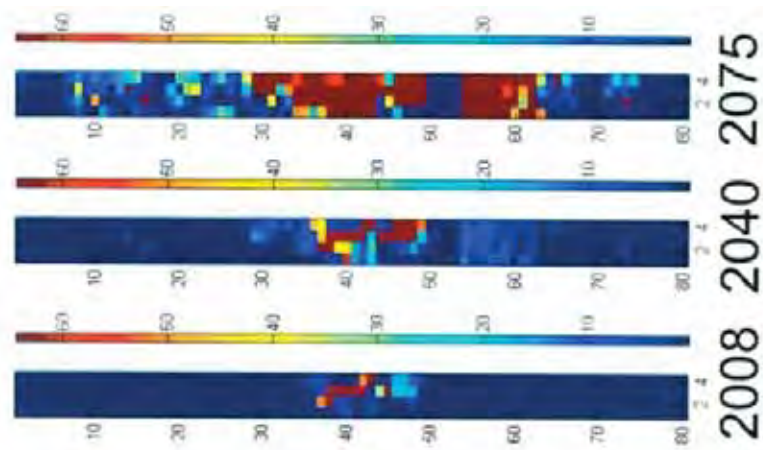
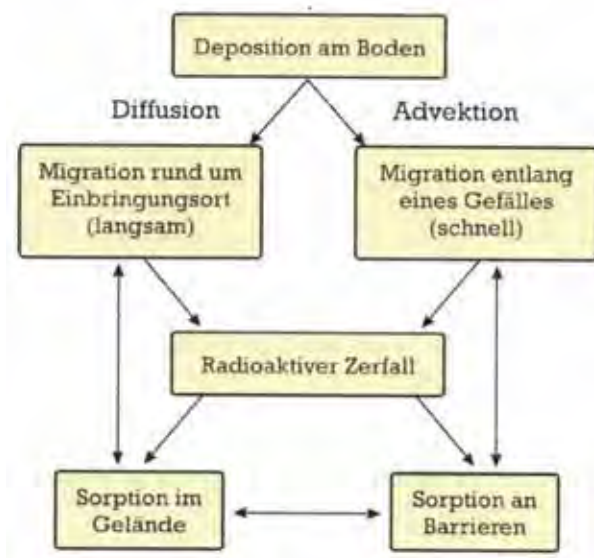


Das Verhalten von Transuranelementen in Erdböden - Theorie, Beprobung und radiochemische Analysen

Katharina Breitenecker





ASIM



ASIM



ASIM



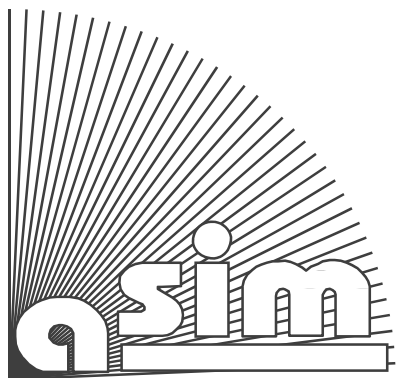
ASIM Books – ASIM Book Series – ASIM Buchreihen

Monographs / Proceedings

- Simulation in Production and Logistics 2023 – 20. ASIM Fachtagung Simulation in Produktion und Logistik**
TU Ilmenau, September 2023; S. Bergmann, N. Feldkamp, R. Souren, S. Straßburger (Hrsg.);
ASIM Mitteilung 187; ISBN ebook 978-3-86360-276-5, DOI: 10.22032/dbt.57476, Universitätsverlag Ilmenau, 2023
- Proceedings Langbeiträge ASIM Workshop 2023 STS/GMMS/EDU - ASIM Fachgruppenworkshop 2023**
Univ. Magdeburg, März 2023; C. Krull; W. Commerell, U. Durak, A. Körner, T. Pawletta (Hrsg.)
ARGESIM Report 21; ASIM Mitteilung 185; ISBN ebook 978-3-903347-61-8, DOI 10.11128/arep.21, ARGESIM Verlag, Wien, 2023
- Kurzbeiträge & Abstract-Beiträge ASIM Workshop 2023 STS/GMMS/EDU - ASIM Fachgruppenworkshop 2023**
Univ. Magdeburg, März 2023; C. Krull; W. Commerell, U. Durak, A. Körner, T. Pawletta (Hrsg.)
ARGESIM Report 22; ASIM Mitteilung 186; ISBN ebook 978-3-903347-62-5, DOI 10.11128/arep.22, ARGESIM Verlag, Wien, 2023
- Proceedings Langbeiträge ASIM SST 2022 -26. ASIM Symposium Simulationstechnik, TU Wien, Juli 2022**
F. Breitenecker, C. Deatcu, U. Durak, A. Körner, T. Pawletta (Hrsg.), ARGESIM Report 20; ASIM Mitteilung AM 181
ISBN ebook 978-3-901608-97-1, DOI 10.11128/arep.20, ARGESIM Verlag Wien, 2022
- Proceedings Kurzbeiträge ASIM SST 2022 -26. ASIM Symposium Simulationstechnik, TU Wien, Juli 2022**
F. Breitenecker, C. Deatcu, U. Durak, A. Körner, T. Pawletta (Hrsg.), ARGESIM Report 19; ASIM Mitteilung AM 179
ISBN ebook 978-3-901608-96-4, DOI 10.11128/arep.19, ISBN print 978-3-901608-73-5, ARGESIM Verlag Wien, 2022
- Simulation in Production and Logistics 2021 – 19. ASIM Fachtagung Simulation in Produktion und Logistik**
Online Tagung, Sept. 2021, J. Franke, P. Schuderer (Hrsg.), Cuvillier Verlag, Göttingen, 2021,
ISBN print 978-3-73697-479-1; ISBN ebook 978-3-73696-479-2; ASIM Mitteilung AM177

Book Series Fortschrittsberichte Simulation – Advances in Simulation

- An Architecture for Model Behavior Generation for Multiple Simulators.** H. Folkerts, FBS 32
ISBN ebook 978-3-903347-42-7, DOI 10.11128/fbs.32, ARGESIM Publ. Vienna, 2024
- Das Verhalten von Transuranelementen in Erdböden - Theorie, Beprobung und radiochemische Analysen.** K. Breitenecker, FBS 41; ISBN ebook 978-3-903347-41-0, DOI 10.11128/fbs.41, 2024; ISBN print 978-3-901608-99-5, 2010; ARGESIM Publ. Vienna
- Aufgabenorientierte Multi-Robotersteuerungen auf Basis des SBC-Frameworks und DEVS.** B. Freymann, FBS 37
ISBN ebook 2020_978-3-903347-40-3, DOI 10.11128/fbs.40, ARGESIM Publ. Vienna, 2022
- Cooperative and Multirate Simulation: Analysis, Classification and New Hierarchical Approaches.** I. Hafner, FBS 39
ISBN ebook 978-3-903347-39-7, DOI 10.11128/fbs.39, ARGESIM Publ. Vienna, 2022
- Die Bedeutung der Risikoanalyse für den Rechtsschutz bei automatisierten Verwaltungsstrafverfahren.** T. Preiß, FBS 38
ISBN ebook 978-3-903347-38-0, DOI 10.11128/fbs.38, ARGESIM Publ. Vienna, 2020
- Methods for Hybrid Modeling and Simulation-Based Optimization in Energy-Aware Production Planning.** B. Heinzl, FBS 37
ISBN ebook 978-3-903347-37-3, DOI 10.11128/fbs.37, ARGESIM Publ. Vienna, 2020;
- Konforme Abbildungen zur Simulation von Modellen mit verteilten Parametern.** Martin Holzinger, FBS 36
ISBN ebook 978-3-903347-36-6, DOI 10.11128/fbs.36, ARGESIM Publ. Vienna, 2020
- Fractional Diffusion by Random Walks on Hierarchical and Fractal Topological Structures.** G. Schneckenreither, FBS 35
ISBN ebook 978-3-903347-35-9, DOI 10.11128/fbs.35, ARGESIM Publ. Vienna, 2020
- A Framework Including Artificial Neural Networks in Modelling Hybrid Dynamical Systems.** Stefanie Winkler, FBS 34
ISBN ebook 978-3-903347-34-2, DOI 10.11128/fbs.34, ARGESIM Publ. Vienna, 2020
- Modelling Synthesis of Lattice Gas Cellular Automata and Random Walk and Application to Gluing of Bulk Material.** C. Rößler, FBS 33
ISBN ebook 978-3-903347-33-5, DOI 10.11128/fbs.33, ARGESIM Publ. Vienna, 2020
- Combined Models of Pulse Wave and ECG Analysis for Risk Prediction in End-stage Renal Disease Patients.** S. Hagmair, FBS 32
ISBN ebook 978-3-903347-32-8, DOI 10.11128/fbs.32, ARGESIM Publ. Vienna, 2020
- Mathematical Models for Pulse Wave Analysis Considering Ventriculo-arterial Coupling in Systolic Heart Failure.** S. Parragh, FBS 31
ISBN ebook 978-3-903347-31-1, DOI 10.11128/fbs.31, ARGESIM Publ. Vienna, 2020
- Variantenmanagement in der Modellbildung und Simulation unter Verwendung des SES/MB Frameworks.** A. Schmidt, FBS 30;
ISBN ebook 978-3-903347-30-4, DOI 10.11128/fbs.30, ARGESIM Verlag, Wien 2019
- Classification of Microscopic Models with Respect to Aggregated System Behaviour.** Martin Bicher, FBS 29;
ISBN ebook 978-3-903347-29-8, DOI 10.11128/fbs.29, ARGESIM Publ. Vienna, 2017
- Model Based Methods for Early Diagnosis of Cardiovascular Diseases.** Martin Bachler, FBS 28;
ISBN ebook 978-3-903347-28-1, DOI 10.11128/fbs.28, ARGESIM Publ. Vienna, 2017
- A Mathematical Characterisation of State Events in Hybrid Modelling.** Andreas Körner, FBS 27;
ISBN ebook 978-3-903347-27-4, DOI 10.11128/fbs.27, ARGESIM Publ. Vienna, 2016
- Comparative Modelling and Simulation: A Concept for Modular Modelling and Hybrid Simulation of Complex Systems.** FBS 26,
N. Popper, FBS 26; ISBN ebook 978-3-903347-26-7, DOI 10.11128/fbs.26, ARGESIM Publ. Vienna, 2016
- Rapid Control Prototyping komplexer und flexibler Robotersteuerungen auf Basis des SBE-Ansatzes.** Gunnar Maletzki, FBS 25;
ISBN ebook 978-3-903347-25-0, DOI 10.11128/fbs.25, ARGESIM Publ. Vienna, 2019
- A Comparative Analysis of System Dynamics and Agent-Based Modelling for Health Care Reimbursement Systems.** P. Einzinger,
FBS 24; ISBN ebook 978-3-903347-24-3, DOI 10.11128/fbs.24, ARGESIM Publ. Vienna, 2016
- Agentenbasierte Simulation von Personenströmen mit unterschiedlichen Charakteristiken.** Martin Bruckner, FBS 23;
ISBN ebook Online 978-3-903347-23-6, DOI 10.11128/fbs.23, ARGESIM Verlag Wien, 2016
- Deployment of Mathematical Simulation Models for Space Management.** Stefan Emrich, FBS 22;
ISBN ebook 978-3-903347-22-9, DOI 10.11128/fbs.22, ARGESIM Publisher Vienna, 2016



ARGESIM

FBS Fortschrittsberichte Simulation

Advances in Simulation

Herausgegeben von **ASIM** - Arbeitsgemeinschaft **Simulation**, Fachausschuss der **GI** – Gesellschaft für Informatik - im Fachbereich **ILW** – Informatik in den Lebenswissenschaften

Published by **ASIM** – German Simulation Society, Section of **GI** – German Society for Informatics in Division **ILW** – Informatics in Life Sciences

ASIM FBS 41

Katharina Breitenecker

**Das Verhalten von Transuranelementen in Erdböden
- Theorie, Beprobung und
radiochemische Analysen**

FBS - Fortschrittsberichte Simulation / Advances in Simulation

Herausgegeben von **ASIM** - Arbeitsgemeinschaft Simulation, → www.asim-gi.org

ASIM ist ein Fachausschuss der **GI** - Gesellschaft für Informatik, → www.gi.de, im Fachbereich **ILW** – Informatik in den Lebenswissenschaften, → fb-ilw.gi.de

Published on behalf of **ASIM** – German Simulation Society, → www.asim-gi.org

ASIM is a section of of **GI** – German Society for Informatics, → www.gi.de, in division **ILW** – Informatics in the Life Sciences, → fb-ilw.gi.de

Reihenherausgeber / Series Editors

Prof. Dr.-Ing. Th. Pawletta (ASIM), HS Wismar, Thorsten.pawletta@hs-wismar.de

Prof. Dr. D. Murray-Smith (EUROSIM / ASIM), Univ. Glasgow,

David.Murray-Smith@glasgow.ac.uk

Prof. Dr. F. Breitenecker (ARGESIM / ASIM), TU Wien, Felix.Breitenecker@tuwien.ac.at

Titel / Title: Das Verhalten von Transuranelementen in Erdböden

- Theorie, Beprobung und radiochemische Analysen

Autor / Author: Katharina Breitenecker, Katharina.Breitenecker@iaea.org

FBS Band / Volume: 41

Typ / Type: Dissertation / PhD Thesis, 2008

ISBN ebook: 978-3-903347-41-0, ARGESIM Publisher Vienna, New Edition, 2024;

www.argesim.org

ISBN print: 978-3-901608-99-5, 2010, in Series ARGESIM Reports (AR 91)

DOI: 10.11128/fbs.41

Seiten / Pages: 152 + iv



TECHNISCHE
UNIVERSITÄT
WIEN

VIENNA
UNIVERSITY OF
TECHNOLOGY

DISSERTATION

Das Verhalten von Transuranelementen in Erböden - Theorie, Beprobung und radiochemische Analysen

ausgeführt zum Zwecke der Erlangung des akademischen Grades eines
Doktors der technischen Wissenschaften unter der Leitung von

Ao.Univ.-Prof. Dipl.-Ing. Dr.techn. Helmuth Böck
E141 - Atominstitut der österreichischen Universitäten

eingereicht an der Technischen Universität Wien
bei der Fakultät für Physik

von

Dipl.-Ing. Katharina Breitenecker
Matrikelnummer: 9726120
Blechturmstraße 10/12
1040 Wien

Wien, im April 2008

Kurzfassung

Das Ziel dieser Arbeit bestand darin, das Migrationsverhalten von Transuranen anhand systematischer Beprobung, radiochemischen Analysen und generischer Modellbildung zu untersuchen und zu bewerten.

Die systematische Beprobung und die nachfolgenden radiochemischen Analysen konnten anhand von kontaminierten Flächen, die auf dem Betriebsgelände der *Nuclear Engineering Seibersdorf* zur Verfügung standen, durchgeführt werden.

Für die Modellierung wurde ein dynamischer Ansatz über die Transportgleichung verwendet, der mit einem CA-Ansatz (zelluläre Automaten) für die räumliche Verteilung verbunden wurde. Dadurch konnten Ergebnisse der Beprobungsstrategie und der Modellbildung in Einklang gebracht werden.

Der erstmalige Nachweis von ^{241}Am wurde bei Orientierungsmessungen am besagten Betriebsgelände im Rahmen des Projekts *Geländekataster* erbracht. Die Art und Weise wie die Kontamination vorlag, ließ die Vermutung aufkommen, dass betriebsinterne Emissionsquellen die Ursache sein könnten. So wurde eine Dissertation ausgeschrieben, um das Migrationsverhalten von Transuranelementen besser verstehen zu können.

Im ersten Teil dieser Arbeit wurden gezielte Messungen der Aktivitätskonzentrationen an ausgewählten Verdachtsflächen am Standort durchgeführt. Dabei wurden einzelne Teilbereiche systematisch in einem engmaschigen Netz horizontal, bzw. vertikal untersucht. Dazu wurden über 300 Bodenproben genommen und gammaspektrometrisch ausgewertet.

Im zweiten Teil erfolgte eine eingehende radiochemische Analyse hinsichtlich der gängigsten anthropogenen Radionuklide, die gammaspektrometrisch nicht zu erfassen sind: ^3H , ^{14}C , ^{90}Sr und die Transurane ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ und ^{241}Pu . Für die Bestimmung dieser Nuklide wurde für β -Strahler die Flüssigszintillationsspektrometrie (Liquid Scintillation Counting - LSC), für α -Strahler die Alphaspektrometrie herangezogen. Diese Analysen brachten einigermaßen konstante Nuklidverhältnisse hervor, wodurch ein Nuklidvektor mit ^{241}Am als Schlüsselnuklid erstellt werden konnte. Aufgrund der radiochemischen Analysen konnte sogar eine Vermutung der Emissionsquelle aufgestellt werden.

Der dritte Teil begann mit einer systematischen Literaturstudie über Migrationsprozesse von Schadstoffen in der Umwelt. Gestützt auf diese drei Eckpunkte, Literatur, systematische Beprobung und radiochemische Analysen, wurde ein Migrationsmodell für Transurane entwickelt, das die Ausbreitung der Kontamination auf den Verdachtsflächen abbildet. Dazu wurde für die betreffenden Transportmechanismen in Böden ein generisches Modell mittels zellulärer Automaten nach MATLAB implementiert.

Mit Hilfe der systematischen Beprobung und des generierten Migrationsmodells konnten quantitative und qualitative Erkenntnisse über die Ausbreitung von Transuranen in Böden am Beispiel ^{241}Am abgeleitet bzw. bestätigt werden.

Abstract

The aim of this PhD-project was to obtain a better understanding in the migrational behaviour of actinoides by systematic sampling, radiochemical analysis and by developing a generic model for the migration of these radionuclides.

Systematic sampling and the following radiochemical analyses were performed on already contaminated areas, which are situated on the premises at Nuclear Engineering Seibersdorf (NES). For the migration model a dynamic approach was used to implement the concerning transport mechanisms in conjunction with a cellular automata approach (CA-approach) for the distribution in space. Therefore, results as well from the systematic sampling as from the migration model could be compared easily.

It all started in 2005, when ^{241}Am was found on that particular by a project called *Contamination Cataster of the Premises*. The modality, how the Americium contamination was spread over the area, supported the suspicion, that the emitter of that contamination is situated within the premises. Thus, a PhD-project was announced for investigating in a better understanding of the migrational behaviour of actinoides.

This PhD-project consists of three different parts. In the first part, systematic sampling on various potentially contaminated areas and analysis of the activity concentration were performed, followed by a systemating sampling in a narrow grid of two of these areas. One of them was for the horizontal spread, the second for the vertical distribution. In sum, over 300 soil samples were taken and analysed by γ -spectrometry.

In the second part radiochemical analysis concerning the most important anthropogenic radionuclides, which have no attendant gamma emission, were done: ^3H , ^{14}C , ^{90}Sr and the actinoides ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{241}Pu . The determination of the activity concentration of those, the β -emitting nuclides were analysed via Liquid Scintillation Counting (LSC), whereas the analysis of the α -emitting nuclides was performed by Alphaspectrometry. Those analyses showed a more or less constant distribution concerning the different Pu-isotopes and ^{241}Am . Therefore, a nuclide vector, with ^{241}Am as the key nuclide, could be established. Moreover, with the help of the radiochemical analyses the emission source of the pollutants could be assumed.

In the third part further literature survey of the migrational behaviour of pollutants in environmental systems was performed. Based on those pillars, literature study, systematic sampling and radiochemical analyses, a migration model for actinoides was established. This model illustrates the distribution of actinoides contamination in soils. A generic model for the relevant transport mechanisms in soil was established by a CA-approach and afterwards implemented in MATLAB.

With the help of the systematic sampling and the generic model, qualitative and quantitative knowledge about the spreading of actinoides in soils, in the special case of ^{241}Am , could be derived and confirmed.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	7
1.1	Die Entdeckung der Radioaktivität	10
1.2	Anthropogene Radionuklide	11
1.3	Freisetzung von Radionukliden	14
1.4	Anlass und Struktur der Arbeit	15
2	Transurane	17
2.1	Uran	18
2.2	Neptunium	20
2.3	Plutonium	21
2.4	Americium	23
3	Messverfahren	27
3.1	Gammaspektrometrie	28
3.2	Röntgenfluoreszenzanalyse	31
3.3	Flüssigszintillationsspektrometrie	32
3.4	Alphaspektrometrie	34
4	Orientierungsmessungen	37
4.1	Beprobungsplan	38
4.2	Beschreibung der Beprobungsverfahren	39
4.2.1	Orientierungsbeprobung PP	41
4.2.2	Orientierungsbeprobung PH, BK	41
4.2.3	Orientierungsbeprobung WAL, ZS	41
4.2.4	Orientierungsbeprobung LH1	42
4.2.5	Orientierungsmessung TOX	42
4.3	Gammaspektrometrische Analysen	42
4.4	Bewertung der Verdachtsflächen	44
5	Systematische Beprobung	47
5.1	Beprobung der Verdachtsfläche TOX	48
5.2	Beprobung der Verdachtsfläche ZS	53
6	Aufschließen der Bodenproben	57
6.1	Extraktion von ^3H und ^{14}C	58
6.2	Auslaugen der Bodenproben	60

Inhaltsverzeichnis

7	^{90}Sr-Analysen der Bodenproben	63
7.1	Pu-Analyse des Sr-Strips	65
7.2	Bestimmung der Extraktionsausbeuten	67
8	Pu-Analysen mit LSC und Alphaspektrometrie	69
8.1	Messung des Pu-Strips mittels LSC	70
8.2	Trennung von ^{238}Pu und $^{239+240}\text{Pu}$	73
8.3	Auslaugen der Proben in Flusssäure	74
9	Erstellen von Nuklidvektoren	77
9.1	Nuklidvektor für Bodenproben	78
9.2	Nuklidvektor für Aerosolfilter	80
10	Transport von Transuranen in Böden	83
10.1	Kurze Einführung in die Bodenkunde	84
10.2	Elementare Migrationsprozesse	85
10.3	Abbau von Schadstoffen	93
10.4	Zweitrangige Migrationsprozesse	95
11	Einführung in die Modellbildung	97
11.1	Umweltmodelle	99
11.2	Entwicklung eines Radiologischen Modells	102
11.3	Unsicherheiten in den Modellvorhersagen	103
11.4	Modellierungswerkzeug für die Migrationsgleichung	104
11.4.1	CA - Zelluläre Automaten	105
11.4.2	CA als Approximation einer PDE	107
12	Modellierung der Migrationsgleichung	111
12.1	Implementierung in MATLAB	116
12.2	Erstellen eines User Interfaces	122
13	Vergleich des Migrationsmodells mit Verdachtsfläche TOX	125
14	Zusammenfassung	133
	Appendices	135
	Anhang A: Standortlageplan	137
	Anhang B: Auswertungen der radiochemischen Analysen	139
	Anahng C: MATLAB- Source Code	145

Abbildungsverzeichnis

1.1	Zum radiologischen Hintergrund	10
1.2	Kuriose Anwendungen der Radioaktivität	11
1.3	Zum natürlichen Strahlungshintergrund	15
2.1	Herstellung von Transuranen am Beispiel ^{239}Pu	18
3.1	Wellenlängendispersive RFA	32
3.2	Aufbau und Funktion der Flüssigszintillation	33
3.3	Aufbau des Oberflächensperrschichtdetektors	35
3.4	Prinzip des Oberflächensperrschichtdetektors	36
4.1	Illustration der definierten Verdachtsflächen um die Fundorte	38
4.2	Spektrum einer Bodenprobe mit Geenie-2000	43
4.3	Zur Bewertung der ermittelten Verdachtsflächen	44
5.1	Beprobungsraster auf Verdachtsfläche TOX	49
5.2	Illustration der Probennahme	49
5.3	Illustration der Beprobung der Proben TOX1-TOX50	50
5.4	Dichtekorrekturfaktoren für 1000ml Marinellibecher	51
5.5	Verteilung der Aktivitätskonzentration auf der Verdachtsfläche TOX	52
5.6	Ein Ausschnitt der Aktivitätskonzentration auf der Verdachtsfläche TOX	52
5.7	Tiefenprofil auf der Verdachtsfläche ZS	54
6.1	Schematische Darstellung für die Extraktion von ^3H und ^{14}C	59
7.1	Schematische Darstellung des Trennverfahrens für ^{90}Sr	64
7.2	^{90}Sr -Strip der Proben versus ^{90}Sr -Standard	65
8.1	Schematische Darstellung des Trennverfahrens für Plutonium	70
8.2	LSC-Spektren der Proben RAD1, RAD2, RAD3	71
9.1	Regressionsgeraden für ^{241}Pu und $^{\alpha}\text{Pu}$ -Isotope	80
9.2	Regressionsgeraden für alle beteiligten Pu-Isotope	81
10.1	Der Stellenwert gegenüber der detaillierten Kemtnis	87
10.2	Prinzip der Diffusion	88
10.3	Prinzip der Advektion	88
10.4	Sorption von Transuranen an der Bodenmatrix	91

Abbildungsverzeichnis

11.1	Die Interaktionen der einzelnen Compartments im Modell zu einander	101
11.2	Schema einer Modellentwicklung	102
11.3	Transkription: Zustand der Zelle und der Nachbarschaft	107
11.4	Nachbarschaftskonfigurationen im Eindimensionalen	108
11.5	Nachbarschaftskonfigurationen im Zweidimensionalen	108
12.1	Diskretisierung von Diffusion und Konvektion	113
12.2	Schematischer Aufbau des Migrationsmodells	116
12.3	Ausbreitung einer Punktquelle durch Diffusion	117
12.4	Die Ausbreitung von ^{241}A auf Matrix <i>Boden</i>	118
12.5	Ausbreitung durch Konvektion	120
12.6	Das GUI für das Migrationsmodell	123
13.1	Die ^{241}Am -Konzentration erreicht nach etwa 80 Jahren ihr Maximum	126
13.2	Die Ausbreitung von ^{241}Am von 1975-2040, Szenario 1	127
13.3	Die Ausbreitung von ^{237}Np von 1975-2040	128
13.4	Die Ausbreitung von ^{241}Pu von 1975-2040, Szenario 2	129
13.5	Modellrechnung und Messdaten: ^{241}Am , 2007	129
13.6	Berechnete Ausbreitung von ^{241}Am innerhalb 25 Jahren	131
13.7	^{237}Np nach 25 Jahren	131
.1	Standortlageplan <i>Nuclear Engineering Seibersdorf</i>	137

Tabellenverzeichnis

1.1	Wichtige terrestrische Radionuklide	8
1.2	Freisetzung von Radionukliden bis 1997	13
2.1	Radiologische Eigenschaften der wichtigsten U-Isotope	19
2.2	Radiologische Eigenschaften der wichtigsten Np-Isotope	20
2.3	Radiologische Eigenschaften der wichtigsten Pu-Isotope	22
2.4	Radiologische Eigenschaften der wichtigsten Am-Isotope	24
3.1	Kalibrierstandards für die Gammaskopimetrie	30
5.1	Beprobung der Verdachtsfläche ZS	55
6.1	²⁴¹ Am-Aktivitätskonzentrationen der Erdproben.	58
6.2	Resultate aus dem Leaching der Bodenproben	61
6.3	Paralleles Auslaugen der Proben OTOX2, OTOX3 und OTOX 8	62
7.1	Einwaagen und Ergebnisse für die Erdproben der ⁹⁰ Sr Analysen	65
7.2	Ergebnisse der Pu-Analyse aufgrund der Sr-Trennung	66
8.1	Einwaagen und Ergebnisse der Pu-Analysen	72
8.2	Ergebnisse der Pu-Analysen in Bq/g	75
10.1	Zusammenstellung einiger Sorptionsisothermen	92
10.2	Typische Werte für K _d Faktoren	92
10.3	Eine Auswahl von Abbaugleichungen	93
.1	²⁴¹ Am-Aktivitätskonzentrationen der Bodenproben TOX 1-TOX 90	139
.2	²⁴¹ Am-Aktivitätskonzentrationen der Bodenproben TOX 76-TOX 165	140
.3	²⁴¹ Am-Aktivitätskonzentrationen der Bodenproben TOX 166-TOX 256	141
.4	²⁴¹ Am-Aktivitätskonzentrationen der Bodenproben TOX 257-TOX 280	142
.5	Pu-Analysen der Bodenproben mittels LSC	142
.6	Alphaspektrometrische Analysen der Aerosolfilter	143
.7	RFA-Messung der Rückstände nach Aufschluss durch Flusssäure	143
.8	Alphaspektrometrische Analysen der Bodenproben	144

Tabellenverzeichnis

1 Einleitung

Seit der Entstehung unseres Sonnensystems und damit seit der Entstehung des Planeten Erde vor etwa 4,6 Mrd. Jahren, ist unser Planet, und damit auch alles Leben auf der Erde, radioaktiver Strahlung ausgesetzt. Diese Strahlung wird durch natürlich vorkommendes radioaktives Material kosmogenen oder terrestrischen Ursprungs verursacht [1]. Natürlich vorkommende radioaktive Nuklide terrestrischen Ursprungs, die durch den Zerfall von Uran (U) oder Thorium (Th) entstehen, werden als NORM (Naturally Occuring Radioactivity Material) bezeichnet [2].

Die Erde wurde in den vergangenen 4,6 Mrd. Jahren kontinuierlich von einem Teilchenstrom aus Protonen, Neutronen, Ionen, usw. aus dem All bombardiert. Beim Auftreffen auf die Erdatmosphäre treten diese als Projektile mit den Molekülen der Atmosphäre in Wechselwirkung. Durch die verschiedensten darauf folgenden Reaktionen, vor allem durch Spallation, können Radionuklide wie ^3H (Tritium, Halbwertszeit $t_{1/2}=12,3$ Jahre), ^7Be (Beryllium, $t_{1/2}=53,3$ Tage), ^{14}C (Kohlenstoff, $t_{1/2}=5730$ Jahre) und ^{35}S (Schwefel, $t_{1/2}=87,5$ Tage) erzeugt werden [1]. Diese Radionuklide entstehen in Folge der kosmischen Strahlung und werden daher als Radionuklide kosmogenen Ursprungs bezeichnet.

Der bekannteste Vertreter Radionuklide kosmogenen Ursprungs ist ^{14}C , auch Radiocarbon genannt. Die auf ^{14}C basierende Radiocarbonmethode wird häufig zur radiometrischen Altersbestimmung von kohlenstoffhaltigen organischem Material eingesetzt. Diese Datierung beruht auf dem radioaktiven Zerfall des Kohlenstoff-Isotops ^{14}C und wird insbesondere in der Archäologie, Archäobotanik und Quartärforschung eingesetzt.

Eine weitere Gruppe natürlich vorkommender Radionuklide waren bereits in der präsolaren Wolke vorhanden, die sich später zu verdichten begann und auch unserer Galaxie ausbildete. Diese Radionuklide wurden schon vor der Entstehung unseres Sonnensystems durch die stellare Nukleosynthese gebildet und sind aufgrund ihrer langen Halbwertszeit noch nicht zerfallen [3]. Viele dieser Radionuklide sind fest in den Gerüstaufbau des Planeten verankert [4]. Die wichtigsten terrestrischen Radionuklide, von denen die ersten drei zugleich auch Ausgangsprodukte für viele weitere radioaktive Nuklide sind, sind in Tabelle 1.1 zusammengefasst. Da die in Tabelle 1.1 schon vor über 4 Milliarden Jahre vorhanden waren, müssen sie auch dementsprechende Halbwertszeiten haben, um auf der Erde noch immer nachgewiesen werden zu können [1].

Die terrestrische Strahlung wird von natürlich vorkommenden Radionukliden in den Böden, Gesteinen und in der Luft emittiert. Einige Radionuklide manifestieren sich nach Freisetzung in bestimmten Pflanzen besonders gerne, wodurch diese in den Nahrungskreislauf des Men-

1 Einleitung

Element	Nuklid	Halbwertszeit [a]
Thorium	^{232}Th	14 Mrd.
Uran	^{235}U	700 Mio.
	^{238}U	4,4 Mrd.
Kalium	^{40}K	1,3 Mrd.

Tabelle 1.1: Wichtige terrestrische Radionuklide

schen gelangen können. Als Beispiel sei hier ^{226}Ra (Radium) erwähnt, das sich bevorzugt in getrockneten Teeblättern und Paranüssen ansammelt [2].

Die Radionuklide ^{238}U und ^{232}Th sind ihrerseits wieder Ausgangspunkte für radioaktive Zerfallsreihen, und damit Ausgangspunkte für viele weitere Radionuklide, die aus diesen in weiterer Folge entstehen. Die natürliche Zerfallsreihe mit ^{238}U als Ausgangsnuklid wird *Uran-Radiumreihe*, jene mit ^{232}Th *Thoriumreihe* genannt. Das Endnuklid der *Uran-Radiumreihe* ist das stabile Blei-Isotop ^{206}Pb und ^{208}Pb für die *Thoriumreihe*. ^{235}U ist das Ausgangsnuklid für die *Uran-Actiniumreihe*, das Endnuklid ist ^{207}Pb . Schließlich gibt es noch eine vierte natürliche Zerfallsreihe, die *Neptuniumreihe*. Diese kommt bis auf den letzten Schritt in der Natur nicht mehr vor, da das langlebige, namensgebende und am Anfang stehende ^{237}Np dieser Reihe praktisch vollständig zerfallen ist, und die meisten Zwischenprodukte kurze Halbwertszeiten haben [5], [6]. Nur das letzte Radionuklid dieser Reihe, Wismut, ^{209}Bi , ist wegen seiner extrem langen Halbwertszeit noch vorhanden und wurde wegen seiner langen Halbwertszeit bis 2003 als Endnuklid gehalten. Mit einer Halbwertszeit von 19 Trillionen Jahre zerfällt es schließlich zu Thallium, ^{205}Tl .

Aus einer gewissen Menge an Mutternukliden bildet sich durch den radioaktiven Zerfall ein Gemisch an Mutter- und Tochternukliden, die im Weiteren den entsprechenden Zerfallsreihen folgen, bis alle Transformationen zum stabilen Endnuklid stattgefunden haben. In diesem Gemisch sind Nuklide mit kurzer Halbwertszeit nur in geringer Menge vorhanden, während solche mit längerer Halbwertszeit sich entsprechend stärker ansammeln. Ein radioaktives Mutternuklid, wie z.B. ^{232}Th , zerfällt in sein radioaktives Tochternuklid ^{228}Ra und dieses zerfällt weiter in das radioaktive Enkelnuklid ^{228}Ac , usw., bis am Ende das stabile ^{206}Pb übrig bleibt. Die einzelnen Zwischenstationen einer jeden Zerfallsreihe entnehme man einer Nuklidkarte, etwa [6].

^{238}U ist ein allgegenwärtiges Radionuklid, das in den meisten ökologischen Umgebungen, vor allem in Gesteinsformationen, vorkommt. Einige Tochterprodukte von ^{238}U können in die Nahrungskette aufgenommen werden und damit einen wesentlichen Beitrag zur menschlichen Strahlenbelastung liefern. Eines der bedeutendsten Radionuklide der ^{238}U -Zerfallskette ist ^{226}Ra (Radium). Alles ^{226}Ra , das sich auf der gesamten Erde befindet, ist, nach einigen Zwischenschritten, durch den radioaktiven Zerfall von ^{238}U entstanden.

^{226}Ra zerfällt zu einem radioaktivem Edelgas, ^{222}Rn , das den größten Beitrag zur allgemeinen Strahlenbelastung der Menschen liefert. Die möglichen Folgen einer Inhalation hat als erster Philippus Theophrastus Aureolus Bombastus von Hohenheim, genannt Paracelsus, in seinem Werk, *Von der Bergsucht oder Bergkranckheiten*, beschrieben. Als Edelgas kann ^{222}Rn die Gesteinsformation, in der es zuvor als Feststoff in der Matrix integriert war, verlassen.

In der Natur selbst oder in belüfteten Räumen stellt Radon kaum ein Problem dar. Ganz anders verhält es sich in ungelüfteten Kellern und besonders in schlecht belüfteten Stollen in Bergwerken, wo die Strahlenbelastung durch Radon erheblich größer ist. Radon und seine radioaktiven Töchter können durch Inhalation Lungenkrebs auslösen, eine Krankheit, die bereits Paracelsus als Schneeberger Krankheit, beschrieben hat.

^{232}Th ist das Mutternuklid der zweiten, bedeutenden Zerfallskette, und kommt, genauso wie U, hauptsächlich in den Gesteinsformationen vor, die die Erdkruste bilden. Th wird häufig in monazithaltigen Mineralsänden gefunden [1].

Ein weit verbreitetes Radionuklid ist ^{40}K , das zu etwa 0,012% in natürlich vorkommendem Kalium enthalten ist. Für Lebewesen und Pflanzen ist Kalium ein essentielles Element, daher ist auch ^{40}K in Lebewesen und Pflanzen fix eingebaut. Daher erfahren Mensch und Tier eine gewisse Strahlendosis durch im Körper eingebautes ^{40}K ab [1]. Die durch K verursachte Aktivität hängt hauptsächlich von Geschlecht und Alter ab und beträgt bei einem erwachsenen Menschen zwischen 3000 und 5000 Bq. Etwa 10% der natürlichen Strahlenbelastung wird durch körpereigenes ^{40}K verursacht [7].

^{235}U , das Mutternuklid der 3. Zerfallsreihe und einige andere terrestrische Radionuklide, wie ^{87}Rb (Rubidium, $t_{1/2}=4,7 \cdot 10^{10}$ Jahre), sind verglichen mit den zuvor beschriebenen, von radiologisch geringerer Bedeutung [4].

Durch die natürlich vorkommenden Radionuklide wird auf der Erde ein natürlicher Strahlungshintergrund gebildet, der neben der Gesteinszusammensetzung von geographischer Breite und Höhe abhängig ist. Die natürlichen Strahlungsquellen stellen den größten Beitrag zur Gesamtdosis der Bevölkerung dar und betragen in Österreich zwischen 3 und 5 mSv/a.

1 Einleitung

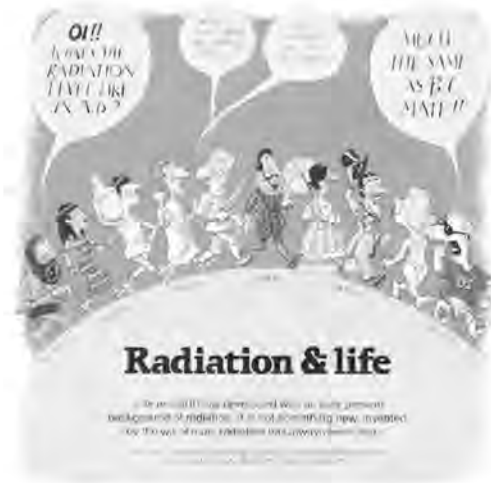


Abbildung 1.1: Zum radiologischen Hintergrund, nach [8]

1.1 Die Entdeckung der Radioaktivität

1895 entdeckte der deutsche Physiker Wilhelm Konrad Röntgen die nach ihm benannte, ionisierende Strahlung¹.

Auf diese Entdeckung erfolgte eine Welle weiterer wissenschaftlicher Entdeckungen, die auch das öffentliche Interesse mit großer Aufmerksamkeit verfolgte. Die Entdeckung der Radioaktivität erfolgte ein Jahr nach der Entdeckung der Röntgenstrahlung durch den französischen Physiker Henri Becquerel, der anhand von Uranyl-sulfat als erster die Radioaktivität erforschte. Das Ehepaar Marie und Pierre Curie entdeckten kurze Zeit später ein weiteres radioaktives Element, Thorium. Später gelang es Marie Curie auch, die Elemente Radium und Polonium aus der St. Joachimsthaler Pechblende zu extrahieren. 1903 erhielt das Ehepaar Curie gemeinsam mit Henri Becquerel den Nobelpreis.

1899 wurde von Ernest Rutherford die α -Strahlung, 1900 von Paul Ulrich Villard die γ -Strahlung entdeckt. 1903 wurden schließlich von Ernest Rutherford und Frederick Soddy die Zerfallsgesetze aufgestellt. Das erste künstliche Radionuklid, Technetium, wurde gegen 1940 hergestellt [1].

Die Entdeckung der Radioaktivität wurde von der Bevölkerung mit großem Interesse aufgenommen. Bald nach den Entdeckungen der radioaktiven Elemente Radium und Thorium kursierten bereits einige kuriose Modeerscheinungen. Vor allem in den 1920er Jahren wurden Radium und

¹Radioaktive Strahlung, also α -, β -, γ -, Neutronen- oder Röntgenstrahlung, wird auch als ionisierende Strahlung bezeichnet, da diese Strahlung die Fähigkeit hat, Atome und Moleküle ihrer Wechselwirkungspartner zu ionisieren.

1.2 Anthropogene Radionuklide

Thoriumprodukte als Allheilmittel gegen alle Gebrechen von Rheumatismus, Schlaflosigkeit, Nervenleiden, Gicht bis hin zu Impotenz empfohlen. Viele Alltagsprodukte wurden vorbeugend mit Radium- oder Thorium-hältigem Wasser angereichert. So wurde in manchen Bäckereien Brot mit Radiumwasser aus St. Joachimsthal gebacken oder Kosmetika mit Radium für einen strahlenden Teint angepriesen. Abbildung 1.2 zeigt die Verpackung eines Brotes, das mit Joachimsthaler Radonwasser gebacken, und eine Zahnpasta, die für das strahlende Lächeln mit Radium angereichert wurden [9].



Abbildung 1.2: Kuriose Anwendungen der Radioaktivität

Eine seriösere Anwendung der Radioaktivität war die Erfindung der Leuchtziffern, ursprünglich für die Armbanduhren für Piloten während des 2. Weltkriegs. Da sie bei Angriffen oft abgedunkelt fliegen mussten, waren Uhrzeiger, die im Dunkeln leuchteten, eine große Erleichterung bei Einsätzen. Auf die Uhrzeiger wurde eine mit Radium versetzte Leuchtfarbe aufgebracht, wozu während des 2. Weltkriegs hunderte junge Frauen in Akkordarbeit die Farbe händisch auf die Zeiger auftrugen. Um ein punktgenaues Auftragen der Farbe zu erwirken, spitzten sie immer wieder den Pinsel mit ihren Lippen, wodurch sie teils beträchtliche Mengen an Radium inkorporierten [1].

1.2 Anthropogene Radionuklide

Das natürliche radioaktive Inventar unserer Erde wurde seit dem letzten Jahrhundert um einen weiteren Beitrag, den der Mensch verursacht hat, erhöht. Diese Erhöhung liegt zum Teil an der Freisetzung bereits vorhandener natürlicher Radionuklide in das nähere Umfeld des Menschen, etwa durch Bergbau. Zusätzlich zum vermehrten Freisetzen natürlicher Radionuklide wurde auch eine Reihe neuartiger Radionuklide geschaffen, die entweder in Kernanlagen oder nach Detonation von Nuklearwaffen entstanden sind. Beide Anwendungen, Erzeugung von Radionukliden in Kernanlagen und durch Atomwaffen, haben zur Erhöhung des Strahlungshintergrunds beigetragen [1].

1 Einleitung

Gegen Ende des 2. Weltkriegs wurden erstmals künstlich erzeugte Radionuklide in die Umwelt eingebracht. Mit der Detonation des ersten Atomwaffentests am 16. Juli 1945 bei Trinity, New Mexico, wurde das Atomzeitalter eingeleitet. Bis der Atomwaffensperrvertrag 1963 unterzeichnet wurde, wurden teils exotische, teils aber auch bedenkliche Radionuklide in die obere Atmosphäre gebracht. Von dort aus konnten sie sich über die gesamte Erdhalbkugel verteilen und durch Niederschläge wieder zu Boden und in die Vegetation gebracht werden.

Zu den bedenklichen Radionukliden, die durch Atomwaffentests freigesetzt wurden, zählen vor allem ^{137}Cs (Cäsium), ^{90}Sr (Strontium) und ^{239}Pu (Plutonium). Die beiden Spaltprodukte des Urans, Cs und Sr, haben Halbwertszeiten von 30 bzw. 28 Jahren. Aufgrund der langen Halbwertszeiten dieser Radionuklide kann in der Umwelt, und damit auch am Menschen für mehrere Dekaden Schaden zugefügt werden. Aber auch Plutoniumisotope, hauptsächlich ^{239}Pu , wurden bei den diversen Atomwaffentests in der Atmosphäre freigesetzt. Die meisten Pu-Isotope haben zwar eine viel längere Halbwertszeit als Cs oder Sr, aber als α -Strahler sind sie besonders im Fall einer Inhalation durch ein Individuum von besonderem Interesse. Das etwas kurzlebige Pu-Isotop ^{241}Pu ist hingegen ein β -Strahler.

Eine Freisetzung von anthropogenen Radionukliden wurde also zum Teil durch atmosphärische Nuklearwaffentests verursacht, aber auch die beiden Atombombenabwürfe über Hiroshima (^{235}U -Bombe) und Nagasaki (^{239}Pu -Bombe) haben zum Anstieg an anthropogenen Radionukliden in der Umwelt beigetragen. Jede der beiden Bomben hatte eine Sprengladung, die etwa 20 000 Tonnen TNT (2,4,6-Trinitrotoluen) entsprechen. Aber auch durch die nachfolgenden atmosphärischen Atomwaffentests in den 1950-1960er Jahren sind erhebliche Mengen an radioaktivem Material in die Erdatmosphäre gelangt. Generell halten kleine Partikel flüchtige Radionuklide, wie Radiocäsium ^{137}Cs ($t_{1/2}=30,17$ Jahre), Radiostrontium ^{90}Sr ($t_{1/2}=28,5$ Jahre) und Radiojod ^{129}I (Jod, $t_{1/2}=1,6 \cdot 10^7$), die in der Atmosphäre tausende Kilometer zurücklegen können, bevor sie zur Erde zurückkehren. Größere Partikel, die Radionuklide wie ^{54}Mn (Mangan, $t_{1/2}=312$ Tage), ^{65}Zn (Zink, $t_{1/2}=244$ Tage), ^{95}Zr (Zirkon, $t_{1/2}=64$ Tage) und $^{103/106}\text{Ru}$ (Ruthenium, $t_{1/2}=39,4$ Tage / 368 Tage) halten, werden gravimetrisch angezogen und kehren als lokaler fall-out in einem Umkreis von etwa 100 km wieder zur Erde zurück [1], [4].

In den frühen 1960er Jahren, am Höhepunkt der Atomwaffentests, war die Aktivität von ^{14}C in der oberen Atmosphäre etwa doppelt so groß wie jene, die durch kosmogene Reaktionen erzeugt wurde. Auch die Menge an ^{137}Cs , die während der Atombombentests in die Atmosphäre ausgelassen wurde, war um etwa 20 Größenordnungen höher als jener Anteil, der durch den Unfall von Chernobyl verursacht wurde [1].

Weitere wichtige Quellen anthropogener Radionuklide sind Kernkraftwerke und Wiederaufbereitungsanlagen. Während des normalen Reaktorbetriebs einer Kernanlage werden sehr geringe Mengen an radioaktivem Material abgeführt. Im Reaktorkern entstehen aufgrund der Fission radioaktive Spaltprodukte und Aktivierungsprodukte von Brennelementhüllen bzw. vom Konstruktionsmaterial. Das Kühlmedium, das den Kern umgibt wird durch Spalt- und Aktivierungsprodukte, die durch defekte oder korrodierte Brennelementhüllen hindurch diffundieren

1.2 Anthropogene Radionuklide

komten, kontaminiert. Das Kühlmaterial muss daher immer wieder ersetzt und radioaktives Material ausgefällt und anschließend klassifiziert werden. Alle Reaktoren haben strenge Sicherheitssysteme, um Emissionen von radioaktivem Material möglichst gering zu halten. Tabelle 1.2 gibt die geschätzten Totalabgaben von Kernkraftwerken (KKW) nuklidspezifisch aufgeschlüsselt an. Die Daten für diese Aufstellung wurden bis einschließlich 1997 berücksichtigt [2].

Nuklid	Freisetzung (TBq) (KKW)	Freisetzung (TBq) WAA - gasförmig.	Freisetzung (TBq) WAA - flüssig
Edelgase (Ar)	922 440
^3H	268 510	10 852	126 012
^{14}C	1985	589	242
^{85}Kr	...	3 246 000	...
^{90}Sr	6620
^{106}Ru	14 800
^{129}I	...	0,92	14,9
^{131}I	46	5	...
^{137}Cs	...	4,4	41 903
Partikel	122
Liquids	838

Tabelle 1.2: Freisetzung von Radionukliden bis 1997

Nukleares Brennmaterial wird nach dem Abbrennen in Wiederaufbereitungsanlagen, wie in Sellafield, U.K., oder Cap de la Hague, Frankreich, bearbeitet. Dabei soll Uran und aufgebrites Plutonium zurück gewonnen werden. Der Wiederaufbereitungsprozess ist allerdings sehr komplex, und es werden immer wieder Bedenken über eine mögliche Nutzung von ^{239}Pu für militärische Zwecke geäußert. Auch die Freisetzungen von den wichtigsten Radionukliden aus Wiederaufbereitungsanlagen ist in den letzten beiden Spalten in Tabelle 1.2 zusammengefasst [1].

Es gibt noch eine kleine Anzahl weiterer anthropogen erzeugter Radionuklide mit meist sehr kurzen Halbwertszeiten, die als Tracermaterial in der medizinischen Diagnostik oder in der Radiotherapie eingesetzt werden. Diese Radionuklide werden hauptsächlich in Beschleunigeranlagen erzeugt. Zu diesen zählen ^{99m}Tc (Technetium, $t_{1/2}=6$ Stunden), ^{131}I , ^{51}Cr (Chrom, $t_{1/2}=27,7$ Tage), ^{54}Mn und ^{60}Co (Kobalt, $t_{1/2}=5,3$ Jahre) [4], [6].

Die Nutzung der künstlich geschaffenen Radionuklide hat viele Vorteile, man denke etwa an die Energiegewinnung, die radiologische Diagnostik in der Medizin, die Strahlentherapie bei vielen Krebserkrankungen. Aber auch viele technische Anwendungen, wie etwa die Schweißnahtprüfungen von Autobahnbrücken, gebrauchen anthropogen erschaffene Radionuklide, etwa ^{192}Ir (Iridium).

1.3 Freisetzung von Radionukliden

Die ersten Kontaminationen der Umwelt durch radioaktives Material sind bereits in der Eisenzeit erfolgt. Damals wurden die ersten Minen errichtet um Erze, die Gold, Silber, Kupfer, Eisen, Blei, etc. enthielten, gezielt abzubauen und zu verhütten, was eine Freisetzung von natürlich vorkommenden Radionukliden in den näheren Lebensraum des Menschen zu Folge hatte. So wurde in Nordskandinavien ein Anstieg der Bleikonzentrationen in den Sedimenten von Seen auf 900 n.Chr. datiert. Bis über das Mittelalter hinaus wurde daher laufend durch den Erzabbau die Bleikonzentration in der Umwelt angehoben.

Einige Jahrhunderte später, im ausgehenden 18. Jahrhundert, setzte auch der Abbau von Uranerzen ein. Pechblende wurde abgebaut und man extrahierte die Salze des Urans, um leuchtende Farbstoffe für die Glas- und Keramikmanufakturen zu erlangen. Mit dem Abbau der Pechblende wurde die Umwelt mit weiteren natürlichen Radionukliden kontaminiert [2].

60 Jahre nach der Zündung der ersten Atombombe bewohnt die Menschheit eine Umwelt, die allgegenwärtig radioaktiv kontaminiert ist. Manche Gebiete sind von den Spaltprodukten und Aktivierungsprodukten des Fall-Outs stärker betroffen, andere weniger. Diese Fall-Out Produkte, die von Atomwaffentests, Wiederaufbereitungsanlagen oder auch vom Chernobyl-Unfall stammen, können vom Nordpol bis zur Antarktis im Boden, in Gewässern und in der Luft nachgewiesen werden. In den meisten Gebieten sind die Aktivitätskonzentrationen der Fall-Out Produkte aber extrem gering, sodass die Aktivitätskonzentrationen der natürlich vorkommenden Radionuklide dominieren.

Vor den ersten Atomwaffentests war das wissenschaftliche Interesse an Radionukliden in der Umwelt sehr gering. Seither hat sich die Sorge um die Umwelt sehr gewandelt und neben vielen anderen umweltrelevanten Wissenschaftsdisziplinen hat sich auch die Radioökologie etabliert.

Durch Nuklearwaffentests und nukleare Unfälle wurde der Lebensraum des Menschen entweder durch direkte Freisetzung von radioaktivem Material in Flüsse, etc. oder indirekt durch Emission und anschließendem Fall-Out kontaminiert. Vor allem durch den Chernobyl-Unfall waren große Teile Mitteleuropas von radioaktivem Fall-Out betroffen [10].

Die Radioökologie beschäftigt sich mit der Frage, wie sich Radionuklide in den unterschiedlichen Ökosystemen verhalten und wie sie in diesen weitertransportiert werden können. Darauf folgend sind auch die Fragestellungen von Interesse, wie Radionuklide den Nahrungskreislauf beeinflussen können, und wie sie über die verschiedensten Mechanismen schlussendlich zum Menschen gelangen. Gestützt auf viele Beobachtungen und Messdaten können Modellrechnungen erstellt werden, um für den Ernstfall auch Vorhersagen treffen zu können [11].

Abbildung 1.3 zeigt, wie künstliche Radionuklide durch verschiedene Quellen in die Umwelt eingebracht werden. Ab Deposition in ein Ökosystem können sie über verschiedenste Wege weiter verbreitet werden. Außerdem muss bedacht werden, welche Auswirkungen sie auf den menschlichen Organismus haben können.

1.4 Anlass und Struktur der Arbeit



Abbildung 1.3: Zum natürlichen Strahlungshintergrund

So werden Radionuklide in die Atmosphäre oder ins Meerwasser eingebracht, wodurch sie in den jeweiligen Medien weite Strecken mittransportiert werden können, bis sie schließlich ihren Weg auch in die terrestrische Umwelt finden. Sobald terrestrische Ökosysteme durch künstliche Radionuklide kontaminiert werden, ist deren Verweilzeit und damit deren umweltbedingte Auswirkung eine Funktion der physikalischen Halbwertszeit des betreffenden Radionuklids, der chemischen Eigenschaft des betreffenden Elements und der Umgebungsbedingungen.

1.4 Anlass und Struktur der Arbeit

2005 starteten die ARC Austrian Research Centers am Standort Seibersdorf das Projekt *Geländekontaminationskataster*. Alle freiliegenden Flächen wie Straßen, Wiesenflächen und Äcker wurden mit einem fahrenden Proportionalzählrohr hinsichtlich einer etwaigen radioaktiven Kontamination abgefahren und gemessen [12], [13].

Dieses Projekt war im Anschluss an die Dekommissionierung des ASTRA-Reaktors (**A**dapted **S**wimming **T**ank **R**eaktor **A**ustria) ins Leben gerufen worden um sicher zu gehen, dass keinerlei Emissionen aus dem vormaligen Reaktorbetrieb oder aus den in Verbindung mit dem Reaktorbetrieb stehenden isotopentechnischen Anwendungen am Gelände vorhanden sind.

1 Einleitung

Bei den Messungen entlang des Betriebsgeländes für die Aufbereitung radioaktiver Stoffe (NA), wurde immer wieder ^{241}Am in der Größenordnung von mehreren hundert mBq/g aufgefunden. Bevorzugt schien es sich in den Straßengräben aufzuhalten bzw. zu sammeln. Eine mögliche Vermutung bestand darin, dass ^{241}Am auf den Asphaltstraßen deponiert und anschließend mit den nachfolgenden Regenfällen in die Straßengräben gewaschen worden sei. Diese Vermutung deckt sich auch mit der Literatur, demnach Transurane ein nur sehr geringes Migrationsverhalten aufweisen.

Um in den beschriebenen Sachverhalt etwas mehr Klarheit zu schaffen, wurde von der Nuclear Engineering Seibersdorf (NES) ein Dissertationsprojekt ausgeschrieben, um mittels eines generischen Modells das Migrationsverhalten von Transuranelementen abbilden zu können.

Dazu sollte neben einer umfangreichen Beprobungsstrategie nach IAEA-Richtlinien und detaillierten radiochemischen Analysen ein Migrationsmodell erstellt werden. Dieses sollte die nuklidspezifische Aktivitätskonzentration von Transuranen im Boden als eine Funktion der Zeit ab der Deposition ermitteln, wobei aber auch die örtliche Topographie mitberücksichtigt werden sollte.

Mit der vorliegenden Arbeit soll das Migrationsverhalten von Transuranelementen besser verstanden werden können. Dazu soll dem Problem auf unterschiedliche Arten entgegengetreten werden, somit ist auch diese Dissertation in drei Teile gegliedert.

Im ersten Teil (Kapitel 3-5) werden anhand der im Vorfeld durchgeführten Messungen verschiedene Verdachtsflächen aufgespürt und anschließend bewertet. Zwei dieser Verdachtsflächen wurden für eine umfangreiche gammaspektrometrische Untersuchung ausgewählt und systematisch beprobt. Anhand dieser Messungen konnten die Ausbreitungen am Beispiel ^{241}Am , das mit dem Gammaskontrometer gut zu erfassen ist, bereits eindrucksvoll illustriert werden.

Im zweiten Teil (Kapitel 6-9) wurden ausgewählte Bodenproben eingehend radiologisch untersucht. Dabei wurden die Proben ausgelaugt und mittels LSC oder Alphaspektrometrie hinsichtlich ^3H , ^{14}C , ^{90}Sr , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ und ^{241}Pu ausgewertet. Obwohl für die radiochemische Untersuchung primär nur die Pu-Isotope von Bedeutung waren, wurden einige Bodenproben auch auf die anderen drei Radionuklide analysiert um etwaige Zusammenhänge aufzeigen zu können. Mit Hilfe der radiochemischen Analyse konnte ein Nuklidvektor für die Bodenproben erstellt werden.

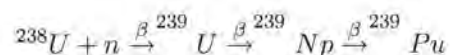
Im dritten Teil der Arbeit (Kapitel 10-12) wurde, gestützt auf die Ergebnisse aus den ersten beiden Teilen und umfassenden Literaturstudien, ein Migrationsmodell für Transurane erstellt. Anhand der eingehenden systematischen Beprobungen und des generischen Modells konnten die in der Literatur beschriebenen Eigenschaften des Migrationsverhaltens für Transurane bestätigt werden.

2 Transurane

Als Transurane werden jene Elemente bezeichnet, die eine höhere Ordnungszahl als Uran (92) haben. Sie sind im Periodensystem der Elemente demnach rechts des Elements Uran aufgereiht. Die Reihe der Transurane beginnt mit dem Element Neptunium (93), gefolgt von Plutonium (94) Americium (95), Curium (96), Berkelium (97), Californium (98), Einsteinium (99), Fermium (100), Mendeleevium (101), Nobelium (102) und Lawrencium (103). Transuranelemente besitzen keine stabilen Isotope, daher sind alle Transuranelemente radioaktiv. Zusammen mit den natürlich vorkommenden Elementen Thorium (90), Protactinium (91) und Uran zählen sie auch zur Gruppe der Actinoide. Alle Elemente mit höheren Ordnungszahlen (ab $Z = 104$) werden als Transactinoide bezeichnet¹ [14].

Wenn auf der Erde Transurane jemals natürlich vorgekommen sein sollten, so sind sie mittlerweile, mit der Ausnahme von ^{244}Pu (Plutonium), aufgrund ihrer geologisch kurzen Halbwertszeiten, bereits zerfallen, bzw. nur mehr in sehr geringen Spuren vorhanden. Die meisten Transuranelemente wurden in der Arbeitsgruppe um Glenn T. Seabourg künstlich hergestellt und charakterisiert [15].

Technisch können Transurane aus Uran oder einem anderen Element mit hoher Ordnungszahl hergestellt werden. Dazu werden diese als Targets in Kernreaktoren oder Teilchenbeschleunigern mit Neutronen oder anderen Teilchen beschossen. Die Projektile werden zunächst vom Ausgangselement aufgenommen. Aufgrund der Kernreaktion befindet sich der neu entstandene Atomkern in einem hoch angeregten Zustand. Je nach Halbwertszeit des neu geschaffenen Nuklids folgt die Abgabe der überschüssigen Energie, meist durch Emission eines β -Teilchens. Dadurch wird die Ordnungszahl um 1 erhöht, es entsteht ein neues Element. Dieser Prozess wird anhand von ^{239}Pu illustriert (Abbildung 2.1) [15]:



Bei einer äußeren Exposition durch Transuranelemente ist mit keiner Gesundheitsgefährdung zu rechnen. Transurane sind hauptsächlich α - oder β -Emitter, nur ^{241}Am wird von einer sehr niederenergetischen γ -Strahlung begleitet. Alphateilchen haben eine sehr geringe Reichweite. Sie können bereits durch ein Blatt Papier vollständig abgeschirmt werden und somit die Haut des menschlichen Körpers nicht durchdringen. Betateilchen haben eine etwas größere Reichweite, können aber ebenfalls bereits durch Karton oder Aluminium abgeschirmt werden. Auch

¹Dazu gehören Rutherfordium (104), Dubium (105), Seaborgium (106), Bohrium (107), Hassium (108), Meitnerium (109), Darmstadtium (110) und Roentgenium (111).

2 Transurane

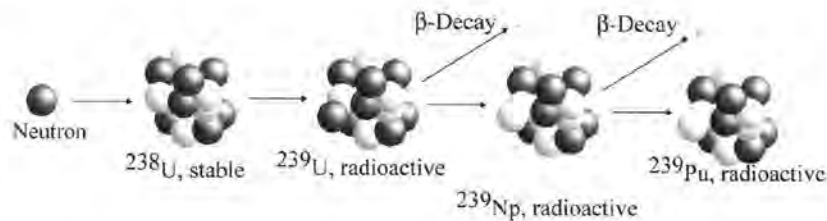


Abbildung 2.1: Herstellung von Transuranen am Beispiel ^{239}Pu

Betastrahlung kann bei äußerer Exposition nicht in das Innere des Körpers und somit zu den Organen vordringen. Allerdings ist bei Exposition durch Betastrahlung mit einer Gefährdung der Haut und der Augenlinse zu rechnen.

Aufgrund der guten Abschirmbarkeit ist die äußere Exposition durch Transurane mehr oder weniger vernachlässigbar. Die innere Exposition, in Folge einer Inkorporation² hingegen, ist für den Strahlenschutz von zentraler Bedeutung. Die Bedeutung ist etwa analog zu den natürlichen Radionukliden Ra und Th. Transurane und die letztgenannten Nuklide haben sehr große biologische Halbwertszeiten, sodass sie, einmal in den Organismus gelangt, dort auch bleiben. Außerdem sind Transurane, wie alle Schwermetalle, giftig [15].

Im Folgenden wird auf jene Transuranelemente, die für diese Arbeit von Bedeutung sind, näher eingegangen.

2.1 Uran

Das erste Element, auf das in dieser Arbeit näher eingegangen wird, zählt streng genommen nicht zu den Transuranelementen. Dennoch ist es für die Generierung des mathematischen Migrationsmodells von Bedeutung, da ein sehr langlebiges Uranisotop das Ende einer der Transuranzerfallsketten im Modell selbst darstellt.

Uran ist ein natürliches, radioaktives Element, das in sehr geringen Konzentrationen, im ppm Bereich, in Böden, Gesteinen und Grundwasser vorkommt. In seiner Reinstform ist Uran ein silberfarbenes Schwermetall, das fast die doppelte Dichte von Blei hat. Uran hat die Ordnungszahl 92 und bei seinem häufigsten natürlich vorkommendem Isotop ein Atomgewicht, sprich Nukleonenzahl, von 238³ [16].

²Radionuklide können durch Inhalation, Ingestion oder auch durch Kontamination von offenen Wunden inkorporiert werden.

³Als Nukleonenzahl wird die Summe aus Protonen und Neutronen im Atomkern bezeichnet. Jedes Atom, das 92 Protonen enthält ist per Definition ein Uranelement, die Neutronenzahl kann aber von 126 bis 150 variieren [6].

2.1 Uran

Für Uran sind 22 Isotope und 3 Kernisomere bekannt. In einer typischen Probe natürlich vorkommenden Uran befinden sich etwa 99,27 % ^{238}U , 0,72 % ^{235}U und 0,0055 % ^{234}U [6]. Natürlich vorkommende Uran-Isotope haben sehr lange Halbwertszeiten, die gemeinsam mit den anthropogen erzeugten Uranisotopen in Tabelle 2.1 zusammengefasst sind.

Isotop	HWZ [a]	Zerfallsart	Tochter	E(α) [MeV]	E(γ) [keV]
^{232}U	72	α	^{228}Th	5,3	2,2
^{233}U	160000	α	^{229}Th	4,8	1,3
^{234}U	240000	α	^{230}Th	4,8	1,7
^{235}U	700 Mio.	α	^{231}Th	4,4	160
^{236}U	23 Mio.	α	^{232}Th	4,5	1,6
^{238}U	4,5 Mrd.	α	^{234}Th	4,2	1,4

Tabelle 2.1: Radiologische Eigenschaften der wichtigsten U-Isotope

Aufgrund der langen Halbwertszeiten der natürlich vorkommenden Uranisotope sind diese auf der Erde immer noch präsent. Die Isotope ^{232}U , ^{233}U und ^{236}U kommen in der Natur nicht vor, können aber durch Nukleartransformationen erzeugt werden und sind ebenfalls α -Emitter.

In natürlichen Lagerstätten kommt Uran meist als Oxid, U_3O_8 vor. Es gibt aber auch Zusammensetzungen mit anderen Oxiden, wie UO_2 und UO_3 , oder auch Fluoride, Karbonate, Carbide, Vanadine und Phosphate. Der natürliche Transport von Uran in der Umwelt ist stark durch seine chemischen Eigenschaften bestimmt. Uran hat eine gewisse Mobilität, aber auch ein stark ausgeprägtes Sorptionsverhalten. Außerdem kann sich Uran in manchen Pflanzen und Meeresorganismen ansammeln [16].

Vor etwa 150 Jahren wurden Uranerze in der Glas- und Keramikmanufaktur eingesetzt, deren orange-roten Farbtöne sich eine Zeit lang großer Beliebtheit erfreuten. In den Anfängen der Photographie wurde Uran auch zum Tönen der Abzüge eingesetzt. Damals war die Radioaktivität selbst noch nicht bekannt, und erst Mitte der 1920er Jahre wurde erstmals realisiert, dass Uran sich auch als potentielle Energiequelle einsetzen ließe [16].

Uran fungiert in Kernreaktoren einerseits durch den Spaltungsprozess als Neutronenquelle, andererseits als Targetmaterial für die Gewinnung von Plutonium. Für den Einsatz in den meisten Kernkraftwerken muss allerdings ^{238}U mit ^{235}U angereichert werden. Der Anreicherungsgrad beträgt in Kernkraftwerken etwa 3% und in Forschungsreaktoren bis zu 20%. Für den Einsatz in Nuklearwaffen beträgt der Anreicherungsgrad etwa 80% [10].

Uran emittiert neben seinen gut abschirmbaren Alparteilchen einen geringen Anteil niederenergetischer γ -Strahlung (Tabelle 2.1). Daher ist eine Exposition von außen gesundheitlich unbedenklich. Viel riskanter hingegen ist eine Inkorporation durch Ingestion oder Inhalation.

2 Transurane

Nach erfolgter Ingestion wird zwar ein Großteil des Urans, etwa 95 % in den folgenden Tagen wieder ausgeschieden und gelangt daher niemals in den Blutkreislauf. Der verbleibende Anteil wird hauptsächlich zu Knochen und Nieren transportiert. Auch aus den Nieren kann noch ein Großteil ausgeschieden werden, aber der in Knochen aufgenommene Anteil, verweilt dort für viele Jahre. Nach erfolgter Inhalation gelangt ein kleiner Anteil in die Alveolaren der Lunge, wo dieser lange Zeit verweilt, bevor er wieder in den Blutkreislauf gelangen kann. Die beiden größten gesundheitlichen Folgen liegen einerseits in einer Schädigung der Nieren in Folge der chemischen Toxizität von löslichen Uranverbindungen und andererseits in der Entstehung von Knochenkrebs aufgrund der radioaktiven Strahlung der in den Knochen eingebauten Uranisotopen [16].

2.2 Neptunium

Neptunium ist ein silberfarbenes, duktiles Schwermetall, das, analog zu Uran, etwa die doppelte Dichte von Blei hat. Es wurde nach dem Planeten Neptun, der auf den Planeten Uranus folgt, so wie die Elemente Uran und Neptunium aufeinander folgen, benannt. Neptunium wurde erstmals 1940 in einem Zyklotron an der Berkely University of California durch Beschuss von Uran mit hochenergetischen Neutronen synthetisiert [16].

Für Neptunium sind 20 Isotope und ein Kernisomer bekannt, von denen aber nur drei für den Strahlenschutz relevant sind, ^{235}Np , ^{236}Np und ^{237}Np . Die wesentlichsten Eigenschaften dieser Isotope sind in Tabelle 2.2 zusammengefasst. Die verbleibenden Np-Isotope besitzen Halbwertszeiten zwischen 45 Nanosekunden und 4,4 Tagen [6].

Isotop	HWZ [a]	Zerfallsart	Tochter	$E(\alpha)$ [MeV]	$E(\beta)$ [keV]	$E(\gamma)$ [keV]
^{235}Np	1,1	EC	^{235}U	-	10	7,1
^{236}Np	120000	β , EC	^{236}Pu , ^{236}U	-	210	140
^{237}Np	2,1 Mio.	α	^{233}Pa	4,8	-	35

Tabelle 2.2: Radiologische Eigenschaften der wichtigsten Np-Isotope

Neptunium konnte durch atmosphärische Nuklearwaffentests und anschließendem Fall-Out in die Natur gelangen. Die Aktivitätskonzentrationen im Boden sind aber allgemein sehr gering. In wässriger Lösung kann Neptunium bis zu vier Oxidationszustände ausbilden:

- Np(III), als Np^{+3} , blass-lila, analog zur Seltenen Erde Pm^{+3}
- Np(IV), als Np^{+4} , gelb-grün
- Np(V) als NpO_2^+ , blau-grün
- Np(VI), als NpO_2^{++} , blass-rosa

Außerdem kann Neptunium mit Halogeniden drei- der vierwertigen Verbindungen, wie NpF_3 , NpF_4 , NpCl_4 , NpBr_3 , NpI_3 , eingehen. In der Natur wird Neptunium hauptsächlich als Oxid wie Np_3O_8 und NpO_2 gefunden, gefolgt von verschiedenen Halogenidformen. Generell ist Neptunium ein wenig mobiler als alle anderen Transuranelemente und kann mit dem Sickerwasser auch zu tief liegenden Bodenschichten vordringen. Gleichzeitig weist aber auch Neptunium ein hohes Sorptionsverhalten gegenüber Bodenpartikeln auf und wird außerdem gerne von Pflanzen aufgenommen.

Neptunium entsteht als Nebenprodukt in der Plutoniumproduktion durch Neutroneneinfang eines Uranisotops. Verschiedene Neptuniumisotope können durch unterschiedliche Neutroneneinfangsreaktionen und verschiedener Zerfallswege erzeugt werden. Neptunium ist demnach hauptsächlich in abgebrannten Brennelementen zu finden [16].

Analog zu ^{235}U und ^{239}Pu kann in ^{237}Np eine sich selbst aufrechterhaltende Kettenreaktion erzeugt werden. Somit ist ^{237}Np als waffenfähig einzustufen, hat aber eine kritische Masse von etwa 60 kg [17]. Jedenfalls gibt es keine Hinweise, dass Neptunium jemals für die Herstellung von Nuklearwaffen eingesetzt wurde.

Neptunium kann hauptsächlich durch Ingestion oder Inhalation inkorporiert werden. Eine äußere Exposition ist vernachlässigbar. Nach Inkorporation wird das meiste Neptunium, etwa 99,5% innerhalb weniger Tage wieder ausgeschieden, der Rest gelangt in den Blutkreislauf und gelangt hauptsächlich zu den Knochen, zu einem geringen Teil aber auch in die Leber und ins Weichteilgewebe, wodurch mit einer Krebserkrankung der drei genannten Organe zu rechnen ist [16].

2.3 Plutonium

Auch Plutonium ist ein silberfarbendes radioaktives Schwermetall, das etwa die doppelte Dichte von Blei aufweist. Praktisch alles auf der Erde vorhandene Plutonium wurde innerhalb der letzten sechs Dekaden anthropogen erzeugt. Ausgenommen davon ist ein außerordentlich kleiner Anteil, der in nachfolgenden unterirdischen Nuklearreaktionen, die vor etwa 2 Mrd. Jahren in Gabon, Afrika, stattgefunden haben, erzeugt wurde.

Plutonium wurde erstmals seit den 1940er Jahren durch das *Manhattan Project* über Neutroneneinfang von Uran in großen Mengen erzeugt. Das *Manhattan Project* war die Deckbezeichnung für das Projekt, unter dem alle Tätigkeiten der USA während des Zweiten Weltkrieges zum Bau einer Atombombe ausgeführt wurden. Die Forschungsarbeiten wurden von dem amerikanischen Physiker Robert J. Oppenheimer geleitet [10].

Es sind 20 verschiedenen Plutoniumisotope bekannt, die wichtigsten sind die α -Emitter ^{238}Pu , ^{239}Pu und ^{240}Pu und dem β -Emitter ^{241}Pu . Die wichtigsten Plutoniumisotope und deren radiologischen Eigenschaften sind in Tabelle 2.3 zusammengefasst.

2 Transurane

Isotop	HWZ [a]	Zerfallsart	Tochter	E(α) [MeV]	E(β) [keV]	E(γ) [keV]
^{236}Pu	2,9	α	^{232}U	5,8	-	2,1
^{238}Pu	88	α	^{234}U	5,5	-	1,8
^{239}Pu	24000	α	^{235}U	5,1	-	-
^{240}Pu	6500	α	^{236}U	5,2	-	1,7
^{241}Pu	14	β	^{241}Am	-	5,2	-
^{242}Pu	380000	α	^{238}U	4,9	-	1,4
^{244}Pu	83 Mio.	α	^{240}U	4,6	-	1,2

Tabelle 2.3: Radiologische Eigenschaften der wichtigsten Pu-Isotope

^{241}Pu sendet ein niederenergetisches Betateilchen aus und wird dabei zu ^{241}Am umgewandelt, einem Alphastrahler mit einer Halbwertszeit von 432 Jahren.

Etwa 10000 kg Plutonium wurden durch Nuklearwaffen in den letzten Jahrzehnten in die Umwelt eingetragen, wo es hauptsächlich als Oxid vorkommt. In wässriger Lösung sind fünf verschiedene Oxidationszustände möglich:

- Pu(III) als Pu^{3+} , gedämpft hellblau
- Pu(IV) als Pu^{4+} , gelb-braun
- Pu(V) als PuO_2^+ , rosa. Allerdings ist dieses Ion instabil und zerteilt sich in Pu^{4+} und PuO_2^{2+} . Anschließend oxidiert Pu^{4+} das verbleibende PuO_2^+ zu PuO_2^{2+} und wird dabei selbst zu Pu^{3+} reduziert.
- Pu(VI) als PuO_2^{2+} , rosa-orange
- Pu(VII) als PuO_5^{2-} , dunkelrot. Dieses siebenwertige Ion ist sehr selten und nur unter extrem oxidierenden Bedingungen zu bekommen.

Plutonium reagiert sehr heftig mit Sauerstoff, wodurch die Oxide PuO und PuO_2 gebildet werden. Es reagiert aber auch mit Halogeniden und bildet PuX_3 -Verbindungen aus, wobei X für Halogenide wie Fluor, Chlor, Brom oder Iod stehen kann. Aber auch die Oxide PuF_4 und PuF_6 wurden bereits nachgewiesen [18].

In der Natur freigesetzt bilden viele Transurane gerne Verbindungen mit Sauerstoff, wie PuO_2 . Plutonium bildet aber auch Komplexe mit Karbonaten und anderen Oxoanionen (OH^- , NO_2^- , NO_3^- und SO_4^{2-}) aus. Diese geladenen Komplexe können zum Teil sehr mobil sein, allerdings ist die Affinität zur Migration im Erdboden sehr gering [18], [19]. Es sorbiert praktisch sofort nach Freisetzung an die vorherrschenden Bodenpartikel und ist demnach nur in den obersten Zentimetern zu finden. Aber auch in aquatischen Systemen sorbiert Plutonium fast sofort an den Sedimenten, und bleibt ebenfalls in den obersten Zentimetern [16].

Das wichtigste Plutoniumisotop, ^{239}Pu , wurde in den 1940er Jahren aus natürlichem Uran erbrütet. Es sollte sich als spaltbar herausstellen, sodass es bald nach seiner Entdeckung für die Herstellung von Nuklearwaffen eingesetzt wurde. Der Vorteil für den Einsatz von ^{239}Pu in atomaren Waffen, wenn das Wort *Vorteil* in diesem Zusammenhang angebracht ist, liegt in der, verglichen mit ^{235}U und ^{237}Np , geringen kritischen Masse von 10 kg, bei Einsatz eines Neutronenreflektors. Im 2. Weltkrieg wurde eine ^{239}Pu -Bombe entwickelt, der aufgrund der Bauweise eine kritische Masse von 6,2 kg ausreichte. Eine Bombe dieses Typs, *Fat Man* wurde am 9. August 1945 über Nagasaki abgeworfen⁴ [10].

Das Isotop ^{238}Pu erhitzt sich durch seinen eigenen radioaktiven Zerfall bis zur Weißglut, gibt dabei aber nur sehr geringe Mengen an Gammastrahlung ab, so dass eine dünne Abschirmung ausreicht. Daher wird ^{238}Pu in oxidiert Form, als chemisch träges Plutoniumdioxid, zur Erzeugung von elektrischer Energie in Radioisotopengeneratoren verwendet. Radioisotopengeneratoren werden von Raumsonden (z. B. Cassini, New Horizons), die ins äußere Sonnensystem fliegen, eingesetzt. Früher wurden plutoniumbetriebene Radioisotopengeneratoren auch in Erdumkreisenden Satelliten und in Herzschrittmachern eingesetzt [16].

Eine äußere Exposition durch Plutonium birgt kaum gesundheitliche Risiken, mit einer Gefährdung ist vor allem nach Inhalation von Plutonium zu rechnen. Inkorporiertes Plutonium bindet sich unter anderem an die Proteine des Blutplasmas oder lagert sich in Leber und Knochen an. Dadurch erfahren die inneren Organe eine lang anhaltende Bestrahlung, die besonders die Nieren schädigt. Aber auch Lungen- und Lymphdrüsenkrebs werden in Zusammenhang mit einer Plutoniuminkorporation häufig beobachtet. Die für einen Menschen tödliche Dosis liegt wahrscheinlich im zweistelligen Milligrammbereich, für Hunde beträgt die LD_{50} -Dosis 0,32 mg/kg [20].

2.4 Americium

Americium ist ein plastisches, silberweißes Metall, das bei Raumtemperatur langsam anläuft. Es wurde erstmals 1940 in einem Nuklearreaktor an der University of Chicago von Glenn Seaborg entdeckt. Der Entdecker gab dem neuen Element den Namen Americium, zu ehren jenes Kontinents, auf dem es entdeckt wurde. Dieser Name wurde auch in Analogie zu der Seltenen Erde Europium gewählt, das im Periodensystem der Elemente genau über Americium steht [16].

Für Americium sind 26 Isotope und Kernisomere mit Halbwertszeiten zwischen Nanosekunden und 7370 Jahren bekannt [6]. Die bekanntesten Isotope sind ^{241}Am , das Tochterprodukt von ^{241}Pu , das eine Halbwertszeit von 432,2 Jahren hat und ^{243}Am mit einer Halbwertszeit von 7370 Jahren.

⁴Der Atombombenabwurf über Hiroshima erfolgte am 6. August 1945. Diese Bombe, *Little Boy* genannt, war mit 64 kg zu 80% angereichertem ^{235}U beladen.

2 Transurane

^{241}Am entsteht durch den β -Zerfall von ^{241}Pu . Aufgrund der unterschiedlichen Halbwertszeiten dieser beiden Nuklide, 14 versus 430 Jahre, ist die Radiotoxizität des Tochternuklids viel größer als die des Mutternuklids. Weitere bedeutsame Isotope sind ^{242m}Am und ^{243}Am , deren radiologische Eigenschaften gemeinsam mit jenen von ^{241}Am in Tabelle 2.4 zusammengefasst sind. Die Halbwertszeiten der verbleibenden Isotope sind geringer als ein Tag [6].

Isotop	HWZ	Zerfallsart	Tochter	E(α) [MeV]	E(β) [keV]	E(γ) [keV]
^{241}Am	430a	α	^{237}Np	5,5	-	59
^{242m}Am	150a	IÜ	^{242}Am	0,025	44	5,1
^{242}Am	16h	β, EC	^{237}Np	-	22	55
^{243}Am	7400a	α	^{237}Np	5,3	-	55

Tabelle 2.4: Radiologische Eigenschaften der wichtigsten Am-Isotope

^{241}Am gibt mit einer Wahrscheinlichkeit von 0,035% die gesamte Zerfallsenergie mit dem α -Teilchen ab. Meist werden zusätzlich noch ein bis zwei Gammaquanten emittiert. Daher ist ^{241}Am das einzige Transuranelement, das messtechnisch vergleichsweise einfach über Gamma-spektrometrie nachweisbar ist.

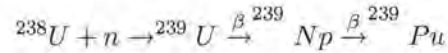
Auch Americium ist in terrestrischen und aquatischen Ökosystemen aufgrund von Nuklearwaffentests und anschließendem Fall-Out zu finden. Es zeigt in Böden ebenfalls ein ausgesprochen starkes Sorptionsverhalten. Americium ist sehr reaktionsfähig, es kann bereits mit dem in der Luft vorhandenen Sauerstoff reagieren. In Säuren ist Americium gut lösbar, während es gegenüber alkalischen Medien stabil bleibt. Americium hat in wässriger Lösung vier Oxidationsstufen:

- Am(III), als Am^{3+} , blassrot
- Am(IV), als Am^{4+} , blassrot
- Am(V), als Am^{5+} , gelb-braun
- Am(VI), als Am^{6+} , gelb-braun

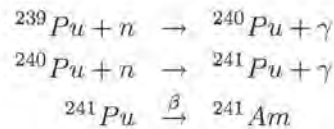
Dabei stellt Am(III) die stabilste Oxidationsstufe dar. Americium hat zwar eine analoge Elektronenkonfiguration zu Europium, allerdings kann Am^{3+} nicht mehr weiter zu Am^{2+} reduziert werden. Americiumverbindungen mit großen Oxidationszuständen, ab Am^{4+} , sind als starke Oxidationsmittel bekannt [18], [19].

2.4 Americium

Americium wird über ^{239}Pu in Kernreaktoren mit hohem ^{238}U -Anteil zwangsläufig erbrütet. Zunächst wird durch Neutroneneinfang und darauf folgenden Betazerfällen ^{239}Pu gebildet.



Wenn es nicht zu einer Kernspaltung kommt, kann durch stufenweisen weiteren Neutroneneinfang und anschließendem Betazerfall, ausgehend von ^{239}Pu , Americium erbrütet werden.



^{241}Am wird als Strahlenquelle in der Fluoreszenzspektroskopie und in Ionisationsrauchmeldern eingesetzt. Aufgrund seiner wesentlich längeren Halbwertszeit bei nur geringfügig stärkerer Strahlung als ^{238}Pu , wurde ^{241}Am auch zur Befüllung von Radioisotopengeneratoren vorgeschlagen. Dadurch könnten Raumsonden hunderte Jahre im All unterwegs sein [16].

^{241}Am wird auch in tragbaren Gammadiagnostikgeräten verwendet, genauso wie als Targetmaterial für die Produktion von schwereren Elementen in Kernreaktoren oder Teilchenbeschleunigern. Auch eine weit verbreitete Neutronenquelle besteht aus einer Americium-Beryllium Verbindung. ^{241}Am emittiert ein α -Teilchen, das sofort von ^9Be absorbiert wird, woraufhin ^{12}C (Kohlenstoff) und ein freies Neutron geschaffen werden. ^{242}Am wurde wegen seiner geringen kritischen Masse als Spaltmaterial für den Kernenergieantrieb von Raumschiffen vorgeschlagen [10].

Wie bei Neptunium ist die äußere Exposition vernachlässigbar und nur etwa 0,5% des inkorporierten Americiums können in den Blutkreislauf gelangen. Dieser Anteil verteilt sich gleichmäßig auf Leber und Knochen. Auch hier ist wieder mit einer schweren Erkrankung dieser Organe zu rechnen.

2 Transurane

3 Messverfahren

Umweltproben, die radiologisch bewertet werden sollen, können einerseits hinsichtlich ihrer Spurenelemente (Messung mit RFA, NAA) analysiert oder auch nach etwaigen Radionukliden (Messung mit Gammaskpektrometrie, Alphaspektrometrie oder LSC) untersucht werden [21].

In beiden Fällen bedient man sich gerne so genannter spektrometrischer Methoden. Dabei wird eine Probe anhand der elektromagnetischen Strahlung (z.B. Photonen, Phononen, etc.) oder Teilchenstrahlung, die von den Molekülen oder Atomen der Probe, emittiert, absorbiert oder gestreut werden, analysiert. Licht- und Materieteilchen fungieren dabei als Boten aus dem Atom bzw. aus dem Molekül. Da in dieser Arbeit aber nicht mit der Molekülspektrometrie gearbeitet wurde, sei sie hier nur mit einem Stellvertreter, z.B. der Infrarotspektrometrie, erwähnt.

Photonen, die wesentlichsten Vertreter der oben genannten Teilchen, haben einen sehr breiten Spektralbereich, der bei den langwelligen Radiowellen beginnt und sich bis hin zu der sehr kurzwelligen Gammastrahlung erstreckt. Durch die Detektion der Photonenstrahlung können die mitgetragenen Informationen aus dem Atom- bzw. Kerninneren analysiert werden. Aber auch Teilchenstrahlen, z.B. α - oder β -Teilchen, können mit spektrometrischen Methoden analysiert werden. Der wesentliche Vorteil der Spektrometrie liegt darin, dass Elemente, Spurenelemente, aber auch Radionuklide, im Allgemeinen sowohl qualitativ als auch quantitativ bestimmt werden können.

Fast alle spektrometrischen Methoden haben gemeinsam, dass die von den Radionukliden bzw. Atomen emittierten Photonen mit Hilfe von Detektoren gemessen werden. Anschließend wird in einem Diagramm die Impulshöhe in Abhängigkeit der ausgesandten Energie dargestellt. Diese Abbildung wird Spektrum genannt und kann sowohl qualitativ, also nuklidspezifisch, als auch quantitativ, also in der Konzentration eines bestimmten Nuklids, ausgewertet werden.

Soll eine (inaktive) Probe hinsichtlich Haupt-, Neben- und Spurenelementen analysiert werden, müssen die in der Probe enthaltenen Atome oder Teilchen zuerst angeregt werden. In diesem angeregten Zustand können diese Teilchen aber nicht lange bleiben und kehren wieder in den Grundzustand zurück. Die überschüssige Energie, die dabei abgegeben wird, ist für das jeweilige Atom charakteristisch und kann mit geeigneten Mitteln detektiert werden.

Radionuklide bedürfen für ihre Detektion keinerlei Anregung von außen, da sie sich bereits in einem hoch angeregten Zustand befinden. Entsprechend ihrer Halbwertszeit gehen Radionuklide von einem angeregten Zustand in einen niederenergetischeren Zustand über. Die beim

3 Messverfahren

Übergang in einen niederenergetischeren Zustand abgebenen Energien sind ebenfalls charakteristisch für das betreffende Nuklid und befinden sich bereits in gut detektierbaren Größenordnungen von einigen keV.

Die auftretenden Energien bei Alpha- und Gammazerfällen sind diskret und lassen sich daher verhältnismäßig einfach einem Radionuklid oder Atom zuordnen. Gamma- und Alphaspektrometrie werden als wichtige Werkzeuge in der Nuklear- und Radiochemie eingesetzt. Anhand der diskreten Energiepeaks in den aufgenommenen Spektren kann eine Nuklididentifizierung erfolgen.

Aufgrund seiner Einfachheit ist das mit Abstand wichtigste Verfahren die Gammaskpektrometrie: Umweltproben können, mehr oder weniger auch ohne Probenaufbereitung in ein geeignetes Gefäß gefüllt und in das Gammaskpektrometer für eine Messung platziert werden. Für die Alphaspektrometrie hingegen bedarf es aufgrund der geringen Reichweite der α -Teilchen, wodurch es zu einer hohen Selbstabschirmung in der Probe selbst kommt, eines vergleichsweise hohen Präparationsaufwand. In diesem Fall müssen die zu analysierenden Radionuklide mitunter vom Probenmaterial separiert und auf einer Membran, am besten als Monolayer, abgeschieden werden, bevor sie in einem Alphaspektrometer gemessen werden können [5].

Die Energie der Betastrahlung ist im Gegensatz zur Alpha- und Gammastrahlung aufgrund des beim Betateilchen mit emittierten Neutrinos¹ kontinuierlich verteilt. Betaspektrometrie findet vor allem bei jenen Nukliden Anwendung, die nicht über Gamma- oder Alphaspektrometrie identifiziert werden können² [5], [22].

Im Folgenden werden die für die vorliegende Arbeit wichtigsten Analyseverfahren vorgestellt.

3.1 Gammaskpektrometrie

Die Gammaskpektrometrie basiert auf der Wechselwirkung von in der Probe enthaltenen γ -emittierenden Radionukliden und dem Detektormaterial. Die Form eines Gammaskpektrums wird durch drei grundlegende Wechselwirkungsprozesse zwischen Photonen und Materie verursacht: dem Photoeffekt, dem Comptoneffekt und dem Paarbildungseffekt. Für die Aufnahme und spätere Auswertung des Spektrums ist allerdings nur der Photoeffekt von Bedeutung. Die beiden anderen Prozesse sind im Spektrum zwar durch den Comptonhintergrund und den *escape-Peaks* bemerkbar, tragen aber zur qualitativen Analyse nicht bei. Bei der quantitativen Auswertung müssen diese aber sehr wohl berücksichtigt werden [15].

Als **Photoelektrischer Effekt** wird das Loslösen eines Elektrons aufgrund der Absorption eines Photons verstanden. Albert Einstein konnte als erster diesen Effekt vollständig erklären,

¹Beim Betazerfall wird die frei werdende Energie auf das Betateilchen und das Antineutrino verteilt, die Energie des emittierten Elektrons variiert dabei zwischen 0 und einer Maximalenergie E_{MAX} . Die mittlere Energie des Betateilchens liegt dabei bei etwa einem Drittel von E_{MAX} .

²Klassische Beispiele dafür sind ^3H , ^{14}C und ^{90}Sr .

3.1 Gammaskpektrometrie

wofür ihm 1905 der Nobelpreis verliehen wurde.

Das einfallende Photon, mit einer definierten Energie $E = h \cdot \nu$ wird vom Wechselwirkungspartner (Detektormaterial) absorbiert und diese Energie wird auf ein Elektron des Targetmaterials übertragen. Ist die Energie hinreichend groß, dass die Bindungsenergie B der jeweiligen Schale überwunden werden kann, wird dem Elektron die Differenzenergie übertragen und es wird emittiert.

Das Elektron, Photoelektron genannt, hat dann eine kinetische Energie von $E_{Kin} = h \cdot \nu + B$, das entspricht der Energie des einfallenden Lichtquants weniger der Bindungsenergie, das das gebundene Elektron zuvor in der Schale hatte. Die Bindungsenergie wächst dabei mit der Ordnungszahl des Targetmaterials und mit zunehmender Kernnähe. Der Photonenimpuls geht also gänzlich auf das Photoelektron über.

Tritt nun ein Photon mit dem Detektormaterial in Wechselwirkung, so setzt es dort, abhängig von seiner Energie, eine bestimmte Anzahl an Ladungsträgern frei, die durch ein elektrisches Feld abgesaugt und anschließend registriert werden. Die Anzahl der entstandenen Ladungsträger ist der Energie des einfallenden Photons proportional. Wird dieser Vorgang über einen längeren Zeitraum hinweg wiederholt und werden die Signale geeignet verstärkt und gefiltert, so lässt sich die Anzahl der Impulse als Funktion der Energie aufschlüsseln und es entsteht ein Spektrum.

Mit Hilfe eines Energiespektrums lassen sich die in einer Probe enthaltenen Radionuklide identifizieren. Die im Spektrum aufgezeichnete Emissionslinie ist dabei proportional der Energie des absorbierten Photons. Da jedes gammastrahlende Radionuklid Photonen mit einer charakteristischen Energie aussendet, können anhand des aufgenommenen Spektrums die in der Probe enthaltenen Radionuklide bestimmt werden.

Um unbekannte γ -Emitter zu identifizieren, muss die Pulshöhenanzeige mit γ -Quellen bekannter Energie kalibriert werden. Gängige Kalibrierquellen, deren Gammaenergien und Halbwertszeiten sind in Tabelle 3.1 aufgelistet [5].

Für die γ -Spektrometrie werden heutzutage meist HPGe (High Purity Germanium) Detektoren verwendet, in älteren Apparaturen sind oft Ge(Li)-Halbleiter (Germanium-Lithium) im Einsatz. Germaniumdetektoren zeichnen sich durch ein besonders gutes Energieauflösevermögen³ und, verglichen mit Si-Detektoren⁴, durch einen höheren Absorptionsgrad für Gammastrahlung aus. HPGe Detektoren haben aber zwei gravierende Nachteile. Zum einen haben sie eine nur sehr geringe Ausbeute (*intrinsic efficiency*), zum anderen sind sie nur bei Temperaturen von $-200\text{ }^{\circ}\text{C}$ funktionsfähig. Germaniumdetektoren können mit flüssigem Stickstoff, in Großanlagen auch elektronisch auf 77K gekühlt werden [5].

Szintillationsdetektoren, wie etwa NaI(Tl), haben aufgrund der höheren Ordnungszahl von

³Das Energieauflösevermögen beträgt etwa 0,2 bis 0,4 keV bei Energien von 100keV.

⁴Si-Detektoren werden bevorzugt zur Röntgenfluoreszenzanalyse eingesetzt.

3 Messverfahren

Nuklid	γ -Energie [keV]	Halbwertszeit
^{241}Am	26,345	432,2a
	59,536	
^{57}Co	122,061	271,8d
	136,473	
^{203}Hg	279,188	46,6d
^{51}Cr	320,084	27,7d
^{137}Cs	661,66	30,17a
^{54}Mn	834,83	312,2d
^{60}Co	1173,24	5,272a
	1332,5	
^{22}Na	1274,53	2,603a
	511	
^{88}Y	898,07	106,6d
	1836,08	

Tabelle 3.1: Kalibrierstandards für die Gammaspektrometrie

I gegenüber Ge eine bessere Detektorausbeute, allerdings bei weitaus schlechterem Energieauflösevermögen, das bei Gammaenergien von 100keV. etwa 5-7 % beträgt. Dafür müssen sie nicht gekühlt werden [5].

Der Detektor wird mit einem Preamplifier, Amplifier und Multichannel Analyzer, der einzelne Impulse nach deren Impulshöhe sortiert, kombiniert. Früher wurden Spektren mit einem XY-Schreiber auf Millimeterpapier aufgezeichnet. Anschließend wurden die Peaks ausgeschnitten und über Wägung händisch ausgewertet. Heute wird sowohl zur Aufzeichnung des Spektrums, als auch zur Auswertung der Computer verwendet [5], [23].

Von der Idee her sind Halbleiterdetektoren den gasgefüllten Ionisationskammern sehr ähnlich. Anstelle des Zählgases bedient man sich hier eines hochohmigen Halbleiterkristalls, wodurch das einfallende Photon keine Elektronen-Ionen-Paare, sondern Elektronen-Defektelektronen (*Löcher*) -Paare erzeugt [24].

Das Herzstück eines Gammaspektrometers ist ein Halbleiterkristall, der sich zwischen zwei Elektroden, dem Front- und dem Basiskontakt befindet. Der Halbleiterkristall besteht aus einem p-Leiter (Silizium oder Germanium), auf dem eine dünne n-leitende Schicht aufgebracht ist. Am pn-Übergang diffundieren Elektronen in das p-Gebiet und Löcher in den n-Leiter. Durch die Diffusion entstehen beiderseits der Grenzschicht ortsfeste Störstellen mit entgegengesetztem Vorzeichen. Es entsteht eine an frei beweglichen Ladungsträgern verarmte Raumladungszone. Durch Anlegung einer äußeren Spannung kann diese Zone verbreitert werden. Diese stellt das empfindliche Detektorvolumen dar [24].

Trifft nun ein Photon auf ein Atom des Detektorvolumens, so wird eine, der Energie des Photons proportionale Anzahl von Elektronen ins Leitungsband gehoben, während positive Defektelektronen zurückbleiben. Durch Anlegen einer Hochspannung wandern beide zu ihren respektiven Elektroden und werden dort registriert [24].

3.2 Röntgenfluoreszenzanalyse

Die Röntgenfluoreszenzanalyse (RFA) erlaubt eine rasche Ermittlung der elementaren Zusammensetzung einer Probe hinsichtlich Haupt-, Neben-, und Spurenelementen. Einer der wesentlichen Vorteile der RFA liegt in der zerstörungsfreien Analyse der Probe. Mit Hilfe der RFA können alle Elemente von Natrium bis Uran aufgespürt werden, in einigen Fällen ist auch eine Analyse von Bor möglich.

Die Materialprobe wird meist mit weißem Röntgenlicht bestrahlt, wodurch die Elektronen in kernnahen Schalen aufgrund des photoelektrischen Effekts den Atomverband verlassen. Da Löcher in den inneren Elektronenschalen für Atome einen ausgesprochen ungünstigen Energiezustand darstellen, werden diese mit Elektronen aus den äußeren Schalen angefüllt.

Beim Übergang von einer äußeren Elektronenschale in eine innere geben Elektronen überschüssige Energie ab. Diese Energieabgabe kann durch Aussendung von charakteristischer Röntgenstrahlung erfolgen⁵. Die Wellenlänge dieser charakteristischen Röntgenstrahlung ist dabei elementspezifisch, wenn auch von der Zielschale abhängig. Im Spektrum aufgezeichnet erscheint diese charakteristische Strahlung als Röntgenlinie. Die Intensität der Linie ist eine Funktion der Konzentration, sodass man sowohl qualitative als auch quantitative Informationen über die Probe sammeln kann.

Die Röntgenstrahlung, mit der die Probe bestrahlt wird, ist überwiegend kontinuierlich, trägt allerdings auch einen diskreten Anteil mit sich, der durch die Anode beigetragen wird (Rhodium). Das entstehende Spektrum ist naturgemäß diskret, hat aber auch durch Streuung, etc. einen kontinuierlichen Untergrund [5].

Für diese Arbeit wurde ein wellenlängendispersives Spektrometer mit einer maximalen Röhrenspannung von 60 keV und einer Rhodiumanode, Type PANalytical PW2404, herangezogen.

Die Messung einer präparierten Probe erfolgt im Vakuum um Verluste der niederenergetischen Röntgenstrahlung durch Absorption am Weg zum Detektor zu vermeiden. Die Probe wird in Tablettenform vorgelegt und gelangt über ein Schleusensystem in das Innere des Detektors, wo sie von unten bestrahlt wird.

⁵Alternativ könnte das Elektron seine überschüssige Energie auch auf ein weiteres Elektron übertragen, das als Auger-Elektron emittiert wird. Auch Auger-Elektronen können zur Spektroskopie herangezogen werden.

3 Messverfahren

Die emittierte Strahlung, die hauptsächlich aus Fluoreszenz- aber auch zu einem gewissen Anteil aus Streustrahlung besteht, wird über einen Kollimator parallel ausgerichtet und über einen Kristallanalysator gebeugt, siehe auch Abbildung 3.1.

Der Kristall bewirkt eine Beugung der von der Probe ausgehenden polychromatischen Sekundärstrahlung. Diese kann nach dem Bragg'schen Gesetz ($n\lambda = 2d \sin\Theta$) hinsichtlich ihrer Wellenlängen weiter aufgespalten werden. Anhand des Beugungswinkels können die in der Probe enthaltenen chemischen Elemente identifiziert werden [5].

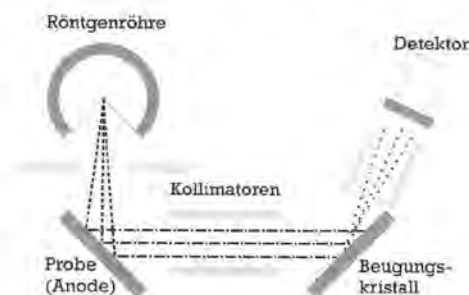


Abbildung 3.1: Wellenlängendispersive RFA

Um die verschiedenen Energiebereiche zu analysieren, werden sechs verschiedene Kristalle und zwei unterschiedliche Detektoren verwendet. Für niedrige Energiebereiche von 0,7 – 15 keV dient ein Gasdurchflussdetektor, für die höheren Energiebereiche von 7 – 40 keV wird ein Szintillationsdetektor verwendet.

Die Auswertung erfolgt ähnlich zur Gammaskpektrometrie mit Hilfe einer Kalibration über die Röntgenlinien von zertifizierten Standardproben. Dabei hängt das Analysesignal zunächst von der Konzentration des jeweiligen Elements linear ab. Allerdings können auch andere Faktoren wie Abschirmung, Sekundärfluoreszenzen oder Matrixeffekte diese Intensitäten beeinträchtigen.

3.3 Flüssigszintillationsspektrometrie

Szintillation war die erste Methode mit der radioaktive Strahlung detektiert wurde. Schon Wilhelm Conrad Röntgen wandte - unbewusst - diese Technik an, als er Röntgenstrahlung durch Lichtblitze an einem Zinksulfidschirm nachwies [15].

Radioaktive Substanzen geben Energie in Form von radioaktiver Strahlung ab. Es gibt nun Substanzen, Szintillatoren genannt, die durch radioaktive Strahlung angeregt werden, indem die Elektronen des Szintillatormaterials in einen energetisch höheren Zustand angehoben werden. Wenn die Elektronen diesen angeregten Zustand wieder verlassen, geben sie dabei die überschüssige Energie in Form von Lichtquanten ab. Solche Szintillatorsubstanzen können in flüssigem oder festem Aggregatzustand vorliegen [5], [15].

3.3 Flüssigszintillationsspektrometrie

Wenn Elektronen im angeregten Zustand nur sehr kurze Zeit verweilen, 10^{-8} - 10^{-10} s, spricht man von Fluoreszenz, wenn die Verweildauer länger beträgt, spricht man von Phosphoreszenz. [15] Da die Anzahl der von den Szintillatoren emittierten Lichtquanten der Energie der absorbierten radioaktiven Strahlung proportional ist, können spektrometrische Analysen durchgeführt werden [22].

Szintillatoren im festen Zustand sind transparente Kristalle, zum Beispiel mit Thallium-dotiertes Natriumiodid oder Cäsiumiodid. Diese Kristalle haben eine hohe Dichte um soviel Strahlung wie möglich zu absorbieren. Bei einer Kristallgröße von nur 2,5 - 5 cm beträgt die Detektorausbeute zwischen 15 -30%. Szintillatorkristalle werden vor allem zur Messung von Gammastrahlung herangezogen, also für Messungen in hohen Energiebereichen [5].

Bei der Flüssigszintillationsspektrometrie (LSC - *Liquid scintillation Counting*) wird die (radioaktive) Probe gemeinsam mit der Szintillatorsubstanz in einem geeigneten Lösungsmittel gelöst. Als Szintillatoren fungieren organische Verbindungen wie etwa Toluol, Benzen oder Dioxen. Durch die Vermischung von Probe und Detektor kann es zu keiner nennenswerten Selbstabsorption mehr kommen, weswegen die Flüssigszintillation sehr gut für die Detektion von Teilchen mit geringer Reichweite oder geringer Energie geeignet ist [22]. Aber auch Verluste am Weg von der Probe zum Detektor oder die Detektion von rückgestreuten Teilchen tragen hier nicht zu einer Verfälschung der Zählrate bei [5].

Die Flüssigszintillation ist speziell zur Analyse von ^3H und ^{14}C geeignet [15].

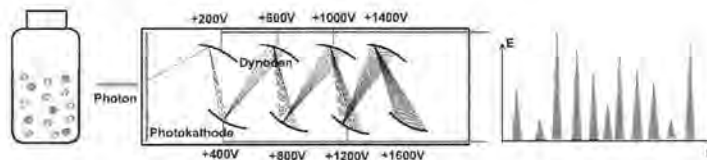


Abbildung 3.2: Aufbau und Funktion der Flüssigszintillation

Abbildung 3.2 zeigt den schematischen Aufbau der Flüssigszintillation. In dem durchsichtigen Probefläschchen, das zumindest in dem Bereich, in dem der Szintillator anspricht, transparent sein muss und das außerdem resistent gegenüber dem Lösungsmittel sein muss, befindet sich die Probe mit der Szintillatorsubstanz in geeigneter Lösung. Manche Substanzen, wie etwa Wasser und Säuren, können die Lösung im Probefläschchen trüben, womit die Lichtausbeute minimiert wird, was wiederum die Detektorausbeute beeinflussen kann. Im schlimmsten Fall wird dadurch das Spektrum verschoben oder gar verändert. Dieser Effekt wird *quenching* genannt und muss auf jeden Fall bei der anschließenden Auswertung mitberücksichtigt werden [5].

Die von der Szintillatorsubstanz ausgesandten Lichtblitze werden mittels Photokathode und Photomultiplier in geeignete elektrische Impulse umgewandelt. Ein Photon trifft auf die Photo-

3 Messverfahren

kathode, wo es ein sekundäres Elektron herausschlägt. Durch ein elektrisches Feld wird dieses Elektron zur nächsten Elektrode, Dynode genannt, beschleunigt, wo dieses Elektron weitere Sekundärelektronen herausschlägt. Diese werden weiter zur nächsten Dynode beschleunigt, bis der Verstärkungsfaktor des ursprünglichen Elektrons $10^7 - 10^{10}$ beträgt und bei einigen MeV liegt [5], [15]. Die Größenordnung des Signals ist proportional zu dem aus der Szintillatorsubstanz ausgesandten Lichtquant und damit proportional zur Energie der radioaktiven Probe [15].

Unter Umständen ist es notwendig, zur Szintillatorsubstanz einen weiteren Szintillator hinzuzufügen, da der Photomultiplier auf die Energie der abgegebenen Lichtquanten des Primärszintillators nicht anspricht. Dann ist es notwendig, dass ein Sekundärszintillator diese hochenergetischen Photonen auffängt und in Photonen mit geringerer Energie umwandelt, auf die auch der Photomultiplier reagieren kann [5].

3.4 Alphaspektrometrie

In den letzten Jahren hat die Alphaspektrometrie als chemisches Analysenverfahren immer mehr an Bedeutung erlangt, denn sowohl die qualitative als auch quantitative Analyse alphaemittierender Nuklide ist vor allem im Strahlenschutz von enormer Wichtigkeit geworden [25].

Alphateilchen sind schwere, zweifach positiv geladene Teilchen.⁶ Aufgrund ihrer Masse sind sie relativ träge und geben, sobald sie einen Reaktionspartner gefunden haben, ihre Energie an diesen ab. Daher haben Alphateilchen eine nur sehr geringe Reichweite und können schon durch sehr dünne Schichten, z.B. durch ein Blatt Papier aufgehalten werden.

Diese Eigenschaften der Alphateilchen nutzt man auch in der Spektrometrie: das Alphateilchen, das aus der Probe emittiert wird, soll ungehindert in den empfindlichen Teil des Detektors gelangen, wo die gesamte Energie des Teilchens vom Detektormaterial absorbiert wird [25], [26]. Im Detektor herrscht dabei ein Feinvakuum (100Pa), sodass Alphateilchen ohne wesentliche Energieverluste in den Detektor gelangen [26].

Sowohl Gamma- als auch Alphastrahler senden Strahlung mit charakteristischen, diskreten Energien aus und eignen sich daher hervorragend zur Spektrometrie. Die Energien der Alphateilchen sind dabei aber um einiges höher als die der Gammaquanten. Alphaenergien liegen im Bereich von 3,9 MeV (^{232}Th) bis zu 8,8 MeV (^{212}Po).

Um aber unterschiedliche Elemente mit ähnlichen Energien spektrometrisch zu trennen, ist es notwendig, die einzelnen Elemente der Probe vor der Spektrometrie radiochemisch zu trennen. Dadurch werden mögliche, auftretende Interferenzen aufgrund multipler alphaemittierender Teilchen weitgehend reduziert. Die Energien einiger Alphastrahler, wie etwa (^{239}Pu , ^{240}Pu) lassen sich aber auch mit dieser Methode nicht auftrennen [25], [26].

⁶Alphateilchen bestehen aus zwei Protonen und zwei Neutronen und sind daher doppelt ionisierte Heliumkerne [27].

3.4 Alphaspektrometrie

Wegen der geringen Reichweite der Alphateilchen darf die Selbstabsorption im Probenmaterial nicht vernachlässigt werden [25]. Durch die Selbstabsorption im Messpräparat werden die Linien im Spektrum der alphastrahlenden Nuklide um einige keV verbreitert und Linien verschiedener Nuklide können einander überlappen [26]. Man versucht daher, die Alphateilchen aus der Probenmatrix zu entfernen und diese als möglichst dünne, gleichmäßige Schicht in Detektornähe zu bringen. Ideal wäre, eine monomolekulare Schicht aus rein alphaemittierenden Teilchen zu bauen. In der Realität begnügt man sich aber mit quasi masselosen Präparaten, mit etwa $1\ \mu\text{m}$ Schichtdicke [25].

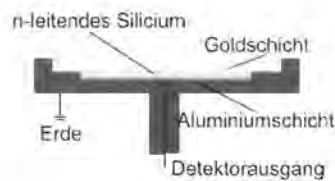


Abbildung 3.3: Aufbau des Oberflächensperrschichtdetektors

Die fertigen Probenpräparate werden mittels eines Oberflächensperrschichtdetektor (Abbildung 3.3) gemessen. Ein Oberflächensperrschichtdetektor ist eine spezielle Bauform eines Halbleiterdetektors, auch diese haben eine pn-Diode als Grundelement, wobei die der Probe zugewendete Seite mit einer Goldbedampfung versehen ist.⁷ [28] Die Diode besteht aus 1-2 cm dicken Scheiben aus N-Silizium, deren Oberfläche auf der Eintrittseite der Alphastrahlen p-dotiert ist und mit einer ca. $40\ \mu\text{g}/\text{cm}^2$ dicken Goldschicht bedampft ist [26].

Die Unterseite ist mit Aluminium kontaktiert, siehe Abbildung 3.4. Wird nun eine Spannung an die Diode in Sperrrichtung angelegt, so wird eine ladungsträgerarme Sperrschicht ausgebildet, deren Dicke von der angelegten Spannung abhängt (zwischen 500–1000 V). Die Sperrschichtdicke beträgt etwa $100\ \mu\text{m}$ und ist daher größer als die Reichweite der Alphateilchen mit einigen $10\ \mu\text{m}$.

Tritt nun ein Alphateilchen in das Detektorinnere, so werden entlang des Weges Elektron-Loch Paare gebildet (Abbildung 3.4). Diese werden im elektrischen Feld getrennt und die Ladungen an den entsprechenden Kathoden gesammelt. Ein ladungsempfindlicher Vorverstärker erzeugt einen Spannungsimpuls, dessen Höhe von der Energie der einfallenden Alphateilchen abhängt.

⁷Anstatt der Goldbedampfung kann auf der Oberfläche auch Bor implantiert sein [26].

3 Messverfahren

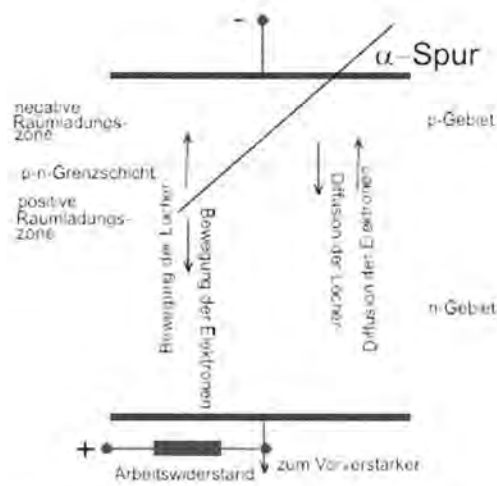


Abbildung 3.4: Prinzip des Oberflächensperrschichtdetektors

4 Orientierungsmessungen

Für die Untersuchung der Migration von Transuranelementen sind aktuelle Bodenproben eventuell kontaminierter Flächen wesentlich. Derartige Flächen sind auch am Betriebsgelände der *Nuclear Engineering Seibersdorf* vorzufinden, was auch Anlass für die vorliegende Dissertation ist.

Nach 45 Jahren Forschung und Entwicklung am Standort Seibersdorf wurde im Frühjahr 2006 das Projekt *Geländekontaminationskataster* durch die Austrian Research Centers ins Leben gerufen, um das gesamte Forschungsareal hinsichtlich etwaiger Kontaminationen durch radioaktive Stoffe zu durchkämmen.

Alle Rasen- und Straßenflächen¹ wurden dabei mit einem Großflächenzählrohr abgefahren und etwaige Aktivitätskonzentrationen gemessen. Bei erhöhten Zählraten wurden repräsentative Boden- bzw. Bewuchsproben entnommen, die gammaspektrometrisch und gegebenenfalls mittels LSC oder Alphaspektrometrie, analysiert wurden [12], [13].

Im Zuge der Erfassung des Geländekontaminationskatasters war ein Straßenabschnitt besonders auffällig geworden. Es handelt sich dabei um jene Straße, die am Gebäude Wasserreinigung² vorbeiführt, (Appendix A), bei der am Straßenrand erhöhte Zählraten gefunden wurden. Die durchgeführten gammaspektrometrischen Messungen zeigten, dass diese Kontaminationen durch ²⁴¹Am hervorgerufen wurden.

Da diese ²⁴¹Am-Kontaminationen in diesen Konzentrationen nur an diesem Straßenabschnitt gefunden wurden und nicht am gesamten Gelände, allerdings gerade vor dem Geschäftsfeld *Aufbereitung für Radioaktive Stoffe*, ist eine Deposition durch den globalen Fall-Out in Folge der Kernwaffentests der 1950er und 1960er Jahre oder des Chernobylunfalls unwahrscheinlich.

Somit stellt sich die Frage, ob diese ²⁴¹Am Kontaminationen eventuell durch Verschleppung einer Kontamination, die eventuell bei den Lagerhallen, Waschplätzen, etc. stattgefunden haben kann oder während einer Verbrennungskampagne von den Filtern nicht zurückgehalten und durch Wind- und Wetterkonstellationen auf diesem Straßenabschnitt deponiert wurden, herriühren kann.

¹Die Kontaminationskontrollen der einzelnen Gebäude folgt noch.

²Teil des NES-Geschäftsfelds *Aufbereitung radioaktiver Stoffe*, dieser Straßenabschnitt wird im Folgenden als Straßenabschnitt FA bezeichnet, da er sich vor dem Gebäude FA befindet.

4.1 Beprobungsplan

Ausgehend vom Projekt Geländekontaminationskataster wurden im Rahmen dieser Dissertation sechs Verdachtsflächen rund um die bereits gefunden Kontaminationen auf dem Straßenabschnitt **FA** definiert und beprobt. Die definierten Verdachtsflächen werden in Abbildung 4.1 illustriert.

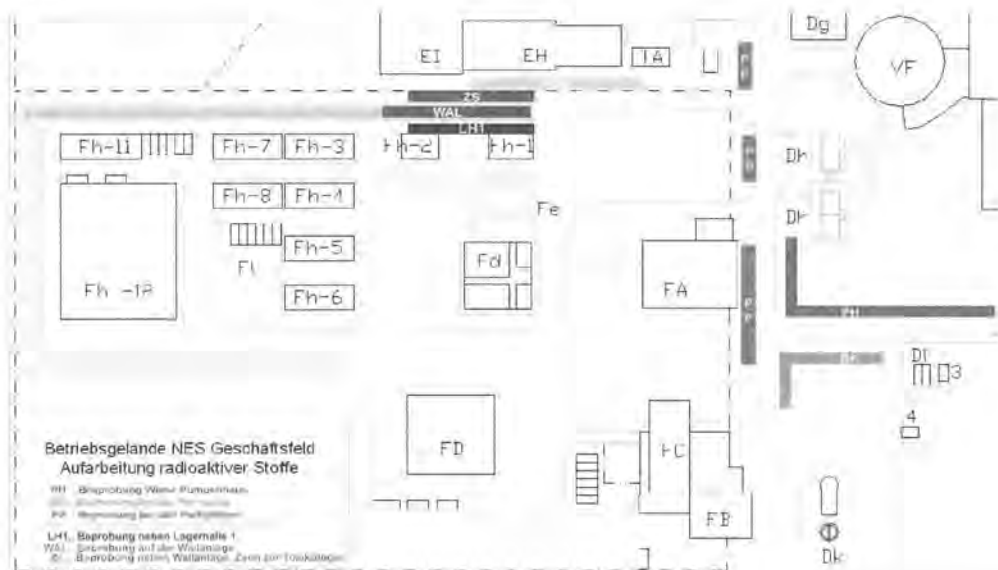


Abbildung 4.1: Illustration der definierten Verdachtsflächen um die Fundorte

- Verdachtsfläche **Parkplätze (PP)** entlang des Straßenabschnitts FA bis zur Toxikologie EH auf Seite der Wasserreinigung, in Abbildung 4.1 rosarot dargestellt.
- Verdachtsfläche **Wiesenstück (PH)** entlang des Straßenabschnitts FA auf Seite des ehemaligen Pumpenhauses. Die Beprobungen wurden zunächst bis zur T-Kreuzung durchgeführt, weiters auch 50 m auf dieser Straßenseite Richtung Gebäude DE, das in Abbildung 4.1 nicht mehr eingezeichnet ist, rot dargestellt.
- Verdachtsfläche **Wiesenstück (BK)**, die erfolgte Beprobung analog zum Wiesenstück (PH) in nördlicher Verlängerung des Straßenabschnitts auf Seite der biologischen Klärung, Beprobung ebenfalls zunächst bis zur T-Kreuzung, dann noch auf weitere 20 m bis zu den Containern der Strahlenschutzakademie. Das Wiesenstück (BK) ist in Abbildung 4.1 türkis dargestellt.
- Verdachtsfläche **Wallanlage (WAL)**, auch die Wallanlage, die in den 1970er Jahren aufgeschüttet wurde, wurde beprobt und ist in Abbildung 4.1 braun dargestellt. Die Probenahme und deren Auswertung erfolgte im Rahmen einer Diplomarbeit bei der NES [29].

4.2 Beschreibung der Beprobungsverfahren

- Verdachtsfläche **Rasenstreifen Zugang Lagerhalle 1 (LH)**: Die Beprobung erfolgte im Rahmen des NES-Projekts *Sanierung Lagerhalle 1*, die Daten wurden vom zuständigen Projektleiter zur Verfügung gestellt. Die Verdachtsfläche Rasenstreifen Lagerhalle 1 ist in Abbildung 4.1 blau eingezeichnet.
- Verdachtsfläche **Zaunsegment Grenze Toxikologie (ZS)**, dieser Bereich, ein schmaler Rasenstreifen, entlang dem die Grenze des Geschäftsfelds *Aufbereitung radioaktiver Stoffe (NES)* zum ARC-Bereich Gelände *Toxikologie* verläuft, wurde ebenfalls im Rahmen einer Diplomarbeit [29] beprobt. Dieser Bereich ist in Abbildung 4.1 grün dargestellt.
- Verdachtsfläche **Rasenstreifen Toxikologie (TOX)**, das erste Teilstück, das sich bereits auf ARC-Gelände befindet, liegt zwischen der Verdachtsfläche TOX und den Gebäuden der Toxikologie. Diese Verdachtsfläche ist in Abbildung 4.1 gelb eingezeichnet.

4.2 Beschreibung der Beprobungsverfahren

Für die Beprobungen an Verdachtsflächen gibt es eine Vielzahl an Leitfäden, die die unterschiedlichsten Verfahren für Beprobungen evaluiert und auch in Hinblick auf Qualitätssicherheit und Qualitätskontrolle bewertet haben [21],[30].

Eine der wesentlichsten Vorarbeiten für eine groß angelegte Beprobungsoffensive ist die Wahl einer geeigneten Beprobungsstrategie. Prinzipiell gibt es sieben grundlegende Strategien zur Entnahme von Boden- oder Gewächspollen, die im Folgenden kurz vorgestellt werden [30].

- *Judgemental Sampling*: Darunter versteht man die subjektive Auswahl von Probeentnahmepunkten auf einer Versuchsfläche. Diese Auswahl basiert auf historischen Daten, Begehung des Geländes und der persönlichen Beurteilung und Erfahrung des Probenahmeteams. Diese Strategie wird meist zur Ermittlung einer Ausbreitung von Kontaminationen auf Gebieten mit besonders hohen Aktivitätskonzentrationen eingesetzt.
- *Random Sampling*: Darunter versteht man die willkürliche Probenahme innerhalb definierter Grenzen auf dem betroffenen Gebiet. Die Probeentnahmepunkte werden über ein Zufallsprinzip bestimmt, jeder einzelne Beprobungspunkt muss dabei aber unabhängig von den anderen gewählt werden. Die stichprobenartige Entnahme ist eine beliebte Methode um auch Aussagen über Messunsicherheiten treffen zu können.
- *Stratified Random Sampling*: Darunter versteht man eine Mischform beider Strategien: das betroffene Areal wird, aufgrund historischer Informationen oder bereits vorhandener Analysen in kleinere, zusammenhängende Gebiete, *stratae*, geteilt. Die Beprobung innerhalb der *strata* erfolgt dann wieder durch Zufallsprinzip. Der Vorteil dieser Methode liegt vor allem in seiner Flexibilität.
- *Systematic Grid Sampling*: Darunter versteht man die Unterteilung des betroffenen Areals durch ein rechteckiges, dreieckiges, oder fischgrätartiges Gitter. Die Probenahme erfolgt dann entweder an den Gitterpunkten oder in deren Zwischenräumen. Der Abstand

4 Orientierungsmessungen

der einzelnen Entnahmepunkte untereinander wird durch die Gittergröße bestimmt. Die systematische Beprobung ist eine sehr aufwändige Beprobungsstrategie und wird meist nur verwendet, um die Ausbreitung einer bereits ermittelten Kontamination eingrenzen zu können.

- *Systematic Random Sampling*: Darunter versteht man ein flexibles Verfahren, um eine Kontaminationskonzentration innerhalb von Gitterzellen abschätzen zu können. Das betroffene Gebiet wird durch ein Gitter in mehrere Abschnitte unterteilt, anschließend werden Proben innerhalb einer Zelle nach dem Zufallsprinzip genommen.
- *Search Sampling*: Darunter versteht man entweder ein systematisches Gitter oder eine randomisierte Beprobung um hot spots auf dem betroffenen Gebieten aufzuspüren. Die Probenanzahl und die Gittergröße richtet sich dabei auf den Fehlerlevel, d.h., die Wahrscheinlichkeit einen hot spot zu übersehen.
- *Transect Sampling*: Darunter versteht man das Festlegen einiger so genannter Führungslinien entlang der Oberfläche des betroffenen Gebietes. Anschließend werden Proben entlang dieser Führungslinie in regelmäßigen Abschnitten genommen. Meist verwendet man mehrere Führungslinien, die parallel oder auch sternförmig angeordnet sind. Dieses Verfahren eignet sich besonders gut um etwaige Kontaminationskonzentrationsgradienten aufzuzeigen.

Für einen typischen Beprobungsplan, der auch in der Realität bestehen kann, werden meist zwei oder drei der oben beschriebenen Verfahren miteinander kombiniert [30].

Jenes Material in der Bodenprobe, das für die Klassifizierung als nicht relevant erscheint, also etwa Steine, Glas, Blätter und Zweige, werden aus der Probe aussortiert. Anschließend folgt die Siebung der Probe, um mehrere Fraktionen von annähernd homogenem Probenmaterial zu bekommen, das sich allein hinsichtlich der Korngrößen unterscheidet [30].

In der NES wurden bereits Bodenproben sowohl trocken als auch feucht gesiebt, um die Aktivitätsverteilung der einzelnen Korngrößenfraktionen zu bestimmen. Dabei wurde festgestellt, dass sich ^{241}Am bevorzugt in der kleinsten Fraktion sammelt [29]. Somit erscheint es sinnvoll, aus der entnommenen Bodenprobe organisches Material und größere Steine auszusortieren.

Anschließend wird empfohlen, die Proben zu homogenisieren, um bei den folgenden Analysen die Messunsicherheit möglichst gering halten zu können. Dennoch müssen für die Messunsicherheiten die häufigsten Fehlerpotentiale bei der Beprobung mitherangezogen werden: Verunreinigung, Kreuzkontamination, Materialverlust. Diese Fehlerquellen, inklusive dem statistischen Fehler, der bei der gammaspektrometrischen Analyse errechnet wird, müssen in die Messunsicherheit miteingehen, um letztendlich die Aktivitätskonzentration der Probe möglichst genau quantifizieren zu können.

4.2.1 Orientierungsbeprobung PP

Die ersten Verdachtsflächen für eine ^{241}Am -Kontamination wurden entlang des Straßenabschnitts FA gefunden. In diesem Bereich wurden Anfang 2005 Parkplätze befestigt, wobei die überschüssige Erde abgetragen und standardmäßig beprobt wurde. Schon bald stellte sich heraus, dass der Straßenrand zur Wasserreinigung ^{241}Am -Kontaminationen von bis zu 130 mBq/g aufweisen. Ausgehend von dieser Verdachtsfläche wurde im weiteren Umfeld nach weiteren Kontaminationen gesucht.

4.2.2 Orientierungsbeprobung PH, BK

Die andere Straßenseite, gegenüber der Beprobungsflächen PP, wurde anschließend systematisch im Abstand von jeweils 5 m zueinander dem Straßenrand entlang beprobt. Der erste Probeentnahmepunkt erfolgte gleich im Anschluss an das Pumpenhaus bis zur T-Kreuzung, dann weiter entlang dieser Straße bis zum Eingang zur NES. In dieser Charge wurden 25 Proben genommen.

In einer 2. Charge wurden im Bereich der T-Kreuzung bis zum Pumpenhaus versetzt zu den Probeentnahmepunkte 1 m weiter innen im Gelände noch weitere 10 Proben entnommen.

Die Proben wurden in PE-Säcke verpackt, mit der Bezeichnung PH und einer fortlaufenden Nummer versehen. Das Probenvolumen betrug aufgrund des Spatinhalt des Rahmens etwa 9 l, die Aktivitätskonzentrationen bezüglich ^{241}Am wiesen Werte von bis zu 120 mBq/g auf.

Analog erfolgte die Bodenprobennahme entlang der Straße rund um die biologische Klärung, diese Proben wurden mit der Buchstabenkombination BK bezeichnet. Hier wurden 15 Bodenbeprobungspunkte festgelegt, die Aktivitätskonzentrationen bezüglich ^{241}Am lagen bei maximal 40 mBq/g.

Aufgrund des Verlaufs der Kontamination auf beiden Verdachtsflächen konnte nach der gammaspektrometrischen Analyse geschlossen werden, dass die Kontamination dieser Verdachtsflächen durch Verschleppung von anderen herrührt, da die jeweils höchsten Aktivitätskonzentrationen stets direkt an der Straße vorzufinden waren.

4.2.3 Orientierungsbeprobung WAL, ZS

Für die Beprobung der Walloberfläche WAL wurden bereits Ende 2004 auf der Walloberfläche 26 Proben systematisch entnommen und gammaspektrometrisch untersucht. Die Proben am Wall wiesen hier eine spezifische Aktivität von bis zu 2700 mBq/g auf [29].

Auch am Zaunabschnitt zur Toxikologie ZS wurden analog 13 Proben genommen, die eine spezifische Aktivität von bis zu 230 mBq/g aufwiesen.

4 Orientierungsmessungen

4.2.4 Orientierungsbeprobung LH1

Im Zuge der Vorbereitungen zur Abtragung der Wallanlage wurde auch der Zugang zur Lagerhalle 1 nach der Stratified Random Sampling Strategie beprobt. Dazu wurde die Verdachtsfläche zunächst durch ein regelmäßiges Gitter geteilt. Da in der jüngeren Vergangenheit auf dieser Fläche mehrere Erdarbeiten stattgefunden haben, wurde pro Zelle bis zu drei Proben genommen. Die Wahl des Probeentnahmepunkts in der Zelle erfolgte dann über Zufallsprinzip.

Die Beprobung des Gebiets LH1 begann als klassische Orientierungsmessung, aber mit dem Auffinden einiger größerer Kontaminationen von bis zu 300 mBq/g wurde die ursprünglich stichprobenartige Entnahme zur Beprobung in *stratae* ausgeweitet.

4.2.5 Orientierungsmessung TOX

Rechts der Wallanlage befindet sich das Gelände der Toxikologie, etwa 5m vom Grenzzaun entfernt steht das Gebäude mit den Laboratorien. Dazwischen befindet sich ein Rasenstreifen.

Als in den 1970er Jahren die Wallanlage aufgeschüttet wurde, wurde auf diesem Geländestreifen die gesamte Humusschicht bis hin zur darunter liegenden Schotter- Lehmschicht abgetragen und anschließend wieder neuer Humus aufgetragen.

Jenseits des Zauns, also auf dem Betriebsgelände *Aufbereitung radioaktiver Stoffe*, wurde bereits ²⁴¹Am gefunden. An dieser Stelle wurden ebenfalls in den 1970er Jahren während der Sanierung der Lagerhalle 1 Fässer und andere Container, die radioaktive Abfälle beherbergten, für kurze Zeit zwischengelagert.

Dieser kurzfristig improvisierte Lagerplatz wurde zufällig im Frühjahr 2006 wieder entdeckt, als im Rahmen der Vorarbeiten für die Beseitigung des Walls dieser Bereich beprobt, und erhöhte Werte für ²⁴¹Am gefunden wurden.

Mit dieser Vorinformation wurde mit der Orientierungsbeprobung am Rasenstreifen Toxikologie TOX begonnen, diesmal mit der Judgmental - Strategie. Dazu wurde der Zaun, der das Gelände NA vom Gelände Toxikologie trennt, als Spiegelgerade definiert, und gespiegelt zu neun Beprobungspunkte auf NA-Seite neun Proben auf der TOX-Seite, etwa auf Höhe der ehemaligen Begrenzungsmauer des Walls, genommen. Die Aktivitätskonzentrationen dieser neun OTOX³ Proben wiesen Werte zwischen 1,5 Bq/g und 78 Bq/g auf.

4.3 Gammaskopmetrische Analysen

Die genommenen Bodenproben wurden anschließend γ -spektrometrisch analysiert, um eine geeignete Beprobungsfläche für eine systematische Beprobung ermitteln zu können.

³OTOX... Orientierungsmessung Toxikologie

4.3 Gammaskpektrometrische Analysen

Sowohl die Aufnahme der Spektren als auch deren Analyse erfolgte softwareunterstützt mit dem Analytikprogramm Gamma Acquisition and Analysis aus dem Genie-2000 Spektrometrie System der Firma Canberra. Abbildung 4.2 zeigt das aufgenommene Spektrum einer Bodenprobe.

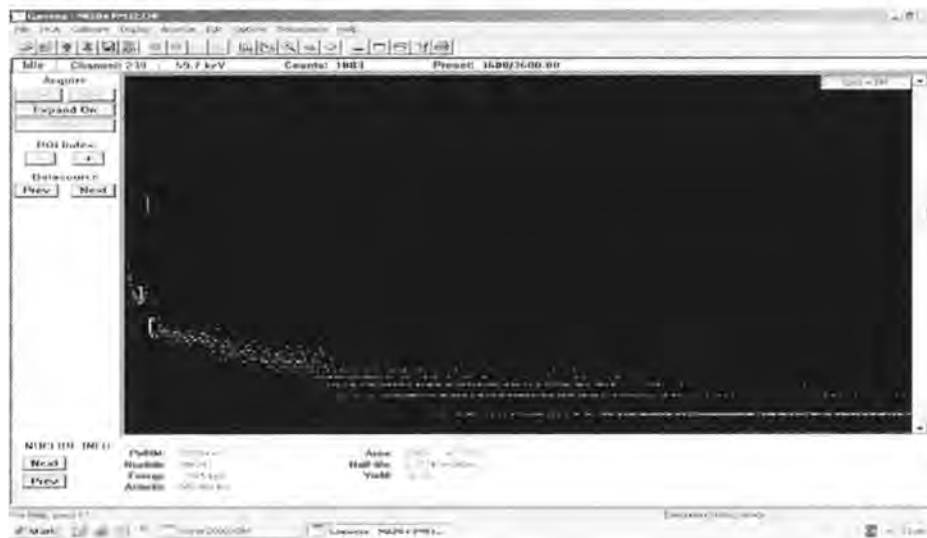


Abbildung 4.2: Spektrum einer Bodenprobe mit Genie-2000

^{241}Am hat seine Hauptemissionslinie bei 59,5 keV und ist auch das einzige Transuranelement, das mittels Gammaskpektrometrie vernünftig nachweisbar ist. Für alle anderen Transurane müssen andere Methoden, wie etwa die Alphaskpektrometrie⁴ oder die LSC⁵ herangezogen werden. Dennoch ist es möglich, die Aktivitätskonzentrationen anderer Transuranelemente indirekt zu bestimmen, indem man einen Nuklidvektor aufstellt, der auf ein gut nachweisbares Schlüsselnuklid Bezug nimmt. Die Erstellung eines Nuklidvektors wird in Kapitel 9 genau erläutert und durchgeführt.

Die Proben mit den Buchstabenkombinationen PH und BK wurden nach Entnahme mit einer Siebmaschine, Siebeinsatz mit einer Maschenweite von 5 mm, gesiebt und anschließend bei 200 °C fünf Stunden lang getrocknet. Danach wurde die Probe gemischt und ein 150 ml fassendes Aliquot entnommen, das γ -spektrometrisch ausgewertet wurde.

Jene neun Proben (OTOX), die am Rasenstreifen TOX genommen wurden, wurden im feuchten Zustand in einer 450 ml Geometrie gemessen. Um in der feuchten, inhomogenen Probe aber

⁴für die ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{242}Pu , ^{244}Pu , ^{241}Am und ^{242}Am - Isotope

⁵für die ^{241}Pu , ^{243}Pu , ^{245}Pu , ^{242}Am und ^{244}Am - Isotope

4 Orientierungsmessungen

auch diese Fehlerquellen im Messergebnis mitberücksichtigen zu können, wurde eine Dichtekorrekturfunktion ermittelt.

In den Lagerräumen der NES wurde im letzten Frühjahr bei einer Entrümpelungsaktion ein großer Vorrat an 1 l Marinellibechern gefunden. Die besondere Marinelligeometrie erlaubt bei gleich bleibender Genauigkeit eine Verkürzung der Messzeit, da der Becher einfach über den Detektorkopf gestülpt wird, was ein besseres Ausnützen der effektiven Fläche gestattet. Daher wurde für alle folgenden Beprobungen die Strategie gewechselt: es wurde ab nun ein Würfel ausgestochen, der ein Volumen von etwa 1 l fasste und in PE-Behälter verpackt. Zum Messen wurden diese dann in Marinellibecher umgefüllt und 3600 s lang gemessen. Die Nachweisgrenze für ^{241}Am lag unter diesen Voraussetzungen bei 7 mBq/g.

Die genommenen Proben wurden im inhomogenen und feuchten Zustand in einer der bereits kalibrierten Geometrien (1l Becher, bzw., 450ml Becher für geringeres Probevolumen) überführt und 3600 s lang gemessen.

4.4 Bewertung der Verdachtsflächen

Mit Hilfe der Messergebnisse konnten nun die einzelnen Verdachtsflächen aufgrund der Verteilung der Aktivitätskonzentrationen bezogen auf ^{241}Am bewertet werden (Abbildung 4.3).



Abbildung 4.3: Zur Bewertung der ermittelten Verdachtsflächen

Auf Verdachtsfläche PP wurden nur vereinzelte ^{241}Am -Kontaminationen gefunden. Verdachtsfläche PH weist erhöhte ^{241}Am -Kontaminationen nur im Bereich gegenüber des Eingangs zur Wasserreinigung auf. Verfolgt man die Aktivitätskonzentrationen weiter Richtung Hintereingang NES, nimmt ab dem Kurvenstück die ^{241}Am -Aktivitätskonzentration stark ab. Verglichen mit Verdachtsfläche PH sind auf Verdachtsfläche BK kaum Aktivitätskonzentrationen zu finden, lediglich zwei Proben wiesen etwas höhere Aktivitätskonzentrationen auf. Somit scheinen Verdachtsflächen PP, PH und BK nicht für die Kontaminationen am Gelände verantwortlich zu sein, im Gegenteil, die hier gefundenen ^{241}Am -Kontaminationen scheinen vielmehr durch Verschleppung hierher gelangt zu sein. Dadurch scheiden diese drei Verdachtsflächen für eine systematische Beprobung für das Migrationsverhalten von Transuranen aus.

4.4 Bewertung der Verdachtsflächen

Auch Verdachtsfläche LH1 ist aufgrund der vielen Erdarbeiten, die hier stattgefunden haben, für eine Detailbeprobung um das Migrationsverhalten für Aktinoide zu studieren, nicht geeignet.

Der Gradient der ^{241}Am -Aktivitätskonzentration der Verdachtsfläche WAL weist auf jener Seite, die zu LH1 schaut, ein Maximum auf, Richtung TOX nimmt die Aktivitätskonzentration rasch ab. Jenseits der Kuppe, Richtung TOX, sind kaum mehr ^{241}Am -Kontaminationen zu finden. Dies lässt auf eine Verschleppung der Kontamination von Verdachtsfläche LH1 auf Verdachtsfläche WAL schließen. Daher scheidet auch Verdachtsfläche WAL für eine Detailbeprobung aus.

Dafür weisen aber Verdachtsfläche ZS und TOX fast Laborbedingungen auf. Hier wurde Mitte der 1970er Jahre eine neue Humusschicht aufgetragen, die Kontamination durch ^{241}Am konnte also erst später erfolgen. Beide Verdachtsflächen wurden in den vergangenen 30 Jahren nicht bebaut oder anderwärtig bearbeitet, was auch an den korrespondierenden Messergebnissen erkennbar ist, und liefern daher ideale Bedingungen für Detailbeprobungen.

4 Orientierungsmessungen

5 Systematische Beprobung

Nach den erfolgten Orientierungsmessungen und der anschließenden Bewertung der Verdachtsflächen konnte als nächster Schritt die systematische Beprobung der ausgewählten Verdachtsflächen im Detail erfolgen.

Verdachtsfläche TOX und Verdachtsfläche ZS weisen, wie im Kapitel *Orientierungsbeprobung* ausführlich beschrieben, fast Laborbedingungen auf. In den 1970er Jahren wurde die gesamte Humusschicht abgetragen und auf die darunter liegende Schotterschicht eine neue Humusschicht aufgetragen. Wenn man davon ausgeht, dass die Schotterschicht damals keinerlei ^{241}Am Kontamination aufwies, kann man das Auftragen der neuen Humusschicht als Zeithorizont zu Hilfe nehmen. Befindet sich die ^{241}Am Kontamination nur in der Humusschicht, also in jenem Erdreich, das vor 32 Jahren aufgebracht worden ist, kann die Deposition auch erst in den letzten 32 Jahren erfolgt sein.

Der Umkehrschluss ist allerdings weniger trivial, denn, sollte ^{241}Am auch in der darunter liegenden Schotterschicht zu finden sein, wären zweierlei Situationen denkbar.

1. Die Deposition der Transurane erfolgte bereits vor 1975. Während der Sanierungsarbeiten wurden zwar Routinemessungen durchgeführt, aber es wurde kein ^{241}Am aufgespürt. Dieser Fall scheint gar nicht so unwahrscheinlich zu sein, wenn man bedenkt, dass ^{241}Am das Tochterprodukt von ^{241}Pu ist. Wenn die Deposition selbst durch ^{241}Pu verursacht wurde, ist es eine Frage der Zeit, bis ^{241}Am nachwächst.
2. Die Deposition erfolgte erst nach der Bodensanierung, aber die Aktinoiden konnten bis in die Schotterschicht migrieren.

Damit konnten die Beprobungsstrategien der Verdachtsflächen TOX und ZS festgelegt werden. Zum einen sollte die horizontale Verteilung der Transuranelemente erfasst werden um für das gestaltende Migrationsmodell eine ausreichende Datenbasis zur Verfügung zu haben. Die horizontale Beprobung erfolgte an der Verdachtsfläche TOX.

Um im Migrationsmodell die vertikale Komponente, sprich, das Migrationsverhalten dreidimensional erfassen zu können, muss auch eine Beprobung in die Tiefe erfolgen. Für diese Beprobung wurde Verdachtsfläche ZS ausgewählt. Verdachtsfläche TOX und ZS haben denselben Aufbau, grenzen direkt aneinander und sind in den vergangenen 35 Jahren denselben Bedingungen ausgesetzt gewesen. Daher eignet sich diese komplementäre Beprobung auf diesen beiden Verdachtsflächen ganz besonders.

5 Systematische Beprobung

Auch die Kenntnis des Zeitpunkts, an dem die Deposition erfolgt ist, t_0 , ist von Bedeutung. Da aber keinerlei radiologische Unfälle in *45 Jahre Forschung und Entwicklung* dokumentiert sind, ist auch der Zeitpunkt der Deposition der Transuranelemente auf den Verdachtsflächen nicht bekannt. Allerdings besteht die Hoffnung, anhand des Zeithorizonts, in Verbindung mit der Anlagenhistorie, die leider nur sehr spärlich zur Verfügung steht, den Zeitpunkt der Deposition zumindest eingrenzen zu können.

Auf beiden Verdachtsflächen, sowohl TOX als auch ZS wurde die ^{241}Am -Kontaminationskonzentration gemessen. Weitere Transuranelemente wie ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu und ^{241}Pu sind messtechnisch nicht so einfach zu erfassen. Um diese aber auch im Migrationsmodell mit berücksichtigen zu können, wird im Modell selbst mit einem Nuklidvektor, mit ^{241}Am als Schlüsselnuklid, gearbeitet. Schon vor der Beprobung wurden vier Klassen festgelegt, in die die γ -spektrometrischen Messergebnisse für die spätere Identifizierung der Modellparameter grob eingeteilt werden können:

- Der ^{241}Am -Gehalt der Probe liegt unter der Nachweisgrenze.
- Der ^{241}Am -Gehalt liegt zwar über der Nachweisgrenze, aber noch unter 60 mBq/g. Kontaminiertes Erdreich in diesen Aktivitätskonzentrationen kann somit uneingeschränkt freigegeben werden [31].
- Der ^{241}Am -Gehalt der Probe liegt über 60 mBq/g, aber unter 1000 mBq/g. Kontaminiertes Erdreich in diesen Aktivitätskonzentrationen kann somit eingeschränkt freigegeben werden.
- Der ^{241}Am -Gehalt der Probe liegt über 1000 mBq/g. Kontaminiertes Erdreich mit Aktivitätskonzentrationen in diesen Größenordnungen sind als radioaktiver Abfall zu behandeln.

Ziel der systematischen Beprobungsstrategie war, ein einigermaßen aussagekräftiges Bild über die Verteilung der Radionuklide, mit ^{241}Am als Schlüsselnuklid zu erhalten. Nach der Bewertung der Verdachtsflächen aufgrund der durchgeführten Orientierungsmessungen konnten die beiden übrig gebliebenen Verdachtsflächen TOX und ZS genauer beprobt werden, im Hinblick darauf, sich ein Bild über die Verteilung der Radionuklide mit ^{241}Am als Schlüsselnuklid machen zu können. Im dritten Teil dieser Arbeit soll versucht werden, dieses Verteilungsmuster auch mit einem geeigneten mathematischen Algorithmus abbilden zu können.

5.1 Beprobung der Verdachtsfläche TOX

Die horizontale Ausbreitung der ^{241}Am -Kontamination wurde auf der Verdachtsfläche TOX durch systematische Beprobung durchgeführt. Dazu wurde das Gelände mittels eines $1\text{ m} \times 1\text{ m}$ großen Rasters, Naturmaß, unterteilt (Abbildung 5.1).

An den Knotenpunkten des Rasters, also immer im Abstand von etwa 1 m zu einander, wurden jeweils etwa 1 l fassende Proben genommen: dazu wurde ein Quadrat von $10 \times 10\text{ cm}$

5.1 Beprobung der Verdachtsfläche TOX



Abbildung 5.1: Beprobungsraster auf Verdachtsfläche TOX

etwa 15 cm tief ausgehoben und in einen PE-Becher gefüllt (Abbildung 5.2). Die Probenbezeichnung erfolgte durch das Kürzel TOX, wodurch die systematische Beprobung an dieser Verdachtsfläche impliziert wurde, und einer fortlaufenden Nummer. Die erste Probenahme erfolgte direkt am Straßenrand und setzte sich weiter Richtung Sportplatz, etwa 100 m, bis zur Fernwärmeleitung, fort.

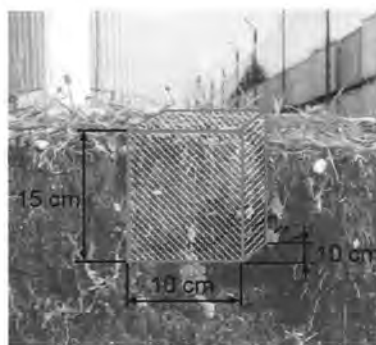


Abbildung 5.2: Illustration der Probennahme

Je nach Breite der Verdachtsfläche konnten in einer Reihe zwischen zwei und vier Proben nebeneinander genommen werden. Im untersten Teil konnten in den ersten sechs Reihen jeweils zwei Knotenpunkte beprobt werden, ab Probe Nummer TOX13 konnten vier Proben in einer Reihe genommen werden. Abbildung 5.3 illustriert diese Beprobungsstrategie, wobei eine qualitative Analyse in dieser Grafik bereits integriert ist.

5 Systematische Beprobung

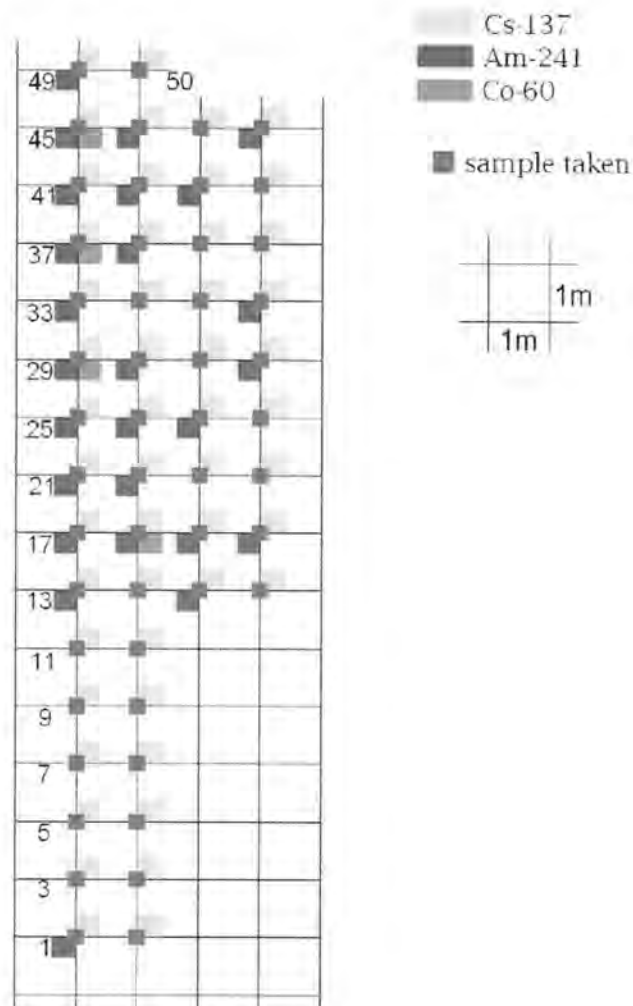


Abbildung 5.3: Illustration der Beprobung der Proben TOX1-TOX50

Ab Probe Nummer TOX121 musste aufgrund der baulichen Gegebenheiten die Beprobungsstrategie etwas geändert werden. Nach den in diesem Bereich durchgeführten Orientierungsmessungen, den OTOX-Proben, wurden sofort die ersten Sanierungsmaßnahmen gesetzt und das betroffene Areal etwa 30 cm tief abgegraben. Da aber die genauen Positionen der Orientierungsbeprobung bekannt waren, konnten die Aktivitätskonzentrationen der OTOX Proben nachträglich in den Beprobungsplan eingetragen werden. Daher wurde im sanierten Bereich zunächst entlang des ausgehobenen Teils beprobt. Im Anschluss an Probe Nummer TOX140 konnten wieder vier Beprobungspunkte pro Reihe genommen werden. In Summe wurden mit dieser Methode 280 Proben auf der Verdachtsfläche TOX genommen.

5.1 Beprobung der Verdachtsfläche TOX

Die Proben wurden direkt nach der Probenentnahme gammaspektrometrisch ausgewertet. Um dieses Probenaufkommen relativ rasch abzuarbeiten wurden die Proben in 1 l Marinelligeometrie gemessen. Da die Proben weder getrocknet noch homogenisiert wurden, sind diese Messergebnisse als Absolutwerte mit Vorsicht zu bewerten. Bei feuchten, inhomogenen Erdproben, die auch Steine und organisches Material enthalten, kann der Fehler der Aktivitätskonzentration bis zu 70 % betragen, wie im späteren Verlauf bei der Probenaufbereitung festgestellt wurde.

Der größte Messfehler kommt durch die größere Dichte der Bodenproben im Vergleich zu den verwendeten Kalibrierpräparaten zustande. Aber auch die Dichte der Bodenproben untereinander schwankt recht stark.

Um diese Schwankungen auszugleichen, wurde mittels ISOCS verschiedene Ausbeutekurven für unterschiedliche Dichten und der verwendeten Messgeometrien errechnet. Mit Hilfe dieser Ausbeutekurven konnten anschließend Dichtekorrekturfaktoren für die Bodenproben errechnet werden (Abbildung 5.4) [32].

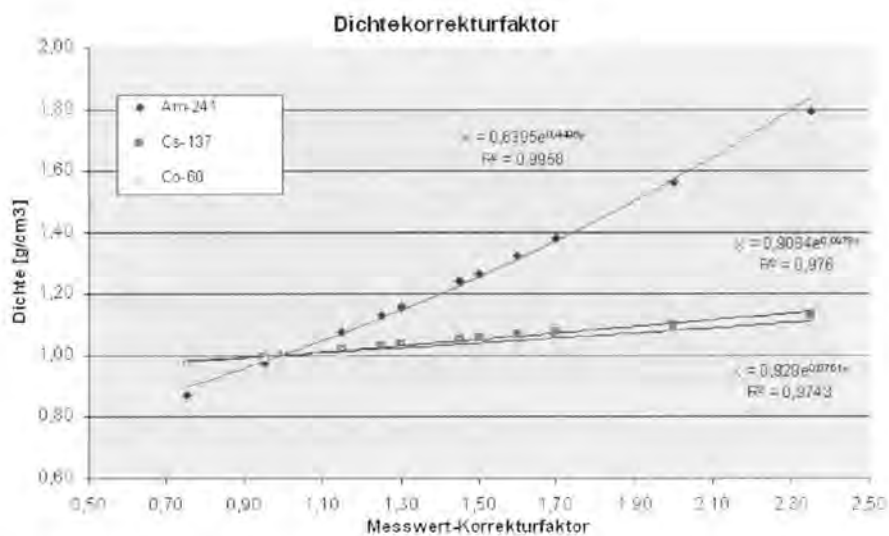


Abbildung 5.4: Dichtekorrekturfaktoren für 1000ml Marinellibecher

Die Aktivitätsverteilung von ^{241}Am auf der Verdachtsfläche TOX stellte sich als besonders interessant heraus. In einigen Bereichen schien diese Konzentration relativ homogen zu sein, vor allem in jenem Bereich, wo im Zuge der Orientierungsbeprobung die OTOX- Proben genommen wurden. Hier wurden Aktivitätskonzentrationen von bis zu 1300 mBq/g gefunden. Diese hohen Aktivitätskonzentrationen sammelten sich vor allem in dem Gebiet zwischen den beiden Sickerwasserschächten RP08 und RP09 (Abbildung .1). Außerhalb dieses Gebiets nahmen die Aktivitätskonzentrationen rasch ab und waren bald nur mehr vereinzelt zu finden. Abbildung

5 Systematische Beprobung

5.5 zeigt die Verteilung der Aktivitätskonzentration für ^{241}Am auf der Verdachtsfläche TOX. Die Darstellung der Messdaten erfolgt über das Computerprogramm Origin Pro.

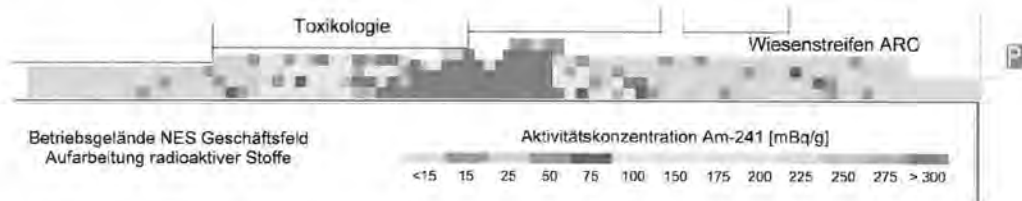


Abbildung 5.5: Verteilung der Aktivitätskonzentration auf der Verdachtsfläche TOX

Ein Teilausschnitt der Messdaten von Verdachtsfläche TOX wurde mit CorelDraw gezeichnet (Abbildung 5.6). Dabei wurden die Beprobungspunkte einschließlich ihrer Bezeichnung und deren farblich codierten Aktivitätskonzentration in den Beprobungsraster eingetragen. Auffallend ist, dass bei einem 1×1 m Raster die Aktivitätskonzentrationen untereinander keinen Ausgleich anstreben, wodurch auch kein Konzentrationsgradient festzustellen war.

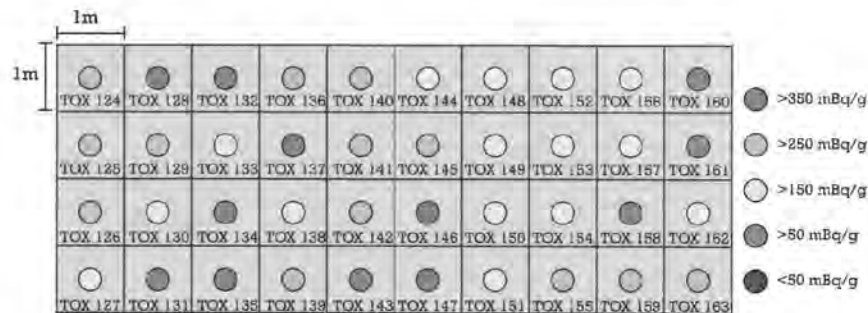


Abbildung 5.6: Ein Ausschnitt der Aktivitätskonzentration auf der Verdachtsfläche TOX

Bei Betrachtung der Abbildungen 5.5 und 5.6 scheint eine große Affinität des Transuranelements ^{241}Am zur Migration unwahrscheinlich. Mobile Teilchen, wie etwa ^{90}Sr , streben einen viel stärkeren Konzentrationsausgleich mit ihrer Umgebung an und werden auch von Pflanzen gerne aufgenommen [1], [2]. Eine Aufnahme von Transuranelementen durch Wachstum wurde in einer zuvor bereits erfolgten Beprobungsstrategie aber nicht gefunden [33]. Daher müsste im Fall einer Mobilität zumindest ein geringer Konzentrationsgradient festzustellen sein. Auch in der Literatur wurde immer wieder auf die verhältnismäßige Immobilität von Transuranelementen hingewiesen [18], [19].

Das Teilgebiet mit den höchsten Aktivitätskonzentrationen liegt zwischen drei Sickerwasserschächten, was die höchsten Konzentrationswerte in diesem Bereich zumindest teilweise

5.2 Beprobung der Verdachtsfläche ZS

erklärt. Jenes Teilgebiet, das durch die drei Sickerschächte abgegrenzt wurde, wies die mit Abstand höchsten Aktivitätskonzentrationen auf. Außerhalb davon fiel die Aktivitätskonzentration sehr rasch ab. Wenn Transuranelemente eine geringe Mobilität besäßen, würden sie einen Konzentrationsausgleich mit ihrer Umgebung anstreben und ein Konzentrationsgradient wäre feststellbar gewesen. Abgesehen davon sind in Teilgebieten mit starker Aktivitätskonzentration immer wieder auch Stückchenweise geringe Konzentrationen zu finden, und umgekehrt. Im Fall einer Mobilität von Transuranen hätte der Konzentrationsausgleich mit der Umgebung in kleinen Teilstücken in einer Zeitspanne von mehreren Jahren auf jeden Fall erfolgt sein müssen.

Die treibende Kraft der Migration stellt die Konvektion dar [34], [35]. Daher wäre es möglich, dass ein großer Teil der vorliegenden ^{241}Am -Kontamination mit dem Oberflächenwasser in Richtung der Sickerwasserschächte transportiert wurde.

Beim Transport des Oberflächenwassers zu Sickerwasserschächten und Sickergruben gibt es im Gelände meist so genannte präferenzielle Fließwege, die, wie kleine Kanäle, das überflüssige Wasser durch das Gelände Richtung Senke transportieren. Der Großteil des Oberflächenwassertransports erfolgt auch in diesem Kanalsystem [35]. Das Vorhandensein präferenzieller Fließwege gibt aber eine Erklärung, warum direkt neben einem Beprobungspunkt mit sehr hoher Aktivitätskonzentration ein Beprobungspunkt mit einer sehr geringen Aktivitätskonzentration vorliegen kann.

5.2 Beprobung der Verdachtsfläche ZS

Die Verdachtsfläche ZS sollte hinsichtlich einer etwaigen vertikalen Aktivitätskonzentrationsverteilung untersucht werden. Dazu wurden in dem schmalen Zaunstreifen ZS, der das NAGelände vom Gebiet der TOX trennt, an 17 verschiedenen Punkten Proben genommen. Die Auswahl der Probeentnahmepunkte erfolgte auch hier wieder systematisch: die Verdachtsfläche ZS wird von der Verdachtsfläche TOX durch einen Maschendrahtzaun getrennt, wobei ein Zaunfeld 2, 50 m lang ist. Beginnend mit der Bezeichnung Zaunfeld 1 im Bereich der stärksten Kontamination auf Verdachtsfläche TOX, wurde in der Mitte eines jeden Zaunfeldes eine Bodenprobe entnommen.

Die Probeentnahme selbst erfolgte dabei analog zu der Probenahme auf der Verdachtsfläche TOX, es wurde das Volumen eines Würfels mit einer Grundfläche von 10×10 cm und etwa 15 cm Tiefe ausgehoben. Die Probenbezeichnung lautete hier ZSX Y, wobei X für die Koordinate des Zaunfeldes und Y für die Tiefe steht, also 0 für eine Probeentnahme direkt an der Oberfläche, 15 für den darunter liegenden Würfel und 30 für eine dritte Probenahme an einem Punkt X. Die Humusschicht selbst ist in diesem Bereich zwischen 10 – 25 cm dick auf der Schottererschicht aufgetragen. Abbildung 5.7 zeigt ein ausgehobenes Tiefenprofil.

Für die Auswertungen der auf der Verdachtsfläche ZS entnommenen Proben wurde bereits auf einen rudimentär erstellten Nuklidvektor (Kapitel 9) zurückgegriffen [36]. Unter Berücksichtigung der in den Bodenproben enthaltenen Plutoniumisotopen liegt der Freigabewert für die

5 Systematische Beprobung

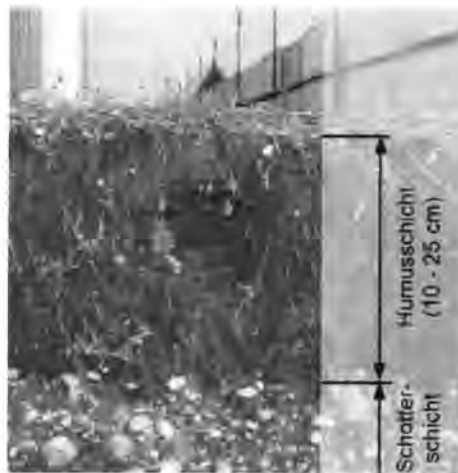


Abbildung 5.7: Tiefenprofil auf der Verdachtsfläche ZS

uneingeschränkte Freigabe für ^{241}Am bei 15 mBq/g. Die Verkleinerung des Grenzwerts für eine uneingeschränkte Freigabe von 60 mBq/g auf 15 mBq/g erfolgt über die Verhältnisse der in den Bodenproben festgestellten Transuranisotopen zu einander.

An jenen 17 Beprobungspunkten wurde jeweils der erste, oberflächennahe Probenwürfel genommen und gammaspektrometrisch in 1 l Marinelligeometrie bei einer Messzeit von 3600 s gemessen. Lag die Aktivitätskonzentration unter 15 mBq/g, so wurde davon ausgegangen, dass das Gebiet rund um den Probeentnahmepunkt als *sauber* anzusehen ist, andernfalls wurde eine weitere Probe in der Tiefe zwischen 15–30 cm genommen und ebenfalls gammaspektrometrisch analysiert. Gegebenenfalls wurde eine dritte Probe am Probeentnahmepunkt genommen. Tabelle 5.1 zeigt die Ergebnisse der Beprobung am Zaunstreifen ZS.

Anhand Tabelle 5.1 ist gut zu ersehen, dass ^{241}Am hauptsächlich in der oberflächennahen Schicht vorliegt und stimmt damit auch mit bereits publizierten Arbeiten über die Migration von ^{241}Am überein [37]. In der darunter liegenden Schicht ist oft nur mehr etwa 10 % des in der obersten Schicht vorhandenen ^{241}Am präsent. In 16 von 17 Probeentnahmepunkten war ^{241}Am in den beiden oberen Schichten merklich vorhanden, in der dritten Schicht lag die Aktivitätskonzentration bereits jenseits von 15 mBq/g.

Die einzige Ausnahme ist der Probeentnahmepunkt ZS01, wo ^{241}Am auch deutlich in der dritten Schicht nachzuweisen war. In diesem Zusammenhang wichtig zu erwähnen ist die Tatsache, dass dieser Probeentnahmepunkt sich direkt neben einem Sickerschacht befand. Hier liegt wieder die Vermutung nahe, dass Transurane mit dem Oberflächenwasser Richtung Sickerschächte geschwemmt um dort in die Tiefe transportiert zu werden.

Es zeigte sich, dass ^{241}Am im Großen und Ganzen auf Verdachtsfläche ZS in jenem Bereich seine höchsten Aktivitätskonzentrationen aufweist, wo auch angrenzend an Verdachtsfläche

5.2 Beprobung der Verdachtsfläche ZS

Zaunfeld Nr.	Entnahmetiefe [cm]	²⁴¹ Am [mBq/g]
ZS01 0	0 – 15 cm	1180
ZS01 15	15 – 30 cm	280
ZS01 30	30 – 45 cm	35
ZS02 0	0 – 15 cm	820
ZS02 15	15 – 30 cm	125
ZS02 30	30 – 45 cm	≤ 15
ZS03 0	0 – 15 cm	370
ZS03 15	15 – 30 cm	130
ZS03 30	40 – 45 cm	≤ 15
ZS04 0	0 – 15 cm	120
ZS04 15	15 – 30 cm	70
ZS04 30	30 – 45 cm	≤ 15
ZS05 0	0 – 15 cm	300
ZS05 15	15 – 30 cm	30
ZS05 30	30 – 45 cm	≤ 15
ZS06 0	0 – 15 cm	110
ZS06 15	15 – 30 cm	30
ZS06 30	15 – 30 cm	≤ 15
ZS07 0	0 – 15 cm	110
ZS07 15	15 – 30 cm	≤ 15
ZS08 0	0 – 15 cm	145
ZS08 15	15 – 30 cm	≤ 15
ZS09 0	0 – 15 cm	20
ZS09 15	15 – 30 cm	≤ 15
ZS10 0	0 – 15 cm	27
ZS10 15	15 – 30 cm	26
ZS10 30	30 – 45 cm	≤ 15
ZS11 0	0 – 15 cm	≥ 15
ZS11 15	15 – 30 cm	≤ 15
ZS12 0	0 – 15 cm	≥ 15
ZS12 15	15 – 30 cm	≤ 15
ZS13 0	0 – 15 cm	≥ 15
ZS13 15	15 – 30 cm	≤ 15
ZS14 0	0 – 15 cm	≥ 15
ZS14 15	15 – 30 cm	≤ 15
ZS15 0	0 – 15 cm	≥ 15
ZS15 15	15 – 30 cm	≤ 15
ZS16 0	0 – 15 cm	21
ZS16 15	15 – 30 cm	≤ 15
ZS17 0	0 – 15 cm	≥ 15
ZS17 15	15 – 30 cm	≤ 15

Tabelle 5.1: Beprobung der Verdachtsfläche ZS

5 Systematische Beprobung

TOX die höchsten Aktivitätskonzentrationen zu finden waren. Auch die vertikale Verteilung von ^{241}Am war umso geringer ausgeprägt, je weiter weg man von diesem Bereich entfernt war.

6 Aufschließen der Bodenproben

Zur Analyse der Bodenproben hinsichtlich der Transuranelemente Plutonium und Americium ist ein Aufschließen der Proben mit unterschiedlichen Trennmethoden erforderlich.

^{241}Am ist das Tochternuklid von ^{241}Pu , und wird im Reaktorkern durch Neutronenbeschuss von ^{239}Pu zu ^{241}Pu aufgebracht, das mit einer Halbwertszeit von 14,35 Jahren unter Aussendung eines β -Teilchens zu ^{241}Am zerfällt. Somit wäre es interessant festzustellen, ob auch das Mutternuklid, ^{241}Pu , in den Bodenproben von Verdachtsfläche TOX zu finden ist. Da bei diesem β -Zerfall keine begleitenden γ -Quanten mit ausgesendet werden, muss für die Analyse von ^{241}Pu auf eine andere Messmethode, der LSC, zurückgegriffen werden.

Allerdings ist eine Analyse von Bodenproben hinsichtlich ^{241}Pu alles andere als trivial, da dieses in der vorliegenden Form, eingebettet in einer Bodenmatrix, nicht geeignet ist, direkt an der LSC gemessen zu werden, da die Szintillatormoleküle nicht weit genug zu den in der Matrix fixierten Radionuklide herankommen. Daher muss ^{241}Pu aus der Bodenprobe abgetrennt werden.

Diese Abtrennung von ^{241}Pu erfolgt mit radiochemischen Methoden, und da chemische Methoden elementspezifisch, aber nicht nuklidspezifisch arbeiten, werden bei Abtrennen von ^{241}Pu auch die anderen Pu-Isotope ^{238}Pu , ^{239}Pu und ^{240}Pu mitgerissen¹. Mit ein wenig Mehraufwand können daher auch etwaige α -emittierende Pu-Isotope ebenfalls analysiert werden. Alle Pu-Isotope zählen dabei zur Gruppe der HTM²-Nuklide.

Die quantitative Analyse von HTM-Nuklide ist in jedem Fall mit einem großen Zeit- und Kostenaufwand³ verbunden. Aus diesem Grund konnten nicht alle 270 Bodenproben der Verdachtsfläche TOX analysiert werden. Daher wurden von den Verdachtsflächen TOX und ZS 15 Bodenproben (judgemental) gewählt und auf HTM-Nuklide untersucht. Mit ^{241}Am als Schlüsselnuklide sollte später ein Nuklidvektor für die Transuranelemente der Verdachtsflächen TOX und ZS ermittelt werden (Kapitel 9).

Das wichtigste Kriterium der meisten ausgewählten Bodenproben waren deren hohe Aktivitätskonzentration hinsichtlich ^{241}Am . Denn die Trennungsvorfahren für ein Pu-Trennung waren noch lange nicht so ausgereift, dass sofort mit einem leicht nachvollziehbarem und exakten Er-

¹Idealerweise erfolgt die Abtrennung so weit, bis das gesuchte Radionuklid in Reinform vorliegt.

²Zu den HTM (hard to measure) zählen jene Nuklide, die nicht über ein einfaches Messverfahren wie die Gammaskpektrometrie quantifiziert werden können. Dazu zählen unter anderem: ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu , ^{90}Sr , ^{55}Fe , ^{14}C , ^3H , u.v.a. [36].

³Kosten für Chemikalien, Messpersonal, Gerätewartung, etc. ...

6 Aufschließen der Bodenproben

gebnis gerechnet werden konnte. Bei Verwendung von hochaktiven Proben hingegen kann man sich die Arbeit bei der Trennung erleichtern. Um die Ergebnisse auch auf Proben niedrigerer Aktivitätskonzentrationen umsetzen zu können, wurden im Anschluss auch Proben mit einer vergleichsweise geringen ^{241}Am -Aktivitätskonzentration analysiert. Im Endeffekt setzten sich die Proben für die radiochemischen Analysen aus zwei verschiedenen Gruppen zusammen:

- RAD-Proben: Bei RAD⁴ handelt es sich um 10 Proben, die an der Stelle mit der höchsten ^{241}Am -Aktivitätskonzentrationen entnommen wurden. Diese Proben wiesen Werte zwischen 8 Bq/g – 60 Bq/g auf.
- OTOX-Proben: Die OTOX⁵ wurden bereits während der Orientierungsbeprobung von Verdachtsfläche entnommen und haben Aktivitätskonzentrationen im mittleren Aktivitätsbereich, von 1,5 Bq/g - 78 Bq/g.

Tabelle 6.1 zeigt die Aktivitätskonzentration jener 16 Erdproben an, die für die weitere radiochemische Analyse ausgewählt wurden.

Probe Nr.	^{241}Am [mBq/g]	Probe	^{241}Am [mBq/g]
RAD0	36 560	RAD8	8 000
RAD1	60 360	RAD9	8 800
RAD2	27 560	OTOX1	3200
RAD3	39 810	OTOX2	1600
RAD4	16 640	OTOX3	3500
RAD5	29 930	OTOX4	2900
RAD6	26 000	OTOX8	38000
RAD7	5 500	OTOX9	220

Tabelle 6.1: ^{241}Am -Aktivitätskonzentrationen der Erdproben.

6.1 Extraktion von ^3H und ^{14}C

Für die HTM-Nukliden ^3H und ^{14}C gibt es keine Hinweise, auf ein gemeinsames Vorkommen mit Transuranelementen in Böden. Dennoch wurden einige ausgewählte Proben hinsichtlich des Tritium und ^{14}C -Gehalts analysiert, um sich ein vollständiges radiologisches Bild von der Verdachtsfläche TOX machen zu können.

Für diese Analysen wurden die Proben OTOX1, OTOX2, OTOX4 und OTOX8 herangezogen. Um die beiden HTM-Nuklide zu bestimmen, wurde zunächst ein 10 – 15 g fassendes Aliquot der Probe in ein Porzellanschiffchen eingewogen und bei 1000°C in einem Rohofen 20 min lang geglüht.

⁴RAD...radiochemische Analysen

⁵OTOX... Orientierungsmessung Verdachtsfläche Toxikologie

6.1 Extraktion von ^3H und ^{14}C

Die Abgase wurden durch einen zweiten, in Serie geschalteten Ofen geleitet und dort ein zweites Mal geglüht. Es hatte sich herausgestellt, dass bei einem einmaligen Glühvorgang organische Reste zu den nachfolgenden Fallen. In den so genannten Fallen werden die bei der Verbrennung abtransportierten ^3H - und ^{14}C -Teile aufgehalten. Um den Transport Richtung Fallen zu beschleunigen, wurde der Verbrennungsraum mit Druckluft gespeist. An den zweiten Rohrofen waren die entsprechenden ^3H - und ^{14}C - Fallen angeschlossen (Abbildung 6.1).

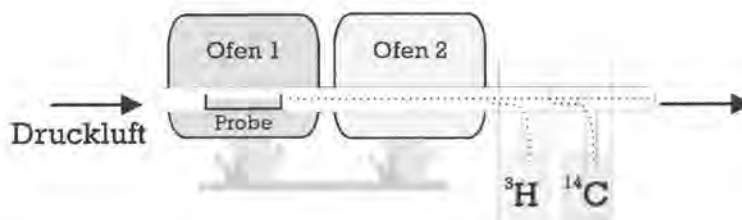


Abbildung 6.1: Schematische Darstellung für die Extraktion von ^3H und ^{14}C

Eine ^3H - Falle bestand aus zwei aufeinander folgende Waschflaschen, die jeweils mit etwa 120 g 0,05 molarer Salpetersäure⁶ gefüllt waren. Dieses schwach saure Milieu ist ^3H gegenüber sehr affin und absorbiert dieses Gas selektiv in der Form von Wasserdampf. Praktischerweise hat diese Lösung keinerlei Affinität gegenüber ^{14}C [36]. Die ^{14}C - Falle war an die ^3H - Falle in Serie geschaltet und bestand ebenfalls aus zwei aufeinander folgende Waschflaschen, die mit etwa 120 g 2N NaOH⁷ gefüllt waren.

Um den Anreicherungsgrad festzustellen wurden nach dem Glühen die vier Waschflaschen gewogen. Danach konnte jeweils ein 2 g fassendes Aliquot entnommen und in ein 20 ml TriCarb-Vial gefüllt werden.

^3H ist ein sehr weicher β -Strahler, dessen Maximalenergie bei 19 keV liegt. Die eingewogenen ^3H - Proben wurden mit jeweils 16 ml LLT-Cocktail (LLT - Low Level Tritium, für niederenergetische β -Strahler) aufgefüllt. Die Maximalenergie von ^{14}C liegt bei 156 keV, die eingewogenen Proben wurden in diesem Fall mit 18 ml XR-Cocktail (XR, für hochenergetische β -Strahler) aufgefüllt.

Weiters wurde für die LSC-Messung je eine Leerwertprobe und eine Standardprobe bereitet. Für die Leerwertprobe wurden 2 g 0,05N HNO_3 mit 16 ml LLT-Cocktail, respektive 2 g NaOH mit 18 ml XR-Cocktail gemischt. Als ^{14}C -Standard wurde eine in Tablettenform erhältliche, mit ^{14}C markierte Saccharose ($\text{C}_{12}\text{H}_{22}\text{O}_{11}$) der Firma Amersham gewählt, die entsprechend

⁶Kleiner Exkurs zur Herstellung einer 0,05N Salpetersäure: Die Molmasse von HNO_3 beträgt 63,01 g/mol, 1 mol HNO_3 entspricht dabei 63,01 g. Um eine 0,05N Salpetersäure zu erhalten, müssen 0,315 g HNO_3 auf 1 l Wasser aufgefüllt werden.

⁷Die Molmasse von NaOH beträgt 40 g/mol, daher betrug die Einwaage für eine 2 normale Natronlauge 80 g.

6 Aufschließen der Bodenproben

zu den in den ^{14}C -Fallen, in Natronlauge gelöst wurde. Als ^3H -Standard wurde eine in Tablettenform erhältliche, mit ^3H markierte Fructose ($\text{C}_6\text{H}_{12}\text{O}_6$) der Firma DuPontNEW verwendet. Beide Standards wurden in PE-TriCarb-Vials eingewogen und mit dem entsprechenden Cocktail aufgefüllt.

Die vier Proben, in acht TriCarb-Vials, die Leerwerte und die Standards wurden am Wallac Quantulus 1220 je 100 min lang gemessen. Die beiden zu analysierenden HTM Nukliden konnten dabei in den Proben kaum nachgewiesen werden.

6.2 Auslaugen der Bodenproben

Um die ausgewählten Bodenproben weiter hinsichtlich Sr- oder Pu-Isotope analysieren zu können, mussten diese zunächst einmal von der Matrix der Bodenprobe abgetrennt und in Lösung gebracht werden. Dieser Vorgang wird als Auslaugprozess oder als *Leaching* bezeichnet.

Zunächst wurde die Bodenprobe acht Stunden lang bei einer Ofentemperatur von $600\text{ }^\circ\text{C}$ getrocknet, um etwaige, in der Probe vorhandene organische Anteile zu verkoken. Dieser Vorgang dauerte in etwa einen Arbeitstag lang.

Nach einem weiteren Tag war die getrocknete Bodenprobe wieder abgekühlt und konnte mit einer Kugelmühle auf eine Korngröße von etwa $3\text{ }\mu\text{m}$ gemahlen werden, da sich Proben mit einer feinen Körnung aufgrund der größeren Oberfläche besser und vollständiger auslaugen lassen.

Durch Zugabe einer Säure wurden während des Auslaugens in der Bodenprobe vorhandene, bzw. oberflächlich adsorbierte Bestandteile in Lösung gebracht. Dies geschah aber nur unter der Voraussetzung, dass diese Bestandteile (z.B. Transurane) in der zugesetzten Säure auch löslich waren.

Dazu wurden jeweils 50 g einer Probe in einen Rundkolben eingewogen und nach Zugabe von 250 ml 8N HNO_3 etwa acht Stunden lang kochend gelaugt. Dabei gehen löslich Elemente, wie z.B. Li, Na, Mg, Al, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, Cd, Sr, Am, Pu, in die flüssige Phase über. Nicht lösliche Bestandteile wie Silikate oder Carbonate bilden den Rückstand. Aber auch Transurane können in nichtlöslicher Form vorliegen und so zum Rückstand beitragen. Nach dem Auslaugen wurden die Bodenproben mit Hilfe einer Vakuumpumpe dekantiert.

Der getrocknete Rückstand betrug im Schnitt etwa 25 g pro Probe und wurde hinsichtlich des Restgehalts an ^{241}Am -Gehalts γ -spektrometrisch analysiert (Tabelle 6.2).

6.2 Auslaugen der Bodenproben

Das Eluat der Probe betrug im Durchschnitt 200 – 400 g⁸ und wurde in eine PE-Flasche gefüllt, wo es bis zur weiteren Analyse aufbewahrt wurde. Dem Eluat wurde jeweils ein Aliquot von 20 ml entnommen, in ein PE-TriCarb-Vial gefüllt und ebenfalls γ -spektrometrisch ausgewertet. Aber auch dem getrockneten Rückstand wurde ein Aliquot entnommen, in ein TriCarb-Vial gefüllt und gammaspektrometrisch ausgewertet. Tabelle 6.2 zeigt die Aktivitätskonzentrationen der Erdproben in Vergleich zu deren Eluaten und Rückständen.

Probe Nr.	Erde [Bq/g]	Rückstand [mBq/g]	Eluat [Bq/g]
RAD0	36,6	315	3210
RAD1	60,36	225	5480
RAD2	27,56	1066	3640
RAD3	39,81	697	5040
RAD4	16,64	447	2130
RAD5	29,93	599	3850
RAD6	26	4622	5360
RAD7	5,5	1208	4590
RAD8	8	739	1800
RAD9	8,8	292	2190
OTOX1	0,22	145	410
OTOX4	0,74	159	290
OTOX9	0,22	<NG	50

Tabelle 6.2: Resultate aus dem Leaching der Bodenproben

Die Proben OTOX2, OTOX3 und OTOX8 wurden je dreifach gelaugt um die Wirksamkeit des Auslaugprozesses innerhalb des Probenmaterials vergleichen zu können. Da, wie in Tabelle 6.3 ersichtlich, die Aktivitätskonzentrationen jeweils dreier Eluate bei einer Messzeit von 100 s nur wenig schwankt, kann davon ausgegangen werden, dass das Auslaugen der Erdproben einigermaßen gleichmäßig verlief.

⁸Die Masse des Eluats ist von der jeweiligen Wassermenge, mit der der Filterkuchen nachgewaschen wurde, abhängig.

6 Aufschließen der Bodenproben

Probe	Erde ^{241}Am [mBq/g]	Eluat ^{241}Am [mBq/g]
OTOX 2/1	1600	270
OTOX 2/2		280
OTOX 2/3		300
OTOX 3/1	3200	470
OTOX 3/2		450
OTOX 3/3		500
OTOX 8/1	38000	5740
OTOX 8/2		5840
OTOX 8/3		5770

Tabelle 6.3: Paralleles Auslaugen der Proben OTOX2, OTOX3 und OTOX 8

7 ^{90}Sr -Analysen der Bodenproben

Im Zuge des Projekts Geländekontaminationskatasters wurde an einigen Geländeabschnitten vereinzelt auch ^{90}Sr gefunden. Um sich über die radiologische Situation bezüglich dieses Radionuklids auch auf Verdachtsfläche TOX ein Bild machen zu können, wurden einige Proben parallel zu den Pu-Analysen, hinsichtlich einer Strontiumaktivität analysiert. Für die Analysen selbst wurden sechs Proben des TOX-Areals herangezogen: RAD0, RAD1, RAD2, RAD3, RAD4 und RAD5.

Auch eine ^{90}Sr -Analyse ist über die Gammaskpektrometrie nicht durchführbar, da ^{90}Sr bei seinem β -Zerfall keine begleitende γ -Strahlung emittiert. Eine ^{90}Sr -Analyse kann aber mittels LSC erfolgen, wobei man sich der wahrscheinlichsten Emissionslinie für die ausgesandte β -Energie bedient. Diese liegt für ^{90}Sr bei 500 keV und für ^{90}Y bei 2186 keV [6].

In Kapitel 6 wurde bereits beschrieben, wie die löslichen Nuklide der Erdproben von Verdachtsfläche TOX aus der Bodenmatrix abgetrennt und in Lösung gebracht wurden. Für eine LSC-Messung muss aber Strontium weiter aus dem Eluat der Bodenprobe abgetrennt werden. Die chromatographische Trennung erfolgte mittels Eichrom Sr-Resin, einem Harz mit einer Korngröße von 100 – 150 μm und wurde weitgehend nach [38] durchgeführt. Für die Proben RAD0-RAD3 wurden bereits von Eichrom vorgefertigte Säulen benutzt, für die Proben RAD4 und RAD5 wurden die Säulen selbst gefertigt.

Um eine Chromatographiesäule zu bereiten, wurde das untere Ende einer etwa 15 cm langen und 1 cm dicken Glassäule mit ein wenig Glaswolle und einem Filterpapier versehen, mit 3 g Sr-Harz gefüllt und obenauf wieder mit einem Filterpapier versehen. Anschließend wurde die Säule mit 30 ml 3N HNO_3 konditioniert. Um die Flüssigkeit mit kontrollierter Geschwindigkeit durch die Säule zu leiten wurde mittels einer Schlauchpumpe die Durchsickergeschwindigkeit konstant auf einen Tropfen pro Sekunde gehalten.

Für den Fall dass der ^{90}Sr -Gehalt der Proben sehr gering sein würde, wurde für die Chromatographie vorsorglich die Probe gemeinsam mit etwa 100 mg eines inaktiven Tracers eingewogen. Als Tracermaterial wurde Strontiumnitrat ($\text{Sr}(\text{NO}_3)_2$) gewählt. Durch Zugabe eines inaktiven Tracers können Verluste des aktiven Materials durch Adhäsion an der Säulenwand, etc., minimiert werden. Somit wird die Effizienz der chemischen Trennung verbessert und die Analytik erleichtert. Ein inaktiver Tracer liefert dementsprechend keinen Beitrag bei der nachfolgenden Messung mittels LSC.

7 ^{90}Sr -Analysen der Bodenproben

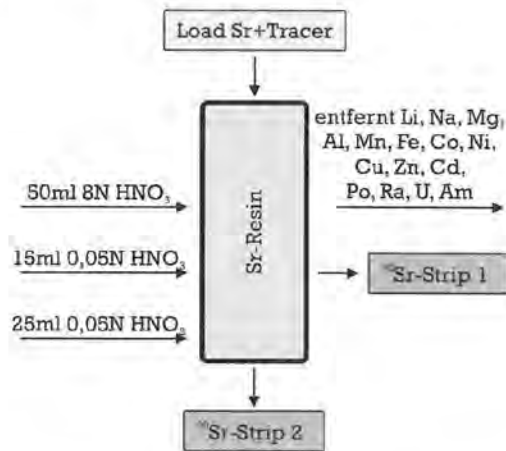


Abbildung 7.1: Schematische Darstellung des Trennverfahrens für ^{90}Sr

Abschließend konnte die Säule mit etwa 5 g der getracerten Probe beladen werden (*Load*). Der Beladung folgte der Waschvorgang mit 50 ml 3N HNO_3 (*Wash*), wodurch sämtliche Radionuklide, ausgenommen Sr bzw. Pu aus dem Harz herausgewaschen wurden. Load und Wash, zusammen etwa 60 ml, wurden in einem Becherglas aufgefangen, ein Aliquot von 20 ml wurde in ein Tricarb-Vial gefüllt und gamma-spektrometrisch überprüft. Theoretisch sollte sich der gesamte ^{241}Am -Anteil des Eluats nun im Wash befinden. (Abbildung 7.1)

In der Folge konnte das in der Säule verbliebene ^{90}Sr aus dem Harz in zwei Etappen eluiert werden. Im ersten Schritt, *Strip 1*, wurde die Säule mit 15 ml 0,05N HNO_3 gewaschen. In strip 1 soll sich kaum ^{90}Sr befinden, außerdem wurde die Acidität der 0,05N HNO_3 , mit der *Strip 1* ausgewaschen wurde, aufgrund der in der Säule noch befindlichen 8N HNO_3 stark erhöht. Für eine allfällige LSC-Analyse müsste daher die Probe eingedampft werden. Der zweite Strip erfolgt mit 25 ml 0,05N HNO_3 , in dieser Fraktion sollte sich laut [38] fast der gesamte ^{90}Sr -Anteil befinden.

Schlussendlich wurde jeweils Strip 2 dieser sechs Proben mittels LSC gemessen. Dazu wurde ein Aliquot von 5 ml in ein PE-Tricarb-Vial eingewogen und mit 15 ml AB Cocktail aufgefüllt. Die Messung erfolgte am Wallac Quantulus 1200 bei einer Messzeit von 100 min im Hochenergie β -Modus. Die Einwaagen und Ergebnisse der ^{90}Sr -Analysen sind in Tabelle 7.1 zusammengefasst.

Da der Grenzwert für die uneingeschränkte Freigabe für ^{90}Sr bei 2 Bq/g liegt, [31] und der ^{90}Sr -Gehalt der Bodenproben bei maximal einem Vierzigstel liegt, kann davon ausgegangen werden, dass auf dem Geländeabschnitt TOX keine nennenswerten ^{90}Sr -Kontaminationen eingetreten sind.

7.1 Pu-Analyse des Sr-Strips

	RAD0	RAD1	RAD2	RAD3	RAD4	RAD5
Eluat [g]	24,42	23,96	24,88	24,83	24,78	24,82
$Sr(NO_3)_2$ [mg]	102	103	107	100	103	107
Load [g]	5,04	5,03	5,02	5,0	5,02	5,03
strip 1 [g]	13,02	14,28	16,58	16,97	13,11	12,36
strip 2 [g]	32,07	32,18	30,11	29,5	30,15	26,43
LSC [g]	4,83	5,05	4,75	4,81	5,01	5,06
^{90}Sr [Bq/g]	0	0,52	0,11	0,14	0,1	0,4

Tabelle 7.1: Einwaagen und Ergebnisse für die Erdproben der ^{90}Sr Analysen

7.1 Pu-Analyse des Sr-Strips

Allerdings konnte im β -Spektrum dieser Analysen im niederenergetischen Bereich, in jenen Kanälen, wo an sich ^{241}Pu zu erwarten wäre, ein ^{241}Pu -Peak gefunden werden. Anscheinend geht bei der Sr-Trennung auch Pu in den Strip mit. Daher wurden die Proben ein weiteres Mal, diesmal im α/β -Modus gemessen. Aufgrund des Verhältnisses zwischen Impulshöhe und Impulslänge konnte bereits eine erste Separation hinsichtlich der unterschiedlichen Pu-Isotope getroffen werden. Im β -Fenster (Kanäle 10...250) wurden die Zählraten für das β -strahlende Nuklid ^{241}Pu aufgezeichnet, im α -Fenster (Kanäle 550...700) die der α -emittierenden Nuklide ^{238}Pu , ^{239}Pu und ^{240}Pu . Abbildung 7.2 zeigt das Spektrum des Sr-Strips der Probe RAD0 und das aufgenommene Spektrum eines Sr-Standards. Es ist eindeutig ersichtlich, dass in dieser Probe kein ^{90}Sr vorhanden ist.

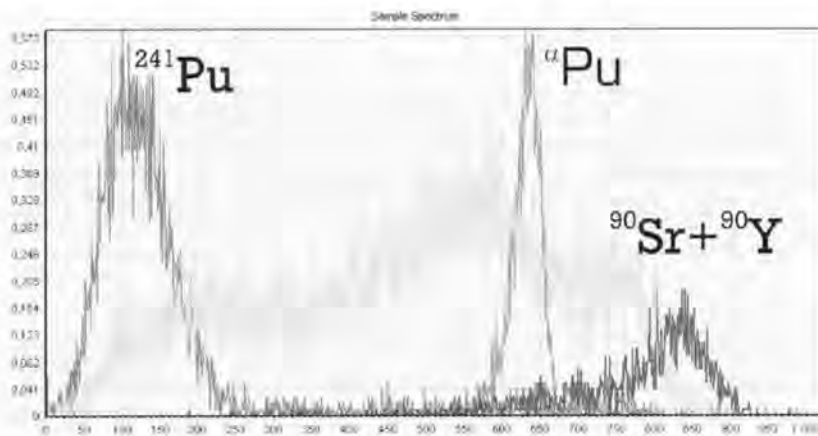


Abbildung 7.2: ^{90}Sr -Strip der Proben versus ^{90}Sr -Standard

7 ^{90}Sr -Analysen der Bodenproben

Da die Trennung elementspezifisch erfolgte, mussten auch α -emittierende Pu-Isotope, sofern in der Bodenprobe vorhanden, sich ebenfalls im Strip befinden.

Um sich einen großen Arbeitsschritt, nämlich die Abtrennung von Pu aus dem Eluat der Bodenprobe zu ersparen, wurde versucht, die Pu-Analysen aufgrund dieses ^{241}Pu -Peaks durchzuführen.

Dazu wurden von den Zählraten der betroffenen Kanäle die Leerwerte abgezogen, mit der Detektorausbeute korrigiert und anschließend über eine Schlussrechnung auf die Aktivitätskonzentration der Erdprobe in [Bq/g] zurückgerechnet. Dabei wurde die Zählrate in [Impulse pro Sekunde] mit der Menge des Strip2 multipliziert und durch das Produkt vom Aliquot des Strips 2, das für die LSC Messung eingewogen wurde, und der Beladung der Säule, dividiert.

Um von der Aktivitätskonzentration der Aufschlusslösung auf die Aktivitätskonzentration pro Gramm Erde zu kommen, muss die Aktivitätskonzentration der Aufschlusslösung noch um einen Faktor, der aus dem Quotienten der Eluatmenge und der Einwaage der Bodenprobe besteht, erweitert werden. Tabelle 7.2 zeigt die durch die Sr-Trennung ermittelten Aktivitätskonzentrationen für Plutonium.

	RAD0	RAD1	RAD2	RAD3	RAD4	RAD5
^{241}Am [Bq/g] Erde	35,6	60,36	27,52	39,80	16,64	29,93
^{241}Pu [Bq/g] Erde	20,80	46,49	36,79	19,24	5,34	81,42
$^{\alpha}\text{Pu}$ [Bq/g] Erde	2,99	6,69	5,31	2,72	0,90	11,61
Alter [a]	84,9	78,6	67,1	88,4	97,0	52,8

Tabelle 7.2: Ergebnisse der Pu-Analyse aufgrund der Sr-Trennung

In der letzten Zeile von Tabelle 7.2 ist das ermittelte radiologische Alter des Isotopengemisches angegeben, d.h., jener Zeitpunkt, ab dem kein weiteres ^{241}Pu mehr erbrütet wurde, und ^{241}Am aufgrund des radioaktiven Zerfalls nachwachsen konnte. Die Berechnung des Alters der Mischung resultiert aus jener Differentialgleichung, die das Verhältnis aus Mutter- und Tochternukliden beschreibt, und nach t umgeformt wird.

Dabei sei $N_2(t)$ wieder die Anzahl der Tochternuklide ^{241}Am zum Zeitpunkt t , $N_1(t)$ die Anzahl der Mutternuklide ^{241}Pu zum Zeitpunkt t , bzw. N_1^0 und N_2^0 die jeweiligen Nuklide zum Zeitpunkt $t = 0$. Weiters stellt λ_1 die Zerfallskonstante für das Mutternuklid ^{241}Pu und λ_2 die Zerfallskonstante für das Tochternuklid ^{241}Am dar, und t die bereits verstrichene Zeit.

7.2 Bestimmung der Extraktionsausbeuten

$$\begin{aligned}N_2(t) &= \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} \cdot N_1(t_0) \left(e^{-\lambda_1 \cdot t} - e^{-\lambda_2 \cdot t} \right) \\N_2(t) &= \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} \cdot N_1(t) \cdot e^{\lambda_1 \cdot t} \left(e^{-\lambda_1 \cdot t} - e^{\lambda_1 t - \lambda_2 \cdot t} \right) \\ \rightarrow t &= \frac{1}{\lambda_2 - \lambda_1} \cdot \ln \left(\frac{\lambda_2 - \lambda_1}{\lambda_1} \frac{N_2(t)}{N_1(t)} \right)\end{aligned}$$

Bei Berechnung des radiologischen Alters nach dem Zerfallsgesetz für Mutter-Tochtersysteme ergibt sich eine Diskrepanz in Tabelle 7.2. Anhand der ^{241}Am und ^{241}Pu -Konzentrationen wurde ein durchschnittliches radiologisches Alter von knapp 80 Jahren ermittelt. Allerdings waren beide anthropogenen Nuklide, ^{241}Am und ^{241}Pu vor 80 Jahren noch nicht einmal entdeckt. Anscheinend wurde bei der Sr-Trennung zuviel Pu in der Säule zurückgehalten. Daher musste, um auch Pu aus dem Eluat abzutrennen, ein anderes Verfahren herangenommen werden.

7.2 Bestimmung der Extraktionsausbeuten

Um die Extraktionsausbeute von ^{90}Sr in der Probe zu bestimmen, wurden jeweils 8 g der Urprobe (Urprobe: getrocknete und homogenisierte Erdprobe) und 8 g des korrespondierenden Rückstands (Der getrocknete, homogenisierte Filterkuchen, der nach dem Auslaugen übrig blieb.) mit jeweils 2 g Wachspulver (Hoechst Wachs C Mikropulver) homogen gemischt. Diese Einwaagen wurden in einem hydraulischen Presswerkzeug in einer Hydraulikpresse mit einer Kraft von 250 kN zu einer Tablette mit 40 mm Durchmesser verpresst. Beide Presslinge wurden anschließend mittels RFA auf deren Spurenelemente und somit auch hinsichtlich Sr, analysiert. Die Ergebnisse der Spurenelementanalyse sind in Anhang B aufgelistet.

Die Extraktionsausbeute für ^{90}Sr lässt sich einfach berechnen, indem man die Differenz der Strontiumkonzentration der Urprobe, korrigiert mit der Einwaage und der Strontiumkonzentration des Rückstands, ebenfalls mit der Einwaage korrigiert, durch die Einwaagenkorrigierte Strontiumkonzentration der Urprobe dividiert. Die mittlere Ausbeute beträgt 85,36 %, wobei die relative Standardabweichung bei 7,35 % liegt.

7 ^{90}Sr -Analysen der Bodenproben

8 Pu-Analysen mit LSC und Alphaspektrometrie

Auch für die Analyse der in der Probe vorhandenen Pu-Isotope müssen diese aus dem Eluat der Bodenprobe abgetrennt werden. Für die Isolierung von Pu wurde weitgehend das am Paul Scherrer Institut entwickelten Verfahren verwendet [39], [40].

Bereits während der Sr-Trennung mittels Sr-Harz blieb letztendlich auch Pu in der Sr-Fraktion zurück. Daher lag zunächst einmal die Idee nahe, pro Probe nur eine Säulentrennung durchzuführen und die beiden Radionuklide, Sr und Pu in unterschiedlichen Strips mit unterschiedlichen Eluationsmitteln aufzufangen. Als Eluationsmittel für Pu wurde eine Mischung aus Salzsäure und Iodwasserstoff verwendet [39].

Ein Versuch, eine mit Sr-Harz gefüllte Säule nach erfolgtem Sr-Strip anschließend mit HCl+HI auch Pu abzustripen, scheiterte allerdings. Denn die Mischung aus HCl+HI löste anscheinend nicht nur Pu sondern auch das Harz aus der Säule. Daher wurde, wie auch durch [39] und [40] empfohlen, für die Abtrennung der Pu-Isotope BIORAD Harz verwendet.

Dazu wurde, analog zur Vorbereitung der Sr-Säulen jeweils 6 g BIORAD 1X2 Harz in eine Glassäulen gefüllt. Anschließend wurde die Säule mit 20 ml 0,05N Natriumnitrat (NaNO_3) konditioniert und mit 20 ml 3N Salpetersäure für die Beladung vorbereitet.

Im ersten Versuch wurde die Säule nach [40] mit 100 ml Probe beladen. Aufgrund der hohen Aktivitäten der TOX-Proben konnte aber dazu übergegangen werden, die Beladung auf 10 ml zu reduzieren. Es gibt zwei heikle Punkte, die beim Fahren einer Säule zu berücksichtigen sind. Zum Einen darf die Säule nie trocken laufen, da die eintretende Luft die Trennung erheblich und irreversibel beeinflussen kann, zum Anderen kann die Säulen auch verstopfen. Durch eine geringere Beladung kann aber die Fahrzeit verkürzt werden, wodurch das Risiko einer Störung in der Säule zumindest zeitlich ein wenig minimiert wird.

Nach Beladung wurde die Probe mit 20 ml 8N HNO_3 gewaschen, wodurch Am, U, Ra und Po aus der Probe eliminiert wurden [39]. Beladung und nachgewaschene HNO_3 wurden wieder gemeinsam in einem Becherglas aufgefangen. (Abbildung 8.1)

Im nächsten Schritt wurde mit 20 ml 10N HCl nachgewaschen, dadurch konnten auch alle Th-Anteile von der Probe abgetrennt werden [39]. Probe und nachgewaschene HNO_3 wurde unter der Infrarotlampe eingedampft um die gesamte Säure entweichen zu lassen.

8 Pu-Analysen mit LSC und Alphaspektrometrie

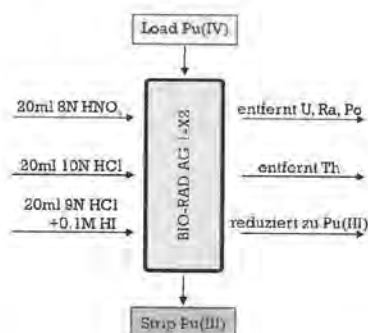


Abbildung 8.1: Schematische Darstellung des Trennverfahrens für Plutonium

Auf eine Oxalatfällung, um Kalium zu extrahieren, wie in [39], [40] empfohlen, wurde verzichtet, da die Böden in Seibersdorf kaum Kalium enthalten [33].

Anschließend wurde das in der Säule verbliebene Pu durch Zugabe einer Mischung aus 9N HCl und 0,1N HI von Pu(IV) zu Pu(III) reduziert und abgestrippt. Der Pu-Strip wurde ebenfalls unter der Infrarotlampe eingedampft. Da während des Chromatographievorgangs sämtliche Kalziumanteile in der nachgewaschenen HNO₃ verblieben waren, war der eingedampfte Rückstand sehr gering und kaum mehr sichtbar.

Sobald die Beladung mit nachgewaschenem HNO₃ und Strips eingedampft waren, konnten die Rückstände in 10 ml 0,05N HNO₃ gelöst und für die LSC-Messung in Tricarb-Vials eingewogen werden. Dazu wurden wiederum 5 ml des gelösten Rückstands mit 15 ml gemischt.

8.1 Messung des Pu-Strips mittels LSC

Die Messung der Pu-Strips erfolgte durch Flüssigszintillationsspektrometrie und wurde am Wallac Quantulus 1220 durchgeführt. Die Messzeit pro Probe betrug 100min, wobei im α / β -mode gemessen wurde (Abbildung 8.2).

Aus dem Messergebnis für das 5 ml umfassende Aliquot des gestrippten Eluats der Bodenprobe wurde anschließend auf die Aktivitätskonzentration pro g Erde zurückgerechnet.

Für das β -emittierende Radionuklide ²⁴¹Pu wurde zunächst die ermittelten Zählraten mit der Detektorausbeute für Tritium ($\epsilon = 33\%$) multipliziert. Um für die Pu-Proben aber eine genauere Ausbeute bereitzustellen, wurde mittels Standardaddition anhand Probe RAD0 die Detektorausbeute zu ($\epsilon = 27,5\%$) ermittelt. Dabei wird zu einer bereits ermittelten Aktivitätskonzentration dieselbe Konzentration eines ³H-Standards über Einwaage verdoppelt und gemessen. Anschließend wird die Differenz der beiden Messungen, einmal mit Standardaddition, einmal ohne Standardaddition gebildet und durch die Aktivität des eingewogenen Tritium-

8.1 Messung des Pu-Strips mittels LSC

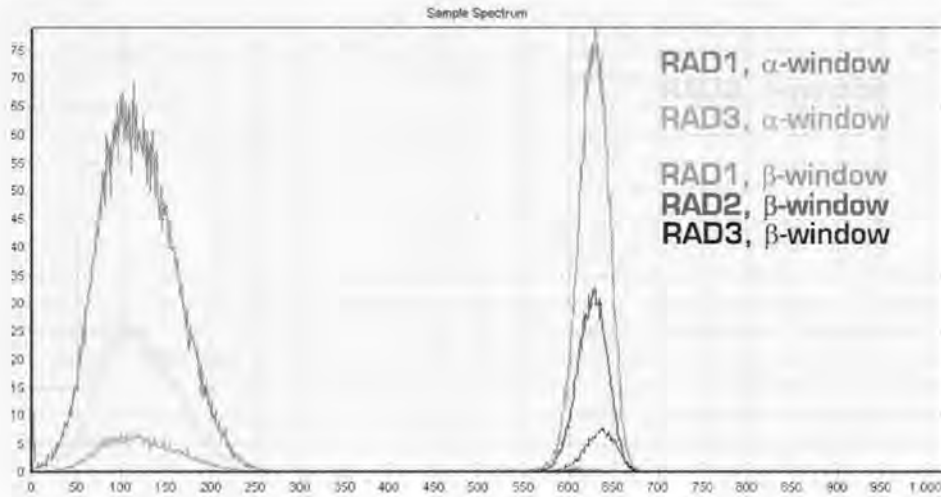


Abbildung 8.2: LSC-Spektren der Proben RAD1, RAD2, RAD3

standards dividiert. Auch die Ausbeute für die α -emittierenden Pu-Isotope, die 100% beträgt, wurde ermittelt.

Um von der Gesamtaktivität des Strips auf die spezifische Aktivität der Aufschlusslösung zu kommen, muss die Aktivität mittels LSC gemessenen Aliquots mit der Gesamtmenge des Strip (20 ml) multipliziert, und durch die Einwaage des Strips dividiert werden.

Die Aktivitätskonzentration der Erde selbst zu berechnen, geht man von der Aktivitätskonzentration der Aufschlusslösung aus. Diese wird mit dem Quotienten aus Filtratmenge und Säulenbeladung multipliziert und mit der Einwaage der trockenen, homogenisierten Erde dividiert.

Leider erfolgte die Trennung in der Säule nicht immer perfekt, sodass auch oft in der nachgewaschenen HNO_3 ebenfalls Pu zu finden war. Bei einigen Trennungen war der eingedampfte Rückstand allerdings nicht mehr löslich und daher nicht weiter auszuwerten. Allerdings wurde, dort wo möglich, das vorläufige Endergebnis um den verbleibenden Pu-Anteil in der nachgewaschenen HNO_3 korrigiert.

Dazu wurde wieder von der spezifischen Aktivitätskonzentration der Aufschlusslösung, die über den Pu-Strip ermittelt wurde, ausgegangen. Analog dazu wurde die spezifische Aktivitätskonzentration der Aufschlusslösung in der nachgewaschenen HNO_3 ermittelt und beide Werte addiert. Analog wurde weiter verfahren, um auch die Aktivitätskonzentration der α -emittierenden Pu-Isotope zu bestimmen. Tabelle 8.1 gibt die ermittelten Aktivitätskonzentrationen für ^{241}Pu und für die α -emittierenden Pu-Isotope an in Bq/g Erde an.

8 Pu-Analysen mit LSC und Alphaspektrometrie

Probe	Load [g]	LSC [g]	α -Pu [Bq/g]	241 -Pu [Bq/g]	Alter [a]
RAD0	100,018	5,036	16,8	129	47,7
RAD1	10,005	5,043	54,9	377,6	37,2
RAD2	10,014	5,026	16	121	43,7
RAD3	10,059	5,036	22,8	159,1	45,4
RAD4	10,164	5,105	9,7	76,5	42,7
RAD5	10,023	5,086	24,5	170,3	38,9
RAD6	10,019	5,085	21,9	141,8	39,6
RAD7	10,136	5,033	17,6	100,2	20,5
RAD8	10,009	5,096	6,7	41,1	40,7
RAD9	12,439	5,053	10	61,2	35,3
OTOX1	12,053	5,099	2,2	14	8,1
OTOX4	12,340	5,084	2,5	11,9	22,1
OTOX9	11,822	5,143	4	23,6	5,2

Tabelle 8.1: Einwaagen und Ergebnisse der Pu-Analysen

Die fünfte Spalte in Tabelle 8.1 gibt das errechnete Alter des Isotopengemisches an, wobei die Voraussetzung getroffen wurde, dass zu $t = 0$ kein ^{241}Am vorhanden war. Die Berechnung des Alters der Mischung resultiert aus jener Differentialgleichung, die das Verhältnis aus Mutter- und Tochternukliden beschreibt.

Die Analysen der Proben RAD0-RAD7, RAD9 und RAD10 ergeben ein durchschnittliches Alter von 41,2 Jahren. Demnach dürfte das Gemisch etwa gegen 1966 entstanden sein. Die Altersangaben der restlichen Proben streuen hingegen sehr stark, was am großen statistischen Fehler der Messdaten liegen dürfte.

Bestimmung der Extraktionsausbeuten Auch bei der Pu-Analyse wurde wie bei der Sr-Analyse versucht, die Extraktionsausbeuten bei der Trennung zu bestimmen. Da Aktinoiden mittels RFA nicht detektierbar sind, musste hier auf eine andere Möglichkeit zurückgegriffen werden. Dazu wurde ein so genannter Spike, eine Pu-Lösung, die 6,01 Bq/g ^{241}Pu und 1,58 Bq/g α -emittierende Pu-Isotopen aufwies, der Probe zugegeben. Zur Bestimmung der Extraktionsausbeuten wurden zwei Proben ausgewählt, die parallel in vier Säulen gefahren wurden: je eine Probe mit und ohne Spike. Anhand der Aktivitätsverhältnisse zwischen Pu-Strip und Wash wurden die beiden Proben RAD1, bei der die Trennung anscheinend recht gut erfolgte, und RAD7, bei der die Trennung anscheinend nur mäßig erfolgte, ausgewählt.

Von der Spike-Lösung wurde etwa soviel eingewogen, dass die Aktivitätskonzentration der Probe verdoppelt wurde. Nach Durchführung der Trennung wurden wieder Strips, und wenn löslich, Washes mittels LSC gemessen.

8.2 Trennung von ^{238}Pu und $^{239+240}\text{Pu}$

Für die Berechnung der Ausbeute wurde jeweils die Differenz der beiden Gesamtaktivitäten der gespikten und der ungespikten Probe mit den unterschiedlichen Beladungen korrigiert und durch die Aktivität des Standards dividiert.

So ergab sich für Probe RAD1 eine Ausbeute von 89% für α -emittierende Pu-Isotope und 63% für ^{241}Pu . Bei der Ausbeutebestimmung der Probe NAW7 lief irgendetwas schief, da die Ausbeute, trotz mehrmaliger Überprüfung sich auf fast 300% belief. Anscheinend gab es hier bei der Trennung bei einer der beiden Säulen ein Problem, und die beiden konnten nicht weiter parallel gefahren werden.

Daher scheint das Spiken der Proben zur Bestimmung der Ausbeute zumindest für die Bestimmung der Pu-Trennung zu fehleranfällig. Alternativ könnte man einen anderen Tracer, etwa ^{242}Pu einsetzen und mit diesem die Trennung fahren. Davon wurde aber aus Kostengründen abgesehen.

8.2 Trennung von ^{238}Pu und $^{239+240}\text{Pu}$

Bei der Pu-Analyse mittels LSC konnte das β -emittierende Pu-Isotop ^{241}Pu im β -Fenster quantifiziert werden. Die α -emittierenden Pu-Isotope wurden im α -Fenster als Summe aller α -emittierender Pu-Isotope analysiert. Für eine weitere Unterscheidung der in der Bodenprobe enthaltenen alphastrahlenden Pu-Isotope muss eine andere Messmethode herangezogen werden.

Eine detaillierte Quantifizierung der α -emittierenden Pu-Isotope kann mittels Alphaspektrometrie erfolgen. Dabei kann ^{238}Pu von $^{239+240}\text{Pu}$ spektrometrisch getrennt werden. Eine weitere Auflösung von 239 und zu ^{240}Pu ist aufgrund der eng beieinander liegenden Emissionslinien (5,1 keV für ^{239}Pu und 5,2 keV für ^{240}Pu) nicht möglich. Dazu müssten anderen Methoden, wie etwa die Massenspektrometrie herangezogen werden.

Die Alphaspektrometrie verlangte einen weiteren Aufbereitungsschritt bevor die eigentliche Messung durchgeführt werden konnte. Nach der Pu-Abtrennung lagen alle Pu-Isotope in einer wässrigen Lösung vor. Für eine alphaspektrometrische Messung mussten die zu messenden Nuklide allerdings als dünne Schicht vorliegen. Aufgrund der hohen Selbstabschirmung der kurzen Reichweite der α -Teilchen, sollte diese Schicht am besten monomolekular vorliegen.

Prinzipiell stehen mehrere Methoden zu Verfügung um Radionuklide aus der wässrigen Lösung als Schicht aufzutragen, das bekannteste Verfahren dafür ist die Elektrodeposition. [40]

Für die hier vorliegende Arbeit wurde eine andere Methode, nämlich die Fällung mit Neodymfluorid (NdF_3), gewählt. Die Auflösung bei der Fällung ist zwar wesentlich geringer als bei der Elektrodeposition. Allerdings ist dieser Punkt bei den hohen Aktivitäten der verwendeten Proben nicht relevant. Der Vorteil der NdF_3 -Fällung gegenüber der Elektrodeposition ist das wesentlich schnellere Verfahren.

8 Pu-Analysen mit LSC und Alphaspektrometrie

Neodym hat eine hohe Affinität zu allen Schwermetallen, so auch zu Plutonium. Wenn einer wässrigen Pu-Lösung Nd hinzugefügt und anschließend ausgefällt wird, fällt das in der Lösung vorhandene Pu ebenfalls mit aus. Anschließend kann die wässrige Lösung über einen Filter dekantiert werden und das in der Probe vorhandene Pu liegt konzentriert auf dem Filterpapier vor. Um andere Schwermetalle braucht man sich keine Gedanken mehr zu machen, da diese alle über die Säulenchromatographie abgetrennt wurden.

Für die NdF_3 -Fällung wurden 10 ml des Pu-Strips in einen Polystyrolbecher eingewogen und mit 4 ml Nd-Fällungslösung versehen. Die Fällungslösung besteht aus $100 \mu\text{g}$ Neodym auf 1 ml 1N HNO_3 . Die einzuwiegende Neodymverbindung lag als Neodymnitrat ($\text{Nd}(\text{NO}_3)_3 \cdot \text{H}_2\text{O}$) vor. Um die Fällungslösung herzustellen wurden $30,4 \text{ mg}$ Neodymnitrat in 100 ml in 1N HNO_3 gelöst. Anschließend wurde der Lösung 1 ml Fluorwasserstoff (HF) zugesetzt. Danach wurde die Lösung gut durchgerührt und für mindestens 30 min stehen gelassen.

Um die Filter für die Aufnahme der Pu-Isotope vorzubereiten wurden diese mit einer Neodym-Substratlösung vorkonditioniert. Dazu wurden $6,69 \mu\text{g}$ auf 1 ml Substratlösung eingewogen, die aus 90,8 % 1N HNO_3 und 9,6 % besteht. Der Filter wurde in eine Waschflasche eingespannt und unter Vakuum mit 5 ml Substratlösung konditioniert. Danach wurde die Pu-Lösung abfiltriert. Dabei blieben sämtliche Pu-Isotope auf dem Filter hängen. Anschließend wurde mit deionisiertem Wasser und Ethanol gespült.

Anschließend wurden die Filter unter der Infrarotlampe getrocknet und für die Messung auf Stahlplättchen aufgeklebt. Dabei soll unbedingt versucht werden, die Filter möglichst plan auf die Stahlplättchen aufzubringen. Eine Wölbung, Verkantung, etc. der Filterpapiere würde die Messausbeute empfindlich beeinflussen. Anschließend wurden die Proben jeweils 86400 s im Alphaspektrometer *Canberra Alpha Analyst* gemessen.

8.3 Auslaugen der Proben in Flusssäure

Die gammaspektrometrischen Untersuchungen der Bodenproben und Eluate ergab, dass ^{241}Am während des Auslaugens nicht vollständig in Lösung gegangen war. Daher wurden vier Proben ausgewählt, die anschließend an die HNO_3 Fällung ein weiteres Mal in Flusssäure ausgelaugt werden sollten. Dadurch sollten auch noch die im Rückstand verbliebenen Transurane in Lösung zu bekommen sein.

Dazu wurden jeweils 5 g der Rückstände der Proben RAD1, RAD3, RAD7 und RAD8, um Verwechslungen zu vermeiden, im Folgenden als RRAD1, RRAD3, RRAD7 und RRAD8 bezeichnet, in einen Teflonbecher eingewogen. Die Auswahl dieser Proben erfolgte aufgrund der ^{241}Am -Ausbeute in der Aufschlusslösung der Bodenprobe. Laut gammaspektrometrischer Analyse des Eluate war bei einigen Proben der ^{241}Am Anteil der Bodenprobe vollständig in Lösung gegangen (wie bei den Proben RAD2, RAD7), bei den anderen betrug der Anteil im Eluat nur etwa 60 % (wie bei den Proben RAD1, RAD8).

8.3 Auslaugen der Proben in Flusssäure

Die Rückstände der Proben RAD1, RAD2, RAD7 und RAD8 wurden zunächst mit 10 ml 8N HNO₃ angesäuert und mit 4 ml HF versehen. Anschließend wurden die Proben unter Abzug für etwa 5 Stunden gekocht, wobei bei Bedarf mit dem jeweiligen Lösungsmittel aufgeköchelt wurde.

Nach Beendigung des Auslaugens wurde die Rückstandsprobe vollständig eingedampft, um anschließend mit 20 ml 0,05 N HNO₃ wieder aufgenommen zu werden. Die Suspension wurde analog zum Auslaugprozess mittels HNO₃ abfiltriert. Anschließend konnte auch hier die Abtrennung der Pu-Isotope über Säulenchromatographie erfolgen.

Die Auswertung der Messergebnisse erfolgte ganz analog zu den Auswertungen der rein in HNO₃ gelaugten Proben. Um den HF-gelaugten Anteil in der Gesamtanalyse miteinzubeziehen, wurden die beiden Ergebnisse, aus dem HNO₃ und aus dem HF-Auslaugprozess einfach miteinander addiert.

Das Gesamtergebnis der Pu-Analysen unter Berücksichtigung der Washes und der Ausbeuten ist in Tabell 8.2 dargestellt, wobei die alphaspektrometrische Messung der Proben RAD5 und OTOX4 keinen Messwert lieferten. Anscheinend hat die NdF₃-Fällung dieser Probe nicht gegriffen.

Probe	²⁴¹ Am	^α Pu	²³⁸ Pu	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	²⁴¹ Pu	α-Ratio	Anmerkung
RAD0	36,59	16,82	7,46	9,36	129,38	0,80	-
RAD1	60,36	54,92	22,26	32,66	378,48	0,68	HF-Korr.
RAD2	27,56	16,02	6,95	9,07	120,59	0,77	-
RAD3	39,81	23,40	10,42	12,98	164,27	0,80	HF-Korr.
RAD4	16,64	9,65	4,54	5,11	76,54	0,89	Wash-Korr.
RAD5	29,93	24,50	-	-	170,31	-	Wash-Korr.
RAD6	26,67	24,23	11,95	12,28	160,17	0,97	HF-Korr.
RAD7	5,50	17,69	8,35	9,34	100,17	0,89	HF-Korr.
RAD8	8,00	6,66	3,15	3,51	41,08	0,90	Wash-Korr.
RAD9	8,80	10,04	4,75	5,29	61,19	0,90	Wash-Korr.
OTOX1	0,22	2,22	-	-	14,01	-	-
OTOX4	0,74	2,48	1,25	1,23	11,91	1,02	Wash-Korr.
OTOX9	0,22	3,97	2,09	1,88	23,55	1,11	Wash-Korr.

Tabelle 8.2: Ergebnisse der Pu-Analysen in Bq/g

Die verbliebenen Rückstände des Auslaugens mit Flusssäure, die jeweils etwa 1 g betragen wurden abermals mittels RFA analysiert. Aufgrund der geringen Probenmenge wurden keine Presslinge hergestellt, sondern der Rückstand zu einer Glastablette gegläht.

8 Pu-Analysen mit LSC und Alphaspektrometrie

Dazu wurde die Probe zunächst geglüht, und anschließend 1 g Probe mit 5 g Spektromelt A12, (Lithiummetaborat und-tetraborat) in eine Platinschale eingewogen. Danach wurden noch etwa 25 mg Lithiumbromid ($\text{BrLi} \cdot x\text{H}_2\text{O}$, $x=1-2$) hinzugefügt, damit sich die Glastablette nach dem Gießen aus der Form, ebenfalls Platin, löst. Warum Halogenide das Loslösen vereinfachen ist bislang nicht bekannt. Durch das Gießen entsteht eine gefärbte Glastablette mit einem Durchmesser von 30 cm [33].

Die RFA-Messung ist beim Pressling empfindlicher als bei Verwendung einer Glastablette. Dies liegt an der kleineren Probenmenge, dem geringeren Durchmesser und der starken Verdünnung der Glastablette liegt. Außerdem können in der Glastablette viele flüchtige Elemente nicht mehr nachgewiesen werden, da diese bereits beim Glühen verflüchtigt werden. Die Analyse einer Glastablette ist allerdings ein sehr genaues Verfahren um die Hauptelemente einer Bodenprobe, wie Si und Al zu bestimmen. Im Glas liegen diese nämlich homogen vor, sodass keine Matrixeffekte mehr vorhanden sein können. Die Ergebnisse der RFA Analysen des HF-Rückstands sind in Anhang B zu finden.

9 Erstellen von Nuklidvektoren

Aufgrund der systematischen Beprobungsstrategie konnte die Verteilung der ^{241}Am -Kontamination hinreichend genau messtechnisch bestimmt werden. Da eine ähnlich gestaltete Verteilung der Pu-Isotope nicht sinnvoll experimentell ermittelt werden können, kommt die Technik der Nuklidvektoren zu tragen.

Ein Nuklidvektor stellt eine Liste von Aktivitätskonzentrationen aller radiologisch relevanten Radionuklide in einem bestimmten Material dar. Mit der gleichzeitigen Einführung des Vektorbegriffs wird impliziert, dass das Radioaktivitätsinventar für n Radionuklide in einem n -dimensionalen Raum aufgespannt wird. Dabei werden die Ergebnisse der radiochemischen Analysen der jeweiligen Einzelnuclide in einer Matrix zusammengefasst. Mit Hilfe des Nuklidvektors lassen sich die über alle Nuklide summierten Analyseergebnisse auch rechnerisch ermitteln. Meist wird ein Nuklidvektor verwendet, um indirekt über Berechnung auch aufwendig zu analysierende Radionuklide¹ quantifizieren zu können.

Um einen Nuklidvektor für ein bestimmtes Material definieren zu können, benötigt man zunächst die ermittelten Aktivitäten der Einzelnuclide. Diese werden mit Hilfe von radiochemischen Analysenverfahren in repräsentativen Proben quantifiziert und schließlich in einer repräsentativen Zusammensetzung des Nuklidgemisches angegeben.

Oft sind diese radiochemischen Analyseverfahren sehr kostspielig und zeitaufwendig. Die damit einhergehenden Probleme bei der Analyse von HTM-Nukliden können aber mittels Nuklidvektoren umgangen werden. Denn die Aktivitäten der Einzelnuclide, bezogen auf ein bestimmtes, gut messbares Schlüsselnuclid, können mit Hilfe des für ein bestimmtes Material ermittelten Nuklidvektors bestimmt werden.

Man erhält direkt aus z.B. einer gammaspektrometrischen Aktivitätskonzentration für das Schlüsselnuclid durch Rechnung auch die Aktivitätskonzentrationen der Einzelnuclide, die, als HTM-Nuklide aufwendig zu analysieren sind. Durch Multiplikation der Aktivitätskonzentration des Schlüsselnuclids mit dem eigens erstellten Nuklidvektor wird eine Liste der Einzelaktivitäten im Nuklidgemisch errechnet. Anstatt also alle Proben radiochemisch für eine LSC oder alphaspektrometrische Analyse aufzubereiten, beschränkt man sich auf einige, wenige Proben und berechnet die Verhältnisse der Aktivitätskonzentrationen der beteiligten Radionuklide zum Schlüsselnuclid. Im Extremfall reicht bereits eine Probe aus, um den Nuklidvektor zu erstellen [41].

¹Das betrifft insbesondere in einer Probe vorhandene HTM-Nuklide.

9 Erstellen von Nuklidvektoren

Allerdings muss dabei die Forderung nach einer gewissen Vollständigkeit des Nuklidvektors gestellt werden. Außerdem werden Radionuklide mit einem Aktivitätsanteil kleiner als 1% bezogen auf die Aktivität des Schlüsselnuklids im Regelfall nicht berücksichtigt [42].

Schlüsselnuklide sind messtechnisch einfach zu erfassende Radionuklide, über deren Messung das Aktivitätsinventar schwierig zu messender Radionuklide rechnerisch bestimmt werden kann [43]. Oft wird der Begriff Schlüsselnuklid synonym mit dem Begriff Leitnuklid verwendet.

Als Leitnuklide werden diejenigen Radionuklide bezeichnet, die aus Störfallgesichtspunkten sowie aus Sicht des Betriebs eines Endlagers erhöhte Bedeutung haben. Leitnuklide werden zur Abschätzung des Gefährdungspotentials bei der Langzeitlagerung radiologischer Abfälle herangezogen [44].

9.1 Nuklidvektor für Bodenproben

In Tabelle 8.2 wurden die Ergebnisse der in den vorangegangenen Kapiteln beschriebenen radiochemischen Analysen zusammengefasst. Für jede analysierte Bodenprobe sind die Aktivitätskonzentrationen für ^{241}Am , ^{241}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ und ^{238}Pu pro Gramm Erde dargestellt.

Pu-Isotope stellen klassische HTM-Nuklide dar, ^{241}Am hingegen ist verhältnismäßig einfach über gammaspektrometrische Methoden zu bestimmen. Somit bietet sich ^{241}Am als Schlüsselnuklid an. Im einfachsten Fall wird das Verhältnis eines jeden Pu-Isotops zu ^{241}Am berechnet. Durch anschließende Mittelwertbildung über alle Proben wird ein Umrechnungsfaktor der, bei Kenntnis der ^{241}Am -Aktivitätskonzentration, die Aktivitätskonzentrationen des jeweiligen Pu-Isotops, berechnen kann, bestimmt.

Da die reine Mittelwertbildung das einfachste, aber daher auch ungenaueste statistische Verfahren ist, ist es zweckmäßig, den Umrechnungsfaktor mittels besserer statistischer Methoden zu ermitteln. Dazu wurde die Regressionsanalyse verwendet.

Den Hintergrund zur Regressionsanalyse liefert ein statistisches Modell, das zwei Variable, x und y betrachtet, die in einem vermutlich linearen Zusammenhang stehen.

$$y \approx \alpha + \beta x$$

Außerdem sei x als unabhängige, y als abhängige Variable definiert. Der funktionale Zusammenhang zwischen diesen beiden Variablen kann aber nicht exakt festgestellt werden, da die Funktion von einer Störgröße ϵ überlagert wird, was sich folgend beschreiben lässt:

$$y = \alpha + \beta x + \epsilon$$

9.1 Nuklidvektor für Bodenproben

Die beiden Parameter α und β sind dabei allerdings unbekannt, wodurch diese über eine Schätzung durch a und b gefunden werden müssen. Dadurch ergibt sich mit dem Residuum der Stichprobe:

$$y = a + bx + e$$

Das Residuum gibt die Differenz zwischen der Regressionsgerade $y = a + bx$ und dem Messwert y an. Dabei gibt es zahlreiche Möglichkeiten um die Gerade zu schätzen, z.B. lässt sich die Gerade durch einen Punkteschwarm legen, sodass die Quadratsumme der Residuen der Punkte von dieser Ausgleichsgeraden minimiert wird. Diese Methode ist als *Methode der kleinsten Quadrate* bekannt:

$$RSS = SS_{Res} = \sum_{i=1}^n e_i^2 = \sum_{i=1}^n (y_i - (a + bx_i))^2 \rightarrow \min!$$

Die gesuchten Regressionskoeffizienten sind die Lösungen des nachstehend angeführten Gleichungssystems, wobei \bar{x} und \bar{y} die arithmetischen Mittel darstellen.

$$b = \frac{\sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})(y_i - \bar{y})}{\sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})^2} \quad (9.1)$$

$$a = \bar{y} - b\bar{x}$$

Analog zu dieser Beschreibung wird auch mit den Messwerten der radiochemischen Analysen verfahren. Nach Bestimmung der Parameter wird die Regressionsgerade, die den Zusammenhang zwischen ^{241}Pu und ^{241}Am beschreibt, durch folgende Geradengleichung bestimmt:

$$y = 5,2337x + 13,683 \quad (9.2)$$

$$^{241}\text{Pu} = 5,2337 \cdot ^{241}\text{Am} + 13,683. \quad (9.3)$$

Wenn man davon ausgeht, dass alles vorhandene ^{241}Am nur aus dem radioaktiven Zerfall von ^{241}Pu entstanden ist, so lässt sich die Aktivitätskonzentration für ^{241}Am zum Zeitpunkt $t = 0$ Null setzen. Das bedeutet, die Regressionsgerade geht durch den Ursprung und wird allein durch die Steigung beschrieben und man erhält:

$$^{241}\text{Pu} = 5,6014 \cdot ^{241}\text{Am}$$

Aber auch durch die alphaemittierenden Pu-Isotope kann eine Regressionsgerade gelegt werden. Wird auch diese durch den Nullpunkt gelegt, so ergibt sich die Geradengleichung für α -emittierende Pu-Isotope zu $^{\alpha}\text{Pu} = 0,8175 \cdot ^{241}\text{Am}$. Damit wurden die Ergebnisse der LSC-Analyse im Nuklidvektor berücksichtigt (Abbildung 9.1).

Mit Hilfe der Alphaspektrometrie konnten die alphaemittierenden Plutoniumisotope weiter zwischen ^{238}Pu und $^{239+240}\text{Pu}$ getrennt analysiert werden. In Tabelle 8.2 sind auch die Verhältnisse zwischen ^{238}Pu und $^{239+240}\text{Pu}$ angegeben. Das Verhältnis zwischen diesen beiden α -emittierenden Pu-Isotope beträgt im Regelfall etwa 1. Abbildung 9.2 zeigt die Regressionsgeraden der drei Pu-Isotope, bei denen eine radiochemische Quantifizierung mit den vorhandenen Möglichkeiten möglich war.

9 Erstellen von Nuklidvektoren

Berücksichtigt man alle radiochemischen Analysen und alle Verhältnisse der einzelnen Nuklide zu einander, ergibt sich schlussendlich der Nuklidvektor mit ^{241}Am als Schlüsselnuclid. Die Aktivitätskonzentrationen der Pu-Isotope lassen sich folgendermaßen aus der Aktivitätskonzentration ^{241}Am ermitteln:

$$^{238}\text{Pu} = 0,32 \cdot ^{241}\text{Am} \quad (9.4)$$

$$^{239+240}\text{Pu} = 0,43 \cdot ^{241}\text{Am} \quad (9.5)$$

$$^{241}\text{Pu} = 5,28 \cdot ^{241}\text{Am} \quad (9.6)$$

Ein Nuklidvektor mit diesen oder ähnlichen Isotopenverhältnissen ist bezeichnend für das Erbrüten von Plutoniumisotopen in Brennelementen von Leichtwasserreaktoren. [45] Durch Neutroneneinfang von ^{238}U wurden in den Brennelementen die Pu-Isotope ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu und ^{241}Pu erzeugt. Durch den radioaktiven Zerfall von ^{241}Pu konnte ^{241}Am mit der Zeit anwachsen. Die Freisetzung von Radionukliden eines Brennelements auf Verdachtsfläche TOX scheint, zumindest aufgrund des Nuklidvektors und der nahe gelegenen Lagerhallen, denkbar.

9.2 Nuklidvektor für Aerosolfilter

Wie in der Einleitung erwähnt, war lange Zeit nicht klar, woher die Kontamination auf den Verdachtsflächen gekommen war. Als eine mögliche Erklärung bot sich auch eine Alphakampagne der Verbrennungsanlage an, die 1999 gefahren wurde. Damals wurden Austauschharze und Inhalte von alten Handschuhkästen verbrannt. Während dieser Zeit wurden auf Bypassfiltern der Aerosolmessungen erhöhte Alphawerte gemessen, die Aerosolfilter aber nicht radiochemisch analysiert [33].

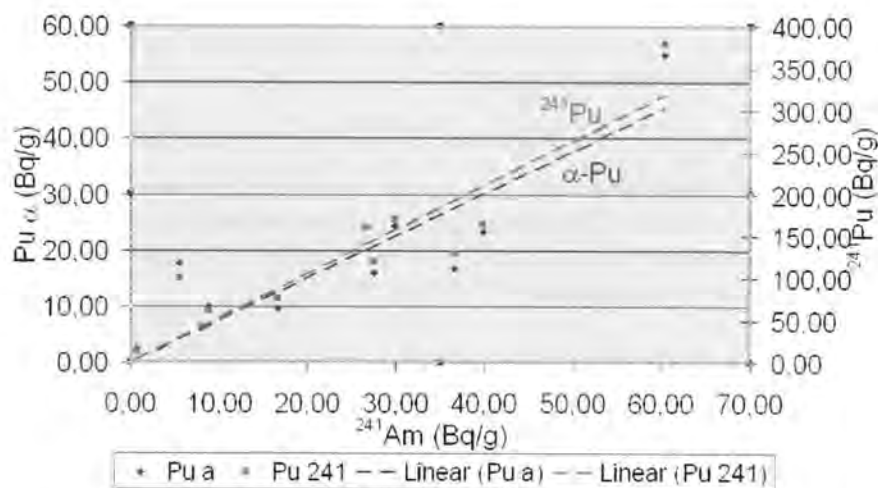


Abbildung 9.1: Regressionsgeraden für ^{241}Pu und αPu -Isotope

9.2 Nuklidvektor für Aerosolfilter

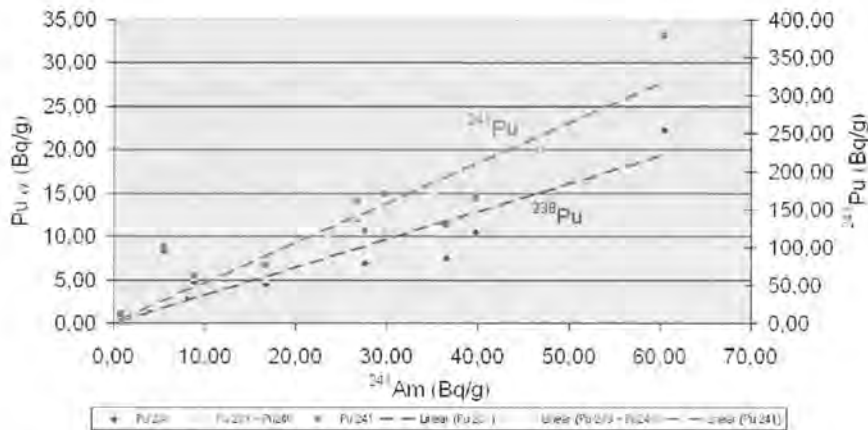


Abbildung 9.2: Regressionsgeraden für alle beteiligten Pu-Isotope

Um diesem Verdacht nachgehen zu können, wurden jene drei Aerosolfilter, die starke α -Konzentrationen aufwiesen, herangezogen, um hinsichtlich etwaiger Pu-Isotope analysiert zu werden. Diese Aerosolfilter waren aufgrund des Bewilligungsbescheids der Verbrennungsanlage als Rückstellproben aufbewahrt worden. Für eine Messung der Emissionen wird ein Aerosolfilter in ein Bypassrohr eingebaut, wo es für zwei Wochen verbleibt. Anschließend wird dieser Filter hinsichtlich α - und β -Zählraten ausgewertet, im Bedarfsfall wird auch ein Gammасpektrum aufgenommen.

Diese drei Aerosolfilter, VAA2105, VAA0206 und VAA1606, wurden zunächst gammaspektrometrisch untersucht, ^{241}Am konnte aber nur auf dem Filter VAA 1606 nachgewiesen werden. Dennoch wurden analog zu den Bodenproben alle drei Proben in 8N HNO_3 ausgelaugt, um später hinsichtlich Pu analysiert werden zu können. Die Aerosolfilter bestanden aus Glasfasern, bei Schwarzbandfiltern hätte sich auch eine Veraschung der Filter angeboten.

Anschließend wurde aus den Eluaten, analog zu den Eluaten der Bodenproben, die Pu-Fraktion mittels Säulenchromatographie abgetrennt und für die LSC-Messung vorbereitet, wobei jeweils Strip und Wash ausgewertet wurden. Dabei stellte sich heraus, dass laut LSC-Messung die Proben VAA2105 und VAA0206 kein Plutonium aufwiesen. Im β -Fenster waren keine Hinweise auf ^{241}Pu zu finden, während im α -Fenster NORM-Nuklide zu identifizieren waren.

In Probe VAA1606 konnte ^{241}Pu nachgewiesen werden und zwar auch in demselben Verhältnis zu ^{241}Am , das bereits in den Bodenproben gefunden worden war. Somit musste weiters überprüft werden, ob auch die Konzentrationen der anderen Pu-Isotope, ^{238}Pu und $^{239} + ^{240}\text{Pu}$ ebenfalls passend zum Nuklidvektor in den Bodenproben, im Aerosolfilter VAA1606 zu finden war.

9 Erstellen von Nuklidvektoren

Daher wurden die Strips der VAA-Proben ebenfalls mit NdF_3 gefällt, um etwaige α -emittierende Pu-Isotope zu spezifizieren. Dabei konnte auch in den Proben VAA2105 und VAA0206 die α -emittierende Pu-Isotope nachgewiesen werden. Die ermittelten Isotopenverhältnisse von ^{238}Pu zu $^{239+240}\text{Pu}$ passten mit 0,76 bzw. 0,55 nicht zu jenen der Bodenproben. Da weiters in beiden Proben kein ^{241}Pu gefunden wurde, kann davon ausgegangen werden, dass die Emissionen, die zwischen 21.05.1999 und 16.06.1999 abgegeben wurden, nicht die Ursache der Kontamination auf Verdachtsfläche TOX waren.

Bei Probe VAA1606, bei der bereits ^{241}Pu mittels LSC festgestellt wurde, wurden ebenfalls auch die drei α -emittierenden Pu-Isotope, ^{238}Pu und $^{239+240}\text{Pu}$, gefunden. Deren Isotopenverhältnis $^{239+240}\text{Pu}$ zu ^{238}Pu lag allerdings bei 0,02, wo hingegen dieses Verhältnis bei den Bodenproben von Verdachtsfläche TOX bei 1 lag. Damit ist mit einer Ursache der Kontamination der Verdachtsfläche TOX durch Emission während der Verbrennungskampagne 1999 nicht zu rechnen.

Diese Verbrennungskampagne könnte zwar durchaus einen kleinen Beitrag zur Kontamination von Verdachtsfläche TOX beigetragen haben, die auf Verdachtsfläche TOX vorliegende Verteilung ließe sich aber durch den Fall-Out der Verbrennungskampagne nicht erklären.

Die Ursache der hohen Alphazählraten auf den Bypassfiltern könnte durch eine hohe Konzentration an ^{210}Pb , bzw. ^{210}Po bestehen, Nuklide, deren Peaks auch bei der LSC-Messung identifiziert worden sind.

Es wäre möglich, mit anderen radiochemischen Verfahren, etwa durch Fällung mit Eisenhydroxid oder Eisen(III)-chlorid, diese NORM-Nuklide abzutrennen [46] und die NdF_3 Analysen der gefällten Strips noch einmal durchzuführen. Bei einem anschließenden Vergleich ließe sich feststellen, ob in den Filtern VAA2105 und VAA0206, keinesfalls ^{241}Pu nachweisbar ist, oder ob das Signal durch NORM-Nuklide gestört war.

10 Transport von Transuranen in Böden

Vor der Erstellung eines Migrationsmodells für Transurane sind die grundlegenden Transportmechanismen in Böden abzuklären.

Radionuklide können auf zweierlei Arten in die menschliche Umwelt deponiert werden. Einerseits können radioaktive Stoffe verschüttet werden, wodurch eine direkte Kontamination der Umgebung erfolgt. Andererseits kann ein radioaktiver Stoff in die Atmosphäre entweichen, mit den Luftströmungen weitertransportiert werden und anschließend wieder in ein terrestrisches oder aquatisches Ökosystem abgesetzt werden. In diesem Fall erfolgt die Kontamination indirekt. Als Beispiel für eine direkte Kontamination sei das Austreten von radioaktivem Abfall aus einem geologischen Tiefenlager in das Grundwasser erwähnt, eine indirekte Kontamination stellt die Emission von Radionukliden in die Atmosphäre, etwa in Folge von Kernwaffentests, dar.

Für den Transport von Radionukliden in einem aquatischen oder terrestrischen System ist zunächst die Deposition, anschließend auch eine mögliche Resuspension von Bedeutung. Dazwischen unterliegt der radioaktive Stoff einer Reihe von Wechselwirkungen mit dem Bodenwasser, der Bodenmatrix und den Pflanzen. Aber auch meteorologische Bedingungen, wie die Topographie des betroffenen Geländes, die Bodenart und die Art der Vegetation kann erheblichen Einfluss auf einen radioaktiven Stoff haben.

Die Erforschung von Migrationspfaden für unterschiedlichste Radionuklide hat in den letzten Jahren, in besonderem Hinblick auf die Errichtung von geologischen Tiefenlagern für radioaktiven Abfall, an Bedeutung gewonnen. Sobald Radionuklide nämlich in die Vegetation gelangen können, können diese über die verschiedensten Expositionspfade auch den Menschen erreichen. Vor allem für Nuklide wie H, I, Sr und Cs sind die Migrations- und darauf folgenden Expositionspfade sehr genau bekannt, die Migration von Transuranen ist vergleichsweise unbekannt. [1]

In diesem Kapitel wird nach einem kurzen bodenkundlichen Abriss auf die unterschiedlichsten, in Böden wirksamen Migrationsmechanismen, eingegangen.

10.1 Kurze Einführung in die Bodenkunde

Böden bestehen aus einer komplexen Mischung an organischen und mineralischen Bestandteilen, Wasser in der Form als Sicker- bzw. Regenwasser und der Bodenluft.[1] Im Detail besteht dieser Bereich¹ aus der mineralischen Bodensubstanz (ca. 45 %)², der organischen Bodensubstanz (ca. 7 %), auch Humus³ genannt, und ist in einem so genannten Bodengefüge angeordnet. Die dazwischen liegenden Hohlräume sind mit Bodenwasser (ca. 23 %) und Bodenluft (ca. 25 %) gefüllt.

Als Bodengefüge wird eine Anordnung von festen Bodenbestandteilen verstanden. Das Gesamtvolumen des Bodens kann in einen Volumanteil fester Bestandteile und in einen verbleibenden Anteil an Porenraum geteilt werden. Durch diese Aufteilung werden der Bodenlufthaushalt, die Durchwurzelung von Pflanzen und die Verfügbarkeit von Nährstoffen maßgeblich beeinflusst. Als Faustregel gilt: je lockerer das Bodengefüge, desto günstiger sind die Bodeneigenschaften.⁴

Die Form eines Bodengefüges ist durch den Zusammenhalt der Bodenbestandteile und deren Kitt gegeben.

- Primärgefüge: Die Bodenbestandteile konnten weder durch biologische, noch durch chemische Prozesse in ein Gefüge gezwungen werden. Primärgefüge lassen sich wiederum einteilen in:
 - Elementargefüge: Die Bodenbestandteile liegen ohne jeglichen Zusammenhalt vor, z.B.: Sand, Kies, Wattküsten, etc.
 - Kohärentgefüge: Die Bodenbestandteile werden durch Kohäsionskräfte zusammengehalten und bilden ungegliederte Konglomerate, z.B.: Ton, Lehm, etc.
- Aufbaugefüge: die Bodenteilchen werden durch physikalische und biologische Prozesse gruppiert und fügen sich zu heterogenen Strukturen zusammen. Hier können folgende Gefüge unterschieden werden:
 - Aggregatgefüge: Die Bodenteilchen werden aufgrund bodenbiologischer Prozesse zusammengeballt. Diese Aggregate müssen aber durch eine Stützsubstanz, wie CaCO_3 ⁵ zusammengehalten werden, z.B.: humoser Gartenboden.
 - Segregatgefüge: Aus einer feinkörnigen Kohärentstruktur ist durch Austrocknungs- und Schrumpfungsvorgänge eine Absonderung entstanden, z.B.: lehmiger Unterboden. Die Strukturen von Segregatgefügen können nach Größe und Form noch weiter unterschieden werden.

¹Pedosphäre genannt

²Unter der mineralischen Bodensubstanz wird größtenteils verwittertes Felsgestein verstanden.

³Humus besteht aus einer Vielzahl komplexer Verbindungen, die nach dem Absterben organischer Materie freigesetzt und sowohl spontan als auch enzymatisch durch Bodenorganismen chemisch umgewandelt werden. Durch ihre Abbaubarkeit unterscheiden sich diese Verbindungen aber erheblich.

⁴Womit geklärt ist, warum im Märzen der Bauer seine Rösslein einspannt: er pflügt seine Felder und Wiesen im Land.

⁵Kalziumcarbonat fungiert hier als Bodenkitt.

10.2 Elementare Migrationsprozesse

Der Boden selbst besteht aus mehreren Schichten. Die oberste, Topsoil genannt, ist etwa 0,4 m dick und reich an organischem Material. Darunter liegt die Subsoil, die eine Stärke von etwa 0,3 m hat und reich an anorganischem Material ist. Danach folgen die Pre-Felsschicht und schließlich das Felsgestein.

Auch die Größe der Bodenteilchen kann auf das Migrationsverhalten, nicht nur von Transuranelementen, erheblichen Einfluss nehmen. Die Größe von Bodenteilchen beginnt bei den besonders feinkörnigen Tonpartikeln und geht über Lehm zu den Sandteilchen über, die bis zu 2 mm groß sein können. Die unterschiedlichen Partikel halten den im Sicker- oder Regenwasser gelösten Schadstoffen die unterschiedlichsten Wechselwirkungsprozesse entgegen.

Sandpartikel sind chemisch inert und verhältnismäßig groß. Ein Grund- oder Sickerwasserstrom kann daher leicht durch ein Sandbett hindurchdringen. Die Korngröße von Lehm ist geringer und offeriert daher eine größere aktive Oberfläche. Dadurch können diese, im Gegensatz zu Sand, leichter mit dem (kontaminierten) Wasser transportiert werden, aber zum Teil auch Schadstoffe aufnehmen. Tonteilchen bieten die größtmögliche aktive Oberfläche und können einen Wasserfluss unter Umständen auch gänzlich verhindern. Außerdem können Radionuklide und anderen Schadstoffe an der reaktiven Oberfläche von feinen Bodenpartikeln besonders leicht absorbiert werden [1].

Schadstoff sind in der Bodenkunde jene Substanzen, die das Wachstum von Kulturpflanzen, das Bodenleben, über Futtermittel die Tiergesundheit und über Trinkwasser und Nahrungsmittel auch die menschliche Gesundheit gefährden. Grob lassen sich Bodenschadstoffe in zwei Gruppen einteilen, in organische Schadstoffe und Schwermetalle. Kurz zusammengefasst zählen zu den organischen Schadstoffen Herbizide, Fungizide, Insektizide, chlorierte Kohlenwasserstoffe und viele andere.

Einige Schwermetalle, wie Cu, Fe, Mn, Zn gehören zu den essentiellen Schwermetallen, die in kleinen Mengen, als Spurenelement, der menschliche und pflanzliche Metabolismus⁶ benötigt. Im Überfluss wirken auch Spurenelemente toxisch. Zu den bedenklichen Schwermetallen zählen Elemente wie Pb, Hg, Cd, Cr und Ni.

Schwermetalle können im Boden nicht weiter abgebaut werden. Sie sind fast unbeweglich, wodurch eine Schwermetallanreicherung im Boden nur mit sehr großem Aufwand zu beheben ist. Schwermetalle können allerdings von Pflanzen aufgenommen werden und so in den Nahrungsmittelkreislauf gelangen.

10.2 Elementare Migrationsprozesse

Ein Transportprozess von Schadstoffen beginnt ganz allgemein damit, dass ein Radionuklid in einer wässrigen Phase in einem terrestrischen Ökosystem vorliegt [35]. Ob dieses Nuklid im Wasser gelöst oder suspendiert ist, ist in dieser Arbeit nebensächlich.

⁶So braucht der menschliche Körper z.B. Eisen, um Sauerstoff an das Hämoglobin binden zu können.

10 Transport von Transuranen in Böden

Zu den elementaren Migrationsprozessen zählen Diffusion, Dispersion, Advektion (Konvektion), Sorption, Matrixdiffusion (ein zusammengesetzter Prozess aus Sorption an und anschließender Diffusion innerhalb der Gesteinsmatrix), Transport mit Kolloiden, Transport mit Mikroben, Transport in der Gasphase, Fällung und Lösung und off-diagonal Onsager Prozesse. Beim Transport von Radionukliden spielt natürlich auch der radioaktive Zerfall eine Rolle.

Manche Prozesse, wie etwa der radioaktive Zerfall, sind im naturwissenschaftlichen Sinne bis ins Detail erläutert und bekannt. Auch Mechanismen wie die Diffusion, verbunden mit der Existenz eines Konzentrationsgradienten und die räumliche und zeitliche Verteilung eines advektiven Flusses lassen sich mit Hilfe von partiellen Differentialgleichungen beschreiben. Diese Gleichungen sind zwar nicht mehr analytisch zu lösen aber genügen, um den dahinter liegenden Prozess mathematisch beschreiben zu können.

Andere Prozesse, wie die Sorption, sind ebenfalls wesentlich, um den Transport eines Schadstoffs umfassend beschreiben zu können. Die Sorption ist zwar qualitativ erforscht, aber im Detail zu wenig bekannt, um mit einer einfachen mathematischen Konstruktion umfassend beschrieben zu werden. Damit kann die Sorption nicht direkt in ein Migrationsmodell implementiert werden, sondern muss zuvor über Vereinfachungen, meist über ein Hilfsmodell, identifiziert werden, um im Migrationsmodell selbst bestmöglich wiedergegeben werden zu können. Abbildung 10.1 zeigt ein Diagramm, das die Wichtigkeit der genannten Transportprozesse gegen deren detaillierte Kenntnis gegenüberstellt.

Es gibt noch eine Vielzahl weiterer Prozesse, die an der Migration beteiligt sein können. Diese sind aber nur in groben Umrissen bekannt. In der Praxis hält man sich daher an die gut erforschten Mechanismen wie Diffusion, Advektion und Sorption (Matrixdiffusion). Gemeinsam mit dem radioaktiven Zerfall bilden sie die Grundlage für die Entwicklung von Migrationsmodellen auch in Hinblick auf *performance assessments*, die in der Risikoanalyse eine wichtige Anwendung darstellen. Im Folgenden werden die wichtigsten Mechanismen, die auch für das Migrationsmodell von Transuranen Anwendung finden, vorgestellt.

Diffusion

Mit dem Regen- oder Sickerwasser kann eine gelöste Radionuklidquelle verdünnt und weitertransportiert werden. Je geringer aber der Sickerwasserstrom, desto geringer die Advektion und umso wichtiger wird die Rolle der Diffusion innerhalb der Bodenmatrix [34].

Aufgrund der Brown'schen Molekularbewegung der Radionuklide wird eine zufallsgesteuerte Eigenbewegung ausgelöst.⁷ Die Diffusion selbst ist dann ein physikalischer Ausgleichsprozess, bei dem Atome, Ionen und Moleküle durch ihre Eigenbewegung von Orten höherer Konzentration zu Orten geringerer Konzentration gelangen können (Abbildung 12.1). Wenn man dabei von einer scharf abgegrenzten Emissionsquelle ausgeht, entsteht mit der Zeit ein Konzentrationsgefälle [35].

⁷Streng genommen liegt eine zufallsgesteuerte Bewegung nur in einem homogenen isotropen Medium vor.

10.2 Elementare Migrationsprozesse

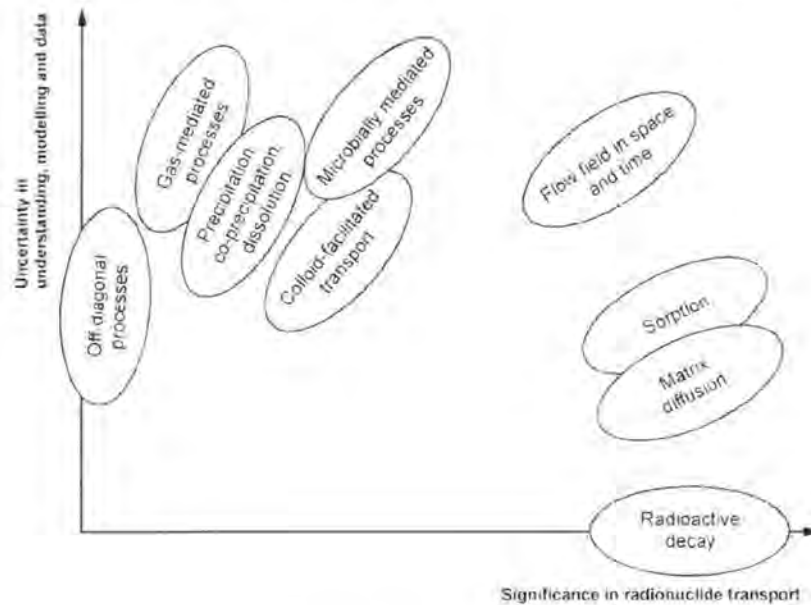


Abbildung 10.1: Der Stellenwert gegenüber der detaillierten Kenntnis

Die Menge der durch eine gedachte Einheitsfläche hindurch diffundierenden Moleküle, Atome und Ionen ist proportional zu deren Konzentrationsgefälle.

$$\frac{\partial c}{\partial t} = D \cdot \left(\frac{\partial^2 c}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 c}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 c}{\partial z^2} \right) = D \cdot \nabla^2 c \quad (10.1)$$

Diese, der Diffusion zugrunde liegende Gleichung ist auch als Fick'sches Gesetz bekannt. Die Proportionalitätskonstante D wird als Diffusionskonstante bezeichnet und kann experimentell bestimmt werden [47]. Die Diffusionskonstante hängt von der Masse und der Ladung des gelösten Stoffes, von der Ladung und Viskosität des Fluids und der Porengeometrie ab [34].

Die Differentialgleichung besagt, dass die Geschwindigkeit, mit der sich die Konzentration ändert, proportional zu der 2. Ableitung der Konzentration nach dem Ort ist. Wenn sich also eine Konzentration von einem Punkt zu einem anderen sehr stark ändert, so ändert sich die Konzentration schnell. Wenn die 2. Ableitung nach dem Ort Null ist, bleibt die Konzentration zeitlich konstant, d.h., der Zustrom an Teilchen in einem Volumenschnitt ist genau dem Abfluss der Teilchen.

10 Transport von Transuranen in Böden



Abbildung 10.2: Prinzip der Diffusion

Damit ist die Diffusionsgleichung nichts anderes als die mathematische Formulierung des Gedankens, dass jeder Stoff in einem fremden Medium auf Ausgleich mit seiner Umgebung zustrebt [47].

Advektion

Die Advektion beschreibt die Bewegung des gelösten Radionuklids mit dem sich bewegenden Grund- oder Sickerwasser. Damit stellt die Advektion eine Schadstoffausbreitung dar, die sich mit der Fließgeschwindigkeit \vec{u} des Sicker- bzw. Grundwassers durch den mobilen Porenraum bewegt. (Abbildung 10.3)



Abbildung 10.3: Prinzip der Advektion

Bei Vernachlässigung der Diffusion kann der Teilchenfluss durch eine Querschnittsfläche A im Zeitintervall Δt aufgrund der Strömung mit Geschwindigkeitsvektor \vec{v} analog berechnet werden:

$$J = \frac{c \cdot A \vec{v} \Delta t}{A \Delta t} = c \cdot \vec{v}$$

Dieser Fluss wird dabei Konvektionsfluss genannt. Analog zur Differentialgleichung für die Diffusion erhält man für die Konzentrationsänderung aufgrund der Konvektion in einem Quader der Länge l und Querschnittsfläche A [47]:

$$\frac{\partial c}{\partial t} = \frac{J - J'}{l} = \left\{ c - \left[c + \left(\frac{\partial c}{\partial x} \right) l \right] \right\} \cdot \frac{v}{l - v} = -v \cdot \frac{\partial c}{\partial x} \quad (10.2)$$

Die Summe der beiden Beiträge, also der Konvektion und der Diffusion, liefert die verallgemeinerte Diffusionsgleichung:

$$\frac{\partial c}{\partial t} = D \frac{\partial^2 c}{\partial x^2} - v \frac{\partial c}{\partial x} \quad (10.3)$$

Obwohl aus theoretischer Sicht die Grundwasseradvektion mathematisch sehr genau beschreibbar ist, müssen im Anwendungsfall meistens einige Vereinfachungen getroffen werden, da das Gradientenfeld des advektiven Flusses in einer realen Umgebung nicht im Detail bekannt ist.

Dispersion

Unter der Dispersion wird die Verteilung bzw. Ausbreitung von gelösten Stoffen im bewegten Sickerwasser verstanden, die durch die unterschiedlichen Fließgeschwindigkeiten der einzelnen Wasserteilchen hervorgerufen wird. Die Dispersion ist somit der Advektion ähnlich und liefert einen weiteren strömungsabhängigen Beitrag zur Ausbreitung einer radioaktiven Kontamination.

Im Sickerwasser hat eine gelöste Stoffmasse eine gewisse Ausdehnung im Raum. Wird diese Sickerwasserzone bewegt, dann vergrößert sich diese Ausdehnung mit zunehmender Fließzeit und Fließweg. Dadurch wird die maximale Stoffkonzentration verringert (verdünnt). Dieser Vorgang wird hydrodynamische Dispersion genannt.

Die hydrodynamische Dispersion resultiert neben den Geschwindigkeitsvariationen im Porenraum der des durchströmenden Sickerwassers, aus dem Konzentrationsausgleich infolge der Diffusion. Dadurch ist die Dispersion kein echter physikalischer Transportprozess, sondern eine mathematisch gut beschreibbare Erscheinung. Wenn es möglich wäre, Fließgeschwindigkeiten und -wege eines jeden gelösten Teilchens nachzuvollziehen und messtechnisch zu erfassen, wäre solch ein Dispersionsansatz nicht notwendig. Der Stofftransport selbst wird aber nur durch räumliche und zeitliche Änderungen von Konzentrationen messbar.

Der dispersive Massenfluss wird mathematisch formal wie das Diffusionsgesetz als Produkt aus einer Dispersionskonstanten und dem Konzentrationsgradienten dargestellt.

$$\frac{\partial c}{\partial t} = D^{disp} \cdot \left(\frac{\partial^2 c}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 c}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 c}{\partial z^2} \right) = D^{disp} \cdot \nabla^2 c \quad (10.4)$$

10 Transport von Transuranen in Böden

Dieser Ansatz ist eine einfache Näherung mehrerer mikroskopischer Transportprozesse im mesoskopischen Raum. Mit diesem Ansatz können realitätsnahe Transportberechnungen durchgeführt werden, ohne dass das heterogene Geschwindigkeitsfeld der Wasserphase im Detail bekannt sein muss.

Üblicherweise ist die Migrationsgeschwindigkeit von Radionukliden durch Diffusion und Dispersion viel geringer als die advektive Geschwindigkeit von fließendem Wasser. Diese Ursache hat zweierlei Gründe. Zum einen können Radionuklide durch Diffusion in das Innere der Gesteins- bzw. Bodenmatrix gelangen, andererseits können Radionuklide auch durch chemische und physikalische Prozesse, wie Fällung oder Sorption, aus der Lösung genommen und auf mineralischen oder organischen Oberflächen deponiert werden.

Advektion, Diffusion und Dispersion sind jene drei Transportmechanismen, die Radionuklide von der Schadensquelle zum Ort der Beurteilung verlagern. Sie wirken in unterschiedlicher Weise auf den Verlauf der Schadstoffkonzentration am Ort der Beurteilung aus.

Bilanziert man die drei genannten Massenflüsse, ergibt dies die Transportgleichung. Die Transportgleichung ist aber analytisch nicht mehr lösbar, weswegen zu numerischen Methoden gegriffen werden muss. Häufig verwendete numerische Methoden sind die Finite-Differenzen - Methode und die Finite-Elemente - Methode. Der Aufwand für eine numerische Modellierung ist aber enorm.

$$\frac{\partial c}{\partial t} = D^{disp} \cdot \left(\frac{\partial^2 c}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 c}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 c}{\partial z^2} \right) - \bar{u} \nabla c(\vec{r}, t) = D^{disp} \cdot \nabla^2 c - \bar{u} \nabla c(\vec{r}, t) \quad (10.5)$$

Sorption

Wenn im Regen- oder Sickerwasser gelöste Radionuklide durch den Bodenraum transportiert werden, können an den Grenzflächen zwischen Wasserstrom und Bodenpartikel Wechselwirkungen stattfinden, in dessen Folge Radionuklide aus dem Wasser an die Bodenmatrix gebunden werden können. Dieser Prozess wird als Sorption bezeichnet. Unter diesem Begriff werden allgemein jene Mechanismen⁸ vereint, die gelöste Teilchen in geringen Konzentrationen mit Hilfe von Reaktionspartnern zurückhalten können.

Prinzipiell wird die Sorption als ein reversibler Prozess betrachtet. Daher können sorbierte Nuklide auch wieder in Lösung gehen (desorbieren) und mit der Wasserphase weitertransportiert werden [34].

Manche Nuklide, wie ¹²⁹I, ³⁶Cl, ¹⁴C und ¹³⁷Cs, die sich durch ein hohes Migrationsbestreben auszeichnen, sind durch ein relativ geringes Sorptionsvermögen charakterisiert. Im Gegensatz dazu sind die meisten Transurane praktisch immobil, und sorbieren daher praktisch sofort an der umgebenden Bodenmatrix [1]. Abbildung 10.4 zeigt schematisch, wie ein Am-Nuklid in die Bodenmatrix aufgenommen wird. Die Aufnahme eines Teilchens in die Bodenmatrix wird als Matrixdiffusion bezeichnet.

⁸Dazu zählen unter anderem Prozesse wie Matrixdiffusion, Ionenaustausch, physikalische Adsorption

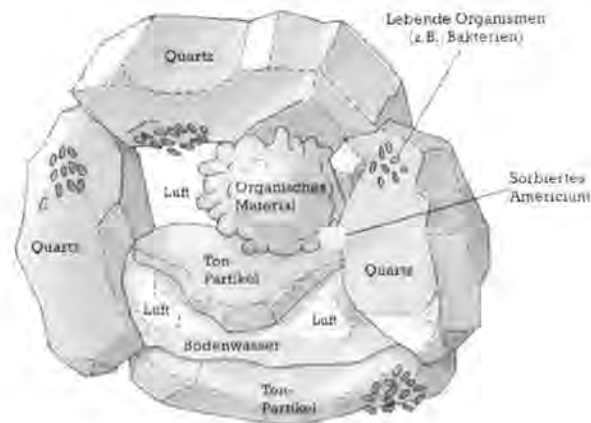


Abbildung 10.4: Sorption von Transuranen an der Bodenmatrix

Das Sorptionsverhalten eines gelösten Stoffes wird in der Transportgleichung mathematisch durch einen Senkterm beschrieben. Der Senkterm beschreibt jene gelöste Stoffmenge, die pro Zeit- und Volumseinheit aus der Lösung in die sorbierte Phase übergeht. Mit Berücksichtigung des Sorptionsterms erweitert sich die Transportgleichung zu

$$\frac{\partial c(\vec{r}, t)}{\partial t} = D \cdot \nabla^2 c(\vec{r}, t) - \vec{u}(\vec{r}, t) \nabla c(\vec{r}, t) - \frac{\partial c_{\text{sorb}}}{\partial t}$$

wobei der Term $\frac{\partial c_{\text{sorb}}}{\partial t}$ die Sorptionsrate pro Zeit- und Volumseinheit angibt.

Zur Lösung der erweiterten Transportgleichung ist es notwendig, die Sorptionsrate zu kennen. Es gibt dabei zwei unterschiedliche Ansätze, um die Sorptionsrate mit Hilfe einer Modellrechnung zu bestimmen [35]:

1. Gleichgewichts-Sorptionsmodelle (auch K_d -Modelle genannt)
2. Kinetische Sorptionsmodelle

Tabelle 10.1 zeigt die wichtigsten Gleichgewichts- und kinetischen Sorptionsansätze. Die Variablen c_{sorb} bzw. c_{gel} entsprechen dabei den jeweiligen Konzentrationen an sorbierten und gelösten Teilchen. Die Parameter K_d , K_r und b müssen für jedes Radionuklid empirisch bestimmt werden.

Die Aufteilung der Radionuklide zwischen den Bodenpartikeln und dem Porenwasser wird in einem Gleichgewichtsansatz durch den Distributionskoeffizienten K_d beschrieben, der den Quotienten aus der Radionuklidkonzentration in der festen Phase zu der Radionuklidkonzentration in gelöster Phase, darstellt.

und chemische Komplexbildung.

10 Transport von Transuranen in Böden

Sorptionsmodell	Gleichgewichtsansatz	Kinetischer Ansatz
Henry (Linear)	$c_{Sorb} = K_d \cdot c_{gel}$	$\frac{\partial c_{Sorb}}{\partial t} = K_r (K_d \cdot c_{gel} - c_{Sorb})$
Freundlich	$c_{Sorb} = K_d \cdot c_{gel}^N$	$\frac{\partial c_{Sorb}}{\partial t} = K_r (K_d \cdot c_{gel}^N - c_{Sorb})$
Langmuir	$c_{Sorb} = b \cdot \frac{K \cdot c_{gel}}{1 + K \cdot c_{gel}}$	$\frac{\partial c_{Sorb}}{\partial t} = K_r \cdot (b \cdot \frac{K \cdot c_{gel}}{1 + K \cdot c_{gel}} - c_{Sorb})$

Tabelle 10.1: Zusammenstellung einiger Sorptionsisothermen

$$K_d = \frac{c_{Sorb}}{c_{gel}}$$

Wobei große K_d -Werte starke Adsorption der gelösten Partikeln an einem Feststoff implizieren. Tabelle 10.2 zeigt typische Distributionsfaktoren. [1]

Radionuklid	K_d in [ml/g]
Cs	$10^2 - 10^4$
I	10^2
Pb	10^4
Pu	$10^4 - 10^5$
Ra	$10^2 - 10^3$
U	$10^2 - 10^3$

Tabelle 10.2: Typische Werte für K_d Faktoren

Der kinetische Ansatz hat gegenüber dem Gleichgewichtsansatz einen erheblichen Nachteil. Beim kinetischen Ansatz sind nämlich mehrere Parameter vorhanden, die im Weiteren auch bestimmt werden müssen. Daher wird in den meisten Modellen die Sorption über einen linearen Gleichgewichtsansatz beschrieben. Alternativ könnte auch für einen Gleichgewichtsansatz nach Freundlich oder Langmuir gearbeitet werden.

Für die Bestimmung der Sorptionsrate wird in der Transportgleichung die Sorptionsrate $\frac{\partial c_{Sorb}}{\partial t}$ durch den linearen Ausdruck $c_{Sorb} = K_d \cdot c_{gel}$ ersetzt. Dabei entspricht der Term c_{gel} der Gesamtkonzentration c im betrachteten System.

$$\frac{\partial c(\vec{r}, t)}{\partial t} = D \cdot \nabla^2 c(\vec{r}, t) - \vec{u}(\vec{r}, t) \nabla c(\vec{r}, t) - K_d \cdot \frac{\partial c(\vec{r}, t)}{\partial t} \quad (10.6)$$

$$\frac{\partial c(\vec{r}, t)}{\partial t} \cdot (1 + K_d) = D \cdot \nabla^2 c(\vec{r}, t) - \vec{u}(\vec{r}, t) \nabla c(\vec{r}, t) \quad (10.7)$$

$$\frac{\partial c(\vec{r}, t)}{\partial t} = \frac{D}{1 + K_d} \cdot \nabla^2 c(\vec{r}, t) - \frac{\vec{u}(\vec{r}, t)}{1 + K_d} \nabla c(\vec{r}, t) \quad (10.8)$$

Die Ableitung zeigt, dass sowohl Diffusionskonstante als auch Advektionsgeschwindigkeit durch denselben Faktor dividiert werden. Dieser Faktor $1 + K_d$ wird auch Retardierungsfaktor genannt, da durch diesen Diffusion und Advektion aufgrund der Sorption retardiert werden. Der

Retardierungsfaktor ist selbstverständlich für verschiedene Umgebungen, aufgrund der unterschiedlichen K_d -Koeffizienten, unterschiedlich.

10.3 Abbau von Schadstoffen

Sobald Schadstoffe in ein Ökosystem eingetreten sind, können diese nicht nur verbreitet, sondern auch abhängig von der Art des Schadstoffs und der vorherrschenden Umgebung, auch wieder abgebaut werden. In der Regel ist im Falle einer Sanierung der Abbauprozess von außen schwierig zu initiieren, auch der spontane Abbau von Schadstoffen ist eine Seltenheit. Darum ist es meist aufwändig und langwierig, kontaminierte Gebiete zu sanieren. Daher sind die Kenntnisse eines etwaigen Abbaus des betreffenden Schadstoffs von besonderer Bedeutung.

Um die Abbaukinetik eines Schadstoffs beschreiben zu können, wird zur verallgemeinerten Transportgleichung ein weiterer Senkterm A , der den Schadstoffabbau erfasst, eingeführt.

$$\frac{\partial c}{\partial t} = \frac{D}{R} \nabla^2 c - \vec{u} \nabla c - A$$

Der Senkterm A gibt die Stoffmenge an, die pro Zeit- und Volumseinheit abgebaut werden kann. Um den Senkterm A in der verallgemeinerten Transportgleichung auch mathematisch erfassen zu können, wurden verschiedene Abbaugleichungen entwickelt, von denen einige in 10.3 zusammengefasst sind.

Bezeichnung	Abbaugleichung
Abbau 0. Ordnung	$A = -k_1$
Abbau 1. Ordnung	$A = -\lambda \cdot c$
Abbau höherer Ordnung	$A = -k_1 \cdot c^{k_2}$
Monod, Michaelis-Menten Kinetik	$A = -\frac{\mu_{MAX} \cdot c}{K_S + c}$
Monod, Wachstums-Kinetik	$A = -\frac{\mu_{MAX} \cdot c}{K_S + c} (c_0 + X_0 - c)$
Logarithmische Kinetik	$A = -\mu_{MAX} \cdot (c_0 + X_0 - c)$
Logistische Kinetik	$A = -k_1 \cdot c (c_0 + X_0 - c)$

Tabelle 10.3: Eine Auswahl von Abbaugleichungen

Die Parameter haben folgende Bedeutung: k_1 , k_2 und λ sind empirische Konstanten, μ_{MAX} stellt den maximal möglichen Abbau dar. Unter K_S wird jene Schadstoffkonzentration verstanden, bei der die Abbaurate der halben maximalen Abbaurate entspricht. Die Konstante c_0 steht für die Anfangsschadstoffkonzentration und X_0 entspricht der Menge an Schadstoffen die notwendig ist, um eine Anfangspopulation zu bilden.

Die meisten der angeführten Abbaugleichungen basieren auf theoretischen Ableitungen, die in der Praxis im empirischen Sinne angepasst werden. Dazu werden die Parameter dieser Gleichungen durch eine Kurvenanpassung an die jeweils vorliegenden Messdaten bestimmt.

10 Transport von Transuranen in Böden

Die Abbaugleichung 1. Ordnung stellt eine Art Universal-Abbaugleichung dar. Sie wird in fast allen Schadstoffmodellen zur Beschreibung des Abbaus eingesetzt. Auch der Abbau durch den radioaktiven Zerfall kann durch einen Abbau 1. Ordnung nicht nur genähert, sondern auch im mathematischen Sinne beschrieben werden.

Durch Einsetzen des allgemeinen Senkterms A in der Form eines Abbaus 1. Ordnung ergibt sich für die verallgemeinerte Transportgleichung:

$$\frac{\partial c}{\partial t} = \frac{D_W}{R} \nabla^2 c - \vec{u} \nabla c - \lambda \cdot c$$

Bei fast allen Schadstoffmodellen wird hauptsächlich die Abbaugleichung erster Ordnung zur Beschreibung des Abbaus verwendet. Sie ist für den Abbau von Schadstoffen durch den radioaktiven Zerfall besonders geeignet und in Näherung auch für Biodegradation⁹ und Hydrolyse¹⁰.

Der radioaktive Zerfall erfolgt nach den Gesetzmäßigkeiten der Statistik, wobei das Zerfallsgesetz selbst ein Maß für die Wahrscheinlichkeit des radioaktiven Zerfalls ist. Durch Beobachtung einer großen Menge eines gewissen Radionuklids (N) über einen langen Zeitraum hinweg, kann der radioaktive Zerfall folgendermaßen beschrieben werden:

$$-\frac{dN}{dt} = \lambda N \quad (10.9)$$

$$N = N_0 \cdot e^{-\lambda t} \quad (10.10)$$

Mit λ wird die Zerfallskonstante bezeichnet, die für jedes Radionuklid spezifisch ist und sich über die Halbwertszeit eines Radionuklids bestimmen lässt. Diese lässt sich wie folgt berechnen:

$$t_{1/2} = \frac{\ln 2}{\lambda} \quad (10.11)$$

Von besonderem Interesse sind auch radioaktive Zerfallsreihen, wenn das Tochterprodukt eines radioaktiven Mutterkerns ebenfalls wieder radioaktiv ist. Auch Aktinoidenketten haben eine ganze Reihe an radioaktiven Töchtern¹¹, die im Migrationsmodell auch berücksichtigt werden. Solche Beziehungen können in der Form von *nuklid1* → *nuklid2* → *nuklid3* ausgedrückt werden. Nuklid 1 wird aufgrund des radioaktiven Zerfalls zu Nuklid 2 und dieses wieder zu Nuklid

⁹Unter Biodegradation versteht man jenen Prozess, bei dem organische Substanzen durch Enzyme, die z.B. durch Mikroorganismen gebildet werden, gespalten werden. Diese Spaltung kann aerob oder auch anaerob erfolgen.

¹⁰Die Hydrolyse ist die Spaltung einer chemischen Verbindung durch Reaktion mit Wasser. Dabei wird (formal) ein Wasserstoffatom an das eine *Spaltstück* abgegeben, der verbleibende Hydroxylrest an das andere Spaltstück gebunden. Die Umkehrung der Hydrolyse ist eine Kondensationsreaktion. Durch Hydrolyse werden viele Biomoleküle (Proteine, Disaccharide, Polysaccharide oder Fette) im Stoffwechsel durch Enzyme in ihre Bausteine zerlegt. Eine wichtige Hydrolyse-Reaktion, die Proteinen Energie gibt, ist die Spaltung von ATP zu ADP und einem Phosphatrest. Ein Beispiel ist die Hydrolyse eines Esters (auch Verseifung genannt), die die Umkehrreaktion zur Veresterung darstellt [48].

¹¹Andernfalls könnte sich die Kette auch nicht weiter fortsetzen.

3. Die Nettoproduktionsrate von Nuklid 2 kann somit folgend berechnet werden: [5]

$$\frac{dN_2}{dt} = -\frac{dN_1}{dt} - \lambda_2 N_2 = \lambda_1 N_1 - \lambda_2 N_2 \quad (10.12)$$

$$N_2 = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_1^0 \cdot (e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}) \quad (10.13)$$

Dabei sei $N_2(t)$ die Anzahl der Tochternuklide ^{241}Am zum Zeitpunkt t , $N_1(t)$ die Anzahl der Mutternuklide ^{241}Pu zum Zeitpunkt t , bzw. N_1^0 und N_2^0 die jeweiligen Nuklide zum Zeitpunkt $t = 0$. Weiters stellt λ_1 die Zerfallskonstante für das Mutternuklid ^{241}Pu und λ_2 die Zerfallskonstante für das Tochternuklid ^{241}Am dar, und t die bereits verstrichene Zeit.

10.4 Zweitrangige Migrationsprozesse

Es gibt eine Vielzahl von weiteren Migrationsprozessen für den Transport von Schadstoffen in Böden, von denen die meisten nur qualitativ, nicht aber mathematisch beschreibbar sind. Daher können sie in Migrationsmodellen auch nur indirekt berücksichtigt werden. Die wichtigsten werden hier kurz vorgestellt.

Kolloide: Kolloide sind Partikel, die bevorzugt im Wasser suspendiert bleiben. Sowohl Transport als auch Rückhaltevermögen von Kolloiden sind, verglichen mit im Wasser gelösten Nukliden, sehr unterschiedlich. Daher haben Radionuklide, die an Kolloide gebunden sind, ein anderes Migrationsverhalten als gelöste Nuklide.

Kolloide können organischen oder mineralischen Ursprungs sein. Mineralische Kolloide durch Verwitterung von mineralischem Gestein oder auch bei der Ausfällung von Mineralien ins Sickerwasser. Sie bestehen aus Silikaten, Tonmineralien, Kalziten oder Eisenhydroxid. Organische Kolloide entstehen durch den Abbau organischer Substanzen oder organischen Makromolekülen wie Humin- oder Schwefelsäuren. Da Kolloide vergleichsweise groß sind, können sie leicht beim Durchdringen des Sickerwassers durch Sand oder poröses Gestein abfiltriert werden [34].

Mikroben transport: Mikroben sind mikroskopisch kleine Organismen mit eigenem Stoffwechsel. Beispiele für Mikroorganismen sind Bakterien (z.B. Milchsäurebakterien) und mikroskopische Algen.

Off-diagonal Prozesse: Off-diagonal Prozesse werden durch einen Fluss im Sickerwasser verursacht, der unabhängig vom vorherrschenden advektiven Fluss auftritt. Dieser kann etwa durch einen chemischen Gradienten (chemische Osmose) verursacht werden, als Beispiele für Off-diagonale Prozesse seien hier Osmose und Hyperfiltration genannt. Sie können ebenfalls auf den Transport von Radionuklide Einfluss haben.

10 Transport von Transuranen in Böden

11 Einführung in die Modellbildung

In diesem Kapitel sollen die Grundlagen über mathematische Modellierung kurz vorgestellt werden. Besonderes Augenmerk wird dabei bereits auf die Modellbildung in Verbindung mit der Dispersion von Radionukliden in die Umwelt gelegt [1].

Sobald Radionuklide als Schadstoffe in das Ökosystem des Menschen eingetreten sind, unterliegen sie den unterschiedlichsten physikalischen und biologischen Prozessen im jeweiligen Medium. Daher gibt es auch unzählige Wege, wie Radionuklide durch terrestrische, atmosphärische und aquatische Systeme verteilt werden können. Schlussendlich ist nur die Frage von Bedeutung, wie über diverse Migrationspfade Radionuklide auch Mensch und Tier erreichen können.

Computermodelle können derartige Migrations- und Expositionspfade berechnen und manche für den Ernstfall sogar vorhersagen, wie sich Radionuklide in einer bestimmten Umgebung verhalten. Diese Modelle können im Detail sehr komplex sein, aber wenn das Migrationsverhalten an reale Bedingungen angepasst werden soll, müssen oft Vereinfachungen getroffen werden. Andernfalls besteht die Gefahr, dass bei einer zu detaillierten Modellierung das Modell selbst divergiert.

Migrationspfade werden durch physikalische, chemische und zum Teil auch durch biologische Prozesse bestimmt. Auch die Frage, wohin diese Teilchen gelangen und was für Schaden sie anrichten können, lässt sich zumindest teilweise durch naturwissenschaftliche Prozesse beschreiben.

Radionuklide sind bei ihrer Ausbreitung nicht nur physikalischen Mechanismen wie Advektion, Diffusion und Turbulenzen¹ unterworfen. Sie können auch durch andere Prozesse wieder aus dem System entfernt werden. Ein Beispiel dafür ist der Abbau des radioaktiven Schadstoffs durch den radioaktiven Zerfall, sofern das Tochterprodukt ein mehr oder weniger stabiles Element darstellt.

Bis vor wenigen Jahrzehnten war eine Modellrechnung kaum praktisch anzuwenden, da nur in Computer-Großrechenanlagen ausreichend Rechenleistung dafür zur Verfügung gestellt werden konnte. In den letzten Jahren sind in der Computertechnologie aber große Fortschritte erzielt worden, sodass ein Computermodell nun auf fast jedem PC laufen kann.

¹Dispersion durch Turbulenzen ist ein weiterer Migrationsmechanismus, der bei der Migration durch atmosphärische und aquatische Systeme zum Tragen kommt.

11 Einführung in die Modellbildung

Computermodelle können sowohl zur Systemvorhersage, als auch zur Systemanalyse verwendet werden, wodurch sich ihre zunehmende Beliebtheit in allen Wissenschaftsdisziplinen erklären lässt. So können Computermodelle für die Simulation des Transports und des Verhaltens von Radionukliden in Ökosystemen eingesetzt werden. Besonders in den Risikoanalysen für Nukleare Unfälle und Dosisabschätzungen spielen Computermodelle eine immer bedeutendere Rolle.

Die Computersimulation ist aus einer Vielzahl von Gründen in den letzten Jahren immer beliebter geworden und wird gerne als Standardprozedere für Problemlösungen eingesetzt². Die im Folgenden aufgelisteten Punkte berücksichtigen dabei speziell die Modellierung für die Dispersion von Radionukliden in Ökosystemen.

1. Die Beprobung und die Auswertung von Umweltproben ist eine sehr kost- und zeitaufwändige Sache. Computermodelle bieten bei gleichem Resultat eine effektive Alternative bei weit geringerem Beprobungsaufwand.
2. Computermodelle erlauben Vorhersagen über mögliche Unfallszenarios, z.B., unter welchen Umständen Radionuklide aus Kernkraftwerken in die Umwelt entweichen können. Für solche Risikoanalysen sind Computermodelle eine wichtige Hilfestellung.
3. Computermodelle sind anpassungsfähig und vielseitig. Anfangs- und / oder Randbedingungen können variiert oder komplett verändert werden, um deren Einfluss auf das Gesamtsystem zu beobachten. Somit kann direkt am Modell experimentiert werden, um z.B. Systemparameter eines *worst case* herauszufinden.
4. Computer haben in den letzten Jahren extrem an Leistung gewonnen, und damit einhergehend hat sich auch die Benutzerfreundlichkeit drastisch verbessert. Viele Dispersionsmodelle sind mittlerweile über graphische Benutzeroberflächen³ zu bedienen.
5. Auch für eine strategische Auswahl an stationären Positionen für radiologische Überwachungsstellen (Monitoring) können Computermodelle wertvolle Hilfe bieten.
6. In der Grundlagenforschung wird die Computersimulation ebenfalls eingesetzt, um ein besseres Verständnis von komplizierten Grundlagenprozessen zu erhalten.

Der Vollständigkeit halber sei erwähnt, dass bei Einsatz von Computermodellen, trotz ihrer vielen Vorzüge, auch einige gravierende Einschränkungen getroffen werden müssen.

1. Das reale Problem muss meist in kleinere, überschaubarere Teilprobleme zerlegt werden. Dabei kann es vorkommen, dass zu große Vereinfachungen getroffen werden, die im schlimmsten Fall zu falschen Resultaten führen können.

²Mit Hilfe von Computermodellen können nicht nur Radionuklide in der Umwelt verfolgt werden, sie werden auch in anderen Wissenschaftsdisziplinen eingesetzt: in der Grundwassermodellierung, Modellierung von Kläranlagen, Modellierung des Tumorwachstums, u.v.a.

³G.U.I.: Graphical User Interface, engl. für graphische Benutzeroberfläche.

2. Die Fragestellung an ein vereinfachtes Modell muss analog auch der Komplexität des Problems entsprechen.
3. Das Ergebnis eines Modells hängt nicht nur vom gewählten Ansatz ab, sondern auch von der Güte der Eingangsdaten.

Nach Fertigstellung ist ein Modell ausführlich zu evaluieren und anhand zahlreicher Messdaten zu validieren.

11.1 Umweltmodelle

Es gibt bereits eine Vielzahl an Umweltmodellen, die speziell für die Dispersion von Radionukliden in der Umwelt entwickelt worden sind. Dennoch lassen sich fast alle Modelle nach Ansatz und Verwendung in drei Klassen einteilen.

- **Physikalische Modelle** arbeiten im mikro- oder mesoskopischen Raum, wo ein repräsentativer Teil eines Ökosystems isoliert modelliert wird. Dabei wird das Verhalten der in diesem simulierten Ökosystem vorhandenen Radionuklide beobachtet. Anschließend können weitere Vorhersagen über den Verlauf von Radionukliden in diesem Ökosystem getroffen werden.
- **Mathematische Modelle** benutzen als Arbeitsebene keinen physikalischen Raum, sondern jene Prozesse, die auf das Radionuklid Einfluss nehmen können. Diese Prozesse sind meist Funktionen von physikalischen oder chemischen Naturgesetzen (Diffusion, radioaktiver Zerfall, Redox Reaktionen, ...).
- **Stochastische Modelle** verwenden statistische Methoden, um etwaige Zusammenhänge zwischen großen Datenmengen aufzuzeigen. Solche Modelle werden bevorzugt für Risikoanalysen eingesetzt.

Im Folgenden wird nun auf die Grundlagen der mathematischen Modellierung näher eingegangen. Es ist auch jener Modellansatz, der für die Erstellung des Migrationsmodells in dieser Arbeit verwendet wurde. Für die anderen beiden Modellansätze sei hier an die einschlägige Fachliteratur verwiesen [49], [50].

Mathematische Modelle lassen sich je nach Herangehensweise und Ansatz noch weiter unterteilen. Stellvertretend werden hier drei in der Radioökologie häufig verwendeten Varianten vorgestellt: das Source-Receptor Modell, das Receptor-Modell und das Compartment-Modell.

Das **Source-Receptor**-Modell wird verwendet um etwa den Transport von Radionukliden in der Luft zu simulieren. Um mit diesem Ansatz arbeiten zu können, werden folgende Informationen benötigt:

1. Die Quelle (*source*) und die Art der Quelle (Punktquelle oder Flächenquelle) muss bekannt sein.

11 Einführung in die Modellbildung

2. Die Emissionsraten für das betreffende Radionuklid müssen bekannt sein.
3. Die Transportprozesse, die die Radionuklide weiter durch die Luft transportieren können, müssen bekannt sein.
4. Allfällige chemische und physikalische Transformationsprozesse, die während der Dispersion auftreten können, müssen ebenfalls bekannt sein.

Die Modellierung der Dispersion nach dem Source-Receptor Modell beschreibt die Bewegung der Radionuklide von ihrer Quelle bis hin zu einem Empfänger⁴. Im Modell selbst müssen dabei sowohl die wesentlichen Prozesse für die Dispersion von Radionukliden, als auch jene Prozesse, die ein Radionuklid aus dem Modell wieder entfernen, abgebildet werden.

Komplexere Zusammenhänge lassen sich mittels detailreichen Modellen beschreiben, die meist auf Grundlage von mehrdimensionalen partiellen Differentialgleichungen aufgebaut sind. Solche Modelle lassen sich nicht analytisch lösen. Meist werden zur Lösung solcher Modelle numerische Verfahren eingesetzt. In den vergangenen Jahren haben sich aber auch alternative Ansätze bewährt⁵ [51].

Receptor Modelle werden für zweierlei Problemstellungen eingesetzt: einerseits um Emissionsquellen aufzuspüren, andererseits um unterschiedliche Nuklide ihren jeweiligen Quellen zuzuordnen.

Diese Methode der Receptor Modelle legt ihren Schwerpunkt auf Seiten des Empfängers, also, auf die durch ein Radionuklid hervorgerufenen Auswirkungen auf ein System. Im Gegenzug dazu fokussiert das Source-Receptor-Modell auf den Transport von Schadstoffen von der Quelle zur Senke.

Die grundlegende Annahme für Receptor Modelle besteht in der Zusammensetzung der Emissionsquelle hinsichtlich ihrer Radionuklide, die mit der Zusammensetzung der Radionuklide auf Empfängerseite in Zusammenhang gebracht werden kann. Oft kann dabei auch ein Tracer hilfreich sein.

Diese Art der Modellbildung beruht auf der Massenerhaltung. Ist z.B. die Gesamtkonzentration eines Radionuklids in einem Ökosystem mit C_T in $[\text{ng}/\text{m}^3]$ gegeben, dann kann die Konzentration als lineare Summe aus Beiträgen aus den einzelnen Emissionsquellen betrachtet werden. Vorausgesetzt, dass keine chemischen oder physikalischen Transformationen stattfinden, gilt mit C als Variable für die Konzentration:

$$C_T = C_1 + C_2 + C_3 + \dots$$

Der wichtigste Vorteil dieses Modellansatzes liegt in der zuverlässigen Arbeitsweise beim Aufspüren und Zuordnen von Emissionsquellen. Dazu müssen allerdings sorgfältig erarbeitete Da-

⁴In der Sprache der Computermodellierung auch Senke genannt.

⁵Agentenbasierende Systeme, Flocking Boids, zelluläre Automaten, ...

tensätze zu Verfügung stehen. Innerhalb des Receptor-Modells gibt es unterschiedliche Arbeitsansätze, die an dieser Stelle nicht unerwähnt bleiben sollen.

- Chemical Mass Balance (CMB-Modelle)
- Principal Component Analysis (PCA), statistische Methode
- Multiple Linear Regression Analysis (MLRA), statistische Methode

Diese Modelle arbeiten alle nach dem Prinzip, dass die Zusammenhänge zwischen den Konzentrationen quantifiziert werden, indem Daten von einer Beprobungsstrategie auf Receptorseite analysiert werden. Anschließend können diese Zusammenhänge verwendet werden, um Emissionsquellen ausfindig machen zu können.

Compartment Modelle sind eine ausgesprochen beliebte Methode, um Migrationsprozesse und die Ausbreitung von Radionukliden zwischen einzelnen Bereichen (*compartments*) in einem Ökosystem zu untersuchen. Ihre Beliebtheit liegt auch an der, verglichen mit den anderen beiden Methoden, vergleichsweise einfachen Implementierung in ein Computersystem.

Ein Ökosystem, z.B. ein Fluss, wird aus einem System von Teilbereichen aufgebaut, zwischen denen Radionuklide ausgetauscht werden können.

Compartment Modelle sind geeignet, um jedwellige Probleme in der Natur aufzuzeigen. Sogar Dosisabschätzungen sind mit Hilfe von Compartment Modellen möglich, weswegen sie sich vor allem im Strahlenschutz großer Beliebtheit erfreuen. Abbildung 11.1 zeigt die grundlegende Arbeitsweise eines Compartment Modells.

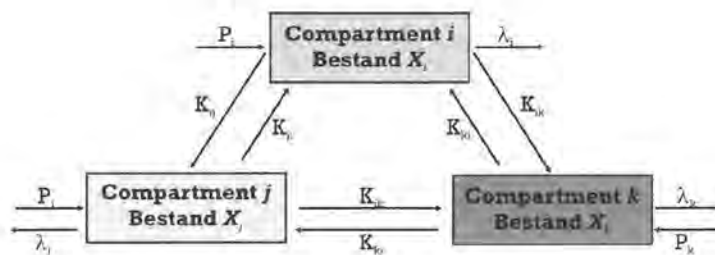


Abbildung 11.1: Die Interaktionen der einzelnen Compartments im Modell zu einander

Der Materialfluss zwischen den einzelnen compartments ist durch folgende Gleichung gegeben,

$$\frac{dX_i}{dt} = \sum_{j=1}^n k_{ij} X_j - \left(\sum_{j=1}^n k_{ji} \right) X_i - \lambda_i X_i + P_i \quad (11.1)$$

wobei $i \neq j$ und $k_{ij} \neq 0$ gilt.

11 Einführung in die Modellbildung

Die Transferkoeffizienten, die den Austausch von Radionukliden zwischen den einzelnen Compartments beschreiben, werden durch die Parameter k_{ij} ausgedrückt, während X_i den Bestand an Radionukliden innerhalb eines Compartments repräsentiert.

Der Verlust an Radionukliden in einem Compartment, ohne dass dieser zu einem anderen transferiert wird, wird durch λ_i ausgedrückt. Solch ein Verlust kann z.B. durch den Zerfall eines Radionuklids entstehen.

Schließlich muss noch ein etwaiger kontinuierlicher Eingang in ein Compartment mitberücksichtigt werden, der durch P_i ausgedrückt wird. Analog zum Verlust λ_i zählt auch hier der Eingang aus einem anderen Compartment nicht als Eingang.

11.2 Entwicklung eines Radiologischen Modells

Ein Computermodell lässt sich von der Problemstellung bis zur Lösung am besten über mehrere Zwischenschritte systematisch entwickeln. Im Normalfall müssen manche Zwischenschritte mehrmals durchdacht und erarbeitet werden, um schlussendlich ein passendes Modell für reale Applikationen in den Händen zu halten.⁶ Abbildung 11.2 illustriert jene Schritte die notwendig sind, um ein Modell von der ersten Idee bis zur Anwendung zu entwickeln.

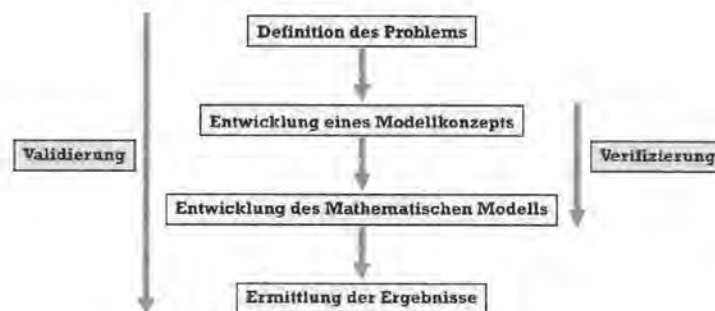


Abbildung 11.2: Schema einer Modellentwicklung

Im ersten Schritt muss sich der Modellierer naturgemäß Gedanken über die Problemstellung machen. Typische Überlegungen dafür sind, wofür das Modell verwendet werden soll, ob es um Vorhersagen über ein etwaiges Gesundheitsrisiko geht oder ob mit Hilfe des radiologischen Modells z.B. an der Klimaänderung geforscht werden soll. Diese unterschiedlichen Anwendungen verlangen komplett unterschiedliche Modellannahmen und Vereinfachungen.

Weiters muss sowohl die zeitliche als auch die örtliche Auflösung bestimmt werden. Je nachdem, ob es sich um kurzlebige oder langlebige Radionuklide handelt, muss das Modell über

⁶Die Entwicklung eines Modells erfolgt ein wenig analog zur naturwissenschaftlichen Methode.

11.3 Unsicherheiten in den Modellvorhersagen

kürzere oder längere Zeiträume gerechnet werden. Aber auch die räumliche Ausbreitung ist von großem Interesse. Ist das Radionuklid klein genug, dass es mit den Luftströmungen fast um die ganze Welt reisen kann oder wird es relativ bald nach Emission wieder abgesetzt.

Ein wesentlicher Punkt für das Modell ist letztendlich auch die Art der Freisetzung, ob diese kontinuierlich oder einmalig, etwa durch einen Unfall, erfolgte.

Weiters müssen jene Pfade, die ein Radionuklid in den unterschiedlichsten Ökosystemen beschreiten kann, erkannt und etabliert werden. Die Modellgleichungen müssen aufgestellt, bzw. die Anzahl der Compartments festgelegt und die Transferfunktionen identifiziert werden. Zusammen mit den Überlegungen aus dem ersten Schritt kann anschließend ein Modellkonzept erstellt werden.

Anschließend kann das Modellkonzept in die Sprache der Mathematik oder in eine Computersprache übertragen werden. Je nach Modellkomplexität kann dies mit erheblichem Aufwand und großen Schwierigkeiten verbunden sein. Dieser Schritt ist auch der mit Abstand am fehleranfälligen.

11.3 Unsicherheiten in den Modellvorhersagen

Egal welche Aussagen aufgrund eines Modells für eine bestimmte Situation getroffen werden können, werden diese mit einer gewissen Unsicherheit behaftet sein. Es lassen sich bis zu fünf verschiedene Unsicherheiten unterscheiden, die im Endeffekt alle das Endergebnis, bzw. die Vorhersage zum Teil sehr empfindlich beeinflussen können.

- Messunsicherheit: Die Messunsicherheit der ermittelten Daten werden auch ins Modell übertragen.
- Unsicherheit des Konzepts: Auch bei der Erstellung des Modellkonzepts ist mit einer gewissen Unsicherheit behaftet, besonders, wenn aufgrund der Messdaten mehrere Modellansätze möglich sind.
- Modellunsicherheit: Darunter wird jene Unsicherheit verstanden, die bei der Übersetzung des Modellkonzepts von der Idee in eine Computersprache erfolgen kann. Dazu zählen auch alle Vereinfachungen, die getroffen werden mussten, aber auch Diskretisierungen und numerische Verfahren.
- Unsicherheit der Parameter: Oft sind für Modellkonstanten die geeigneten Zahlenwerte nicht bekannt und müssen bestmöglich approximiert werden.
- Komplette Unsicherheit: Manchmal wird auch eine fünfte Unsicherheit beschrieben, die als komplette Unsicherheit bezeichnet wird. Darunter versteht man die Gesamtheit aller Prozesse und Möglichkeiten, die einen Einfluss auf einen wesentlichen Prozess des Modells nehmen können. Diese komplette Unsicherheit ist aber meistens nicht bekannt, nicht

11 Einführung in die Modellbildung

abschätzbar oder noch nicht hinreichend erforscht, um im Modell implementiert werden zu können.

Modellunsicherheiten sind schwierig zu quantifizieren, vor allem, wenn sich die Gesamtunsicherheit aus mehreren Quellen zusammensetzt. Die Unsicherheiten können durch zweierlei Analysen identifiziert werden:

- **Empfindlichkeitsanalyse:** Bei der Empfindlichkeitsanalyse werden jene Veränderungen im Modell untersucht, die eintreten, wenn die Eingangsdaten leicht variiert werden. Damit können auch jene Parameter im Modell identifiziert werden, die am empfindlichsten auf kleine Änderungen reagieren.
- **Unsicherheitsanalyse:** Unter dem Begriff Unsicherheitsanalyse versteht man die Quantifizierung der Modellunsicherheit im Ergebnis selbst. Typischerweise werden auch die Unsicherheiten der Modellparameter mitberücksichtigt, die oft von einander abhängig sind. Daher ist es besonders wichtig, solche Abhängigkeiten aufzudecken um mit berücksichtigt werden zu können.

Bei der anschließenden Verifizierung wird analysiert, ob das Computermodell mit dem Modellkonzept übereinstimmt, ob also die Übersetzung vom Konzept in eine Computersprache reibungslos verlaufen ist. Dies geschieht am besten durch peer reviewing durch Personen, die bei der Modellentwicklung nicht direkt involviert waren.

Bei der Validierung wird festgestellt, ob das Modellkonzept und der darauf aufbauende Computercode eine adequate Umsetzung für die Problemstellung selbst sind.

Für die Funktionalität eines Computermodells ist die sorgfältige Wahl der Eingangsdaten wesentlich. Messdaten können spezifisch an bestimmte Umgebungsbedingungen gebunden sein und können daher nicht immer ohne weiters von einem Fall zum nächsten transferiert werden.

11.4 Modellierungswerkzeug für die Migrationsgleichung

Computermodelle, die physikalische Prozesse beschreiben, werden oft auf Basis von partiellen Differentialgleichungen (PDEs) ⁷ beschrieben. Da meistens eine analytische Lösung von PDEs nicht möglich ist, werden PDEs mittels finiter Differenzen, finiter Elemente oder mit Hilfe von Spektralmethoden diskretisiert. Die daraus resultierenden algebraischen Gleichungen bzw. das resultierende System gewöhnlicher Differentialgleichungen (ODEs) ⁸ können anschließend mit den verschiedensten numerischen Verfahren⁹ gelöst werden.

⁷PDE engl. für **P**artial **D**ifferential **E**quation

⁸ODE engl. für **O**rdinary **D**ifferential **E**quation

⁹Das zu wählende numerische Verfahren hängt von der Problemstellung ab, als Beispiel seien hier das *Runge-Kutta*-Verfahren zur numerischen Lösung von ODEs und der *Levenberg-Marquardt*-Algorithmus zur numerischen Lösung nichtlinearer Gleichungen genannt.

11.4 Modellierungswerkzeug für die Migrationsgleichung

Dieser (klassische) Ansatz, wird auch als *top-down*-Ansatz bezeichnet, der aber auch einige Probleme mit sich bringt. In der einschlägigen Literatur über numerische Mathematik wird im Allgemeinen viel auf die Problematik des Rundungsfehlers eingegangen, der beim Übergang vom Differential zum Differenzenquotienten aufgrund der Rundung des Restglieds der Taylorreihe einhergeht. Die Abschätzung dieser Rundungsfehler ist vor allem bei sehr genauen Modellen, bei denen in der Modellierung kaum Abstriche gemacht werden können, von Bedeutung.

Bei physikalischen Modellen ist im Allgemeinen die Erhaltung einiger wichtiger (oder geeigneter) Größen über das gesamte Modellverhalten von Bedeutung. Daher wird versucht, gewisse Größen als Erhaltungsgrößen in den entsprechenden Differenzgleichungen zu erhalten. Ein weiteres, oft bei *top-down*-Ansätzen auftretendes Problem ist jenes der numerischen Instabilität, wenn, z.B. das gewählte Verfahren nicht konvergiert, sondern in einem schwingenden Verhalten resultiert [52].

Zelluläre Automaten (CA - Cellular Automata) hingegen sind neben Lattice Gas Cellular Automata, Lattice Boltzmann Modells und Molecular Dynamics (MD), um nur einige zu nennen, Beispiele für einen *bottom-up*-Ansatz. Dabei wird ein diskretes Modell aus mikroskopischer Sicht aufgesetzt. Aufgrund des gewählten Modellaufbaus können bestimmte Größen, wie Drehimpuls oder Masse, als Zustandsgrößen erhalten bleiben. Solche Modelle zeigen ein sehr gutes numerisches Stabilitätsverhalten. Probleme können, wie auch beim *top-down*-Ansatz, beim Aufspüren oder Vermeiden vermeintlicher Unveränderlicher auftreten [51], [52].

Dennoch gibt es für CA kein allgemein gültiges Erstellungskonzept, da es bei der Modellierung mittels CA einer gewissen Intuition bedarf [52].

11.4.1 CA - Zelluläre Automaten

CA wurden erstmals in den 1940er Jahren von *John von Neumann* und *Stanislaw Ulam* vorgestellt. Sie hatten nach einem Werkzeug gesucht, das biologische Prozesse wie Reproduktion und Evolution in einer räumlichen Umgebung beschreiben kann. Ihre grundlegende Idee war, verschiedene mikroskopische Interaktionen müssen zu denselben Gleichungen führen, die durch klassische Modellbeschreibung im mesoskopischen Bereich aufgestellt werden [53].

CAs bestehen aus vielen identischen Komponenten (Zellen), von denen sich jede einzelne nach einfachen, deterministischen Regeln entwickelt. Auch die benachbarten Zellen müssen bei der zeitlichen Weiterentwicklung mitberücksichtigt werden. Die Zustandsübergänge laufen dabei in allen Zellen parallel und in diskreten Zeitschritten ab [51].

Obwohl mittels CA sehr komplexe Zusammenhänge beschrieben werden können, ist ein CA mit der Erfüllung von nur vier wesentlichen Punkten hinreichend definiert [52].

1. Gestaltung der Zellen

Ein CA besteht aus gleichen, geometrischen Zellen, die auf einem Gitter nebeneinander angeordnet sind.

11 Einführung in die Modellbildung

2. Definition der Nachbarschaft

Für einen CA muss eine Nachbarschaft definiert werden. Diese bestimmt, welche Zellen auf welche Einfluss nehmen können. Dabei ist die definierte Nachbarschaft für alle Zellen während der gesamten Laufzeit gültig.

3. Der Zell-Zustand

Es wird eine finite Anzahl an Zuständen definiert, die jede Zelle einnehmen kann. Der Übergang von einem Zustand in einen anderen wird durch die Automatenregel bestimmt. Die Zustände aller Zellen werden dabei simultan während eines diskreten Zeitschrittes in die neuen Zustände transkribiert.

4. Automatenregel

Die Automatenregel beschreibt, wie eine (etwaige) Änderung im nächsten Schritt des Zellzustands erfolgt. Die Automatenregel hängt dabei nur vom Zustand der Zelle selbst und denen der Nachbarschaft ab. Eine Automatenregel ist für einen CA während der gesamten Laufzeit gültig.

Diese vier angeführten Kriterien müssen nicht immer zwangsläufig erfüllt sein, es kann sogar durchaus sinnvoll sein, diese ein wenig zu modifizieren. So mag es z.B. Anwendungen geben, bei denen es zielführend erscheint, die Automatenregel mit einer probabilistischen Komponente zu ergänzen.

Im Fall eines klassischen zweidimensionalen CA sind quadratische Zellen auf einem rechteckigen Gitter angeordnet. Es ist durchaus möglich, je nach Anwendungszweck auch andere geometrische Formen anzuwenden, die hexagonale Struktur wird z.B. für *Lattice Boltzmann Modelle* verwendet [52].

In der Vorstellung eines klassischen Automaten ist ein CA ein paralleles Ersetzungssystem, das auf einem ein, zwei oder dreidimensionalen Gitter arbeitet. Dabei wird der Zustand eines Gittereintrags einer Zelle eingelesen, in Abhängigkeit seines und der Zustände der benachbarten Zellen bearbeitet und schließlich die Zelle mit dem neuen Zustandseintrag belegt. [51]

Mathematisch betrachtet, stellt man sich die Zellen auf einem ganzzahligen Knoten eines Euklidischen Gitters $\mathcal{L} = \mathbf{Z}^D$ positioniert vor. Die Anzahl der möglichen Zustände, die eine Zelle einnehmen kann, wird mit Q bezeichnet. Der Zustand einer Zelle i zu einem neuen Zeitpunkt t hängt vom Zustand der Zelle i zum Zeitpunkt $t - 1$ und der Zellen j einer definierten Nachbarschaft $\mathbf{N} \subset \mathbf{Z}^D$ zum Zeitpunkt $t - 1$ ab, siehe Abbildung 11.3, wobei die Definition der Nachbarschaft im allgemeinen Zelle i inkludiert [52].

Da die Automatenregel auch von der Nachbarschaft abhängt, ist es zweckmäßig, sich über verschiedene Nachbarschaftskonfigurationen Gedanken zu machen.

Für einen eindimensionalen Automaten, der nur seine beiden nächsten Nachbarn¹⁰ in Betracht zieht, wie auch Abbildung 11.3 darstellt, gibt es n^3 Konfigurationen, wobei n die Anzahl

¹⁰Nachbarschaft 1. Ranges

11.4 Modellierungswerkzeug für die Migrationsgleichung

der Zustände ist, die der Automat einnehmen kann. Als Beispiel sei Conways *Game of Life* erwähnt, wo ein Automat nur 2 Zustände einnehmen kann: Leben oder Tod. Somit ergeben sich unter Berücksichtigung der Nachbarn $2^3 = 8$ Möglichkeiten der Nachbarschaftskonfiguration. Werden nun jeweils links und rechts der Zelle zwei Zellen mitberücksichtigt, so ergeben sich $2^5 = 32$ verschiedene Möglichkeiten. Abbildung 11.4 verdeutlicht diese beiden Fälle [54].

Für zweidimensionale Gitter werden häufig, wie Abbildung 11.5 für den Rang= 1 illustriert, *von-Neumann-* oder *Moore-*Nachbarschaften verwendet. Bei Ersterem werden als Nachbarn nur die direkt an der Zelle angrenzenden Zellen, bei zweiterem auch die Diagonalen berücksichtigt [51].

Für den eindimensionalen Fall wird nun auch die formale Definition für CA angeführt, die Definition für mehrdimensionale Automaten erfolgt analog [52].

Der Zustand einer Zelle i zu einem Zeitpunkt t wird mit $a_i^{(t)}$ bezeichnet. Es sei eine beschränkte Anzahl von möglichen Zuständen $k < \infty$ gegeben, die mit den natürlichen Zahlen von $0 \dots k$ bezeichnet werden, d.h., $a_i^{(t)} \in \mathbf{Z}_k$.

Der Zustand einer jeden Zelle entwickelt sich mit der Zeit und der Zustand einer Zelle ändert sich durch folgende Iteration.

$$a_i^{(t)} = F[a_{i-r}^{(t-1)}, a_{i-r+1}^{(t-1)}, \dots, a_i^{(t-1)}, \dots, a_{i+r}^{(t-1)}] \quad (11.2)$$

Der Zustand der i -ten Zelle zum neuen Zeitpunkt t hängt, wie vorher schon intuitiv erläutert, nur vom Zustand der i -ten Zelle und einer entsprechenden Anzahl an Nachbarn links und rechts der Zelle zum vorigen Zeitpunkt $t - 1$ ab. Die willkürliche Funktion F in Gleichung 11.2 ist dabei die Automatenregel. Gleichung 11.2 kann damit auch angeschrieben werden als

$$a_i^{(t)} = F\left[\sum_{j=-r}^r \alpha_j \cdot a_{i+j}^{(t-1)}\right] \quad (11.3)$$

wobei α_j einer ganzzahligen Konstanten entspricht [52].

11.4.2 CA als Approximation einer PDE

Nun stellt sich die Frage, ob ein CA als die *Diskretisierte* einer PDE interpretierbar ist. Dazu wird als Beispiel die eindimensionale Diffusionsgleichung, eine PDE 1. Ordnung in der Zeit, 2. Ordnung im Raum, betrachtet:

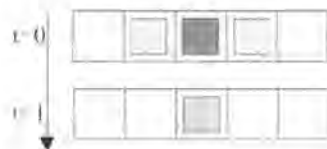


Abbildung 11.3: Transkription: Zustand der Zelle und der Nachbarschaft

11 Einführung in die Modellbildung

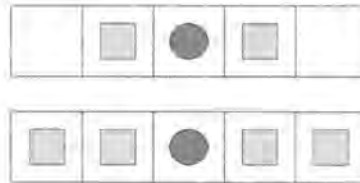


Abbildung 11.4: Nachbarschaft 1. Ranges (oben), Nachbarschaft 2. Ranges (unten)

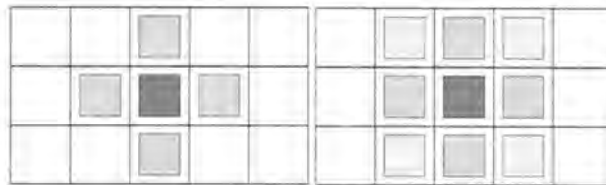


Abbildung 11.5: Nachbarschaften im Zweidimensionalen: links die von-Neumannnachbarschaft, rechts die Moore-Nachbarschaft

$$\frac{\partial c}{\partial d} = \kappa \frac{\partial^2 c}{\partial x^2}$$

Die Diskretisierung vorwärts in der Zeit und symmetrisch im Raum führt zu:

$$c_i^{(t)} = c_i^{(t-1)} + \frac{\Delta t \cdot \kappa}{\Delta x^2} \left[c_{i-1}^{(t-1)} - 2c_i^{(t-1)} + c_{i+1}^{(t-1)} \right] \quad (11.4)$$

$$= \sum_{j=-1}^{j=1} \alpha_j \cdot c_{i+j}^{(t-1)} \quad (11.5)$$

$$= f \left[\sum_{j=-1}^{j=1} \alpha_j \cdot c_{i+j}^{(t-1)} \right], \quad (11.6)$$

wobei f für die Identität steht. Gleichung 11.6 ist dabei zwar von derselben Gestalt wie Gleichung 11.3, die die Automatenregel definiert, dennoch gibt es fünf wesentliche Unterschiede [52]:

11.4 Modellierungswerkzeug für die Migrationsgleichung

1. Die Koeffizienten α_j in Gleichung 11.6 sind keine ganzzahligen, sondern im Allgemeinen reelle Koeffizienten
2. Die Anzahl der Zustände c_i ist nicht beschränkt
3. Generell ist c_i in Gleichung 11.6 nicht beschränkt, in Gleichung 11.3 hingegen ist $f()$ auf den Bereich 0 bis $k - 1$ beschränkt¹¹
4. Bei einer finiten Anzahl von Zuständen ist die Weiterentwicklung mit der Zeit immer stabil, Gleichung 11.6 kann hingegen zu numerischen Instabilitäten führen, d.h., der Wert für c_i kann gegen Unendlich streben (bei einer Iteration durch einen Zeitschritt nahe dem Stabilitätslimit)
5. Die Diffusionsgleichung und viele andere physikalische Gleichungen basieren auf physikalischen Erhaltungssätzen, für die meisten Automatenregeln hingegen sind keine Erhaltungssätze bekannt

Somit ist eindeutig ersichtlich, dass der Modellbildungsansatz mit zellulären Automaten ein eigenständiger Ansatz und daher unabhängig von der Diskretisierung einer Differentialgleichung für eine numerische Lösung ist [52].

¹¹*modulo constraint*

11 Einführung in die Modellbildung

12 Modellierung der Migrationsgleichung

Um generell Migrationspfade von Transuranen und deren Kontamination rechnerisch ermitteln zu können, wurde im dritten Teil dieser Arbeit ein Migrationsmodell für Transurane generiert. Anders als in den meisten Modellen, die in der Radioökologie Verwendung finden, wird hier statt des üblichen Ansatzes über *compartments* das Modell aufgrund CA angesetzt.

Compartment Modelle sind zwar leistungsfähig und vielseitig, sind aber *black boxes*, d.h., die Modellrechnungen beruhen auf Prozessen, die nicht bekannt oder noch nicht verstanden sind. Bei einem Modellansatz über zelluläre Automaten (CA) können die auf physikalischen Gesetzen beruhenden Migrationsmechanismen ins Modell implementiert werden. Im Gegensatz zu anderen leistungsfähigen Modellen haben CA einen für die Anwendung in der Radioökologie wesentlichen Vorteil: ein Pool von vorhandenen, ermittelten oder abgeschätzten (Mess-) Daten einer definierten Beprobungsstrategie kann direkt ins Modell übertragen und Ergebnisse auch wieder ausgelesen werden.

Für die Erstellung des CA-Migrationsmodells für Transuranelemente wurde, wie auch bei der systematischen Beprobung von Verdachtsfläche TOX, nach [21] und [30] eine computergenerierte Verdachtsfläche durch ein regelmäßiges Gitter unterteilt. Damit ist der systematische Beprobungsansatz von Verdachtsfläche TOX auch indirekt im Computermodell wiedergegeben.

Analog zur Beprobungsstrategie wird der Maßstab in diesem Modell zunächst in Metern gewählt, ist aber derart implementiert, dass dieser jederzeit einfach geändert werden kann. Die Festlegung des Maßstabs wird im Modell aber derart implementiert, dass dieser jederzeit im Modellcode geändert werden kann. Damit ist es möglich, je nach Problemstellung auch das Migrationsverhalten in einem kleineren bzw. größeren Umfeld, untersuchen zu können.

Durch eine Unterteilung der computergenerierten Verdachtsfläche analog zur systematischen Beprobung, besteht diese nun aus n aneinander geordneten Gitterzellen. Solch eine Bodenfläche eignet sich besonders, um in einer Computersprache als Matrix dargestellt zu werden. Ist die Verdachtsfläche überall gleichartig haben alle Zellen n der Matrix A , die diese Fläche repräsentieren, den gleichen Zelleintrag, z.B. $n = 1$.

$$\mathbf{Boden} = \begin{pmatrix} 1 & 1 & \dots \\ 1 & 1 & \dots \\ \vdots & \vdots & \ddots \end{pmatrix}$$

12 Modellierung der Migrationsgleichung

Diese Matrix kann auch zu einer Transmissivitätsmatrix erweitert werden. Eine Transmissivitätsmatrix ist ein gebräuchliches Werkzeug für die Modellierung von Grundwasserbewegungen und wird verwendet, um Durchlässigkeiten zwischen unterschiedlichen Medien beschreiben zu können, etwa zwischen Aquiferen und Aquitarden¹ [55].

Mit Hilfe der Transmissivitätsmatrix kann das Sorptionsverhalten von Transuranen an natürlichen oder künstlichen Barrieren im realen Gelände, auch im korrespondierenden Modell, leicht umgesetzt werden. Solche Barrieren stellen etwa kleine Gräben im Gelände, Straßengräben oder auch Sickerwasserschächte und Brunnen dar. Alle Barrieren haben gemeinsam, dass sie Schadstoffe zwar aufnehmen aber nicht wieder abgeben.

Hat nun eine Zelle n der Matrix *Boden* den Eintrag 1, unterliegt die Zelle gleichermaßen den beiden Prozessen Zuwachs und Abfluss von Schadstoffen der verallgemeinerten Transportgleichung. Hat Zelle n hingegen den Eintrag 0, bedeutet dies, dass der Abfluss der Zelle verhindert wird. Eine derart gestaltete Matrix wird Transmissivitätsmatrix genannt und repräsentiert alle möglichen Nachbarschaftszustände der Bodenfläche.

$$\mathbf{trans}_{\text{out}} = \begin{pmatrix} 1 & 1 & 1 & 1 & \dots \\ 1 & 1 & 1 & 1 & \dots \\ 1 & 0 & 0 & 1 & \dots \\ 1 & 0 & 0 & 1 & \dots \\ 1 & 1 & 1 & 1 & \dots \\ \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \ddots \end{pmatrix}$$

So kann auf das unterschiedliche Sorptionsverhalten im Gelände Rücksicht genommen werden, ohne auf Retardierungsfaktoren oder K_d -Konstanten zurückgreifen zu müssen. Diese sind meistens ausgesprochen schwierig bzw. aufwendig zu bestimmen und müssen für eine Modellrechnung für jedes Medium (Gras, Boden, Sand, etc.) für jedes Element bekannt sein [37].

Anschließend kann auf einer computergenerierten Bodenfläche, die durch die Transmissivitätsmatrix repräsentiert wird, ein Schadstoff freigesetzt werden, der sich mit der Zeit über die gerasterte Bodenfläche verbreitet. Die Migration dieses Schadstoffes erfolgt dabei nach den Gesetzmäßigkeiten der allgemeinen Transportgleichung, Gleichung 12.1. Auf den besonderen Fall eines radioaktiven Schadstoffes wird später eingegangen.

$$\frac{\partial c}{\partial t} = D \cdot \left(\frac{\partial^2 c}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 c}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 c}{\partial z^2} \right) - \bar{u} \nabla c(\vec{r}, t) = D \cdot \nabla^2 c - \bar{u} \nabla c(\vec{r}, t) \quad (12.1)$$

Da die allgemeine Transportgleichung analytisch nicht lösbar ist, wird deren Lösung mit Hilfe von CA angesetzt, die in Kapitel 11 bereits ausführlich beschrieben wurden. Dazu wird von

¹Aquifere sind Gesteine, die Wasser enthalten und dieses auch weiterleiten. Sie sind also Grundwasserleiter. Aquitarde hingegen sind Grundwasserhemmer.

Gleichung 12.1 eine Art Stammfunktion gebildet:

$$c(x_0, t = 1) = \int dt \left(D \cdot \nabla^2 N - \vec{u} \cdot \nabla N \right) \quad (12.2)$$

Durch anschließende formale Integration erhält Gleichung 12.1 eine diskrete Gestalt:

$$N(t) = N(t - 1) \cdot (1 - d - v) \quad (12.3)$$

Die Transportgleichung besteht aus einem diffusiven/dispersiven und einem advektionsbedingten Part. Da beide Teile in der Gleichung durch die Addition verknüpft sind, dürfen bei der Diskretisierung auch beide Teile getrennt behandelt und anschließend wiederzusammengefasst werden.

Für die Diskretisierung des Diffusions/Dispersionsterms wird für den CA-Ansatz die klassische von-Neumann-Nachbarschaft gewählt. Eine Zelle mit Position (x, y) halte die Aktivitätskonzentration c zu einem Zeitpunkt t . Im darauf folgendem Zeitschritt, $t + 1$, wird diese Konzentration zu vier benachbarten Zellen weiter ausgebreitet (Abbildung 12.1, links). Aufgrund der Diskretisierung wird nun anstatt der Diffusions / Dispersionskonstante D in der PDE ein diskretisierter Diffusionsparameter d eingeführt und aus Gleichung 12.1 wird für den diffusiven / dispersiven Anteil Gleichung 12.3:

$$\begin{aligned} N_{diff}(x, y, t + 1) &= N(x, y, t) - 4dN(x, y, t) + \\ &+ d \cdot [N(x - 1, y, t) + N(x + 1, y, t) + \\ &+ N(x, y - 1, t) + N(x, y + 1, t)] \end{aligned} \quad (12.4)$$

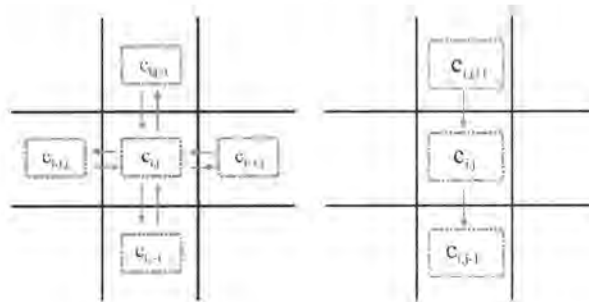


Abbildung 12.1: Diskretisierung von Diffusion und Konvektion

Für die Diskretisierung der Konvektion wird davon ausgegangen, dass der konvektive Fluss parallel zur y-Achse in Richtung eines Gefälles verläuft. Mit Sickerwassergeschwindigkeit \vec{u} in Gleichung 12.1, die nach der Diskretisierung durch v repräsentiert wird, kann eine etwaige Kontamination weitertransportiert (Abbildung 12.1, rechts) werden, was in dem konvektiven Anteil von Gleichung 12.1 resultiert:

12 Modellierung der Migrationsgleichung

$$N_{konv}(x, y, t + 1) = (1 - v) \cdot N(x, y, t) + N(x, y + 1, t)$$

Werden beide Transportanteile $N_{diff} + N_{konv}$ zusammengezählt und werden weiters die unterschiedlichen Bodenverhältnisse mittels der Transmissivitätsmatrix berücksichtigt, erhält man eine diskretisierte Form von der verallgemeinerten Transportgleichung mit besonderer Berücksichtigung des Sorptionsverhaltens.

Schließlich muss noch der Abbau des Schadstoffs, bei Radionukliden also der radioaktive Zerfall, mitberücksichtigt werden. Im Migrationsmodell wird das Migrationsverhalten für die vier Transuranelemente ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Pu und ^{241}Am berechnet. Halbwertszeiten, Zerfallsart und Tochternuklide sind in Kapitel 2 zusammengefasst.

Um die Migration von vier unterschiedlichen Radionukliden auf derselben Bodenfläche zu berechnen, wird für jedes Radionuklid eine Matrix derselben Dimension wie Bodenmatrix $trans_{out}$ gebildet. Für jedes Nuklid erfolgt die Migration unabhängig von den anderen innerhalb der jeweiligen Matrix, unter Berücksichtigung der Bodenmatrix für das Sorptionsverhalten. Möchte man die Gesamtaktivität des Systems erhalten, müssen die vier Nuklidmatrizen zusammenaddiert werden. Solange der radioaktive Zerfall nicht berücksichtigt wird, wird daher im Modell immer, je nach Sichtweise, die Stoffmenge, Gesamtkonzentration oder Teilchenzahl, erhalten bleiben.

Um nun im Modell neben Diffusion, Konvektion und Sorption auch den radioaktiver Zerfall zu berücksichtigen, wird für jede Nuklidmatrix für jeden Zeitschritt, für alle Zellen, ausgenommen den Randzellen, zuerst die Diffusion berechnet und in einem Zwischenspeicher gelagert. Anschließend wird der konvektive Anteil berechnet und zum diffusiven Anteil hinzuaddiert.

Nach erfolgter Migration, aber immer noch im selben Zeitschritt wird für jede Nuklidmatrix für jede Zelle der radioaktive Zerfall berücksichtigt, worauf sich die Migrationsgleichung wie folgt ergibt:

$$\frac{\partial c(\vec{r}, t)}{\partial t} = \left(D \cdot \nabla^2 c(\vec{r}, t) - \vec{u}(\vec{r}, t) \nabla c(\vec{r}, t) \right) \cdot e^{-\lambda t} \quad (12.5)$$

Jedes Radionuklid hat dabei seine eigene Zerfallskonstante λ . Daher muss die Migrationsgleichung für jedes Radionuklid, das in diesem Modell berücksichtigt werden soll, separat aufgestellt werden. Die Gesamtsumme aller im Modell vorhandenen radioaktiven Teilchen ist die Summe aller dieser Migrationsgleichungen.

$$\frac{\partial c}{\partial t} = \frac{\partial c_{241}\text{Pu}}{\partial t} + \frac{\partial c_{238}\text{Pu}}{\partial t} + \frac{\partial c_{241}\text{Am}}{\partial t} + \underbrace{\frac{\partial c_{240}\text{Pu}}{\partial t} + \frac{\partial c_{239}\text{Pu}}{\partial t}}_{\frac{\partial c_{239+240}\text{Pu}}{\partial t}} + \frac{\partial c_{241}\text{Am}}{\partial t} \quad (12.6)$$

Die beiden Nuklidmatrizen für die Radionuklide ^{239}Pu und ^{240}Pu werden zu einer gemeinsamen Nuklidmatrix $^{239+240}\text{Pu}$ zusammengefasst, da beide Nuklide auch mittels Alphaspektrometrie nicht zu trennen waren. Aufgrund der langen Halbwertszeiten dieser Pu-Isotope wurde auch deren radioaktiver Zerfall im Modell nicht berücksichtigt.

^{238}Pu emittiert ein α -Teilchen und wird zu ^{234}U . In der Matrix ^{238}Pu wird in einer jeden Zelle jene Teilchenzahl abgezogen, die während dieses Zeitschritts zu ^{234}U zerfallen ist. Dieser Teil wird in die korrespondierende Zelle der Matrix ^{234}U hinzugefügt, und die Summe aus bereits vorhandener und neu hinzugefügter Aktivität bildet die Ausgangsmatrix ^{234}U für den nächsten Zeitschritt. Dieser beginnt wieder mit Diffusion, anschließend Konvektion, etc.

Die Berücksichtigung des radioaktiven Zerfalls verläuft analog für die Matrix ^{241}Pu . Die zerfallenen Teilchen werden über einen Zwischenschritt, der Nuklidmatrix ^{241}Am zur Matrix ^{237}Np übertragen. Die Matrix ^{241}Am nimmt hier eine Art Doppelfunktion wahr, da sie einerseits Teilchen aus der Matrix ^{241}Pu aufnimmt, andererseits durch den radioaktiven Zerfall auch Teilchen wieder abgibt.

Ein wesentlicher Punkt des Modellkonzepts ist das Prinzip der Massenerhaltung. Dadurch, dass immer dieselbe Menge an Teilchen beobachtet und berechnet wird, konnte zu jedem Zeitpunkt während der Modellgenerierung mit- und nachbilanziert werden.

Abbildung 12.2 zeigt die Struktur des Migrationsmodells für Transurane. Nach erfolgter Deposition können Transuranelemente entweder langsam weiter diffundieren, bevorzugt in der Nähe des Einbringungsorts [56] oder durch Advektion mit dem Oberflächenwasser entlang eines Gefälles schneller transportiert werden. Da Transurane ein starkes Sorptionsverhalten aufweisen, sorbieren sie rasch im Gelände oder an natürlichen oder künstlichen Barrieren. Unter Umständen können sorbierte Transuranelemente wieder weiter migrieren, indem sie mit dem nächsten anfallenden Oberflächenwasser wieder aufgenommen und weitertransportiert werden [34]. Zudem ist nicht bekannt, ob bzw. wie der radioaktive Zerfall das Migrationsverhalten beeinflussen kann, ob etwa aufgrund von Rückstoßreaktionen ein Transuranelement sein stationäres Migrationsverhalten plötzlich ändern kann.²

Die Struktur des vorgestellten Migrationsmodells kann auch sehr einfach auf andere Radionuklide übertragen werden. Dazu müssen lediglich die Anzahl der Nuklidmatrizen angepasst und die korrespondierenden Halbwertszeiten übernommen werden. Es ist aber unbedingt darauf zu achten, dass die Halbwertszeiten und die Dauer der Migration immer im gleichen Maßstab erfolgen. Daher ist es zweckmäßig, sich beim Erstellen des Konzepts auf eine Zeitkonstante festzulegen und diese für das gesamte Modell durchzuziehen. Außerdem müssen auch die jeweiligen

²Ein Beispiel dafür wäre die Szillard-Chalmers Reaktion: ein thermisches Neutron wird von einem Atomkern aufgenommen, wodurch das neu gebildete Isotop hoch angeregt ist. Bei Rückkehr in den Grundzustand sendet es ein Gammaquant aus. Das Atom wird durch den damit verbundenen Rückstoß aus seiner bisherigen Bindung im ursprünglichen Molekül herausgerissen und geht in einem dafür geeigneten Medium eine neue, andere chemische Bindung ein.

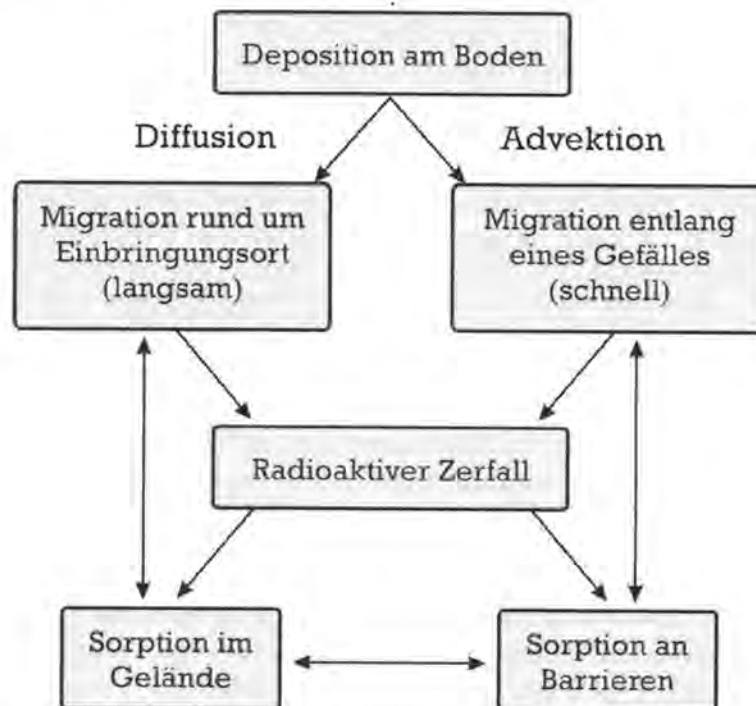


Abbildung 12.2: Schematischer Aufbau des Migrationsmodells

Migrationsparameter wie Diffusionskonstante, Sickerwassergeschwindigkeit, K_d -Faktor, etc. für jedes Element im jeweiligen Medium angepasst werden.

12.1 Implementierung in MATLAB

Ausgehend von den diskretisierten Migrationsgleichungen, die im letzten Abschnitt beschrieben sind, kann ein leistungsfähiges MATLAB-Programm, das das Migrationsverhalten von Transuranen über viele Jahre berechnen kann, modelliert werden. Das Migrationsmodell selbst ist in mehreren Etappen entwickelt worden.

Im ersten Schritt wird von einer ^{241}Am -Quelle ausgegangen, die in einer Zelle der Bodenmatrix ausgesetzt wird. Unter der Annahme, dass ^{241}Am eine gewisse Bereitwilligkeit zur Migration zeigt,³ wird ausgehend von dieser Zelle zunächst die Diffusion über mehrere Zeitschritte berechnet. Diese Affinität zur Migration wird dabei durch die willkürliche Wahl der Diffusionskonstante von 0,2 repräsentiert.

³Diese Annahme stimmt zwar nicht mit der Realität überein, war während der Modellentwicklung aber wichtig, um neu dazu programmierte Schritte evaluieren zu können.

12.1 Implementierung in MATLAB

Für das Modell selbst wird zunächst einmal die Größe Bodenfläche, auf der die Migration stattfinden soll durch eine zweidimensionale Matrix definiert. Anschließend wird für eine bestimmte Zelle eine bestimmte Aktivitätskonzentration definiert. Nach Festlegen der Zeit kann die Migration der ^{241}Am -Aktivität auf dem virtuellen Testfeld stattfinden.

Durch die Diffusion wird ein Konzentrationsausgleich eines Stoffes mit dem umgebenden Medium angestrebt, was in Abbildung 12.3 verdeutlicht wird. Diese Bilder sind bereits das Ergebnis der ersten Berechnungen durch das Migrationsmodell. Die Aktivität, die in einer Zelle freigesetzt wird, kontaminiert mit fortschreitender Zeit auch die umgebenden Zellen. Die Bilder in Abbildung 12.3 zeigen die Ausbreitungen zu den Zeitpunkten $t = 25$, $t = 50$ und $t = 75$.

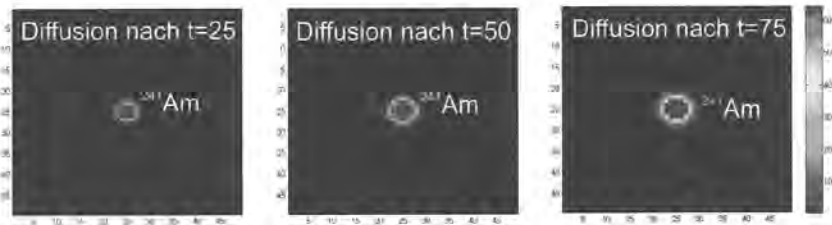


Abbildung 12.3: Ausbreitung einer Punktquelle durch Diffusion

Als erste Erweiterung dieses primitiven Migrationsmodells werden auf der Matrix, die die Verdachtsfläche repräsentieren, beliebig viele Quellen ausgesetzt. Dazu muss im Modell eine *for*-Schleife programmiert werden, die alle Zellen der Bodenmatrix abrastert und den diffusiven Ausgleich für alle Zellen berechnet. Eine Abfrage von jeder Zelle nach einer etwaigen Kontamination ist dazu nicht notwendig. So wird eine Schleife über alle Zeitschritte, über x-Koordinaten und y-Koordinaten programmiert, wobei die Randzellen in der Berechnung ausgelassen werden. Für den Fall einer 50×50 Matrix und einer Rechendauer von 100 Zeitschritten (*counter*) sieht die Schleife folgendermaßen aus:

```
for counter=2:100
    for x=2:49
        for y=2:49
            Boden(x,y,counter)=(1-4*\delta)*Boden(x,y,counter-1))+
                \delta*(Boden(x-1,y,counter-1)+Boden(x+1,y,counter-1)+
                    Boden(x,y-1,counter-1)+Boden(x,y+1,counter-1));
        end
    end
end
```

12 Modellierung der Migrationsgleichung

Mit Hilfe dieser Schleife kann die Ausbreitung von mehreren Quellen desselben Nuklids auf der Modellfläche ermittelt werden. (Abbildung 12.4).

Als nächste Erweiterung wird die diffusive Ausbreitung von unterschiedlichen Nukliden im Modell berücksichtigt. Um diese aber auch mit dem Modell darstellen zu können, reicht die Matrix *Boden* nicht aus. Daher wird die Matrix *Boden* in Matrix *am241* umbenannt, auf der fortan die Migration von ^{241}Am ermittelt wird. Für die drei anderen Radionuklide, die in diesem Modell berücksichtigt werden sollten, werden analog eigene Matrizen: *pu238*, *pu3940* und *pu241*. Analog zur Matrix *Boden* werden folgend alle vier Nuklidmatrizen in der Schleife abgearbeitet:

						^{241}Am 80 Bq			
			^{241}Am 120 Bq					^{241}Am 200 Bq	
	^{241}Am 500 Bq								
						^{241}Am 80 Bq			

Abbildung 12.4: Die Ausbreitung von ^{241}A auf Matrix *Boden*

```

for counter=2:100
  for x=2:49
    for y=2:49
am241(x,y,counter)=(1-4*\delta)*am241(x,y,counter-1))+
  \delta*(am241(x-1,y,counter-1)+am241(x+1,y,counter-1)+
  am241(x,y-1,counter-1)+am241(x,y+1,counter-1));

pu241(x,y,counter)=(1-4*\delta)*pu241(x,y,counter-1))+
  \delta*(pu241(x-1,y,counter-1)+pu241(x+1,y,counter-1)+
  pu241(x,y-1,counter-1)+pu241(x,y+1,counter-1));
      ...
    end
  end
end
end

```

So kann, analog zum Primitivmodell, die diffusive Ausbreitung mehrere Transuranelemente berechnet werden. Durch Wahl dieses Ansatzes kann auch die Massenerhaltung immer gewährleistet werden. Summiert man alle Matrizen in einem jeden Zeitschritt zusammen, so ist die Summe aller eingesetzten Teilchen immer konstant.

Als dritte Erweiterung sollte der radioaktive Zerfall der Transuranelemente ^{241}Pu , ^{238}Pu und ^{241}Am mitberücksichtigt werden. Wegen der langen Halbwertszeiten von ^{239}Pu und ^{240}Pu wird

der radioaktive Zerfall dieser beiden Nuklide nicht mitberücksichtigt. Für die anderen Radionuklide werden die Zerfallskonstanten berechnet und als ein weiterer Block nach Berechnung der Ausbreitung, in die *for*-Schleife eingefügt. Dieser Block stellt nichts anderes als das radioaktive Zerfallsgesetz dar, das am Beispiel ^{238}Pu gezeigt wird:

```
new_pu238(x,y,counter)=pu238(x,y,counter-1)*exp(-lambda_pu238*time)
```

Dabei ist allerdings zu beachten, dass der radioaktive Zerfall von ^{238}Pu zu ^{234}U erfolgt. Da die Massenerhaltung auch künftig Zentralbestandteil des Modells bleiben sollte, muss, analog zu den Transuranmatrizen auch eine Matrix für ^{234}U , bzw. für ^{237}Np eingeführt werden. Jener Anteil von ^{238}Pu , der innerhalb eines Zeitschritts zu ^{234}U zerfiel, muss ab dem nachfolgenden Zeitschritt Matrix ^{234}U zugeordnet werden.

```
new_pu238(:, :, counter)=pu238(:, :, counter)*exp(-lambda_pu238*counter*time)
u234(:, :, counter)=u234(:, :, counter-1)+
pu238(:, :, counter)-new_pu238(:, :, counter)
pu238(:, :, counter)=new_pu238(:, :, counter)
```

Weiters ist der Zerfall von ^{241}Am zu ^{241}Np zu berücksichtigen. Allerdings war dabei zu beachten, dass ^{241}Am bereits das Tochternuklid von ^{241}Am ist. ^{241}Am ist aber bereits Tochter von ^{241}Pu , entsprechend müssen Nuklide, die nach dem Zerfallsgesetz umgewandelt werden, ab dem nachfolgenden Zeitschritt der Matrix ihrer neuen Gestalt zugeordnet werden. Mit der Definition von sechs Nuklidmatrizen blieb die Massenerhaltung gewährleistet.

```
new_pu241(x,y,counter)=pu241(x,y,counter)*exp(-lambda_pu241*time);
add_am241(x,y,counter)=pu241(x,y,counter)-new_pu241(x,y,counter);
pu241(x,y,counter)=new_pu241(x,y,counter);
```

```
new_am241(x,y,counter)=am241(x,y,counter)*exp(-lambda_am241*time);
np237(x,y,counter)=np237(x,y,counter-1)+am241(x,y,counter)-
new_am241(x,y,counter);
am241(x,y,counter)=new_am241(x,y,counter)+add_am241(x,y,counter);
```

Anschließend wird das Modell um den Sorptionsanteil erweitert, wodurch die Transmissivitätsmatrix ins Modell miteingebaut wird, die, streng genommen, die eingangs definierte Matrix *Boden* ersetzt. Durch die Transmissivitätsmatrix kann der Retardierungsfaktor der verallgemeinerten Diffusionsgleichung indirekt ins Modell übernommen werden. Alle natürlichen oder baulichen Begebenheiten, die eine Senke darstellen, werden durch den Eintrag 0 in der Transmissivitätsmatrix repräsentiert. Indem die Nachbarschaftszellen der betroffenen Zelle nicht nur mit dem Diffusionsparameter, sondern auch mit dem Zelleintrag der Transmissivitätsmatrix (*trans.out*) multipliziert werden, wird je nach Senke oder Boden der Zu- oder Abfluss geregelt:

12 Modellierung der Migrationsgleichung

```
pu238(x,y,t)=pu238(x,y,t-1)*(1-4*trans_out(x,y)*diff)+  
diff*(pu238(x-1,y,t-1)*trans_out(x-1,y)+  
pu238(x+1,y,t-1)*trans_out(x+1,y)+  
pu238(x,y-1,t-1)*trans_out(x,y-1)+  
pu238(x,y+1,t-1)*trans_out(x,y+1));
```

Als nächster Erweiterungsschritt des Migrationsmodells wird die Konvektion mitberücksichtigt. Da die Differentialgleichung, die die Migration beschreibt additiv verknüpft ist, ist diese Erweiterung vergleichsweise einfach umzusetzen. Diffusion und Konvektion geschehen direkt aufeinander folgend, wodurch einfach eine zusätzliche Variable, als Zwischenspeicher definiert werden muss. Nach erfolgter Ausbreitung durch Diffusion wird das Ergebnis in eine weitere Matrix, die als besagter Zwischenspeicher fungiert, gespeichert. In einer zweiten Schleife kann anschließend die Konvektion in y-Richtung berechnet werden.

```
store_pu238(x,y)=pu238(x,y,t-1)*(1-4*trans_out(x,y)*diff)+  
diff*(pu238(x-1,y,t-1)*trans_out(x-1,y)+  
pu238(x+1,y,t-1)*trans_out(x+1,y)+  
pu238(x,y-1,t-1)*trans_out(x,y-1)+  
pu238(x,y+1,t-1)*trans_out(x,y+1));
```

```
pu238(x,y,t)=(1-u*trans_out(x,y))*store_pu238(x,y)  
+u*trans_out(x,y+1)*store_pu238(x,y+1);
```

Abbildung 12.5 zeigt die Ausbreitung einer Punktquelle durch Diffusion und Konvektion. Man beachte, wie in späteren Zeitschritten der konvektive Term des Transports überwiegt und die Ausbreitung immer mehr die Form eines Tropfens annimmt.



Abbildung 12.5: Ausbreitung durch Konvektion

Um als Ausgangvariable eine Dispersion von Transuranen zu erhalten, die sich auch mit der Realität vergleichen lässt, müssten nun im Modell die entsprechenden retardierten Diffusionskonstanten und Sickerwassergeschwindigkeiten eingesetzt werden. Oftmals sind die Diffusionskonstanten für selten vorkommende Nuklide wie Transurane noch nicht bekannt oder zu aufwendig, um bestimmt zu werden. Die Sickerwassergeschwindigkeit ließe sich hingegen aus den Lysimeterversuchen, die lange Zeit am Standort durchgeführt wurden, entnehmen [57].

12.1 Implementierung in MATLAB

In diesem Fall konnte sich mit einem anderen Parameter, dem so genannten Migrationsparameter beholfen werden [56], der auf einer Versuchsfläche, die über 30 Jahre lang ungestört geblieben war, für Am und Pu bestimmt wurde. Laut [58] beträgt die Migrationsrate für diese beiden Transurane in Erdböden im süddeutschen Raum für Am $0,3 - 0,4$ cm/a und für Pu $0,4 - 0,5$ cm/a. Für das Modell wurde eine durchschnittliche Migrationsrate von $0,4$ cm/a für beide Radionuklide angenommen. In Ermangelung eines eigenen Migrationsparameters für Neptunium und Uran wurde dieser Parameter, aufgrund ihres chemisch ähnlichen Verhaltens, ebenfalls übernommen. Es wäre natürlich möglich gewesen, mittels einer Abfrage für jedes Element den jeweils genaueren Parameter zu bekommen. Allerdings ist hier stark zu bezweifeln, ob aufgrund der numerischen Drift des Systems ein etwas genauerer Parameter auch genauere Ergebnisse liefern könnte. Man beachte, die Migrationsparameter sind in cm/a angegeben, die Migration wird aber in Jahresschritten berechnet. Für das Modell wurde die Annahme getroffen, dass 90% der Ausbreitung über Konvektion erfolgt und die verbleibenden 10% über Diffusion.

Die Detailbeprobung der Verdachtsfläche TOX erfolgt im Metermaß. Um im folgenden die Migration auf der Verdachtsfläche TOX mitberücksichtigen zu können, wird auch im Modell die Abmessungen der einzelnen Zelle zu jeweils 1 m^2 festgesetzt, lässt sich aber jederzeit im Code ändern.

Im letzten Schritt wird das Modell noch um eine dritte Raumkoordinate erweitert, um die Migration auch in die Tiefe mitberücksichtigen zu können. Da die Migration, wie auch in der Literatur beschrieben, kaum stattfindet, sondern nach Deposition an der Bodenoberfläche auch an dieser bleibt [37], wurde aber das Hauptaugenmerk auf die Ausbreitung im zweidimensionalen gelegt. Auch der im Anhang dargestellte Code ließe sich einfach für den dreidimensionalen Fall erweitern, indem die Ausbreitung nicht nur für x und y , sondern auch für die z -Komponente durchpermutiert wird.

Für Bodenflächen, die auch einer gewissen landwirtschaftlichen Nutzung unterlegen sind, lässt sich auch der Pflügings- und Ernteprozess im Modell darstellen. Dazu muss das Modell um die Raumkoordinate erweitert werden, die, im Gegensatz zu den Flächenkoordinaten aber nur einige cm tief ist. Somit liegen mehrere Zellen übereinander vor, mehrere dieser gestapelten Zellen aneinander gereiht ergeben eine dreidimensionale Verdachtsfläche.

Eine Kontamination wird auf der Oberfläche der Verdachtsfläche ausgesetzt, wo sie entsprechend ihren Parametern weiter verbreitet wird. Immer, wenn ein landwirtschaftlicher Arbeitsschritt im Modell mitberücksichtigt werden soll, werden die Zellstapel nach Zufallsprinzip durchpermutiert. Mit der Zeit entsteht dabei eine größere Durchmischung der Aktivitätskonzentration in den oberflächennahen Schichten.

12.2 Erstellen eines User Interfaces

Für Migrationsmodell für Transurane wird in MATLAB auch eine graphische Benutzeroberfläche implementiert. Dazu wird mittels eines *m-files* eine Funktion generiert, die für jedes Radionuklid die Ausbreitung zu jedem beliebigen Zeitpunkt berechnet. Diese Funktion hängt von vier Variablen ab, die vom Anwender über das GUI eingegeben werden können. Diese Variablen sind:

1. Die Größe der modellierten Fläche in Metern. Dazu müssen Länge und Breite angegeben werden.
2. Die Zeitdauer, in Jahren, über die die Ausbreitung berechnet werden soll.
3. Es können bis zu drei Senkterme angegeben werden. Zwei Senkterme sind punktförmig anzugeben, jeweils mit (x, y) -Koordinate, der dritte Senkterm lässt sich mit einem Anfangs- und einem Endpunkt als rechteckige Fläche aufspannen.
4. Es können bis zu drei Emissionsquellen angegeben werden. Für jede Quelle ist die Position mit der (x, y) -Koordinate, die Aktivitätskonzentration und um welches Radionuklid, ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Pu oder ^{241}Am , es sich handelt, anzugeben.

Die Modellfunktion f berechnet ausgehend von den Eingangsdaten als Ausgangsparameter die Ausbreitung der Radionuklide ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Pu , ^{241}Am , ^{234}U oder ^{237}Np und kann, je nach Wahl des Anwenders, die Ausbreitung eines Nuklids auch graphisch darstellen. Zur besseren Übersicht werden auch allfällig mitdefinierte Senken in der Grafik ausgegeben. Abbildung 12.6 zeigt das in MATLAB generierte GUI. Mit diesem GUI können die unterschiedlichen Zu- und Abwächse der einzelnen Radionuklidkonzentrationen auf der simulierten Bodenfläche veranschaulicht werden. Sollten mehrere Emissionsquellen, Senken, etc. auf dieser Modellfläche definiert werden, so können diese Initialparameter direkt im *m-file* eingegeben werden. In Anhang C ist der source code für das Migrationsmodell zu finden.

Anhand dieses Migrationsmodells konnten nun sämtliche Ausgangsszenarien für eine Kontamination einer Bodenfläche am Computer durchgespielt werden. Es lassen sich beliebig viele Quellen und Senken durch die Transmissivitätsmatrix mitberücksichtigen.

12.2 Erstellen eines User Interfaces

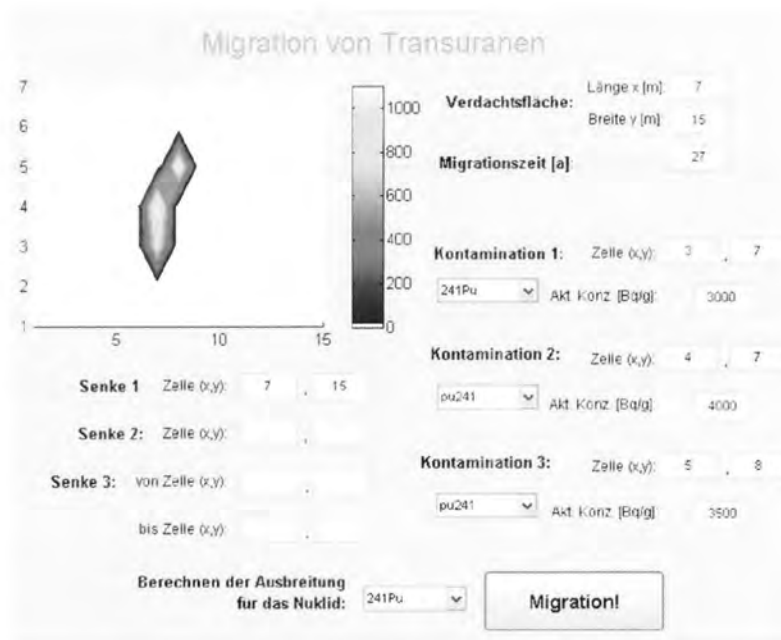


Abbildung 12.6: Das GUI für das Migrationsmodell

12 Modellierung der Migrationsgleichung

13 Vergleich des Migrationsmodells mit Verdachtsfläche TOX

Anhand des Migrationsmodells lassen sich nun generell Migrationsszenarien für Transurane am Computer veranschaulichen. Im speziellen kann dieses Programm die Kontamination auf den beiden Verdachtsflächen TOX und ZS der *Nuclear Engineering Seibersdorf*, die in den Kapiteln 3-8 eingehend radiochemisch analysiert wurden, qualitativ simuliert werden.

Um die ^{241}Am -Messwerte der Verdachtsfläche TOX in das Modell implementieren zu können, werden diese in einer geeigneten 320×4 Matrix als csv-file in MATLAB eingelesen. Dazu wurden die Koordinaten eines jeden Datenpunkts in einer Zeile folgend dargestellt: Zeile, Spalte, Aktivitätskonzentration und Nuklid. Im Folgenden wird ein Auszug dieser Matrix wiedergegeben. Die erste Spalte gibt die Zeile der Matrix an, die zweite Spalte die Spalte der Matrix, die dritte Spalte die Aktivitätskonzentration und die vierte Zeile repräsentiert die Art des Nuklids:

```
22 3 39 5
22 4 19 5
23 1 12 5
23 2 7 5
23 3 10 5
23 4 0 5
24 1 15 5
```

Mit diesen Ausgangszuständen kann zunächst die künftige Verteilung der ^{241}Am -Aktivitätskonzentration auf Verdachtsfläche TOX und deren Ausbreitung über Raum und Zeit am Computer graphisch veranschaulicht werden. Anschließend kann mit verschiedenen Szenarien am Modell experimentiert werden.

Von großem Interesse ist aber auch die historische Kontaminationsverteilung auf den Verdachtsflächen TOX und ZS. Dazu werden Anfangskonstellationen gesucht, die rechnerisch mittels des CA-Migrationsmodells zum heutigen Zustand führen. Unklare Quellen berichten über eine Kontamination der Verdachtsfläche TOX mittels eines Isotopengemisches, gegen das Jahr 1975. Laut dem in Kapitel 9 erstellten Nuklidvektor scheint dieses Isotopengemisch in einem Brennelement eines Leichtwasserreaktors aufgebracht worden zu sein, das anschließend etwa 40 Jahre lang gelagert wurde.

Seitdem konnte aus dem aufbereiteten ^{241}Pu langsam ^{241}Am nachwachsen. Trägt man die Mutter-Tochterbeziehungen von ^{241}Pu und ^{241}Am in einem Diagramm auf (Abbildung 13.1),

13 Vergleich des Migrationsmodells mit Verdachtsfläche TOX

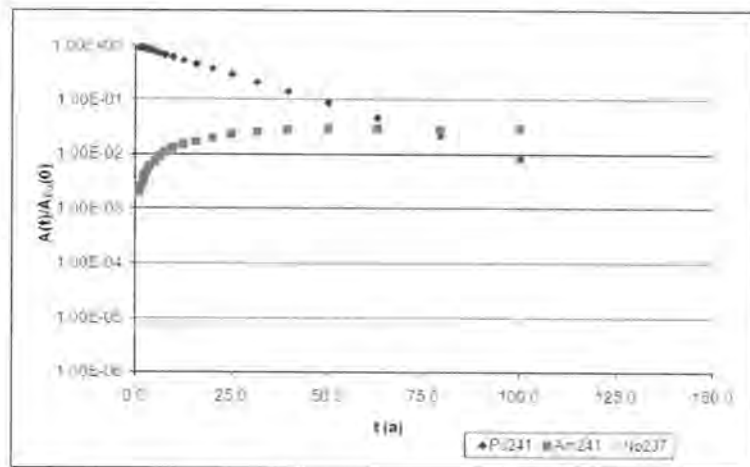


Abbildung 13.1: Die ^{241}Am -Konzentration erreicht nach etwa 80 Jahren ihr Maximum

lässt sich erkennen, dass die ^{241}Am -Aktivitätskonzentration ihr Maximum etwa 80 Jahre nach Entfernung aus dem Kern, erreicht. Somit würde die ^{241}Am -Aktivitätskonzentration gegen das Jahr 2040 ihr Maximum erreichen, wie eine Modellrechnung mit Transuran-CA zeigte.

Unter Verwendung des CA-Transuranmodells und klassischer Zerfallsketten lassen sich drei mögliche Anfangskonstellationen für die Kontamination der Verdachtsflächen TOX und ZS annehmen, die zu jenen ^{241}Am -Kontaminationen führen, die 2007 gemessenen worden waren.

1. **Szenario 1:** Gegen 1975, nach Sanierung des Geländes Toxikologie, wurde eine reine ^{241}Am Kontamination auf der Verdachtsfläche TOX freigesetzt.
2. **Szenario 2:** Gegen 1975 wurde eine reine Pu-Kontamination auf der Verdachtsfläche TOX freigesetzt. Das aus dem Isotop ^{241}Pu langsam nachwachsende ^{241}Am wird seitdem langsam aufgebaut und würde gegen 2040 sein Maximum erreichen.
3. **Szenario 3:** 1975 wurde ein Isotopengemisch aus mindestens viererlei Plutoniumisotopen und dem Radionuklid ^{241}Am auf der Verdachtsfläche TOX freigesetzt.

Durch die verschiedenen Halbwertszeiten der einzelnen Nuklide hat sich der Nuklidvektor seit der Freisetzung, genauer gesagt, seit Erzeugung des Isotopengemisches, verändert. Mit Hilfe des errechneten Nuklidvektors wurde nun versucht, von der heute vorliegenden Konfiguration der Americiumverteilung auf Verdachtsfläche TOX auf jene der Freisetzung zurückgerechnet zu werden.

Szenario 1: Im ersten Fall wurde angenommen, dass alles Americium, das auf Verdachtsfläche TOX im Jahr 2007 gefunden wurde, 1975 bereits in der Form als ^{241}Am auf dieser Fläche deponiert worden ist. Nimmt man z.B. die heutige ^{241}Am -Aktivität der Probe RAD1, 66,6

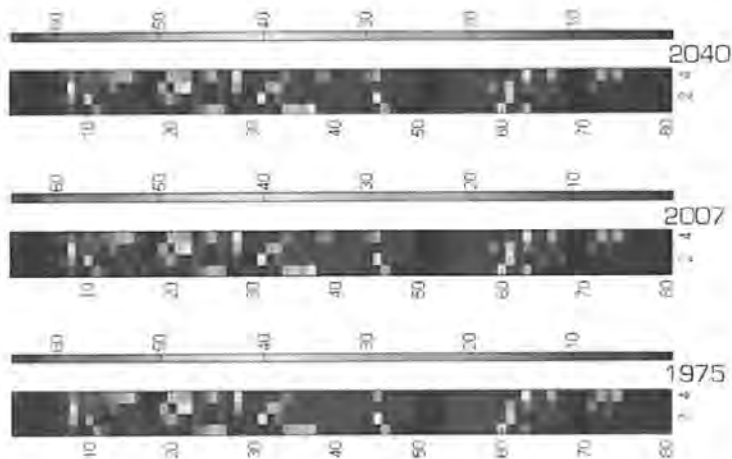


Abbildung 13.2: Die Ausbreitung von ^{241}Am von 1975-2040, Szenario 1

Bq/g so lässt sich nach dem Zerfallsgesetz die ^{241}Am -Ausgangsaktivität für 1975 berechnen. Mit der Zerfallskonstante für ^{241}Am mit $\lambda = \frac{\ln 2}{t_{1/2}} = \frac{\ln 2}{432,2}$ ergibt sich:

$$A_0 = A(t) \cdot e^{\lambda \cdot t} \quad (13.1)$$

$$A_0 = 70 \text{ Bq/g}$$

Die heute vorliegende Aktivitätskonzentration wurde bereits in Kapitel 4 graphisch dargestellt, wird aber auch in Abbildung 13.2, in der Mitte, noch einmal veranschaulicht. Ausgehend von diesem Datensatz aus dem Jahr 2007 wird über das Migrationsmodell die Aktivitätskonzentration und die Ausbreitung von ^{241}Am für das Jahr 1975 berechnet (Abbildung 13.2, unten). Anschließend wird mit dem Migrationsmodell 32 Jahre, zum Jahr 2040, in die Zukunft gerechnet (Abbildung 13.2, oben). Die Aktivitätskonzentration von Probe RAD1 würde im Jahr 2040 63 Bq/a betragen.

Da das Migrationsverhalten für Transuranelemente nur ausgesprochen schwach ausgeprägt ist, sehen die Bilder der Verteilung von 1975 bis 2040 praktisch ident aus.

Obwohl in den vergangenen 32 Jahren praktisch keine Migration stattgefunden hat (Abbildung 13.2), hat aber die Aktivitätskonzentration seit dem Zeitpunkt der Deposition ein wenig abgenommen. Auch die aus ^{241}Am nachwachsende Aktivitätskonzentration von ^{237}Np wurde für mehrere Jahrzehnte zu der entsprechenden ^{241}Am -Verteilung auf Verdachtsfläche TOX mitberechnet (Abbildung 13.3).

Der Vollständigkeit halber sei an dieser Stelle noch einmal erwähnt, dass die Ausbreitung des Radionuklids ^{237}Np in diesem Migrationsmodell nicht mitberechnet wurde. Da aber auch Neptunium kein starkes Migrationsverhalten aufweist [16], liegt die Vermutung nahe, dass Abbildung 13.3 zumindest eine recht gute Näherung einer etwaigen Np-Migration darstellt.

13 Vergleich des Migrationsmodells mit Verdachtsfläche TOX

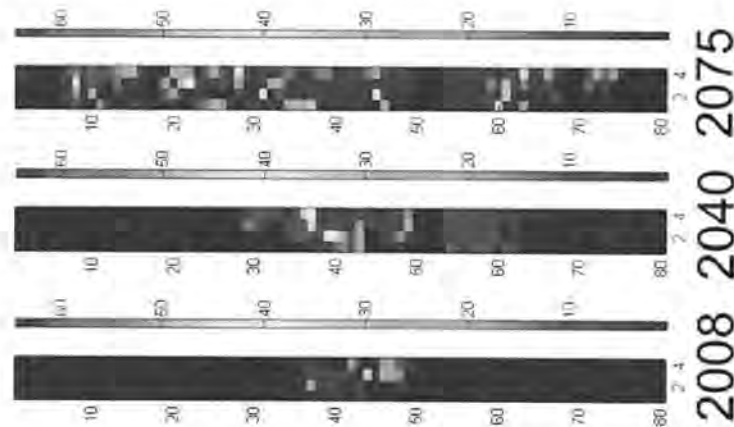


Abbildung 13.3: Die Ausbreitung von ^{237}Np von 1975-2040

Allerdings ist die Wahrscheinlichkeit einer reinen ^{241}Am Freisetzung vor etwa 32 Jahren sehr unwahrscheinlich, da sich dadurch das Vorhandensein der Pu-Isotope nicht erklären lässt.

Szenario 2: Dieses Szenario geht davon aus, dass alles, auf der Verdachtsfläche vorhandene ^{241}Am aus einer ^{241}Pu - Kontamination nachgewachsen ist. Somit wird die Anfangsaktivität von ^{241}Pu auf Verdachtsfläche TOX benötigt. Da das Alter des Isotopengemisches bereits bekannt ist, kann aufgrund der Aktivitätskonzentration von ^{241}Am im Jahr 2007 auf die ^{241}Pu -Aktivitätskonzentration im Jahr 1975 zurückgerechnet werden, wie am Beispiel der Probe RAD1 vorgeführt wird. Danach ließ sich mit dem Migrationsmodell wieder die Ausbreitung in die Vergangenheit, 1975, und in die Zukunft, 2040 berechnen.

Sei $N_2(t)$ die Anzahl der Tochternuklide ^{241}Am zum Zeitpunkt t , $N_1(t)$ die Anzahl der Mutternuklide ^{241}Pu zum Zeitpunkt t , bzw. N_1^0 und N_2^0 die jeweiligen Nuklide zum Zeitpunkt $t = 0$. Weiters stellt λ_1 die Zerfallskonstante für das Mutternuklid ^{241}Pu und λ_2 die Zerfallskonstante für das Tochternuklid ^{241}Am dar und t die bereits verstrichene Zeit:

$$N_2(t) = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} \cdot N_1(t_0) \left(e^{-\lambda_1 \cdot t} - e^{-\lambda_2 \cdot t} \right) \quad (13.2)$$

$$N_1(t_0) = \frac{N_2(t) \cdot (\lambda_2 - \lambda_1)}{\lambda_1 \cdot (e^{-\lambda_1 \cdot t} - e^{-\lambda_2 \cdot t})} \quad (13.3)$$

$$N_1(t_0) = 1760 \text{Bq/g} \quad (13.4)$$

Abbildung 13.4 verdeutlicht die Auswirkungen, wenn 1975 Verdachtsfläche TOX mit ^{241}Pu kontaminiert wurde. Die Abbildungen ganz links zeigen die ^{241}Pu Verteilung zuerst 1975, dann 2007 und schließlich für 2040. Auch anhand Abbildung 13.4 ist gut erkennbar, dass Pu kaum migriert.

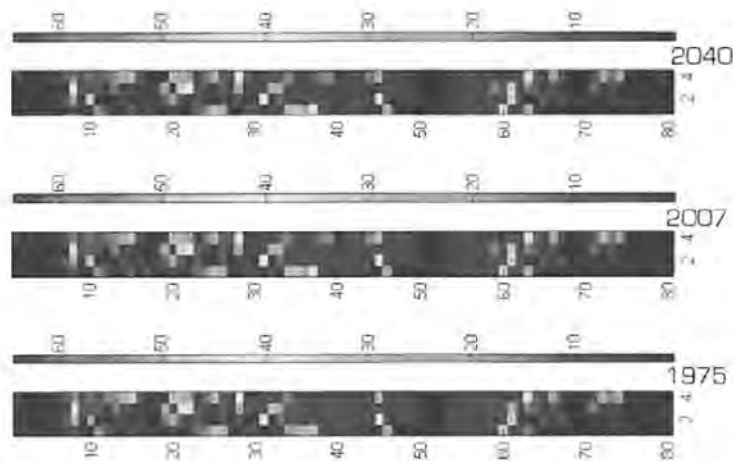


Abbildung 13.4: Die Ausbreitung von ^{241}Pu von 1975-2040, Szenario 2

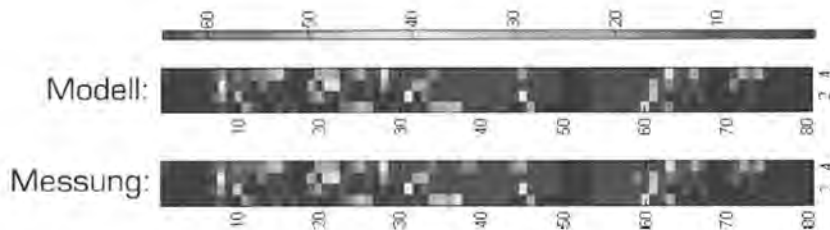


Abbildung 13.5: Modellrechnung und Messdaten: ^{241}Am , 2007

Diese Vermutung kann sogar mittels Messdaten überprüft werden. Dazu wird aufgrund der ^{241}Pu Kontamination von 1975 mittels Mutter-Tochter-System auf die Ausbreitung von ^{241}Am 2007 gerechnet. Das dadurch ermittelte Ergebnis lässt sich sogar mit den ermittelten Messdaten von Verdachtsfläche TOX vergleichen. Auch hier sind die beiden Bilder, die errechnete ^{241}Am -Verbreitung von 2007 (Abbildung 13.5, oben) und die durch Messdaten ermittelte ^{241}Am -Verbreitung von 2007 (Abbildung 13.5, unten), praktisch ident.

Szenario 3: Für dieses Szenario der Freisetzung eines Isotopengemischs aus den Pu-Isotopen ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Pu , und ^{241}Am fehlen zunächst wichtige Parameter für die Anfangsaktivität von ^{241}Am zum Zeitpunkt $t = 0$. Allerdings ist eine qualitative Schätzung möglich, wie auch im Folgenden diskutiert wird.

Bei der Erstellung des Nuklidvektors für die ausgewählten Bodenproben zeigte sich, dass das vorliegende Nuklidgemisch vermutlich durch Erbrüten in einem Brennelement, das in einem Leichtwasserreaktor eingesetzt war, entstanden sein kann.

13 Vergleich des Migrationsmodells mit Verdachtsfläche TOX

Da während des Erbrütens von ^{241}Pu bereits ein Teil zu ^{241}Am zerfiel, ist die ^{241}Am -Aktivitätskonzentration im Jahr 1966, der errechneten Entstehung des Isotopengemisches, ungleich Null gewesen. Der genaue Anteil an ^{241}Am bei Entfernung der Brennelemente aus dem Reaktorkern ließe sich aber bei Kenntnis des Neutronenflusses ϕ , Einfangswirkungsquerschnitts σ und der Bestrahlungsdauer t_{irr} über die Aktivierungsgleichung berechnen:

$$N_1 = \frac{\sigma \cdot \phi \cdot N_1^0}{\lambda_1} (1 - e^{-\lambda_1 t_{irr}}) \quad (13.5)$$

$$N_2 = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_0 (e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}) + N_2^0 e^{-\lambda_2 t} \quad (13.6)$$

$$N_2^0 = N_2 e^{\lambda_2 \cdot t} - \frac{N_1 \lambda_1^2}{\sigma \phi (\lambda_2 - \lambda_1) (1 - e^{-\lambda_1 t_{irr}})} (e^{(\lambda_2 - \lambda_1)t} - 1) \quad (13.7)$$

Dabei sei $N_2(t)$ wieder die Anzahl der Tochternuklide ^{241}Am zum Zeitpunkt t , $N_1(t)$ die Anzahl der Mutternuklide ^{241}Pu zum Zeitpunkt t , bzw. N_1^0 und N_2^0 die jeweiligen Nuklide zum Zeitpunkt $t = 0$. Weiters stellt λ_1 die Zerfallskonstante für das Mutternuklid ^{241}Pu und λ_2 die Zerfallskonstante für das Tochternuklid ^{241}Am dar und t die bereits verstrichene Zeit.

Mit der Differentialgleichung, die Mutter-Tochtersysteme beschreibt, konnte für N_1^0 eingesetzt werden und anschließend die Aktivitätskonzentration von ^{241}Am zum Zeitpunkt $t = 0$ errechnet werden. In Ermangelung des Neutronenflusses und der Bestrahlungsdauer ist dies aber leider nicht möglich.

Bei Kenntnis dieser Parameter wäre es nicht nur möglich, die Aktivitätskonzentration von ^{241}Am zum Zeitpunkt $t = 0$ zu errechnen, man könnte sogar auch die Zeitdauer t berechnen. Dies würde auf eine transzendente Gleichung mit fünf Konstanten führen, die allerdings numerisch oder graphisch gelöst werden müsste.

Aus den eben erläuterten Gründen ist die Durchführung dieses Szenarios in einer quantitativen Modellrechnung nicht möglich. Definiert man aber bestimmte hypothetische Verteilungen einer ^{241}Am -Aktivitätskonzentration als Anfangskonstellation, so kann für dieses Szenario in diesem Modell eine Ausbreitung der Aktivitätskonzentration für das Jahr 2007 errechnet werden. Diese Rechenergebnisse stimmen in qualitativer Form gut mit den ermittelten Messdaten überein.

Generell zeigen Modellrechnungen mittels des CA-Modells für Transuranelemente, dass sich zwar deren Aktivitätskonzentrationen zeitlich ändern, eine örtliche Änderung der Kontaminationskonzentration aber nicht erfolgt. Dies lässt auf eine starke Dominanz der Sorption schließen, die im Modell durch die Transmissivitätsmatrix vorgegeben wird.

Abbildung 13.6 zeigt deutlich, wie sich eine durch ^{241}Am verursachte Kontamination unter realen Bedingungen über 25 Jahre ausbreitet. Durch den Vergleich der Distribution von ^{241}Am zum Zeitpunkt $t = 0$ (links) und der Verteilung von ^{241}Am zum Zeitpunkt $t = 25$ (rechts) ist gut ersichtlich, dass ^{241}Am praktisch immobil ist.

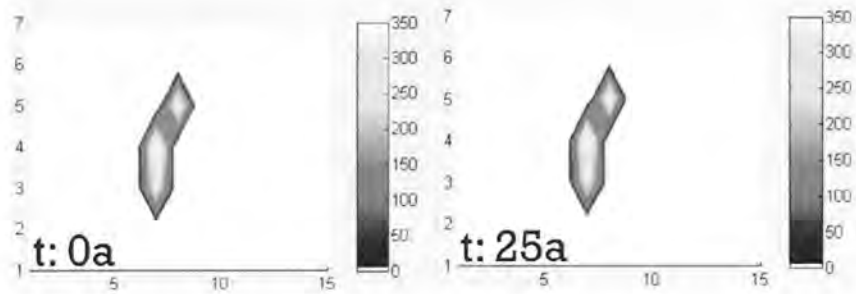


Abbildung 13.6: Berechnete Ausbreitung von ^{241}Am innerhalb 25 Jahren

Aufgrund der langen Halbwertszeit von ^{241}Am ist auch die Abnahme durch den radioaktiven Zerfall kaum wahrzunehmen, was Abbildung 13.7, die die Verteilung der Aktivitätskonzentration nach $t = 25$, illustriert.

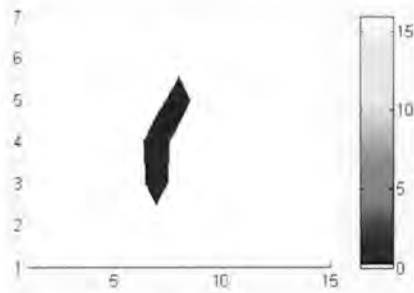


Abbildung 13.7: ^{237}Np nach 25 Jahren

13 Vergleich des Migrationsmodells mit Verdachtsfläche TOX

14 Zusammenfassung

Mit der vorliegenden Arbeit konnte anhand einer umfassenden systematischen Beprobung, einer detaillierten radiochemischen Analyse und der Erstellung eines Migrationsmodells festgestellt werden, dass Transuranelemente nur ein sehr geringes Migrationsverhalten aufweisen, und dass dabei die Sorptionskomponente eine dominante Rolle spielt.

Im Gegensatz zu Compartment Modellen, die die grundlegenden physikalischen Prozesse meist nach dem black box-Prinzip behandeln, können aufgrund eines CA-Ansatzes die auf physikalischen Gesetzmäßigkeiten beruhenden Transportprozesse direkt implementiert werden. Das Prinzip der CA ist bereits seit mehreren Jahrzehnten bekannt, ein Modellansatz ist aber erst möglich, seit Computer mit der notwendigen Rechenleistung aufwarten können.

Der für die Radioökologie wichtigste Vorteil, den CA bieten, liegt in der direkten Übertragungsmöglichkeit eines Messdatenpools einer definierten Beprobungsstrategie ins Modell und wieder zurück.

In dieser Dissertation wurde mittels zellulärer Automaten aufgrund von physikalischen Transportprozessen wie Diffusion, Konvektion, Sorption und dem radioaktiven Zerfall ein leistungsfähiges Migrationsmodell entwickelt, das die Ausbreitung von Transuran-Kontaminationen über lange Zeiträume hinweg berechnen kann. Die dafür notwendigen Modellparameter wurden der Literatur entnommen und durch Messung an den Verdachtsflächen TOX und ZS ermittelt.

Das Ausbreitungsmodell selbst wurde systematisch und universell aufgebaut, sodass bei entsprechender Anpassung der Migrationsparameter bzw. der Diffusionskonstanten, Sickerwassergeschwindigkeiten und K_d -Faktoren und der Zerfallskonstante λ , auch das Migrationsverhalten anderer Radionuklide simuliert werden kann. Der gewählte Maßstab ist variabel gestaltet, sodass das Migrationsverhalten auch in einem kleineren bzw. größeren Umfeld untersucht werden kann.

Um auch die Benutzerfreundlichkeit des Migrationsmodells zu verbessern, wurde eine graphische Benutzeroberfläche implementiert, mittels der bis zu drei Emissionsquellen und bis zu drei Senken vom Benutzer definiert werden können. Auch der Ausgabemodus kann vom Benutzer gewählt werden. Je nach Wahl kann dabei die Ausbreitung unterschiedlicher Radionuklide nach unterschiedlicher Migrationsdauer dargestellt werden. Damit ist das generierte Migrationsmodell auch gut für Lehrzwecke, z.B. für Einsatzkräfte, geeignet.

14 Zusammenfassung

Parallel zur Erarbeitung des Ausbreitungsmodells wurden auch zwei Verdachtsflächen der *Nuclear Engineering Seibersdorf* radiologisch detaillierter untersucht, von der Orientierungsmessung und der systematischen Beprobung mittels Gammaskpektrometrie über die radiochemische Auftrennung ausgewählter Bodenproben bis zu deren Analysen mittels Flüssigszintillationsspektrometrie und Alphaspektrometrie. Durch die Ermittlung des Nuklidvektors der Bodenproben konnte eine Vermutung für die Entstehung des Isotopengemisches geäußert bzw. eine andere etwaige Quelle ausgeschlossen werden.

Diese Messergebnisse lieferten wesentliche Parameter für das Ausbreitungsmodell, ohne deren Kenntnis Modellrechnungen für die Ausbreitung von Transuran-Kontaminationen nicht möglich sind. Zudem wiesen die experimentellen Ergebnisse die Richtigkeit notwendiger heuristischer Ansätze im Modell nach.

Umgekehrt erlaubt das Modell Szenarienrechnungen für die Entstehung einer Kontamination auf den Verdachtsflächen.

Appendices

Anhang A: Standortlageplan

Anhang B: Auswertungen der radiochemischen Analysen

Probe	Am-241	Probe	Am-241	Probe	Am-241
-	[mBq/g]	-	[mBq/g]	-	[mBq/g]
TOX 01	5	TOX 26	8	TOX 51	96,8
TOX 02	-	TOX 27	47	TOX 52	-
TOX 03	-	TOX 28	-	TOX 53	-
TOX 04	-	TOX 29	10	TOX 54	-
TOX 05	-	TOX 30	9	TOX 55	-
TOX 06	-	TOX 31	-	TOX 56	5,4
TOX 07	-	TOX 32	18	TOX 57	0,7
TOX 08	-	TOX 33	14	TOX 58	-
TOX 09	-	TOX 34	-	TOX 59	-
TOX 10	-	TOX 35	-	TOX 60	-
TOX 11	-	TOX 36	7	TOX 61	-
TOX 12	-	TOX 37	16	TOX 62	25
TOX 13	9	TOX 38	16	TOX 63	12,3
TOX 14	-	TOX 39	-	TOX 64	-
TOX 15	8	TOX 40	-	TOX 65	32,1
TOX 16	-	TOX 41	26	TOX 66	-
TOX 17	9	TOX 42	98	TOX 67	24
TOX 18	42	TOX 43	4	TOX 68	5,2
TOX 19	27	TOX 44	-	TOX 69	27,2
TOX 20	8	TOX 45	32	TOX 70	35,3
TOX 21	6	TOX 46	5	TOX 71	6,9
TOX 22	7	TOX 47	-	TOX 72	-
TOX 23	-	TOX 48	8	TOX 73	19
TOX 24	-	TOX 49	7	TOX 74	38,5
TOX 25	16	TOX 50	-	TOX 75	-

Tabelle .1: ²⁴¹Am-Aktivitätskonzentrationen der Bodenproben TOX 1-TOX 90

Anhang B: Auswertungen der radiochemischen Analysen

Probe	Am-241	Probe	Am-241	Probe	Am-241
-	[mBq/g]	-	[mBq/g]	-	[mBq/g]
TOX 76	-	TOX 106	62,7	TOX 136	-
TOX 77	-	TOX 107	69,5	TOX 137	-
TOX 78	10,1	TOX 108	817,7	TOX 138	-
TOX 79	6,6	TOX 109	1180,5	TOX 139	-
TOX 80	12,3	TOX 110	844,8	TOX 140	211,57
TOX 81	12,7	TOX 111	396,6	TOX 141	243,02
TOX 82	5,5	TOX 112	211,4	TOX 142	206,11
TOX 83	-	TOX 113	387,8	TOX 143	330,39
TOX 84	15,1	TOX 114	596,6	TOX 144	134,85
TOX 85	28,6	TOX 115	5,2	TOX 145	193,73
TOX 86	-	TOX 116	39	TOX 146	86,16
TOX 87	-	TOX 117	21,2	TOX 147	111,62
TOX 88	31,3	TOX 118	128,5	TOX 148	141,01
TOX 89	7,7	TOX 119	228,5	TOX 149	122,39
TOX 90	9	TOX 120	558,6	TOX 150	142,05
TOX 91	3,2	TOX 121	105,5	TOX 151	128,95
TOX 92	26,6	TOX 122	411,3	TOX 152	195,18
TOX 93	5,3	TOX 123	1019,6	TOX 153	144,02
TOX 94	-	TOX 124	-	TOX 154	126,11
TOX 95	-	TOX 125	-	TOX 155	241,71
TOX 96	-	TOX 126	-	TOX 156	123,08
TOX 97	153,6	TOX 127	-	TOX 157	112,82
TOX 98	171,1	TOX 128	-	TOX 158	78,34
TOX 99	-	TOX 129	-	TOX 159	222,42
TOX 100	175,5	TOX 130	-	TOX 160	98,82
TOX 101	164,4	TOX 131	-	TOX 161	59,5
TOX 102	285,1	TOX 132	-	TOX 162	138,75
TOX 103	47,5	TOX 133	-	TOX 163	198,14
TOX 104	19,6	TOX 134	-	TOX 164	94,31
TOX 105	43,8	TOX 135	-	TOX 165	97,92

Tabelle .2: ²⁴¹Am-Aktivitätskonzentrationen der Bodenproben TOX 76-TOX 165

Probe	Am-241	Probe	Am-241	Probe	Am-241
-	[mBq/g]	-	[mBq/g]	-	[mBq/g]
TOX 166	93,48	TOX 196	200,18	TOX 227	-
TOX 168	97,45	TOX 197	52,97	TOX 228	-
TOX 167	43,44	TOX 198	16,48	TOX 229	2,35
TOX 169	46,71	TOX 199	-	TOX 230	-
TOX 170	31,19	TOX 200	132,94	TOX 231	-
TOX 171	159,46	TOX 201	27,27	TOX 232	5,27
TOX 172	92,62	TOX 202	-	TOX 233	13,93
TOX 173	86,89	TOX 203	6,79	TOX 234	-
TOX 174	79,96	TOX 204	246,1	TOX 235	21,74
TOX 175	98,72	TOX 205	116,48	TOX 236	-
TOX 176	35,68	TOX 206	47,24	TOX 237	1,5
TOX 177	16,2	TOX 207	-	TOX 238	11,69
TOX 178	-	TOX 208	154,08	TOX 239	3,73
TOX 179	51,07	TOX 209	298,25	TOX 240	124,83
TOX 179	49,58	TOX 210	1,96	TOX 241	19,16
TOX 180	7,01	TOX 211	7,89	TOX 243	-
TOX 181	7,32	TOX 212	70,17	TOX 244	-
TOX 182	2,23	TOX 213	316,75	TOX 245	-
TOX 183	-	TOX 214	2,22	TOX 246	-
TOX 184	61,91	TOX 215	4,05	TOX 247	-
TOX 185	-	TOX 216	40,44	TOX 248	-
TOX 186	7,48	TOX 217	24,89	TOX 249	-
TOX 187	-	TOX 218	5,48	TOX 250	-
TOX 188	26,33	TOX 219	-	TOX 251	-
TOX 189	10,63	TOX 220	6,12	TOX 252	-
TOX 190	-	TOX 221	-	TOX 251	-
TOX 191	-	TOX 222	9,55	TOX 252	-
TOX 192	60,23	TOX 223	-	TOX 253	-
TOX 193	89,61	TOX 224	-	TOX 254	-
TOX 194	126,24	TOX 225	-	TOX 255	-
TOX 195	54,43	TOX 226	-	TOX 256	-

Tabelle .3: ²⁴¹Am-Aktivitätskonzentrationen der Bodenproben TOX 166-TOX 256

Anhang B: Auswertungen der radiochemischen Analysen

Probe	Am-241	Probe	Am-241	Probe	Am-241
-	[mBq/g]	-	[mBq/g]	-	[mBq/g]
TOX 257	-	TOX 265	-	TOX 273	3,62
TOX 258	-	TOX 266	-	TOX 274	6,22
TOX 259	-	TOX 267	-	TOX 275	8,88
TOX 260	-	TOX 268	-	TOX 276	-
TOX 261	-	TOX 269	-	TOX 277	59,94
TOX 262	-	TOX 270	-	TOX 278	23,8
TOX 263	-	TOX 271	-	TOX 279	-
TOX 264	-	TOX 272	3,01	TOX 280	-

Tabelle .4: ²⁴¹Am-Aktivitätskonzentrationen der Bodenproben TOX 257-TOX 280

	Beladung	Strip: Pu a	Strip: Pu b	Pu a	Pu b	Verhältnis
	[g]	[cps]	[cps]	[Bq]	[Bq]	Pu b/a
RAD 0	100,02	53,36	113,70	53,72	413,18	6,92
RAD 1	10,01	22,25	45,55	22,38	165,46	6,65
RAD 2	10,01	5,45	11,36	5,47	41,18	6,78
RAD 3	10,06	8,99	19,14	9,01	69,46	6,94
RAD 4	10,16	2,97	6,13	3,00	22,16	6,64
RAD 5	10,02	8,78	18,60	8,79	67,47	6,91
RAD 6	10,02	3,34	7,05	3,35	25,50	6,85
RAD 7	10,14	5,36	10,70	5,38	38,77	6,49
RAD 8	10,00	1,38	2,91	1,38	10,45	6,79
RAD 9	12,43	2,57	5,22	2,57	18,84	6,59
OTOX 1	12,05	0,61	1,27	0,61	4,50	6,65
OTOX 4	12,34	0,40	0,80	0,39	2,77	6,37

Tabelle .5: Pu-Analysen der Bodenproben mittels LSC

Probe	MZ [s]	Peak 1 [cps]	Peak 2 [cps]	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu [α-Bq]	²³⁸ Pu [α-Bq]	Ratio 238/239+240
VAA2105	86400	9687	7219	1,20	0,92	0,76
			MW :	1,20	0,92	0,76
VAA0205	86400	52	28	0,01	0,00	0,55
			MW :	0,01	0,00	0,55
VAA1606	86400	30176	689	3,84	0,09	0,02
			MW :	3,84	0,09	0,02

Tabelle .6: Alphaspektrometrische Analysen der Aerosolfilter

	RAD1	RAD3	RAD7	RAD8
Rückstand [g]:	1	0,4786	0,20444	0,75
Spectromelt A12 [g]:	5	5	5	5
LiBr [g]	27	22	24	22
Gesamteinwaage [g]:	1,24815	0,86449	0,40452	1,02468
Na %	<NG	<NG	<NG	<NG
MgO %	<NG	1,55	4,92	2,31
Al ₂ O ₃ %	14,6	32,3	29,4	18,2
SiO ₂ %	62,4	16	2,04	43,8
K ₂ O %	1,43	0,554		1,71
CaO %	0,501	2,38	10,5	5,48
TiO ₂ %	0,755	1,28	1,08	0,943
Fe ₂ O ₃ %	0,435	1,34	2,4	0,69
Zn %	<NG	<NG	<NG	<NG
Sr %	<NG	<NG	<NG	<NG
ZrO ₂ %	<NG	0,0924	<NG	0,0758

Tabelle .7: RFA-Messung der Rückstände nach Aufschluss durch Flussssäure

Anhang B: Auswertungen der radiochemischen Analysen

Probe	MZ [s]	Peak 1 [cps]	Peak 2 [cps]	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu [α-Bq]	²³⁸ Pu [α-Bq]	Ratio 238/(239+240)
PuRAD 0	86400	523990	453133	65,05	57,73	0,89
PuRAD 0	86400	707623	603420	64,12	54,57	0,85
PuRAD 0	86400	529942	452796	67,45	59,96	0,89
			MW :	65,54	57,42	0,88
PuRAD 1	86400	206257	167281	25,61	21,31	0,83
PuRAD 1	86400	280944	221893	25,46	20,07	0,79
PuRAD 1	86400	208771	164974	25,92	21,02	0,81
			MW :	25,66	20,80	0,81
PuRAD 2	86400	44143	36239	5,51	4,63	0,84
PuRAD 2	86400	57638	47431	5,25	4,89	0,93
PuRAD 2	86400	44881	36021	5,71	4,77	0,84
			MW :	5,49	4,76	0,87
PuRAD3	86400	83923	72345	10,68	9,58	0,90
PuRAD 3	86400	112035	95757	10,16	9,16	0,90
PuRAD 3	86400	86343	73800	10,78	9,43	0,87
			MW :	10,54	9,39	0,89
PuRAD 4	86400	28639	28639	3,57	3,66	1,02
PuRAD 4	86400	37575	32374	3,41	3,10	0,91
PuRAD 4	86400	28305	24474	3,51	3,12	0,89
			MW :	3,50	3,29	0,94
PuRAD 6	86400	11409	9989	1,44	1,42	0,99
PuRAD7	86400	56654	46460	7,09	6,71	0,95
PuRAD 7	86400	74435	61007	6,75	6,37	0,94
PuRAD 7	86400	57555	46877	5,22	4,90	0,94
			MW :	6,35	5,99	0,94
PuRAD 8	86400	13932	11916	1,76	1,69	0,96
PuRAD 8	86400	18150	15524	1,71	1,56	0,91
PuRAD 8	86400	14242	11947	1,78	1,73	0,97
			MW :	1,75	1,66	0,95
PuRAD 9	86400	35119	31158	3,20	3,22	1,00
PuRAD 9	86400	28174	24589	3,52	3,14	0,89
			MW :	3,36	3,18	0,95
PuOTOX 4	86400	5026	4638	0,47	0,46	0,98
PuOTOX 4	86400	3712	3584	0,47	0,49	1,04
			MW :	0,47	0,48	1,01
PuOTOX 9	86400	1357	1288	0,12	0,13	1,09
PuOTOX 9	86400	1051	923	0,13	0,13	1,01
			MW :	0,13	0,13	1,05
HFRRAD8	86400	182	160	0,02	0,02	0,95
HFRRAD1	86400	963	826	0,12	0,12	0,99

Tabelle .8: Alphaspektrometrische Analysen der Bodenproben

Anahng C: MATLAB- Source Code

```
%MIGRATIONSMODELL FÜR TRANSURANE AUS DEM MATLAB-GUI
%Aus GUI folgende Variablen eingelesen: Größe (Bodenfläche), Zeitschritte,
%Senken (Position), Kontamination (Anfangsposition, Nuklid)
%
%Ins GUI ausgelesen: Dispersion(Nuklid, Zeitschritte)
function [pu238_out,pu3940_out,pu241_out,am241_out,u234_out,np237_out]=...
    rechnen_di_vorm(groesse,tempo,senken,kontamination)
%groesse(1), groesse(2): Bodenfläche aus GUI, als Xmax, Ymax definiert:
%tempo: Migrationsdauer [a]:
Xmax=groesse(1);
Ymax=groesse(2);
%Über wieviele Jahre soll sich die Migration erstrecken
anza=tempo;
tdeltat=1; %Definition der Zeit, 1 Jahr=365,25 Tage

%Definition Transportparameter (Migrationsgeschw.: 0,4 cm/a, 0,004m/a)
%bei Annahme 10% diffusiv in Neumann-Nachbarschaft, 90% Konvektion
diff=0.0001;
u=0.0036;

% Definition der Transmissivitätsmatrizen, für Berücksichtigung d. Senken,
% zunächst nur Boden, Matriceintrag immer 1
% bei Senken kann nichts weiter gehen, => trans_out=0
% senke:vektor x y einträgen, wieviel einträge =size
% size gibt wieviele es sind, dann arbeitet man zeilen ab
trans_out=ones(Xmax,Ymax); %nur Boden
laenge=size(senken);
for j=1:laenge(1)
    trans_out(senken(j,1),senken(j,2))=0;
end

% Definition der Transuran-Matrizen für Migration
pu238=zeros(Xmax,Ymax,anza); %87,7a, u234
pu3940=zeros(Xmax,Ymax,anza); %24110a/6564a -> Zerfall nicht berücksichtigt
pu241=zeros(Xmax,Ymax,anza); %14,35a, am241
am241=zeros(Xmax,Ymax,anza); %432,2a, np237
```

Anahng C: MATLAB- Source Code

```
% Definition der Töchtermatrizen
u234=zeros(Xmax,Ymax,anza); %245 000a
np237=zeros(Xmax,Ymax,anza); %2 144 000a

% Kontamination: bis zu 3 Quellen aus GUI einlesen, einer (4,3)-Matrix
% ersten beiden Spalten jeder Zeile: Position zu t=0, Spalte3: Akt.konz.,
% Spalte4: Nuklide, anhand derer mit SWITCH unterschieden wird

zw=size(kontamination);
% Matrix dann als Spaltenvektor definiert

for j=1:zw(1) %j sind die 3 unterschiedl. ev, Quellen
    switch kontamination(j,4)%Typ: die 4 versch. Transurane
        %case1: Nulleffekt, default
        case 2 %switch 2 ist pu238
            pu238(kontamination(j,1),kontamination(j,2),1)=kontamination(j,3);
        case 3 %switch 3 ist pu3940
            pu3940(kontamination(j,1),kontamination(j,2),1)=kontamination(j,3);
        case 4 %switch 4 ist pu241
            pu241(kontamination(j,1),kontamination(j,2),1)=kontamination(j,3);
        case 5 %switch 5 ist am241
            am241(kontamination(j,1),kontamination(j,2),1)=kontamination(j,3);
    end
end

% Zerfallskonstanten, mit HWZ in Jahren
lpu238=log(2)/(87.7);
lpu241=log(2)/(14.35);
lam241=log(2)/(432.2);

% Zwischenspeicher: add. Verknüpfung Diffusion, Konvektion d. Transurane
% an t=0 kein Eintrag
store_pu238=zeros(Xmax,Ymax);
store_pu3940=zeros(Xmax,Ymax);
store_pu241=zeros(Xmax,Ymax);
store_am241=zeros(Xmax,Ymax);

% Berechnung der Migration, Ortsvektoren: Rand mit berücksichtigen
% MATLAB hat kein t=0, => t=1
% 1. Schleife: Berechnung Diffusion, abhängig von der Zelle selbst und
% Anteil der vier umgebenden Zellen, wenn Senke kein Beitrag -> trans_out
```

```

for t=2:anza
  for x=2:Xmax-1
    for y=2:Ymax-1

      store_pu238(x,y)=pu238(x,y,t-1)*(1-4*trans_out(x,y)*diff)+...
        diff*(pu238(x-1,y,t-1)*trans_out(x-1,y)+...
        pu238(x+1,y,t-1)*trans_out(x+1,y)+...
        pu238(x,y-1,t-1)*trans_out(x,y-1)+...
        pu238(x,y+1,t-1)*trans_out(x,y+1));

      store_pu3940(x,y)=pu3940(x,y,t-1)*(1-4*trans_out(x,y)*diff)+...
        diff*(pu3940(x-1,y,t-1)*trans_out(x-1,y)+...
        pu3940(x+1,y,t-1)*trans_out(x+1,y)+...
        pu3940(x,y-1,t-1)*trans_out(x,y-1)+...
        pu3940(x,y+1,t-1)*trans_out(x,y+1));

      store_pu241(x,y)=pu241(x,y,t-1)*(1-4*trans_out(x,y)*diff)+...
        diff*(pu241(x-1,y,t-1)*trans_out(x-1,y)+...
        pu241(x+1,y,t-1)*trans_out(x+1,y)+...
        pu241(x,y-1,t-1)*trans_out(x,y-1)+...
        pu241(x,y+1,t-1)*trans_out(x,y+1));

      store_am241(x,y)=am241(x,y,t-1)*(1-4*trans_out(x,y)*diff)+...
        diff*(am241(x-1,y,t-1)*trans_out(x-1,y)+...
        am241(x+1,y,t-1)*trans_out(x+1,y)+...
        am241(x,y-1,t-1)*trans_out(x,y-1)+...
        am241(x,y+1,t-1)*trans_out(x,y+1));

    end
  end
  % 2. Schleife: Berechnung Konvektion in y-Richtung, Abhängig von Zelle
  % selbst und was aus y+1 dazukommt
  for x=2:Xmax-1
    for y=2:Ymax-1
      pu238(x,y,t)=(1-u*trans_out(x,y))*store_pu238(x,y)+...
        u*trans_out(x,y+1)*store_pu238(x,y+1);

      pu3940(x,y,t)=(1-u*trans_out(x,y))*store_pu3940(x,y)+...
        u*trans_out(x,y+1)*store_pu3940(x,y+1);

      pu241(x,y,t)=(1-u*trans_out(x,y))*store_pu241(x,y)+...
        u*trans_out(x,y+1)*store_pu241(x,y+1);
    end
  end
end

```

Anahng C: MATLAB- Source Code

```
        am241(x,y,t)=(1-u*trans_out(x,y))*store_am241(x,y)+...
            u*trans_out(x,y+1)*store_am241(x,y+1);
    end
end

% Berücksichtigung Zerfall, was in der einen Nuklidmatrix zerfallen, muss
% weggenommen und in die vorgesehene übergeführt werden

    u234(:,:,t)=u234(:,:,t-1)+pu238(:,:,t-1)*(1-exp(-lpu238));
    pu238(:,:,t)=pu238(:,:,t-1)*exp(-lpu238);
    np237(:,:,t)=np237(:,:,t-1)+am241(:,:,t-1)*(1-exp(-lam241));
    am241(:,:,t)=am241(:,:,t-1)+pu241(:,:,t-1)*(1-exp(-lpu241));
    pu241(:,:,t)=pu241(:,:,t-1)*exp(-lpu241);

end

% Variablen, die ans GUI wieder ausgegeben werden
u234_out=u234;
pu238_out=pu238;
np237_out=np237;
am241_out=am241;
pu241_out=pu241;
pu3940_out=pu3940;
```

Literaturverzeichnis

- [1] Cooper J.R., Randle K., Sokhi R.S.: *Radioactive Releases in the Environment - Impact and Assessment*, John Wiley & Sons, Ltd, Chichester, 2003.
- [2] Shaw G.: *Introduction*, Radioactivity in the Environment, Vol. 10, Elsevier Ltd., 2007.
- [3] Oberhummer H.: *Kerne und Sterne - Einführung in die Nukleare Astrophysik*, Barth, Leipzig, 1993.
- [4] Strebl F., Ehlken S., Gerzabek M.H.et. al.: *Behaviour of radionuclides in soil / crop systems following contamination*, Radioactivity in the Environment, Vol. 10, Elsevier Ltd., 2007.
- [5] Lieser K.H.: *Nuclear and Radiochemistry*, Wiley-VCH Verlag GmbH, Weinheim, 2001
- [6] Pfennig G., et.al.: *Karlsruher Nuklidkarte*, 6. Auflage, Haberbeck, Lage/Lippe, 1995.
- [7] Homepage des Bundesamts für Strahlenschutz
<http://www.bfs.de/ion/nahrungsmittel/nahrung.html>
- [8] Hefner A.: *Strahlenbiologie*, Vortragsunterlagen zum Grundkurs für Strahlenschutzbeauftragte, Strahlenschutzakademie, ARCS. März 2006.
- [9] <http://www.orau.org/ptp/collection/quackcures>
- [10] Böck H.: *Nuclear Engineering*, Vorlesungsunterlagen zur gleichnamigen Vorlesung am Atominstitut, WS2000.
- [11] Maria Belli (ed.): *SEMINAT - Long-Term Dynamics of Radionuclides in Semi-Natural Environments: Derivation of Parameters and Modelling*, Final Report 1996-1999, European Commission - Nuclear Fission Safety Programme, Agenzia Nazionale per la Protezione dell'Ambiente, ISBN-88-448-0286-4, Rom, 2000.
- [12] Brandl A., Piniel R., Steining R.: *A Method for Site Characterization at the Austrian Research Centers Seibersdorf*, Proceedings of the 40th Midyear Topical Meeting on Decontamination, Decommissioning and Environmental Cleanup, Knoxville, TN: Health Physics Society, 2007
- [13] Piniel R., Brandl A. et.al.: *Abschlussbericht Geländekataster Seibersdorf*, NES-015, Abschlussbericht mit beschränkter Verbreitung, Nuclear Engineering Seibersdorf, 2008.

Literaturverzeichnis

- [14] Homepage der Gesellschaft für Schwerionenforschung <http://www.gsi.de/forschung>
- [15] Turner J.E.: *Atoms, Radiation and Radiation Protection*, Wiley VCH, ISBN 978-0471595816, Weinheim, 1995.
- [16] Peterson J., MacDonell M., et.al.: *Radiological and Chemical Fact Sheets to Support Health Risk Analyses for Contaminated Areas*, Argonne National Laboratory, EVS, 2007.
- [17] Weiss P. *Little-studied metal goes critical - Neptunium Nukes?*, Science News, Oct 26, 2002.
- [18] Flury M., Harsh J.B.: *Fate and Transport of Plutonium and americium in the Subsurface of OU 7-13/14*, Idaho National Engineering and Environmental Laboratory, INEEL/EXT 03-00558, 2003.
- [19] Neu, M.P.: *Plutonium Speciation, Solubilization, and Migration in Soils*, Environmental Management Science Program, Los Alamos National Laboratory, 2000.
- [20] Strahlenschutzkommission (ed.): *Radiologische Bewertung des Plutoniums*, Bundesanzeiger Nr.65. Bonn, 1988.
- [21] IAEA (Hrsg.): *Collection and Preparation of Bottom Sediment Samples for Analysis of Radionuclides and Trace Elements*, IAEA TECDOC Series No. 1360, IAEA, Vienna, 2003.
- [22] Buchtela K.: *Flüssigszintillations-Spektrometrie*, Vorlesungsunterlagen zur gleichnamigen Vorlesung am Atominstitut der TU Wien, SS 2005.
- [23] Solba G.: *Persönliche Mitteilungen*
- [24] Stolz W.: *Messung ionisierender Strahlung*, Physik Verlag, Weinheim, 1985.
- [25] Canberra: *A Practical Guide to Successful Alpha Spectroscopy*, Application Note.
- [26] Happel S.: *Kernchemisches Grundparaktikum - Alphaspketrometrie*, Unterlagen zum gleichnamigen Praktikum an der Universität Marburg, WS 2002/2003.
- [27] Bröcker B.: *dtv-Atlas Atomphysik*, Deutscher Taschenbuchverlag, München, 1989.
- [28] Bichler, M.: *Aktivierungsanalyse - Grundlagen und Anwendung*, Skriptum zur gleichnamigen Vorlesung am Atominstitut, 1997.
- [29] Wurmbauer Günter: *Messung von Retentionsprofilen von radioaktiv kontaminierter Erde und die Effizienz von Auslaugverfahren zur Minimierung des radioaktiven Abfalls*. Diplomarbeit an der Universität Wien, Studienrichtung Physik, 2004.
- [30] IAEA (Hrsg.): *Soil Sampling for Environmental Contaminants*, IAEA TECDOC Series No. 1415, IAEA, Vienna, 2004.
- [31] Steger F., Stolba G. et.al.: *Allgemeine Strahlenschutzverordnung - Erläuterungen & Kommentare*, Österreichisches Normungsinstitut, ISBN 3-85402-093-7, Wien, 2006.

- [32] Djuricic M., Steininger R.: *Bodenflächensanierung*, Zwischenbericht für den internen Gebrauch, Nuclear Engineering Seibersdorf, 2007.
- [33] : Vesely A.: *Persönliche Mitteilung*
- [34] European Commission (ed.): *Treatment of Radionuclide Transport in Geosphere within Safety Assessments (RETROCK)*, nuclear science and technology, final report, EUR 21230 EN.
- [35] Schneider W.: *Geohydraulik, Stofftransport und Reaktionen*, Skriptum zur gleichnamigen Vorlesung an der Technischen Universität Hamburg-Harburg, Sommersemester 2007.
- [36] Vesely A., Lindauer H., Trombitas H.: *Bestimmung von Aktivierungsprodukte in Schwerbeton und Aluminiumblech aus dem ASTRA*, Endbericht zum internen Gebrauch, Nuclear Engineering Seibersdorf GmbH, 2007.
- [37] Frissel M.J., Pennders R.: *Models for the accumulation and migration of ^{90}Sr , ^{137}Cs , $^{239,240}\text{Pu}$ and ^{241}Am in the upper layer of soils*, Publ. Series of the British Ecological Society, No.3, 1983.
- [38] Vajda N.: *Determination of Radiostrontium in Soil Samples Using a Crown Ether*, J. of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Vol. 162, No. 2, 1992.
- [39] Eikenberg J.: *Immissionsmessungen von Aktiniden in der Umgebung des ZWILAG-Areals (Würenlingen AG)*, Umweltradioaktivität und Strahlenschutz in der Schweiz, BAG,2006.
- [40] Bajo S., Eikenberg J.: *Electrodeposition of actinides for alpha-spectrometry*, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Vol. 242, No. 3, Budapest, 1999.
- [41] Meyer F., Steger F., Steininger R., et. al: *Dekommissionierung des ASTRA-MTR Forschungsreaktors*, Abschlussbericht mit beschränkter Verbreitung, Nuclear Engineering Seibersdorf GmbH, 2008.
- [42] Niese S.: *Was ist ein Nuklidvektor*, Kurzbeitrag zur Weiterbildung, Strahlenschutzpraxis 1, 1999.
- [43] DIN 25 457 Teil 4: *Aktivitätsmessverfahren für die Freigabe von radioaktiven Reststoffen und kerntechnischen Anlagenteilen*.
- [44] Bundesminister der Justiz (Hrsg.): *Bekanntmachung der Richtlinie zur Kontrolle radioaktiver Abfälle mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung, die nicht an einer Sammelstelle abgeliefert werden*, vom 16.01.1989, erschienen am 04.04.1989.
- [45] Pina G., Rodriguez M. et.al: *Interlaboratory Radiochemical Analysis Comparison on a Primary Waste Flux*, Statistical Evaluation Report, 2002.
- [46] Eikenberg J.: *Radium isotope Systematics in Nature: Applications in Geochronology and Hydrogeochemistry*, Habilitation Thesis, PSI Bericht Nr. 02-24, ISSN 1019-0643, Villigen, 2002.

Literaturverzeichnis

- [47] Atkins P.W.: *Kurzlehrbuch Physikalische Chemie*, Wiley-VCH, ISBN 3-527-30433-9, Weinheim, 2006.
- [48] Dickerson J.E., Geis I.: *Chemie - eine lebendige und anschauliche Einführung*, ISBN 3-527-25867-1, VCH, Weinheim, 1990.
- [49] Mooney D., Swift R.: *A Course in Mathematical Modeling*, The Mathematical Association of America, ISBN 0-88358-712-X, 1999.
- [50] Burghes D., Huntley I, McDonald J.: *Applying Mathematics: A Course in Mathematical Modelling*, Horwood, Cichester, 1982.
- [51] Christian Jakob: *Principa Evolvica - Simulierte Evolution mit Mathematica*, dpunkt-Verlag, ISBN 3-920993-48-9, Heidelberg, 1997.
- [52] Wolf-Gladrow D.: *General Inforamtion about the SFB*, Verlag der österr. Akademie der Wissenschaften, Wien, 1996.
- [53] Herman Goldstine: *The Computer from Pascal to Neumann*, Princeton University Press, ISBN 0-691-08104-2, Princeton, 1972.
- [54] Christopher Adami: *Introduction to Artificial Life*, Springer Verlag, ISBN 0-387-94646-2, New York, 1998.
- [55] Lege T., Kolditz O, Zielke W.: *Strömungs- und Transportmodellierung*, Spriner Verlag, ISBN 3-540-59140-0, Heidelberg, 1996.
- [56] Benbi D.K., Nieder R.: *Handbook of Processing and Modeling in the Soil-Plant System*, ISBN 1-56022-915-2, Haworth, Binghampton, 2003.
- [57] Gerzabek M.H., Mück K., Algader S. u.a.: *Mobilität von Schadstoffen im System Boden - Wasser - Pflanze*, Zwischenbericht mit beschränkter Verbreitung, Forschungszentrum Seibersdorf, 1995.
- [58] Bunzl K., Förster H., et.al: *Residence Times of Fallout $^{239+240}\text{Pu}$, ^{238}Pu , ^{241}Am and ^{137}Cs in the Upper Horizons of an Undisturbed Grassland Soil*, J- Environ. Radioactivity 22, 1994.
- [59] Bunzl K., Schimmack W., Kreutzer K, Schierl R.: *The migration of fallout ^{134}Cs , ^{137}Cs and ^{106}Ru from Chernobyl and of ^{137}Cs from weapons testing in a forst soil*, Z. Pflanzenernähr. Bodenkd. 152, 39-44, 1989.

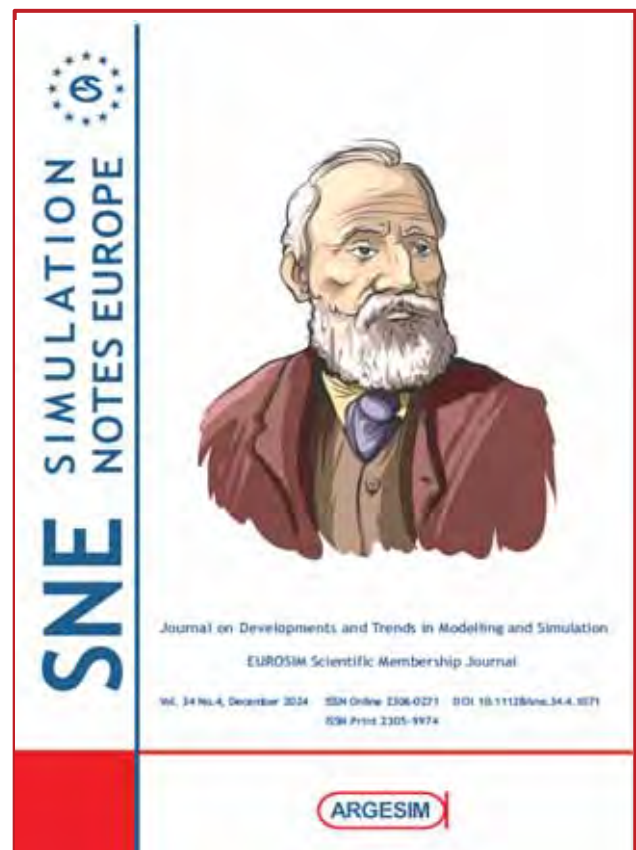
SNE SIMULATION NOTES EUROPE

Simulation Notes Europe (**SNE**) provides an international, high-quality forum for presentation of new ideas and approaches in simulation - from modelling to experiment analysis, from implementation to verification, from validation to identification, from numerics to visualisation - in context of the simulation process.

SNE seeks to serve scientists, researchers, developers and users of the simulation process across a variety of theoretical and applied fields in pursuit of novel ideas in simulation and to enable the exchange of experience and knowledge through descriptions of specific applications. **SNE** puts special emphasis on the overall view in simulation, and on comparative investigations, as benchmarks and comparisons in methodology and application. Additionally, **SNE** welcomes also contributions in education in / for / with simulation.

SNE is the official membership journal of EUROSIM, the federation of European simulation societies and simulation groups, so **SNE** is open for postconference publication of contributions to conferences of the EUROSIM societies, and for special issues organized by EUROSIM societies.

SNE, primarily an electronic journal, follows an open access strategy, with free download in basic layout. Members of EUROSIM societies are entitled to download SNE in an elaborate and extended layout. Print **SNE** is available for specific groups of EUROSIM societies, and as print-on-demand from TU Verlag, TU Wien (www.tuverlag.at).



www.sne-journal.org

