) \cdot A_{spez}(\text{He})}{A_{spez}(\text{F})} \right. \quad (6.12)$$

$$\left. + \frac{\dot{m}_{Fu}(\text{KFG}) [0,65 \cdot A_{spez}(\text{KF}) + 0,175 \cdot A_{spez}(\text{WM}) + 0,175 \cdot A_{spez}(\text{GM})]}{A_{spez}(\text{F})} \right]^{-1}$$

mit

- $\dot{m}_{Fu}(\text{He})$ = Verzehrsmenge Heu in kg/d,
- $A_{spez}(\text{He})$ = spezifische Aktivität von ^{40}K im Heu,
- $A_{spez}(\text{Fl})$ = spezifische Aktivität von ^{40}K im Fleisch,
- $\dot{m}_{Fu}(\text{KFG})$ = Verzehrsmenge Kraftfuttergemisch in kg/d,
- $A_{spez}(\text{KF})$ = spezifische Aktivität von ^{40}K im Kraftfutter,
- $A_{spez}(\text{WM})$ = spezifische Aktivität von ^{40}K im Weizenmehl,
- $A_{spez}(\text{GM})$ = spezifische Aktivität von ^{40}K im Gerstemehl.

Auch hier kann die Verteilung nicht analytisch berechnet sondern nur mit Hilfe ei-

Tabelle 6.8: Parameter des Transfers in Rindfleisch (Neßmerpolder).

Parameter	Verteilung	min	EW	max	geo. MW.	geo. Stabw.	Quelle
Verzehrsmenge Heu in kg/d ^a	Dreieck	3,5	4,5	5,5	530	1,5	[Ste03]
spez. A. von ⁴⁰ K im Heu in Bq/kg ^a	log.-normal						diese Arbeit
Verzehrsmenge Kraftfuttergemisch in kg/d ^{b,c}	Dreieck	2	6	8			[Ste03]
spez. A. von ⁴⁰ K im Kraftfutter in Bq/kg ^c	log.-normal				394	2,0 ^d	diese Arbeit
spez. A. von ⁴⁰ K im Weizenmehl in Bq/kg ^c	log.-normal				115	1,5	diese Arbeit
spez. A. von ⁴⁰ K im Gerstemehl in Bq/kg ^c	log.-normal				108	1,5	diese Arbeit
spezifische Aktivität ⁴⁰ K Fleisch in Bq/kg ^c	log.-normal				90	2,0 ^d	diese Arbeit

^a bezogen auf das Trockengewicht.

^b setzt sich zusammen aus 65 % Kraftfutter, 17,5 % Weizenmehl und 17,5 % Gerstemehl.

^c bezogen auf das Frischgewicht.

^d geschätzt, da keine weiteren Informationen vorhanden.

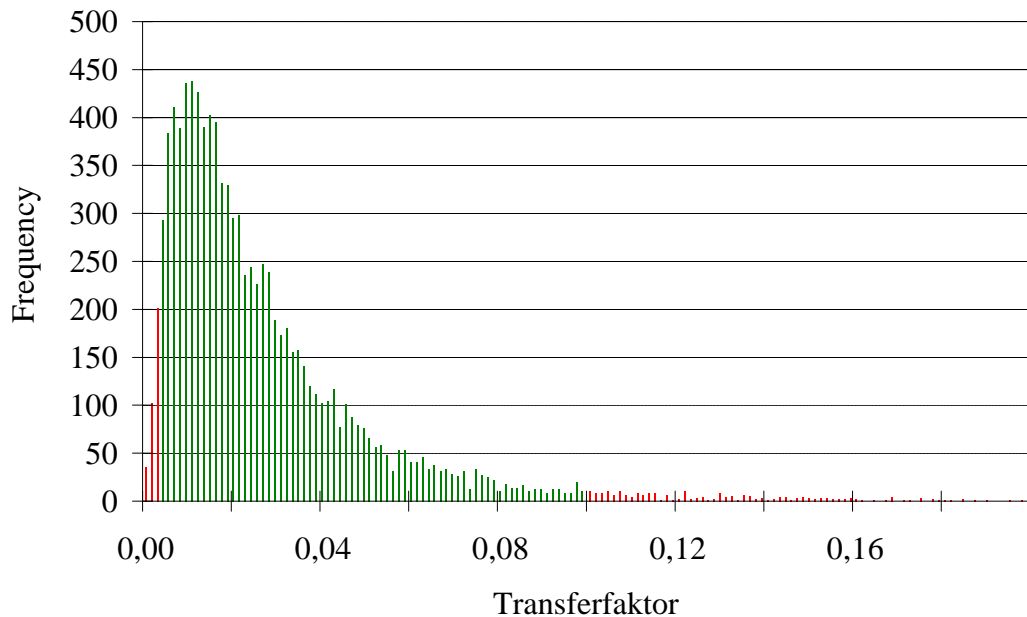


Abbildung 6.8: Verteilung des Transferfaktors für ^{40}K in Rindfleisch von Neßmerpolder. Der grün eingefärbte Bereich kennzeichnet den Vertrauensbereich zu einem Vertrauensniveau von 95 %.

ner Monte-Carlo-Simulation modelliert werden. Das Ergebnis dieser Simulation ist in Abbildung 6.8 dargestellt.

Man erkennt, dass die Verteilung des Transferfaktors für Rinder aus Neßmerpolder breiter ist im Vergleich zum Transfer in Rindern der Hermannsdorfer Landwerkstätten, was durch die zusätzlichen Schwankungsbreiten der spezifischen Aktivitäten der dem Kraftfuttergemisch beigesezten Nahrungsmitteln bedingt wird. Bildet man den Mittelwert der an beiden Standorten berechneten Transferfaktoren und faltet die Verteilungen entsprechend, so ergibt sich ein Transferfaktor für ^{40}K in Fleisch von 0,022 mit einer Schwankungsbreite von 0,006 - 0,060 (95 % Vertrauensniveau). Dies deckt sich gut mit dem in [TRS94] angegebenen Referenzwert von $TF_F = 0,02$. In Tabelle 6.9 sind zusammenfassend die berechneten Transferfaktoren und ihre Schwankungsbreite dargestellt.

6.6.2 Schaf

Schafsfleisch und das dazugehörige Futter konnten von den Hermannsdorfer Landwerkstätten bezogen werden. Wiederum war im Fleisch lediglich ^{40}K oberhalb der Nachweisgrenze messbar, so dass nur für dieses Nuklid der Transferfaktor berechnet werden konnte. Wie oben beschrieben, wurde auch für den Transfer in Schafsfleisch

Tabelle 6.9: Transferfaktoren für Rindfleisch.

	<i>EW</i>	<i>min</i>	<i>max</i>	am Besten beschrieben durch: ^a	<i>p</i> ^b
Neßmerpolder	0,029	0,0043	0,096	log-normal ^c	0,72
HLW	0,014	0,0024	0,048	log-normal ^d	0,96
gemittelt	0,022	0,0057	0,060		
Literatur					
[TRS94]	0,02				

^a Verteilung, die die modellierte Verteilung am Besten beschreibt.

^b p-Wert des χ^2 -Anpassungstests.

^c geo. MW. 0,021 und geo. Stabw. 2,2.

^d geo. MW. 0,011 und geo. Stabw. 2,2.

die Schwankungsbreite des Transferfaktors mittels einer Monte-Carlo-Simulation modelliert. Die gemachten Annahmen sowie den berechneten Transferfaktor zusammen mit der dazu gehörigen Schwankungsbreite können Tabelle 6.10 entnommen werden.

6.6.3 Schwein

Auch das untersuchte Schweinefleisch stammte von den Hermannsdorfer Landwerkstätten. Der Transferfaktor für ⁴⁰K ist zusammen mit dem für Schafe und Puten in Tabelle 6.10 dargestellt. Insgesamt ergab die Monte-Carlo-Simulation einen gegenüber dem Schaf erhöhten Transfer mit einer größeren Schwankungsbreite des Transferfaktors, was sich auch in einer größeren geometrischen Standardabweichung niederschlägt.

6.6.4 Pute

Das untersuchte Putenfleisch stammte vom Betrieb „Schessinghausen“. Dort wurden 18 Puten im Zeitraum vom 30.06.02 bis zur Schlachtung am 30.10.02 mit 500 kg reinem Putenfutter und 250 kg Weizenmehl gefüttert [Blo03]. Die daraus pro Pute und Tag resultierende Verzehrsmenge kann genauso wie die spezifische Aktivität des Futters und des untersuchten Putenfleisches wiederum Tabelle 6.10 entnommen werden.

Tabelle 6.10: Parameter und errechneter Transferfaktor für ^{40}K in Schaffsfleisch (HLW), Schweinefleisch (HLW) und Putenfleisch (Schessinghausen).

	Verteilung	<i>min</i>	<i>EW</i>	<i>max</i>	<i>GM</i> ^a	<i>GS</i> ^b	Quelle
Schaf							
Verzehrm. Heu in kg/d ^c	Dreieck	1,0	1,3	2,5			[TRS94]
spez. A. im Heu in Bq/kg ^c	log.-normal				491	1,3	diese Arbeit
spez. A. in Fleisch in Bq/kg	log.-normal				127	2,0 ^d	diese Arbeit
Transferfaktor TF_F(Schaf)		0,22^e (0,04 - 0,72)^f			0,16	2,14	
Schwein							
Verzehrm. Futter in kg/d ^c	Dreieck	2,0	2,4	3,0			[TRS94]
spez. A. im Futter in Bq/kg ^c	log.-normal				221	2,0 ^d	diese Arbeit
spez. A. in Fleisch in Bq/kg	log.-normal				109	2,0 ^d	diese Arbeit
Transferfaktor TF_F(Schwein)		0,32^e (0,03 - 1,37)^f			0,20	2,69	
Pute							
Verzehrm. Futter in kg/d ^c	Dreieck	0,21	0,23	0,25			[Blo03]
spez. A. im Futter in Bq/kg ^c	log.-normal				298	2,0 ^d	diese Arbeit
Verzehrm. Weizenmehl in kg/d ^c	Dreieck	0,10	0,11	0,12			[Blo03]
spez. A. in Weizenmehl in Bq/kg	log.-normal				80	1,5	diese Arbeit
spez. A. in Fleisch in Bq/kg	log.-normal				75	2,0 ^d	diese Arbeit
Transferfaktor TF_F(Pute)		1,41^e (0,15 - 5,64)^f			0,94	2,50	

^a GM steht für geometrischer Mittelwert.

^b GS steht für geometrische Standardabweichung.

^c bezogen auf das Trockengewicht.

^d geschätzt, da keine weiteren Informationen vorhanden.

^e nach Monte-Carlo-Simulation geschätzter Erwartungswert.

^f Schwankungsbereich bei 95 %igem Vertrauensintervall.

Tabelle 6.11: Transferfaktoren für ^{40}K in Kuhmilch.

Ort	<i>EW</i>	<i>min</i>	<i>max</i>	am Besten beschrieben durch: ^a	<i>p</i> ^b
Neßmerpolder	0,012	0,005	0,023	log-normal ^c	0,32
HLW	0,005	0,002	0,010	log-normal ^d	0,24
gemittelt	0,008	0,005	0,014	log-normal ^e	0,46
Literatur					
[TRS94]	0,007				
[AVVa]	0,006				
[NCR99]	0,007				

^a Verteilung, die die modellierte Verteilung am Besten beschreibt.

^b *p*-Wert des χ^2 -Anpassungstests.

^c geo. MW. 0,012 und geo. Stabw. 1,5.

^d geo. MW. 0,005 und geo. Stabw. 1,4.

^e geo. MW. 0,008 und geo. Stabw. 1,3.

Dabei wurde für die Verzehrsmenge eine 10 %ige Unsicherheit angenommen und die Verteilung derselben daher durch eine Dreiecksfunktion beschrieben. Der resultierende Transfer von ^{40}K in Fleisch liegt über dem in Schwein oder Schaf.

Die sowohl für den Transfer in Rinder als auch für den in Schafe, Schweine oder Puten erhaltenen Verteilungen lassen sich durch eine logarithmische Normalverteilung beschreiben. Dies folgt aus dem multiplikativen Grenzwertsatz der Statistik und ist auch schon in [Wat83] beschrieben worden.

6.7 Transfer in Milch

Die Beschreibung des Transfers in Milch erfolgt analog zu dem in Fleisch. Da die Menge der pro Tag aufgenommenen Aktivität schon im Abschnitt 6.6 beschrieben wurde (siehe Tabellen 6.7 und 6.8), wird an dieser Stelle auf eine Wiederholung verzichtet. Die Ergebnisse für den Transfer von ^{40}K in Milch sind in Tabelle 6.11 dargestellt.

Dabei ist der Transfer von ^{40}K in die Milch am Standort Neßmerpolder ungefähr doppelt so groß wie für Kühe der Hermannsdorfer Landwerkstätten. Faltet man die

beiden Verteilungen, die den Transfer an den unterschiedlichen Standorten beschreiben, so ergibt sich eine Verteilung, die durch einen Erwartungswert von 0,008 und einem 95 %igen Vertrauensbereich von 0,005 - 0,014 charakterisiert wird. Diese Verteilung wiederum lässt sich zufriedenstellend mit einer logarithmischen Normalverteilung (geo. MW. 0,008, geo. Stabw. 1,3) beschreiben. Im Vergleich mit der Literatur ergibt sich eine gute Übereinstimmung mit [TRS94], [AVVa] und [NCR99].

6.8 Zusammenfassung

Eine Übersicht über die in dieser Arbeit ermittelten Transferfaktoren findet man in Tabelle 6.12.

Zusammenfassend kann folgendes festgestellt werden:

- Die Annahme einer logarithmischen Normalverteilung der Transferfaktoren kann in der Regel bestätigt werden. Damit ist der Erwartungswert nach Gleichung (5.4) ein vernünftiger Schätzer des wahren Wertes. Die Schwankungsbreite des Transferfaktors kann durch die geometrische Standardabweichung beschrieben werden. Für Transferfaktoren, die sich aus der Faltung mehrerer Verteilungen ergeben (Transfer in Fleisch oder Milch), folgt die logarithmische Normalverteilung als Konsequenz aus dem multiplikativen Grenzwertsatz der Statistik.
- Für Isotope der natürlichen Zerfallsreihen ergibt sich (mit Ausnahme von Wurzelgemüse und Pilzen) für ^{210}Pb der höchste Transfer, was sich aus dem zusätzlichen Anteil von luftgetragenen ^{210}Pb als Folgeprodukt des ^{222}Rn erklären lässt. Untersuchungen darüber, welcher Bruchteil des ^{210}Pb über den Wurzelpfad aufgenommen wurde, konnten im Rahmen dieser Arbeit nicht durchgeführt werden. Allerdings finden sich in der Literatur für den Fall, dass lediglich der Wurzelpfad berücksichtigt wird, Werte, die um eine Größenordnung unter denen in dieser Arbeit ermittelten Transferfaktoren liegen [PF95], [Bun99]. Der im Vergleich zu den anderen Nukliden hohe Transfer von ^{40}K resultiert aus der Tatsache, dass Kalium als essentielles Spurenelement regulativ von der Pflanze aufgenommen und über das Phloemsystem in der Pflanze verteilt werden kann.
- Einen großen Transfer im Vergleich zu Getreide und Gemüse findet man für Weide- und Wiesenbewuchs. Während Blattgemüse einen höheren Transfer als Wurzelgemüse aufweist (in der Regel um einen Faktor 2 bis 5, bei ^{210}Pb um einen Faktor 10, Ausnahmen bildet ^{40}K), ist der Transfer von Wurzelgemüse mit dem von Getreidekorn (Ausnahme: ^{210}Pb) vergleichbar. Offensichtlich gelangt also, wie oben erwähnt, ein Großteil des ^{210}Pb durch Deposition auf die Blattoberfläche und wird von dort in das Pflanzeninnere weiter transportiert. So ist Blattgemüse stärker exponiert als Getreidekorn, das durch die Spreu ab-

Tabelle 6.12: Zusammenfassung der Transferfaktoren aus dieser Arbeit. Für Felder ohne Eintrag konnte kein Messwert oberhalb der Erkennungsgrenze ermittelt und somit kein Transferfaktor angegeben werden

Art	²¹⁰ Pb	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th	²³⁸ U	²³⁵ U	⁴⁰ K
Weide- und Wiesenbewuchs ^a	EW ^b						
geo. Stabw. ^c	0,351 2,1	0,022 2,1	0,038 2,7	0,022 2,5	0,047 1,1	0,040 2,2	1,27 1,4
Getreidekorn ^d	EW	0,018 2,9	0,005 2,1	0,010 2,8	0,004 2,5	0,006 3,4	0,38 2,0
geo. Stabw.							
Wurzelgemüse ^d	EW	0,003 ^e 3,2	0,001 3,2	0,003 6,5	0,001 7,6	0,006 1,8	0,39 2,2
geo. Stabw.							
Blattgemüse ^d	EW	0,024 3,9	0,009 3,4	0,008 2,1	0,006 5,3	0,004 2,9	0,24 1,8
geo. Stabw.							
Beeren ^d	EW	0,005 1,3	0,001 1,1	0,0002 ^e			0,08 1,3
geo. Stabw.							
Pilze ^d	EW	0,019 2,5		0,001 ^e	0,003 2,1	0,02 4,4	0,10 1,6
geo. Stabw.							
Fleisch ^d							0,02 (0,006-0,06) ^f 0,22 (0,04-0,72) ^f 0,32 (0,03-1,37) ^f 1,41 (0,15-5,64) ^f
Rind							
Schaf							
Schwein							
Pute							
Milch ^d							0,008 (0,005-0,014) ^f
Kuh							

^a bezogen auf das Trockengewicht.

^b Erwartungswert bei angenommener logarithmischer Normalverteilung des bei Bedarf durch das HELSEL-COHN-Verfahren ergänzten Datensatzes.

^c geometrische Standardabweichung des bei Bedarf durch das HELSEL-COHN-Verfahren ergänzten Datensatzes.

^d bezogen auf das Frischgewicht.

^e lediglich ein Messwert oberhalb der Erkennungsgrenze.

^f Erwartungswert der durch Monte-Carlo-Simulation erhaltenen Verteilung mit dem 95 %igen Vertrauensbereich in Klammern.

gedeckt wird, und dieses wiederum stärker exponiert als der essbare Teil des Wurzelgemüses. Während in [Nis76] berichtet wird, dass ^{226}Ra hauptsächlich im Wurzelbereich einer Pflanze akkumuliert werden kann und dort die ^{226}Ra -Konzentrationen dementsprechend um zwei bis drei Größenordnung über denen in den Blättern liegen, wurde in dieser Arbeit ein erhöhter Transfer in Blattgemüse im Vergleich zu Wurzelgemüse gefunden. Dies wird in [Wat83], [GN03] und [MB80] bestätigt, wo auf die Effektivität des Transportes von ^{226}Ra in die Blätter und auf die Möglichkeit der Anreicherung in diesen hingewiesen wird. Während für Blatt- und Wurzelgemüse der Transfer von ^{226}Ra dem von ^{228}Ra entsprach, wurde in dieser Arbeit für Getreidekorn und Weide- und Wiesenbewuchs ein etwa doppelt so hoher Transfer von ^{228}Ra berechnet. Dies deckt sich mit Untersuchungen aus [Lin89] und [Pau86], ist aber noch nicht verstanden.

- Der Transfer von ^{228}Th entspricht in der Regel dem von ^{226}Ra . Insgesamt ist die Aussagefähigkeit dieses Transferfaktors begrenzt, da ^{228}Th als direkte Tochter des ^{228}Ra unter Umständen eher den Transfer von ^{228}Ra widerspiegelt [Lin89], [Fri89], [Tho03]. Gerade bei Pflanzen mit einer langen Wachstumsperiode bis zur Ernte und bei Proben, die durch die organisatorisch bedingte Zeitspanne zwischen Ernte und γ -spektrometrischer Untersuchung über einen längeren Zeitraum hinweg gelagert werden mussten, kann davon ausgegangen werden, dass die dem Transferfaktor zugrunde liegende spezifische Aktivität in der Pflanze eine Mischung aus von der Pflanze aufgenommenem und in der Pflanze durch Zerfall in-situ gebildetem ^{228}Th darstellt.
- Die Anzahl der Transferfaktoren, die auf spezifischen Aktivitäten oberhalb der Erkennungsgrenze basieren, ist für beide Uranisotope ^{235}U und ^{238}U gering. Damit erschwert sich die repräsentative Ermittlung von Transferfaktoren, zumal das HELSEL-COHN-Verfahren für eine geringe Anzahl von signifikanten Werten nicht mehr vernünftig anwendbar ist. Insgesamt sollte bei der Benutzung von Transferfaktoren für Uran auf radiochemische Verfahren zurückgegriffen werden, solange die Untersuchungen zur Bestimmung des Transfers nicht in Gebieten erhöhter natürlicher Radioaktivität stattfinden.
- Wie schon oben erläutert, kann für Uran und Thorium Resuspension der entscheidene Transferpfad darstellen [Fri86], [Fri89]. Damit spielt die Probenaufbereitung vor allem bei Pflanzen mit einer großen Blattoberfläche eine nicht zu vernachlässigende Rolle bei der Ermittlung des Transferfaktors.
- Transferfaktoren in Fleisch und Milch konnten γ -spektrometrisch nur für ^{40}K bestimmt werden. Dabei fließt neben der Schwankungsbreite der spezifischen Aktivität auch die Variabilität der Verzehrsgewohnheiten der betrachteten Tiere mit in die Berechnung ein, so dass Transferfaktoren und deren Verteilungen nicht mehr analytisch sondern mit Hilfe einer Monte-Carlo-Simulation berechnet wurden. Die Ergebnisse stimmen für den Gehalt an ^{40}K in Rindfleisch und in Kuhmilch gut mit Angaben aus der Literatur überein. Für Schafe, Schweine

und Puten sind keine Vergleichswerte bekannt.

- Bei der Auswahl von Transferfaktoren aus der Literatur muss die jeweils interessierende Fragestellung berücksichtigt werden. Transferfaktoren aus Laborexperimenten finden unter wohldefinierten Bedingungen statt und spiegeln häufig nur den Transfer über den Wurzelpfad wider, weswegen diese Parameter meist eine Größenordnung kleiner sind im Vergleich zu Transferfaktoren, die in Freilandexperimenten unter realen Bedingungen bestimmt wurden. Die in dieser Arbeit berechneten Transferfaktoren wurden alle unter Freilandbedingungen ermittelt und lassen somit nur bedingt eine Differenzierung in verschiedene Transferpfade (z.B. zwischen Wurzelpfad und Resuspension) zu. Allerdings sollten Transferfaktoren, die unter Freilandbedingung bestimmt wurden, bei der Modellierung einer Strahlenexposition realistischere Größen darstellen als im Labor erhaltene Transferfaktoren.

7 Strahlenexposition durch natürliche Radionuklide

Ein Mensch, der von Statistik hört,
denkt dabei nur an Mittelwert.
Er glaubt nicht dran und ist dagegen,
ein Beispiel soll es gleich belegen:

Ein Jäger auf der Entenjagd
hat einen ersten Schuss gewagt.
Der Schuss, zu hastig nach aus dem Rohr
lag eine gute Handbreit vor.

Der zweite Schuss mit lautem Krach
lag eine gute Handbreit nach.
Der Jäger spricht ganz unbeschwert
voll Glauben an den Mittelwert:
Statistisch ist die Ente tot.

Doch wär' er klug und nähme Schrot
- dies sei gesagt, ihn zu bekehren -
er würde seine Chancen mehren:
Der Schuss geht ab, die Ente stürzt,
weil Streuung ihr das Leben kürzt.

Prof. Dr. P.H. List
[Hen99]

Ziel dieses Kapitels war die möglichst *realistische* Modellierung der Strahlenexposition durch natürliche Radionuklide und ihrer *Schwankungsbreite* für alle relevanten Expositionspfade. Damit wurde der Versuch unternommen, dem in [EUR96] formulierten Gedanken des Realismus bei Dosisabschätzungen Rechnung zu tragen und die Schwankungsbreite dementsprechend wirklichkeitsnah zu beschreiben.

Zunächst werden in aller Kürze die notwendigen begrifflichen Definitionen vorgestellt. Eine detaillierte Einführung in Grundbegriffe der Dosimetrie und der biologischen Wirkung ionisierender Strahlung findet man z.B. in [Vog92].

In der aktuellen Strahlenschutzverordnung [Str01] werden so genannte „operative Größen“ und „Schutzgrößen“ unterschieden. Operative Größen sind dabei durch Messungen zugänglich und sollten unter möglichst allen realistischen Expositionsbedingungen ausreichend genaue Schätzwerte für die Körperdosen liefern. Eine dieser operativen Größen ist die Energiedosis D . Sie ist definiert als das Verhältnis aus der Energie, die durch ionisierende Strahlung auf ein kleines Volumenelement eines spezifischen Materials übertragen wird, und der Masse dieses Volumens. Unter der Schutzgröße „Körperdosis“ wiederum versteht man nach [Str01] nicht direkt messbare Größen wie die Organdosis oder die effektive Dosis. Dabei beschreibt die effektive Dosis H das Risiko von stochastischen Wirkungen der Strahlenexposition und wird wie folgt definiert:

$$H = \sum_R \sum_T w_T w_R D_{T,R} \quad (7.1)$$

mit

- H = effektive Dosis in Sv,
- w_T = Gewebewichtungsfaktor,
- w_R = Strahlungswichtungsfaktor und
- $D_{T,R}$ = die in einem Gewebe, Organ oder Körperteil T über dessen Masse gemittelte durch interne oder externe Exposition mit der Strahlungsqualität R erzeugte Energiedosis in Gy.

Um an Hand der effektiven Dosis die Strahlenexposition durch natürliche Radionuklide in Niedersachsen oder auch im gesamten Bundesgebiet abschätzen zu können, müssen nun verschiedene Expositionspfade berücksichtigt werden. Merkliche Dosisbeiträge zur gesamten effektiven Dosis liefern

- die Ingestion von Radionukliden in Lebensmitteln (incl. Trinkwasser),
- die Direktingestion von Boden,
- die Inhalation von ^{222}Rn und den dazugehörigen Folgeprodukten,
- die Inhalation von Staub,
- die externe Bestrahlung durch Radionuklide im Boden, in Baumaterialien und durch die kosmische Strahlung.

Ziel der Modellierung war eine für jede der hier genannten Komponenten der natürlichen Strahlenexposition möglichst realistische Dosisabschätzung, die nach den Vorgaben aus [AVVb], [BGB99], [Str01] und [EUR96] für sechs Altersklassen, nämlich für unter Einjährige ($a < 1$), Ein- bis Zweijährige ($1 < a < 2$), Zwei- bis Siebenjährige ($2 < a < 7$), Sieben- bis Zwölfjährige ($7 < a < 12$), Zwölf- bis Siebzehnjährige ($12 < a < 17$) und über Siebzehnjährige ($a > 17$) durchgeführt wurde. Neben altersabhängigen Einflussgrößen variieren noch eine Reihe von weiteren Parametern, deren Schwankungs-

breiten sich in der Variabilität der natürlichen Strahlenexposition niederschlagen und die daher mit zu berücksichtigen waren. Nützliche Informationsquelle stellen dabei Angaben aus bereits existierenden Modellen oder Rechenvorschriften dar, die im Folgenden kurz vorgestellt werden.

7.1 Existierende Modelle

7.1.1 Allgemeine Verwaltungsvorschrift (AVV)

Die durch die Modellierung der Strahlenexposition gemäß der Allgemeine Verwaltungsvorschrift (AVV) zu § 47 der StrlSchV erhaltene Ergebnisse dienen „der Feststellung im Genehmigungsverfahren, ob der Strahlenschutzverantwortliche die technische Auslegung und den Betrieb seiner Anlagen oder Einrichtungen so geplant hat, dass die durch Ableitung radioaktiver Stoffe mit Luft oder mit Wasser bedingte Strahlenexposition die Dosisgrenzwerte des § 47 Abs. 1 der Strahlenschutzverordnung nicht überschreitet“ [AVVb]. Durch diese Zweckbestimmung ergeben sich, um die tatsächliche Strahlenexposition auf keinen Fall zu unterschätzen, konservative Annahmen, die für die Planung und Genehmigung von Anlagen oder Einrichtungen sinnvoll sein mögen, aber für die realistische Berechnung der Strahlenexposition nur bedingt anwendbar sind. So schreibt die AVV beispielsweise vor, bei der Modellierung der Dosis durch Ingestion mit den 95 %-Perzentilen der Verzehrsgewohnheiten zu rechnen. Diese Vorgehensweise ist in jedem Fall konservativ und nicht realistisch, da sie zum einen Korrelationen unberücksichtigt lässt und zum anderen zu einer massiven Überschätzung der tatsächlichen Verzehrsmenge führen muss. Desweiteren geht die AVV vom Erreichen eines Gleichgewichtszustandes in den zu betrachtenden Umweltkompartimenten aus. Zur Anpassung der AVV an den Stand von Technik und Wissen wurde diese 2003 neu überarbeitet [AVVb]. Dabei wurden unter anderem Transferfaktoren aus den Berechnungsgrundlagen Bergbau übernommen, die, wie oben gezeigt, in der Regel unter den Angaben in der alten AVV [AVVa] liegen. Es ergeben sich somit bei einer Modellierung unter Verwendung von [AVVb] geringere Expositionen im Vergleich zur Anwendung von [AVVa], die aber den prinzipiell sehr konservativen Charakter der AVV nicht berühren.

7.1.2 Berechnungsgrundlagen - Bergbau

Der eigentliche Anwendungsbereich der „Berechnungsgrundlagen zur Ermittlung der Strahlenexposition infolge bergbaubedingter Umweltradioaktivität (Berechnungsgrundlagen - Bergbau)“ ist die „Ermittlung der Strahlenexposition des Menschen in Interventionssituationen aufgrund bergbaulicher Hinterlassenschaften in den neuen Bundesländern“ [BGB99]. Dabei fordert die Strahlenschutzkommission (SSK) in den

Berechnungsgrundlagen - Bergbau als Konsequenz der Euratom Basic Safety Standards [EUR96] die *realistische* Berechnung der Strahlenexposition. Damit gehen die Berechnungsgrundlagen - Bergbau in dieser Hinsicht trotz einiger Annahmen, die immer noch einen deutlich konservativen Charakter tragen, über die Annahmen der AVV [AVVb] hinaus. Es können somit Parameter und Modellannahmen auch dann sinnvoller Weise von den Berechnungsgrundlagen - Bergbau übernommen werden, wenn sich das zu untersuchende Szenario nicht in allen Punkten mit dem oben zitierten Anwendungsbereich deckt. Insbesondere erweisen sich die Berechnungsgrundlagen - Bergbau unter anderem dann als wertvoll, wenn die Größe einer möglichen zusätzlichen Strahlenexposition durch natürliche Radionuklide auf Grund von anthropogenen Arbeiten oder Tätigkeiten abgeschätzt werden soll. Auf einen solchen Fall wird kurz im Ausblick dieser Arbeit eingegangen werden.

7.1.3 FARMLAND

FARMLAND (Food Aktivität from Radionuclide Movement on LAND) ist ein in Großbritannien von der NRPB entwickeltes Modell zur Beschreibung des Transfers von Radionukliden in der Nahrungskette terrestrischer Ökosysteme [Bro95]. Es ist modular zusammengesetzt und beinhaltet eigenständige Submodelle zur Quantifizierung des Transfers in bestimmten Teilen der Nahrungskette. Wie die meisten anderen Modelle auch, versucht FARMLAND in erster Linie die Verbreitung von Radionukliden nach einem Unfall-Szenario durch Fallout zu beschreiben. Daher liegen in FARMLAND detaillierte nuklidabhängige Informationen vor allem für künstliche Radionuklide wie z.B. ^{137}Cs , ^{90}Sr oder ^{131}I vor. Eine Abschätzung der effektiven Dosis sowohl als Folge von Fallout-Situationen wie auch als Folge von Emissionen von kerntechnischen Anlagen im Normalbetrieb wurde in [Ste01] vorgenommen, wo, allerdings wie oben erwähnt nur für künstliche Radionuklide, ebenfalls Annahmen über Verteilungen beschrieben werden.

7.1.4 PATHWAY

Ähnlich wie FARMLAND beschreibt das in den USA entworfene Modell PATHWAY [Whi87] den Transport von Radionukliden in terrestrischen Ökosystemen nach einem Fallout-Szenario. Dabei umfasst PATHWAY die Modellierung des Transfers und Transportes von 20 (in diesem Fall künstlichen) Radionukliden nach deren atmosphärischer Deposition bis hin zur Simulation der daraus resultierenden effektive Jahresdosis. Im Unterschied zu FARMLAND ist in PATHWAY eine Monte-Carlo-Simulation implementiert, die die Berechnung der Schwankungsbreite der Strahlenexposition durch Ingestion zeitabhängig modelliert.

7.1.5 ECOSYS-87

Mit ECOSYS-87 [Mül93] liegt ein in Deutschland konzipiertes Modell zur Simulation der radioökologischen Situation in Folge eines nuklearen Unfalls vor. Dieses Modell berücksichtigt neben der resultierenden Dosis durch Ingestion auch die Dosis durch externe Bestrahlung sowie die durch Inhalation von radioaktiven Substanzen. Auch hier wurde eine Unterteilung in oben genannten sechs Altersgruppen vorgenommen und versucht, die Schwankungsbreite der restlichen Parameter abzuschätzen. Da ECOSYS-87 auf für Deutschland typische Annahmen zurück greift, stellte das Modell somit eine wertvolle Quelle und Vergleichsmöglichkeit dar. Allerdings liegen, da eine Fallout-Situation nach einem Unfall modelliert wird, nuklidspezifische Parameter nur für künstliche Radionuklide vor.

Als weitere überaus nützliche Datenquellen haben sich für all diejenigen Expositionspfade, deren Beitrag zur Strahlenexposition nicht durch eigene Untersuchungen abgeschätzt werden konnte, die Materialbände des Bundesamtes für Strahlenschutz erwiesen [BfS95], [BfS98], [BfS97]. Es ist daher sehr bedauerlich, dass neuere Forschungsergebnisse nicht weiterhin in dieser Form publiziert werden.

Zusammen mit weiterer ergänzender Literatur, die im Detail weiter unter angeführt wird, bilden Parameter aus den eben beschriebenen Modellen die grundlegenden Annahmen bei der Berechnung der natürlichen Strahlenexposition. In manchen Modellen wird dabei neben der Schwankungsbreite der einzelnen Parameter auch deren Verteilung abgeschätzt, was eine genauere Beschreibung der getroffenen Annahmen ermöglicht. Diese durch Verteilung beschriebenen Parameter fließen dann in ein Modell zur Berechnung der Strahlenexposition ein, wobei Faltungen von unterschiedlichen Verteilungen auftreten, die analytisch nicht mehr berechnet werden können. Aus diesem Grund wurde, wie bei der Berechnung der Transferfaktoren in Milch und Fleisch schon oben erläutert, eine Monte-Carlo-Simulation durchgeführt, die als Ergebnis neben dem Erwartungswert der einzelnen Altersgruppen auch die Schwankungsbreite der effektiven Dosis durch die Bestimmungen eines 95 %igen Vertrauensbereiches bestimmt. Das zu diesem Zweck verwandte Programm CRYSTAL-BALL® soll daher im Folgenden Abschnitt kurz genauer vorgestellt werden.

7.2 CRYSTAL-BALL®

Wie oben erwähnt, steht mit CRYSTAL-BALL® ein Makro zur Verfügung, das in einem EXCEL®-Arbeitsblatt eine Monte-Carlo-Simulation durchführt. Dabei können allen einfließenden Parametern Verteilungen zugeordnet werden, die sich bei der anschließenden Simulation fortpflanzen und in einer Gesamtverteilung resultieren. Diese Verteilung kann grafisch unter Angabe von zusätzlichen Parametern wie z.B. beliebigen Perzentilen ausgegeben werden. Bei in dieser Arbeit durchgeführten Simulationen

wurden standardmäßig folgende Einstellung gewählt:

- Die Generierung der Zufallszahlen erfolgte nach der Methode des „Latin-hypercube-samplings“. Diese Methode erzeugt gleichmäßig verteilte Zufallsvariable entsprechend einer angenommenen Verteilung und beschreibt diese Verteilung mit einer höheren Genauigkeit verglichen mit der herkömmlichen Monte-Carlo-Methode. Allerdings erfordert das Erstellen von Zufallsvariablen mit dem „Latin-Hypercube-Verfahren“ mehr Rechenzeit und Speicherplatz.
- Jede in dieser Arbeit simulierte Verteilung wurde durch 100.000 Versuche beschrieben.
- Wenn möglich, wurde die resultierende Verteilung durch einen Reihe bekannter, kontinuierlicher Verteilungen gefittet. Nach dem multiplikativen Grenzwertsatz der Statistik erhält man durch die Multiplikation von unendlich vielen, beliebig verteilten, Parametern als Produkt eine logarithmisch normalverteilte Größe. In der Tat ergeben viele Simulationen eine rechtsschiefe Verteilung, die allerdings nicht immer zufriedenstellend durch eine logarithmische Normalverteilung beschrieben werden kann. Der Test auf verschiedenen Verteilungen kann ebenfalls mit CRYSTAL-BALL[®] durchgeführt werden. Dabei wurde als Maß für die Güte des Fits das χ^2 -Kriterium gewählt.

Mit Hilfe von CRYSTAL-BALL[®], Parametern aus oben erwähnten Modellen und der weiteren verfügbaren Literatur sowie eigenen Messungen wurde nun die natürliche Strahlenexposition für Deutschland und im Besonderen auch für Niedersachsen zusammen mit ihren Schwankungsbreiten abgeschätzt. Darauf soll im Folgenden detaillierter eingegangen werden. Bei Daten, die in den kommenden Abschnitten in Tabellenform dargestellt werden, wurden zum Teil mehr Stellen angegeben als die tatsächliche Genauigkeit der Daten erlaubt. Dies geschah, um die Nachvollziehbarkeit der Modellierungsergebnisse mit den hier genannten Daten zu ermöglichen.

7.3 Dosis durch Ingestion

Ein wichtiger Pfad bei der Betrachtung der Strahlenexposition durch natürliche Radionuklide ist die Ingestion von Radionukliden in Nahrungsmitteln und Trinkwasser. Dabei stehen zur Berechnung der internen Dosis durch Radionuklide dosimetrische und biokinetische Modelle zur Verfügung, die die zeitabhängige Retention in Organen oder im Gewebe als Folge der Ingestion beschreiben [Kau95]. Diese Modelle finden ihren Niederschlag in Dosiskoeffizienten, mit deren Hilfe sich bei der Inkorporation einer bestimmten spezifischen Aktivität eines Radionuklides die resultierenden effektive Jahresdosis bestimmen lässt. Diese Dosiskoeffizienten, die wiederum die oben erwähnten sechs Altersgruppen berücksichtigen, findet man in [ICR96] oder alternativ in [EUR96] oder [BGB99].

Tabelle 7.1: Dosisfaktoren $d_{i,g}$ für Ingestion nach [ICR96] in Sv/Bq.

Nuklid	<1a	1<a<2	2<a<7	7<a<12	12<a<17	a>17
²³⁸ U	1,2E-05	1,2E-07	8,0E-08	6,8E-08	6,7E-08	4,5E-08
²³⁴ U	1,5E-05	1,3E-07	8,8E-08	7,4E-08	7,4E-08	4,9E-08
²³⁰ Th	4,0E-05	4,1E-07	3,1E-07	2,4E-07	2,2E-07	2,1E-07
²²⁶ Ra	1,5E-05	9,6E-07	6,2E-07	8,0E-07	1,5E-06	2,8E-07
²¹⁰ Pb	5,0E-06	3,6E-06	2,2E-06	1,9E-06	1,9E-06	6,9E-07
²¹⁰ Po	1,5E-05	8,8E-06	4,4E-06	2,6E-06	1,6E-06	1,2E-06
²³⁵ U	1,3E-05	1,3E-07	8,5E-08	7,1E-08	7,0E-08	4,7E-08
²³¹ Pa	2,2E-06	1,3E-06	1,1E-06	9,2E-07	8,0E-07	7,1E-07
²²⁷ Ac	1,7E-03	3,1E-06	2,2E-06	1,5E-06	1,2E-06	1,1E-06
²³² Th	5,4E-05	4,5E-07	3,5E-07	2,9E-07	2,5E-07	2,3E-07
²²⁸ Ra	1,5E-05	5,7E-06	3,4E-06	3,9E-06	5,3E-06	6,9E-07
²²⁸ Th	1,6E-04	3,7E-07	2,2E-07	1,5E-07	9,4E-08	7,2E-08

In dieser Arbeit wurde, wenn möglich, für jeden Modellparameter eine realistische Verteilung mit Parametern wie Erwartungswert, Mittelwert, Standardabweichung usw. angenommen. Die einzige Ausnahme davon bilden die eben erwähnten Dosiskoeffizienten, da eine realistische Abschätzung ihrer Schwankungsbreite im Rahmen dieser Arbeit nicht vorgenommen werden konnte. Allerdings existieren Hinweise darauf, dass auch für Dosiskoeffizienten eine logarithmische Normalverteilung als vernünftig angesehen werden kann. So wird in [Har03b] berichtet, dass der Dosiskoeffizient für ¹³¹I durch eine logarithmische Normalverteilung mit einer geometrischen Standardabweichung von 2 gut beschrieben werden kann. Für andere Nuklide liegen jedoch keine gesicherten Informationen darüber vor, so dass in dieser Arbeit in einer Art Konvention Dosiskoeffizienten als Punktgrößen betrachtet wurden. Eine Zusammenstellung der in dieser Arbeit verwandten Dosisfaktoren für Ingestion kann Tabelle 7.1 entnommen werden.

Durch Anwendung dieser Dosisfaktoren wird nach einer Inkorporation die 50- bzw. für Kleinkinder die 70-Jahre-Folgedosis berechnet. Insgesamt wird daher von einem Gleichgewichtszustand der Radionuklidkonzentrationen ausgegangen. Dies gilt ebenso für die Strahlenexposition durch die Inhalation von Staub oder Radon, die später betrachtet werden wird.

Modell zur Dosis durch Ingestion von Lebensmitteln

Zur Abschätzung der effektiven Jahresdosis durch Ingestion bieten sich zwei verschiedene Möglichkeiten an:

1. Die Verwendung von spezifischen Aktivitäten in repräsentativ zusammengestellter Gesamtnahrung oder
2. die Abschätzung der Dosis unter Verwendung von spezifischen Aktivitäten einer repräsentativer Lebensmittelauswahl.

Obwohl in dieser Arbeit versucht wurde, möglichst viele verschiedene Lebensmittel zu untersuchen, wurde zur Berechnung der effektiven Dosis durch Ingestion auf die Gesamtnahrung zurückgegriffen, da

1. insgesamt kein repräsentativer Lebensmittelkorb untersucht wurde. In vielen Kategorien wurde lediglich ein oder gar kein Nuklid oberhalb der Nachweisgrenze gemessen (Milch, Fleisch). In anderen war die Anzahl der repräsentativen Messwerte zu klein. So gibt es für ^{210}Pb nur einen Wert in der Kategorie „Wurzelgemüse“, nämlich Einlegegurken.
2. manche Nuklide messtechnisch mit Hilfe der γ -Spektrometrie nicht ermittelt werden konnten. Ganz gravierend wirkt sich dies bei ^{210}Po aus, das einen sehr großen Dosiskoeffizient aufweist und nicht im Gleichgewicht mit ^{210}Pb stehen muss.
3. die Unsicherheiten und der Aufwand bei der Bestimmung der Ingestionsdosis durch die Modellierung der Aktivität in Lebensmitteln deutlich höher sind als bei der Untersuchung von Gesamtnahrung. Dies erkennt man beispielhaft schon an der Betrachtung des nach der Zubereitung verbliebenen Anteils der Aktivität für verschiedene Lebensmittel (siehe Tabelle 5.19 auf Seite 110), der für verschiedene Nuklide und Nahrungsmittel mit einer beträchtlichen Unsicherheit versehen ist. Verwendet man hingegen Gesamtnahrung, so fällt diese Unsicherheit nicht ins Gewicht, da er durch die Messung abgedeckt wird.

Aber auch der zweite Punkt spielt bei der Entscheidung, zur Dosisbestimmung auf Gesamtnahrung zurück zu greifen, eine wichtige Rolle. Bei der Ermittlung der Dosis unter Berücksichtigung aller einzelner Komponenten des Lebensmittelkorbes wäre für jedes Lebensmittel eine Abschätzung der spezifischen Aktivität des für das messtechnisch in dieser Arbeit nicht zu erfassende ^{210}Po unabdingbar notwendig gewesen, da ^{210}Po zusammen mit ^{210}Pb und ^{228}Ra die höchsten Dosiskoeffizienten aufweist (siehe Tabelle 7.1). Zwar können in der Literatur einige Hinweise auf das Verhältnis $^{210}\text{Pb}/^{210}\text{Po}$ in verschiedenen Lebensmitteln gefunden werden, allerdings sind diese Verweise nicht notwendigerweise repräsentativ oder vollständig. Gesicherte Informationen aus der Literatur gibt es bezüglich ^{210}Po vor allem für Fische und Krustentieren, für die eine Akkumulation von ^{210}Po beschrieben wird [Car95], [Ham01], [Kan01].

Für Gesamtnahrung lag mit [PF97] eine Literaturquelle vor, die von einem Verhältnis von $^{210}\text{Pb}/^{210}\text{Po}$ von 0,96 berichtet und die daher zur Abschätzung des $^{210}\text{Pb}/^{210}\text{Po}$ -Verhältnisses in der Gesamtnahrung verwendet wurde. Dies erscheint auch insofern gerechtfertigt, als dass dieses Verhältnis in repräsentativ zusammengestellter Gesamtnahrung in polnischen Großstädten ermittelt wurde und sich somit nicht signifikant von dem in deutscher oder niedersächsischer Gesamtnahrung unterscheiden sollte.

Der Nachteil bei der Verwendung von Gesamtnahrung aus Großküchen (wie der Hauptmensa der Universität Hannover) liegt sicherlich darin, dass regionale Unterschiede bei der Dosisabschätzung sowohl in den Verzehrsgewohnheiten als auch in den spezifischen Aktivitäten nicht mehr berücksichtigt werden können.

Insgesamt erfolgt die Abschätzung der effektiven Jahresdosis durch Ingestion an Hand des folgenden Modells:

$$H_{ing} = \dot{m} \sum_i d_{i,g} \cdot A_{Ges,i}, \quad (7.2)$$

wobei

- H_{ing} = effektive Jahresdosis durch Ingestion in Sv,
- \dot{m} = Jahresverzehrsmenge der Gesamtnahrung in kg,
- $d_{i,g}$ = Ingestions-Dosiskoeffizient für das Nuklid i in Sv/Bq und
- $A_{Ges,i}$ = spezifische Aktivität des Nuklids i in der Gesamtnahrung in Bq/kg

gilt.

Verteilung von Verzehrsgewohnheiten

Angaben zu Verzehrsgewohnheiten findet man mit für Deutschland typischen Werten z.B. in [Str01]. Dort werden Aussagen über Mittelwerte der Verzehrsmenge pro Jahr in den verschiedenen Lebensmittelkategorien (Gemüse, Obst, Getreide usw.) zusammen mit der jeweiligen Angabe eines Faktors f , der das 95 %-Perzentil beschreibt, getroffen. Leider sind außer diesem Mittelwert und den dazugehörigen 95 %-Perzentilen keine Angaben über Verteilung vorhanden, die die Schwankungsbreite der Verzehrsgewohnheiten charakterisieren. Ein Blick in die oben genannten Modelle zeigt, dass in [Ste01] ebenso wie in [Mül93] für die Verzehrsgewohnheiten eine Rechteckverteilung angenommen wird. In [Byr95] werden nur Quantile angegeben, da dort für die Modellierung abdeckend mit den 95 %- bzw. 97,5 %-Perzentilen gerechnet wird. In [NCR96a] wird für Faktoren mit einer Unsicherheit kleiner einem Faktor 10 eine Rechteckverteilung bzw. eine Dreiecksverteilung postuliert. Allerdings beschreiben Rechteck- oder Dreiecksverteilung typischer Weise nicht die tatsächlichen Verteilungen. Eine Alternative bietet sich mit der Annahme einer Normalverteilung oder einer logarithmischen Normalverteilung. Benutzt man nun die in [Str01] angegebenen Mittelwerte und 95 %-Perzentile, so ergeben sich in den unterschiedlichen Lebensmittel-

klassen zumeist solche Normalverteilung, bei denen ein nennenswerter Anteil (über 10 Prozent und z.T. noch deutlich mehr, da typischer Weise $f = 3$) im negativen Bereich liegt. Da aber negative Verzehrsgewohnheiten keinen Sinn ergeben, müsste die jeweilige Normalverteilung bei Null abgeschnitten werden. Dies wiederum führt zu einer Verschiebung der Erwartungswertes, der dann, da die abgeschnittene Verteilung nicht mehr symmetrisch ist, größer wäre als der ursprünglich angenommene Mittelwert. Insofern wäre eine Modellierung mit diesen Verteilungen nicht mehr konsistent mit einer Modellierung, die unter Vernachlässigung der Verteilung lediglich Punktgrößen verwendet.

Um dieses Problem zu lösen, bietet sich die Wahl der logarithmischen Normalverteilung an, deren Definitionsbereich ausschließlich im positiven Bereich liegt und deren Vorkommen in der Natur häufig beobachtet werden kann [Lim01]. Allerdings ist diese Verteilung nicht symmetrisch, so dass, wie in Gleichung (5.3) auf Seite 72 beschrieben, der Erwartungswert größer ist als der Median (der in diesem Fall mit dem geometrischen Mittelwert zusammenfällt). Folglich ist eine logarithmische Normalverteilung gesucht, deren Erwartungswert EW den in [Str01] angegebenen Mittelwerten und deren 95 %-Perzentil dem f -fachen des Erwartungswertes EW entspricht. Sei $k_{1-\alpha}$ der einseitige Erweiterungsfaktor zum Perzentil $P_{1-\alpha}$, μ der geometrische Mittelwert und σ die geometrische Standardabweichung der logarithmierten Verteilung (siehe Seite 71). Damit ist also die Lösung der Gleichungen

$$\exp\left(\mu + \frac{\sigma^2}{2}\right) = EW \quad (7.3)$$

und

$$\exp(\mu + k_{1-\alpha} \cdot \sigma) = P_{1-\alpha} \quad (7.4)$$

gesucht. Logarithmieren der Gleichungen (7.3) und (7.4) sowie elementare Umformungen liefern für σ eine quadratische Gleichung mit den Lösungen

$$\sigma_{1/2} = k_{1-\alpha} \pm \sqrt{k_{1-\alpha}^2 + 2 \cdot \ln(1/f)} \quad (7.5)$$

$$\mu_{1/2} = \ln(P_{1-\alpha}) - k_{1-\alpha} \cdot \sigma_{1/2}. \quad (7.6)$$

Dieses Gleichungssystem besitzt also genau dann zwei Lösungen, wenn $k_{1-\alpha}^2 > 2 \ln(f)$ gilt. Für den Fall $k_{1-\alpha}^2 = 2 \ln(f)$ existiert genau eine Lösung, wohingegen bei $k_{1-\alpha}^2 < 2 \ln(f)$ keine Lösung der Gleichungen vorhanden ist. Für die typische Annahme von $1 - \alpha = 0,95$ folgt $k_{1-\alpha} = 1,645$, so dass dieses Gleichungssystem für $f < 3,87$ zwei Lösungen, für $f \approx 3,87$ eine Lösung und für $f > 3,87$ keine Lösung besitzt. Der in [Str01] angegebene Faktor f zur Abschätzung des 95%-Perzentils liegt mit Ausnahme des Fischverzehrs bei 2 oder 3, so dass in diesen Fällen zwei Lösungen

Tabelle 7.2: Zusammenhang zwischen f und der geometrischen Standardabweichung ($GS = \exp(\sigma)$) nach Gleichung (7.5) für $k_{1-\alpha} = 1,645$.

f	$GS_1 = \exp(\sigma_1)$	$GS_2 = \exp(\sigma_2)$
2	16,34	1,64
3	10,57	2,54
5	Radikant in Gleichung (7.5) negativ	Radikant in Gleichung (7.5) negativ

der Gleichungen (7.3) und (7.4) vorhanden sind. Im Fall des Fischverzehr hingegen gilt $f = 5$, so dass keine Lösung existiert.

Zur Beurteilung, welche der zwei mathematisch möglichen Lösungen die tatsächliche Verteilung der Daten am Besten beschreibt, kann der Vergleich der geometrischen Standardabweichung dienen. Wie anhand von Gleichung (7.5) zu sehen ist, bestimmt bei festgelegtem $k_{1-\alpha}$ lediglich die Wahl von f die geometrische Standardabweichung der logarithmischen Normalverteilung. In Tabelle 7.2 sind für $f \in (2, 3, 5)$ die geometrischen Standardabweichungen $GS = \exp(\sigma_{1/2})$ aufgeführt.

Wegen $EW = \exp(\mu + \sigma^2/2)$ führen bei festem EW sehr große geometrischen Standardabweichungen zu kleinen geometrischen Mittelwerten, was beispielhaft für die Altersgruppe $1 < a < 2$ in Tabelle 7.3 dargestellt wurde. Man erkennt zusätzlich, dass bei der Lösung (GM_1, GS_1) ein größeres f zu einer kleineren geometrischen Standardabweichung führt, da in diesem Fall das positive Vorzeichen der Wurzel in Gleichung (7.5) gewählt wurde.

Aus diesen Gründen wurde zur Modellierung der Verzehrsgewohnheiten die Lösung mit dem negativen Vorzeichen vor der Wurzel in Gleichung (7.5) verwandt (also GM_2 mit GS_2).

Für den Verzehr von Fisch wurde der in [Str01] angegebenen Mittelwert mit dem geometrischen Mittelwert gleichgesetzt. Diese führt zu einer Überschätzung der Verzehrsgewohnheiten für Fisch, was aber auf Grund des geringen Anteils von Fisch an der gesamten Verzehrsmenge vernachlässigbar erscheint¹. Somit wurden bei der Modellierung der effektiven Jahresdosis durch Ingestion für jede Altersklasse die Summe der in Tabelle 7.4 dargestellten Verteilungen angenommen, die wiederum als Faltung der Einzelverteilungen anzusehen ist und durch CRYSTAL-BALL[®] bestimmt werden konnte.

¹Tatsächlich liegt die Überschätzung der Gesamtverzehrsmenge auf Grund dieser Annahme bei allen Altersgruppen deutlich unter 1 %.

Tabelle 7.3: Angaben über die mathematisch möglichen Verteilungen der Verzehrsgewohnheiten. Exemplarisch aufgeführt sind die Lösungen von Gleichung (7.5) für die Altersgruppe $1 < a < 2$.

	$EW^{a,b}$	f	GM_1^b	GS_1	GM_2^b	GS_2
Milch, Milchprodukte	160	3	9,9	10,6	104	2,5
Fleisch, Wurst, Eier	13	2	0,3	16,3	11,5	1,6
Getreide, Getreideprodukte	30	2	0,6	16,3	26,5	1,6
einheimisches Frischobst	45	3	2,8	10,6	29,2	2,5
Kartoffeln, Wurzelgemüse	40	3	2,5	10,6	25,9	2,5
Blattgemüse	6	3	0,4	10,6	3,89	2,5
Gemüse, Gemüseprodukte	17	3	1,1	10,6	11,0	2,5

^a in [Str01] angegebener Mittelwert und zugleich Erwartungswert der durch $\mu_{1/2}$ und $\sigma_{1/2}$ beschriebenen logarithmischen Normalverteilungen.

^b Angaben in kg/a.

Verteilung der spezifischen Aktivität in Gesamtnahrung

Wie Seite 105 entnommen werden kann, lagen für die in dieser Arbeit untersuchte Gesamtnahrung lediglich für ^{226}Ra , ^{228}Th und ^{40}K ausreichend viele Werte oberhalb der Erkennungsgrenze vor, um nach Anwendung des HELSEL-COHN-Algorithmus eine repräsentative Aussage über die spezifische Aktivität treffen zu können. Während die Ingestionsdosis von ^{40}K auf Grund der homöostatischen Kontrolle von Kalium gesondert zu betrachten ist und nicht durch Gleichung (7.2) beschrieben werden kann, wurden Informationen für die restlichen Nuklide aus den Zerfallsreihen [BfS01] entnommen. Leider sind die Angaben in [BfS01] nur unvollständig dokumentiert. Aus den dort angegebenen Werten (Median, Minimalwert und Maximalwert und Anzahl der Messwerte) wurde daher in dieser Arbeit unter der Hypothese der logarithmischen Normalverteilung Erwartungswert und geometrische Standardabweichung der spezifischen Aktivität geschätzt. Insgesamt sind die angenommenen spezifischen Aktivitäten aller Radionuklide aus den Zerfallsreihen zusammen mit ihren Verteilungen und den dazugehörigen Parametern in Tabelle 7.5 angegeben.

Wie schon oben erwähnt, muss die Abschätzung der Ingestionsdosis für ^{40}K gesondert vorgenommen werden. Die Gleichgewichtskonzentration von ^{40}K ist altersabhängig und führt nach [UNS00] zu einer effektiven Jahresdosis von 0,185 mSv für unter Zwölfjährige und 0,165 mSv für über Zwölfjährige.

Gesondert zu betrachten ist auch die Gruppe der unter Einjährigen. Zwar findet man in

Tabelle 7.4: Modellannahmen für die Verzehrsgewohnheiten bei der Ingestion von Lebensmitteln.

	a<1			1<a<2			2<a<7					
	EW ^{a,b}	P ₉₅ ^b	GM	GS	EW ^{a,b}	P ₉₅ ^b	GM	GS	EW ^{a,b}	P ₉₅ ^b	GM	GS
Milch, Milchprodukte	45	135	29,2	2,5	160	480	104	2,5	160	480	104	2,5
Fisch	0,5	3	0,50	2,7	3,0	15	3,00	2,7	3,0	15	3,00	2,7
Fleisch, Wurst, Eier	5	10	4,4	1,6	13	26	11,5	1,6	50	100	44,2	1,6
Getreide, Getreideprodukte	12	24	10,6	1,6	30	60	26,5	1,6	80	160	70,7	1,6
einheimisches Frischobst	25	75	16,2	2,5	45	135	29,2	2,5	65	195	42,1	2,5
Kartoffeln, Wurzelgemüse	30	90	19,4	2,5	40	120	25,9	2,5	45	135	29,2	2,5
Blattgemüse	3	9	1,94	2,5	6	18	3,89	2,5	7	21	4,54	2,5
Gemüse, Gemüseprodukte	5	15	3,2	2,5	17	51	11,0	2,5	30	90	19,4	2,5
Summe	125,5				314,0				440,0			

	7<a<12			12<a<17			a>7					
	EW ^{a,b}	P ₉₅ ^b	GM	GS	EW ^{a,b}	P ₉₅ ^b	GM	GS	EW ^{a,b}	P ₉₅ ^b	GM	GS
Milch, Milchprodukte	170	510	110	2,5	170	510	110	2,5	130	390	84,2	2,5
Fisch	4,5	23	4,50	2,7	5,0	25	5,00	2,7	7,5	38	7,50	2,7
Fleisch, Wurst, Eier	65	130	57,5	1,6	80	160	70,7	1,6	90	180	79,6	1,6
Getreide, Getreideprodukte	95	190	84,0	1,6	110	220	97,3	1,6	110	220	97,3	1,6
einheimisches Frischobst	65	195	42,1	2,5	60	180	38,9	2,5	35	105	22,7	2,5
Kartoffeln, Wurzelgemüse	55	165	35,6	2,5	55	165	35,6	2,5	55	165	35,6	2,5
Blattgemüse	9	27	5,83	2,5	11	33	7,13	2,5	13	39	8,42	2,5
Gemüse, Gemüseprodukte	35	105	22,7	2,5	35	105	22,7	2,5	40	120	25,9	2,5
Summe	498,5				526,0				480,5			

^a Angaben in kg/a.^b [Str01] entnommen.

Tabelle 7.5: Zusammenstellung der zur Modellierung verwandten spezifischen Aktivitäten von Gesamtnahrung in Bq/kg.

Nuklid	Verteilung	EW^a	GM^b	GS^c	Quelle
^{238}U	log-normal	0,007	0,005	2,1	[BfS01]
^{234}U	log-normal	0,014	0,012	1,7	[BfS01]
^{230}Th	log-normal	0,002	0,002	1,4	[BfS01]
^{226}Ra	log-normal	0,060	0,040	2,2	diese Arbeit
^{210}Pb	log-normal	0,038	0,032	1,8	[BfS01]
^{210}Po	log-normal	0,037	0,030	1,9	berechnet aus [PF97] ^d
^{232}Th	log-normal	0,002	0,002	1,5	[BfS01]
^{228}Ra	log-normal	0,036	0,034	1,4	[BfS01]
^{228}Th	log-normal	0,021	0,016	2,2	diese Arbeit

^a Erwartungswert der logarithmischen Normalverteilung in Bq/kg.

^b geometrischer Mittelwert in Bq/kg.

^c geometrische Standardabweichung.

^d berechnet aus dem in [PF97] angegebenen $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ -Verhältnis. Dabei wurde angenommen, dass dieses Verhältnis logarithmisch normalverteilt sei ($EW = 0,96$, $GM = 0,93$, $GS = 1,32$).

Tabelle 7.4 Informationen über die Verzehrsgewohnheiten von Säuglingen, allerdings kann die Gesamtnahrung gemäß Tabelle 7.5 für Säuglinge nicht mehr als repräsentativ angesehen werden. Da im Rahmen dieser Arbeit keine Säuglingsnahrung untersucht werden konnte, wurde auf in [BfS03a] veröffentlichte Werte der spezifischen Aktivität in Säuglingsnahrung zurückgegriffen. Leider ist auch hier die Dokumentation seitens des BfS recht dürftig. So sind neben der Anzahl der untersuchten Nahrungsproben wiederum lediglich Minimal-, Maximal- und Medianwerte angegeben. Da auch hier davon ausgegangen werden kann, dass die spezifische Aktivität logarithmisch normalverteilt ist, wurde aus den bekannten Informationen die Kennwerte der Verteilung wie geometrisches Mittel, geometrische Standardabweichung und der Erwartungswert rekonstruiert. Ein Überblick über die so ermittelten Verteilungen der spezifischen Aktivität in Säuglingsnahrung findet man in Tabelle 7.6.

Ingestion von Trinkwasser

Trinkwasser wurde, wie schon in Kapitel 5.10 erläutert, im Rahmen dieser Arbeit nicht auf seinen Gehalt an natürlichen Radionukliden untersucht. Daten zur spezifischen

Tabelle 7.6: Zusammenstellung der zur Modellierung verwandten spezifischen Aktivitäten von Säuglingsnahrung in Bq/kg.

Nuklid	Verteilung	EW^a	GM^b	GS^c	Quelle
^{238}U	log-normal	0,007	0,007	1,3	[BfS03a]
^{234}U	log-normal	0,008	0,006	2,0 ^d	[BfS03a]
^{230}Th	log-normal	0,003	0,002	1,8	[BfS03a]
^{226}Ra	log-normal	0,022	0,019	1,6	[BfS03a]
^{210}Pb	log-normal	0,039	0,034	1,7	[BfS03a]
^{210}Po	log-normal	0,037	0,032	1,8	berechnet aus [PF97] ^e
^{232}Th	log-normal	0,001	0,001	2,0 ^d	[BfS03a]
^{228}Ra	log-normal	0,022	0,021	1,4	[BfS03a]
^{228}Th	log-normal	0,007	0,005	1,9	[BfS03a]

^a Erwartungswert der logarithmischen Normalverteilung in Bq/kg.

^b geometrischer Mittelwert in Bq/kg.

^c geometrische Standardabweichung.

^d da in [BfS03a] nur ein Messwert angegeben war, wurde eine geometrische Standardabweichung von 2,0 angenommen.

^e berechnet aus dem in [PF97] angegebenen $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ -Verhältnis. Dabei wurde angenommen, dass dieses Verhältnis logarithmisch normalverteilt sei ($EW = 0,96$, $GM = 0,93$, $GS = 1,32$).

Aktivität natürlicher Radionuklide in Trinkwasser findet man wiederum in [BfS01]. Ein Großteil der dort veröffentlichten Untersuchungen von Trinkwasser fand jedoch in Gegenden durch Bergbau stark erhöhter natürlicher Radioaktivität statt, so dass zwar Medianwerte für Gebiete nicht erhöhter natürlicher Radioaktivität dort abgeschätzt, die Schwankungsbreiten jedoch nicht mehr als repräsentativ für Deutschland oder gar für Niedersachsen angesehen werden können. Für die Variabilität konnte daher für Deutschland lediglich Information aus [BfS03b] benutzt werden, wo wenigstens für ^{226}Ra die für ganz Deutschland repräsentative Schwankungsbreite veröffentlicht wird. Folglich wurde, was eher als konservativ anzusehen ist, die geometrische Standardabweichung von 3,17 des für Deutschland durchschnittlichen ^{226}Ra -Gehaltes für alle Nuklide übernommen. Wiederum lediglich für ^{226}Ra lagen noch weiter gehende Untersuchungen vor [BfS03b], in denen auch nach Bundesländer differenziert wurde. Die dort angegebene geometrische Standardabweichung von 2,46 für Niedersachsen wurde wie für Deutschland für alle Nuklide übernommen.

Tabelle 7.7: Zusammenstellung der zur Modellierung verwandten spezifischen Aktivitäten von Trinkwasser für Deutschland und Niedersachsen in mBq/l.

Nuklid	Deutschland				Niedersachsen			
	Verteilung	<i>EW</i>	<i>GM</i> ^a	<i>GS</i> ^b	Verteilung	<i>EW</i>	<i>GM</i> ^a	<i>GS</i> ^b
²³⁸ U	log-normal	9,73	5,00	3,17	log-normal	7,50	5,00	2,46
²³⁴ U	log-normal	11,7	6,00	3,17	log-normal	9,00	6,00	2,46
²³⁰ Th ^c	log-normal	2,66	1,57	2,80	log-normal	2,66	1,57	2,80
²²⁶ Ra	log-normal	9,36	4,81	3,17	log-normal	5,55	3,70	2,46
²¹⁰ Pb	log-normal	2,92	1,50	3,17	log-normal	2,25	1,50	2,46
²¹⁰ Po	log-normal	0,97	0,50	3,17	log-normal	0,75	0,50	2,46
²³⁵ U	log-normal	0,58	0,30	3,17	log-normal	0,45	0,30	2,46
²³² Th	log-normal	0,19	0,10	3,17	log-normal	0,15	0,10	2,46
²²⁸ Ra	log-normal	5,84	3,00	3,17	log-normal	4,50	3,00	2,46
²²⁸ Th	log-normal	0,39	0,20	3,17	log-normal	0,30	0,20	2,46

^a geometrische Mittelwerte wurden [BfS01] entnommen.

^b geometrische Standardabweichungen wurden [BfS03b] entnommen.

^c für ²²⁸Th lagen keine Angaben für nicht erhöhte Gebiete vor. Deshalb wurde unter in Kaufnahme einer Überschätzung für dieses Radionuklide *GM* und *GS* aus Gebieten erhöhter natürlicher Radioaktivität übernommen.

Alle in der sich anschließenden Modellierung angenommenen spezifischen Aktivitäten können zusammen mit ihren Quellen, den postulierten Verteilungen und den dazugehörigen Parametern Tabelle 7.7 entnommen werden.

Die altersabhängigen Verzehrsgewohnheiten von Trinkwasser entstammen wiederum [Str01]. Aus den dort getroffenen Annahmen inclusive der dort durch einen Faktor abgeschätzten 95 %-Perzentile wurden wie oben für die Gesamtnahrung beschrieben unter der Annahme einer logarithmischen Normalverteilung die Parameter derselben bestimmt. Die Verzehrsgewohnheiten von Trinkwasser können Tabelle 7.8 entnommen werden.

Tabelle 7.8: Verzehrsgewohnheiten von Trinkwasser für Deutschland und Niedersachsen in kg/a.

Altersklasse	<i>EW</i> ^a	P₉₅ ^a	<i>GM</i>	<i>GS</i>
1 < a < 2	100	200	88	1,64
2 < a < 7	100	200	88	1,64
7 < a < 12	150	300	133	1,64
12 < a < 17	200	400	177	1,64
a > 17	350	700	309	1,64

^a [Str01] entnommen.

Ingestion von Säuglingsnahrung

Man findet in Tabelle 7.8 keine Angaben für unter Einjährige, da diese auf Grund des möglichen Verzehrs von Muttermilch gesondert zu betrachten sind. Die Dosis durch Ingestion für unter Einjährige setzt sich somit aus drei verschiedenen Komponenten zusammen:

- Verzehr von Muttermilch,
- Verzehr von Säuglingsmilchnahrung, die in der Regel als Mischung von Trinkwasser und industriell hergestelltem Milchersatz angeboten wird,
- Verzehr von Beikost.

Der letzte Punkt wurde bereits durch die Betrachtung der Säuglingsnahrung berücksichtigt. Je nachdem, ob das unter einjährige Kind gestillt wird oder nicht, sind nach [Str01] der Verbrauch von 55 Litern Trinkwasser und 145 Litern Muttermilch und Milchfertigprodukte mit Trinkwasser pro Jahr oder, im Falle des Verzichts auf Muttermilch, der Verbrauch von 170 Litern Trinkwasser pro Jahr anzusetzen. Da die spezifischen Aktivitäten des Trinkwassers als bekannt angesehen werden können (siehe Tabelle 7.7), bleibt als gesondert zu betrachtender Pfad die Strahlenexposition durch die Ingestion von Muttermilch. Der in der [Str01] angegebene Faktor zur Bestimmung des 95 %-Perzents resultiert im Wesentlichen aus der Variabilität der Stilldauer [SSK03]. Dies kann zu dem mathematischen Artefakt führen, dass die vom Säugling rechnerisch inkorporierte Aktivität höher ist als die mit der Muttermilch zugeführte Aktivität. Um dies zu vermeiden, wurde von der SSK in [SSK03] die Einführung so genannter „transferierter Bruchteile“ empfohlen, die den elementspezifischen Bruchteil der von der Mutter inkorporierten Radionuklide, die durch die Muttermilch dem Säugling zugeführt wird, beschreiben. Diese transferierten Bruchteile hängen somit von dem

Tabelle 7.9: [SSK03] entnommene transferierte Bruchteile für den Ingestionspfad ($f_r^{MM,g}$) und den Inhalationspfad ($f_r^{MM,h}$) zur Bestimmung des Übergangs inkorporierter Radionuklide in die Muttermilch. Der Berechnung zu Grunde gelegt wurde der Erwartungswert der Tagesmenge an Muttermilch.

	Pb	Po	Ra	Ac	Th	Pa	U
$f_r^{MM,g}$	0,05	0,5	0,2	0,0005	0,02	0,005	0,01
$f_r^{MM,h}$	0,07	0,3	0,3	0,2	0,2	0,09	0,1

Zeitraum ab, den der Säugling gestillt wird und wurden sowohl für den Ingestionspfad als auch für den Inhalationspfad abgeleitet. Die in Tabelle 7.9 angegebenen transferierten Bruchteile gehen von einem Erwartungswert der Verzehrsmenge von Muttermilch von 549 g/d aus, der aus einer aktuellen Erhebung des Forschungsinstitut für Kinderernährung Dortmund stammt [SSK03]. Da keine Informationen über die Schwankungsbreite der transferierten Bruchteile in die Muttermilch verfügbar waren, wurden diese als Punktschätzer behandelt.

Zusätzlich zur bereits oben implizit angegebenen inkorporierten nuklidspezifischen Aktivität pro Jahr für Erwachsene (nämlich als spezifische Aktivität in der Gesamtnahrung multipliziert mit der Verzehrsmenge unter Berücksichtigung der dort beschriebenen Verteilungen), wurden die in Abschnitt 7.6 gegebenen Informationen zur Modellierung des Transfers von der Atemluft in die Muttermilch herangezogen. Allerdings sei an dieser Stelle darauf hingewiesen, dass die spezifische Aktivität in der Atemluft in Gegenden nicht erhöhter natürlicher Radioaktivität so gering ist, dass dieser Pfad beim Transfer in die Muttermilch trotz der in Tabelle 7.9 dargestellten und zum Teil doch recht hohen transferierten Bruchteile für Inhalation vernachlässigt werden kann.

Ergebnisse

Mit den oben beschriebenen Annahmen konnte nun eine Monte-Carlo-Simulation zur Abschätzung des Erwartungswertes und der Schwankungsbreite der Strahlenexposition durch die Ingestion von natürlichen Radionukliden altersabhängig durchgeführt werden. Da für manche Parameter Informationen zur zusätzlichen Differenzierung zwischen Niedersachsen und Deutschland vorlagen, wurde diese Modellierung für Niedersachsen und Deutschland getrennt durchgeführt und die Ergebnisse in Tabelle 7.10 dargestellt.

Tabelle 7.10: Effektive Jahresdosis durch Ingestion von Nahrungsmitteln und Trinkwasser für Niedersachsen und Deutschland in mSv.

	a<1	1<a<2	2<a<7	7<a<12	12<a<17	> 17a
<i>Niedersachsen</i>						
<i>EW</i>	0,84	0,42	0,37	0,37	0,39	0,22
<i>VB^a</i>	0,47-1,60	0,25-0,89	0,25-0,68	0,25-0,64	0,25-0,70	0,19-0,31
<i>Niedersachsen</i>						
<i>EW</i>	0,84	0,41	0,36	0,36	0,39	0,22
<i>VB^a</i>	0,47-1,60	0,25-0,87	0,25-0,65	0,25-0,61	0,25-0,62	0,19-0,30

^a *VB* = 95 %ige Vertrauensbereich.

Man erkennt, dass die Dosis für unter Einjährige im Vergleich zu den anderen Altersklassen ungefähr doppelt so groß ist. Ab dem zweiten Lebensjahr bleibt die effektive Dosis durch Ingestion im Wesentlichen konstant und nimmt erst in der Altersgruppe der Erwachsenen nochmals um 40 % ab. Der leichte Anstieg bei der Altersklasse 12<a<17 ist dabei Folge des hohen Dosiskoeffizienten für ²²⁸Ra (siehe Tabelle 7.1 auf Seite 155). Insgesamt kann festgestellt werden, dass mit zunehmenden Alter nicht nur der Erwartungswert der effektiven Dosis sondern ebenfalls die Schwankungsbreite deutlich abnimmt. Die geringen Unterschiede zwischen der effektiven Jahresdosis für den Bereich der gesamten Bundesrepublik Deutschland und Niedersachsen sind Folge aus den unterschiedlichen Konzentrationen im Trinkwasser und in der Gesamtnahrung, wo für Deutschland eigene gemessene Werte durch Angaben aus [BfS01] ersetzt wurden, die leicht unter denen in dieser Arbeit ermittelten lagen. Zusammenfassend kann festgestellt werden, dass die lokalen Unterschiede in der Ingestionsdosis gering sind, was, wie oben angemerkt, bei der Berechnung auf Grundlage von Gesamtnahrung auch nicht anders zu erwarten ist.

In Abbildung 7.1 sind die Anteile der einzelnen Expositionspfade an der Dosis durch Ingestion dargestellt. Man erkennt ganz deutlich, dass die Dosis durch Ingestion von Trinkwasser im Vergleich zur Dosis durch Ingestion von Gesamtnahrung vernachlässigbar klein ist. Für den unter Einjährigen hingegen wird die Dosis durch den Verzehr von Muttermilch dominiert, auch hier spielt allerdings der Verzehr von Trinkwasser keine relevante Rolle.

Betrachtet man den Anteil der einzelnen Nuklide an der Ingestionsdosis, so fällt auf, dass die dosisrelevanten Nuklide durch ⁴⁰K, ²²⁸Ra, ²¹⁰Po, ²¹⁰Pb und ²²⁶Ra gegeben

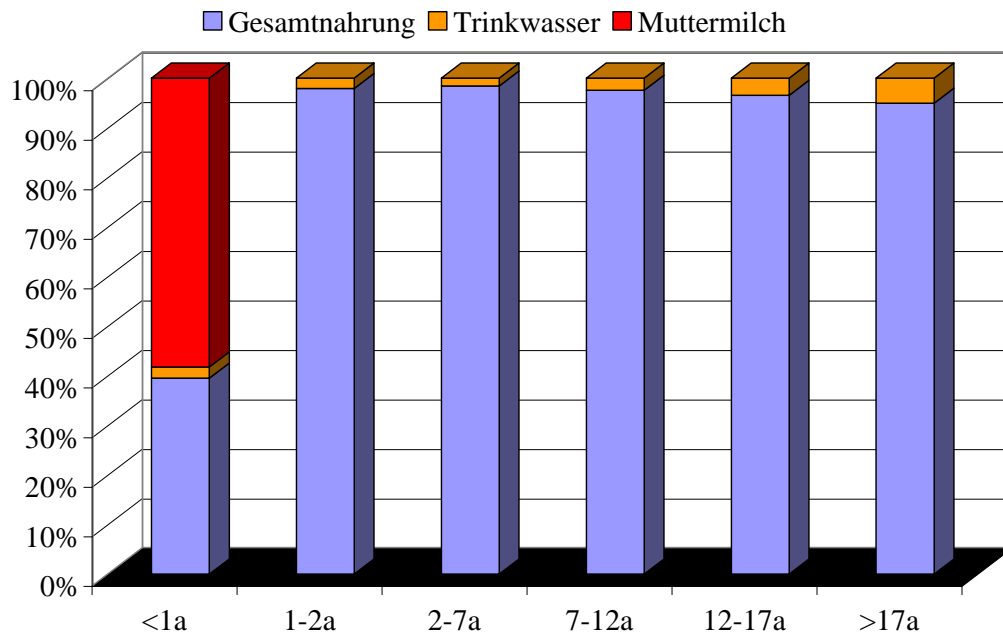


Abbildung 7.1: Anteile der einzelnen Expositionspfade an der Dosis durch Ingestion.

sind; alle anderen Nuklide tragen in ihrer Summe zu deutlich weniger als einem Prozent der Ingestionsdosis bei. Eine altersabhängige Darstellung des Anteils der untersuchten Nuklide an der effektiven Dosis durch Ingestion findet man in Abbildung 7.2.

In [UNS00] wird zur Vergleichbarkeit von Dosisangaben einer Population ein Mittelwert aus den Altersklasse $1 < a < 2$ (gewichtet mit 5 % Anteil an der Gesamtpopulation), $7 < a < 12$ (gewichtet mit 30 %) und $a > 17$ (gewichtet mit 65 %) gebildet. Die mit Hilfe einer Monte-Carlo-Simulation erhaltene Verteilung für diesen altersabhängigen gewichteten Mittelwert ist zusammen mit den 95 %-Perzentilen in Abbildung 7.3 dargestellt. Dabei ergab sich für Niedersachsen ein Erwartungswert der jährlichen Strahlenexposition durch die Ingestion von natürlichen Radionukliden von 0,28 mSv mit einer Schwankungsbreite von 0,22 bis 0,41 mSv (95 %-iger Vertrauensbereich)².

7.4 Dosis durch Direktingestion von Boden

Ein weiterer Pfad, der vor allem für die Strahlenexposition von Kleinkindern nicht als vernachlässigbar angesehen werden kann, ist die Direktingestion von Boden. Dieses Verhalten, mit dem sich detailliert in [Abr02] beschäftigt wird, tritt in Deutsch-

²Die Modellierung für das gesamte Bundesgebiet ergibt dieselbe Schwankungsbreite bei einem Erwartungswert von 0,27 mSv

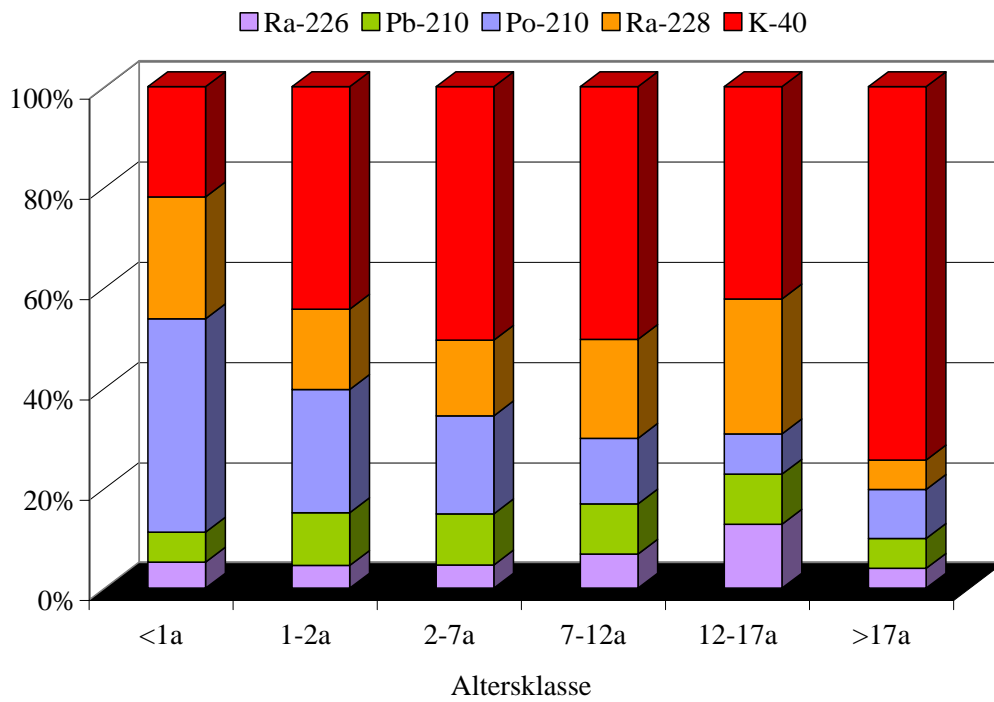


Abbildung 7.2: Anteile der unterschiedlichen Nuklide an der Dosis durch Ingestion.

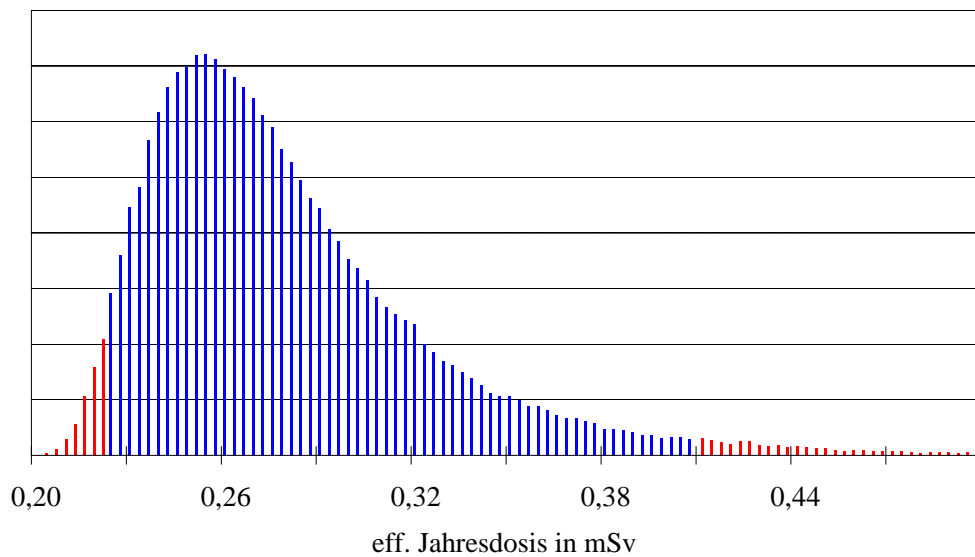


Abbildung 7.3: Verteilung der nach [UNS00] altersabhängig gewichteten Verteilung der effektiven Jahresdosis durch Ingestion.

Tabelle 7.11: Zur Modellierung verwandte spezifische Aktivität des Bodens in Bq/kg.

	²¹⁰ Pb	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th	²³⁸ U	²³⁵ U
arithm. MW.	42,3	27,0	26,5	26,5	28,0	1,4
arithm. Stabw.	17,5	8,0	7,9	8,2	11,2	0,6
geo. MW.	38,4	25,7	25,2	25,1	25,9	1,2
geo. Stabw.	1,6	1,4	1,4	1,4	1,5	1,5
<i>EW</i> ^a	43,4	27,1	26,7	26,7	28,0	1,4

^a *EW* bei angenommener log-normal Verteilung.

land hauptsächlich bei Kleinkindern ($1 < a < 2$) und mit Abstrichen bei jungen Kindern ($2 < a < 7$) auf. Zur Modellierung der effektiven Jahresdosis müssen folgende Parameter bekannt sein:

- Die Dosiskoeffizienten $d_{i,g}$ der Ingestion des Nuklids i in Sv/Bq,
- die spezifischen Aktivitäten $A_{Boden,i}$ des Radionuklids i in Böden in Bq/kg,
- die Aufenthaltsdauer pro Jahr t_{out} der Referenzperson im Freien in h und
- die Bodenaufnahmerate \dot{m}_{soil} der Referenzperson in kg/h.

Damit ergibt sich die effektive Jahresdosis durch Ingestion $H_{ing,Boden}$ in Sv zu

$$H_{ing,Boden} = \dot{m}_{soil} \cdot t_{out} \cdot \sum_i d_{i,g} \cdot A_{Boden,i}. \quad (7.7)$$

Während die Dosiskoeffizienten für Ingestion [ICR96] entnommen wurden (siehe Tabelle 7.1 auf Seite 155), wurden zur Abschätzung der spezifischen Aktivitäten der natürlichen Radionuklide im Boden die Verteilung und deren Kennwerte aus den für diese Arbeit untersuchten Bodenproben berechnet [Har03a]. Diese Angaben sind für die wichtigsten Radionuklide in Tabelle 7.11 dargestellt, wobei von einer logarithmischen Normalverteilung der spezifischen Aktivität ausgegangen wurde.

Zur Abschätzung der Aufenthaltszeit im Freien wurden Annahmen einer Modellrechnung der BRENK-SYSTEMPLANUNG übernommen [Mic03], wobei die Aufenthaltsdauer in Gebäuden als normalverteilt mit einem Mittelwert von 6000 h/a und einer Standardabweichung von 2000 h/a angenommen wurde. Da diese Verteilung bei der maximalen Anzahl der Stunden pro Jahr, also bei 8766 h/a, abgeschnitten werden

Tabelle 7.12: Parameter der Abschätzung von Aufenthaltszeiten im Freien und in Gebäuden.

	t_{in} in h/a	t_{out} in h/a
Verteilung:	normal	normal
arithm. MW.:	6000	2766
arithm. Stabw.:	2000	1400
abgeschnitten bei max:	8766	4814
abgeschnitten bei min:	3234	718
darin enthalten ^a :	83,3 %	83,3 %

^a Prozentsatz der in den so abgeschnittenen Verteilungen enthaltenen Werte im Vergleich zur nicht begrenzten Verteilung.

muss, wurde zur Erhaltung der Symmetrie der linksseitige Ausläufer der Normalverteilung bei 3234 h/a ebenfalls begrenzt ³. Diese Abschätzung kann zusammen mit der daraus resultierenden Aufenthaltsdauer im Freien Tabelle 7.12 entnommen werden. Allerdings liegen keine gesicherten altersabhängigen Daten für die Aufenthaltsdauer von Kleinkindern im Freien bzw. im Inneren von Gebäuden vor, zumal in den oben vorgestellten Modellen keine *realistischen* sondern allenfalls abdeckende Angaben diesbezüglich zu finden sind.

Tabelle 7.13: [BGB99] zur Modellierung entnommene Bodenaufnahmeraten in mg/h beim Aufenthalt im Freien.

	<1a	1<a<2	2<a<7	7<a<12	12<a<17	>17a
\dot{m}_{soil}	0	50	30	6	6	6

Ebenfalls schwer abzuschätzen sind die Bodenaufnahmeraten für Referenzpersonen unterschiedlichen Alters. Diese Angaben wurden in der hier vorgenommenen Modellierung [BGB99] entnommen. Da keinerlei Informationen über die Verteilung oder die Schwankungsbreite dieser Faktoren verfügbar waren, wurden die Bodenaufnahmeraten als Punktschätzer angenommen. Die für die Modellierung geschätzten Parameter

³Hier wird nach [Mic03] anders vorgegangen, da die untere Grenze bei 4000 h/a gezogen wird. Dies hat jedoch den Nachteil, dass die so beschnittene Verteilung nicht mehr symmetrisch und der Erwartungswert folglich größer als 6000 h/a ist.

Tabelle 7.14: effektive Jahresdosis durch Direktingestion von Boden in mSv.

	1<a<2	2<a<7	7<a<12	12<a<17	> 17a
<i>Niedersachsen</i>					
<i>EW</i>	0,229	0,061	0,009	0,008	0,004
<i>VB</i> ^a	0,058-0,557	0,016-0,140	0,002-0,019	0,002-0,017	0,001-0,008

^a VB = 95 %iger Vertrauensbereich.

sind in Tabelle 7.13 dargestellt.

Mit den so gewählten Parametern konnte dann wiederum altersabhängig die effektive Jahresdosis durch Direktingestion von Boden mit ihrer Schwankungsbreite unter Zuhilfenahme von CRYSTAL-BALL[®] berechnet werden. Die Ergebnisse dieser Modellierung sind in Tabelle 7.14 dargestellt.

Man erkennt, dass die Direktingestion von Boden vor allem für die Altersklasse 1<a<2 mit einer effektiven Jahresdosis von 0,23 mSv nicht vernachlässigt werden kann. Mit Ausnahme der zwei- bis siebenjährigen Kindern ($H_{ing,Boden} = 0,06$ mSv) liegt die effektive Jahresdosis durch Direktingestion allerdings unter 0,01 mSv.

7.5 Dosis durch Inhalation von ²²²Rn und Folgeprodukten

Wie schon oben erläutert, tritt in der ²³⁸U-Zerfallsreihe mit ²²²Rn ein Edelgas auf, das aus Boden oder Baumaterialien entweichen und nach Inhalation durch den Zerfall in der Lunge zu einer Strahlenexposition führen kann. Dabei trägt der Zerfall des Radons selber nur unwesentlich zur eigentlichen Dosis bei; entscheidend für die Dosis sind vielmehr die kurzlebigen Folgenuklide ($t_{1/2} < 30$ min für alle Töchter bis hin zum ²¹⁰Pb). Zur Berechnung der Strahlenexposition durch die Inhalation von ²²²Rn und Folgeprodukte existieren verschiedene Modelle, die unterschiedliche Ansätze verfolgen, nämlich den so genannten epidemiologischen im Unterschied zum dosimetrischen Ansatz (eine ausführliche Beschreibung dieser beiden unterschiedlichen Herangehensweisen findet man in [Zoc96]). Dabei führen diese beiden verschiedenen Ansätze zu Dosisfaktoren für die Inhalation von ²²²Rn, die sich deutlich voneinander unterscheiden können. In dieser Arbeit wurde der in [ICR93] empfohlene Dosisfaktor zur Modellierung gemäß

7.5 Dosis durch Inhalation von ^{222}Rn und Folgeprodukten

$$H_{Rn222} = A_{Rn222} \cdot F \cdot t_{exp} \cdot AR \cdot d_{Rn222} \quad (7.8)$$

verwendet, wobei

- H_{Rn222} = eff. Jahresdosis durch Inhalation von Radon und Radonfolgeprodukten in Sv,
- A_{Rn222} = Aktivitätskonzentration von ^{222}Rn in der Atemluft in Bq/m^3 ,
- F = Gleichgewichtsfaktor [dimensionslos],
- t_{exp} = Expositionszeit pro Jahr in h,
- AR = Atemrate in Bq/m^3 und
- d_{Rn222} = Dosisfaktor für die Inhalation von ^{222}Rn in Sv/Bq

gilt. Für diese unterschiedlichen Faktoren wurden Verteilungen abgeschätzt, die im Folgenden besprochen werden sollen, wobei wiederum so weit wie möglich zum einen Deutschland insgesamt und zum anderen Niedersachsen im speziellen betrachtet werden soll. Dies geschieht am Ende dieses Abschnittes durch die Berücksichtigung der unterschiedlichen Radon-Konzentrationen in der Atemluft; alle anderen Parameter unterscheiden sich nicht geographisch. Zusätzlich zu geographischen Abweichungen sind in beide Fällen die unterschiedlichen Situationen beim Aufenthalt im Freien („draußen“) und im Inneren von Gebäuden („drinnen“) zu beachten. In Tabelle 7.15 und 7.16 werden die angenommenen Verteilungen der Parameter F , t_{exp} sowie AR zusammen mit ihren Kenndaten dargestellt.

Tabelle 7.15: Parameter der Modellierung bei der Abschätzung der Dosis durch Inhalation von Radon und Folgeprodukten.

	F		t_{exp} in h	
	drinnen	draußen	drinnen	draußen
Verteilung	Dreieck	Dreieck	Normal	Normal
EW	0,47	0,70	6000	2766
$Stabw.$	-	-	2000	1400
min	0,10	0,23	3234	718
max	0,90	1,19	8766	4814
Quelle	[UNS00]	[Rei90]	[Mic03]	[Mic03]

Tabelle 7.16: Altersabhängige Atemraten, [ICR95] entnommen.

Altersklasse	<1a	1<a<2	2<a<7	7<a<12	12<a<17	>17a	Quelle
AR in m ³ /h	0,12	0,22	0,36	0,64	0,84	0,96	[ICR95]

Dabei ist folgendes anzumerken:

- Der Gleichgewichtsfaktor f beschreibt den Grad des Gleichgewichts zwischen ²²²Rn und den Tochternukliden, die für einen Großteil der Dosis verantwortlich sind. Da dieser Faktor großen Schwankungen unterliegt (meteorologische Einflüsse draußen, Lüftungsgewohnheiten drinnen, Größenverteilung der vorhandenen Aerosole, an die sich Radon-Folgeprodukte anlagern können, siehe S. 117), wurde die in der Literatur verfügbare Information über die Schwankungsbreite durch eine Dreiecksverteilung abgeschätzt.
- Die Aufenthaltsdauer wurde wie oben beschrieben für „drinnen“ und „draußen“ durch abgeschnittene Normalverteilungen beschrieben.
- Die Atemraten wurden altersabhängig [ICR95] entnommen. Als Teil des dosimetrischen Modelles wurden für die Atemraten ebenso wie für den Dosisfaktor d_{Rn222} keine Verteilungen angenommen und diese beiden Größen wie Punktschätzer betrachtet.
- Entsprechend [ICR93] wurde $d_{Rn222} = 9 \cdot 10^{-9}$ Sv/Bq gesetzt.

Nicht behandelt wurden bisher die Aktivitätskonzentrationen von ²²²Rn in Luft in Deutschland und Niedersachsen sowohl für „draußen“ als auch für „drinnen“. Für die Konzentration von ²²²Rn in der Außenluft lagen keine zwischen Deutschland und Niedersachsen differenzierende Werte vor. Die bei der Modellierung getroffenen Annahmen bzgl. der Radonkonzentration in der Atemluft können in Tabelle 7.17 wiedergefunden werden.

Mit diesen so gewählten Parametern konnte mit einer Monte-Carlo-Simulation auch die effektive Jahresdosis durch Inhalation von Radon und Radon-Folgeprodukten abgeschätzt werden. Die Ergebnisse dieser Modellierung findet man in Tabelle 7.18.

Insgesamt liegt die Strahlenexposition in Niedersachsen im Vergleich geringfügig unter dem gesamtdeutschen Durchschnitt, was unmittelbar aus der für Niedersachsen leicht erniedrigten ²²²Rn-Aktivitätskonzentration in der Atemluft resultiert. Der Anteil der Strahlenexposition durch Aufenthalt in Gebäuden beträgt knapp 79 %, wobei die Schwankungsbreite zwischen 43 % und 97 % liegt (95 %iges Vertrauensniveau).

Tabelle 7.17: Parameter der angenommenen Verteilungen der Aktivitätskonzentrationen von ^{222}Rn in Bq/m^3 in der Atemluft.

	Verteilung	EW^a	GM^b	GS^c	Quelle
drinnen					
Niedersachsen	log.-normal	41,8	34,0	1,9	[BfS97]
Deutschland	log.-normal	43,3	35,9	1,8	[BfS97]
draußen					
Deutschland	log.-normal	12,3	10,0	1,9	[BfS98]
Niedersachsen ^d	log.-normal	12,3	10,0	1,9	[BfS98]

^a EW = Erwartungswert bei angenommener logarithmischer Normalverteilung in Bq/m^3 .

^b GM = geometrischer Mittelwert in Bq/m^3 .

^c GS = geometrische Standardabweichung.

^d Für Niedersachsen lagen keine gesonderten Daten vor.

Tabelle 7.18: Effektive Jahresdosis in mSv durch Inhalation von Radon und Folgeprodukte.

	$a < 1$	$1 < a < 2$	$2 < a < 7$	$7 < a < 12$	$12 < a < 17$	$> 17a$
Niedersachsen						
EW	0,15	0,28	0,46	0,81	1,06	1,22
VB^a	0,04-0,41	0,08-0,75	0,13-1,23	0,24-2,19	0,31-2,87	0,35-3,28
Deutschland						
EW	0,16	0,29	0,47	0,83	1,09	1,25
VB^a	0,05-0,40	0,10-0,74	0,16-1,21	0,29-2,16	0,38-2,83	0,44-3,24

^a VB = 95 %iger Vertrauensbereich.

Nicht betrachtet wurde im Rahmen dieser Arbeit die Strahlenexposition durch die Inhalation von ^{220}Rn , dem so genannten Thoron. Für dieses, auf Grund einer Halbwertszeit von 55,6 Sekunden im Vergleich zu ^{222}Rn deutlich kurzlebigeres, Radonisotop liegen nur wenige gesicherte Daten bezüglich der Aktivitätskonzentration in der Atemluft vor. Insgesamt kann allerdings die Strahlenexposition durch ^{220}Rn als vernachlässigbar angesehen werden.

7.6 Dosis durch Inhalation von Staub

Einen weiteren möglichen Expositionspfad stellt die Inhalation von Staub dar. Das hier zur Abschätzung der effektiven Jahresdosis verwandte Modell entstammt [BGB99] und berücksichtigt neben den bisher genannten Parametern die Aufkonzentrierung von Radionukliden in der Staubfraktion des ungesieberten Bodens, die durchschnittliche Schwebstaubkonzentration in der Atemluft, einen Faktor zur Ermittlung der Staubkonzentration am Expositionsort aus der Staubkonzentration im Freien sowie die Dosisfaktoren für die Inhalation. Insgesamt ergibt sich damit die effektive Jahresdosis durch Inhalation von Staub zu

$$H_{\text{Staub}} = AF_{0,02} \cdot S_{\text{Staub}} \cdot AR \cdot (t_{\text{in}} \cdot a_{\text{Luft,in}} + t_{\text{out}}) \cdot \sum_i A_{\text{Boden},i} \cdot d_{i,h}, \quad (7.9)$$

wobei also

H_{Staub}	=	effektive Jahresdosis durch Inhalation von Staub in Sv,
$AF_{0,02}$	=	Aufkonzentrierungsfaktor, der das mittlere Verhältnis der spezifischen Aktivität eines Radionuklids i der Staubfraktion ($R < 0,02$ mm) und der Gesamtprobe beschreibt,
S_{Staub}	=	Referenzwert der Schwebstaubkonzentration in kg/m^3 ,
AR	=	Atemrate in Bq/m^3 ,
t_{in}	=	Aufenthaltszeit pro Jahr in Gebäuden in h,
t_{out}	=	Aufenthaltszeit pro Jahr im Freien in h,
$a_{\text{Luft,in}}$	=	Faktor zur Bestimmung der Staubkonzentration am Expositionsort aus der Staubkonzentration im Freien,
$A_{\text{Boden},i}$	=	spezifische Aktivität des Radionuklids i im Boden in Bq/kg und
$d_{i,h}$	=	Dosisfaktor für die Inhalation des Radionuklids i in Sv/Bq

gilt. Die bei der Modellierung getroffenen Annahmen bzgl. Verteilungen werden in Tabelle 7.19 angegeben, die verwendeten Dosisfaktoren für die Inhalation findet man in Tabelle 7.20. Die Faktoren, für die keine Aussage über Schwankungsbreiten getroffen werden konnten, wurden dabei als Punktschätzer behandelt.

Insgesamt zeigt sich, dass die Strahlenexposition durch die Inhalation von an Aerosolen angelagerten natürlichen Radionukliden in Gebieten nicht deutlich erhöhter natürlicher Radioaktivität im Vergleich zu den anderen Expositionspfaden vernachlässigt

Tabelle 7.19: Parameter zur Modellierung der Dosis durch die Inhalation von Staub.

Parameter	Schätzwert	Verteilung	Quelle
$AF_{0,02}$	4	Punktschätzer	[BGB99]
S_{Staub}	$5,0 \cdot 10^{-8}$	Punktschätzer	[BGB99]
t_{in}	siehe Tabelle 7.12	normal	[Mic03]
t_{out}	siehe Tabelle 7.12	normal	[Mic03]
$a_{Luft,in}$	0,5	Punktschätzer	[BGB99]
AR	siehe Tabelle 7.16	Punktschätzer	[ICR95]
$A_{spez,i}$	siehe Tabelle 7.11	log-normal	[Har03a]

Tabelle 7.20: Dosisfaktoren $d_{i,h}$ für Inhalation nach [ICR96] in Sv/Bq.

Nuklid	<1a	1<a<2	2<a<7	7<a<12	12<a<17	a>17
^{238}U	1,2E-05	9,4E-06	5,9E-06	4,0E-06	3,4E-06	2,9E-06
^{234}U	1,5E-05	1,1E-05	7,0E-06	4,8E-06	4,2E-06	3,5E-06
^{230}Th	4,0E-05	3,5E-05	2,4E-05	1,6E-05	1,5E-05	1,4E-05
^{226}Ra	1,5E-05	1,1E-05	7,0E-06	4,9E-06	4,5E-06	3,5E-06
^{210}Pb	5,0E-06	3,7E-06	2,2E-06	1,5E-06	1,3E-06	1,1E-06
^{210}Po	1,5E-05	1,1E-05	6,7E-06	4,6E-06	4,0E-06	3,3E-06
^{235}U	1,3E-05	1,0E-05	6,3E-06	4,3E-06	3,7E-06	3,1E-06
^{231}Pa	2,2E-06	2,3E-04	1,9E-04	1,5E-04	1,5E-04	1,4E-04
^{227}Ac	1,7E-03	1,6E-03	1,0E-03	7,2E-04	5,6E-04	5,5E-04
^{232}Th	5,4E-05	5,0E-05	3,7E-05	2,6E-05	2,5E-05	2,5E-05
^{228}Ra	1,5E-05	1,0E-05	6,3E-06	4,6E-06	4,4E-06	2,6E-06
^{228}Th	1,6E-04	1,3E-04	8,2E-05	5,5E-05	4,7E-05	4,0E-05

Tabelle 7.21: effektive Jahresdosis durch Inhalation von Staub in μSv .

	a<1	1<a<2	2<a<7	7<a<12	12<a<17	> 17a
<i>Niedersachsen</i>						
<i>EW</i>	1,6	2,6	2,7	3,4	3,9	4,0
<i>VB</i> ^a	0,8 - 2,7	1,3 - 4,3	1,4 - 4,6	1,7 - 5,6	2,0 - 6,4	2,1 - 6,7

^a VB = 95 %iger Vertrauensbereich.

werden kann. Eine Zusammenstellung der altersabhängigen effektiven Jahresdosen kann zusammen mit der modellierten Schwankungsbreite Tabelle 7.21 entnommen werden.

7.7 Dosis durch externe Bestrahlung

Eine weitere Quelle der natürlichen Strahlenexposition ist die externe Bestrahlung, die sich aus einer kosmischen und einer terrestrischen Komponente zusammensetzt. Je nachdem, ob man sich im Freien oder innerhalb von Gebäuden befindet, sind entweder Zerfälle von Radionukliden in Böden oder in Baumaterialien von Bedeutung. Die Strahlenexposition durch kosmische Strahlung hingegen ist höhenabhängig und steigt bei zunehmender Höhe auf Grund geringerer Absorption der primären und sekundären kosmischen Komponente in der Atmosphäre an. Aus diesem Grund wird in § 103 der StrlSchV [Str01] erstmalig die Strahlenexposition von fliegendem Personal behandelt, auf die an dieser Stelle nicht weiter eingegangen wird.

In dieser Arbeit wurde ein IMIS-Datensatz⁴ vom 2.11.2000 zur Quantifizierung der effektiven Jahresdosis verwandt [IMI94]. Die in diesem Datensatz präsentierten Werte stammen von etwa 2000 über das Gebiet der gesamten Bundesrepublik verteilten γ -Sonden, die die natürliche Umgebungsstrahlung überwachen. Als ein Beispiel für die Messtätigkeit ist in Abbildung 7.4 eine an Hand der gemessenen Ortsdosisleistung (kurz: *ODL*) erstellte Kartierung für Deutschland dargestellt. Diese Kartierung kann, mit der Angabe der Ortsdosisleistung in nSv/h täglich aktualisiert, unter www.bfs.de eingesehen werden.

⁴IMIS = Intigriertes Mess- und Informationssystem, genaueres siehe www.bfs.de.

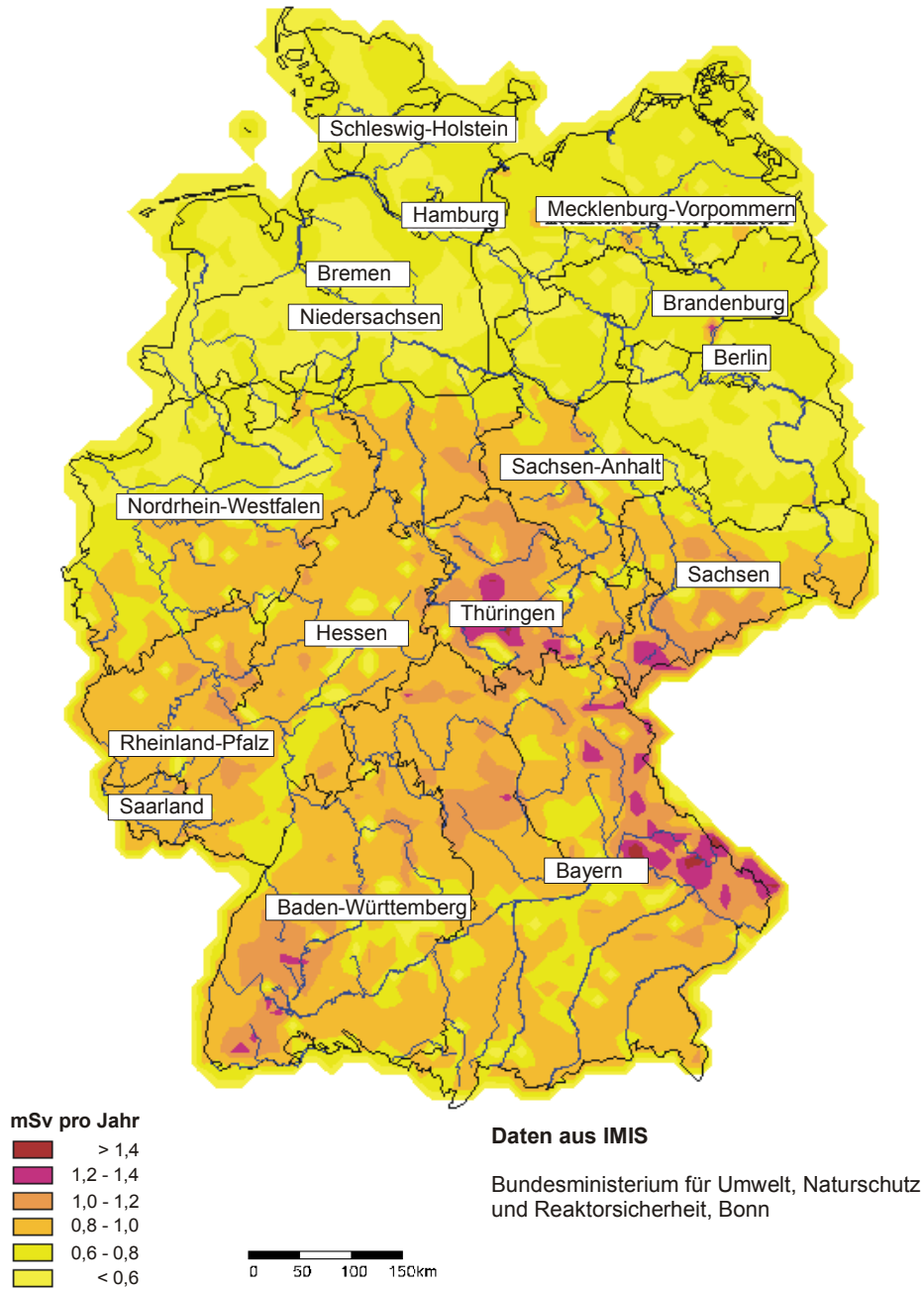


Abbildung 7.4: Durch IMIS erstellte *ODL*-Kartierung für Deutschland (www.bfs.de). Das Datum der Karte entspricht nicht dem Datum des verwendeten Datensatzes.

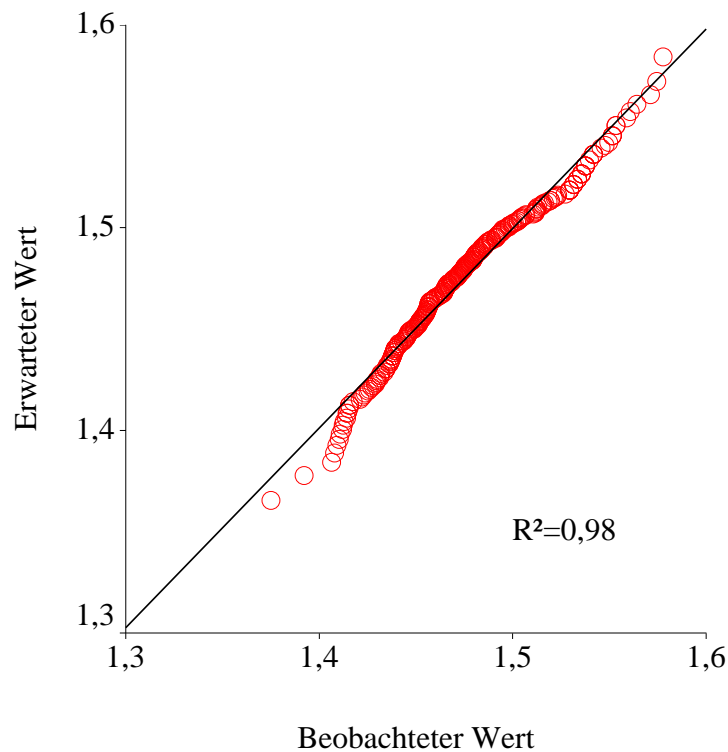


Abbildung 7.5: QQ-Plot der Ortsdosisleistung eines beispielhaften IMIS-Datensatzes.

Die durch den IMIS-Tagessatz erhaltenen Messwerte ermöglichen daher eine detaillierte Aufteilung der Ortsdosisleistung in verschiedene Bundesländer, wobei anhand der vorliegenden Daten die gesamte Bundesrepublik im Vergleich zu Niedersachsen untersucht wurde. In beiden Fällen wurde eine logarithmische Normalverteilung der Ortsdosisleistung unterstellt. In Abbildung 7.5 wird der QQ-Plot der *ODL* aus 295 in Niedersachsen liegenden Messstellen dargestellt, wobei deutlich wird, dass die Annahme einer logarithmischen Normalverteilung nicht abzulehnen ist (R^2 -Wert von 0,98).

Die aus oben genannten Datensatz stammenden Verteilungen der Orstdosisleistungen für Deutschland und Niedersachsen können zusammen mit den Kennwerten der Verteilungen Tabelle 7.22 entnommen werden.

Die externe Bestrahlung beim Aufenthalt in Häusern hängt verständlicherweise in erster Linie von der Konzentration natürlicher Radionuklide in den für das Gebäude repräsentativen Baumaterialien statt. Daher können die daraus resultierenden Strahlenexpositionen stark variieren und sind im Gegensatz zu der durch geologische Gegebenheiten schwankenden terrestrischen Strahlungskomponente im Freien nicht mehr für Niedersachsen oder auch Deutschland als Gesamtes repräsentativ zu beschreiben. Da auch die Datenlage in der Literatur für eine Modellierung der externen Strahlenexpo-

Tabelle 7.22: Durch IMIS gemessene Ortsdosisleistung (*ODL*) vom 2.11.2000 sowohl für Deutschland als auch für Niedersachsen.

	Niedersachsen	Deutschland
geo. MW. in nSv/h	79,3	94,8
geo. Stabw.	1,2	1,2
<i>EW</i> ^a in nSv/h	80,5	96,7

^a Erwartungswert bei angenommener logarithmischen Normalverteilung.

sition beim Aufenthalt in Gebäuden nicht als ausreichend angesehen werden konnte, wurden die Messwerte des IMIS-Datensatzes auch für die Modellierung der Strahlenexposition im Inneren von Gebäuden verwandt. Dies ist sicherlich nicht optimal, rechtfertigt sich aber aus der Tatsache, dass nach [BfS03c] die *ODL* im Inneren von Gebäuden mit ungefähr 80 nSv/h in etwa dem beim Aufenthalt im Freien für Niedersachsen angenommenen Wert entspricht. Bei der Modellierung der effektiven Jahresdosis fließt des Weiteren bei der Abschätzung der Strahlenexposition im Freien ein Faktor f_{kon} zur Berücksichtigung der altersabhängig unterschiedlichen Umrechnung der Photonen-Äquivalentdosis in effektive Dosis ein [Pet91a], [Pet91b]. Bezüglich dieses Faktors lagen zwei unterschiedliche Quellen vor ([UNS00] und [BGB99]), so dass er als gleichverteilt zwischen den Angaben aus [UNS00] und [BGB99] angenommen wurde. Insgesamt ergibt sich die Strahlenexposition als Folge der externen Bestrahlung durch:

$$H_{extern} = (f_{kon} \cdot t_{out} + t_{in}) \cdot ODL \quad (7.10)$$

mit

- H_{extern} = effektive Jahresdosis durch externe Bestrahlung in Sv,
- f_{kon} = Umrechnungsfaktor von Photonen-Äquivalentdosis in effektive Dosis,
- t_{out} = Aufenthaltszeit im Freien in h,
- t_{in} = Aufenthaltszeit in Gebäuden in h und
- ODL = Ortsdosisleistung in nSv/h.

Eine Zusammenstellung der für die Modellierung der effektiven Jahresdosis durch externe Bestrahlung gemachten Annahmen findet man zusammen mit den Verteilungen und Quelle in Tabelle 7.23.

Tabelle 7.23: Parameter der Modellierung der Dosis durch externe Bestrahlung.

Parameter	Schätzwert	Verteilung	Quelle
f_{kon} ($a < 1$)	0,80 - 0,91	uniform	[BGB99], [UNS00]
f_{kon} ($1 < a < 12$)	0,70 - 0,79	uniform	[BGB99], [UNS00]
f_{kon} ($a > 12$)	0,60 - 0,69	uniform	[BGB99], [UNS00]
t_{in}	siehe Tabelle 7.12	normal	[Mic03]
t_{out}	siehe Tabelle 7.12	normal	[Mic03]
ODL	siehe Tabelle 7.22	log-normal	[IMI94]

Insgesamt kann der Beitrag der externen Bestrahlung als nicht vernachlässigbar und zugleich als über verschiedene Altersgruppen recht konstant angesehen werden. Erwartungswerte und weitere Parameter der nach der Modellierung erhaltenen Ergebnisse sind in Tabelle 7.24 dargestellt.

Tabelle 7.24: Effektive Jahresdosis in mSv durch externe Bestrahlung.

	a < 1	1 < a < 2	2 < a < 7	7 < a < 12	12 < a < 17	> 17a
Niedersachsen						
<i>EW</i>	0,69	0,67	0,67	0,67	0,66	0,66
<i>VB</i> ^a	0,38-1,08	0,38-1,06	0,38-1,06	0,38-1,06	0,37-1,03	0,37-1,03
Deutschland						
<i>EW</i>	0,82	0,80	0,80	0,80	0,79	0,79
<i>VB</i> ^a	0,44-1,34	0,44-1,30	0,44-1,30	0,44-1,30	0,43-1,27	0,43-1,27

^a *VB* = 95 %iger Vertrauensbereich.

Tabelle 7.25: Vergleich der in dieser Arbeit modellierten altersabhängigen Strahlenexposition zwischen Niedersachsen und dem gesamten Bundesgebiet. Angegeben ist die effektive Jahresdosis in mSv.

	a<1	1<a<2	2<a<7	7<a<12	12<a<17	> 17a
<i>Niedersachsen</i>						
<i>EW</i>	1,69	1,61	1,56	1,87	2,13	2,11
<i>VB^a</i>	1,14-2,57	1,07-2,42	1,01-2,54	1,09-3,48	1,18-4,24	1,08-4,49
<i>Deutschland</i>						
<i>EW</i>	1,83	1,73	1,70	2,01	2,26	2,27
<i>VB^a</i>	1,22-2,76	1,14-2,59	1,08-2,72	1,17-3,66	1,25-4,40	1,17-4,69

^a VB = 95 %iger Vertrauensbereich.

7.8 Ergebnisse und Diskussion

Mit den in den vorangegangenen Abschnitten diskutierten Expositionspfaden ergibt sich die gesamte Strahlenexposition H_{total} als Summe der verschiedenen Expositionen zu

$$H_{total} = H_{ing} + H_{ing,Boden} + H_{Rn222} + H_{Staub} + H_{extern}. \quad (7.11)$$

Modelliert man mit den oben angegebenen Verteilungen diese Summe H_{total} , so ergeben sich die in Tabelle 7.25 angegebenen und in Abbildung 7.6 dargestellten altersabhängigen effektiven Jahresdosen mit den entsprechenden Schwankungsbreiten.

Interessant ist in diesem Zusammenhang der Anteil der einzelnen Expositionspfade an der Gesamtdosis. Diese auf 100 % normierte Aufteilung der einzelnen Pfade kann Abbildung 7.7 entnommen werden.

Der Anteil der externen Bestrahlung an der gesamten Strahlenexposition in den verschiedenen Altersgruppen kann als recht konstant angesehen werden, wohingegen der Anteil durch Inhalation von Radon und Folgeprodukten zu- und der der Ingestion abnimmt. Die Direktiongestion von Boden spielt im Wesentlichen nur für den Ein- bis Zweijährigen und mit Abstrichen für den Zwei- bis Siebenjährigen eine Rolle. In Abbildung 7.8 sind die absoluten Anteile der einzelnen Expositionspfade an der Gesamt-

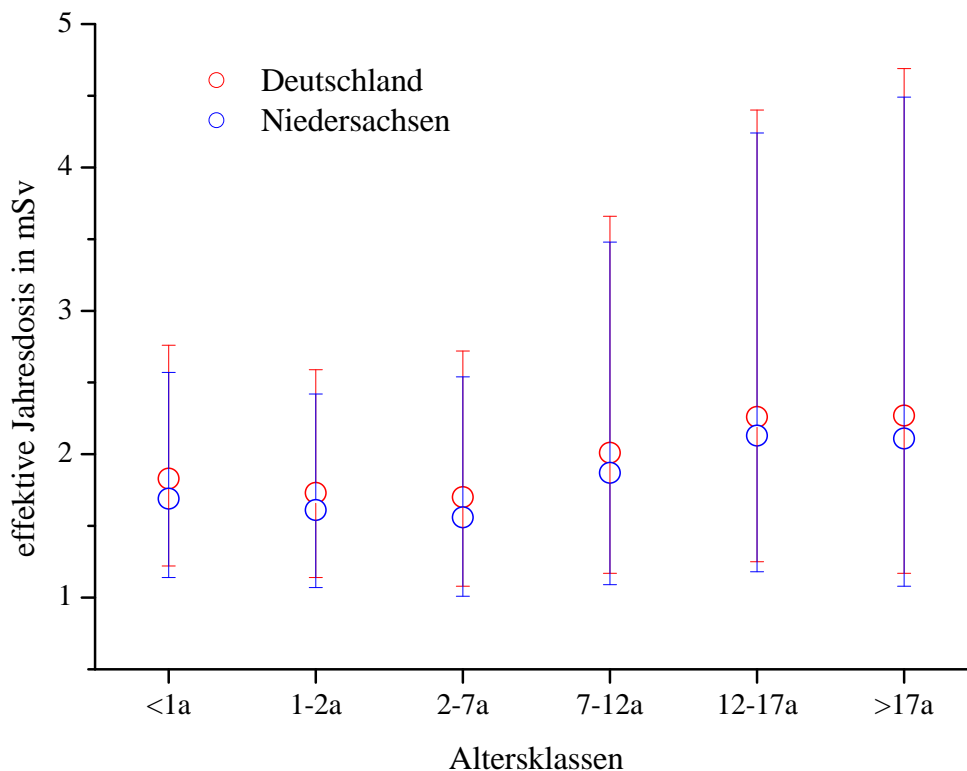


Abbildung 7.6: Vergleich der in dieser Arbeit modellierten altersabhängigen Strahlenexposition zwischen Niedersachsen und dem gesamten Bundesgebiet. Die Schwankungsbreite stellt das 95 %ige Vertrauensniveau dar.

exposition grafisch dargestellt. Dabei wurde die auf Seite 168 erwähnte und weiter unten definierte Mittelung über die verschiedenen Altersklassen angewendet.

Um die Strahlenexposition für ein Gebiet mit anderen in der Literatur getroffenen Aussagen diskutieren zu können, wurde nach einem Vorschlag des UNSCEAR [UNS00] als Vergleichsgröße die altersabhängigen Strahlenexpositionen mit Hilfe einer Gewichtung zusammengefasst, die die Häufigkeit der Altersgruppen in der Gesellschaft berücksichtigt, indem als Mittelwert

$$H_{total,m} = 0,05 \cdot H_{total,1 < a < 2} + 0,30 \cdot H_{total,7 < a < 12} + 0,65 \cdot H_{total,a > 17} \quad (7.12)$$

gebildet wird. Dies entspricht nicht der tatsächlichen Altersverteilung der Bevölkerung in Deutschland, kann aber als Konvention zum Vergleich herangezogen werden. So werden in Tabelle 7.26 die auf diese Art berechneten Mittelwerte anderen aus der Literatur verfügbaren Angaben gegenübergestellt, wobei zum Vergleich auch die Genden mit den weltweit höchsten Strahlenexpositionen durch natürliche Radionuklide

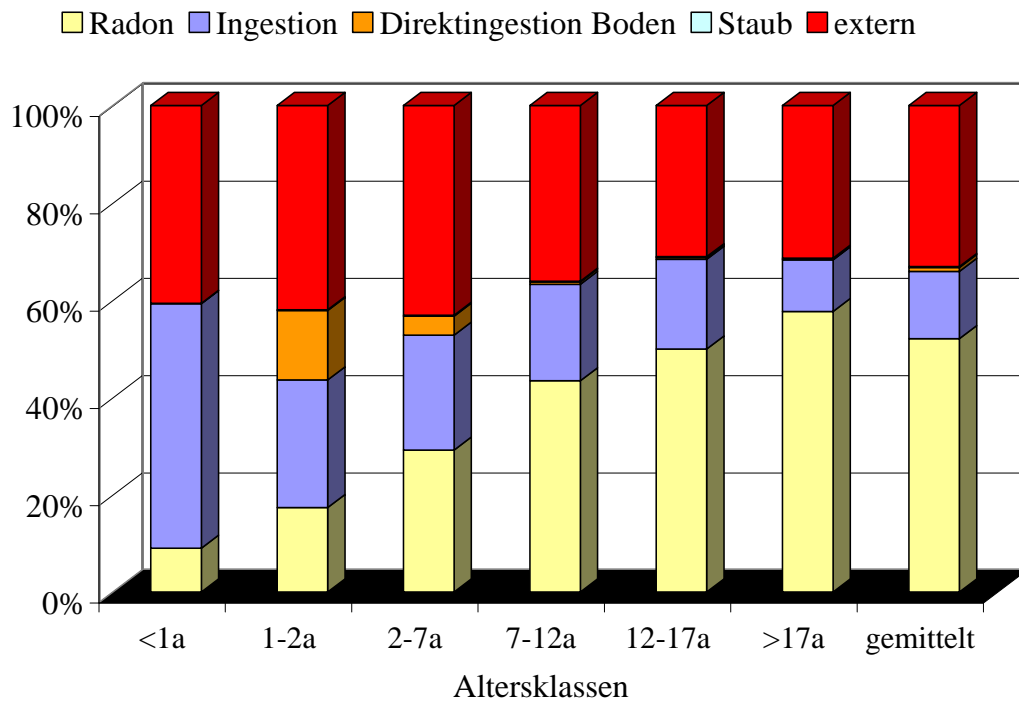


Abbildung 7.7: Prozentuale Anteile der einzelnen Expositionspfade an der gesamten Strahlenexposition für die verschiedenen Altersstufen.

Tabelle 7.26: Vergleich der effektiven Jahresdosis für verschiedene Gebiete nach der Mittelung durch Gleichung (7.12).

Quelle	Gebiet	EW in mSv	Schwankungsbreite
diese Arbeit	Niedersachsen	2,0	1,1 - 4,1 ^a
diese Arbeit	Deutschland	2,2	1,2 - 4,3 ^a
[Bfs01]	Deutschland	2,1	keine Angaben
[UNS00]	Weltweit	2,4	1,0 - 10
[Tso00] ^b	Hong-Kong	2,4	1,0 - 4,5 ^a
[UNS00] ^c	Kerala (Indien)	7,3	0,8 - 16
[UNS00] ^c	Ramsar (Iran)	-	0,3 - 69
[UNS00] ^c	Guarapari (Brasilien)	-	0,4 - 364

^a angegeben ist der 95 %ige Vertrauensbereich.

^b nur Strahlenexposition durch Inhalation von Radon und Folgeprodukten und durch externe Bestrahlung berücksichtigt.

^c nur Strahlenexposition durch externe Bestrahlung (kosmisch und terrestrisch) berücksichtigt.

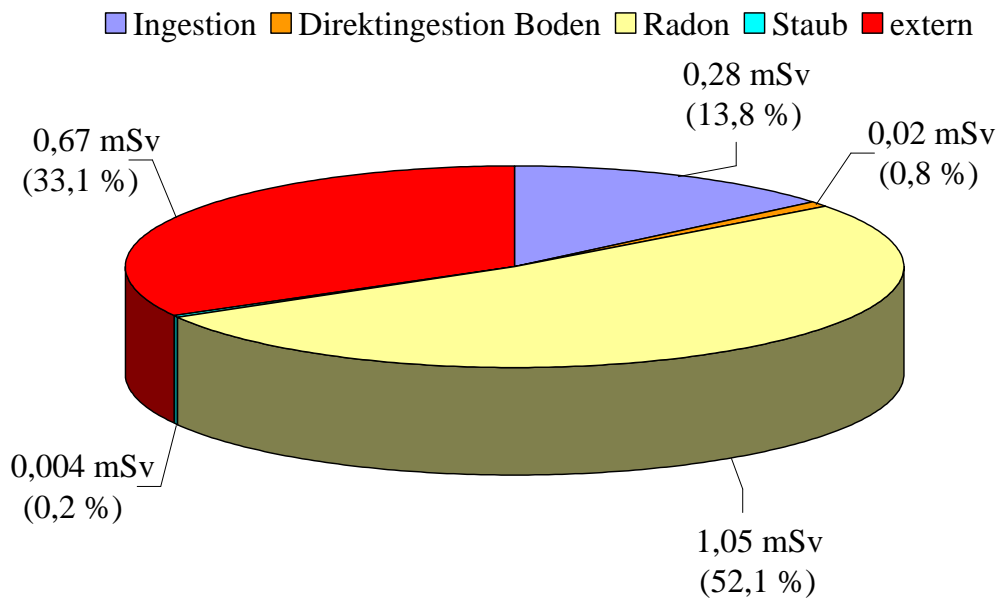


Abbildung 7.8: Anteile der einzelnen Expositionspfade an der effektiven Jahresdosis (Mittelung über verschiedene Altersklassen nach Gleichung (7.12)).

Tabelle 7.27: Vergleich der in dieser Arbeit modellierten altersabhängigen Strahlenexposition zwischen Niedersachsen und dem gesamten Bundesgebiet, wobei für Parameter ohne Information über deren Verteilung Annahmen entsprechend Tabelle 7.28 gemacht wurden.

	a<1	1<a<2	2<a<7	7<a<12	12<a<17	> 17a
Niedersachsen						
EW	1,69	1,61	1,56	1,87	2,13	2,11
VB ^a	1,07-2,82	0,98-2,82	0,92-3,04	0,96-4,46	1,01-5,49	0,98-5,91
Deutschland						
EW	1,83	1,73	1,70	2,01	2,26	2,27
VB ^a	1,12-2,99	1,05-2,98	0,99-3,23	1,04-4,61	1,09-5,60	0,98-6,11

^a VB = 95 %iger Vertrauensbereich.

aufgeführt werden.

Insgesamt stimmen sowohl der nach Gleichung (7.12) berechnete Mittelwert für Niedersachsen (2,01 mSv) als auch der für die gesamte Bundesrepublik ermittelte Wert (2,16 mSv) recht gut mit der in [BfS01] angegebenen effektiven Jahresdosis für Deutschland von 2,10 mSv und mit dem in [UNS00] angeführten Mittelwert von 2,40 mSv weltweit überein. Während in [BfS01] keine Aussagen über die Schwankungsbreite der natürlichen Strahlenexposition getroffen werden, gibt UNSCEAR in [UNS00] eine grobe Abschätzung derselben mit 1 bis 10 mSv pro Jahr an. Diese Angaben konnten durch die Modellrechnungen in dieser Arbeit mit 1,1 bis 4,1 mSv für Niedersachsen und 1,2 bis 4,3 mSv bezogen auf einen 95 %igen Vertrauensbereich erheblich präzisiert werden.

Allerdings wurde, wie oben ausführlich beschrieben, aus Mangel an Informationen einige Parameter als Punktschätzer angenommen, was sicherlich nicht der Realität entspricht. Um den Einfluss dieser Annahme auf die Schwankungsbreite zu untersuchen, wurde (willkürlich, da keine Informationen über die tatsächlichen Verteilungen vorlagen) in einer weiteren Modellierung für jeden dieser Parameter mit Ausnahme der Dosiskoeffizienten für Inhalation und Ingestion eine logarithmische Normalverteilung mit einer geometrischen Standardabweichung von 2 postuliert. In Tabelle 7.28 werden diese weiteren, neuen Annahmen zusammenfassend aufgeführt; in Tabelle 7.27 findet man die resultierende Strahlenexposition.

Man erkennt (siehe Tabelle 7.25 im Vergleich zu Tabelle 7.27), dass sich die obere Grenze des 95 %-igen Vertrauensbereiches zwischen 10 % ($a < 1$) und 30 % ($a > 17$) vergrößert. In wie weit diese Schwankungsbreiten als realistisch oder konservativ anzusehen sind, kann erst nach einer genaueren Untersuchungen der tatsächlichen Verteilungen der in Tabelle 7.28 aufgeführten Parametern entschieden werden.

Zusammenfassend kann festgestellt werden, dass durch den in dieser Arbeit gewählten Ansatz der Versuch unternommen wurde, die Strahlenexposition durch natürliche Radionuklide sowohl für Niedersachsen als auch für Deutschland möglichst realistisch zu modellieren. Als zusätzliches Ergebnis konnten bestehende Aussagen über die Schwankungsbreiten der natürlichen Strahlenexposition wesentlich präzisiert werden, wobei außerdem gezeigt wurde, dass Faktoren, über deren Verteilung keine Informationen vorliegen, die Schwankungsbreite der Strahlenexposition um weniger als 30 % beeinflussen. Somit kann die in dieser Arbeit ermittelte Variabilität der Strahlenexposition durch natürliche Radionuklide als vernünftiger Schätzer eines 95 %igen Vertrauensniveaus angesehen werden kann.

Tabelle 7.28: Zusammenstellung der angenommenen Verteilungen bei Parametern, für die keine weiteren Informationen vorlagen.

Parameter	Alter	Element	Verteilung	EW^a	GM^b	GS^c
\dot{m}_{soil} in mg/h	a<1	-	-	0,0E00	-	-
	1<a<2	-	log-normal	5,0E01	3,9E01	2
	2<a<7	-	log-normal	3,0E01	2,4E01	2
	7<a<12	-	log-normal	6,0E00	5,0E00	2
	12<a<17	-	log-normal	6,0E00	5,0E00	2
	a<17	-	log-normal	6,0E00	5,0E00	2
$f_r^{MM,g}$	-	Pb	log-normal	5,0E-02	3,9E-02	2
	-	Po	log-normal	5,0E-01	3,9E-01	2
	-	Ra	log-normal	2,0E-01	1,6E-01	2
	-	Ac	log-normal	5,0E-04	4,0E-04	2
	-	Th	log-normal	2,0E-02	1,6E-02	2
	-	Pa	log-normal	5,0E-03	3,9E-03	2
	-	U	log-normal	1,0E-02	7,9E-03	2
$f_r^{MM,h}$	-	Pb	log-normal	7,0E-02	5,5E-02	2
	-	Po	log-normal	3,0E-01	2,4E-01	2
	-	Ra	log-normal	3,0E-01	2,4E-01	2
	-	Ac	log-normal	2,0E-01	1,6E-01	2
	-	Th	log-normal	2,0E-01	1,6E-01	2
	-	Pa	log-normal	9,0E-02	7,1E-02	2
	-	U	log-normal	1,0E-01	7,9E-02	2
$AF_{0,02}$	-	-	log-normal	4,0E00	3,1E00	2
S_{Staub} in kg/m ³	-	-	log-normal	5,0E-08	3,9E-08	2
$a_{Luft,in}$	-	-	log-normal	5,0E-01	3,9E-01	2
AR in m ³ /h	a<1	-	log-normal	1,2E-01	9,4E-02	2
	1<a<2	-	log-normal	2,2E-01	1,7E-01	2
	2<a<7	-	log-normal	3,6E-01	2,8E-01	2
	7<a<12	-	log-normal	6,4E-01	5,0E-01	2
	12<a<17	-	log-normal	8,4E-01	6,6E-01	2
	a<17	-	log-normal	9,6E-01	7,6E-01	2

^a Erwartungswert.

^b geometrischer Mittelwert.

^c geometrische Standardabweichung.

8 Zusammenfassung und Ausblick

8.1 Zusammenfassung der wichtigsten Ergebnisse

Diese Arbeit hatte zum Ziel, eine verbesserte Datengrundlage der natürlicherweise existierenden Umweltradioaktivität in Niedersachsen zu erarbeiten. Dies beinhaltete Untersuchungen zur spezifischen Aktivität in Böden, Pflanzen und tierischen Produkten und zum Transfer zwischen den einzelnen Kompartimenten sowie die möglichst realistische Modellierung der daraus resultierenden Strahlenexposition und deren Schwankungsbreite. Alle untersuchten Proben wurden eigenständig entnommen, im Labor aufgearbeitet und γ -spektrometrisch untersucht, so dass eine lückenlose Qualitätskontrolle der einzelnen Untersuchungsschritte gewährleistet ist. Zusammenfassend können folgende Kernaussagen festgehalten werden:

1. Sowohl die **spezifischen Aktivitäten** als auch die **Transferfaktoren** können als **logarithmisch normalverteilt** angesehen werden. Als Konsequenz daraus ergibt sich für diese rechtsschiefe Verteilung zum einen, dass der Erwartungswert größer ist als der Mittelwert und zum anderen, dass seltene große Werte der spezifischen Aktivität bzw. eines Transferfaktors normal sind.
2. Die **spezifischen Aktivitäten variieren** je nach untersuchter Probenart zum Teil **erheblich**. Vergleichsweise hohe spezifische Aktivitäten findet man in Weide- und Wiesenbewuchs und in Getreidestroh, während in Gemüse und Getreidekorn eher niedrigere spezifische Aktivitäten gemessen wurden. Dabei betrug die mittlere spezifische Aktivität im Blattgemüse ungefähr das Zwei- bis Dreifache der in Wurzelgemüse gemessenen. Die Aktivität von natürlichen Radionukliden in Milch und Fleisch lag mit Ausnahme von ^{40}K in der Regel unterhalb der Erkennungsgrenzen.
3. Entsprechende **Unterschiede** findet man auch **bei der Differenzierung nach unterschiedlichen Radionukliden**. Abgesehen von ^{40}K , das als Isotop des essentiellen Nährelementes Kalium homöostatischer Kontrolle unterliegt, können die höchsten Aktivitäten für ^{210}Pb beobachtet werden, was durch die Deposition von luftgetragenen Folgeprodukten des ^{220}Rn erklärt werden kann. Während ^{226}Ra , ^{228}Ra und ^{228}Th zumeist noch spezifische Aktivitäten oberhalb der Erkennungsgrenze aufweisen, muss die γ -Spektrometrie für die beiden Uranisotope ^{238}U und ^{235}U zumindest für diese in Niedersachsen genommenen und im

Rahmen der Möglichkeiten des ZSRs untersuchten Proben als unzureichend angesehen werden. Für detaillierte Aussagen zu den verschiedenen Probearten und Radionukliden sei auf Kapitel 5 bzw. die dort angeführte Zusammenfassung auf Seite 107 verwiesen.

4. Auch das **Transferverhalten** unterscheidet sich deutlich, je nachdem, welches Nuklid und welches Kompartiment man betrachtet. Es zeigt sich, dass der Transfer für ^{210}Pb groß ist im Vergleich zu anderen Nukliden. Dies ist besonders ausgeprägt bei Pflanzen mit einer großen Blattoberfläche und einer langen Wachstumsperiode, da somit Deposition von ^{210}Pb bevorzugt stattfinden kann. Aber auch für andere Nuklide kann die Blattoberfläche immer dann ein wichtiger Faktor für den Betrag des Transfers sein, wenn Resuspension eine nicht zu vernachlässigende Rolle spielt. Diesem Transferpfad kann bei Pflanzen, deren zum Verzehr geeignete Blätter bodennah wachsen, eine größere Bedeutung zukommen. Eine detaillierte Zusammenstellung der wichtigsten Aspekte des Transfers verschiedener Radionuklide in die unterschiedlichen Kompartimente findet man in der Zusammenfassung des Kapitels 6 auf Seite 144.
5. Da **Transferfaktoren** je nach den vorherrschenden Bedingungen auch für gleiche Kompartimente und Nuklide über weite Bereiche variieren können, ist bei einer Verwendung von Transferfaktoren in einem Modell die Übertragbarkeit der verwendeten Transferfaktoren auf das zu Grunde liegende Problem sorgfältig zu prüfen. So eignen sich beispielsweise in Laborversuchen bestimmte Transferfaktoren möglicherweise zur Differenzierung zwischen verschiedenen Transportmechanismen, sollten aber wenn möglich nicht zur Modellierung einer realen Strahlenexposition angewandt werden.
6. Eine unter der Berücksichtigung aller vorhandenen Informationen über Parameter und deren Verteilung durchgeführte **Modellierung der Strahlenexposition** ergab für Niedersachsen eine mittlere effektive Jahresdosis von 2,0 mSv, wobei sich 95 % der effektiven Dosis dabei in einem Intervall zwischen 1,1 und 4,1 mSv befinden. Es konnte somit im Rahmen dieser Arbeit die Schwankungsbreite der natürlichen Strahlenexposition im Vergleich zu den bisher in der Literatur verfügbaren Angaben erheblich präzisiert werden. Dies ist insofern von Bedeutung, als dass die Strahlenexposition durch natürliche Radionuklide ohne die Angabe einer Variabilität nur unzureichend charakterisiert wird.

8.2 Ausblick

Verlockend ist der äußere Schein
der Weise dringet tiefer ein.

*Wilhelm Busch
Der Geburtstag*

Wie eingangs erwähnt, wird im Rahmen der aktuellen Strahlenschutzverordnung [Str01] erstmals auch die Strahlenexposition durch natürlichen Radionukliden bei Arbeiten behandelt, wobei nach § 97 für die Strahlenexposition von Einzelpersonen der Bevölkerung durch Rückstände aus Arbeiten 1,0 mSv als Richt- aber nicht als Grenzwert festgehalten worden ist. Bei einer für Deutschland ermittelten Schwankungsbreite von 1,2 bis 4,3 mSv pro Jahr ist eine exakte Bestimmung der vorhandenen geogenen Umweltradioaktivität oftmals unerlässlich, um die durch die Ausübung der Arbeit entstandene *zusätzliche* Strahlenexposition realistisch bestimmen zu können. Dieses wird nach der StrlSchV für diejenigen Arbeiten notwendig, die, gemäß den in Anlage XII, Teil A der StrlSchV genannten und auf Seite 2 aufgezählten Arbeitsfeldern, überwachungsbedürftige Rückstände produzieren. Aber auch nicht explizit in der StrlSchV aufgeführte Arbeitsbereiche können von der Problematik einer möglicherweise zusätzlichen Strahlenexposition der Bevölkerung durch natürliche Radionuklide in den Rückständen betroffen sein. Als Beispiel kann hier der Abbau von Steinkohle angeführt werden, wo unter Tage in den anfallenden Grubenwässern Ausfällungen von Bariumsulfat auftreten und ^{226}Ra und ^{228}Ra durch Mitfällung konzentriert werden können. Ein Teil dieser radiumhaltigen Ausfällungen kann mit den Grubenwässern in die Vorflut gelangen und von dort aus weiter transportiert werden. Aus diesem Grund wurden am ZSR in einer umfangreichen Untersuchung entlang der Lippe in Nordrhein-Westfalen die Auswirkungen des Steinkohlebergbaus untersucht, indem konservativ die Schachanlage mit den höchsten Jahresfrachten an Radium ausgewählt und die zusätzliche Strahlenexposition von der Mündung des Vorfluters in die Lippe bis hin zur Mündung der Lippe in den Rhein abgeschätzt wurde. Dabei erfolgte die Modellierung auf Grundlage der „Berechnungsgrundlagen Bergbau“ [BGB99]; eine detailliertere Darstellung der Untersuchungen kann [Vah02] entnommen werden. Es konnte zusammenfassend gezeigt werden, dass deutlich messbare Auswirkungen des Steinkohlebergbaus lediglich in einem schmalen Uferstreifen entlang der ersten sieben Kilometer nach Einmündung des Vorfluters in die Lippe festzustellen sind. Insgesamt ergeben sich die in Abbildung 8.1 dargestellten Erwartungswerte für die zusätzliche, bergbaubedingte Strahlenexposition.

Man erkennt, dass mit Ausnahme der Ein- bis Zweijährigen der Erwartungswert der zusätzlichen jährlichen Strahlenexposition weniger als 0,17 mSv beträgt. Bei den Ein-

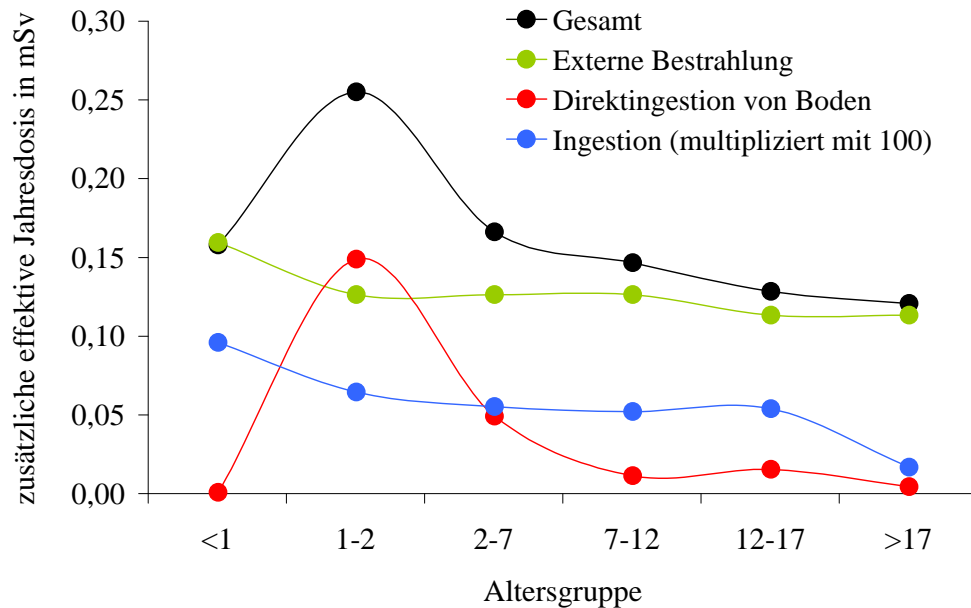


Abbildung 8.1: Erwartungswerte der zusätzlichen Strahlenexposition durch Steinkohlebergbau entlang der Lippe.

bis Zweijährigen wird die jährliche Strahlenexposition durch die Direktingestion von Boden dominiert, so dass der Erwartungswert bei 0,25 mSv liegt. Eine Modellierung für den Fall, dass der Ort mit der maximalen zusätzlichen Strahlenexposition als repräsentativ für das gesamte untersuchte Gebiet eingestuft wird, ergab eine zusätzliche jährliche Strahlenexposition von 0,3 mSv (Ein- bis Zweijährige 0,5 mSv). Angesichts der in dieser Arbeit berechneten Variabilität der Strahlenexposition durch natürlichen Radionuklide kann somit festgehalten werden, dass der Steinkohlebergbau nicht zu einer relevanten Erhöhung der Strahlenexposition entlang der Lippe führt.

Neben diesem Beispiel aus dem Bereich der Steinkohle sei nochmals auf ähnliche Problematiken für die in Anlage XII der StrlSchV aufgeführten Bereichen hingewiesen. Dabei finden sich vor allem in den so genannten TENORM-Materialien (Technologically-Enhanced Naturally Occurring Radioactive Material) sehr hohe spezifische Aktivitäten (als Beispiel seien die radiumhaltigen Ablagerungen in Erdöl- oder Erdgasleitungen genannt), die ebenfalls einen Schutz der Arbeiter erfordern. Um den von den EURATOM-Grundnormen geforderten Anspruch nach Realismus nachkommen zu können, ist es bei der Abschätzung der resultierenden Strahlenexposition unerlässlich, sowohl die natürlicher Weise vorhandene Strahlenexposition durch Radionuklide als auch die Schwankungsbreite dieser und der durch Arbeiten verursachten Strahlenexposition vernünftig zu berücksichtigen. Diese Arbeit weist durch den probabilistischen Ansatz zur Erfassung der Schwankungsbreite von Strahlenexpositionen einen Weg auf, mit dem in Zukunft Fragestellungen dieser Art bearbeitet und beantwortet

werden können und möchte somit einen Beitrag zur Lösung dieser seit Neuerem zu beachtenden Problematiken liefern.

9 Danksagung

Viele Personen haben zur Entstehung dieser Arbeit beigetragen; ihnen soll an dieser Stelle gedankt werden.

Als erstes möchte ich mich bei Prof. Dr. Rolf Michel bedanken. Seine stets freundliche und hilfsbereite Unterstützung hat diese Arbeit erst möglich gemacht. Er hat mir somit dreieinhalb Jahre Mitarbeit am ZSR ermöglicht, an die ich mich immer gerne zurück erinnern werde.

Des Weiteren danke ich Privatdozent Dr. I. Leya für die Übernahme des Ko-Referates dieser Arbeit.

Mein Dank gilt ebenfalls den Mitarbeitern des ZSR, wobei es schwer fällt, einzelne hervorzuheben. Zu nennen sind an dieser Stelle sicherlich Dr. Dieter Jakob, der stets Hilfsbereitschaft zeigte und der nicht nur diese Arbeit sorgfältig Korrektur gelesen hat. Außerdem gilt mein besonderer Dank Dr. Michael Täschner für fruchtbare Diskussionen zu Fragen der Statistik und Rüdiger Sachse für seine Begleitung und Anleitung während der Probennahme und für die Hilfestellungen bei der Betreuung der γ -spektrometrischen Messplätze. Dank auch an Karl-Heinz Iwanek und Sven Hippeler für ihre Hilfe bei der digitalen Bearbeitung diverser Graphiken und Zeichnungen und an Kevin Klipsch für seine stete Hilfsbereitschaft nicht nur in EDV-Belangen. Ebenfalls bedanken möchte ich mich bei den Mitarbeitern der Werkstatt, die bei Sonderwünschen schnell und unkompliziert mit Rat und Tat zur Seite standen und jeden Freitag zur kulinarischen Versorgung beitrugen.

Die Probennahme wäre ohne die Mitarbeit diverser hilfsbereiter Menschen, denen mein Anliegen in erster Linie Arbeit bereitet hat und die sich trotzdem zur Kooperation entschlossen haben, nicht möglich gewesen.

An dieser Stelle gilt daher mein außerordentlicher Dank der Familie Steffens in Neßmerpolder und der Familie Block in Schessinghausen für die ausdauernde Unterstützung bei der Probennahme. Ebenfalls herzlich danken möchte ich dem landwirtschaftlichen Betrieb der Familie Erhardt in Schlewecke und Björn Estorf aus Gestorf für die Ermöglichung der Probenahme. Auch den Hermannsdorfer Landwerkstätten vertreten durch Herrn Brauch und Herrn Huwatschek, den Gemüsebetrieben Nötel in Jeinsen und Wessels in Gründeich und dem Obstbetrieb Hahne aus Gleidingen (dessen Him- und Brombeeren so schmackhaft waren, dass sie beinahe der γ -Spektrometrie abhanden gekommen wären) schulde ich Dank für ihre freundliche Hilfsbereitschaft. Zu danken ist in diesem Zusammenhang außerdem noch dem Studentenwerk Hannover

vertreten durch Herrn Hübschner, das die Beprobung des Mittagessens der Hauptmensa der Universität Hannover ermöglicht hat.

Dank auch an das Niedersächsische Landesamt für Ökologie, das den ODL-Datensatz aus dem IMIS-Messnetz zur Verfügung gestellt hat.

Herrn Dipl.-Phys. G. Kanisch sei nochmals für die Überlassung des Hessel-Cohn-Algorithmus in Form von Software gedankt.

Ein Teil dieser Arbeit entstand im Zusammenhang mit einem vom Bundesamt für Strahlenschutz geförderten Forschungsvorhaben zur Ableitung von radioökologischen Parametern aus dem langfristigen Eintrag von ^{129}I .

Die Untersuchungen zur Strahlenexposition durch natürliche Radionuklide aus dem Steinkohlebergbau fanden im Auftrag der Deutschen Steinkohle AG statt.

Neben Prof. Dr. Rolf Michel gilt mein herzlicher Dank Dr. Dieter Jacob, Dr. Helmut Vahlbruch und nicht zuletzt StR. Peter Kindermann für die sorgfältige Durchsicht dieser Arbeit.

Abschließend danke ich Antje, Henrik und Finn von ganzem Herzen für ihre Unterstützung in kleinen und großen Dingen. Ohne Antjes Geduld und Bereitschaft, mir die über das normale Maß hinaus gehende Zeit und Abwesenheit zu zugestehen, wäre diese Arbeit so nicht möglich gewesen.

A Tabellen

Tabelle A.1: Zusammensetzung der Gesamtnahrung.

Tag	Menü	Zusammensetzung	Masse in g
08.04.2002	Tellergericht	Tafelspitz mit Frankfurter Grüne Sauce, Wurzelgemüse und Bouillonkartoffeln	447
	Vollwertmenü	Tofuschnitte Florida mit Pfirsich u. Käse überbacken, Sauce Hollandaise, Risi Bisi und gemischtem Salat	434
	Wahlmenü mit Fleisch:	Bifteki Schweinehack mit Schafskäse, Zaziki	227
	Wahlmenü ohne Fleisch: darin enthaltene Beilagen:	Vegetarisches Frikassee mit Tofu Tomatenreis, Pommes frites Gemüse, Salat, Mais-Zucchini Gemüse mit Tomate, Salat mit Schnittlauchdressing	377
09.04.2002	Eintopf	Spargeleintopf mit Mettklößchen, Brötchen	626
	Vollwertmenü	Putenbrustfilet mit Zwiebelkruste, Paprikasauce, gemischtem Gemüse und Kräuterreis, Birnenkompott	424
	Wahlmenü mit Fleisch:	Hähnchenbrustfilet mit Erdnußsauce	405
	Wahlmenü ohne Fleisch: darin enthaltene Beilagen:	Zwiebel-Käseschnitte mit Estragonrahmsauce Kurkumareis, Gemüse, Salat Kohlrabi-gemüse, Gem. Salat mit Orangendressing	401

A Tabellen

Tag	Menü	Zusammensetzung	Masse in g
10.04.2002	Eintopf	Kichererbseneintopf	526
	Vollwertmenü	Spätzlepfanne mit Putenfleisch und Gemüse, gemischter Salat mit Joghurt-Kräuter dressing	466
	Wahlmenü mit Fleisch:	Schweinegeschnetzeltes Züricher Art	494
	Wahlmenü ohne Fleisch: darin enthaltene Beilagen:	Falafelbratling mit Gemüserahmsauce Salzkartoffeln, Spiralnudeln	383
11.04.2002	Eintopf	Botaggio« italienischer Geflügeleintopf, Ciabattabrot	761
	Tellergericht	Senfeier mit Petersilienkartoffeln und Kopfsalat mit Zitronendressing	433
	Wahlmenü mit Fleisch:	Spiessbraten mit Burgundersauce	372
	Wahlmenü ohne Fleisch: darin enthaltene Beilagen:	Sojagulasch mit buntem Gemüse Schnittlauchkartoffeln, Chilireis, Gemüse, Salat: Italienisches Mischgemüse, Möhrenrohkostsalat mit Äpfeln und Sesam	388
12.04.2002	Eintopf	Irish Stew Lammeintopf, Bauernbrot	660
	Tellergericht	Hot dog mit Pommes frites und American Salat mit Islanddressing	355
	Wahlmenü mit Fleisch:	Heilbuttsteak mit Estragon-Senfsauce	425
	Wahlmenü ohne Fleisch: darin enthaltene Beilagen:	Knusperschnitte Hawaii mit Currysauce Butterkartoffeln, Makkaroni, Gemüse, Salat: Balkangemüse, Fenchel-Karottensalat	434
12.08.2002	Eintopf	Milchreis mit Früchten	437
	Tellergericht	Chili con Carne Rind, Naturreis und gem. Salat mit Quarkdressing	429
	Wahlmenü mit Fleisch:	Schweineschnitzel Toscana, Pizzolasauce mit Oliven	391
	Wahlmenü ohne Fleisch: darin enthaltene Beilagen:	hampignonburger mit Sellerie-Apfelcremesauce Herzoginkartoffeln, Gnocchi mit Lauch, Chinakohlsalat mit Paprikastreifen, Buttererbsen, Joghurtcremesuppe, Mandarinenjoghurt	281

Tag	Menü	Zusammensetzung	Masse in g
13.08.2002	Eintopf		415
	Tellergericht		306
	Wahlmenü mit Fleisch		444
	Wahlmenü ohne Fleisch		325
14.08.2002	Eintopf	Salatteller mit Calamaris, Joghurt-Kräuter dressing und Baguette	185
	Tellergericht	Kohlroulade mit Kümmeljus, Salzkartoffeln und Rote Betesala	316
	Wahlmenü mit Fleisch:	Hähnchen-Piccata mit Tomaten-Frischkäsesauce	351
	Wahlmenü ohne Fleisch:	Makkaroni, Käsesauce mit Ratatouillewürfel	274
	darin enthaltene Beilagen:	Safranrisotto, Makkaroni, Tomatensalat, Paprika-Zwiebelgemüse, Kartoffelsuppe mit Mais, Melonenjoghut mit Minze	
15.08.2002	Eintopf	Botaggio italienischer Geflügeleintopf, Ciabattabrot	325
	Tellergericht	Vegetarische Frühlingsrolle, Chinesische Sauce, Butterreis und Eisbergsalat mit Mandarinen	322
	Wahlmenü mit Fleisch:	Schweinebraten griechische Art mit Knoblauchsauce	396
	Wahlmenü ohne Fleisch:	Gnocchi à la Romana mit Pesto	390
	darin enthaltene Beilagen:	Pommes frites, Rosmarinkartoffeln, Baltischer Gurkensalat, Grünes Bohngemüse, Zucchini-suppe, Sanddorn-dickmilch	
16.08.2002	Eintopf		258
	Tellergericht	Pizza	380
	Wahlmenü mit Fleisch:	Fisch	455
	Wahlmenü ohne Fleisch:		308
	darin enthaltene Beilagen:		

A Tabellen

Tag	Menü	Zusammensetzung	Masse in g
11.11.2002	Eintopf	Pfannkuchen mit Apfelmus	366
	Tellergericht	Geflügelbällchen mit Pistaziensauce, Safranrisotto und Blumenkohlsalat mit Orangendressing	351
	Wahlmenü mit Fleisch:	Cordon bleu mit Rahmsauce	418
	Wahlmenü ohne Fleisch:	Bunte Spätzlepfanne mit Spinat und Gemüse Frischkäsesauce	275
	darin enthaltene Beilagen:	Herzoginkartoffeln, Kräuternudeln; Eisbergsalat, Erbsen-Möhrengemüse, Englische Hühnersuppe Mulligatawny, Multivitaminjoghurt	
12.11.2002	Tellergericht	Grünkohl mit Bregenwurst, Senf und Salzkartoffeln	586
	Vollwertmenü	Buchweizensuppe, Bunte Schupfnudelpfanne mit Kräuter-Sonnenblumenkernsauce und gem. Salat	419
	Wahlmenü mit Fleisch:	Rinderhacksteak mit Pfeffersauce	458
	Wahlmenü ohne Fleisch:	Hörnchennudeln mit Gemüsebolognese	280
	darin enthaltene Beilagen:	Pommes frites, Hörnchennudeln, Salat Nizza, Grilltomate, Kräutercremesuppe, Zitronenquarkspeise	
13.11.2002	Eintopf	Gemüseeeintopf mit Grünkern	471
	Tellergericht	1/2 Eisbein, mit Senf, Sauerkraut mit Speck, Kartoffelpüree	622
	Vollwertmenü	gedünstetes Seelachsfilet, indische Gemüsepfanne, Basmatireis mit Koriander	404
	Wahlmenü mit Fleisch:	Piccate von der Pute mit Kräuterkruste	462
	darin enthaltene Beilagen:	Macaire-Kartoffeln, Tomatensalat mit Gurke	
14.11.2002	Tellergericht	Bunte Tortellinin mit Spinat und Ricotafüllung, Tomatensahnesauce	407
	Vollwertmenü	Toskanische Geflügelpfanne mit Paprika und Knoblauch, Kurbiskernreis	380
	Wahlmenü mit Fleisch:	Schweingeschnetzeltes Züricher Art mit Röstlitalern	417
	Wahlmenü ohne Fleisch:	Bunte Tortellinin mit Spinat und Ricotafüllung mit Tomaten-Sahnesauce	407

Tag	Menü	Zusammensetzung	Masse in g
15.11.2002	Tellergericht	Currywurst mit Sauce, Pommes, Salat	331
	Vollwertmenü	Curry-Tofu-Ragout mit Chinagemüse und Früchten, Vollkornreis	533
	Wahlmenü mit Fleisch:	Gebackenes Schollenfilet mit Senf-Remouladensauce, Kartoffelsalat mit Speck	367
	Wahlmenü ohne Fleisch:	Gemüselasagne mit Pestosauce und Oliven, Dillkartoffeln	446
20.01.2003	Frühstück	Wurst	148
		<i>davon</i> <i>Salami</i>	36,4
		<i>Jagdwurst</i>	50,9
		<i>Teewurst</i>	33,0
		<i>Leberwurst</i>	27,3
		Käse	100
		Quark	25,5
		Eier	116
		Butter	55,6
		Obst	44,1
		<i>davon</i> <i>Äpfel</i>	12,8
		<i>Bananen</i>	31,3
		Salat	57,0
		Brötchen	205
		Brot	212
		Schwarzbrot	66,0
		Konfitüre	30,2
Honig	07,0		
	Gesamt	1065	

A Tabellen

Tag	Menü	Zusammensetzung	Masse in g
20.01.2003	Abendessen	Wurst	264
		<i>davon</i> Salami	73,7
		Jagdwurst	75,0
		Teewurst	57,2
		Leberwurst	58,3
		Käse	134
		Quark	5,8
		Tomaten	332
		Butter	34,7
		Obst	71,8
		<i>davon</i> Äpfel	37,4
		Bananen	34,4
		Salat	170
		Brötchen	42,4
		Brot	313
		Schwarzbrot	97,0
		Gesamt	1465

Tabelle A.2: EXCEL®-Auswertblatt für die Probe „Gleitingen, Brombeeren“, Kürzel: GIOBMPBb01, Messung von ²²⁶Ra über 295 keV von ²¹⁴Pb.

Probenbezi.:	GIOBMPBb01										
Messtag:	23.12.2002										
Probenahme:	13.08.2002										
Zerfallszeit [s]:	11404800										
Halbwertszeit [s]:	50492160000										
	Modell $A=k*(N_p/t_p-N_0/t_0)/(m*IE)$										
α	0,05	$k_{1-\alpha}$	1,64521144	A/u(A)	97,34988444	Einheit		$u_{rel}(x)$	3,71182406	ξ	0,44746483
β	0,05	$k_{1-\beta}$	1,64521144	ω				0	0,999896288		
$1-\gamma$	0,95	$k_{1-\gamma/2}$	1,96039492	p(ω)					0,97489888	q(ω)	0,975002593
Messgröße	Symbol	x (input)		u(x)		Typ		C_x			$u(x)*C_x$
Probennettopeak	N_p	631		97,34988444		A		0,033888096			$u(x)*C_x$ in %
Probenuntergrund	$N_{p,u}$	4423						0			53,99
Zeit der Probenmessung	t_p	345600	s					0			0,00
Nullfektmettopeak	$N_{NE,n}$	199		49,34571917		A		0,036147303			29,19
Nullfektuntergrund	$N_{NE,UG}$	1118						0			0,00
Zeit der Nullmessung	t_{UG}	324000	s					0			0,00
Nachweiswahrscheinlichkeit	E	0,084006799	count/gamma	0,00420034		B		168,9157988			11,61
Entkommwahrscheinlichkeit	I	0,1815	gamma/Bq	0,0022				78,18223444			2,81
Masse	m	0,0056	kg	5,7735E-05		A		2533,942063			2,39
Summenkorrektio	k	1		0		B		14,19007555			0,00
								Summe:	6,110518824		100
Resultate											
Aktivität pro Masse	A	14,19229737	Bq/kg	3,823537198				0,269409321			
bester Schätzer	z	14,19385206	Bq/kg	3,82065042				0,26917643			
Erkennungsgrenze	A*	6,063709998	Bq/kg	Probe enthält Aktivität							
Nachweisgrenze	h*	12,31088866	Bq/kg								
untere Vertrauensgrenze	Z_u	6,710468387									
obere Vertrauensgrenze	Z_o	21,68400525									

Tabelle A.3: EXCEL[®]-Auswertblatt für die Probe „Jensen, Mangold“, Kürzel: JeGeEPPMg01, Messung von ²²⁶Ra über 295 keV von ²¹⁴Pb.

Probenbezeichnung:	JeGeEPPGk01									
Messstag:	05.09.2002									
Probenahme:	22.11.2001									
Zerfallszeit [s]:	24796800									
Halbwertszeit [s]:	50492160000									
		Modell	$A=k*(N_b/t_b - N_0/t_0)/(m*T*E)$							
α	0,05	$k_{-1-\alpha}$	1,64521144	$A/u(\Delta)$	15,64028093	ξ	0,161210958			
β	0,05	$k_{-1-\beta}$	1,64521144	ω	1					
$1-\gamma$	0,95	$k_{-1-\gamma/2}$	1,96039492	$p(\omega)$	0,975	$q(\omega)$	0,975			
Messgröße		Symbol	x (input)	Einheit	u(x)	$u_{rel}(x)$	Typ	C_x	$u(x)*C_x$	$u(x)*C_x$ in %
Probennettopeak		N_p	5648		179,8554976	0,031844104	A	0,003259795	0,586292034	30,57
Probenuntergrund		N_{pu}	13350			0		0	0	0,00
Zeit der Probenmessung		t_p	432000	s				0	0	0,00
Nullfektinetoppeak		$N_{NE,t}$	361		65,12296062	0,180396013	A	0,004074744	0,265359369	13,83
Nullfektuntergrund		$N_{NE,uG}$	1940			0		0	0	0,00
Zeit der Nullmessung		t_{UG}	345600	s				0	0	0,00
Nachweiswahrscheinlichkeit		E	0,056294315	count/gamma	0,002814716	0,05	B	300,9245075	0,847016958	44,16
Erkommwahrscheinlichkeit		I	0,1815	gamma/Bq	0,0022	0,012121212		93,33520202	0,205337444	10,71
Masse		m	0,0695	kg	5,7735E-05	0,00083072	A	243,7458873	0,014072675	0,73
Summenkorrektur		k	1		0	0	B	16,94033917	0	0,00
							Summe:	1,918078481		100
Resultate										
Aktivität pro Masse	A		16,94610674	Bq/kg	1,083491199	0,06393747				
bester Schätzer	z		16,94610674	Bq/kg	1,083491199	schon bester Schätzer				
Erkennungsgrenze	A*		0,985661419	Bq/kg		Probe enthält Aktivität				
Nachweisgrenze	h*		1,994439042	Bq/kg						
untere Vertrauensgrenze	z_u		14,8220361							
obere Vertrauensgrenze	z_o		19,07017738							

Tabelle A.4: Spezifische Aktivität aller Proben bezogen auf das Feuchtgewicht. Alle Angaben in Bq/kg. Fettgedruckte Werte liegen oberhalb der Nachweisgrenze, normal gedruckte Werte liegen zwischen der Erkennungs- und Nachweisgrenze. Werte, bei denen eine „0“ zu finden ist, stehen für Messergebnisse unterhalb der Erkennungsgrenze.

	²¹⁰ Pb		²²⁶ Ra		²²⁸ Ra		²²⁸ Th		²³⁸ U		²³⁵ U		⁴⁰ K	
	A	u(A)	A	u(A)	A	u(A)	A	u(A)	A	u(A)	A	u(A)	A	u(A)
Abdossen 20.01.03	0,11	0,05	0,08	0,01	0,08	0,01	0,01	0,01	0,00	0,04	0,00	0,00	62	3
Frühstück 20.01.03	0,21	0,10	0,04	0,01	0,00	0,03	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	55	3
BuMPGr01	8,61	0,77	2,74	0,77	1,09	0,56	0,59	0,13	0,00	0,69	0,00	0,11	139	8
BuZIEPRi01	0,00	0,66	0,00	0,16	0,00	0,24	0,00	0,07	0,00	1,27	0,00	0,07	89	5
BuZIEPMi01	0,00	0,53	0,00	0,08	0,00	0,14	0,27	0,10	0,00	0,51	0,15	0,05	56	3
GeGeEPKa01	0,00	0,00	0,03	0,01	0,00	0,00	0,01	0,00	0,00	0,01	0,00	0,00	89	5
GeGeEPZu01	0,32	0,04	0,20	0,01	0,20	0,03	0,24	0,01	0,20	0,05	0,01	0,00	35	2
GeKoMPWe01	0,00	0,13	0,11	0,02	0,18	0,05	0,04	0,01	0,00	0,11	0,00	0,03	78	4
Ges080402	0,00	0,09	0,11	0,01	0,00	0,03	0,02	0,01	0,00	0,06	0,00	0,01	56	3
Ges090402	0,00	0,05	0,04	0,01	0,00	0,00	0,02	0,01	0,00	0,03	0,00	0,00	50	3
Ges100402	0,12	0,06	0,07	0,01	0,00	0,00	0,02	0,01	0,00	0,04	0,00	0,00	60	3
Ges110402	0,00	0,07	0,13	0,01	0,09	0,02	0,09	0,01	0,09	0,05	0,00	0,02	57	3
Ges111102	0,00	0,07	0,17	0,02	0,00	0,00	0,02	0,01	0,00	0,04	0,00	0,01	48	3
Ges120402	0,00	0,05	0,02	0,01	0,00	0,00	0,01	0,01	0,00	0,03	0,00	0,00	78	4
Ges120802	0,00	0,09	0,05	0,01	0,00	0,03	0,00	0,01	0,00	0,05	0,00	0,01	57	3
Ges121102	0,17	0,06	0,03	0,01	0,08	0,02	0,06	0,02	0,00	0,04	0,00	0,00	69	4
Ges130802	0,00	0,11	0,04	0,02	0,00	0,04	0,00	0,01	0,00	0,07	0,00	0,01	85	4
Ges131102	0,00	0,06	0,08	0,01	0,00	0,01	0,00	0,01	0,00	0,04	0,00	0,00	51	3
Ges140802	0,00	0,10	0,00	0,02	0,00	0,04	0,00	0,01	0,00	0,07	0,00	0,01	50	3
Ges141102	0,19	0,08	0,03	0,01	0,00	0,00	0,01	0,01	0,00	0,04	0,00	0,01	59	3
Ges150802	0,00	0,09	0,00	0,00	0,07	0,03	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	50	3
Ges151102	0,00	0,07	0,00	0,00	0,08	0,03	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	52	3
Ges160802	0,14	0,06	0,06	0,01	0,06	0,02	0,02	0,01	0,00	0,04	0,00	0,00	51	3
GeSeMPWe01	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x
GIObMPBb01	0,19	0,03	0,04	0,01	0,00	0,01	0,01	0,00	0,00	0,02	0,00	0,00	36	2
GIObMPHb01	0,14	0,03	0,03	0,01	0,00	0,01	0,00	0,00	0,00	0,02	0,00	0,00	47	2

	²¹⁰ Pb		²²⁶ Ra		²²⁸ Ra		²²⁸ Th		²³⁸ U		²³⁵ U		⁴⁰ K	
	A	u(A)	A	u(A)	A	u(A)	A	u(A)	A	u(A)	A	u(A)	A	u(A)
GrGeEPBk01	0,91	0,16	0,09	0,04	0,31	0,10	0,00	0,02	0,00	0,12	0,00	0,01	101	5
GrGeEPBK01	0,69	0,28	0,26	0,08	0,00	0,00	0,00	0,02	0,00	0,26	0,00	0,03	242	13
GrGeEPKa01	0,00	0,01	0,04	0,02	0,00	0,00	0,00	0,01	0,00	0,02	0,00	0,00	168	9
GrGeEPKr01	0,96	0,12	0,22	0,02	0,00	0,00	0,00	0,01	0,00	0,08	0,00	0,01	96	5
GrGeEPR01	0,00	0,07	0,00	0,02	0,00	0,00	0,00	0,01	0,00	0,05	0,01	0,01	97	5
GrGeEPKs01	0,41	0,08	0,15	0,01	0,11	0,04	0,06	0,01	0,00	0,06	0,00	0,01	58	3
GrGeEPLa01	0,50	0,12	0,20	0,03	0,32	0,08	0,18	0,02	0,30	0,12	0,00	0,01	75	4
GrGeEPMg01	1,91	0,19	0,07	0,02	0,00	0,03	0,00	0,01	0,00	0,10	0,00	0,01	145	7
GrGeEPPe01	1,45	0,17	0,30	0,05	0,30	0,08	0,18	0,03	0,00	0,15	0,00	0,02	119	6
GrGeEPRb01	3,39	0,65	0,68	0,15	0,89	0,26	0,34	0,11	0,00	0,54	0,00	0,06	145	8
GrGeEPRb01	0,00	0,26	0,14	0,06	0,29	0,16	0,14	0,04	0,00	0,22	0,00	0,03	114	6
GrGeEPRd01	2,09	0,17	0,93	0,04	1,07	0,14	0,89	0,05	0,82	0,19	0,04	0,01	95	5
GrGeEPRd01	0,00	0,07	0,10	0,02	0,00	0,00	0,02	0,01	0,00	0,06	0,00	0,01	65	3
GrGeEPWek01	0,80	0,11	0,17	0,03	0,24	0,07	0,06	0,01	0,15	0,08	0,00	0,01	95	5
GrGeEPWek01	0,00	0,22	0,20	0,05	0,00	0,03	0,00	0,03	0,00	0,17	0,00	0,02	65	4
GrGeEPWk01	0,31	0,10	0,00	0,01	0,00	0,00	0,00	0,01	0,00	0,07	0,02	0,01	68	4
GrGeEPWk01	2,30	0,17	0,17	0,03	0,38	0,11	0,18	0,02	0,20	0,10	0,00	0,01	124	6
GuGeEPRh01	0,09	0,04	0,00	0,17	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,01	0,00	0,00	53	3
HLWMPGr01	2,61	0,16	0,11	0,01	0,23	0,04	0,18	0,01	0,22	0,08	0,02	0,01	99	5
HLWMPGs01	5,82	0,45	0,38	0,04	0,25	0,05	0,42	0,03	0,00	0,23	0,05	0,02	493	25
HLWMPGs02	12,62	0,69	0,26	0,03	0,27	0,08	0,16	0,03	0,00	0,06	0,00	0,01	541	28
HLWEPHe01	1,50	0,21	2,62	0,10	0,72	0,07	0,98	0,05	0,32	0,16	0,00	0,01	372	19
HLWMPHe01	3,44	0,33	0,20	0,02	0,28	0,06	0,17	0,02	0,00	0,20	0,00	0,01	570	29
HLWMPMi01	0,00	0,00	0,00	0,05	0,00	0,08	0,00	0,03	0,00	0,36	0,06	0,03	48	3
HLWMPMi02	0,00	0,11	0,14	0,00	0,00	0,00	0,00	0,02	0,00	0,10	0,00	0,01	42	2
HLWMPMi03	0,00	0,46	0,00	0,19	0,00	0,19	0,00	0,05	0,00	0,48	0,00	0,04	46	2
HLWMPMi04	0,00	0,00	0,23	0,12	0,00	0,16	0,00	0,05	0,00	0,47	0,00	0,04	46	2
HLWMPMi05	0,00	0,36	0,00	0,05	0,00	0,09	0,00	0,04	0,00	1,43	0,10	0,04	44	2
HLWMPMi06	0,00	0,41	0,00	0,06	0,00	0,12	0,00	0,05	0,00	0,42	0,00	0,04	49	3
HLWMPMi07	0,00	0,19	0,00	0,06	0,19	0,09	0,00	0,03	0,00	0,17	0,00	0,02	47	2
HLWMPMi08	0,00	0,00	0,00	0,06	0,00	0,11	0,00	0,05	0,00	0,38	0,07	0,04	58	3

	²¹⁰ Pb		²²⁶ Ra		²²⁸ Ra		²²⁸ Th		²³⁸ U		²³⁵ U		⁴⁰ K	
	A	u(A)	A	u(A)	A	u(A)	A	u(A)	A	u(A)	A	u(A)	A	u(A)
HLWMPMi09	0,00	0,00	0,15	0,04	0,00	0,02	0,13	0,02	0,00	0,10	0,00	0,01	46	2
HLWMPMi10	0,00	0,19	0,00	0,04	0,00	0,07	0,00	0,02	0,00	0,20	0,00	0,02	39	2
HLWMPMi11	0,00	0,18	0,00	0,04	0,00	0,11	0,00	0,02	0,00	0,20	0,00	0,02	48	3
HLWRiEPFi01	0,00	0,20	0,00	0,04	0,00	0,06	0,00	0,03	0,00	0,17	0,00	0,02	102	5
HLWSaeF01	0,00	1,88	0,76	0,34	0,00	0,59	0,00	0,41	0,00	2,20	0,50	0,20	127	7
HLWSweF01	0,00	0,61	0,56	0,21	0,00	0,23	0,00	0,06	0,00	0,62	0,00	0,06	109	6
HLWSwMPFu01	1,55	0,16	0,43	0,02	0,28	0,06	0,09	0,01	2,75	0,57	0,13	0,02	200	10
JeGeEPBk01	0,25	0,10	0,15	0,01	0,17	0,04	0,24	0,01	0,25	0,10	0,02	0,01	85	4
JeGeEPBk01	0,00	0,11	0,13	0,02	0,00	0,04	0,00	0,02	0,00	0,08	0,00	0,01	62	3
JeGeEPBr01	1,22	0,11	0,20	0,01	0,19	0,03	0,18	0,01	0,10	0,05	0,00	0,00	86	4
JeGeEPBr02	0,00	0,07	0,00	0,00	0,00	0,03	0,00	0,02	0,00	0,05	0,00	0,01	62	3
JeGeEPEg01	0,15	0,05	0,03	0,01	0,00	0,00	0,00	0,01	0,00	0,01	0,01	0,00	63	3
JeGeEPGk01	1,22	0,09	0,29	0,01	0,23	0,02	0,27	0,02	0,21	0,06	0,01	0,00	106	5
JeGeEPKp01	3,37	0,38	0,44	0,03	0,43	0,06	0,38	0,05	0,00	0,17	0,05	0,02	252	13
JeGeEPKp01	0,00	0,28	0,14	0,04	0,00	0,04	0,00	0,06	0,00	0,19	0,00	0,02	311	16
JeGeEPKr01	2,65	0,27	0,47	0,04	0,50	0,10	0,31	0,02	0,36	0,19	0,04	0,02	140	7
JeGeEPKr01	0,00	0,05	0,00	0,00	0,05	0,02	0,00	0,01	0,00	0,03	0,00	0,00	58	3
JeGeEPKs01	1,00	0,13	0,46	0,02	0,45	0,04	0,45	0,05	0,46	0,13	0,03	0,01	96	5
JeGeEPLa02	0,00	0,11	0,00	0,03	0,17	0,08	0,00	0,02	0,00	0,10	0,04	0,01	53	3
JeGeEPMg01	0,77	0,14	0,29	0,02	0,24	0,05	0,23	0,02	0,00	0,12	0,00	0,01	181	9
JeGeEPPe01	1,74	0,24	0,61	0,07	0,44	0,17	0,29	0,04	0,60	0,26	0,00	0,03	216	11
JeGeEPRb01	1,54	0,16	0,42	0,02	0,49	0,06	0,49	0,03	0,31	0,11	0,02	0,01	274	14
JeGeEPRb01	0,00	0,53	0,00	0,02	0,16	0,08	0,00	0,07	0,00	0,42	0,00	0,04	186	10
JeGeEPRo01	1,34	0,11	0,67	0,06	0,73	0,05	0,80	0,04	0,50	0,12	0,03	0,01	129	7
JeGeEPRo02	0,10	0,05	0,02	0,01	0,00	0,00	0,01	0,00	0,00	0,03	0,01	0,00	129	7
JeGeEPWek01	1,54	0,2	0,31	0,03	0,34	0,06	0,22	0,02	0,00	0,17	0,00	0,01	137	7
JeGeEPWek01	0,00	0,7	0,07	0,03	0,14	0,04	0,07	0,01	0,00	0,09	0,00	0,01	78	4
JeGeEPWk01	1,33	0,17	0,18	0,02	0,18	0,04	0,18	0,02	0,21	0,11	0,01	0,01	96	5
JeGeEPWk01	0,00	0,08	0,05	0,01	0,00	0,00	0,02	0,01	0,00	0,04	0,00	0,00	116	6
LiGeEPKa01	0,00	0,07	0,15	0,01	0,11	0,03	0,03	0,01	0,11	0,07	0,01	0,00	109	6
PoEPHe01	1,27	0,10	0,00	0,01	0,00	0,02	0,01	0,01	0,00	0,00	0,00	0,08	71	4

	²¹⁰ Pb		²²⁶ Ra		²²⁸ Ra		²²⁸ Th		²³⁸ U		²³⁵ U		⁴⁰ K	
	A	u(A)	A	u(A)	A	u(A)	A	u(A)	A	u(A)	A	u(A)	A	u(A)
PoEPHe02	5,52	0,37	0,11	0,02	0,34	0,06	0,14	0,02	0,00	0,17	0,00	0,01	223	12
PoEPHe03	3,98	0,21	0,10	0,01	0,17	0,02	0,21	0,01	0,08	0,04	0,01	0,00	73	4
PoEPHe04	1,90	0,18	0,00	0,02	0,13	0,04	0,05	0,01	0,00	0,09	0,01	0,01	165	8
PoKdMP01	0,00	1,90	1,19	0,36	0,00	0,92	1,82	0,24	0,00	2,11	0,60	0,21	36	3
PoKoMPGe01	1,47	0,13	0,21	0,01	0,39	0,04	0,18	0,01	0,00	1,75	0,00	0,01	108	6
PoKoMPHa01	2,09	0,15	0,05	0,02	0,00	0,00	0,04	0,01	0,00	0,03	0,00	0,01	127	7
PoKoMPHa02	1,07	0,17	0,00	0,00	0,00	0,03	0,02	0,01	0,00	1,85	0,00	0,04	72	4
PoKoMPRa01	0,47	0,13	0,06	0,03	0,00	0,00	0,03	0,01	0,00	0,09	0,00	0,01	256	13
PoKoMPWe01	0,24	0,11	0,04	0,01	0,00	0,03	0,10	0,01	0,00	0,08	0,01	0,01	115	6
PoMPHe01	0,58	0,07	0,11	0,01	0,00	0,01	0,05	0,01	0,00	0,04	0,00	0,01	95	5
PoMPHe02	8,72	0,57	0,42	0,04	0,72	0,13	0,57	0,04	0,00	0,29	0,07	0,02	476	25
PoMPHe03	4,16	0,22	0,28	0,01	0,39	0,05	0,35	0,02	0,25	0,06	0,02	0,00	68	4
PoMPLu01	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x
PoMPMi01	0,00	0,50	0,00	0,08	0,00	0,14	0,00	0,05	0,00	0,52	0,12	0,05	58	3
PoMPMi02	0,00	0,19	0,00	0,04	0,22	0,11	0,00	0,01	0,00	0,19	0,00	0,02	45	2
PoMPMi03	0,00	0,35	0,00	0,06	0,25	0,11	0,00	0,03	0,00	0,39	0,09	0,04	42	2
PoMPMi04	0,00	0,48	0,00	0,06	0,00	0,04	0,00	0,04	0,00	0,50	0,00	0,05	42	2
PoMPMi05	0,00	0,22	0,18	0,05	0,00	0,11	0,00	0,03	0,00	0,20	0,00	0,02	46	2
PoMPMi06	0,00	0,55	0,00	0,09	0,00	0,20	0,20	0,06	0,00	0,55	0,13	0,05	49	3
PoMPMi07	0,00	0,35	0,00	0,05	0,00	0,15	0,00	0,04	0,00	0,37	0,09	0,04	44	2
PoMPMi08	0,00	0,33	0,00	0,05	0,00	0,10	0,00	0,03	0,00	0,35	0,00	0,03	45	2
PoMPMi09	0,00	0,22	0,00	0,04	0,00	0,11	0,00	0,03	0,00	0,22	0,00	0,02	44	2
PoMPMi10	0,00	0,13	0,00	0,04	0,00	0,00	0,00	0,02	0,00	0,13	0,00	0,02	48	3
PoMPMi11	0,00	0,13	0,20	0,03	0,00	0,00	0,00	0,02	0,00	0,13	0,00	0,02	46	2
PoMPMi12	0,00	0,23	0,00	0,04	0,00	0,12	0,00	0,04	0,00	0,22	0,00	0,02	41	2
PoMPMi13	0,00	0,46	0,00	0,08	0,00	0,18	0,00	0,05	0,00	0,50	0,00	0,05	44	2
PoMPMi14	0,00	0,25	0,00	0,05	0,52	0,13	0,00	0,04	0,00	0,21	0,00	0,02	46	2
PoRIEPh01	0,47	0,16	0,00	0,02	0,15	0,08	0,03	0,02	0,00	0,73	0,00	0,01	41	2
PoRIEPhf01	0,00	0,08	0,00	0,39	0,00	0,03	0,00	0,00	0,00	0,06	0,00	0,01	90	5
PoRIEPLe01	1,24	0,18	0,00	0,44	0,00	0,00	0,11	0,02	0,00	0,12	0,00	0,01	196	10
PoRIEPLu01	0,19	0,05	0,04	0,01	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,02	0,00	0,00	70	4

	²¹⁰ Pb		²²⁶ Ra		²²⁸ Ra		²²⁸ Th		²³⁸ U		²³⁵ U		⁴⁰ K	
	A	u(A)	A	u(A)	A	u(A)	A	u(A)	A	u(A)	A	u(A)	A	u(A)
PoRIEPMi01	0,19	0,08	0,08	0,03	0,14	0,06	0,04	0,02	0,00	0,07	0,00	0,01	15	1
PoRIEPNi01a	0,49	0,13	0,00	0,04	0,00	0,00	0,13	0,02	0,00	0,12	0,00	0,02	45	2
PoRIEPNi01b	1,39	0,12	0,07	0,02	0,00	0,00	0,05	0,01	0,00	0,08	0,00	0,01	67	0
PoRIEPSb01	6,69	0,83	1,21	0,09	2,49	0,33	1,40	0,09	0,00	0,40	0,07	0,04	31	2
PoRiMPKrf01	1,38	0,59	0,93	0,07	1,34	0,13	0,75	0,09	0,00	0,43	0,00	0,03	394	20
PoSIMPHa01	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x
PoSIMPHa02	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x
PoSIMPWe01	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x
RhPiMPMr01	0,17	0,03	0,00	0,16	0,04	0,02	0,04	0,00	0,07	0,03	0,00	0,00	61	3
RhPiMPRV01	0,96	0,27	0,00	0,04	0,00	0,09	0,11	0,04	1	0,31	0,06	0,03	71	4
RhPiMPSc01	0,73	0,04	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,01	0,00	0,00	28	1
RhRe4awBI01	0,00	1,30	0,00	0,24	0,00	0,44	1,40	0,35	0,00	1,75	0,37	0,18	110	6
ScGeEPMa01	0,00	0,09	0,08	0,01	0,00	0,03	0,00	0,02	0,00	0,07	0,00	0,01	116	6
ScGeEPMa01BI	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x
ScGeMPMS01	3,51	0,19	0,04	0,01	0,06	0,02	0,12	0,01	0,17	0,08	0,02	0,01	87	4
ScKoMPRa01	0,00	0,27	0,10	0,03	0,28	0,07	0,00	0,02	0,00	0,00	0,00	0,00	238	12
ScKoMPRo01	0,66	0,14	0,07	0,01	0,18	0,04	0,14	0,01	0,00	0,10	0,00	0,01	123	6
ScKoMPTr01	0,00	0,19	0,10	0,02	0,15	0,05	0,04	0,01	0,00	0,21	0,00	0,03	146	8
ScKoMPTr02	0,30	0,08	0,18	0,01	0,23	0,02	0,18	0,01	0,00	0,05	0,01	0,00	145	7
ScKoMPWe01	0,07	0,03	0,05	0,00	0,09	0,01	0,05	0,00	0,00	0,01	0,00	0,00	69	4
ScKoMPWe02	2,99	0,30	0,10	0,03	0,27	0,11	0,11	0,02	0,00	0,15	0,03	0,01	138	7
ScPuEPHä01	0,00	0,02	0,00	0,00	0,00	0,01	0,00	0,00	0,00	0,02	0,00	0,00	75	4
ScPuEPHä01K	0,35	0,18	0,38	0,04	0,60	0,07	0,21	0,03	0,00	0,13	0,00	0,01	48	3
ScPuMPPF01	1,14	0,38	1,25	0,06	3,01	0,19	2,31	0,11	0,00	0,32	0,06	0,02	298	15
ScKoMPPF01	0,18	0,06	0,09	0,01	0,10	0,03	0,04	0,01	0,00	0,05	0,00	0,00	80	4
ScSiMPRo01	12,53	0,79	1,13	0,07	0,92	0,14	0,48	0,05	0,94	0,42	0,00	0,08	229	12
ScSiMPTr01	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x
ScSiMPTr01b	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x
ScWsEPRü01	0,00	0,08	0,00	0,01	0,07	0,04	0,00	0,02	0,00	0,06	0,00	0,01	96	5
SiGeEPZu01	0,00	0,03	0,06	0,01	0,00	0,00	0,03	0,00	0,00	0,03	0,00	0,00	54	3
SiGeEPZu01BI	1,98	0,18	0,34	0,02	0,36	0,05	0,64	0,02	0,31	0,12	0,03	0,01	220	11

	²¹⁰ Pb		²²⁶ Ra		²²⁸ Ra		²²⁸ Th		²³⁸ U		²³⁵ U		⁴⁰ K	
	A	u(A)	A	u(A)	A	u(A)	A	u(A)	A	u(A)	A	u(A)	A	u(A)
SIKoMPGe01	0,72	0,06	0,10	0,01	0,13	0,02	0,06	0,01	0,00	0,02	0,00	0,00	108	6
SIKoMPGe02	0,71	0,12	0,05	0,01	0,11	0,04	0,00	0,01	0,00	0,06	0,01	0,01	82	4
SIKoMPRa01	0,00	0,07	0,23	0,03	0,19	0,06	0,17	0,02	0,00	0,13	0,00	0,01	239	12
SIKoMPWe01	0,27	0,11	0,13	0,01	0,12	0,02	0,05	0,01	0,00	0,80	0,00	0,01	124	6
SIKoMPWe02	0,30	0,09	0,18	0,02	0,23	0,03	0,11	0,01	0,00	0,05	0,00	0,00	131	7
SISiMPGe01	5,86	0,45	1,11	0,05	1,53	0,19	0,46	0,05	0,00	0,19	0,00	0,02	416	21
SISiMPGe02	6,58	0,51	0,99	0,06	1,12	0,11	0,92	0,09	0,00	0,22	0,00	0,02	509	26
SISiMPWe01	5,29	0,29	0,51	0,02	0,74	0,08	0,60	0,02	0,00	0,04	0,01	0,01	214	11
SISiMPWe02	9,69	0,61	1,42	0,07	2,13	0,26	0,55	0,07	0,00	0,27	0,06	0,02	228	12
WeEPKa01	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x
ZSREPEi01	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x

Tabelle A.5: Aschgewicht (AG), Trockengewicht (TG) und Feuchtgewicht (FG) bei Gemüseproben. Alle Angaben beziehen sich auf zum Verzehr geeignete Pflanzenteile. Die fett gedruckten Werte können mit einander verglichen werden.

Code	Ort	Art	FG in g	TG in g	AG in g	TG/FG			AG/FG		
						Mess ^a	MW ^b	[Mes00h] ^c	Mess ^a	MW ^b	[Mes00h] ^c
GeGeEPKa01	Gestorf	Kartoffeln	3376	583,4	23,3	0,173			0,007	0,010	0,012
GrGeEPKa01	Gründelch	Kartoffeln	1695 ^d	376,3	22,9	0,222 ^d			0,014		
GrGeEPKf01	Gründelch	Kohlrabi	810,9	69,5	8,1	0,086	0,083	0,084	0,010	0,009	0,010
JeGeEPKf01	Jeinsen	Kohlrabi	1915	152,9	13,6	0,080			0,007		
GrGeEPRb01	Gründelch	Rote Bete	166,5	25,5	2,1	0,153	0,140	0,112	0,013	0,016	0,010
JeGeEPRb01	Jeinsen	Rote Bete	864,0	108,9	17,0	0,126			0,020		
GrGeEPRd01	Gründelch	Radieschen	569,0	29,0	3,7	0,051			0,007		
JeGeEPEg01	Jeinsen	Einlegegurken	1193	49,7	7,1	0,042		0,032	0,006		0,006
JeGeEPPk01	Jeinsen	Knollenpetersilie	656	122,9	20,3	0,187			0,031		
LiGeEPPKa01	Linden	Karotten	2382	245,7	18,9	0,103		0,118	0,008		0,009
GrGeEPPBK01	Gründelch	Blumenkohl	329,8	30,2	3,1	0,092	0,080	0,084	0,009	0,008	0,008
JeGeEPPBK01	Jeinsen	Blumenkohl	469,0	32,2	2,9	0,069			0,006		
JeGeEPPBr02	Jeinsen	Brokoli	892,0	93,9	7,5	0,105			0,008		
JeGeEPPGk01	Jeinsen	Grünkohl	4167	353,0	69,5	0,085		0,137	0,017		0,017
GrGeEPLa01	Gründelch	Lauch	351,1	47,9	4,8	0,136	0,104	0,110	0,014	0,011	0,009
JeGeEPLa02	Jeinsen	Lauch	394,0	28,3	3,1	0,072			0,008		
GrGeEPMg01	Gründelch	Mangold	780,0	50,0	11,2	0,064	0,079		0,014	0,019	
JeGeEPMg01	Jeinsen	Mangold	2524	237,6	60,8	0,094			0,024		
GrGeEPPe01	Gründelch	Petersilie	218,6	20,6	3,9	0,094	0,119		0,018	0,021	
JeGeEPPe02	Jeinsen	Petersilie	178,1	25,6	4,4	0,144			0,025		
JeGeEPPRo02	Jeinsen	Rosenkohl	2085	316,5	22,9	0,152		0,150	0,011		0,014
GrGeEPPWe01	Gründelch	Weißkohl	140,2	11,5	1,0	0,082	0,085	0,079	0,007	0,007	0,006
JeGeEPPWe01	Jeinsen	Weißkohl	1545	136,7	10,9	0,088			0,007		
GrGeEPPWk01	Gründelch	Wirsingkohl	479,0	44,6	12,0	0,093	0,104	0,100	0,025	0,018	0,011
JeGeEPPWk01	Jeinsen	Wirsingkohl	1402	161,7	14,2	0,115			0,010		
GrGeEPPKs01	Gründelch	Kopfsalat	899,4	38,3	8,4	0,043	0,057	0,050	0,009	0,019	0,007
JeGeEPPKs01	Jeinsen	Kopfsalat	1201	85,7	34,7	0,071			0,029		
GaGeEPPRh01	Gümmel	Rhabarber	1851,9	56,7	9,8	0,031			0,005		

^a Mess = gemessener Einzelwert des entsprechenden Verhältnisses.

^b MW = aus den Einzelwerten gebildetes arithmetische Mittel.

^c in [Mes00h] angegebene Vergleichswerte.

^d Wegen fehlender FG-Bestimmung wurde das FG nachträglich mit dem aus [Mes00h] stammenden Verhältnis TG/FG ermittelt.

Tabelle A.6: Aschgewicht (AG), Trockengewicht (TG) und Feuchtwicht (FG) bei Pilzen und Beeren. Alle Angaben beziehen sich auf zum Verzehr geeignete Pflanzenteile.

Code	Ort	Art	FG in g		TG in g		AG in g		TG/FG		AG/FG	
			Mess ^a	Mess ^b	Mess ^a	Mess ^b	Mess ^a	Mess ^b	Mess ^a	Mess ^b	Mess ^a	Mess ^b
RhPiMPMr01	Reinhausen	Maronen-Röhrlinge	710	71,0	6,4	0,100	0,009					
RhPiMPRV01	Reinhausen	Violetta Ritterling	263	13,7	1,6	0,052	0,006					
RhPiMPSc01	Reinhausen	Schirmlinge	3407	182,2	18,5	0,053	0,005					
GIObMPBb01	Gleidingen	Brombeeren	1534	193,3	5,6	0,126	0,004	0,163				
GIObMPHb01	Gleidingen	Himbeeren	1749	156,2	7,9	0,089	0,005	0,165				

^a Mess = gemessener Einzelwert des entsprechenden Verhältnisses.

^b in [Mes00h] angegebene Vergleichswerte.

Tabelle A.7: Trocken- und Feuchtgewicht der untersuchten Milchproben.

	Datum	FG in g	TG in g	TG/FG
HLWMPMi01	September 01	1002	109,6	0,109
HLWMPMi02	Oktober 01	1059	123,7	0,117
HLWMPMi03	November 01	1072	144,6	0,135
HLWMPMi04	Dezember 01	1053	143,7	0,137
HLWMPMi05	Januar/Februar 02	1121	126,7	0,113
HLWMPMi06	März 02	1053	129,8	0,123
HLWMPMi07	April 02	1050	120,5	0,115
HLWMPMi08	Mai 02	1124	139,7	0,124 ^a
HLWMPMi09	Juli 02	1037	123,4	0,119
HLWMPMi10	Januar 03	549	56,7	0,103
HLWMPMi11	April 03	969	109,3	0,113
PoMPMi01	Mai 01	764	120,7	0,158 ^b
PoMPMi02	August 01	884	109,6	0,124
PoMPMi03	September 01	1003	128,2	0,128
PoMPMi04	Oktober 01	1030	131,8	0,128
PoMPMi05	November 01	1053	135,5	0,129
PoMPMi06	Dezember 01	1083	144,6	0,134
PoMPMi07	Januar 02	1037	125,1	0,121
PoMPMi08	Februar 02	1003	154,3	0,154 ^b
PoMPMi09	März 02	1076	133,9	0,125
PoMPMi10	April 02	1014	129,7	0,128
PoMPMi11	Mai 02	1038	131,9	0,127
PoMPMi12	Juni/Juli 02	976	123,1	0,126
PoMPMi13	Oktober 02	569	72,1	0,127
PoMPMi14	November 02	1047	134,0	0,128
Mittelwert				0,124
Ziegenmilch	Mai 02	1023,8	119,9	0,117

^a da bei der Gefriertrocknung Material verloren ging, konnte das korrekte Trockengewicht nicht ermittelt werden. Stattdessen wurde mit dem Mittelwert des Verhältnisses TG/FG gerechnet.

^b keine vollständige Trocknung.

Tabelle A.8: Aschgewicht (AG), Trockengewicht (TG) und Feuchtgewicht (FG) von Getreidekorn. Alle Massen sind in g angegeben.

Code	Ort	Beschreibung	Datum	FG	TG	AG	Anteil TG verascht ^a	TG/FG ^b	AG/TG ^b	AG/FG ^b
SiKoMPWe01	Schlewecke	Weizenkorn	6.8.01	4479	4228	67,4	4228	94,4	1,6	1,50
SiKoMPWe02	Schlewecke	Weizenkorn	20.8.01	2277	2150	19,6	1028	94,4	1,9	1,80
GeKoMPWe01	Gestorf	Weizenkorn	15.8.01	3122	2954	48,7	2954	94,6	1,6	1,56
PoKoMPWe01	Neßmerpolder	Weizenkorn	27.8.01	4449	4210	62,3	3274	94,6	1,9	1,80
SeKoMPWe01	Schessinghausen	Weizenkorn	11.9.01	2995	1801	26,4	1801	60,1	1,5	0,88
SeKoMPWe02	Schessinghausen	Weizenkorn	11.9.01	1538	1455	27,7	1455	94,6	1,9	1,80
SeKoMPPF01	Schessinghausen	Weizenkorn ^c	16.8.01	1791	1689	29,0	1689	94,3	1,7	1,62
PoKoMPGe01	Neßmerpolder	Gerstekorn	27.8.01	3169	2358	71,3	2358	74,4	3,0	2,25
SiKoMPGe01	Schlewecke	Gerstekorn	21.7.01	3408	2631	59,5	2631	77,2	2,3	1,75
SiKoMPGe02	Schlewecke	Gerstekorn	21.7.01	3040	2799	42,6	2070	92,1	2,1	1,90
PoKoMPHa01	Neßmerpolder	Haferkorn	27.8.01	2632 ^d	2614	75,0	2614	99,3	2,9	2,85
PoKoMPHa02	Neßmerpolder	Haferkorn	27.8.01	2530 ^d	2461	72,1	2461	97,3	2,9	2,85
PoKoMPRa01	Neßmerpolder	Raps	27.8.01	4291	3828	166,2	3828	89,2	4,3	3,87
SiKoMPRa01	Schlewecke	Raps	27.7.01	2961	2768	40,6	997	93,5	4,1	3,81
SeKoMPRa01	Schessinghausen	Raps	13.8.01	3119	2776	113,0	2776	89,0	4,1	3,62
SeKoMPRo01	Schessinghausen	Roggenkorn	16.8.01	3860	982	85,5	982	25,4	8,7	2,22
SeKoMPTr01	Schessinghausen	Tritikalekorn	16.8.01	1729	1672	33,0	1672	96,7	2,0	1,91
SeKoMPTr02	Schessinghausen	Tritikalekorn	11.9.01	5060	4774	87,0	4774	94,3	1,8	1,72

^a Anteil der Masse TG in g, der verascht wurde.

^b Angaben in %.

^c Weizenkorn aus dem Vorjahr, das als Putenfutter verwendet wurde.

^d Da das FG nicht bekannt war, erfolgte eine Abschätzung durch das in [Mes00h] angegebene Verhältnis von TG/FG=0,0285.

Tabelle A.9: Aschgewicht (AG), Trockengewicht (TG) und Feuchtgewicht (FG) von Getreidestroh. Alle Massen sind in g angegeben.

Code	Ort	Probenbeschreibung	Datum	TG	AG	Anteil TG verascht ^a	AG/TG ^b
GeStMPWe01	Gestorf	Weizenstroh	15.8.01	1206	108,6	1206	9,0
PoStMPWe01	Nebmerpolder	Weizenstroh	27.8.01	2090	181,5	2090	8,7
SiStMPWe01	Schlewecke	Weizenstroh	6.8.01	1039	48,5	1039	4,7
SiStMPWe02	Schlewecke	Weizenstroh	20.8.01	1821	158,8	1821	8,7
SiStMPGe01	Schlewecke	Gerdestroh	21.7.01	568	44,1	568	7,8
SiStMPGe02	Schlewecke	Gerdestroh	21.7.01	343	19,8	343	5,8
PoStMPHa01	Nebmerpolder	Haferstroh	27.8.01	573	34,6	573	6,0
PoStMPHa02	Nebmerpolder	Haferstroh	27.8.01	950	63,5	950	6,7
ScStMPRo01	Schessinghausen	Roggenstroh	16.8.01	2631	230,6	2631	8,8
ScStMPTr01	Schessinghausen	Tritkalestroh	16.8.01	1686	93,0	1686	5,5

^a Anteil der Masse TG in g, der verascht wurde.

^b Angaben in %.

Tabelle A.10: Aschgewicht (AG), Trockengewicht (TG) und Feuchtgewicht (FG) von Weide- und Wiesenbewuchs. Alle Massen sind in g angegeben.

Code	Ort	Probe	Datum	FG	TG	AG	Anteil TG verascht ^a	TG/FG ^b	AG/TG ^b	AG/FG ^b
HLWEPHe01	HLW	Heu	21.05.2002	383 ^c	331	25,0	331	86,25	7,56	6,52
HLWMPHe01	HLW	Heu	03.09.2001	1817 ^c	1567	124,7	1567	86,25	7,96	6,86
PoMPHe02	Neßmerpolder	Heu	01.10.2002	2318	1988	93,0	1198	85,76	7,76	6,66
HLWMPGs01	HLW	Gras	24.05.2002	3595	856	55,7	856	23,80	6,51	1,55
PoEPHe01	Neßmerpolder	Gras	25.05.2001	5527	938	55,7	740	16,97	7,52	1,28
PoEPHe02	Neßmerpolder	Gras	27.08.2001	6425 ^d	1420	125,0	1420	22,10	8,80	1,95
PoEPHe03	Neßmerpolder	Gras	27.08.2001	6914 ^d	1528	121,0	1528	22,10	7,92	1,75
PoEPHe04	Neßmerpolder	Gras	30.05.2002	4230 ^e	1007	76,8	1007	23,80	7,63	1,82
PoMPHe01	Neßmerpolder	Gras	25.05.2001	7577	1220	62,7	995	16,10	6,30	1,01
PoMPHe03	Neßmerpolder	Gras	01.10.2002	3162	785	59,3	785	24,81	7,56	1,88
PoMPLu01	Neßmerpolder	Gras	27.08.2001	- ^f	4298	292,4	4298	-	6,80	-

^a Anteil der Masse TG in g, der verascht wurde.

^b Angaben in %.

^c FG nicht bekannt und daher nach [Far88] mit $FG/TG=0,8625$ berechnet.

^d FG nicht bekannt und daher nach [Far88] mit $FG/TG=0,221$ (2.Schnitt) berechnet.

^e FG nicht bekannt und daher nach [Far88] mit $FG/TG=0,238$ (1.Schnitt) berechnet.

^f FG unbekannt.

Tabelle A.11: Aschgewichte (AG) und Feuchtgewichte (FG) der Gesamtnahrung. Alle Massen sind in g angegeben.

Code	Ort	Probenbeschreibung	Datum	FG	AG	AG/FG ^a
GES080402	Hauptmensa Hannover	Gesamtnahrung	8. Apr. 02	989	13,1	1,32
GES090402	Hauptmensa Hannover	Gesamtnahrung	9. Apr. 02	1108	16,5	1,49
GES100402	Hauptmensa Hannover	Gesamtnahrung	10. Apr. 02	1338	20,2	1,51
GES110402	Hauptmensa Hannover	Gesamtnahrung	11. Apr. 02	1338	20,5	1,53
GES120402	Hauptmensa Hannover	Gesamtnahrung	12. Apr. 02	1209	18,0	1,49
GES120802	Hauptmensa Hannover	Gesamtnahrung	12. Aug. 02	1048	14,5	1,38
GES130802	Hauptmensa Hannover	Gesamtnahrung	13. Aug. 02	891	16,7	1,87
GES140802	Hauptmensa Hannover	Gesamtnahrung	14. Aug. 02	725	10,0	1,38
GES150802	Hauptmensa Hannover	Gesamtnahrung	15. Aug. 02	903	11,7	1,30
GES160802	Hauptmensa Hannover	Gesamtnahrung	16. Aug. 02	949	16,1	1,70
GES111102	Hauptmensa Hannover	Gesamtnahrung	11. Nov. 02	933	13,4	1,44
GES121102	Hauptmensa Hannover	Gesamtnahrung	12. Nov. 02	1441	24,3	1,69
Ges131102	Hauptmensa Hannover	Gesamtnahrung	13. Nov. 02	1417	17,5	1,24
GES141102	Hauptmensa Hannover	Gesamtnahrung	14. Nov. 02	1083	15,7	1,45
GES151102	Hauptmensa Hannover	Gesamtnahrung	15. Nov. 02	1113	18,3	1,64
Fr200103		Gesamtnahrung	20. Jan. 03	750	15,5	2,07
Ab200103		Gesamtnahrung	20. Jan. 03	1087	19,8	1,82

^a Angaben in %.

Tabelle A.12: Charakterisierung des Multielementstandard QCY48 ^a.

Referenzdatum: 12:00 GMT am 1. Februar 2002
Masse m_1 der Lösung: 5,3816 g
Masse m_2 der verdünnten Lösung: 257,408 g

Radionuklid	Energie in keV	$T_{1/2}$ in d ^b	γ -Emmision pro s und g	Erweiterte relative Standardunsicherheit
²⁴¹ Am	59,54	$1,58 \cdot 10^5$	1114	2,60 %
¹⁰⁹ Cd	88,03	462,1	642	6,20 %
⁵⁷ Co	122,1	271,83	580	1,50 %
¹³⁹ Ce	165,9	137,66	679	1,40 %
²⁰³ Hg	279,2	46,6	1916	1,40 %
¹¹³ Sn	391,7	115,09	2059	3,20 %
⁸⁵ Sr	514	64,85	3871	2,50 %
¹³⁷ Cs	661,6	$1,10 \cdot 10^4$	2445	2,00 %
⁸⁸ Y	898	106,63	6316	1,60 %
⁶⁰ Co	1173	1925,3	3348	1,50 %
⁶⁰ Co	1333	1925,3	3351	1,50 %
⁸⁸ Y	1836	106,63	6676	1,40 %

^a Die Daten stammen aus dem von AEAT mitgelieferten „Certificate of calibration of mixed radionuclide gamma-ray reference solution“.

^b [Sch98b] entnommen.

Tabelle A.13: Charakterisierung des Multielementstandard QCYB40 ^a.

Referenzdatum: 12:00 GMT am 1. Juli 1999
Masse der Lösung: 2,01 g
Masse m_2 der verdünnten Lösung: 250,000g

Radionuklid	Energie in keV	$T_{1/2}$ in d ^b	γ -Emmision pro s und g	Erweiterte relative Standardunsicherheit
²¹⁰ Pb	46,54	8145	439	2,0 %
²⁴¹ Am	59,54	$1,58 \cdot 10^5$	734	2,0 %
¹⁰⁹ Cd	88,03	462,1	380	2,0 %
⁵⁷ Co	122,1	271,83	897	2,0 %

^a Die Daten entstammen dem von der PTB mitgelieferten Kalibrierschein DKD-K-06501.

^b [Sch98b] entnommen.

Tabelle A.14: Beschreibung der Probenahmeorte

Bezeichnung des Hofes	Proben	geo. Breite	geo. Länge	Bodentyp
Nessmerpolder	Heu, Hafer, Weizen, Luzerne, Raps, Gerste, Rindfleisch, innere Organe vom Rind, Kuhmilch	53° 40' 30" N	07° 22' 12" O	Seemarsch
HLW	Heu, Grassilage, Grünfütter, Schweinefleisch, Schafsfleisch, Rindfleisch, Kuhmilch	52° 18' 34" N	09° 50' 09" O	Rendzina
Schessinghausen	Raps, Roggen, Triticale, Weizen, Mais (auch Silage), Putenfleisch (incl. Fut-ter), Wildschwein	52° 35' 28" N	09° 15' 30" O	Podsol-Braunerde
Schlewecke	Gerste, Raps, Weizen, Zuckerrüben	52° 02' 29" N	10° 08' 13" O	(Pseudogley)-Parabraunerde
Gestorf	Weizen, Kartoffeln, Zuckerrüben	52° 13' 04" N	09° 42' 28" O	Pseudogley-Parabraunerde
Jeinsen	Kopfsalat, Knollenpetersilie, Rote Bete, Mangold, Kohlrabi, Einlegegurken, Lauch, Petersilie, Wirsingkohl, Weißkohl, Blumenkohl, Brokoli, Rosenkohl	52° 14' 05" N	09° 47' 26" O	Parabraunerde
Gründeich	Kopfsalat, Kohlrabi, Weißkohl, Mangold, Radieschen, Wirsingkohl, Blumenkohl, Petersilie, Rote Bete, Lauch, Kartoffeln	53° 39' 43" N	7° 30' 59" O	Brackmarsch-Seemarsch
Buntenbock	Ziegenmilch	51° 46' 23" N	10° 19' 49" O	Braunerde
Reinhausen	Pilze	52° 27' 46" N	10° 00' 49" O	Braunerde-Ranker
Gleidingen	Himbeeren, Brombeeren	52° 16' 09" N	09° 47' 57" O	Gley-Auenboden
Gümmer	Rhabarber	52° 24' 26" N	09° 31' 44" O	Gley
Hauptmensa	Gesamtnahrung	52° 23' 11" N	09° 42' 50" O	-

Tabelle A.15: Spezifische Aktivitäten in Fleisch in Bq/kg bezogen auf das Feuchtgewicht.

Quelle	Ort	Beschreibung	²¹⁰ Pb	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th	²³⁸ U
[BfS01]	Deutschland	Fleisch	0,1 - 1,0	0,03 - 0,18			0,001 - 0,020
[Mau89]	Großbritannien	Fleisch außer Geflügel	0,04	0,003 - 0,060		0,020	0,030
[Mau89]	Großbritannien	Geflügel		0,01 - 0,04			
[Fri86]	Deutschland	Reh -Fleisch-					0,002
[Fri86]	Deutschland	Rind -Fleisch-					0,002
[Fri86]	Deutschland	Schwein -Fleisch-					0,002
[Fri92]	Deutschland	Reh -Fleisch-				0,0050	0,021
[Fri92]	Deutschland	Rind -Fleisch-				0,0021	0,028
[Fri92]	Deutschland	Schaf -Fleisch-				0,0036	0,039
[Fri92]	Deutschland	Pute -Fleisch-				0,0003	0,022
[Fri92]	Deutschland	Schwein -Fleisch-				0,0020	0,026
[MB80]	USA	Fleisch allg.	0,02		NWG - 0,02		
[Fis87]	New-York	Fleisch allg.		0,002			0,002
[Wat83]	USA	Fleisch allg.		NWG - 0,059			
[Lad73]	Ukraine	Rind -Fleisch-	0,16				
[Lad73]	Ukraine	Schwein -Fleisch-	0,25				
[Lad73]	Ukraine	Schaf -Fleisch-	0,18				
[PF97]	Polen	Rind -Fleisch-	0,10	0,02			
[PF97]	Polen	Schwein -Fleisch-	0,11	0,11			

Tabelle A.16: Zusammenfassung der spezifischen Aktivitäten von Getreidekorn im Vergleich mit der Literatur. Alle Angaben der spezifischen Aktivität in Bq/kg und bezogen auf das Feuchtgewicht. Fettgedruckte Werte lagen oberhalb der Nachweisgrenze.

		²¹⁰ Pb	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th	²³⁵ U	⁴⁰ K
Daten ZSR	N	13	16	13	15	4	17
	arithm. MW in Bq/kg	0,70	0,11	0,17	0,08	0,007	135
	arithm. Stabw. in Bq/kg	0,81	0,06	0,09	0,06	0,008	57
	<i>EW (log) in Bq/kg</i>	0,72	0,11	0,17	0,08	0,007	135
	geo. Stabw.	3,1	1,9	1,7	2,2	2,5	1,5
Ort	Art						
Gestorf	Weizen	1,47 ± 0,13	0,12 ± 0,02	0,18 ± 0,05	0,04 ± 0,01		078 ± 04
Neßmerpolder	Gerste	2,09 ± 0,15	0,21 ± 0,01	0,39 ± 0,04	0,18 ± 0,01		108 ± 06
Neßmerpolder	Hafer	1,07 ± 0,17	0,06 ± 0,02		0,04 ± 0,01		127 ± 07
Neßmerpolder	Hafer	0,47 ± 0,13	0,06 ± 0,03		0,02 ± 0,01		072 ± 04
Neßmerpolder	Raps	0,24 ± 0,11	0,04 ± 0,01		0,03 ± 0,01		256 ± 13
Neßmerpolder	Weizen		0,10 ± 0,03		0,10 ± 0,01	0,014 ± 0,007	115 ± 06
Schessinghausen	Raps	0,66 ± 014	0,07 ± 0,01	0,28 ± 0,07			238 ± 12
Schessinghausen	Roggen		0,18 ± 0,04	0,18 ± 0,04	0,14 ± 0,01		123 ± 06
Schessinghausen	Tritikale		0,10 ± 0,02	0,15 ± 0,05	0,04 ± 0,01		146 ± 08
Schessinghausen	Tritikale	0,30 ± 0,08	0,18 ± 0,01	0,23 ± 0,02	0,18 ± 0,01	0,008 ± 0,004	145 ± 07
Schessinghausen	Weizen	0,07 ± 0,03	0,046 ± 0,004	0,09 ± 0,02	0,053 ± 0,003		069 ± 04
Schessinghausen	Weizen	2,99 ± 0,3	0,10 ± 0,03	0,27 ± 0,11	0,11 ± 0,02	0,034 ± 0,014	138 ± 07
Schlewecke	Gerste	0,72 ± 0,06	0,10 ± 0,01	0,13 ± 0,02	0,06 ± 0,01		108 ± 06
Schlewecke	Gerste	0,71 ± 0,13	0,05 ± 0,01	0,11 ± 0,04		0,013 ± 0,006	082 ± 04
Schlewecke	Raps		0,24 ± 0,03	0,19 ± 0,06	0,17 ± 0,02		239 ± 12
Schlewecke	Weizen	0,27 ± 0,11	0,13 ± 0,01	0,12 ± 0,02	0,06 ± 0,01		124 ± 06
Schlewecke	Weizen	0,30 ± 0,09	0,18 ± 0,02	0,23 ± 0,03	0,11 ± 0,01		131 ± 07

		²¹⁰ Pb	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th	²³⁵ U	⁴⁰ K
Daten ZSR	<i>EW (log) in Bq/kg</i> geo. Stabw.	0,72 3,1	0,11 1,9	0,17 1,7	0,08 2,2	0,007 2,5	135 1,5
Literatur							
[PF95]	Gerste	0,98					
[PF95]	Weizen	0,16	0,52				
[Fri89]	Gerste				0,062 ± 0,004		
[Fri89]	Weizen				0,07 ± 0,005		
[Fri89]	Roggen				0,06 ± 0,03		
[Mor71]	Getreide allg.	0,08	0,08				
[Fis70] ^a	Getreide allg.		0,08				
[Fis87]	Getreide allg.		0,104 ± 0,004			0,0010 ± 0,0003	
[Lad73]	Gerste	0,24 ± 0,09					
[Lad73]	Weizen	0,18 ± 0,03					
[Mau89]	Getreide allg.		0,05 - 3,00		2,00		100
[BfS01]	Getreide allg.	0,04 - 10,2	0,04 - 1,54				87 - 246
[Lal80]	Getreide allg.	0,13					
[PF97]	Gerste	0,11 ± 0,03	0,08 ± 0,01				
	Roggen	0,16 ± 0,04	0,11 ± 0,01				

^a zitiert in [MB80].

Tabelle A.17: Zusammenfassung der spezifischen Aktivitäten für natürliche Radionuklide in Wurzelgemüse im Vergleich mit der Literatur. Alle Angaben der spezifischen Aktivität in Bq/kg und bezogen auf das Feuchtgewicht.

		²¹⁰ Pb	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th	²³⁸ U	⁴⁰ K
Daten ZSR	N	1	7	4	4	1	10
	arithm. MW. in Bq/kg	0,15	0,07	0,07	0,02	0,11	126
	arithm. Stabw.) in Bq/kg		0,06	0,09	0,04		078
	<i>EW (log) in Bq/kg</i>		0,07	0,07	0,02		127
	geo. Stabw.		2,4	3,7	4,1		1,7
Ort	Art						
Gründeich	Kartoffeln		0,04 ± 0,02				168 ± 09
Gründeich	Kohlrabi						097 ± 05
Gründeich	Rote Bete		0,14 ± 0,06	0,29±0,16	0,14 ± 0,04		095 ± 05
Gründeich	Radieschen		0,10 ± 0,02		0,03 ± 0,01		065 ± 03
Jeinsen	Einleggurken	0,15 ± 0,05	0,03 ± 0,01				063 ± 03
Jeinsen	Knollenpetersilie		0,14 ± 0,04				311 ± 16
Jeinsen	Kohlrabi			0,05 ± 0,02			058 ± 03
Jeinsen	Rote Beete			0,16 ± 0,08			186 ± 10
Uetze	Karotten		0,15 ± 0,01	0,11 ± 0,03	0,03 ± 0,01	0,11 ± 0,02	109 ± 06
Gestorf	Kartoffeln		0,03 ± 0,01		0,010 ± 0,005		089 ± 05
Literatur							
[BfS01]	Kartoffeln	0,02 - 0,63	0,02 - 1,30			0,02 - 3,09	122 - 194
[BfS01]	Karotten	0,02 - 4,90	0,06 - 0,49			0,07 - 2,31	072 - 134
[BfS01]	übriges Gemüse	0,01 - 0,34	0,01 - 0,71			0,10 - 1,26	
[Mau89]	Kartoffeln	0,02	0,01 - 0,10				100

	²¹⁰ Pb	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th	²³⁸ U	⁴⁰ K
Daten ZSR EW (log) in Bq/kg geo. Stabw		0,07 2,4	0,07 3,7	0,02 4,1		127 1,7
Fortsetzung Literatur						
[Mau89] Wurzel Gemüse allg	0,01	0,01 - 0,20			0,03	130
[Wic97] Gemüse allgemein	0,06 - 2	EG - 1,74			EG - 0,79	
[Vas87] ^a Karotten	0,26	0,41				
[Vas87] ^a Kartoffel	0,11	0,16				
[PF95] ^b Rote Bete	0,09					
[PF95] ^b Kartoffel	0,09					
[PF95] ^b Karotten	0,16					
[PF95] ^b Radieschen	0,05					
[PF95] ^b MW	0,10					
[Yu99] Gemüse allgemein	0,14	0,02	0,15		0,02	81
[Yu99] Karotten		0,12 - 0,20				074 - 095
[Yu99] Kartoffeln						093 - 128
[Shi97] Kartoffeln						158
[Shi97] Gemüse allgemein					0,003 ± 0,002 0,0020 ± 0,0003	90,1 ± 2,1
[Fri86] Karotten					0,008 ± 0,001	
[Fri86] Kartoffeln					0,008 ± 0,001	
[Fri86] Kohlrabi					0,029 ± 0,002	
[Fri86] MW					0,015 ± 0,001	
[Fri88] Karotten					0,0015 ± 0,0008	

	²¹⁰ Pb	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th	²³⁸ U	⁴⁰ K
Daten ZSR						
<i>EW (log) in Bq/kg</i>						
<i>geo. Stabw</i>						
	0,07	0,07	0,07	0,02		127
	2,4	3,7		4,1		1,7
Fortsetzung Literatur						
[Fri88]					0,0116 ± 0,0006	
[Fri88]					0,0026 ± 0,0002	
[Fri88]					0,0097 ± 0,0003	
[Fri89]				0,0151 ± 0,001		
[Fri89]				0,003 - 0,004		
[Fri89]				0,0020 ± 0,0002		
[Fri89]				0,0069 ± 0,0004		
[Mor71]	0,01	0,05				
[Mor71]	0,06	0,10				
[Fis70]		0,05				
[Fis70]		0,01				
[Fis87]	0,02 ± 0,01				0,008 ± 0,005	
[Fis87]	0,007 ± 0,002				0,0009 ± 0,0001	
[Lad73]	0,23 ± 0,04					
[Lad73]	0,13 ± 0,03					
[Bad03]						076 - 124
[Car01b]	0,15 - 1,80					
[Chi00]						111

	²¹⁰ Pb	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th	²³⁸ U	⁴⁰ K
Daten ZSR EW (log) in Bq/kg geo. Stabw		0,07 2,4	0,07 3,7	0,02 4,1		127 1,7
Fortsetzung Literatur						
[NaI97] Kohlrabi					0,03	
[NaI97] Kartoffeln					0,14	
[PF97] Kartoffeln	0,0320 ± 0,0003	0,0114 ± 0,0001				
[PF97] Rote Bete	0,046 ± 0,002	0,05 ± 0,02				
[PF97] Karotten	0,044 ± 0,002	0,04 ± 0,01				
[Car95] „non-leafy vegetables“	0,23 ± 0,33					
[GN03] ^{c,d} Kartoffeln		0,7 - 0,8				
[GN03] ^{c,d} Karotten		2,5 - 9,0				
[GN03] ^{c,d} Radieschen		1,3 - 1,7				

^a Gebiet erhöhter natürlicher Strahlenexposition in Brasilien.

^b Verhältnis FG/TG aus [MES00f].

^c Gebiet stark erhöhter natürlicher Radioaktivität (Ramsar, Iran).

^d FG nach eigenen Angaben in [GN03] berechnet.

Tabelle A.18: Zusammenfassung der spezifischen Aktivitäten für natürliche Radionuklide in Blattgemüse im Vergleich mit der Literatur. Alle Angaben der spezifischen Aktivität in Bq/kg und bezogen auf das Feuchtgewicht.

		²¹⁰ Pb	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th	²³⁸ U	⁴⁰ K
Daten ZSR	N	12	15	10	11	5	18
	MW (arithm.) in Bq/kg	0,72	0,18	0,17	0,11	0,15	110
	Stabw. (arithm.) in Bq/kg	0,72	0,16	0,15	0,13	0,16	56
	<i>EW (log) in Bq/kg</i>	0,80	0,22	0,20	0,16	0,15	110
	geo. Stabw	3,4	3,3	3,5	5,8	2,6	1,6
Ort	Art						
Gründeich	Blumenkohl	0,69 ± 0,28	0,26 ± 0,08				242 ± 13
Jeinsen	Blumenkohl		0,13 ± 0,02				062 ± 03
Jeinsen	Brokoli					0,21 ± 0,06	062 ± 03
Jeinsen	Grünkohl	1,22 ± 0,11	0,29 ± 0,01	0,23 ± 0,02	0,27 ± 0,02		106 ± 05
Gründeich	Kopfsalat	0,41 ± 0,08	0,15 ± 0,01	0,11 ± 0,04	0,06 ± 0,01		058 ± 03
Jeinsen	Kopfsalat	1,00 ± 0,13	0,46 ± 0,02	0,45 ± 0,04	0,45 ± 0,05	0,46 ± 0,13	096 ± 05
Gründeich	Lauch	0,50 ± 0,12	0,20 ± 0,03	0,32 ± 0,08	0,18 ± 0,02	0,30 ± 0,12	075 ± 04
Jeinsen	Lauch			0,17 ± 0,08			053 ± 03
Gründeich	Mangold	1,91 ± 0,19	0,07 ± 0,02				145 ± 07
Jeinsen	Mangold	0,77 ± 0,14	0,29 ± 0,02	0,24 ± 0,05	0,23 ± 0,02		181 ± 09
Gründeich	Petersilie	1,45 ± 0,17	0,30 ± 0,05	0,30 ± 0,08	0,18 ± 0,03		119 ± 06
Jeinsen	Petersilie	1,74 ± 0,24	0,61 ± 0,07	0,44 ± 0,17	0,29 ± 0,04	0,60 ± 0,26	216 ± 11
Gümmer	Rhabarber	0,09 ± 0,04					053 ± 03
Jeinsen	Rosenkohl	0,10 ± 0,05	0,02 ± 0,01		0,006 ± 0,004		129 ± 07
Gründeich	Weißkohl		0,20 ± 0,05				065 ± 04
Jeinsen	Weißkohl		0,07 ± 0,03	0,14 ± 0,04	0,07 ± 0,01		078 ± 04
Gründeich	Wirsingkohl	2,30 ± 0,17	0,17 ± 0,03	0,38 ± 0,11	0,18 ± 0,02	0,20 ± 0,10	124 ± 06
Jeinsen	Wirsingkohl		0,05 ± 0,01		0,02 ± 0,01		116 ± 06

	²¹⁰ Pb	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th	²³⁸ U	⁴⁰ K
Daten ZSR EW (log) in Bq/kg geo. Stabw	0,80 2,9	0,22 2,6	0,20 1,2	0,16 3,7	0,15 1,6	110 1,6
Fortsetzung Literatur						
[BIS01] Kohl	0,004 - 1,280	0,01 - 0,68			0,02 - 0,75	59 - 196
[BIS01] übriges Gemüse	0,01 - 0,34	0,01 - 0,71			0,10 - 1,26	
[Mau89] „green vegetables“	0,03	0,01 - 0,06				40-240
[Rad96] Blattgemüse allg.	0,09	0,04	0,15			74
[PF95] ^a Spinat	0,56 - 0,65					
[PF95] ^a Salat	0,23					
[Yu99] Gemüse allgemein	0,14	0,02	0,15		0,02	81
[Shi97] Gemüse allgemein					0,0018 ± 0,0003	90 ± 02
[Fri86] Blumenkohl					0,016 ± 0,001	
[Fri86] Grünkohl					0,024 ± 0,001	
[Fri86] Kopfsalat					0,031 ± 0,002	
[Fri86] Lauch					0,0092 ± 0,0008	
[Fri86] MW					0,02	
[Fri88] Blumenkohl					0,0041 ± 0,0002	
[Fri88] Grünkohl					0,031	
[Fri88] Kopfsalat					0,0153 ± 0,0007	
[Fri88] Petersilie					0,138 ± 0,004	

	²¹⁰ Pb	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th	²³⁸ U	⁴⁰ K
Daten ZSR	0,80	0,22	0,20	0,16	0,15	110
EW (log) in Bq/kg geo. Stabw	2,9	2,6	1,2	3,7	1,6	1,6
Fortsetzung Literatur						
[Fri88]					0,0023 ± 0,0001	
[Fri88]					0,0050 ± 0,0003	
[Fri88]					0,033	
[Fri89]				0,003 ± 0,001		
[Fri89]				0,078 ± 0,004		
[Fri89]				0,012 ± 0,001		
[Fri89]				0,023 ± 0,001		
[Fri89]				0,006 - 0,20		
[Fri89]				0,001 - 0,0006		
[Fri89]				0,0041 ± 0,0003		
[Fri89]				0,0361		
[Fis87]		0,055 ± 0,003			0,023 ± 0,008	
[Car01b]	0,15-0,20					
[Nal97] ^b		0,65 - 1,6			0,215 - 0,55	
[Nal97] ^b					0,016 - 0,072	
[BMU94]		0,05 - 1,15			0,05 - 2,15	
[BMU94]		0,01 - 0,80			0,001 - 2	
[PF97]	0,041 ± 0,007	0,04 ± 0,01				
[PF97]	0,04 ± 0,02	0,038 ± 0,003				
[PF97]	0,05 ± 0,01					

		²¹⁰ Pb	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th	²³⁸ U	⁴⁰ K
Daten ZSR	EW (log) in Bq/kg geo. Stabw	0,80 2,9	0,22 2,6	0,20 1,2	0,16 3,7	0,15 1,6	110 1,6
Fortsetzung Literatur							
[PF97]	Blumenkohl	0,04 ± 0,01	0,013 ± 0,006				
[Car95]	„leafy vegetables“	0,33 ± 1,15					
[GN03] ^{c,d}	Mangold		6,5				
[GN03] ^{c,d}	Lauch		2,5 - 5,3				
[GN03] ^{c,d}	Petersilie		13,8 - 15,5				
[GN03] ^{c,d}	Spinat		1,2 - 6,6				
[San02]	Kohl		0,05-0,28	0,13-0,66			
[San02]	Grünkohl		0,001-0,8	0,02-2,37			

^a FG nach Angaben aus dieser Arbeit berechnet.

^b FG nach Angaben aus [Nal97] berechnet.

^c Gebiet stark erhöhter natürlicher Radioaktivität (Ramsar, Iran).

^d FG nach eigenen Angaben in [GN03] berechnet.

Tabelle A.19: Zusammenfassung der Transferfaktoren für Getreidekorn im Vergleich mit der Literatur. Alle Angaben bezogen auf das Feuchtgewicht.

		²¹⁰ Pb	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th	²³⁵ U	⁴⁰ K
Daten ZSR	N	13	16	13	15	4	17
	<i>EW (log) des TF</i>	0,018	0,005	0,010	0,004	0,006	0,382
	geo. Stabw.	2,9	2,1	2,8	2,5	3,4	2,0
Ort	Art						
Gestorf	Weizen	0,005 ± 0,003	0,003 ± 0,0005	0,005 ± 0,001	0,00012 ± 0,00003		0,137 ± 0,009
Neßmerpolder	Weizen	0,002 ± 0,001	0,002 ± 0,0006	0,006 ± 0,001	0,004 ± 0,0005	0,011 ± 0,005	0,240 ± 0,015
Schessinghausen	Weizen	0,08 ± 0,01	0,006 ± 0,0016	0,017 ± 0,007	0,008 ± 0,0014	0,046 ± 0,020	0,197 ± 0,012
Schessinghausen	Weizen	0,004 ± 0,002	0,003 ± 0,0003	0,003 ± 0,0005	0,001 ± 0,0003		0,448 ± 0,028
Schlewecke	Weizen	0,004 ± 0,002	0,005 ± 0,0004	0,005 ± 0,0008	0,003 ± 0,0003		0,160 ± 0,010
Schlewecke	Weizen	0,044 ± 0,005	0,010 ± 0,0007	0,017 ± 0,0018	0,008 ± 0,0007		0,174 ± 0,011
Neßmerpolder	Gerste	0,017 ± 0,002	0,003 ± 0,0003	0,005 ± 0,0009	0,002 ± 0,0002		0,237 ± 0,015
Schlewecke	Gerste	0,011 ± 0,002	0,001 ± 0,0003	0,002 ± 0,0008		0,008 ± 0,004	0,201 ± 0,012
Schlewecke	Gerste	0,056 ± 0,011	0,002 ± 0,0006		0,001 ± 0,0003		0,097 ± 0,006
Neßmerpolder	Hafer	0,026 ± 0,005			0,001 ± 0,0005		0,255 ± 0,016
Neßmerpolder	Hafer	0,013 ± 0,003			0,001 ± 0,0005		0,142 ± 0,009
Schessinghausen	Roggen		0,005 ± 0,0008	0,013 ± 0,003	0,011 ± 0,0012		0,772 ± 0,049
Schessinghausen	Tritikale		0,009 ± 0,0016	0,017 ± 0,0049	0,004 ± 0,0013		0,650 ± 0,040
Schessinghausen	Tritikale	0,008 ± 0,003	0,012 ± 0,0009	0,021 ± 0,0025	0,014 ± 0,009	0,016 ± 0,008	0,962 ± 0,062
Neßmerpolder	Raps	0,011 ± 0,003	0,002 ± 0,0012		0,001 ± 0,0004		0,508 ± 0,032
Schessinghausen	Raps		0,008 ± 0,0021	0,024 ± 0,006			0,838 ± 0,052
Schlewecke	Raps		0,008 ± 0,0009	0,006 ± 0,0019	0,005 ± 0,0007		0,393 ± 0,024
Literatur							
	[TRS94]	0,0004-0,04			0,001	0,001	
	[AVVa]	0,08	0,09	0,09	0,005	0,005	1

		²¹⁰ Pb	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th	²³⁵ U	⁴⁰ K
Daten ZSR	<i>EW (log) des TF</i> geo. Stabw	0,018 2,9	0,005 2,1	0,010 2,8	0,004 2,5	0,006 3,4	0,387 2,0
Fortsetzung Literatur							
[Bro95]	Getreide allg.	0,01	0,001	0,001	0,0005	0,001	
[Sam95] ^a			0,01 - 0,34				
[Sam95] ^b			0,09 - 3,31				
[PF95]	Gerste -Korn-	0,022					
[PF95]	Weizen - Korn-	0,010					
[PF95]	MW	0,016					
[Fri86]	Gerste -Korn-					0,0007 - 0,0014 ^c	
[Fri86]	Roggen -Korn-					0,0005 - 0,0018 ^c	
[Fri86]	Weizen - Korn-					0,0007 - 0,0012 ^c	
[Fri86]	MW					0,0011 ^c	
[Fri88]	Gerste -Korn-					0,0030 ^c	
[Fri88]	Roggen -Korn-					0,0019 - 0,0042 ^c	
[Fri88]	Weizen - Korn-					0,0012 ^c	
[Fri88]	MW					0,0023 ^c	
[Fri89]	Gerste -Korn-				0,00011 - 0,00024		
[Fri89]	Roggen -Korn-				0,00005 - 0,00025		
[Fri89]	Weizen - Korn-				0,00005 - 0,00030		
[Fri89]	MW				0,00014		
[MB80]	Getreide allgemein	0,002-0,009	0,00002-0,6				

		²¹⁰ Pb	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th	²³⁵ U	⁴⁰ K
Daten ZSR	<i>EW (log) des TF</i> geo. Stabw	0,018 2,9	0,005 2,1	0,010 2,8	0,004 2,5	0,006 3,4	0,387 2,0
Fortsetzung Literatur							
[Wat83]	Gerste - Korn-		0,037				
[Wat83]	Weizen - Korn-		1				
[Wat83]	MW		0,5185				

^a TF bezogen auf den austauschbaren Anteil des Radiums und den essbaren Teil der Pflanze.

^b TF bezogen auf den austauschbaren Anteil des Radiums und den vegetativen Teil der Pflanze.

^c Transfer-Angaben beziehen sich auf ²³⁸U, sind allerdings aus Platzgründen bei ²³⁵U angegeben.

Tabelle A.20: Vergleich der Transferfaktoren verschiedener Getreidesorten für den Transfer Boden-Getreidekorn. Berücksichtigt wurden Messwerte oberhalb der Erkennungsgrenze.

	²¹⁰ Pb		²²⁶ Ra		²²⁸ Ra		²²⁸ Th		²³⁵ U		⁴⁰ K	
	TF	Stabw. ^a	TF	Stabw.	TF	Stabw.	TF	Stabw.	TF	Stabw.	TF	Stabw.
Weizen	0,019	0,034	0,004	0,002	0,007	0,007	0,003	0,003	0,028	0,025	0,226	0,114
Gerste	0,024	0,017	0,005	0,005	0,008	0,008	0,005	0,004	0,008	0,004 ^b	0,178	0,073
Hafer	0,041	0,021	0,002	0,001 ^b	^c		0,001	0,0002	^c		0,199	0,080
Roggen	0,013	0,003 ^b	0,005	0,001 ^b	0,013	0,003 ^b	0,011	0,001 ^b	^c		0,772	0,049 ^b
Triticale	0,008	0,003 ^b	0,011	0,002	0,019	0,003	0,009	0,007	0,016	0,008 ^b	0,806	0,221
Raps	0,011	0,003 ^b	0,006	0,003	0,015	0,013	0,003	0,003	^c		0,580	0,231

^a Bei mehreren Messwerten ist die Standardabweichung, bei einem vorliegenden Messwert die Standardunsicherheit der Messung angegeben.

^b Da die Transferfaktoren auf lediglich einem Messwert basieren, ist hier die Standardunsicherheit des Transferfaktors und nicht die Standardabweichung angegeben.

^c Kein Messwert oberhalb der Erkennungsgrenze.

Tabelle A.21: Zusammenfassung der Transferfaktoren für Wurzelgemüse im Vergleich mit der Literatur. Alle Angaben bezogen auf das Feuchtgewicht.

	^{210}Pb	^{226}Ra	^{228}Ra	^{228}Th	^{235}U	^{40}K
Daten ZSR	N	5	3	3	2	8
	<i>EW (log) des TF</i>	0,003	0,003	0,001	0,006	0,389
	geo. Stabw.	3,2	6,5	7,6	1,8	2,2
Ort	Art					
Gestorf	Kartoffeln	0,0010 ± 0,0002		0,0003 ± 0,0001		0,230 ± 0,014
Gründeich	Kohlrabi				0,014 ± 0,007	0,193 ± 0,012
Gründeich	Rote Bete	0,009 ± 0,003	0,018 ± 0,010	0,008 ± 0,002		0,573 ± 0,042
Gründeich	Radieschen	0,006 ± 0,001		0,0013 ± 0,0007		0,224 ± 0,014
Jeinsen	Einlegegurken	0,0011 ± 0,0003			0,007 ± 0,003	0,118 ± 0,007
Jeinsen	Knollenpetersilie	0,004 ± 0,001				0,559 ± 0,034
Jeinsen	Kohlrabi		0,002 ± 0,001			0,116 ± 0,007
Jeinsen	Rote Bete		0,005 ± 0,002			1,001 ± 0,064
Literatur						
[TRS94]	Kartoffel	0,00003 - 0,003	0,00004 - 0,001	0,000001 - 0,0001		
[TRS94]	Karotten		0,0002 - 0,005	0,0000002 - 0,0007		
[TRS94]	Wurzelgemüse allg.	0,002			0,0002 - 0,02 ^a	
[AVVa]		0,080	0,090	0,005	0,005 ^a	1,000
[BGB99]		0,007	0,005	0,001	0,003 ^a	
[SRS01]	„crops“	0,020	0,040	0,001	0,010 ^a	
[Bro95]	root vegetables	0,010	0,001	0,001		
[NCR99]		0,004	0,040	0,001		0,300

		²¹⁰ Pb	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th	²³⁵ U	⁴⁰ K
Daten ZSR	<i>EW (log) des TF</i> geo. Stabw						
		0,003	0,003 3,2	0,003 6,5	0,001 7,6	0,006 1,8	0,389 2,2
Fortsetzung Literatur							
[MB80]	Gemüse allg.	0,0001 - 0,02	0,0001 - 0,0400				
[Tra83]	Gemüse allg.	0,0003 - 0,0005	0,0009 - 0,0013			0,001 ^a	
[Bun99]	Kohlrabi		0,002				
[Bun99]	Radieschen		0,006			0,010 ^a	
[Sam95] ^b			0,01 - 0,34				
[Sam95] ^c			0,09 - 3,31				
[Vas87]	Karotten	0,003	0,004				
[Vas87]	Kartoffel	0,001	0,001				
[PF95]	Rote Bete - Knolle-	0,005					
[PF95]	Radieschen	0,003					
[PF95]	Kartoffeln	0,002 - 0,009					
[PF95]	Kohl	0,005					
[PF95]	Karotten	0,010					
[Fri86]	Karotten					0,0004 ^a	
[Fri86]	Kartoffeln					0,0008 ^a	
[Fri86]	Kohlrabi					0,0015 ^a	
[Fri88]	Karotten					0,0005 ^a	
[Fri88]	Kartoffeln					0,0005 ^a	
[Fri88]	Kohlrabi					0,0001 ^a	

	²¹⁰ Pb	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th	²³⁵ U	⁴⁰ K
Daten ZSR EW (log) des TF geo. Stabw	0,003	0,003 3,2	0,003 6,5	0,001 7,6	0,006 1,8	0,389 2,2
Fortsetzung Literatur						
[Fri89]				0,00005		
[Fri89]				0,00004		
[Fri89]				0,00003		
[Ham01] ^d					0,0003 ^a 0,0003 ^a	
[Lin89]	0,0002	0,001				
[Lin89]	0,0001	0,002				
[Lin89]		0,016 - 0,032	0,032 - 0,062			
[Lin89]		0,0006 - 0,0011				
[Wat83]		0,006 - 0,03				
[Wat83]		0,01 - 0,03				
[Wat83]		0,001 - 0,006				
[Dji02]						0,054
[Chi00]						0,165
[GN03]		0,0013				
[GN03]		0,0002				
[GN03]		0,0001				

	²¹⁰ Pb	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th	²³⁵ U	⁴⁰ K
Daten ZSR EW (log) des TF geo. Stabw	0,003	0,003 3,2	0,003 6,5	0,001 7,6	0,006 1,8	0,389 2,2
Fortsetzung Literatur						
[Nal97] Kohlrabi					0,0001 ^a	
[Nal97] Kartoffeln					0,0005 ^a	

^a Transfer-Angaben aus der Literatur beziehen sich in der Regel auf ²³⁸U, sind allerdings aus Platzgründen bei ²³⁵U angegeben.

^b TF bezogen auf den austauschbaren Anteil des Radiums und den essbaren Teil der Pflanze.

^c TF bezogen auf den austauschbaren Anteil des Radiums und den vegetativen Teil der Pflanze.

^d TF stammen von so genannter „control-site“ mit nicht erhöhter natürlicher Radioaktivität.

^e TF beziehen sich auf das TG.

Tabelle A.22: Zusammenfassung der Transferfaktoren für Blattgemüse im Vergleich mit der Literatur. Alle Angaben bezogen auf das Feuchtgewicht.

		^{210}Pb	^{226}Ra	^{228}Ra	^{228}Th	^{238}U	^{40}K
Daten ZSR	N	12	15	10	11	5	18
	<i>EW (log) des TF</i>	0,024	0,009	0,008	0,006	0,004	0,244
	geo. Stabw.	3,9	3,4	2,1	5,3	2,9	1,8
Ort	Art						
Gründeich	Blumenkohl	0,02 ± 0,008	0,016 ± 0,005				0,779 ± 0,048
Gründeich	Kopfsalat	0,014 ± 0,003	0,010 ± 0,001	0,007 ± 0,002	0,004 ± 0,001		0,201 ± 0,012
Gründeich	Lauch	0,014 ± 0,004	0,008 ± 0,001	0,013 ± 0,003	0,008 ± 0,001	0,010 ± 0,004	0,183 ± 0,011
Gründeich	Mangold	0,057 ± 0,008	0,002 ± 0,001				0,161 ± 0,010
Gründeich	Petersilie	0,043 ± 0,008	0,018 ± 0,003	0,018 ± 0,005	0,011 ± 0,002		0,404 ± 0,025
Gründeich	Weißkohl		0,007 ± 0,002				0,127 ± 0,008
Gründeich	Wirsingkohl	0,064 ± 0,008	0,007 ± 0,001	0,016 ± 0,005	0,008 ± 0,001	0,007 ± 0,004	0,286 ± 0,018
Gümmel	Rhabarber	0,002 ± 0,001					0,116 ± 0,007
Jeinsen	Blumenkohl		0,005 ± 0,001				0,129 ± 0,008
Jeinsen	Brokoli						0,112 ± 0,007
Jeinsen	Grünkohl	0,028 ± 0,003	0,009 ± 0,001	0,008 ± 0,001	0,009 ± 0,001	0,004 ± 0,001	0,183 ± 0,011
Jeinsen	Kopfsalat	0,014 ± 0,002	0,014 ± 0,001	0,015 ± 0,002	0,016 ± 0,002	0,025 ± 0,008	0,161 ± 0,010
Jeinsen	Lauch			0,006 ± 0,003			0,095 ± 0,006
Jeinsen	Mangold	0,068 ± 0,013	0,008 ± 0,001	0,008 ± 0,002	0,007 ± 0,001		0,504 ± 0,032
Jeinsen	Petersilie	0,038 ± 0,006	0,020 ± 0,003	0,017 ± 0,006	0,011 ± 0,002	0,012 ± 0,005	0,424 ± 0,026
Jeinsen	Rosenkohl	0,002 ± 0,001	0,0005 ± 0,0003		0,0002 ± 0,0001		0,235 ± 0,015
Jeinsen	Weißkohl		0,002 ± 0,001	0,005 ± 0,001	0,0020 ± 0,0004		0,144 ± 0,009
Jeinsen	Wirsingkohl		0,0015 ± 0,0004		0,0007 ± 0,0003		0,200 ± 0,012
Literatur							
[TRS94]	Mixed green vegetables	0,0004 - 0,1692	0,0002 - 0,0829	0,0002 - 0,0829	0,000004 - 0,006	0,00007 - 0,007	

		²¹⁰ Pb	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th	²³⁸ U	⁴⁰ K
Daten ZSR	<i>EW (log) des TF</i> geo. Stabw	0,024 3,9	0,009 3,4	0,008 2,1	0,006 5,3	0,004 2,9	0,244 1,8
Fortsetzung Literatur							
[AVVa]		0,0800	0,0900	0,0900	0,0050		1,0000
[BGB99]		0,0070	0,0050	0,0050	0,0005		
[SRS01]		0,0200	0,0400	0,0400	0,0010		
[Bro95]	green vegetables	0,0100	0,0100	0,0100	0,0005		
[NCR99]		0,0040	0,0400	0,0400	0,0010		0,3000
[Bun99]	Mangold		0,0200				
[Bun99]	Salat		0,0140			0,0050	
[Bun99] ^a	fractional CR gemittelt	0,0070	0,0090			0,0080	
[Bun99]	Salat	0,05					
[Sam95] ^b			0,01-0,34				
[Sam95] ^c			0,09-3,31				
[Bae96]	Cistrose		0,5-2	0,2-0,7			
[Rad96]		0,0070	0,0040	0,0170			
[PF95] ^{d, f}	Spinat	0,0043-0,0095					
[PF95] ^{d, f}	Salat	0,0049					
[PF95] ^{d, f}	Grünkohl	0,0067					
[PF95] ^{d, f}	MW	0,0064					
[PF95] ^{e, f}	Spinat	0,032-0,041					
[PF95] ^{e, f}	Salat	0,015					

	²¹⁰ Pb	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th	²³⁸ U	⁴⁰ K
Daten ZSR	<i>EW (log) des TF</i> geo. Stabw					
	0,024 3,9	0,009 3,4	0,008 2,1	0,006 5,3	0,004 2,9	0,244 1,8
Fortsetzung Literatur						
[PF95] <i>e, f</i>	0,037					
[PF95] <i>e, f</i>	0,031					
[Fri86]					0,0008	
[Fri86]					0,0025	
[Fri86]					0,0021	
[Fri86]					0,0008	
[Fri86]					0,0014	
[Fri88]					0,0002	
[Fri88]					0,0017	
[Fri88]					0,0008	
[Fri88]					0,0064	
[Fri88]					0,0001	
[Fri88]					0,0002	
[Fri88]					0,0001	
[Fri88]					0,0015	
[Fri89]				0,0000		
[Fri89]				0,0007		
[Fri89]				0,0004		
[Fri89]				0,0032		
[Fri89]				0,0004		
[Fri89]				0,0000		

		²¹⁰ Pb	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th	²³⁸ U	⁴⁰ K
Daten ZSR	<i>EW (log) des TF</i> geo. Stabw	0,024 3,9	0,009 3,4	0,008 2,1	0,006 5,3	0,004 2,9	0,244 1,8
Fortsetzung Literatur							
[Fri89]	Wirsingkohl				0,0000		
[Fri89]	Rhabarber				0,0000		
[Fri89]	MW				0,0007		
[Ham01] ^g	Lauch	0,0006	0,0005			0,0001	
[Ham01] ^g	Rosenkohl	0,0007	0,0008			0,0002	
[Ham01] ^g	Rosenkohl -Blätter-	0,0025	0,0010			0,0002	
[Ham01] ^g	Kohl, essbar	0,0075	0,0021			0,0002	
[Ham01] ^g	Kohl, äußere Blätter	0,0350	0,0060			0,0017	
[Ham01] ^g	MW essbar	0,0029	0,0011			0,0002	
[MB80]	Gemüse allgemein	0,0001 - 0,02	0,0001-0,04				
[Wat83]	Kohl		0,0001-0,04				
[Bet88]	Kohl		0,01-0,07				
[GN03]	Mangold		0,0016				
[GN03]	Spinat		0,0009				
[GN03]	Petersilie		0,0037				
[GN03]	Lauch		0,0012				

	²¹⁰ Pb	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th	²³⁸ U	⁴⁰ K
Daten ZSR <i>EW (log) des TF</i> geo. Stabw	0,024 3,9	0,009 3,4	0,008 2,1	0,006 5,3	0,004 2,9	0,244 1,8
Fortsetzung Literatur						
[Na197] Kopfsalat	0,003 - 0,013		0,0009 - 0,0027		0,35 - 0,46	

^a Das „fractional concentration-ratio“ quantifiziert die Aufnahme über den Wurzelpfad ohne Resuspension oder Deposition aus der Luft.

^b *TF* bezogen auf den austauschbaren Anteil des Radiums und den essbaren Teil der Pflanze.

^c *TF* bezogen auf den austauschbaren Anteil des Radiums und den vegetativen Teil der Pflanze.

^d unter „Zeltbedingungen“ ermittelt und damit ohne Resuspension und nasse Deposition.

^e unter „Freilandbedingungen“ ermittelt und damit inklusive Resuspension und nasser Deposition.

^f Da die Angaben in der Literatur pro Trockengewicht der Pflanze sind, wurde mit [MES00f] entnommenen Faktoren der Transferfaktor zur Vergleichbarkeit umgerechnet.

^g *TF* stammen von so genannter „control-site“ mit nicht erhöhter natürlicher Radioaktivität.

B Abkürzungen

A-Volumen	aktives Volumen eines Halbleiterkristalls
Abb.	Abbildung
ADC	Analog-Digital-Wandler (analog-digital converter)
AG	Aschgewicht
AVV	Allgemeine Verwaltungsvorschrift
BfS	Bundesamt für Strahlenschutz
BMU	Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit
EG	Erkennungsgrenze
FG	Feuchtgewicht (Frischgewicht)
FWHM	Halbwertsbreite (Full-width-half-maximum)
Gl.	Gleichung
HLW	Hermannsdorfer Landwerkstätten
HPGe	Reinstgermanium (High-Purity Germanium)
IAEA	Internationale Atomenergie Behörde (International Atomic Energy Agency)
ICRP	International Commission on Radiological Protection
IMIS	Integriertes Mess- und Informationssystem
IUR	International Union of Radioecologists
k.A.	keine Angaben
MCA	Vielkanalanalysator (multi channel analyzer)
MW	Mittelwert
NCRP	National Council on Radiation Protection and Measurements
NLÖ	Niedersächsisches Landesamt für Ökologie
NORM	Naturally Occurring Radioactive Material
NRPB	National Radioecological Protection Board
NWG	Nachweisgrenze

B Abkürzungen

P/C-Ratio	Peak-zu-Compton Verhältnis (peak-to-compton-ration)
PTB	Physikalisch Technische Bundesanstalt
QQ-Plot	Quantil-Quantil-Plot
SK	Summationskorrektur
SSK	Strahlenschutzkommission
StrlSchV	Strahlenschutzverordnung
TENORM	Technologically-Enhanced Naturally Occurring Radioactive Material
TG	Trockengewicht
UNSCEAR	United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation
ZSR	Zentrum für Strahlenschutz und Radioökologie

C Formelzeichen

In dieser Arbeit wurde versucht, Formelzeichen einheitlich und gemäß den internationalen Richtlinien zu verwenden. Dort wo dies nicht umgesetzt werden konnte, kann die entsprechende Bedeutung dem Kontext entnommen werden. Dies gilt auch für den Fall, dass Formelzeichen mehrfach mit unterschiedlicher Bedeutung verwendet werden mussten.

$1 - \gamma$	Wahrscheinlichkeit zum Vertrauensbereich
a, b, c	zu fittende Parameter in der Efficiency-Kalibrierfunktion
$a_{Luft,in}$	Faktor zur Bestimmung der Staubkonzentration am Expositions-ort aus der Staubkonzentration im Freien
A	Aktivität
A, B	zufällige Ereignisse
A_j, B_j, C_j	numerische Größen im HELSEL-COHN-Algorithmus zur j -ten charakteristischen Grenze X_j
α	Wahrscheinlichkeit für den Fehler 1. Art
α	Parameter zur Bestimmung des Zeitpunktes der maximalen spezifischen Aktivität A_{spez} in einer Pflanze
$A_{Boden,i}$	spezifische Aktivität des Nuklids i im Boden
$A_{Ges,i}$	spezifische Aktivität des Nuklids i in der Gesamtnahrung
A_{spez}	spezifische Aktivität
$A_{spez,Fu}$	spezifische Aktivität im Futter
A_{Rn222}	Aktivitätskonzentration von Radon in der Atemluft
$AF_{0,02}$	Aufkonzentrierungsfaktor
AR	Atemrate
β	Wahrscheinlichkeit für den Fehler 2. Art

c_i	Sensitivitätskoeffizienten
C_i^P	Konzentration des Radionuklides i in einer Pflanze
C_i^S	Konzentration des Radionuklides i im Boden
$const$	Konstante Größe
d	Materialdicke
$d_{i,g}$	Dosisfaktor für Ingestion für das Nuklid i
$d_{i,h}$	Dosisfaktor für Inhalation für das Nuklid i
d_{Rn222}	Dosisfaktor für die Inhalation von ^{222}Rn
$D_{T,R}$	die in einem Gewebe, Organ oder Körperteil T über dessen Masse gemittelte durch Exposition mit der Strahlungsqualität R erzeugte Energiedosis
ε	Efficiency, Entkommwahrscheinlichkeit
ε_{oben}	durch Messung mit einem Flächenstandardpräparat ermittelte Efficiency, wobei die Folie oberhalb der Probe platziert wurde
ε_{unten}	durch Messung mit einem Flächenstandardpräparat ermittelte Efficiency, wobei die Folie unterhalb der Probe platziert wurde
E	Energie
E_B	Bindungsenergie
E_e	Energie eines Photoelektrons
E_γ	Energie eines γ -Quantes
E'	Energie eines Comptonphotons
η	wahrer Wert der Messgröße X
η^*	Nachweisgrenze
η_l	untere Vertrauensgrenze
η_u	obere Vertrauensgrenze
EW	Erwartungswert
$EW_n^{(ML)}$	Maximum-Likelihood-Schätzer des Erwartungswertes EW
f	Faktor aus [Str01], der das 95 %-Perzentil in Verzehrsgewohnheiten beschreibt
f_1, f_2, f_3	anzupassende Modellparameter von Transferfunktionen
f_{kon}	Umrechnungsfaktor von Photonen-Äquivalentdosis in effektive Dosis

$f_r^{MM,g}$	transferierter Bruchteil in Muttermilch des Nuklids r über den Ingestionspfad
$f_r^{MM,h}$	transferierter Bruchteil in Muttermilch des Nuklids r über den Inhalationspfad
$f(\eta x;y)$	Wahrscheinlichkeitsdichtefunktion für den wahren Wert η gegeben Messwerte x der Messgröße X unter der Randbedingung y
$f_0(\eta x;y)$	Modellprior
$f(x \eta;y)$	Wahrscheinlichkeitsdichtefunktion für Messwerte x der Messgröße X gegeben den wahren Wert η unter der Randbedingung y
$f_{\Lambda}(\mu,\sigma)(t)$	Wahrscheinlichkeitsdichtefunktion einer logarithmischer Normalverteilung Λ
F	Gleichgewichtsfaktor
G	charakteristische Grenze
GM	geometrischer Mittelwert
GS	geometrische Standardabweichung
H	effektive Dosis
H_{ing}	effektive Jahresdosis durch Ingestion
$H_{ing,Boden}$	effektive Jahresdosis durch Direktingestion von Boden
H_{ext}	effektive Jahresdosis durch externe Bestrahlung
H_{Rn222}	effektive Jahresdosis durch Inhalation von Radon und Radonfolgeprodukten
H_{Staub}	effektive Jahresdosis durch Inhalation von Staub
H_{total}	Gesamte effektive Jahresdosis unter Berücksichtigung aller relevanten Pfade
$H_{total,m}$	Altersabhängig gewichtete gesamte effektive Jahresdosis unter Berücksichtigung aller relevanten Pfade
$H_{total,1<a<2}$	Gesamte effektive Jahresdosis für einen Ein- bis Zweijährigen
$H_{total,7<a<12}$	Gesamte effektive Jahresdosis für einen Sieben- bis Zwölfjährigen
$H_{total,a>17}$	Gesamte effektive Jahresdosis für einen über Siebzehnjährigen
i, k, n	ganze natürlichen Zahlen
I	Intensität, Entkommwahrscheinlichkeit

κ	Wechselwirkungsquerschnitt für die Paarbildung
k	Kanalnummer des MCA
k_p	Quantil der standardisierten Normalverteilung zur Wahrscheinlichkeit p
$k_{C,M}$	Summationskorrektionsfaktor für ^{60}Co in einer realen Messung
$k_{C,T}$	Summationskorrektionsfaktor für ^{60}Co aus [Deb90]
$k_{X,M}$	Summationskorrektionsfaktor für ein Nuklid X in der realen Messung
$k_{X,T}$	Summationskorrektionsfaktor für ein Nuklid X aus [Deb90]
k_s	Summationskorrektionsfaktor
λ	Zerfallskonstante
$\Lambda(x, u(x))$	Logarithmischen Normalverteilung mit dem Mittelwert x und der Standardabweichung $u(x)$
m	Masse
m_0	Ruhemasse
\dot{m}	Verzehrmenge
\dot{m}	Jahresverzehrmenge
\dot{m}_{Fu}	Verzehrmenge Futtermittel
\dot{m}_{soil}	Bodenaufnahmerate
μ	linearer Photonen-Schwächungskoeffizient
μ_τ	linearer Photonen-Schwächungskoeffizient für den Photoeffekt
μ_σ	linearer Photonen-Schwächungskoeffizient für den Comptoneffekt
μ_κ	linearer Photonen-Schwächungskoeffizient für die Paarbildung
μ_n	empirischer Mittelwert
$\mathcal{N}(x, u(x))$	Normalverteilung mit dem Mittelwert x und der Standardabweichung $u(x)$
N_{em}	Anzahl der von der Probe emittierten Photonen
N_{reg}	Anzahl der vom Detektor registrierten Photonen
$N_{P,b}$	Bruttopeakfläche im Probenspektrum
$N_{P,Cu}$	Peakfläche des Compton-Untergrunds im Probenspektrum
$N_{P,n}$	Nettopeakfläche im Probenspektrum

$N_{0,b}$	Bruttopeakfläche im Nulleffektspektrum
$N_{0,Cu}$	Peakfläche des Compton-Untergrunds im Nulleffektspektrum
$N_{0,n}$	Nettopeakfläche im Nulleffektspektrum
$N(t)$	Anzahl der Kerne oder Zerfälle zum Zeitpunkt t
ODL	Ortsdosisleistung
p_i	empirische Plot-Wahrscheinlichkeit für die A_j signifikanten Werte zwischen der j -ten und $(j + 1)$ -ten charakteristische Grenze im HELSEL-COHN-Algorithmus
pc_i	empirische Plotwahrscheinlichkeit für die j -te charakteristische Grenze im HELSEL-COHN-Algorithmus
pe_j	empirische Wahrscheinlichkeit für das Überschreiten der charakteristische Grenze X_j im HELSEL-COHN-Algorithmus
P_1, \dots, P_6	zu fittende Konstanten der Ausgleichsfunktion der Efficiency
$P(A)$	Wahrscheinlichkeit für das Eintreten des zufälligen Ereignisses A
$P(A B)$	Wahrscheinlichkeit für das Eintreten des zufälligen Ereignisses A gegeben das Ereignis B
P_{95}	95 %-Perzentil
q_i	durch den HELSEL-COHN-Algorithmus bestimmte Ersatzwerte für Messwerte y_i unterhalb der charakteristischen Grenze G
r	Rang der i -ten charakteristischen Grenze im HELSEL-COHN-Algorithmus
R_i	Anzahl der Zerfälle pro Zeit (Zerfallsrate) des Nuklids i
R_{em}	Anzahl der pro Zeit emittierten Photonen
R_{reg}	Anzahl der pro Zeit registrierten Photonen
R_Z	Zerfälle pro Zeit in der zur Efficiency-Bestimmung benutzen Standardlösung nach Zertifikat des Herstellers des Multielementstandards
RGR	Relative Growth Rate
S_{Staub}	Referenzwert der Schwebstaubkonzentration
σ	Wechselwirkungsquerschnitt für den Comptoneffekt
σ_n^2	empirische Varianz
t	Zeit
τ	Wechselwirkungsquerschnitt für den Photoeffekt

τ	Kalibrierfaktor
Θ	Streuwinkel des Comptonphotons
$t_{1/2}$	Halbwertszeit
t_{exp}	Expositionszeit
t_{in}	Aufenthaltsdauer der Referenzperson in Gebäuden
t_{out}	Aufenthaltsdauer der Referenzperson im Freien
t_P	Messzeit der Probe
t_0	Messzeit des Nulleffekts
$\tilde{u}(\eta)$	Unsicherheit als Funktion des wahren Wertes
TLF	Translokationskoeffizient
TF	Transferfaktor
$TF_{F,i}$	Transferfaktor des Radionuklides i in Fleisch
$u(x)$	Standardmessunsicherheit der Messgröße X zum primären Messergebnis x
$u_{rel}(x)$	relative Standardunsicherheit der Messgröße X zum primären Messergebnis x
w_R	Strahlungswichtungsfaktor
w_T	Gewebewichtungsfaktor
x	primäres Ergebnis der Messgröße X
x^*	Erkennungsgrenze der Messgröße X
X, Y	Messgrößen
X	Bezeichnung oder Name eines Radionuklides
X_j	charakteristische Grenzen zu Messwerten y_j die unterhalb derselben liegen
y	primäres Ergebnis der Messgröße Y
Y	Veränderliche
z	bester Schätzer der Messgröße
z_i	i -tes Quantile der Normalverteilung $\mathcal{N}(x, u(x))$
Z	Ordnungszahl, Kernladungszahl

Lebenslauf

Name: Jan-Willem Vahlbruch
Geboren: 03. Mai 1974 in Frankfurt am Main
Familienstand: verheiratet, zwei Kinder

Werdegang:

1980 - 1993 Schulausbildung
Erlangung der Hochschulreife am Otto-Hahn-Gymnasium in Springe

1993 - 1994 Zivildienst beim Deutschen Roten Kreuz in Springe

1994 - 2000 Studium des Lehramtes für Mathematik und Physik an Gymnasien, Universität Hannover
Erste Staatsexamensarbeit bei Dr. Norbert Hermann
Thema: Über den Ausgleich mit Spline-Funktionen

2000 - 2004 Promotion bei Prof. Dr. R. Michel am Zentrum für Strahlenschutz und Radioökologie, Universität Hannover
Thema: Über den Transfer von natürlichen Radionukliden in terrestrischen Ökosystemen und die realistische Modellierung der natürlichen Strahlenexposition in Norddeutschland

Abschlüsse:

Mai 1993 Abitur (Note 2,0)
Juni 2000 Erstes Staatsexamen für das Lehramt an Gymnasien (Note 1,4)

Literaturverzeichnis

- [Abb02] K. ABBAS, F. SIMONELLI, F. ALBERTI, M. FORTE und M. STROOSNIJDER: Reliability of two calculation codes for efficiency calibrations of HPGe detectors. In: *Applied Radiation and Isotopes*, Bd. 56(5): S. 703–709 (2002).
- [Abr02] P. ABRAHAMS: Soils: their implications to human health. In: *The Science of the Total Environment*, Bd. 291: S. 1–32 (2002).
- [Arn01] D. ARNOLD und O. SIMA: Total versus effective total efficiency in the computation of coincidence summing corrections in gamma-ray spectrometry of volume sources. In: *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, Bd. 248(2): S. 365–370 (2001).
- [Atk01] C. ATKINSON und A. WEBSTER: The influence of the development of temperate fruit tree species on the potential for their uptake of radionuclides. In: *Journal of Environmental Radioactivity*, Bd. 52(2-3): S. 131–146 (2001).
- [AVVa] Allgemeine Verwaltungsvorschrift zu § 45 Strahlenschutzverordnung: Ermittlung der Strahlenexposition durch die Ableitung radioaktiver Stoffe aus kerntechnischen Anlagen oder Einrichtungen. Stand: 21. Februar 1990.
- [AVVb] Allgemeine Verwaltungsvorschrift zu § 45 Strahlenschutzverordnung: Ermittlung der Strahlenexposition durch die Ableitung radioaktiver Stoffe aus kerntechnischen Anlagen oder Einrichtungen. Stand: 01. Juli 2003.
- [Bad03] H. M. BADRAN, T. SHARSHAR und T. ELNIMER: Levels of Cs-137 and K-40 in edible parts of some vegetables consumed in Egypt. In: *Journal of Environmental Radioactivity*, Bd. 67(3): S. 181–190 (2003).
- [Bae96] A. BAEZA, J. PANIAGUA, M. RUFO und J. BARADICA: Bio-availability and transfer of natural radionuclides in a Mediterranean ecosystem. In: *Applied Radiation and Isotopes*, Bd. 47(9/10): S. 939–945 (1996).
- [Bae01] A. BAEZA, J. PANIAGUA, M. RUFO, J. GUILLEN und A. STERLING: Seasonal variations in radionuclide transfer in a Mediterranean grazing-land ecosystems. In: *Journal of Environmental Radioactivity*, Bd. 55: S. 283–302 (2001).

- [Ben97] J.-H. BENZLER, J. BOESS und A. CAPELLE: *Böden in Niedersachsen* (Niedersächsisches Landesamt für Bodenforschung, Hannover, 1997).
- [Bet88] A. BETTENCOURT, M. TEIXEIRA, M. ELIAS und M. FAISCA: Soil to plant transfer of Radium-226. In: *Journal of Environmental Radioactivity*, Bd. 6: S. 49–60 (1988).
- [BfS95] Umweltradioaktivität in der Bundesrepublik Deutschland 1992 und 1993 - Daten und Bewertung -. BfS-Schriften: BfS-SCHR-14 (1995).
- [BfS97] Ortsdosisleistung der terrestrischen Gammastrahlung in Deutschland und Radonkonzentration in Wohngebäuden der Bundesrepublik Deutschland. BfS-Schriften: BfS-ST-14 (1997).
- [BfS98] Umweltradioaktivität in der Bundesrepublik Deutschland 1992 und 1993 - Daten und Bewertung -. BfS-Schriften: BfS-SCHR-16 (1998).
- [BfS01] *BfS Jahresbericht* (Bundesamt für Strahlenschutz, Salzgitter, 2001). Download: <http://www.bfs.de/bfs/druck/jahresberichte/jb2001.html>.
- [BfS03a] *Natürliche Radionuklide in Nahrungsmittel* (Bundesamt für Strahlenschutz, Salzgitter, 2003). Download: <http://www.bfs.de/ion/nahrungsmittel/nahrung.html>.
- [BfS03b] *Natürliche Radionuklide in Trinkwasser* (Bundesamt für Strahlenschutz, Salzgitter, 2003). Download: <http://www.bfs.de/ion/nahrungsmittel/trinkwasser.html>.
- [BfS03c] *Strahlenexposition durch natürliche Radionuklide in Baumaterialien* (Bundesamt für Strahlenschutz, Salzgitter, 2003). Download: http://www.bfs.de/bfs/druck/infoblatt/nat_strl_baumaterialien.html.
- [BGB99] Berechnungsgrundlagen zur Ermittlung der Strahlenexposition infolge bergbaubedingter Umweltradioaktivität. In: *SSK-Empfehlung vom 02/03.07.1998, überarbeitete Fassung des BMU/BfS, Stand 30.07.1999, Bonn* (1999).
- [Blo03] G. BLOCK: Private Mitteilung (2003).
- [BMU94] Umweltpolitik, Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung. Jahresbericht, Bundesministeriums für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit, Berlin (1994).
- [Bre94] R. BREDER: Boden. In: M. STOEPLER, (Hg.) *Probennahme und Aufschluß - Basis der Spurenanalytik*, S. 31–40 (Springer-Verlag, Berlin, 1994).

- [Bro95] J. BROWN und J. SIMMONDS: FARMLAND - A Dynamic Model for the Transfer of Radionuclides through Terrestrial Foodchain. NRPB-R273, National Radioecological Protection Board (1995).
- [Bun97] K. BUNZL: Anthropogene Bodenveränderungen/-belastungen. In: H.-P. BLUME, P. FELIX-HENNONGSEN, W. FISCHER, H.-G. FREDE, R. HORN und K. STAHR, (Hg.) *Handbuch der Bodenkunde*, Kap. Radionuklide (1997).
- [Bun99] K. BUNZL und M. TRAUTMANNSSHEIMER: Transfer of U-238, Ra-226 and Pb-210 from slag-contaminated soil to vegetables under field conditions. In: *The Science of the Total Environment*, Bd. 231: S. 91–99 (1999).
- [Byr95] J. BYROM, C. ROBINSON, J. SIMMOND, B. WALTERS und R. TYLOR: Food consumption rates for use in generalised radiological dose assessments. In: *Journal of Radiological Protection*, Bd. 15(4): S. 335–341 (1995).
- [Car95] F. CARVALHO: Po-210 and Pb-210 intake by the Portuguese population: The contribution of seafood in the dietary intake of Po-210 and Pb-210. In: *Health Physics*, Bd. 69(4): S. 469–480 (1995).
- [Car01a] F. CARINI: Radionuclide transfer from soil to fruit. In: *Journal of Environmental Radioactivity*, Bd. 52(2-3): S. 237–279 (2001).
- [Car01b] F. CARINI und G. BENGTSSON: Post-deposition transport of radionuclides in fruit. In: *Journal of Environmental Radioactivity*, Bd. 52(2-3): S. 215–236 (2001).
- [Car01c] F. CARINI, P. COUGHTREY und R. KINNERSLEY: Introduction. In: *Journal of Environmental Radioactivity*, Bd. 52(2-3): S. 123–129 (2001).
- [Chi00] S. CHIBOWSKI: Studies of radioactive contaminations and heavy metal contents in vegetables and fruit from Lublin, Poland. In: *Polish Journal of Environmental Studies*, Bd. 9(4): S. 249–253 (2000).
- [Cho01] G. CHOPPIN, J.-O. LILJENZIN und J. RYDBERG: *Radiochemistry and Nuclear Chemistry* (Butterworth-Heinemann, 2001), 3. Aufl.
- [CMA99] Essen und Trinken in Deutschland. Verbraucherstudie im Auftrag von CMA: Centrale Marketing-Gesellschaft der deutschen Agrarwirtschaft mbH (1999).
- [Deb79] K. DEBERTIN und U. SCHÖTZIG: Coincidence summing corrections in Ge(Li)-spectrometry at low source-to-detector distances. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, Bd. 158: S. 471–477 (1979).
- [Deb88] K. DEBERTIN und R. HELMER: *Gamma- and X-Ray Spectrometry with Semiconductor Detectors* (Elsevier Science Publishers B.V., 1988), 1. Aufl.

- [Deb90] K. DEBERTIN und U. SCHÖTZIG: Bedeutung von Summationskorrekturen bei der Gammastrahlen-Spektrometrie mit Germaniumdetektoren. PTB-Bericht Ra-24 (1990).
- [DF02] P. DE FELICE, P. ANGELINI, A. FAZIO und M. CAPOGNI: A national campaign for coincidence-summing correction in gamma-ray spectrometry. In: *Applied Radiation and Isotopes*, Bd. 56(2): S. 137–143 (2002).
- [DIN00] DIN 25482-10: Nachweis- und Erkennungsgrenze bei Kernstrahlungsmessungen - Allgemeine Anwendungen. Beuth Verlag Berlin (2000).
- [Dji02] R. DJINGOVA und I. KULEFF: Concentration of Cs-137, Co-60 and K-40 in some wild and edible plants around the nuclear power plant in Bulgaria. In: *Journal of Environmental Radioactivity*, Bd. 59(1): S. 61–73 (2002).
- [Dur86] E. DURRANCE: *Radioactivity in Geology* (Ellis Horwood Limited, 1986), 1. Aufl.
- [EBe00] *Ernährungsbericht 2000* (Deutsche Gesellschaft für Ernährung e.V., 2000).
- [Ehl02] E. EHLKEN und G. KIRCHNER: Environmental processes affecting plant root uptake of radioactive trace elements and variability of transfer factor data: a review. In: *Journal of Environmental Radioactivity*, Bd. 58: S. 97–112 (2002).
- [Ell02] M. ELLEESS und S. LEE: Radionuclide-contaminated soils: A mineralogical perspective for their remediation. In: J. AMONETTE, W. BLEAM, D. SCHULZE und J. DIXON, (Hg.) *Soil Mineralogy with Environmental Applications* (Soil Science Society of America, Inc., Madison, Wisconsin, 2002).
- [EUR96] 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 Strahlungen, AB1.EG, L159/1 (29.06.1996).
- [Far88] E. FARRIES: *Faustzahlen für Landwirtschaft und Gartenbau: Tierernährung* (Verlagsunion Agrar, 1988), 11. Aufl.
- [Fig00] C. FIGL: *Analytik von Pb-210 in Umweltproben*. Diplomarbeit, Universität Hannover (2000).
- [Fis70] I. FISIENNE und H. KELLER: Radium-226 in the diet of two U.S. cities. In: *USAEC Report HASL-224*, Health and Safety Laboratory Fallout Program Quaterly Summary Report, December I, 1969 to March I, 1970, S. 1.2 – 1.8 (USAEC Health and Safety Laboratory, NTIS, April 1970).
- [Fis87] I. FISENNE, P. PERRY, K. DECKER und H. KELLER: The daily intake of U-234, U-235, U-238, Th-228, Th-230, Th-232 and Ra-226, Ra-228 by New

- York City Residents. In: *Journal of Environmental Radioactivity*, Bd. 53(4): S. 357–363 (1987).
- [Fra02] J. FRANKE: *Flächenhafte Analyse der Zusammenhänge zwischen geologischem Untergrund und terrestrischer Radioaktivität mit Hilfe von GIS und Geostatistik*. Diplomarbeit, Universität Hannover (2002).
- [Fri86] O. FRINDIK: Uran in Böden, Pflanzen und Lebensmitteln. In: *Landwirtschaftliche Forschung*, Bd. 39(1-2): S. 75–86 (1986).
- [Fri88] O. FRINDIK: Uran in Böden, Gemüse, Getreide und Obst. In: *Landwirtschaftliche Forschung*, Bd. 41(3-4): S. 188–193 (1988).
- [Fri89] O. FRINDIK: Thorium in Böden, Gemüse, Getreide und Obst. In: *Zeitschrift für Lebensmittel-Untersuchung und -Forschung*, Bd. 189: S. 236–240 (1989).
- [Fri92] O. FRINDIK: Thorium und Uran in Lebensmittel tierischer Herkunft. In: *Zeitschrift für Lebensmittel-Untersuchung und -Forschung*, Bd. 194: S. 377–380 (1992).
- [Ful01] M. FULKER: The role of fruit in the diet. In: *Journal of Environmental Radioactivity*, Bd. 52(2-3): S. 147–157 (2001).
- [Gil87] R. O. GILBERT: *Statistical Methods for Environmental Pollution Monitoring* (Van Nostrand Reinhold Company Inc., New York, 1987).
- [GN03] M. GHIASSI-NEJAD, M. BEITOLLAHI, M. ASEFI und F. REZA-NEJAD: Exposure to Ra-226 from consumption of vegetables in the high level natural radiation area of Ramsar - Iran. In: *Journal of Environmental Radioactivity*, Bd. 66(3): S. 215–225 (2003).
- [Gra85] P. GRAY und A. AHMAD: Linear classes of Ge(Li) detector efficiency functions. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, Bd. 237: S. 577–589 (1985).
- [Gre95] N. GREEN und B. WILKINS: Transfer of radionuclides to vegetable and other crops grown on land reclaimed from the sea. In: *The Science of the Total Environment*, Bd. 173/174: S. 385–392 (1995).
- [Gre01] N. GREEN: The effect of storage and processing on radionuclide content of fruit. In: *Journal of Environmental Radioactivity*, Bd. 52(2-3): S. 281–290 (2001).
- [GT01] M. GARCÍA-TALAVERA, J. LAEDERMANN, M. DÉCOMBAZ, M. DAZA und B. QUINTANA: Coincidence summing corrections for the natural decay series in gamma-ray spectrometry. In: *Journal of Radiation and Isotopes*, Bd. 54: S. 169–176 (2001).

- [GT03] M. GARCIA-TALAVERA: Evaluation of the suitability of various gamma-lines for the spectrometric determination of U-238 in environmental samples. In: *Applied Radiation and Isotopes*, Bd. 59: S. 165–173 (2003).
- [GUM95] Guide to the Expression of Uncertainty in Measurement. International Organization for Standardization (1995).
- [Haa95] G. HAAS, R. SCHUPFNER und A. MÜLLER: Transfer of natural and man made radionuclides from plants to roe deer and farm animals. In: *Journal of Radioanalytical and Chemistry*, Bd. 194(2): S. 269–276 (1995).
- [Ham01] G. J. HAM, B. T. WILKINS und L. W. EWERS: Pb-210, Po-210, Ra-226, U and Th in arable crops and ovine liver: variations in concentrations in the United Kingdom and resultant doses. In: *Radiation Protection Dosimetry*, Bd. 93(2): S. 151–159 (2001).
- [Har03a] S. M. HARB: *Natural and anthropogenic radionuclides in soils*. Dissertation, Universität Hannover (2003).
- [Har03b] R. HARVEY, D. HAMBY und R. BENKE: Age-specific uncertainty of the I-131 ingestion dose conversion factor. In: *Health Physics*, Bd. 84(3): S. 334–343 (2003).
- [Hel88] D. HELSEL und T. COHN: Estimation of descriptive statistics for multiply censored water quality data. In: *Water Resources Research*, Bd. 24: S. 1997–2004 (1988).
- [Hen99] N. HENZE: *Stochastik für Einsteiger* (Vieweg & Sohn Verlagsgesellschaften mbH, 1999), 2. Aufl.
- [Hil65] C. HILL: Po-210 in man. In: *Nature*, Bd. 208(5009): S. 423–428 (1965).
- [Hir87] R. HIRSCH und J. STEDINGER: Plotting positions for historical floods and their precision. In: *Water Resources Research*, Bd. 23: S. 715–727 (1987).
- [How01] B. HOWARD und N. BERESFORD: Advances in animal radioecology. In: F. BRÉCHIGNAC und B. HOWARD, (Hg.) *Radioactive Pollutants - Impact on the environment*, S. 187–207 (EDP Sciences, 2001).
- [ICR93] ICRP: Protection Against Radon-222 at Home and at Work. Publication 65, International Commission on Radioecological Protection, Oxford: Pergamon Press (1993).
- [ICR95] ICRP: Age-dependent Doses to Members of the Public from Intake of Radionuclides: Part 4 Inhalation Dose Coefficients. Publication 71, International Commission on Radioecological Protection, Oxford: Pergamon Press (1995).

- [ICR96] ICRP: Age-dependent Doses to the Members of the Public from Intake of Radionuclides: Part 5. Publication 72, International Commission on Radiological Protection, Oxford: Pergamon Press (1996).
- [IMI94] Richtlinie für die Überwachung der Radioaktivität in der Umwelt nach dem Strahlenschutzvorsorgegesetz, Teil I: Messprogramm für den Normalbetrieb (Routinemessprogramm). GMBL. 45, Nr. 32, S. 930 (26.09.1994).
- [Jac89] W. JACOBI, H. PARETZKE, W. FRIEDLAND, H. MÜLLER und G. PRÖHL: Transport von Radionukliden über Nahrungsketten. GSF-Bericht 12/89, Neuherberg (1989).
- [Jan90] H. JANSEN: Spline techniques for fitting efficiency curves in gamma-ray spectrometry. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, Bd. 286: S. 398–402 (1990).
- [Jäc87] B. JÄCKEL, W. WESTMEIER und P. PAZELT: On the photopeak efficiency of germanium gamma-ray detectors. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, Bd. 261: S. 543–548 (1987).
- [Joh70] N. JOHNSON und S. KOTZ: *Continuous univariate distributions* (Houghton and Mifflin, Boston, 1970).
- [Kan01] V. KANNAN, M. A. IYENGAR und R. RAMESH: Dose estimates to the public from Po-210 ingestion via dietary sources at Kalpakkam (India). In: *Applied Radiation and Isotopes*, Bd. 54(4): S. 663–674 (2001).
- [Kar01] N. KARUNAKARA, H. SOMASHEKARAPPA, D. AVADHANI, H. MAHESH, Y. NARAYANA und K. SIDDAPPA: Ra-226, Th-232 and K-40 distributions in the environment of Kaiga of South West coast of India. In: *Health Physics*, Bd. 80(5): S. 470–476 (2001).
- [Kau95] A. KAUL: Assessment of internal dose from radionuclides - dosimetric and biokinetic models. In: *Kerntechnik*, Bd. 60(1): S. 7–15 (1995).
- [Kem96] J. KEMSKI, R. KLINGEL und A. SIEHL: Die terrestrische Strahlung durch natürlich radioaktive Elemente. In: A. SIEHL, (Hg.) *Umweltradioaktivität*, S. 69–96 (Ernst & Sohn, Berlin, 1996).
- [Kir98] G. KIRCHNER und O. DAILLANT: Accumulation of Pb-210 and Ra-226 and radioactive cesium by fungi. In: *The Science of the Total Environment*, Bd. 222: S. 63–70 (1998).
- [Kno00] G. KNOLL: *Radiation Detection and Measurement* (John Wiley & Sons, Inc., 2000), 3. Aufl.
- [Koh96] F. KOHLRAUSCH: *Praktische Physik* (Teubner, 1996), 24. Aufl.

- [Kol97] V. KOLOTOV und M. KOSELKO: Testing of different true coincidence correction approaches for gamma-ray spectrometry of voluminous sources. In: *Tagungsband der MARC-IV Tagung, Log. No 97-62*, S. 2–17 (Kailua-Kona, Hawaii, 6.-11. April 1997).
- [Kop84] W. KOPP, W. GOERLICH, W. BURKHART und S. AKSOYOGLU: Influence of radionuclide residence time in soil and of competing alkaline earth elements on radium uptake by edible plants. In: *Tagungsband der IPRA 6 Tagung*, Bd. 1, S. 139–142 (Berlin, 1984).
- [Kor93] M. KORUN und R. MARTINCIC: Coincidence summing in gamma and X-ray spectrometry. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, Bd. 325: S. 478–484 (1993).
- [Kos01] M. KOSELKO, R. VENKATARAMAN und V. KOLOTOV: Coincidence summing corrections using alternative detector characterization data. In: *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, Bd. 248(1): S. 333–337 (2001).
- [Krü01] K. KRÜGER und H. HANFF: *Raps - Empfehlungen zum Anbau in Brandenburg* (Landesanstalt für Landwirtschaft des Landes Brandenburg, Frankfurt/Oder, 2001).
- [Lad73] L. LADINSKAYA, Y. PARFENOV und D. POPOV: Pb-210 and Po-210 content in air, water, foodstuffs, and the human body. In: *Archives of Environmental Health*, Bd. 27: S. 254–258 (1973).
- [Lal80] B. LALIT, T. RAMACHANDRAN und S. RAJAN: Pb-210 content of food samples in India. In: *Radiation and Environmental Biophysics*, Bd. 18: S. 13–17 (1980).
- [Lie91] K. LIESER: *Einführung in die Kernchemie* (VCH Verlagsgesellschaft mbH, 1991), 3. Aufl.
- [Lim01] E. LIMPERT, W. STAHEL und M. ABBT: Log-normal distributions across the science: Keys and clues. In: *Bioscience*, Bd. 51(5): S. 341–351 (2001).
- [Lin89] P. LINSALATA, R. MOORE, H. FORD und M. EISENBUD: An assessment of the soil-to-plant concentration ratios for some natural analogues of the transuranic elements. In: *Health Physics*, Bd. 56(1): S. 33–46 (1989).
- [LUF01] LUFÄ MÜNSTER: Probenahme - Boden. Techn. Ber., Landwirtschaftskammer Westfalen -Lippe (2001).
- [MA97] A. MARTÍNEZ-AGUIRRE, I. GARCÍA-ORELLANA und M. GARCÍA-LEÓN: Transfer of natural radionuclides from soils to plants in a marsh enhanced by the operation of non-nuclear industries. In: *Journal of Environmental Radioactivity*, Bd. 35(2): S. 149–171 (1997).

- [Mad01] M. MADRUGA, A. BROGUEIRA, G. ALBERTO und F. CARDOSO: Ra-226 bioavailability to plants at the urgeirica uranium mill tailings site. In: *Journal of Environmental Radioactivity*, Bd. 54(1): S. 175–188 (2001).
- [Mad02] M. MADRUGA, I. FARIA und A. BROGUEIRA: Pb-210 bioavailability to plants at uranium mill tailings. In: P. BORRETZEN, T. JOLLE und P. STRAND, (Hg.) *Proceedings from the International Conference on Radioactivity in the Environment* (Monaco, 1.-5. September 2002).
- [Mao95] S. MAO und K. YU: Measurement of natural and artificial radionuclide concentrations in meat consumed in Hong Kong. In: *Radioactive Measurements*, Bd. 24(2): S. 201–205 (1995).
- [Mau89] P. MAUL und J. O'HARA: Background radioactivity in environmental materials. In: *Journal of Environmental Radioactivity*, Bd. 9: S. 265–280 (1989).
- [MB79] L. MCDOWELL-BOYER, A. WATSON und C. TRAVIS: Review and Recommendations of Dose Conversion Factors and Environmental transport Parameters for Pb-210 and Ra-226. NCR-Report NUREG/CR-0574, Oak Ridge National Laboratory (1979).
- [MB80] L. MCDOWELL-BOYER, A. WATSON und C. TRAVIS: A review of parameters describing terrestrial food-chain transport of Lead-210 and Radium-226. In: *Nuclear Safety*, Bd. 21(4): S. 486–495 (1980).
- [Mes00a] Gammaskpektrometrische Bestimmung ausgewählter natürlicher Radionuklide. In: *Meßanleitung für die Überwachung der Radioaktivität in der Umwelt und zur Erfassung radioaktiver Emissionen aus kerntechnischen Anlagen*, Kap. IV.1.4 (Urban & Fischer, München, 2000).
- [Mes00b] Genauigkeit von Meßwerten, Empfehlungen zur Dokumentation. In: *Meßanleitung für die Überwachung der Radioaktivität in der Umwelt und zur Erfassung radioaktiver Emissionen aus kerntechnischen Anlagen*, Kap. IV.4 (Urban & Fischer, München, 2000).
- [Mes00c] Meßanleitung für die Überwachung der Radioaktivität in Boden. In: *Meßanleitung für die Überwachung der Radioaktivität in der Umwelt und zur Erfassung radioaktiver Emissionen aus kerntechnischen Anlagen*, Kap. F-BODEN (Urban & Fischer, München, 2000).
- [Mes00d] *Meßanleitung für die Überwachung der Radioaktivität in der Umwelt und zur Erfassung radioaktiver Emissionen aus kerntechnischen Anlagen* (Der Bundesminister für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit, Urban & Fischer, 2000).
- [Mes00e] Meßanleitung für die Überwachung der Radioaktivität in Futtermitteln und Futtermittelrohstoffen. In: *Meßanleitung für die Überwachung der Radioak-*

tivität in der Umwelt und zur Erfassung radioaktiver Emissionen aus kerntechnischen Anlagen, Kap. F-FUMI (Urban & Fischer, München, 2000).

- [MES00f] Meßanleitung für die Überwachung der Radioaktivität in Lebensmitteln. In: *Meßanleitung für die Überwachung der Radioaktivität in der Umwelt und zur Erfassung radioaktiver Emissionen aus kerntechnischen Anlagen*, Kap. F-LEBM (Urban & Fischer, München, 2000).
- [MES00g] Meßanleitung für die Überwachung der Radioaktivität in Milch und Milchprodukten. In: *Meßanleitung für die Überwachung der Radioaktivität in der Umwelt und zur Erfassung radioaktiver Emissionen aus kerntechnischen Anlagen*, Kap. F-MILCH (Urban & Fischer, München, 2000).
- [Mes00h] Meßanleitung für die Überwachung der Radioaktivität in Pflanzen. In: *Meßanleitung für die Überwachung der Radioaktivität in der Umwelt und zur Erfassung radioaktiver Emissionen aus kerntechnischen Anlagen*, Kap. F-PFLAN (Urban & Fischer, München, 2000).
- [Mic99] R. MICHEL und K. KIRCHHOFF: *Nachweis-, Erkennungs- und Vertrauensgrenzen bei Kernstrahlungsmessungen* (TÜV-Verlag, 1999).
- [Mic03] R. MICHEL: Private Mitteilung: derzeitiger Kenntnisstand der SSK bei der Festlegung der Parameter zur Modellierung der Strahlenexposition bei der Freigabe (Oktober 2003).
- [Mit01] N. MITCHELL: Models for radionuclide transfer to fruits and data requirements. In: *Journal of Environmental Radioactivity*, Bd. 52(2-3): S. 291–307 (2001).
- [Mül93] H. MÜLLER und G. PRÖHL: ECOSYS-87: A Dynamic Model for Assessing Radiological Consequences of Nuclear Accidents. In: *Health Physics*, Bd. 64(3): S. 232–252 (1993).
- [Mor71] R. MORSE und G. WELFORD: Dietary intake of Pb-210. In: *Health Physics*, Bd. 21: S. 53–55 (1971).
- [Nal97] S. NALEZINSKI und D. LUX: Ermittlung von Transferfaktoren Boden-Pflanze für U-238 und Ra-226 in einer uranbergbaulich beeinflussten Kleingartenanlage. In: *BfS Jahresbericht*, S. S37 – S38 (1997).
- [NCR96a] NCRP: A Guide for Uncertainty Analysis in Dose and Risk Assessments related to Environmental Contamination. NCRP Commentary 14, National Council on Radiation Protection and Measurements, Bethesda, USA (1996).
- [NCR96b] NCRP: Screening models for releases of radionuclides to atmosphere, surface, water, and ground. NCRP Report 123, National Council on Radiation Protection and Measurements, Bethesda, USA (1996).

- [NCR99] NCRP: Recommended screening limits for contaminated surface soil and review of factors relevant to site-specific studies. NCRP Report 129, Bethesda, USA (1999).
- [Nis76] H. NISHITA, A. WALLACE und E. ROMNEY: Radionuclide uptake by plants. NUREG/CR-0336, U.S. Nuclear Regulatory Commission, Springfield (1976).
- [Obr01] D. OBRİKAT, H. VIERTTEL, I. WINTERFELDT und K. SCHMIDT: *Bestimmung des Radionuklidgehaltes im Wasser -Ringversuch 1/2001- (AS 2-04 / 2002)* (Bundesamt für Strahlenschutz, Institut für Angewandten Strahlenschutz, Berlin, 2001).
- [OD01] Z. OULD-DADA, I. FAIRLIE und C. READ: Transfer of radioactivity to fruit: significant radionuclides and speciation. In: *Journal of Environmental Radioactivity*, Bd. 52(2-3): S. 159 – 174 (2001).
- [Pau86] A. PAUL und K. PILLAI: Transfer and uptake of radium in a natural and in a technologically modified radiation environment. In: *Journal of Environmental Radioactivity*, Bd. 3: S. 55–73 (1986).
- [Pet91a] N. PETOUSSI, P. JACOB, M. ZANKL und K. SAITO: Organ doses for foetuses, babies, children and adults from environmental gamma rays. In: *Radiation Protection Dosimetry*, Bd. 37(1): S. 31–41 (1991).
- [Pet91b] N. PETOUSSI, M. ZANKL, R. VEIT, P. JACOB und G. DREXLER: Organ doses as a funktion of body weight for environmental gamma rays. In: *Journal of Nuclear Science and Technology*, Bd. 28(7): S. 627–641 (1991).
- [PF95] Z. PIETRZAK-FLIS und M. SKOWRONSKA-SMOLAK: Transfer of Pb-210 and Po-210 to plants via root system and above-ground interception. In: *The Science of the Total Environment*, Bd. 162: S. 139–147 (1995).
- [PF97] Z. PIETRZAK-FLIS, E. CHRZANOWIKI und S. DEMBINSKA: Intake of Ra-226, Pb-210 and Po-210 with food in Poland. In: *The Science of the Total Environment*, Bd. 203: S. 157–165 (1997).
- [Pfe95] G. PFENNIG, H. KLEWE-NEBENIUS und W. SEELMANN-EGGEBERT: *Karlsruher Nuklidkarte* (Forschungszentrum Karlsruhe GmbH, Technik und Umwelt, 1995), 6. Aufl.
- [Por96] J. PORSTENDÖRFER: Zur Dynamik von Radon und Folgeprodukten in der freien Atmosphäre und Raumluft. In: A. SIEHL, (Hg.) *Umweltradioaktivität*, S. 245–260 (Ernst & Sohn, Berlin, 1996).
- [Prö03] G. PRÖHL: Radioactivity in the terrestrial environment. In: E. SCOTT, (Hg.) *Modeling Radioactivity in the Environment*, Bd. 4 von *Radioactivity in the Environment*, S. 87–108 (Elsevier, Argyll, 2003), 1. Aufl.

- [Qui95] B. QUINTANA und F. FERNANDEZ: An empirical method to determine coincidence-summing corrections in gamma-spectrometry. In: *Applied Radiation and Isotopes*, Bd. 46(9): S. 961–964 (1995).
- [Rad96] A. RADHAKRISHNA, H. SOMASHEKARAPPA, Y. NARAYANA und K. SID-DAPPA: Distribution of some natural and artificial radionuclides in Mangalore environment of South India. In: *Journal of Environmental Radioactivity*, Bd. 30(1): S. 31–54 (1996).
- [Raj02] M. RAJPUT, M. AHMAD und W. AHMAD: Characteristic absolute efficiency response curves of a high purity germanium detector in the energy range 50 to 1500 keV. In: *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, Bd. 251(3): S. 457–462 (2002).
- [Rei90] A. REINEKING und J. PORSTENDÖRFER: Unattached Fraction of Short-Lived Radon Decay Products in Indoor and Outdoor Environments: An Improved Single-screen Method and Results. In: *Health Physics*, Bd. 58(6): S. 715–727 (1990).
- [Rod02] P. RODRÍGUEZ, F. TOMÉ und J. LOZANO: About the assumption of linearity in soil-to-plant transfer factors for uranium and thorium isotopes and Ra-226. In: *The Science of the Total Environment*, Bd. 284(1-3): S. 167–175 (2002).
- [Roy82] J. ROYSTON: An extension of shapiro and wilk's test for normality to large samples. In: *Applied Statistics*, Bd. 31(2): S. 115–124 (1982).
- [Sab02] C. SABBARESE, L. STELLATO, M. COTRUFINO, A. ERMICE, C. LUBRITTO, F. TERRASI, S. ALFIERI und B. MIGLIORE: Dependence of radionuclide transfer factor on growth stage for a soil-lettuce plant system. In: *Environmental Modelling and Software*, Bd. 17(6): S. 545–551 (2002).
- [Sam95] A. SAM: Radium-226 uptake by vegetation grown in Western Sudan. In: *Journal of Environmental Radioactivity*, Bd. 29(1): S. 27–38 (1995).
- [San02] E. SANTOS, D. LAURIA, E. AMARAL und E. ROCHEDO: Daily ingestion of ²³²Th, ²³⁸U, ²²⁶Ra, ²²⁸Ra and ²¹⁰Pb in vegetables by inhabitants of Rio de Janeiro City. In: *Journal of Environmental Radioactivity*, Bd. 62(1): S. 75–86 (2002).
- [Sch89] P. SCHACHTSCHABEL, H.-P. BLUME, G. BRÜMMER, K.-H. HARTGE und U. SCHWERTMANN: *Lehrbuch der Bodenkunde* (Ferdinand Enke Verlag Stuttgart, 1989), 12. Aufl.
- [Sch98a] U. K. SCHKADE, M. HARTMANN und M. NAUMANN: Fünfte Vergleichsanalyse „Boden 1998“. In: *BfS Jahresbericht*, S. ST36 – ST37 (1998).

- [Sch98b] U. SCHÖTZIG und H. SCHRADER: Halbwertszeiten und Photonen-Emissionswahrscheinlichkeiten von häufig verwendeten Radionukliden. PTB-Bericht PTB-Ra-16/5, Physikalisch Technische Bundesanstalt, Bremerhaven (1998).
- [Sha65] S. SHAPIRO und M. WILK: An analysis of variance test for normality (complete samples). In: *Biometrika*, Bd. 52: S. 591–611 (1965).
- [She85] M. SHEPPARD und S. SHEPPARD: The plant concentration ratio concept as applied to natural U. In: *Health Physics*, Bd. 48(4): S. 494–500 (1985).
- [She88] S. SHEPPARD und W. EVENDEN: The assumption of linearity in soil and plant concentration ratios: An experimental evaluation. In: *Journal of Environmental Radioactivity*, Bd. 7: S. 221–247 (1988).
- [Shi97] K. SHIRAISHI, K. TAGAMI, T. BAN-NAI, M. YAMAMOTO, Y. MURAMATSU, I. LOS, G. PHEDOSENKO, V. KORZUN, N. TSIGANOV und I. SEGEDA: Daily Intake of Cs-134, Cs-137, K-40, Th-232, and U-238 in Ukrainian Adult Males. In: *Health Physics*, Bd. 73(5): S. 814–819 (1997).
- [Shu94] V. SHUKLA, M. MENON, T. RAMACHANDRAN, A. SATHE und S. HINGORANI: Natural and fallout radioactivity in milk and diet samples in Bombay and population dose rate estimates. In: *Journal of Environmental Radioactivity*, Bd. 25: S. 229–237 (1994).
- [Sie96] A. SIEHL: Grundlagen und Geowissenschaftliche Aspekte der Umweltraadioaktivität. In: A. SIEHL, (Hg.) *Umweltraadioaktivität*, S. 1–30 (Ernst & Sohn, Berlin, 1996).
- [Sim87] S. SIMON und A. IBRAHIM: The plant/soil concentration ratio for calcium, radium, lead, and polonium: Evidence for non-linearity with reference to substrate concentration. In: *Journal of Environmental Radioactivity*, Bd. 5: S. 123–142 (1987).
- [Sim01] O. SIMA, D. ARNOLD und C. DOVLETE: GESPECOR: A versatile tool in gamma-ray spectrometry. In: *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, Bd. 248(2): S. 359–364 (2001).
- [Sim02a] O. SIMA und D. ARNOLD: Transfer of the efficiency calibration of Germanium gamma-ray detectors using the GESPECOR software. In: *Applied Radiation and Isotopes*, Bd. 56(1): S. 71–75 (2002).
- [Sim02b] S. SIMON, J. GRAHAM und S. TERP: Uptake of K-40 and Cs-137 in native plants of the Marshall Islands. In: *Journal of Environmental Radioactivity*, Bd. 59(2): S. 223–243 (2002).
- [SRS01] Generic models for use in assessing the impact of discharges of radioacti-

- ve substances to the environment. Safety Reports Series 21, International Atomic Energy Agency, Wien (2001).
- [SSK03] Vorschlag der Strahlenschutzkommission für transferierte Bruchteile zur Ermittlung der Strahlenexposition über den Muttermilchpfad. Bundesamt für Strahlenschutz (11. August 2003).
- [Ste01] A. STEWART, A. BRUDENELL und C. COLLINS: Deposition of gaseous radionuclides to fruit. In: *Journal of Environmental Radioactivity*, Bd. 52(2-3): S. 175–189 (2001).
- [Ste03] E. STEFFENS: Private Mitteilung (2003).
- [Str91] E. STRASBURGER, F. NOLL, H. SCHENK und A. SCHIMPER: *Lehrbuch der Botanik für Hochschulen* (Gustav Fischer Verlag, 1991), 11 Aufl.
- [Str01] 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 (Strahlenschutzverordnung-StrlSchV)“ (2001).
- [Str02] F. STREBL, W. RINGER und M. GERZABEK: Radiocaesium contamination of meadow vegetation - time-dependent variability and influence of soil characteristics at grassland sites in Austria. In: *Journal of Environmental Radioactivity*, Bd. 58(2-3): S. 143–161 (2002).
- [Tho03] M. THORNE: Estimation of animal transfer factors for radioactive isotopes of iodine, technetium, selenium and uranium. In: *Journal of Environmental Radioactivity*, Bd. 70(1): S. 3–20 (2003).
- [Tom02] F. TOMÉ, P. RODRÍGUEZ und J. LOZANO: Distribution and mobilization of U, Th and Ra-226 in the plant-soil compartments of a mineralized uranium area in south-west Spain. In: *Journal of Environmental Radioactivity*, Bd. 59(1): S. 41–60 (2002).
- [Tom03] F. TOMÉ, P. RODRÍGUEZ und J. LOZANO: Soil to plant transfer factors for natural radionuclides and stable elements in a mediterranean area. In: *Journal of Environmental Radioactivity*, Bd. 65(2): S. 161–175 (2003).
- [Tra83] B. TRACY, F. PRANTL und J. QUINN: Transfer of Ra-226, Pb-210 and uranium from soil to garden produce: Assessment of risk. In: *Health Physics*, Bd. 44(5): S. 469–477 (1983).
- [TRS94] Handbook of parameter values for the prediction of radionuclide transfer in temperate environments. Technical Reports Series No. 364, International Atomic Energy Agency, Wien. Produced in collaboration with the International Union of Radioecologists (IUR) (1994).

- [Tsc98] M. TSCHURLOVITS: Überlegungen zur Optimierung der Probennahme bei Umweltmessungen. In: M. WINTER, K. HENRICHS und H. DOERFEL, (Hg.) *Radioaktivität in Mensch und Umwelt - 30. Jahrestagung des Fachverbandes für Strahlenschutz, gemeinsam mit dem Österreichischen Verband für Strahlenschutz*, Bd. 2, S. 730–735 (Fachverband für Strahlenschutz e.V., 28. September - 2. Oktober 1998).
- [Tso00] M. TSO und J. LEUNG: Population dose due to natural radiation in Hong Kong. In: *Health Physics*, Bd. 78(5): S. 555–558 (2000).
- [Tyk95] R. TYKVA und J. SABOL: *Low-Level Environmental Radioactivity - Sources and Evaluation* (Technomic Publishing Company, Inc., Lancaster, Pennsylvania, 1995), 10. Aufl.
- [UNS93] United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation (UNSCEAR): Sources and Effects of Ionizing Radiation (UNSCEAR 1993 Report to the General Assembly, with Scientific Annexes. Volume 1: Sources). United Nations, New York (1993).
- [UNS00] United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation (UNSCEAR): Sources and Effects of Ionizing Radiation (UNSCEAR 2000 Report to the General Assembly, with Scientific Annexes. Volume 1: Sources). United Nations, New York (2000).
- [Vah02] J.-W. VAHLBRUCH, R. SACHSE, S. HARB, D. JAKOB, R. MICHEL, W.-U. MÜLLER, J. SCHABRONATH und D. DÜPUTELL: Untersuchungen zur Strahlenexposition durch natürliche Radionuklide aus dem Steinkohlebergbau in der Vorflut. In: R. MICHEL, M. TÄSCHNER und A. BAYER, (Hg.) *Praxis des Strahlenschutzes: Messen, Modellieren, Dokumentieren - 34. Jahrestagung des Fachverbandes für Strahlenschutz e.V.*, S. 227–234 (Fachverband für Strahlenschutz e.V., Kloster Seeon, 21. - 25. April 2002).
- [Val00] V. VALKOVIC: *Radioactivity in the Environment* (Elsevier Science B.V., Amsterdam, 2000), 1. Aufl.
- [Vas87] L. VASCONCELLOS, E. AMARAL und M. VIANNA: Uptake of Ra-226 and Pb-210 by food crops cultivated in a region of high natural radioactivity in Brazil. In: *Journal of Environmental Radioactivity*, Bd. 5: S. 287–302 (1987).
- [Ven99] L. VENTURINI und G. SORDI: Radioactivity in and committed effective dose from some brazilian foodstuffs. In: *Health Physics*, Bd. 76(3): S. 311–313 (1999).
- [Ven01] A. VENTER, P. J. COUGHTREY, F. CARINI und Y. INOUE: Foreword. In: *Journal of Environmental Radioactivity*, Bd. 52(2-3): S. 117 – 122 (2001).

- [Vet94] VETTER: *Düngungsempfehlungen für Reinnährstoff bei mittleren Erträgen* (Landwirtschaftliche Untersuchungs- und Forschungsanstalt der Landwirtschaftskammer Weser-Ems, Oldenburg, 1994).
- [Vog92] H.-G. VOGT und H. SCHULTZ: *Grundzüge des praktischen Strahlenschutzes* (Carl Hanser Verlag, München, 1992), 2. Aufl.
- [Wat83] A. WATSON, E. ETNIER und L. MCDOWELL-BOYER: Radium-226 in Drinking Water and Terrestrial Food Chains: A Review of Parameters and an Estimate of Potential Exposure and Dose. ORNL/TM-8597, Oak Ridge National Laboratory, Health and Safety Research Division (1983).
- [Wei92] K. WEISE und W. WÖGER: Eine Bayessche Theorie der Messunsicherheit. PTB-Bericht PTB-N-11, Physikalisch Technische Bundesanstalt, Braunschweig (1992).
- [Wei95] K. WEISE und R. MICHEL: Erkennungsgrenze, Nachweisgrenze und Vertrauensbereich in der allgemeinen Kernstrahlungs-Spektrometrie. In: *Kern-technik*, Bd. 60(4): S. 189–196 (1995).
- [Wei99] K. WEISE und W. WÖGER: *Meßunsicherheiten und Meßdatenauswertung* (Wiley-VCH, Weinheim, 1999).
- [Whi87] F. WHICKER und T. KIRCHNER: PATHWAY: A dynamic food-chain model to predict radionuclide ingestion after fallout deposition. In: *Health Physics*, Bd. 52(6): S. 717–737 (1987).
- [Wic97] K. WICHTEREY: Untersuchungen in der Kleingartenanlage der Gartensparte „Silbertal“ (Schlema) zur Abschätzung der Strahlenexposition. In: *BfS Jahresbericht*, S. ST29 – ST31 (1997).
- [Wir85] E. WIRTH, H. KOEHLER und J. BURKHARDT: The suitability of transfer coefficients used for stochastic calculations in radioecology. In: *Health Physics*, Bd. 49(6): S. 1165–1172 (1985).
- [Yu99] K. YU und S. MAO: Assessment of radionuclide contents in food in Hong Kong. In: *Health Physics*, Bd. 77(6): S. 686–696 (1999).
- [Zoc96] C. ZOCK und J. PORSTENDÖRFER: Radondosimetrie: Dosisrelevante Größen und Dosismodelle. In: A. SIEHL, (Hg.) *Umweltradioaktivität*, S. 261–283 (Ernst & Sohn, Berlin, 1996).