



**Stellungnahme
zu dem im Auftrage der IPPNW
von der ARGE PhAM erstellten Bericht
„Radioaktivität in Elbmarsch und Elbgeest“
(Bericht SH/NS/ELB 3)**

Berichterstatter: Dr. Wolfgang Städe

Hildesheim, den 22.08.01



Niedersachsen



Stellungnahme zu dem von der ARGE PhAM im Auftrage der IPPNW erstellten Bericht „Radioaktivität in Elbmarsch und Elbgeest“ (Bericht SH/NSW/ELB 3)

Zusammenfassung

Der jetzt von der ARGE PhAM vorgelegte Untersuchungsbericht „ELB 3“ enthält für den niedersächsischen Bereich des Untersuchungsgebietes, die Elbmarsch, nur Messwerte der Radioaktivitätsbelastung, die bereits am 29. Mai 2001 dem Ausschuss „Strahlenschutz bei Anlagen“ der Strahlenschutzkommission vorgelegt wurden. Dieser Ausschuss hatte auf der Basis aller vorliegenden Messergebnisse (ARGE PhAM, Lufa Kiel, GKSS und NLÖ) einstimmig festgestellt, dass er keinen Nachweis für eine erhöhte anthropogene Radioaktivität und keine daraus resultierende erhöhte Strahlenexposition sieht. Diese Beurteilung deckt sich vollständig mit den Aussagen des NLÖ. Da der Bericht ELB 3 keine belastbaren weiteren Messergebnisse für die Elbmarsch liefert, ändert sich die Beurteilung des NLÖ nicht.

Der vorangegangene Bericht der ARGE PhAM vom 10.02.01 (ELB 2) hatte nur für eine einzige Stelle der Elbmarsch alpha- und gammaspektrometrisch ermittelte Messwerte von Radionukliden vorgelegt. Der Bericht ELB 3 ergänzt zwar für die Elbmarsch die Messwerttabellen des Berichtes ELB 2 durch die Ergebnisse gammaspektrometrischer Messungen an acht weiteren Stellen, kommt aber zu keinen grundsätzlich anderen Aussagen. Auch in dem Bericht ELB 3 wird für die Elbmarsch nicht der Nachweis einer Radioaktivitätserhöhung durch Kernbrennstoffpartikel erbracht, vielmehr werden Messwerte im niedrigen Aktivitätsbereich diskutiert.



Der wesentliche Bestandteil des neuen Berichtes der ARGE PhAM, die Berechnung von Nuklidvektoren und der Nachweis von angereichertem Uran basiert auf einer Fehleinschätzung der Aussagekraft der angewandten Messmethoden, der Gammaskpektrometrie und auch der Alphaspektrometrie in dem in der Elbmarsch vorherrschenden niedrigen Bereich der Umweltradioaktivität. In der hier vorgelegten Stellungnahme wird vom NLO eindeutig dargelegt, dass die von der ARGE PhAM auf der Basis der gammaskpektrometrischen Methoden ermittelten Nuklidverhältnisse (Nuklidvektoren) nicht belastbar sind.

Diese Fehleinschätzung wird vom NLO an Hand der Ergebnisse verschiedener Ringanalysen und durch Betrachtung der unvermeidbaren zählstatistischen Fehler belegt. Da die Messwertangaben der ARGE PhAM auch weiterhin ohne direkt zugeordnete Angaben von Methoden und zählstatistischen Messfehlern erfolgen, entziehen sie sich weiterhin einer fachlichen Diskussion.

Nach Ansicht des NLO reichen die von der ARGE PhAM angegebenen Messmethoden nicht zur Bestimmung von Neptunium-237 und Americium-243 aus. Beide Radionuklide sind niederenergetische Gammastrahler, deren Nachweis stark durch verschiedene natürlich vorkommende Radionuklide überlagert wird. Überdies macht eine Messung im feuchten Zustand und mit unterschiedlichen Probenmengen eine sachgerechte Kalibrierung nahezu unmöglich. Die Angaben der ARGE PhAM über die Belastung des Bodens mit Neptunium-237 und Americium-243 sind also nicht nachvollziehbar.



Stellungnahme

Mit Erlass vom 06.08.01 wurde das NLÖ vom Niedersächsischen Umweltministerium aufgefordert, zu der Information der IPPNW „Radioaktivität in Elbmarsch und Elbgeest“, Untersuchungen der ARGE PhAM im Auftrage der IPPNW (Bericht SH/NS/ELB 3 der ARGE PhAM vom 20.06.01), Stellung zu nehmen.

Im Folgenden wird ausschließlich zu den Messwerten der ARGE PhAM und zu den Interpretationen der Ergebnisse dieser Radioaktivitätsmessungen Stellung bezogen. Ausserdem konzentriert sich die Stellungnahme auf die Aussagen der ARGE PhAM zu dem niedersächsischen Teil des Untersuchungsgebietes, zur Elbmarsch. Zu allen Betrachtungen der ARGE PhAM, die nicht durch belastbare Radioaktivitätsmessungen begleitet wurden, wird keine Stellung genommen (z.B. vermutete Herkunft und Eigenschaften von Kernbrennstoffpartikeln, Photodokumentation, atomrechtliche Aufsicht).

Zur Beurteilung der Aussagen der ARGE PhAM werden in dieser Stellungnahme vom NLÖ sehr ausführlich die von der ARGE PhAM und vom NLÖ angewandten Methoden der Radioaktivitätsmessung beleuchtet. Dazu werden erneut auch die vom NLÖ selbst im Rahmen des Sonderprogrammes „Elbmarsch“ durchgeführten Untersuchungen herangezogen.

Um das Verständnis dieser Stellungnahme zu erhöhen, werden einige Tabellen und Erläuterungen früherer Berichte des NLÖ.¹²³ hier erneut beigelegt.

¹ Untersuchungsbericht des Niedersächsischen Landesamtes für Ökologie vom 13.02.2001 „Bericht über die Sonderuntersuchung der Belastung des Bodens der Elbmarsch mit Alphastrahlern“ im Auftrage des Niedersächsischen Umweltministeriums und des Niedersächsischen Ministeriums für Frauen, Arbeit und Soziales

² Niedersächsisches Landesamt für Ökologie, 23.03.01, Stellungnahme zum Bericht von Frau Dr. Helga Dieckmann und Prof. Dr. Inge Schmitz-Feuerhake

³ Stellungnahme zu „Kommentare zur Probenahme vom 27.01.01 und Probenauswertung, (NLÖ-Bericht vom 13.02.01) der ARGE PhAM“ vom 31.05.01



Die Stellungnahme umfasst folgende Schwerpunkte:

- Bewertung der Bestimmung der spezifischen Aktivität von Uranisotopen und Bestimmung des Anreicherungsgrades von Uran
 - Bewertung der messtechnischen Bestimmung von Uranisotopen
 - Bewertung der Verfahren der Gammaspektrometrie und der Alphaspektrometrie an Hand von Ringanalysen
 - Diskussion der NLÖ-Messungen vor diesem Hintergrund
 - Diskussion der Verfahren und Messungen der ARGE PhAM (ELB 2 und ELB 3)
 - Messungen des NLIS 1991
- Messtechnische Bestimmung von Americium-243 und Neptunium-237
 - Angewandte Mess- und Auswerteverfahren der ARGE PhAM
 - Anwendbarkeit der Gammaspektrometrie
 - Vergleich mit den Messwerten des NLÖ
- Stellungnahme zu der Kritik am Vorgehen des NLÖ
 - Probenahmetiefe beim NLÖ-Sonderprogramm
 - Nachmessungen Gamma- und Alphaspektrometrie
- Anlagen
 - Anreicherungsgrade von Uran
 - Messwerttabellen NLÖ
 - Messwerttabellen ARGE PhAM
 - Abbildungen zur Gamma- und Alphaspektrometrie, zu Ringanalysen und zum Vergleich der Proben des Elbmarschprogrammes des NLÖ mit Natururan



Bewertung der Bestimmung der spezifischen Aktivität von Uranisotopen und Bestimmung des Anreicherungsgrades von Uran

- Bewertung der Verfahren der Gammaskpektrometrie und der Alphaskpektrometrie an Hand von Ringanalysen mit NLÖ-Beteiligung
 - Gammaskpektrometrie Boden
 - Alphaskpektrometrie Wasser
 - Alpha- und Gammaskpektrometrie Boden (IAEA)
- Bewertung der Messergebnisse des NLÖ-Sonderprogrammes „Elbmarsch“, Vergleich der NLÖ-Messwerte mit Natururan und angereichertem Uran
 - Bestimmung des Anreicherungsgrades von Uran-235 und Uran-234 in Umweltproben mit Hilfe der Gammaskpektrometrie am Beispiel des Elbmarschprogrammes des NLÖ
 - Bestimmung des Anreicherungsgrades von Uran-235 und Uran-234 in Umweltproben mit Hilfe der Alphaskpektrometrie am Beispiel des Elbmarschprogrammes des NLÖ



Bewertung der Verfahren der Gammaskpektrometrie und der Alphaskpektrometrie zur Bestimmung von Uranisotopen an Hand von Ringanalysen

Aus den Ergebnissen nationaler und internationaler Ringanalysen lässt sich unschwer die Leistungsfähigkeit einer Analysenmethode erkennen.

Da vom NLO in vorhergehenden Berichten^{1,2,3} die Berechnung der Nuklidverhältnisse (Nuklidvektoren) der ARGE PhAM stark angezweifelt wurde, sollen im Folgenden an drei Ringanalysen die Anwendbarkeit der Gammaskpektrometrie und der Alphaskpektrometrie zur Ermittlung des Uran-Gehaltes der Proben und besonders die Ermittlung des Nuklidverhältnisses beleuchtet werden.

In der Tabelle 8 der Anlage ist der Zusammenhang zwischen den Nuklidverhältnissen (Nuklidvektoren) und dem Anreicherungsgrad für verschiedene Anreicherungsgrade von Uran aufgelistet. Diesen werden Natururan und angereichertes Uran gegenübergestellt. Zur besseren Verständlichkeit werden im Folgenden nur die Nuklidverhältnisse (Aktivitätsverhältnisse) diskutiert.

Das Dezernat Radioökologie des NLO unterzieht sich regelmäßig einer Qualitätskontrolle durch die Teilnahme an nationalen und internationalen Ringanalysen. Dabei werden auch Uranisotope mit alpha- und gammaskpektrometrischen Methoden untersucht.

Zusammenstellung der hier diskutierten Ringanalysen:

Nr	Organisator	Medium	Methode	Bericht
1	Bundesanstalt für Milchforschung	Boden	Gammaskpektrometrie	1995/1996
2a 2b	Bundesamt für Strahlenschutz	Wasser (Modellwasser) (a) reales Abwasser (b)	Alphaskpektrometrie	2000
3	IAEA	Boden	Alpha- und Gammaskpektrometrie	2001



- Lit. zu 1: Haase, G., Wiechen, A., Tait, D.: Ergebnisse der Ringanalyse zur Bestimmung von Gamma-Radionukliden, Sr-90, Pu-238 und Pu-239 in Boden im Jahr 1995/1996. Kieler Milchwirtschaftliche Forschungsberichte 48 (3) 209 – 239 (1996)
- Lit. zu 2: H. Viertel, I. Kunert: Bestimmung von Alphastrahlern in Wasser, Ringversuch 2000, Herausgeber: Bundesamt für Strahlenschutz (BfS), Dezember 2000, Bericht AS 2 – 34 / 2000
- Lit zu 3: R. Bojanowski et.al, Report on the intercomparison run for the determination of radionuclides in soils, IAEA-326 and IAEA-327, IAEA Report IAEA/AL/100, Wien, April 2001

Zusammenstellung der ausgewerteten Ergebnisse (Abbildungen siehe Anhang)

Bezeichnung	U-234 (Bq/l)	U-235 (Bq/ kg oder Bq/l)	U-238 (Bq/ kg oder Bq/l)	U-235/U-238	U-235/U-234	U-234/U-238
BMF		Abb. 4	Abb. 5	Abb. 6		
BfS reales Abwasser	Abb. 7	Abb. 8	Abb. 9	Abb. 10	Abb. 11	Abb. 12
BfS Modell- wasser	Abb. 13	Abb. 14	Abb. 15	Abb. 16	Abb. 18	Abb. 17
IAEA		Abb. 19	Abb. 20			

Die Ergebnisse dieser Ringanalysen werden in den angegebenen Abbildungen der Anlage für die an den Ringanalysen beteiligten Laboratorien für die verschiedenen Uranisotope in Bq/l bzw. Bq/kg dargestellt.

Bewertung des Verfahrens der Gammaspektrometrie des Bodens (Ringanalyse Bundesanstalt für Milchforschung)

(Graphische Darstellung siehe Anlage Abb. 4 - 6)

Zur Untersuchung gelangte eine Bodenprobe mit für Böden üblichen Gehalten an U-235 und U-238. Für beide Nuklide streuen die Mittelwerte der einzelnen Messlabors stark um den Gesamtmittelwert. Beachtenswert sind die Streuungen der einzelnen Laboratorien bei den jeweils drei durchzuführenden Bestimmungen. Diese Streuung der Messwerte führt dazu, dass für ein und dieselbe Probe von jedem Labor mehrere, sehr unterschiedliche Verhältnisse von U-235 zu U-238 ermittelt werden können. In der Abbildung 6 sind die Nuklidverhältnisse der Laboratorien aufgetragen, die jeweils drei unabhängige Einzelbestimmungen durchführten und beide Nuklide oberhalb der Nachweisgrenze nachwiesen. Das zeigt eindeutig, dass die Methode der Gamma-



spektrometrie zur Ermittlung des Nuklidverhältnisses U-235/U-238 im Aktivitätsbereich der Umweltradioaktivität ungeeignet ist, da die für ein und dieselbe Probe berechneten U-235/U-238-Verhältnisse zwischen den einzelnen Messinstitutionen um mehr als den Faktor 3 schwanken. Bei Messwerten in dem Bereich der Nachweisgrenze wäre mit noch größeren Schwankungen zu rechnen.

Fazit:

Die Berechnung des Anreicherungsgrades von Uran auf der Basis des mit der Gamaspektrometrie ermittelten Nuklidverhältnisses U-235/U-238 führt bei Proben mit einem für Umweltproben typischen Urangehalt zu nicht belastbaren Aussagen.

Bewertung des Verfahrens Alphaspektrometrie Wasser (Bundesamt für Strahlenschutz)

(Graphische Darstellung siehe Anlage Abb. 7 - 18)

Zur Untersuchung gelangten hier zwei Proben mit unterschiedlichen Konzentrations- und Anreicherungsbereichen. Eine Betrachtung der Ergebnisse der Analytik des Wassers ist für die Beurteilung der Aussagekraft der Methode von besonderer Bedeutung, da hier verschiedene systematische Fehler, die bei der Untersuchung von Bodenproben auftreten können, ausgeschlossen sind.

Für U-234, U-235 und U-238 streuen die Mittelwerte der einzelnen am Ringversuch teilnehmenden Messlabors um den Gesamtmittelwert. Beachtenswert sind auch die Streuungen bei den einzelnen Laboratorien bei den jeweils zwei durchzuführenden Bestimmungen. Diese Streuung der Messwerte führt dazu, dass für ein und dieselbe Probe von jedem Labor unterschiedliche Verhältnisse von U-235 zu U-238 und U-234 zu U-238 ermittelt werden können. Dieses zeigt, dass auch die Methode der Alphaspektrometrie zur Ermittlung von Nuklidverhältnissen der Uranisotope im Aktivitätsbereich der Umweltradioaktivität kritisch zu bewerten ist. Eine Betrachtung des zählstatistischen Fehlers und möglicher systematischer Fehler ist für jede einzelne Messung daher unerlässlich.



Der Schwankungsbereich der Nuklidverhältnisse U-235/U-238 ist hier in einer ähnlichen Größe, wie bei der oben erwähnten Gammaspektrometrie des Bodens (Faktor 3). Allein das Verhältnis U-234/U-238 scheint für die Berechnung des Anreicherungsgrades geeignet zu sein. Bei den vergleichsweise höheren Aktivitätskonzentrationen dieser Ringanalysen schwanken die ermittelten Nuklidverhältnisse etwa um $\pm 10\%$. Es ist allerdings davon auszugehen, dass bei Umweltproben mit typischen, niedrigen Aktivitätsgehalten der Schwankungsbereich deutlich vergrößert ist.

Fazit:

Die Berechnung des Anreicherungsgrades von Uran auf der Basis des mit der Alphaaspektrometrie ermittelten Nuklidverhältnisses U-235/U-238 führt bei Proben mit einem für Umweltproben typischen Urangehalt zu nicht belastbaren Aussagen.



Diskussion der Ergebnisse Alpha- und Gammaspektrometrie Boden (Ringanalyse der IAEA)

(Graphische Darstellung siehe Anlage Abb. 19 – 20)

Bei dieser Ringanalyse wurden zur Bestimmung von U-235 und U-238 alphaspektrometrische und gammaspektrometrische Verfahren eingesetzt. Wie die graphische Darstellung der Ergebnisse der Untersuchung von zwei Bodenproben zeigt, ist der Streubereich der Messwerte der Bodenproben mit einer niedrigen Uranbelastung im Bereich der üblichen Umweltradioaktivität beträchtlich.

Auf eine Berechnung der Nuklidverhältnisse wird von uns in Anbetracht der großen Streuung der Ergebnisse verzichtet.

Von Bedeutung ist hier der Hinweis, dass bei der gammaspektrometrischen Bestimmung des U-238 die ermittelte spezifische Aktivität - und damit auch das U-235/U-238-Verhältnis - stark von der jeweils zur Auswertung herangezogenen Gammalinie abhängt (vergl. auch die Stellungnahme des NLÖ²).

Bestimmung des Anreicherungsgrades von Uran-235 in Umweltproben mit Hilfe der Alpha- und Gammaspektrometrie am Beispiel des Elbmarschprogrammes des NLÖ, Bewertung der Messergebnisse Vergleich der Messwerte mit Natururan

An fünf Probenahmestellen des Sonderprogrammes Elbmarsch wurden vom NLÖ Bodenproben alphaspektrometrisch und gammaspektrometrisch auf Uran untersucht:

- | | |
|-------------------|------|
| 1. Fährhaus | 1.1 |
| 2. Tennisplatz | 1.22 |
| 3. Kriegerdenkmal | 1.2 |
| 4. Tespe Hafen | 1.34 |
| 5. Kate | 1.27 |



Die Ergebnisse der Untersuchungen wurden in den Berichten des NLÖ^{1, 2, 3} veröffentlicht. Die Berichte sind über das Internet abrufbar (http://www.nloe.de/start_rad.htm). Die wesentlichen Ergebnisse sind hier erneut in den Tabellen 1 – 4 der Anlage zusammengestellt.

Im Folgenden soll untersucht werden, ob sich aus den Messwerten das Vorhandensein von angereichertem Uran in der Elbmarsch ableiten lässt. Dabei werden die Messwerte für jede der Proben graphisch unter Berücksichtigung des 2-Sigma- (2σ -) Bereiches des zählstatistischen Fehlers dargestellt und mit dem Erwartungswert von U-235 für Natururan bzw. für angereichertes Uran verglichen (Abb. 21 – 37). Hierbei wird angenommen, dass Natururan vorliegt, dessen U-238-Gehalt genau dem vom NLÖ angegebenen Messwert entspricht. Da jedoch der wahre Wert mit einer Wahrscheinlichkeit von 95 % in dem angegebenen 2σ -Bereich liegen kann, wäre korrekterweise der Erwartungswert für U-235 unter Berücksichtigung dieses Bereiches zu erweitern, d.h. hier zu verdoppeln. Der Übersicht wegen wird bei der Darstellung des Erwartungswertes für U-235 auf diese Tatsache verzichtet. Die Alphaspektrometrie erlaubt den zusätzlichen Vergleich mit dem Erwartungswert für U-234 (hier gelten sinngemäß die Ausführungen für U-235).

Bei der Darstellung der Messwerte und der Erwartungswerte ist zu berücksichtigen, dass sie nur mit Kenntnis des sogenannten zählstatistischen Fehlers interpretierbar sind. Hier wird der zählstatistisch bedingte 2σ -Messfehler (2-Sigma-Messfehler), die zweifache Standardabweichung, zu Grunde gelegt. Dieser 2σ -Bereich deckt denjenigen Bereich der Messwerte ab, in dem zählstatistisch gesehen 95 % der Messwerte liegen würden, wenn man die Messung oft genug wiederholte. (Hinweis: der in den Berichten des NLÖ aufgeführte 1σ -Messfehler, der den Bereich von 65 % der „erwarteten“ Messwerte abdeckt, ist mit dem Faktor 2 zu multiplizieren).

Hier sei erneut darauf hingewiesen, dass der Gesamtfehler der Bestimmung immer größer als der angegebene rein zählstatistische Fehler ist.

Bei der Diskussion über errechnete Anreicherungsgrade des Urans muss berücksichtigt werden, dass sich die von der ARGE PhAM und vom NLÖ ermittelten Urangehalte in



einem für Bodenproben vergleichsweise sehr niedrigen Bereich bewegen. Die Tabelle 9 gibt einige Beispiele für Böden und andere natürliche Medien (Gesteine, Lehm etc.).

Bestimmung des Anreicherungsgrades von Uran-235 in Umweltproben mit Hilfe der Gammaspektrometrie am Beispiel des Elbmarschprogrammes des NLÖ

Problemstellung

Es war zu überprüfen, ob die Messergebnisse auf das alleinige Vorliegen von Natururan schließen lassen, oder ob die Ergebnisse auf die Belastung der Elbmarsch mit angereichertem Uran hinweisen (Zusammenhang Nuklidverhältnis/Anreicherungsgrad s. Tab. 8).

Vorgehensweise

Zu Beginn der Sonderuntersuchung wurden zur Orientierung zuerst Messungen mit vergleichsweise kurzer Messzeit (etwa 70.000 s) an noch feuchten Bodenproben durchgeführt. Die Messungen wurden an getrockneten Proben wiederholt. Hier wurden zuerst die fünf Hauptproben, später auch die Nebenproben (obere Bodenschicht und Referenzproben) untersucht. Da die ersten Untersuchungen weitgehend nebeneinander durchgeführt wurden, kamen sechs verschiedene Gammadetektoren gleichzeitig zum Einsatz.

Anschließende Nachmessungen der zerkleinerten und homogenisierten Hauptproben wurden dann teilweise mit Messzeiten bis 200.000 s wiederholt. Hier wurde ein n-type-Reinstgermaniumdetektor zur zusätzlich sicheren Erfassung der Gammastrahler mit Energien < 100 keV verwendet.

Die längeren Messzeiten wurden vor allem zur Senkung des zählstatistischen Fehlers ausgewählt. Das Verfahren und besonders der Auswertmodus für die Uranisotope



wurde in den NLÖ-Berichten ^{1, 2, 3} ausführlich geschildert (mit Beschreibung zählstatistischer und möglicher systematischer Fehler und Hinweis auf die zur Auswertung nutzbaren drei Gammalinien der U-238-Töchter).

Grundsätzlich können mit dem Verfahren der Gammaspektrometrie nur Uran-238 (über die kurzlebigen Töchter Th-234 und Pa-234m) und Uran-235 bestimmt werden. Zur Bestimmung von Uran-234 ist das Verfahren nicht anwendbar.

Im Folgenden sollen für alle fünf Hauptproben die nachgewiesenen spezifischen U-235-Aktivitäten der Proben mit den Erwartungswerten für Natururan verglichen werden. Dabei gilt die Voraussetzung, dass im Natururan das Aktivitätsverhältnis von U-235 zu U-238 0,0454:1 beträgt, d.h. der U-235-Aktivitätsanteil beträgt 4,54 % des U-238-Aktivitätsanteils.

Bei der Darstellung der Messwerte und der Erwartungswerte wird der zählstatistisch bedingte 2σ -Messfehler zu Grunde gelegt (Abb. 21 – 25).

In den Abbildungen werden die Messwerte der spezifischen Aktivitäten sowie der 2σ -Messfehler der Uran-Isotope getrennt für die einzelnen Probenahmestellen und für die kurze und die lange Messzeit grafisch dargestellt. Der Erwartungswert für U-235 bei Vorliegen von Natururan wird für die vorgegebene U-238-Aktivität rechnerisch ermittelt. Dabei wird für das U-235 des Natururans der gleiche prozentuale zählstatistische 2σ -Messfehler wie in der Originalprobe vorausgesetzt.

Die Darstellung berücksichtigt noch nicht, dass das als Basis geltende U-238 des Natururans am oberen oder unteren Ende des 2σ -Fehlerbereiches liegen könnte. Dieses führt bei der Gammaspektrometrie mit erheblichen 2σ -Fehlern der U-238-Bestimmung zu weitaus größeren Spannweite des Erwartungswertes als bei der Alphaspektrometrie.

In den Grafiken sind auf der linken Abbildungshälfte die spezifischen Aktivitäten der Uran-Isotope U-235 und U-238 der untersuchten Bodenprobe in Bq/kg mit dem jeweiligen 2σ -Fehler aufgeführt. Rechts daneben befindet sich die entsprechende Darstellung einer fiktiven Natururan-Probe mit der spezifischen U-238-Aktivität der gemessenen



Probe als Basis. Die spezifische Aktivität von U-235 ist auf der Basis des Isotopenverhältnisses U-235/U-238 von Natururan errechnet.

Bei der Besprechung der Ergebnisse der Ringanalysen wurde schon darauf verwiesen, dass die Methode der Gammaskpektrometrie zur Ermittlung der Isotopenverhältnisse bei einer Belastung im Bereich der natürlichen Belastung nicht geeignet ist. Das wird auch an Hand der hier erneut vorgestellten Ergebnisse des NLÖ belegt.

Anschaulich wird die Problematik auch bei der Darstellung der Gammaskpektren, siehe Gesamtspektrum Abb.1 und Ausschnitt des niederenergetischen Bereiches, Abb. 2 der Bodenprobe der Messstelle 1.27 (Kate). Selbst bei der Bodenprobe mit dem höchsten Urangehalt des Untersuchungsprogrammes hebt sich der zur Bestimmung von U-235 am besten geeignete Peak bei 143,8 keV nur sehr schwach vom Untergrund ab. Dieses führt notgedrungen zu einem hohen zählstatistischen Fehler. Die Problematik der gammaskpektrometrischen Bestimmung von U-238 wurde vom NLÖ in der Stellungnahme² zu dem Bericht von H. Dieckmann und I. Schmitz-Feuerhake ausführlich dargestellt (u.a. Verwendung verschiedener Gammalinien bei der Spektrenauswertung).

Probenahmestelle (NLÖ-Bericht)		Vergleich der Probe mit Natururan
Fährhaus	1.1	Abb. 21
Tennisplatz	1.22	Abb. 22
Kriegerdenkmal	1.2	Abb. 23
Tespe Hafen	1.34	Abb. 24
Kate	1.27	Abb. 25

Bewertung

Die ermittelten spezifischen Aktivitäten der Uranisotope unterschieden sich bei den verschiedenen Messungen nur in der Art, wie es unter Kenntnis des zählstatistischen Fehlers zu erwarten war.



Die Fehlerbereiche (2σ -Messfehler) der spezifischen Aktivitäten von U-235 der gemessenen Proben überschneiden sich bei allen Messungen weitgehend mit den Erwartungswerten für Natururan. Diese Übereinstimmung spricht eindeutig für das ausschließliche Vorhandensein von Natururan. In keinem Fall lässt sich angereichertes Uran nachweisen.

Die Gammaskpektrometrie ist aber bei spezifischen Uranaktivitäten im Bereich der Umweltradioaktivität grundsätzlich kein Verfahren, um Isotopenverhältnisse von U-235 zu U-238 zu ermitteln. Dieses wurde oben, bei der Diskussion der Ergebnisse der Ringanalysen, dargelegt.

Auch hier decken sich die Ansichten des NLÖ mit denen Aussagen des Ausschusses „Strahlenschutz bei Anlagen“ der Strahlenschutzkommission vom 29. Mai 2001. Dieser Ausschuss hatte auf der Basis aller vorliegenden Messergebnisse (ARGE PhAM, LUFA Kiel, GKSS und NLÖ) einstimmig festgestellt, dass für die Elbmarsch (und die Elbgeest) nicht der Nachweis einer Radioaktivitätserhöhung durch Kernbrennstoffpartikel erbracht wurde.

Bestimmung des Anreicherungsgrades von Uran-235 und Uran-234 in Umweltproben mit Hilfe der Alphaspektrometrie am Beispiel des Elbmarschprogrammes des NLÖ

Bewertung der Messergebnisse

Vergleich der Messwerte mit Natururan und angereichertem Uran

Problemstellung

Es war zu überprüfen, ob die Messergebnisse auf das alleinige Vorliegen von Natururan schließen lassen, oder ob die Ergebnisse auf die Belastung der Elbmarsch mit angereichertem Uran hinweisen (Zusammenhang Nuklidverhältnis/Anreicherungsgrad s. Tab. 8).



Vorgehensweise

Zu Beginn der Sonderuntersuchung und zur Orientierung wurden zuerst Messungen mit vergleichsweise kurzer Messzeit (72.000 s) und anschließend Nachmessungen der selben Präparate mit langer Messzeit (500.000 s) durchgeführt.

Die längeren Messzeiten wurden vor allem zur Senkung des zählstatistischen Fehlers ausgewählt. Gleichmaßen konnte bei der Nachmessung der systematische Fehler reduziert werden.

Die Tabelle der Messergebnisse der Langzeitmessung (500.000 s) wird hier erneut wiedergegeben (Tab. 3 und 4). In Ergänzung zu unserem Bericht vom 28.05.01, in dem die Ergebnisse der alphaspektrometrischen Bestimmung für U-238 teilweise gerundet angegeben wurden, erfolgt hier die genauere Angabe der Ergebnisse auch für U-238.

Im Folgenden sollen für alle fünf Hauptproben die nachgewiesenen spezifischen U-234- und U-235-Aktivitäten der Proben mit den Erwartungswerten für Natururan verglichen werden. Dabei gilt die Voraussetzung, dass im Natururan das Aktivitätsverhältnis von U-234 zu U-238 1:1 und das Aktivitätsverhältnis von U-235 zu U-238 0,0454:1 beträgt.

In den Abbildungen (Abb. 26 – 37) werden die Messwerte der spezifischen Aktivitäten sowie die jeweiligen 2σ -Messfehler der Uran-Isotope getrennt für die einzelnen Probenahmestellen und für die kurze und die lange Messzeiten grafisch dargestellt. Der Erwartungswert für U-235 bei Vorliegen von Natururan wird für die vorgegebene U-238-Aktivität rechnerisch ermittelt. Dabei wird für das U-235 des Natururans der gleiche prozentuale zählstatistische Messfehler 2σ wie bei der Originalprobe vorausgesetzt.

Die Darstellung berücksichtigt noch nicht, dass das als Basis geltende U-238 des Natururans am oberen oder unteren Ende des 2σ -Fehlerbereiches liegen könnte. Damit würde sich die Spannweite des Erwartungswertes noch deutlich erhöhen.



In den Abbildungen 21 – 37 -sind auf der linken Seite die spezifischen Aktivitäten der Uran-Isotope U-234, U-235 und U-238 der untersuchten Bodenprobe in Bq/kg mit dem jeweiligen 2σ -Fehler aufgeführt. Rechts daneben befindet sich die entsprechende Darstellung einer fiktiven Natururan-Probe mit der spezifischen U-238-Aktivität der gemessenen Probe als Basis. Die spezifischen Aktivitäten von U-234 und U-235 sind auf der Basis der Isotopenverhältnisse des Natururans errechnet.

An zwei Beispielen (Abb. 28 und 31) werden zusätzlich die Messwerte von U-234, U-235 und U-238 den Erwartungswerten für ein auf 1,0 Gewichtsprozent U-235 angereichertes Uran gegenübergestellt.

Eine allgemeine Diskussion der Eignung der Alphaspektrometrie zur Ermittlung der Isotopenverhältnisse bei einer spezifischen Uranaktivität im Bereich der natürlichen Belastung wird unter dem Punkt „Ringanalysen“ auf den Seiten 6 – 9 geführt.

Anschaulich wird die Problematik auch bei der Darstellung der Alphaspektren (siehe Abb. 3) der Bodenprobe der Messstelle 1.27 (Kate). Der zur Auswertung von U-235 benutzte Spektrenbereich hebt sich nicht vom Untergrund ab. U-234 und U-238 sind hingegen gut bestimmbar. Das sich aus der Auswertung der Alphaspektren ergebende Nuklidverhältnis U-235/U-238 ist also hier sehr fraglich.

Probenahmestellen (NLÖ-Bericht)		Vergleich Probe mit Natururan		Vergleich mit 1 Gew. % angereichertem Uran
Messzeit		72 000 s	500 000 s	500 000 s
Fährhaus	1.1	Abb. 26	Abb. 27	Abb. 28
Tennisplatz	1.22	Abb. 29	Abb. 30	Abb. 31
Kriegerdenkmal	1.2	Abb. 32	Abb. 33	
Tespe Hafen	1.34	Abb. 34	Abb. 35	
Kate	1.27	Abb. 36	Abb. 37	



Bewertung

Die ermittelten spezifischen Aktivitäten der Uranisotope unterschieden sich für die Kurzzeit- und die Langzeitmessungen nur in der Art, wie es unter Kenntnis des zählstatistischen Fehlers zu erwarten war.

Die Fehlerbereiche (2σ -Messfehler) der spezifischen Aktivitäten der Uran-Isotope U-234 und U-235 der gemessenen Proben überschneiden sich bei allen Messungen weitgehend mit den Erwartungswerten für Natururan. Diese Übereinstimmung spricht eindeutig für das alleinige Vorhandensein von Natururan. In keinem Fall lässt sich angereichertes Uran nachweisen.

Uranisotope in Proben der ARGE PhAM, Bewertung der Messergebnisse

Aus dem Bereich der Elbmarsch legte die Arge PhAM in ihrem Bericht ELB 2 nur die gammaspektrometrische Untersuchung einer einzigen Probenahmestelle (1.1 Fährhaus) vor (Tab. 5a). Von dieser Stelle wurden auch alphaspektrometrische Untersuchungen vorgelegt. Im Bericht ELB 3 wurden neue Messwerte dieser einen Stelle und von weiteren acht Stellen aus der Elbmarsch vorgelegt (Tab. 5). Hierbei decken sich insgesamt vier der Probenahmestellen mit dem Untersuchungsprogramm des NLÖ.

Während im vorangegangenen Bericht der ARGE PhAM gänzlich auf Fehlerangaben verzichtet wurde, begnügt sich der Bericht ELB 3 mit einigen allgemeinen Fehlerangaben. Die zur Beurteilung der Messwerte erforderlichen Fehlerangaben zu den Einzelwerten fehlt, außerdem fehlt die Angabe über die Art des angegebenen Fehlers. Es bleibt unklar, ob der zählstatistische 1-Sigma-Messfehler, der 2-Sigma-Messfehler oder der Gesamtfehler gemeint ist.



Alle Messwerte für Uranisotope und Thorium liegen in einem für den Boden der Elbmarsch erwarteten niedrigen Bereich. Die Arge PhAM verzichtet auf die Angabe der für jeden Boden erwarteten weiteren Radionuklide der Thorium- und Uranzerfallsreihen, die sicherlich einen Gleichgewichtszustand mit den Ausgangsnukliden der Zerfallsreihen belegt hätte. Eine vollständige Angabe hätte diese Radionuklide als „Hauptaktivitätsträger“ (vergl. Bericht ELB 2 der ARGE PhAM) herausgestellt.

Vom NLÖ wurde ausführlich dargelegt, dass die Methode der Gammaskpektrometrie zur Ermittlung des Nuklidverhältnisses von U-235/U-238 bzw. eines Anreicherungsgrades von Uran in Umweltproben ungeeignet ist. Eine Diskussion der Messwerte der ARGE PhAM erübrigt sich deshalb.

Hier sei darauf hingewiesen, dass auch die ARGE PhAM bei der Nachuntersuchung einer Probenahmestelle, der Stelle Fährhaus, 1.1, sehr unterschiedliche Messwerte für U-235 und U-238 erhält (Tabelle 5a der Anlage).

Uranisotope und weitere Radionuklide in einer Untersuchung des Niedersächsischen Landesamtes für Immissionsschutz (NLIS) im Jahr 1991

Bewertung der Messergebnisse

Die Untersuchungen des NLIS wurden als Sonderuntersuchung für die Leukämiekommission durchgeführt. Die seinerzeit in der Kommission geführte ausführliche Diskussion ist hier im Einzelnen nicht bekannt.

In der Zusammenstellung der ARGE PhAM sind die Ergebnisse dieser Untersuchung nicht vollständig wiedergegeben, deshalb werden sie in der Tabelle 6 noch einmal aufgeführt.



Grundsätzlich wurden in der Ergebnisliste des NLIS entsprechend der Vorgehensweise der Richtlinie zur Emissions- und Immissionsüberwachung kerntechnischer Anlagen nur Radionuklide aufgeführt, wenn die Ergebnisse oberhalb der Nachweisgrenze lagen. Da der Gehalt von U-235 in allen Fällen unterhalb der Nachweisgrenze lag, ist die Vorgehensweise korrekt.

Für Mn-54 und Ce-141 werden für eine einzige Probenahmestelle Messwerte im Bereich der üblicherweise erreichbaren Nachweisgrenze angegeben. Nach allen Erfahrungen mit gammaspektrometrischen Untersuchungen von Bodenproben handelt es sich hier um eine nicht ausreichende Berücksichtigung des Einflusses natürlicher Gammastrahler.

Die teilweise erhöhten Messwerte für viele der natürlichen Gammastrahler fallen auf. Dabei treten Abweichungen von den nach Kenntnis der Zerfallsreihen erwarteten Werten auf. Diese Abweichungen deuten darauf hin, dass Rückrechnungen unter Berücksichtigung des Mutter-/Tochterverhältnisses zu Überschätzungen der Ergebnisse führen konnten. So müssten Ra-226, Bi-214 und Pb-214 die gleichen Werte ergeben, denn bei der Messung konnte von einem radioaktiven Gleichgewicht ausgegangen werden. Hingegen muss das Verhältnis von Pb-212/Tl-208 bzw. von Pb-212/Bi-212 etwa 3/1 bzw. 3/2 sein, da die Einstellung des radioaktiven Gleichgewichtes vorausgesetzt werden kann.

Nähere Angaben zur Bestimmung von Th-232, Pa-231 und Ra-223 fehlen in dem Bericht des NLIS. Alle drei Nuklide sind sehr schwierig gammaspektrometrisch nachzuweisen. Da auch auf die Angabe eines zählstatistischen Messfehlers verzichtet wurde, können diese drei Einzelwerte von hier aus nicht beurteilt werden.



Bewertung der messtechnischen Bestimmung Americium-243 und Neptunium-237

Nach Ansicht des NLÖ reicht die von der ARGE PhAM angegebene Messmethode „Gammaspektrometrie, feuchtes Material, 250 – 1000 g“ nicht zur Bestimmung der Radioaktivität von Bodenproben aus, was sich bei der Bestimmung niederenergetischer Gammastrahler wie Neptunium-237 (Np-237) und Americium-243 (Am-243), aber auch von U-235 und U-238, besonders bemerkbar macht (vergl. auch die standardisierte Messmethode „Gammaspektrometrische Bestimmungen ausgewählter natürlicher Radionuklide“, Messanleitungen für die Überwachung der Umwelt, Herausgeber Bundesminister für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit).

Der Nachweis von Np-237 und Am-243 wird stark durch verschiedene natürlich vorkommende Radionuklide überlagert. Überdies macht eine Messung im feuchten Zustand und mit unterschiedlichen Probemengen eine sachgerechte Kalibrierung nahezu unmöglich. Die Angaben über die Belastung des Bodens mit Neptunium-237 und Americium-243 sind also nicht nachvollziehbar.

In der Anlage, Abbildungen 1 und 2, wird ein typisches Gammaspektrum der NLÖ-Untersuchung¹ sowohl als Gesamtspektrum und als auch als Ausschnitt des niederenergetischen Energiebereiches wiedergegeben. Aus der ebenfalls beigelegten Nuklidliste der Bodenuntersuchungen des Elbmarschprogrammes (Tab. 10) ist die Vielzahl der untersuchten gammastrahlender Nuklide im betreffenden Energiebereich zu erkennen. In der Abbildung des niederenergetischen Teils des Gammaspektrums sind im Bereich der Linien von Am-243 und Np-237 nur die Beiträge der natürlichen Radionuklide zu erkennen. Diese Deutung lässt sich unschwer auf die Angaben der ARGE PhAM übertragen. Sie erklärt auch die angegebene Korrelation zwischen beiden Messwerten im Bericht ELB 3. Wenn es sich in Wirklichkeit um natürliche Radionuklide der natürlichen Zerfallsreihen handelt, sollten sie auch im Rahmen des Messfehlers korrelieren.

In allen vom NLÖ untersuchten Bodenproben lagen die spezifischen Aktivitäten von Np-237 und Am-243 unterhalb der Nachweisgrenze, deutlich unter 1 Bq/kg.



Stellungnahme zu der Kritik am Vorgehen des NLÖ

Probenahmetiefe beim NLÖ-Sonderprogramm

Vom NLÖ wurde schon mehrfach die Kritik der ARGE PhAM an der Tiefe der Probenahme der vom NLÖ durchgeführten Bodenuntersuchung zurückgewiesen. Während der gesamten Zeit der Probenahme begleitete der Geschäftsführer der ARGE PhAM, Herr Dipl.-Ing. H. W. Gabriel, die Probenahme. Jede Probenahmestelle und auch jede Schichttiefe der Probeentnahme wurde auf Wunsch des ebenfalls anwesenden Abteilungsleiters des Niedersächsischen Ministeriums für Frauen, Arbeit und Soziales, Herrn Dr. T. Sporn, sehr genau mit Herrn Gabriel abgestimmt. Ein Teil jeder Probe, etwa 200 ml, wurden Herrn Gabriel für eigene Untersuchung noch während der Probenahme überlassen.

Für die vom NLÖ zusätzlich entnommene obere, humushaltige Bodenschicht werden nach Erfahrung der Umgebungsüberwachung höhere Belastungen durch Radionuklide des Fallouts erwartet. Über die gammaspektrometrische Untersuchung dieser oberen Schicht wurde im Bericht des NLÖ vom 12.02.2001 berichtet. Die Untersuchung dieser oberen Schicht ergab Messwerte, die deutlich unter denen der als Referenz herangezogenen Bodenproben aus dem etwa 80 km oberhalb gelegenen Vordeichgebiet der Elbe (Strom-km 494) lagen.

Unter Berücksichtigung des zählstatistischen Fehlers und der oben ausführlich geführten Diskussion der Aussagekraft der Methode der Gammaspektrometrie sind Aussagen über den Nuklidvektor hier wie bei den Messungen anderer Institutionen nicht belastbar.



Nachmessungen Gamma- und Alphaspektrometrie

In den vorangegangenen Stellungnahmen des NLÖ zu Kritiken am Bericht zur Sonderuntersuchung „Elbmarsch“ wurde ausführlich auf die Gründe für die im Februar/März 2001 durchgeführten Nachuntersuchungen der Proben des NLÖ mit längeren Messzeiten gegeben. Längere Messzeiten wurden u.a. auch wegen Kritiken an den Untersuchungsverfahren des NLÖ eingesetzt.

Das NLÖ hat im Gegensatz zur ARGE PhAM die Mess- und Auswerteverfahren genau dokumentiert. Dazu gehörte auch zwingend die Angabe des zählstatistischen Fehlers für jede Messung. Die Ergebnisse aller Nachmessungen liegen in dem Bereich, der nach Kenntnis des zählstatistischen Fehlers zu erwarten war.

Es sei vermerkt, dass eigene Nachmessungen der ARGE PhAM an der Probenahmestelle 1.1 eine wesentlich größere Abweichung der Messwerte der Uranisotope aufweisen. In der Tabelle 5a sind die Ergebnisse der gammaspektrometrischen Untersuchung gegenübergestellt (Berichte ELB 2 und ELB 3).

Messtechnischer Nachweis von Kernbrennstoff

Der Bericht ELB 3 liefert keinen Nachweis einer Aktivitätserhöhung des Bodens der Elbmarsch durch Kernbrennstoff. Das Vorhandensein von Kernbrennstoff hätte sich messtechnisch bemerkbar gemacht, da auch Bruchteile von einem Mikrogramm von als Kernbrennstoff verwendeten Transuranen analytisch hätten nachgewiesen werden können (spezifische Aktivität vergl. Tabelle 7).

Vor dem Hintergrund der Behauptung der Arge PhAM, dass in der Elbmarsch eine massive Kontamination durch Kernbrennstoff vorläge, sind die Untersuchungen des NLÖ vom Anfang dieses Jahres zu sehen. Die Bestimmung von Nuklidverhältnissen von Pu-238/Pu-239 in einem Bereich deutlich unterhalb von 1 Bq/kg Boden spielte zum Nachweis einer massiven Kontamination keine Rolle. Auch hier decken sich die Ansichten des NLÖ mit denen Aussagen des Ausschusses „Strahlenschutz bei Anlagen“ der Strahlenschutzkommission vom 29. Mai 2001, dass durch die vorliegenden Messergebnisse nicht der Nachweis einer Radioaktivitätserhöhung durch Kernbrennstoffpartikel erbracht wurde.



Tabelle 1

Sonderprogramm Tespe des NLÖ
Gammaskpektrometrische Untersuchung mit n-type-Halbleiterdetektor
Tespe 27.01.01, Boden und Steine im Abtropfbereich von Reetdächern
Angaben in Bq/kg Trockenmasse

Stelle		Co-60	Cs-137	1 σ %	Am-241	Am-243	K-40	1 σ %	Tl-208	Pb-210	1 σ %	Pb-214	1 σ %	Bi-212	Bi-214	1 σ %	Ra-224	Ac-227	1 σ %	Ac-228	U-235	1 σ %	U-238	1 σ %
Faehrhaus 1.1	Boden, 10 –20 cm	<1.5E-01	5.1E+00	1.7	<4.3E-01	<2.0E-01	2.9E+02	1.6	4.6E+00	2.5E+01	5.0	1.6E+01	2.5	1.5E+01	1.4E+01	1.7	1.3E+01	1.1E+00	12	1.4E+01	1.1E+00	19	1.8E+01	21
Tennisplatz 1.22	Boden, 10 –20 cm	<1.9E-01	5.3E+00	1.8	<4.6E-01	<2.1E-01	2.7E+02	1.7	4.4E+00	2.5E+01	5.6	1.2E+01	2,6	1.3E+01	1.1E+01	2,0	1.2E+01	6.3E-01	21	1.3E+01	<1.0E+00	-	1.4E+01	21
Kriegerdenkmal 1.2	Boden, 10 –20 cm	<1.8E-01	2.0E+01	1.2	<4.2E-01	<1.9E-01	2.6E+02	1.6	4.1E+00	3.9E+01	3.8	1.2E+01	2,6	1.4E+01	1.0E+01	1,9	9.1E+00	<7.5E-01	-	1.2E+01	7.3E-01	29	1.3E+01	21
Tespe Hafen 1.34	Boden, 10 –20 cm	<1.0E-01	2.1E+01	1.0	<2.5E-01	<1.5E-01	2.3E+02	1.6	3.0E+00	3.3E+01	3.1	8.7E+00	2,5	9.9E+00	7.8E+00	1,7	8.2E+00	9.5E-01	13	8.9E+00	5.6E-01	22	1.0E+01	21
Kate 1.27	Boden, 10 –20 cm	<1.3E-01	5.7E+00	1.3	<3.3E-01	<1.6E-01	3.7E+02	1.5	6.6E+00	3.3E+01	3.4	2.2E+01	2,4	2.2E+01	2.0E+01	1,4	6.5E+00	1.6E+00	8.7	1.9E+01	1.3E+00	12	2.7E+01	20
Kate 1.27	Steine	<3.9E-01	2.8E-01	28.0	<1.0E+00	<4.9E-01	1.1E+03	1,5	3.0E+01	5.6E+01	4.9	3.6E+01	2,4	1.0E+02	3.2E+01	1.6	9.3E+01	3.5E+00	12	8.9E+01	<2.3E+00	-	3.5E+01	21
Tennisplatz 1.25	Steine	<3.3E-01	3.2E+00	2.2	<8.0E-01	<3.8E-01	1.2E+03	1,5	1.7E+01	6.4E+01	3.9	5.4E+01	2,4	5.4E+01	4.8E+01	1,4	4.9E+01	4.1E+00	10	4.8E+01	2.6E+00	14	5.1E+01	20



Tabelle 2

Sonderprogramm Tespe des NLÖ

Gammaspektrometrische Untersuchung von Uran-235 / 238 mit n-type-Halbleiterdetektor

Tespe 27.01.01, Boden und Steine im Abtropfbereich von Reetdächern

Angaben in Bq/kg Trockenmasse

Stelle		U-238 (Th-234)	1 σ %	Pb-214	1 σ %	Bi-214	1 σ %	Pb-210	1 σ %	U-235	1 σ %	Ac-227	1 σ %
Faehrhaus 1.1	Boden, 10 –20 cm	18	21	16	2,5	14	1,7	25	5,0	1,1	19	1,1	12
Tennisplatz 1.22	Boden, 10 –20 cm	14	21	12	2,6	11	2,0	25	5,6	<1,0	-	0,63	21
Kriegerdenkmal 1.2	Boden, 10 –20 cm	13	21	12	2,6	10	1,9	39	3,8	0,73	29	<0,75	
Tespe Hafen 1.34	Boden, 10 –20 cm	10	21	8,7	2,5	7,8	1,7	331	3,1	0,56	22	0,95	13
Kate 1.27	Boden, 10 –20 cm	27	20	22	2,4	20	1,4	33	3,4	1,3	12	1,6	8,7
Kate 1.27	Steine	35	21	36	2,4	32	1,6	56	4,9	<2,3	-	3,5	12
Tennisplatz 1.25	Steine	51	20	54	2,4	48	1,4	64	3,9	2,6	14	4,1	10



Tabelle 3

Sonderprogramm Tespe des NLÖ Alphaspektrometrie													
Datum der Probenahme: 27.01.2001 Boden: Tiefe 10 – 20 cm; Getrocknet, gesiebt, < 2 mm homogenisiert						Spezifische Aktivität von Alphastrahlern bezogen auf Trockenmasse (TM), Messzeit: 500.000 s, Probenmenge: 2,5 g							
Interne Probe- num- mer	Ort	Stelle	U-234 Bq/kg TM	Mess- fehler 1 Sigma in %	U-235 Bq/kg TM	Mess- fehler 1 Sigma in %	U-238 Bq/kg TM	Mess- fehler 1 Sigma in %	Am-241 Bq/kg TM	Am-243 Bq/kg TM	Cm-242 Bq/kg TM	Cm-244 Bq/kg TM	Feuchtmasse (FM) pro l kg/l
01#0098	Tespe	Fährhaus 1.1	8,7	1,8	0,52	7,6	7,6	1,9	< 0,08	< 0,17	< 0,09	< 0,08	1,459
01#0099	Tespe	Tennisplatz 1.22	6,8	2	0,52	7,8	6,4	2,1	< 0,18	< 0,28	< 0,21	< 0,18	1,364
01#0100	Tespe	Kriegerdenkmal 1.2	5,9	3,2	0,28	16	5,6	3,3	< 0,15	< 0,46	< 0,18	< 0,15	1,270
01#0101	Tespe	Tespe Hafen 1.34	4,5	5,6	0,39	20	4,5	5,6	< 0,17	< 0,32	< 0,21	< 0,17	1,184
01#0102	Tespe	Kate 1.27	12	2,2	0,61	10	12	2,2	< 0,22	< 1,4	< 0,27	< 0,22	1,374



Tabelle 4

Sonderprogramm Tespe des NLÖ Alphaspektrometrische Untersuchung (Uranisotope) Probenahme Tespe 27.01.01, Messzeit 500.000 s, Probenmenge 2,5 g Probenart: Boden (Probenahmetiefe 10 – 20 cm), Angaben in Bq/kg Trockenmasse							
Interne Nr.	Stelle	U-234 Bq/kg TM	Messfehler 1 Sigma in %	U-235 Bq/kg TM	Messfehler 1 Sigma in %	U-238 Bq/kg TM	Messfehler 1 Sigma in %
01#0098	Fährhaus 1.1	8,7	1,8	0,52	7,6	7,6	1,9
01#0099	Tennisplatz 1.22	6,8	2,0	0,52	7,8	6,4	2,1
01#0100	Kriegerdenkmal 1.2	5,9	3,2	0,28	16	5,6	3,3
01#0101	Tespe Hafen 1.34	4,5	5,6	0,39	20	4,5	5,6
01#0102	Kate 1.27	12	2,2	0,61	10	12	2,2

Tabella 5

Tabella 5

[illegible]



Ergebnisse der ARGE PhAM für den Bereich der Elbmarsch

Gammaspektrometrie, Bq/kg Feuchtmasse

Vergleich der Messwerte der Untersuchungsberichte ELB 3 und ELB 2

Nuklid	1.1	1.1
Th-232	11,4	24
U-235	0,24	6
U-238	1,6	19
Np-237	8,6	
Am-243	1,8	
Cs-137	12,2	



Tabelle 6

Untersuchung von Bodenproben auf Gammastrahler in Bq/kg T.M.							
NLIS-Untersuchungen, Probenahme vom 22.05.1991							
	Schwinde	Rönne	Tespe	Tespe	Tespe	Avendorf	Obermarschacht
	MP 1	MP 2	MP3	MP 4	MP 5	MP 6	MP 7
Be-7	1.18						
K-40	255	356	144	206	100	185	83.1
Mn-54	0.13						
Cs-134		3.19					0.91
Cs-137	4.23	28.6	2.52	5.38	2.51	1.81	7.98
Ce-141	0.16						
Tl-208	138	39.9					
Pb-210	46.7		162	103		116	63.1
Pb-212	91.2	122					
Pb-214	24.1	36.1	76	82.5	54.1	63.1	101
Bi-212	61.5	158					
Bi-214	13.1	85.5	30	30.9	21.6	28	55.2
Ra-223							1.11
Ra-226	10.8	32.7	27.3	17.1	152	12.7	23.9
Ra-228	13	23.3	13.2	9.23	9.7	7.48	14.4
Th-228		23.4		11.6	17.3		
Pa-231		69.8					
Th-232	13.9	24.8	224		9.17	9.03	15
U-234							
U-235							
U-238	16.4	2.68	24.2	12.8		9.21	

Ra-226, Bi-214 und Pb-214 müssten die gleichen Werte ergeben. Bi-214 und Pb-214 sind zwingend gleich.

Bi-214 und Pb-214 müssen, wenn noch kein rad. Gleichgewicht vorliegt, niedriger als Ra-226 sein.

Das Verhältnis von Pb-212/Tl-208 bzw. Pb-212/Bi-212 muss 3/1 bzw. 3/2 sein.

Pa-231 und Ra-223 sind gammaspektrometrisch nicht oder nur unzureichend bestimmbar.

Ce-141 und Mn-54 sicherlich Linien von natürlichen Radionukliden.

Th-232 wegen geringer Übergangswahrscheinlichkeit nur schwierig gammaspektrometrisch nachweisbar.

Spezifische Aktivität der trägerfreien, reinen Isotope einiger Urane und Transurane

Nuklid	Zerfallsart	Halbwertszeit in Jahren	spez. Aktivität Bq/μg	spez. Aktivität Bq/g
Uran-235	α,e,γ	7,04E+08	8,00E-02	8,00E+04
Uran-238	α,e,γ	4,47E+09	1,24E-02	1,24E+04
Plutonium-238	α,e,γ	87,75	6,33E+05	6,33E+11
Plutonium-239	α,e,γ	2,41E+04	2,29E+03	2,29E+09
Plutonium-240	α,e,γ	6,57E+03	8,39E+03	8,39E+09
Americium-241	α,e,γ	432,2	1,27E+05	1,27E+11
Americium-243	α,e,γ	7380	7,38E+03	7,38E+09
Curium-242	α,e,γ	163,2	3,35E+05	3,35E+11
Curium-244	α,e,γ	18,11	2,99E+06	2,99E+12





Aktivitäts-/Mengenverhältnisse in Natururan bzw. in angereichertem und abgereichertem Uran

Beziehung nach ASTM C 996-96 Standardspezifikation für Urananreicherung/-abreicherung über Hexafluorid bis 5 Gew-% U-235

1 g Uran enthält in g			Anreicherungsgrad Gew-% U-235	1 g an-/abgereichertes Uran enthält			Ges-Alpha-Akt. pro g an-/abger. Uran	Akt-% U-238	Akt-% U-235	Akt-% U-234	$\frac{A_{U-235}}{A_{U-238}}$	$\frac{A_{U-234}}{A_{U-238}}$	Bemerkungen
U-238	U-235	U-234		Bq U-238	Bq U-235	Bq U-234							
0,997	0,0025	2,50E-05	0,25%	1,24E+04	2,00E+02	5,78E+03	1,84E+04	67,5	1,09	31,4	0,016	0,47	abger. U
0,995	0,005	5,00E-05	0,5%	1,24E+04	4,00E+02	1,16E+04	2,43E+04	50,9	1,64	47,5	0,032	0,93	abger. U
0,993	0,007	5,34E-05	0,7%	1,24E+04	5,60E+02	1,24E+04	2,53E+04	48,9	2,22	48,9	0,045	1,00	Natur-U
0,990	0,01	1,00E-04	1%	1,23E+04	8,00E+02	2,31E+04	3,62E+04	34,0	2,21	63,8	0,065	1,88	anger. U
0,970	0,03	3,00E-04	3%	1,21E+04	2,40E+03	6,94E+04	8,38E+04	14,4	2,86	82,7	0,20	5,75	anger. U
0,950	0,05	5,00E-04	5%	1,18E+04	4,00E+03	1,16E+05	1,31E+05	8,99	3,04	88,0	0,34	9,79	anger. U

Tabelle 8



Tabelle 9

Literaturangaben zu typischen natürlichen Radionukliden in Boden und in Gesteinen/natürlichen Baustoffen

Literatur: „Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung, Jahresbericht 1998“ Herausgeber: Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit sowie „Umweltpolitik – Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung im Jahr 1999 Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit

Die Radioaktivität im Boden wird häufig durch den Gehalt an natürlichen Radionukliden im Ursprungsgestein bestimmt. In kieselsäurereichen Magmagessteinen ist die spezifische Aktivität primordialer Radionuklide gewöhnlich höher als in Sedimentgesteinen. Das radioaktive Gleichgewicht in den Böden kann durch verschiedene Prozesse, z.B. durch unterschiedliche Löslichkeiten der Radionuklide bei der Bodenbildung gestört werden.

Die Tabelle A zeigt typische Werte der spezifischen Aktivität für einige Bodenarten.

In Tabelle B sind Ergebnisse von Messungen der spezifischen Aktivität von Bodenproben aus den Bergbauregionen der neuen Bundesländer Messergebnissen aus dem norddeutschen Raum und den alten Bundesländern gegenübergestellt. Aufgrund des Urangehaltes in den Gesteinen und Böden findet man in den Bergbauregionen zwar eine erhöhte mittlere Konzentration an Ra-226, dennoch liegen die Einzelmessungen im Streubereich der Messergebnisse aus den alten Bundesländern.

Tabelle A Typische Werte für die spezifische Aktivität verschiedener Bodenarten in Bq/kg Trockensubstanz

Bodenart	Kalium-40	Thorium-232	Uran-238
Fahlerde	650	50	35
Schwarzerde	400	40	20
Bleicherde	150	10	7

Tabelle B Spezifische Aktivität von Radium-226 in Böden in Bq/kg Trockensubstanz

Gebiet	Bereich
Alte Bundesländer	10 – 200
Mecklenburg-Vorpommern	8 – 12
Brandenburg	9 – 15
Sachsen- Anhalt	17 – 64

Tabelle C Spezifische Aktivität natürlicher Radionuklide in Gesteinen/Baustoffen in Böden in Bq/kg Trockensubstanz

Gestein/Baustoffe natürlichen Ursprungs	Ra-226	Th-232	K-40
saure Magmageseine	30 – 500	17 – 310	380 – 4000
basische Gesteine	<10 – 36	<10 – 37	100 – 380
Naturgips, Anhydrit	2 – 70	2 – 100	7 – 200
Kalkstein, Marmor	4 – 41	2 – 20	<40 – 240
Kies,Sand	1 - 39	1 – 64	3 – 1200
Lehm, Ton	<16 – 90	18 – 200	300 – 2000
Bims, Tuff, Lava	<20 – 200	25 – 300	490 – 2000



Abbildung 1

Gammaspektrum des Bodens der Probenahmestelle 1.27 (Kate)

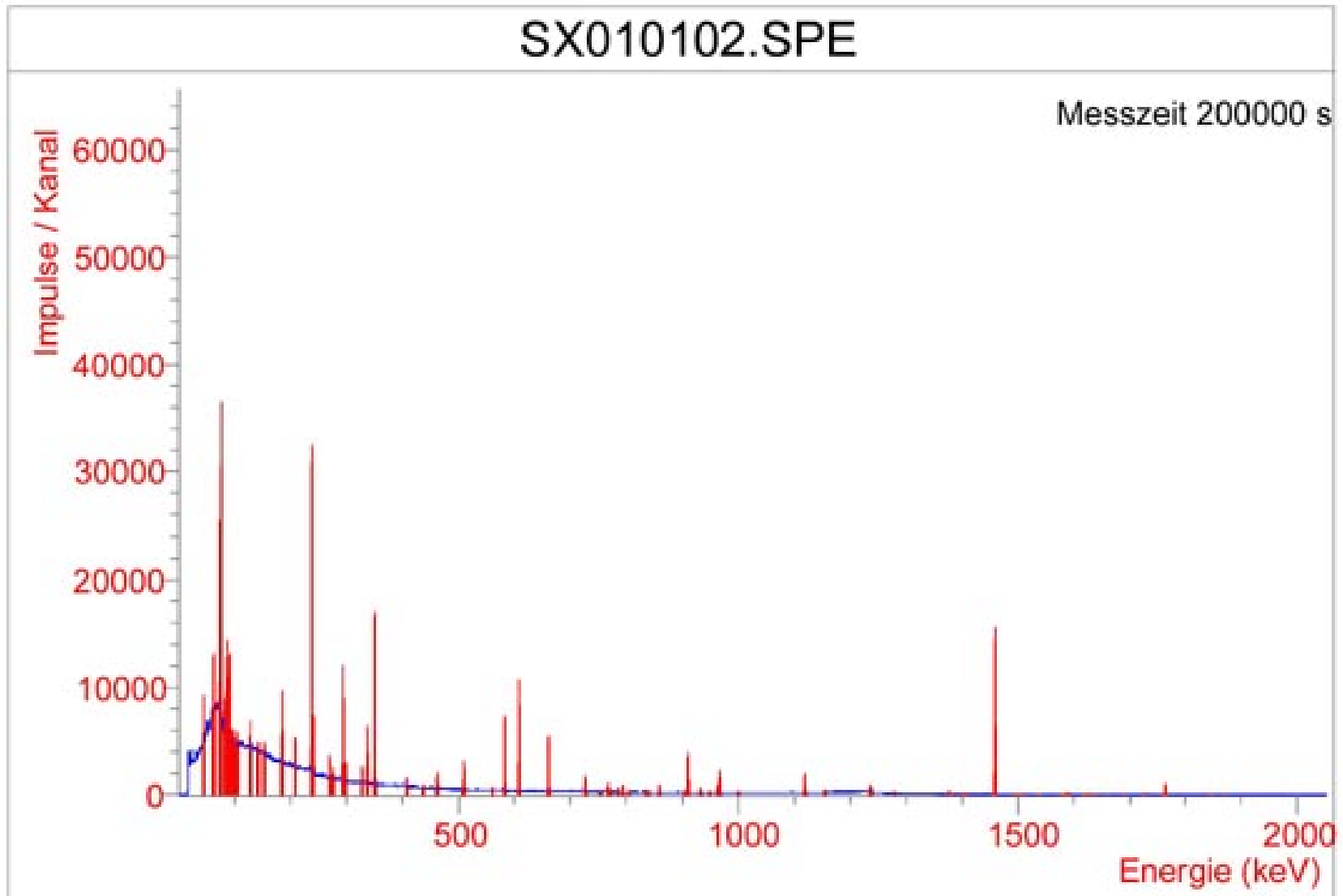
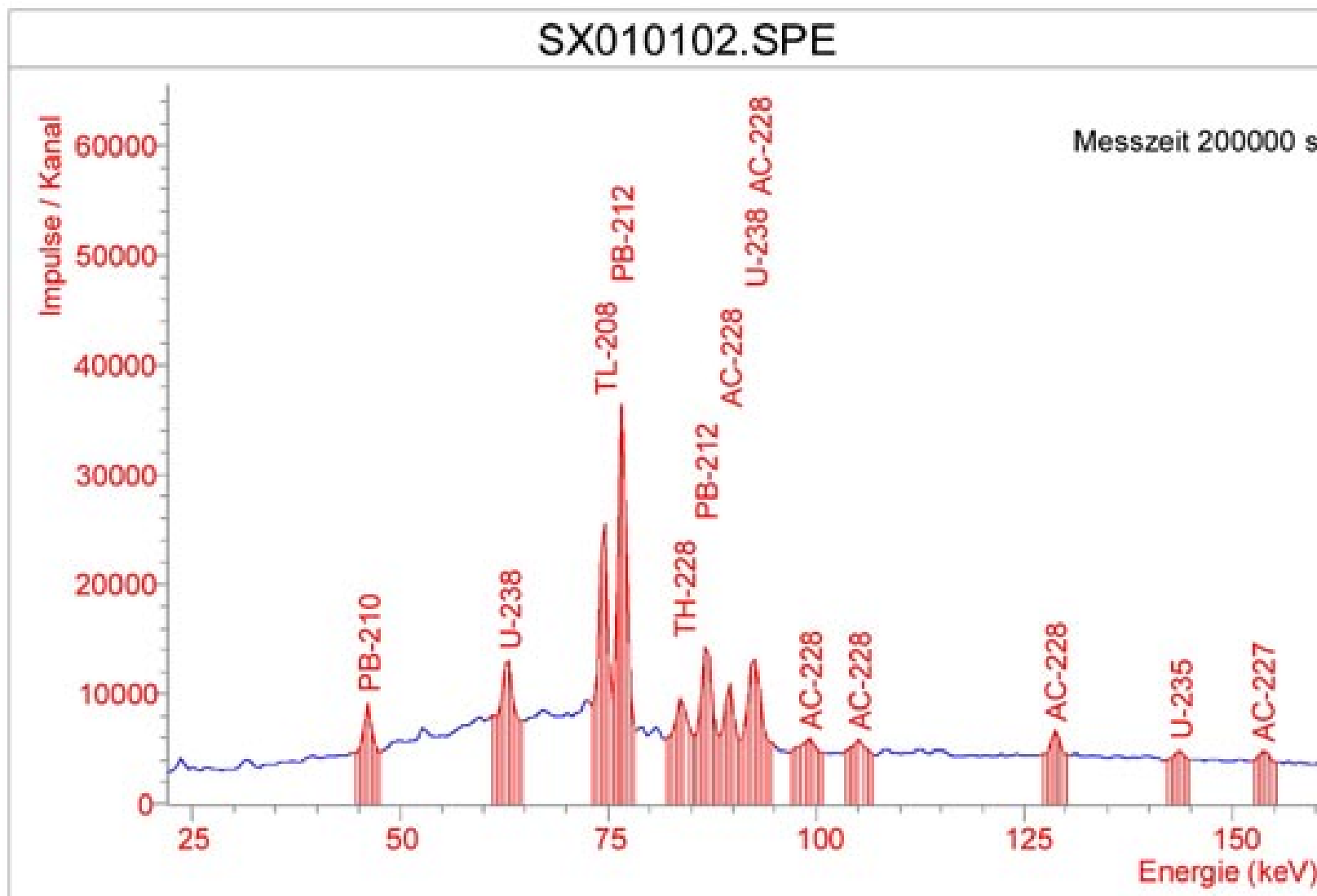


Abbildung 2

Gammaspektrum des Bodens der Probenahmestelle 1.27 (Kate)

Ausschnitt des niederenergetischen Spektrenbereichs





NLÖ – Nuklidtabelle Gammaspektrometrie Boden (Auszug 29 bis 200 keV)

Tabelle 10

Nr.	Energie [keV]	GAMMA [%]	Faktor	Fehler [%]	NWG	Isotop
1	29.370	15.000	1.00E+00	6.67	?i	NP-237
2	29.460	1.510	1.00E+00	5.96	?i	I-131
3	29.780	2.800	1.00E+00	7.14	?i	I-131
4	33.560	0.820	1.00E+00	6.10	?i	I-131
5	43.530	5.930	1.00E+00	3.04	?i	AM-243
6	46.540	4.060	1.00E+00	1.97	*	PB-210
7	59.000	0.190	1.00E+00	10.53	*	TH-232
8	59.540	35.900	1.00E+00	1.11	*	AM-241
9	61.460	1.290	1.00E+00	1.55	?i	NP-239
10	63.290	4.470	1.00E+00	20.13	*!	U-238
11	74.660	68.200	1.00E+00	2.05	*!	AM-243
12	74.810	6.200	1.00E+00	4.84	?i	PB-214
13	74.810	10.500	1.00E+00	3.81	?i	PB-212
14	74.900	3.500	1.00E+00	1.00	?i	TL-208
15	77.110	10.400	1.00E+00	0.38	?i	PB-214
16	77.110	17.700	1.00E+00	3.39	?i	PB-212
17	80.180	2.630	1.13E+00	1.90	?i	I-131
18	81.070	15.200	1.00E+00	2.63	?i	AC-227
19	83.790	25.200	1.00E+00	2.38	?i	AC-227
20	84.370	1.220	1.00E+00	1.64	*!	TH-228
21	86.480	12.400	1.00E+00	3.23	*!	NP-237
22	86.830	4.600	1.00E+00	4.35	?i	PB-214
23	87.200	6.270	1.00E+00	3.51	?i	PB-212
24	90.000	3.400	1.00E+00	0.00	?i	AC-228
25	92.280	1.590	1.00E+00	8.18	?i	NP-237
26	92.500	5.200	1.00E+00	5.86	?i	U-238
27	93.400	5.600	1.00E+00	0.00	?i	AC-228
28	95.860	2.580	1.00E+00	8.14	?i	NP-237
29	99.600	1.300	1.00E+00	38.26	?i	AC-228
30	105.000	1.600	1.00E+00	0.00	?i	AC-228
31	106.120	27.200	1.00E+00	1.47	*!	NP-239
32	108.200	1.020	1.00E+00	8.51	?i	NP-237
33	109.160	1.540	1.00E+00	3.25	?i	U-235
34	129.100	2.810	1.00E+00	29.70	?i	AC-228
35	131.610	0.131	1.00E+00	14.50	?i	TH-228
36	133.540	11.000	1.00E+00	0.00	*	CE-144
37	143.760	10.960	1.00E+00	0.73	*!	U-235
38	145.440	48.500	1.00E+00	0.41	*	CE-141
39	154.200	0.950	1.00E+00	29.41	?i	AC-228
40	154.210	5.620	1.00E+00	2.85	?i	AC-227
41	158.960	84.000	1.00E+00	0.60	*	TE-123M
42	163.330	5.080	1.00E+00	0.79	?i	U-235
43	166.410	0.104	1.00E+00	1.45	?i	TH-228
44	176.330	6.900	9.94E-01	1.45	?i	SB-125
45	177.210	0.270	1.00E+00	1.13	?i	I-131
46	185.700	57.200	1.00E+00	0.87	?i	U-235
47	186.000	2.60E-03	1.00E+00	15.38	?i	U-238



Abbildung 3

Alphaspektrum (Uranisotope) des Bodens der Probenahmestelle 1.27 (Kate)

Messzeit 500.000 s, Tracer U-232

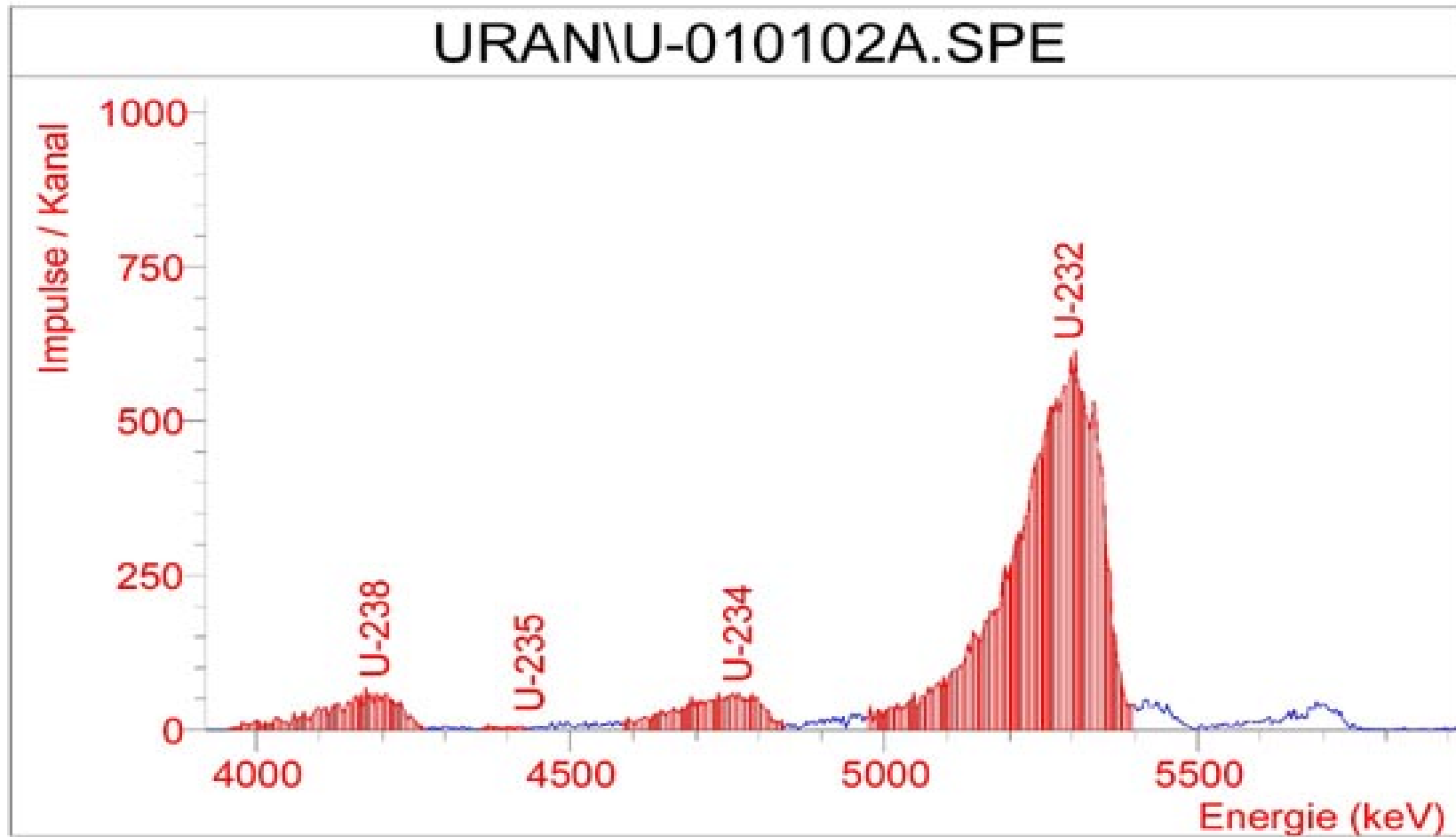


Abbildung 4

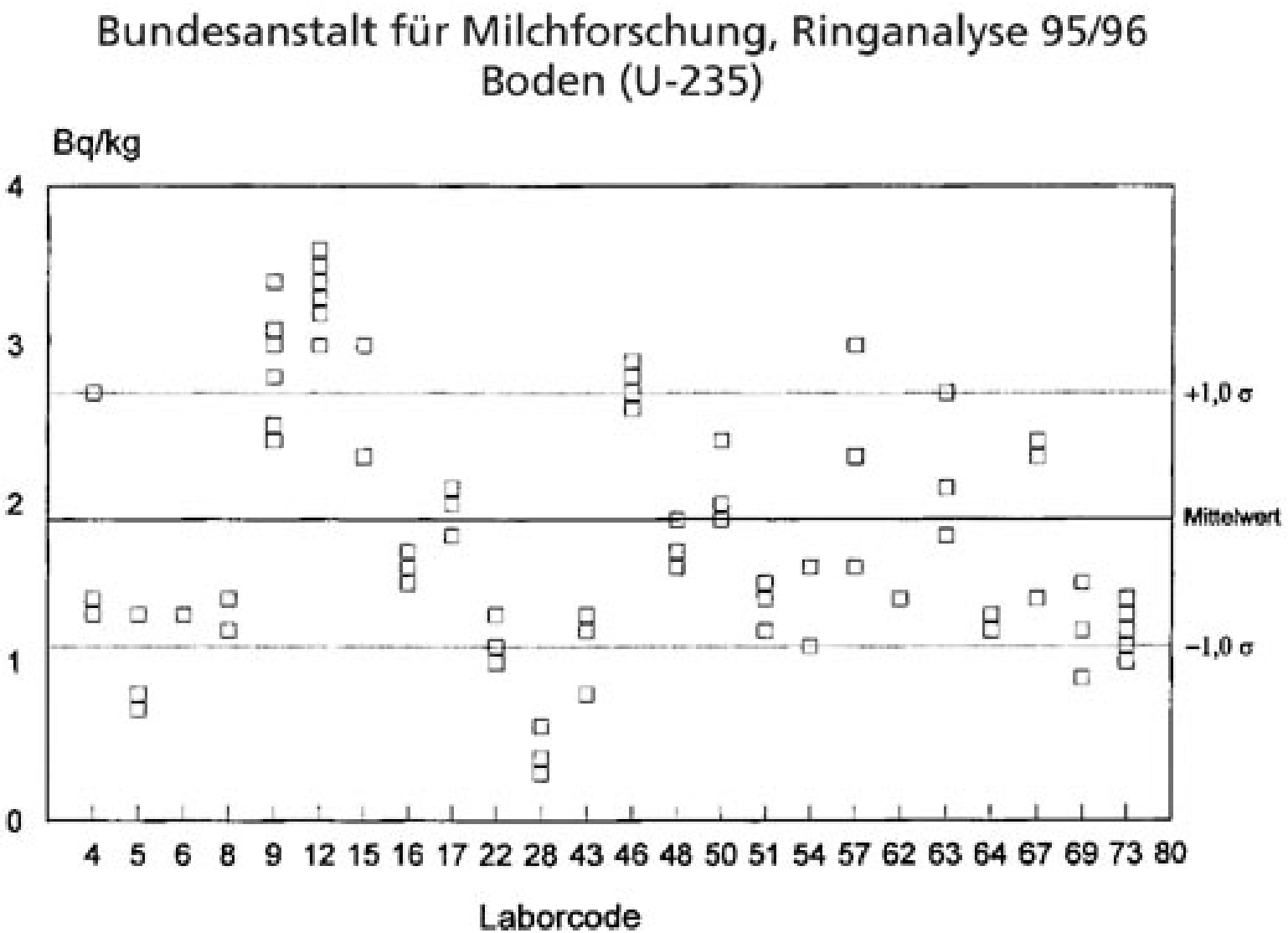


Abbildung 5

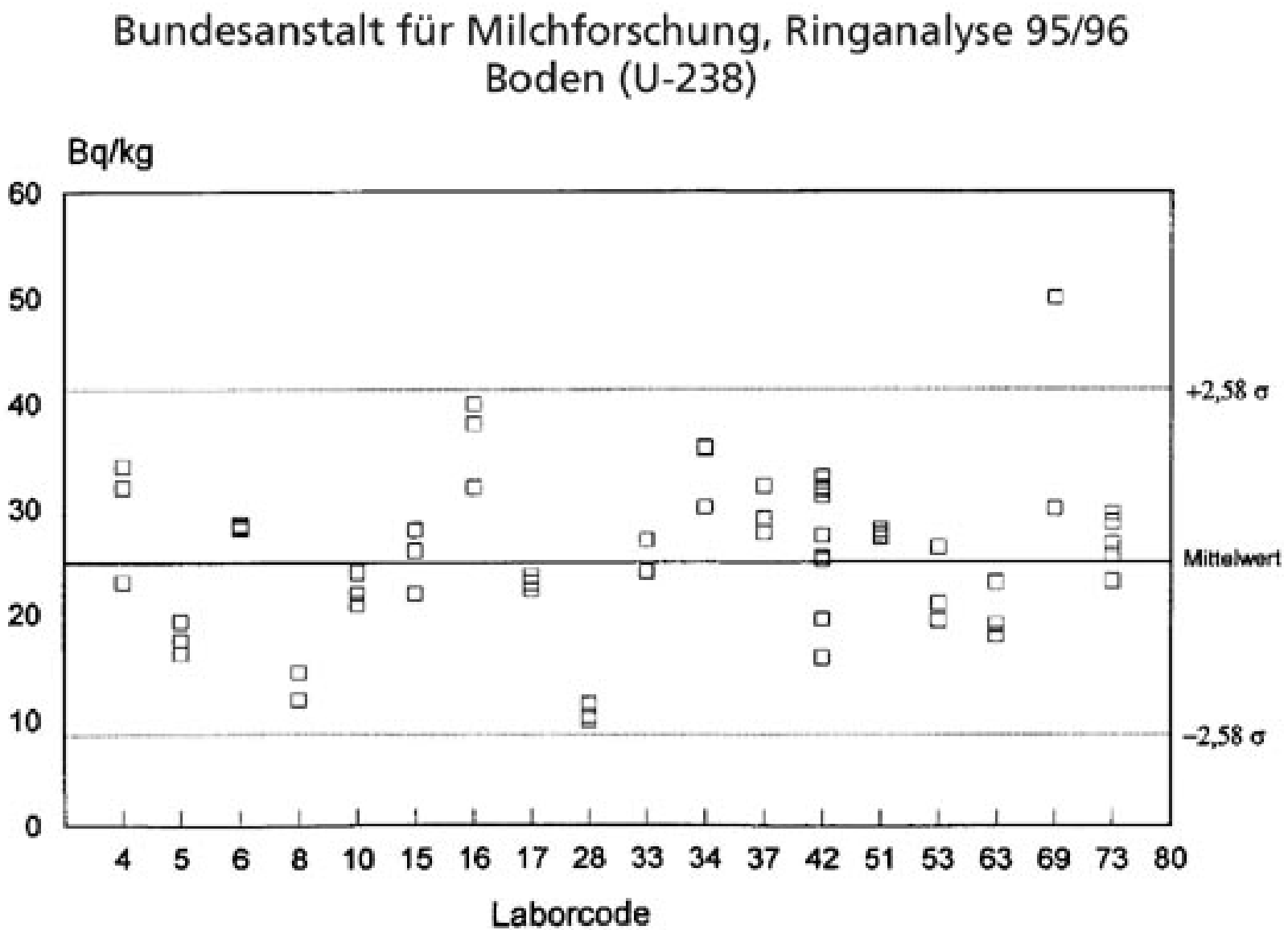


Abbildung 6

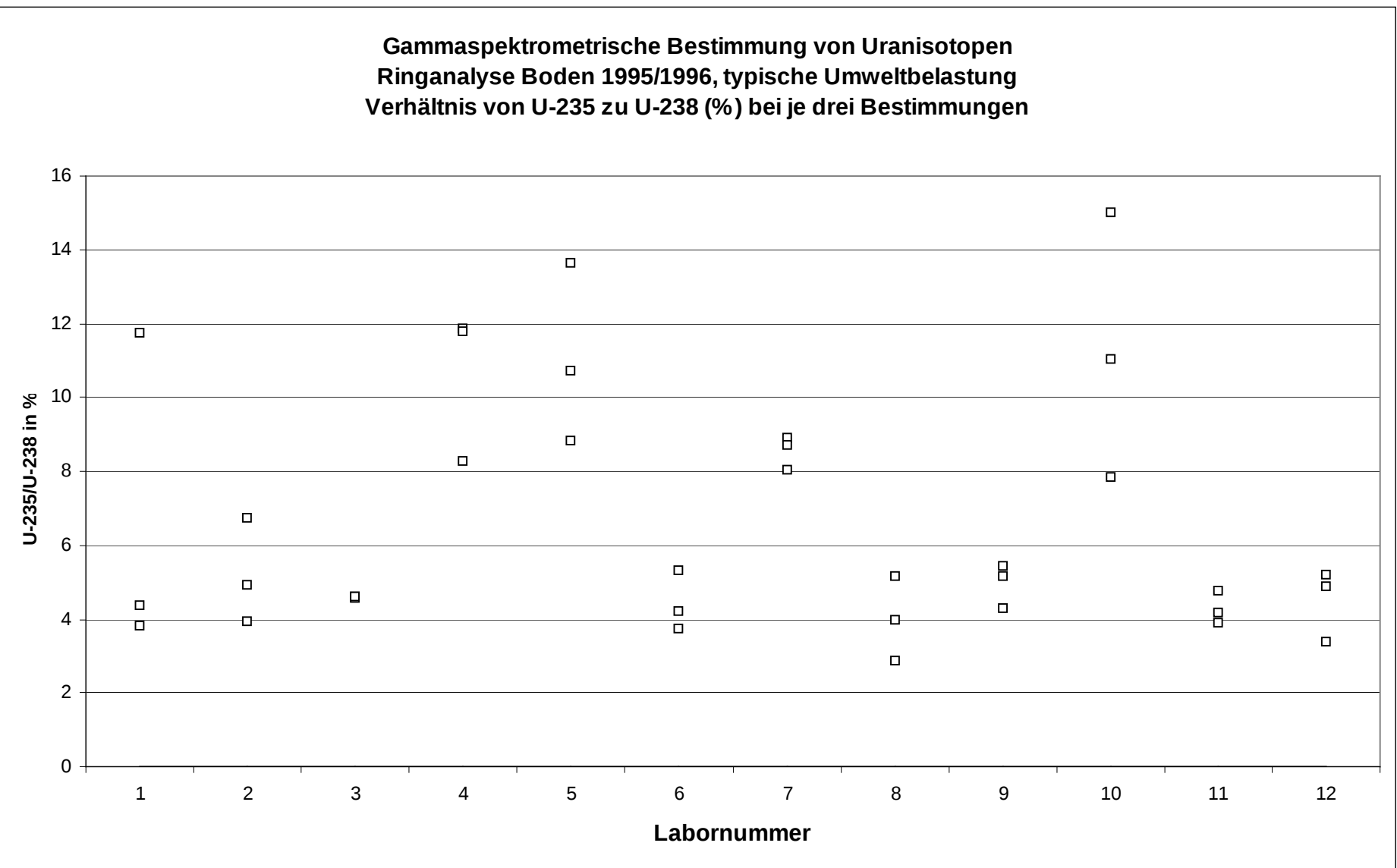


Abbildung 7

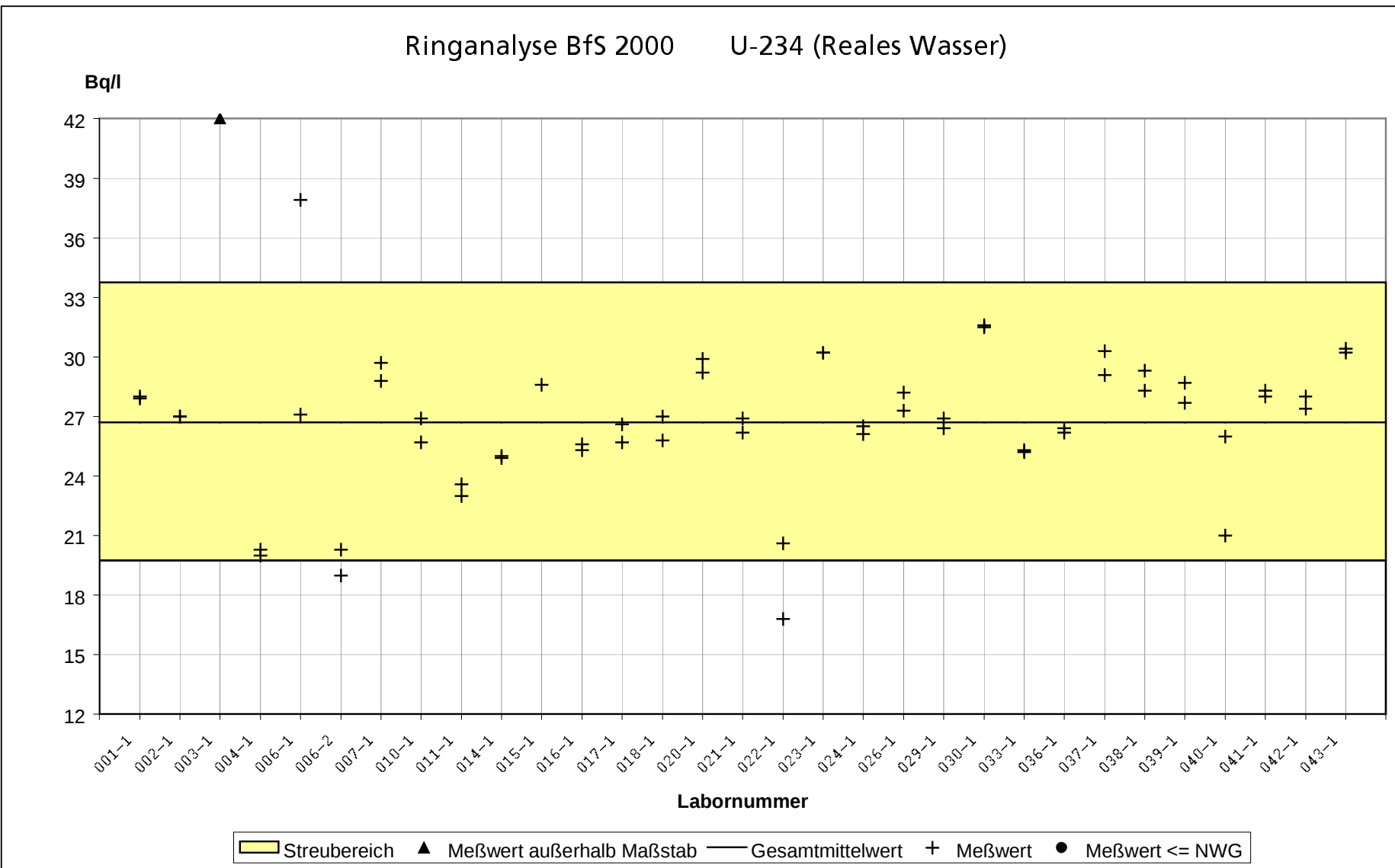


Abbildung 8

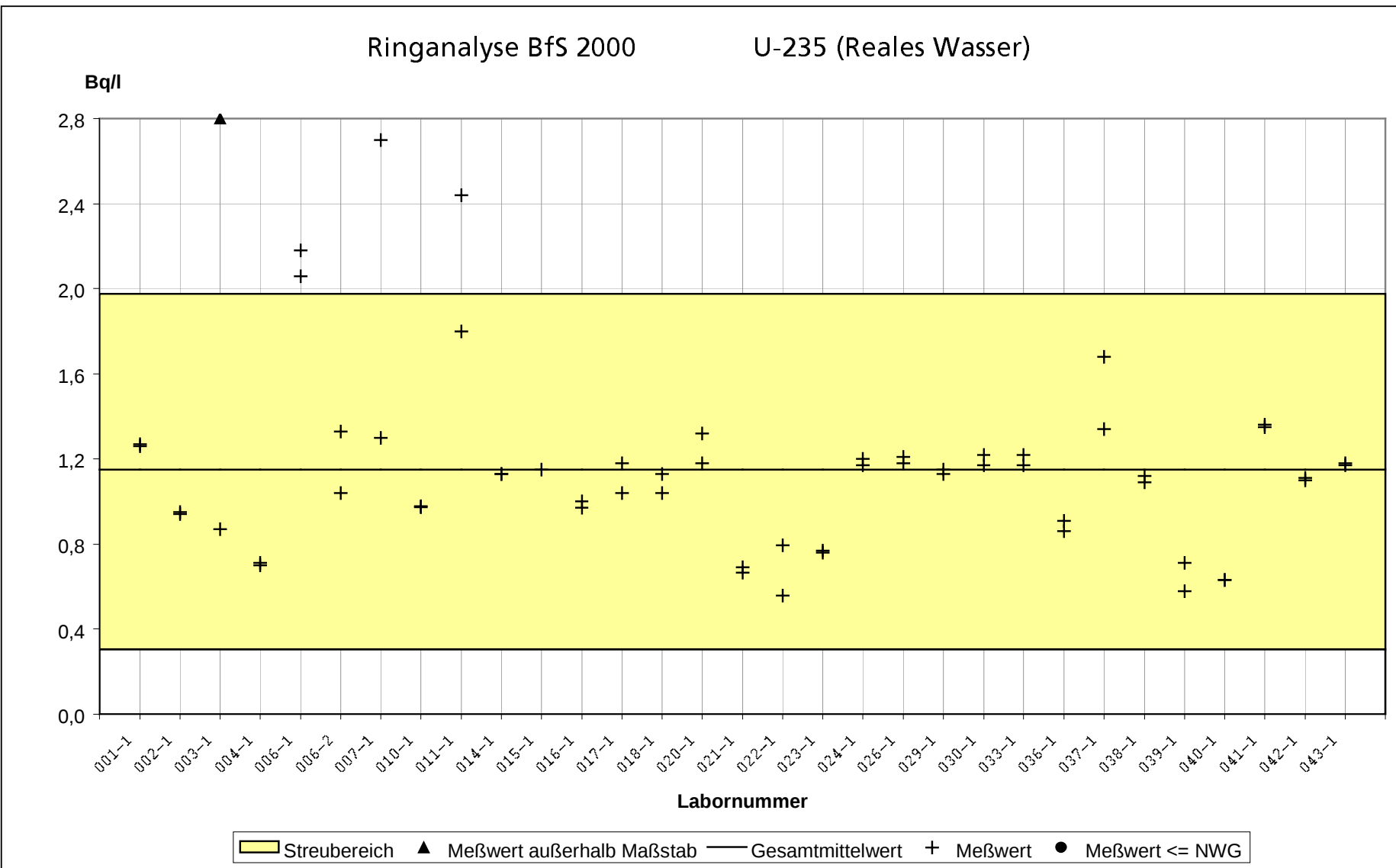


Abbildung 9

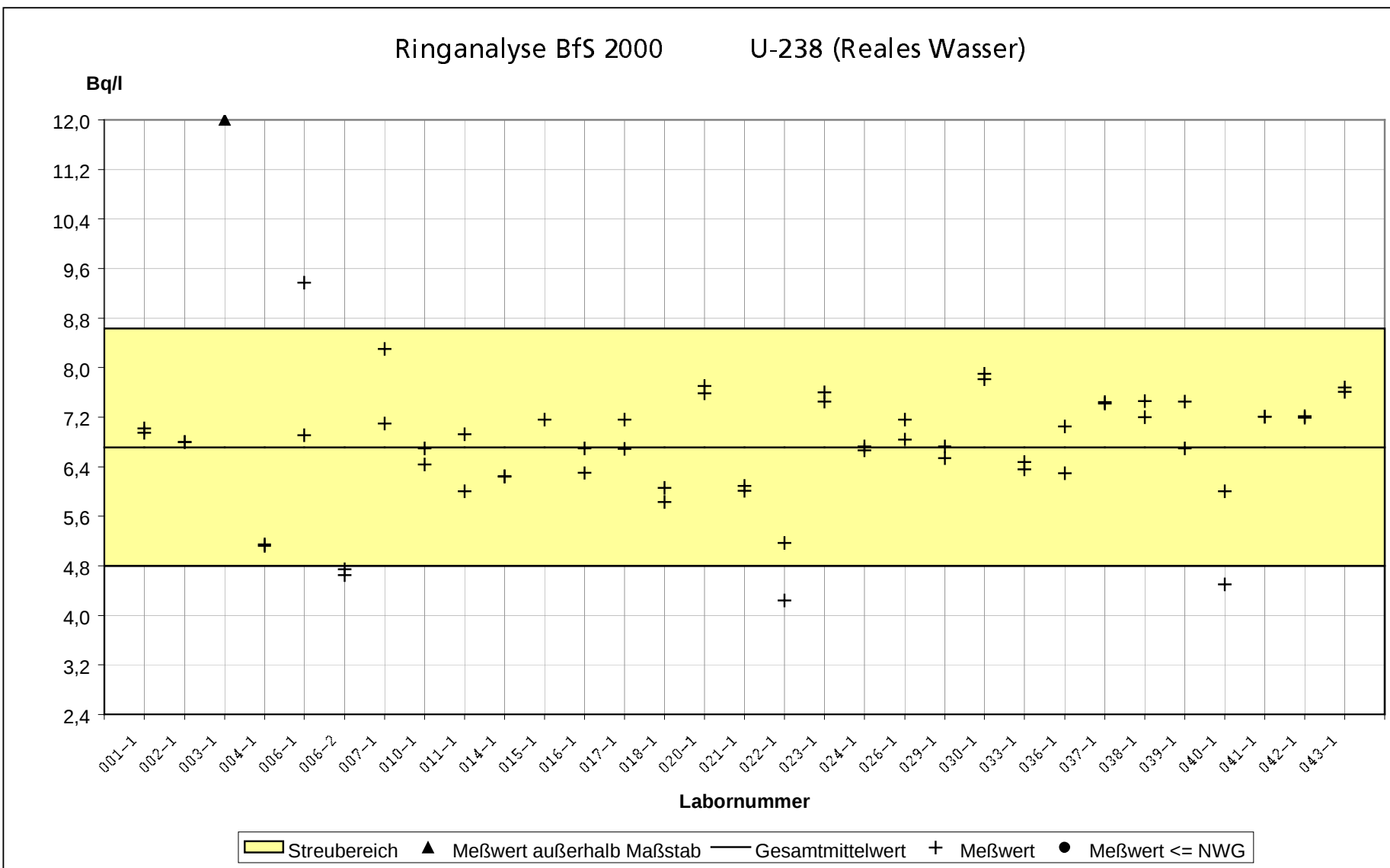


Abbildung 10

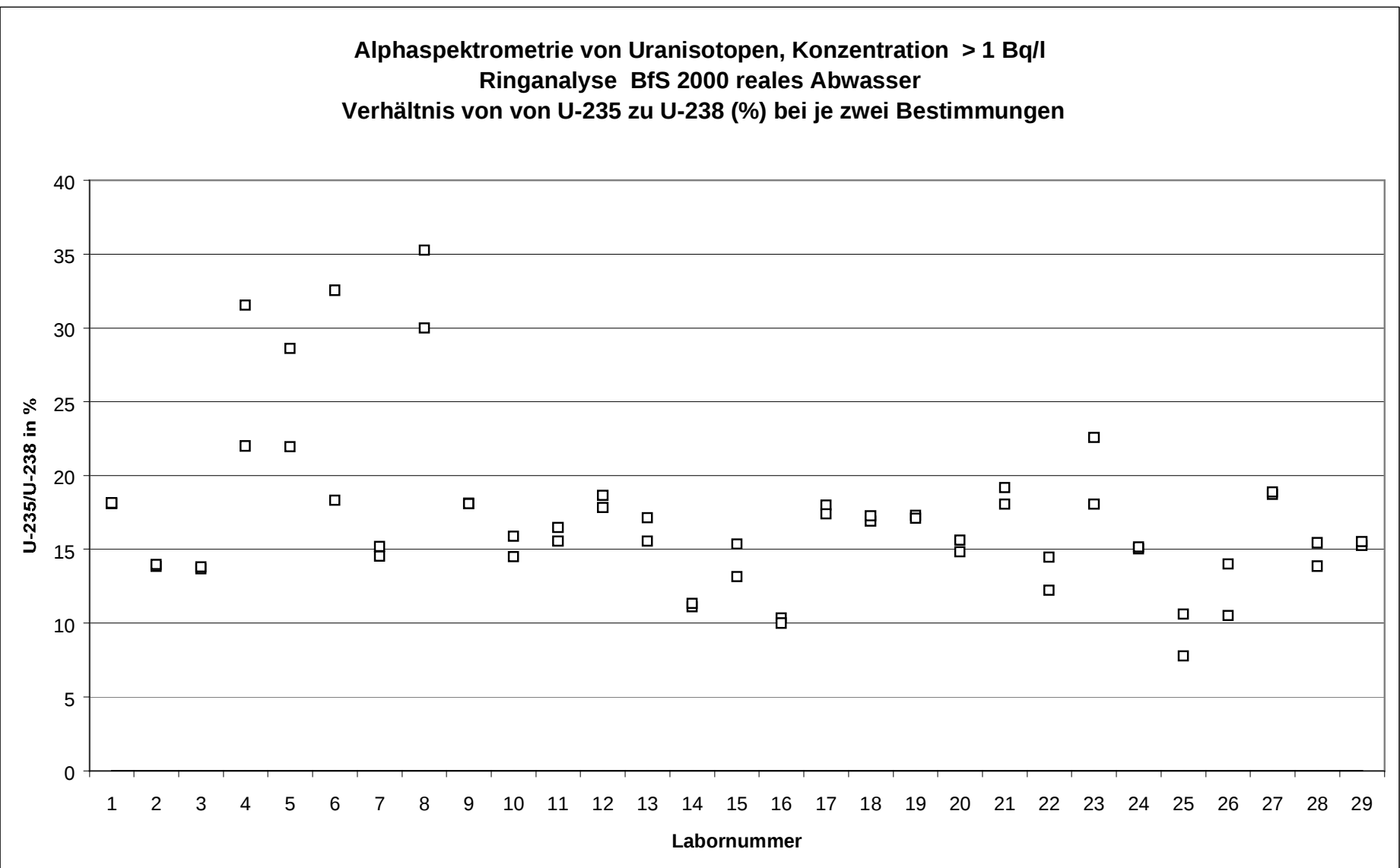


Abbildung 11

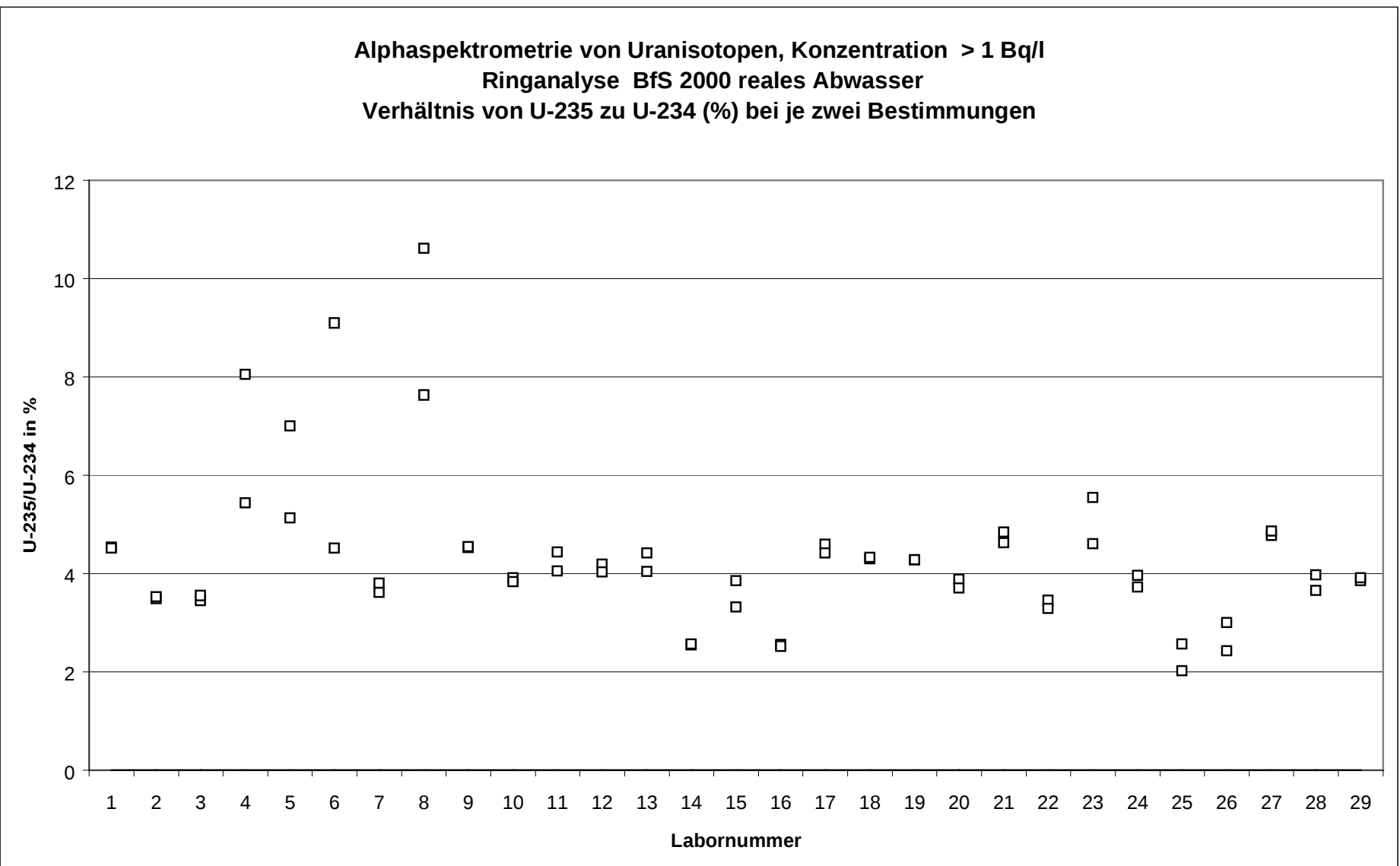
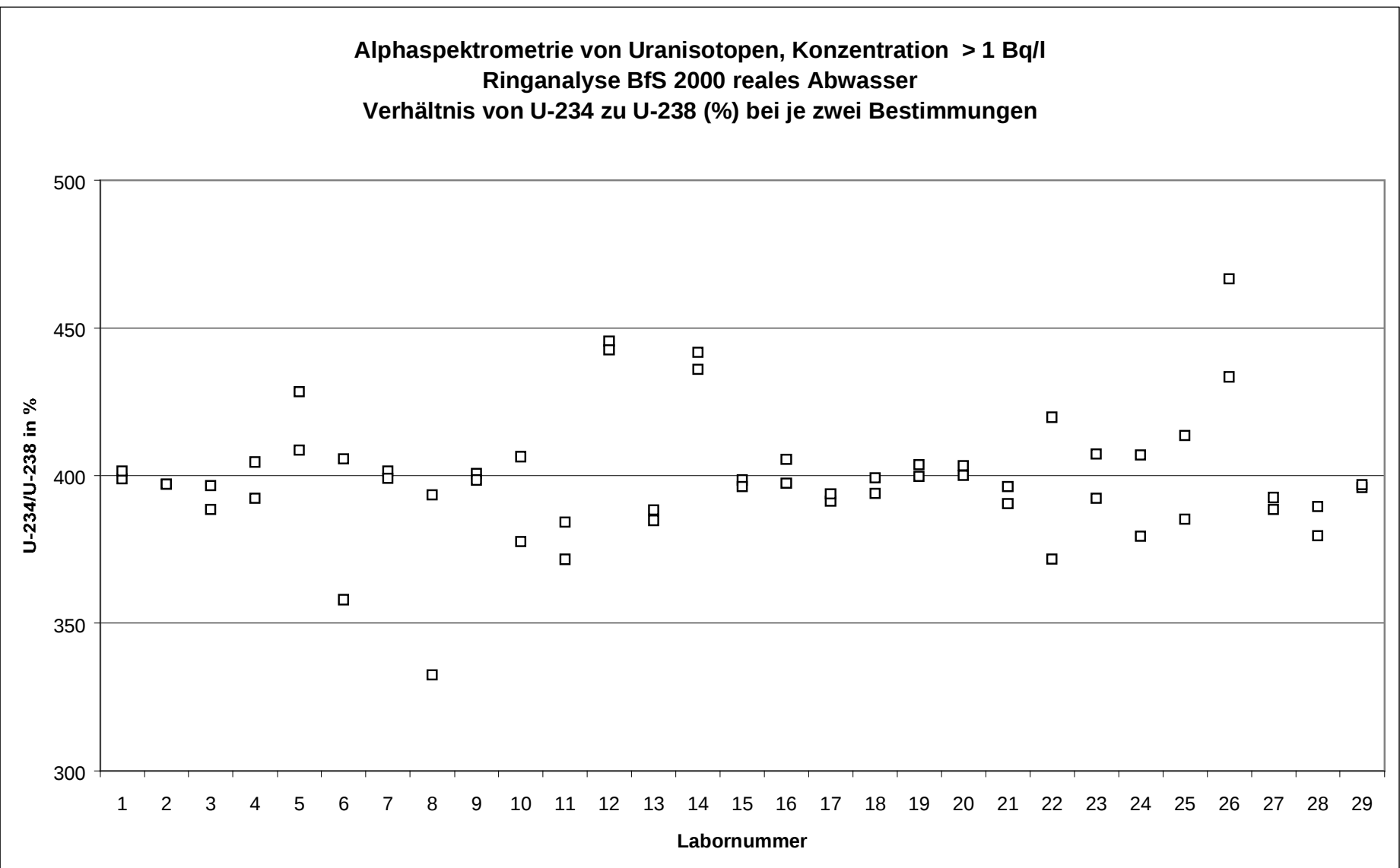


Abbildung 12



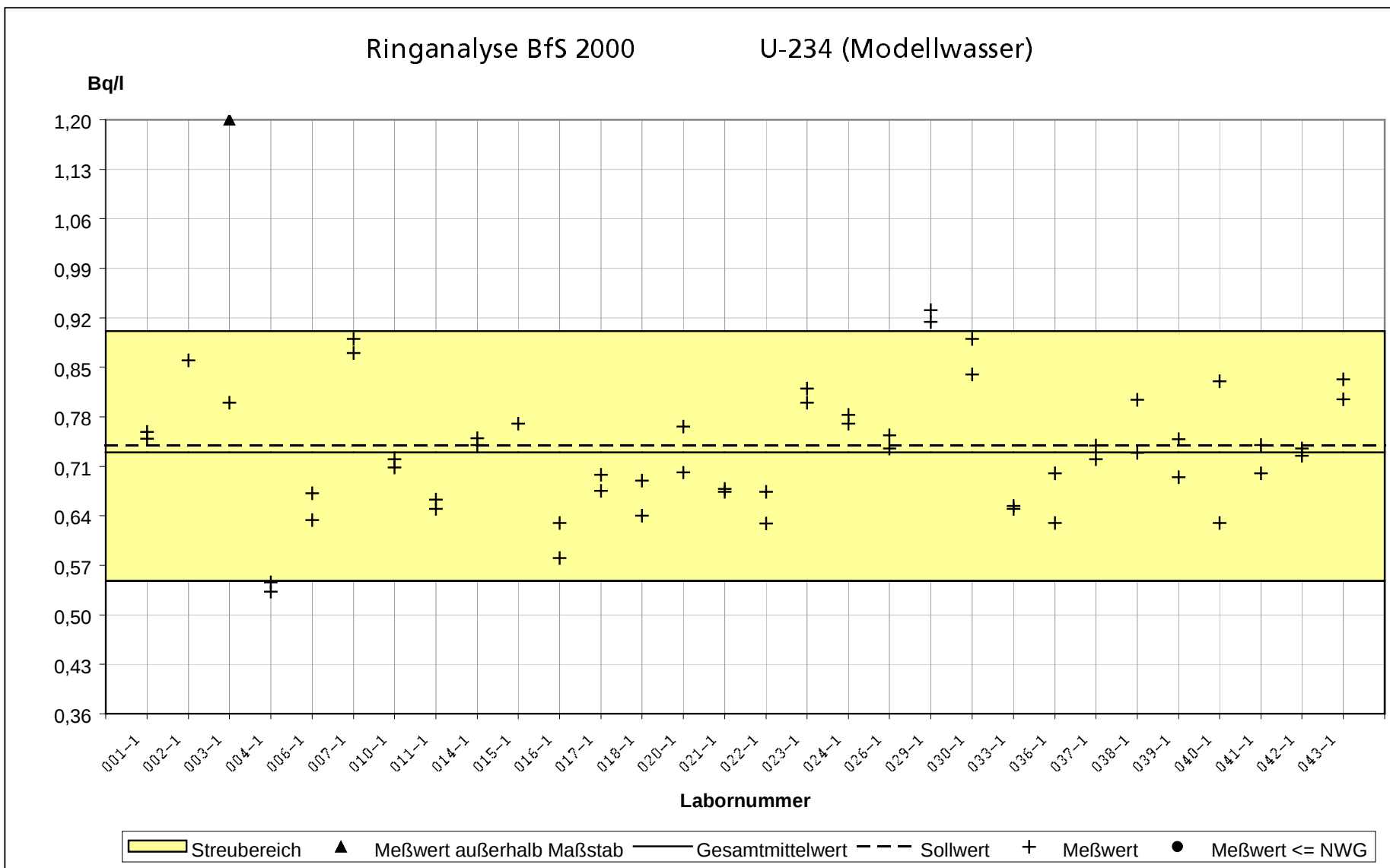
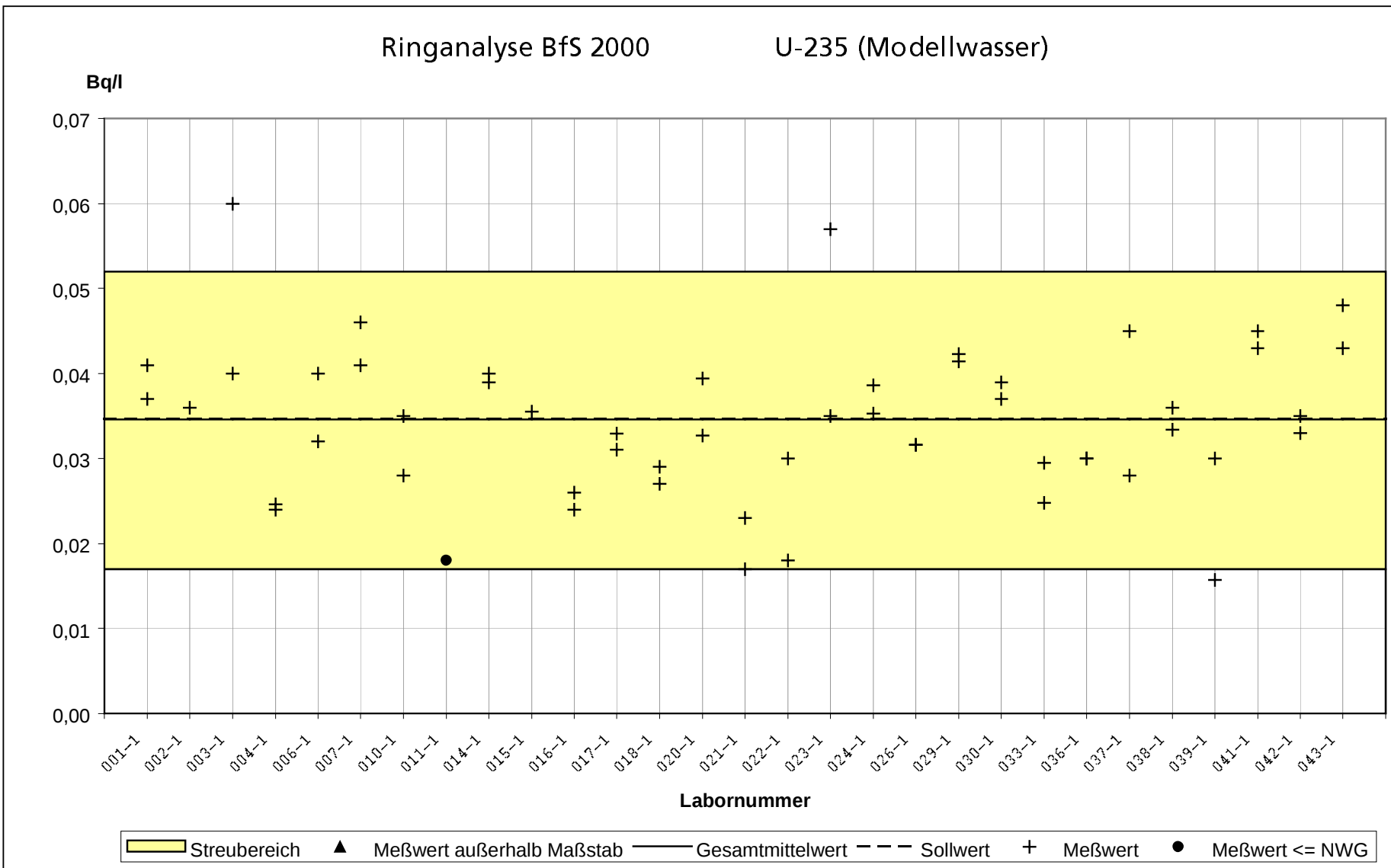


Abbildung 13

Abbildung 14



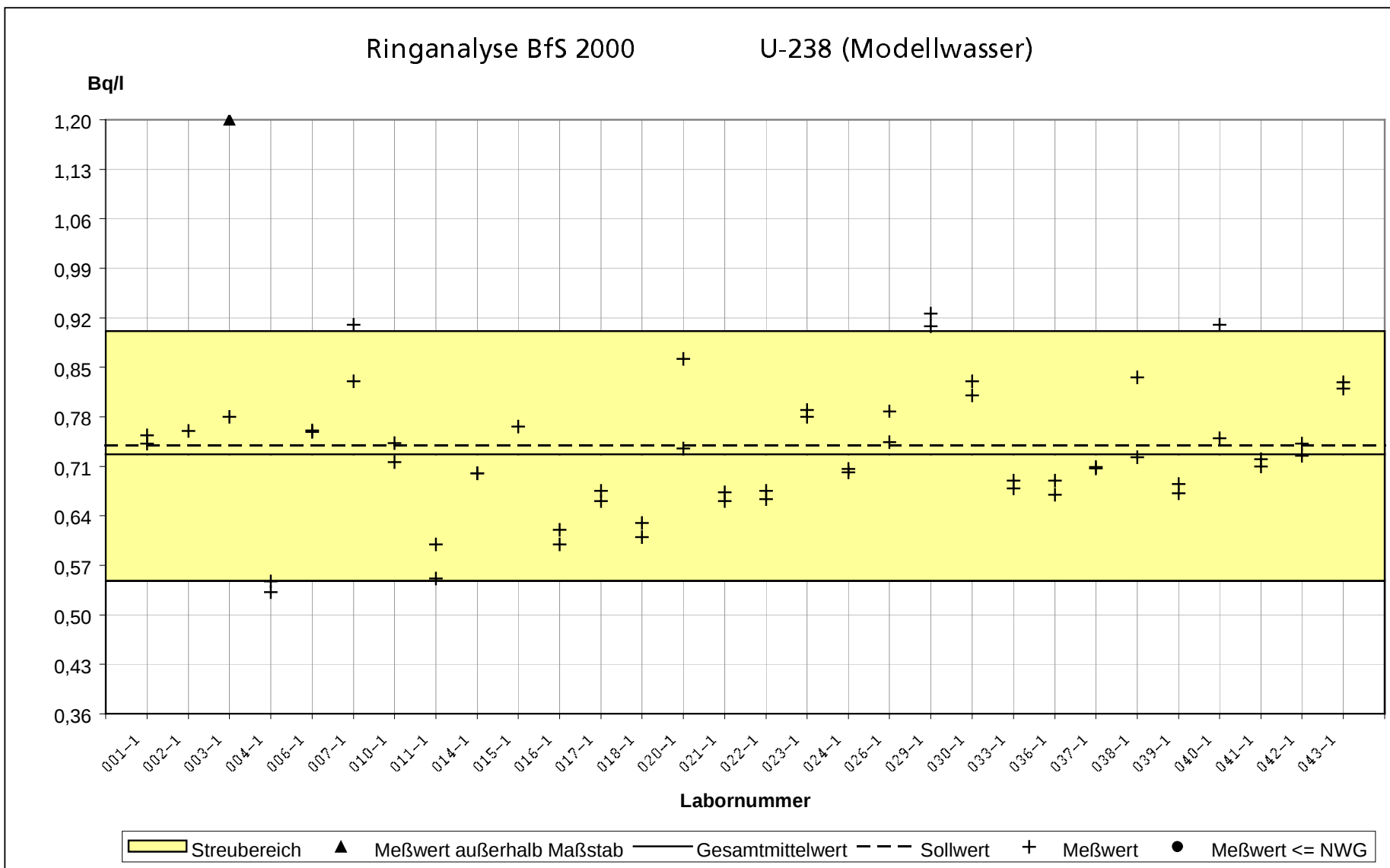


Abbildung 15

Abbildung 16

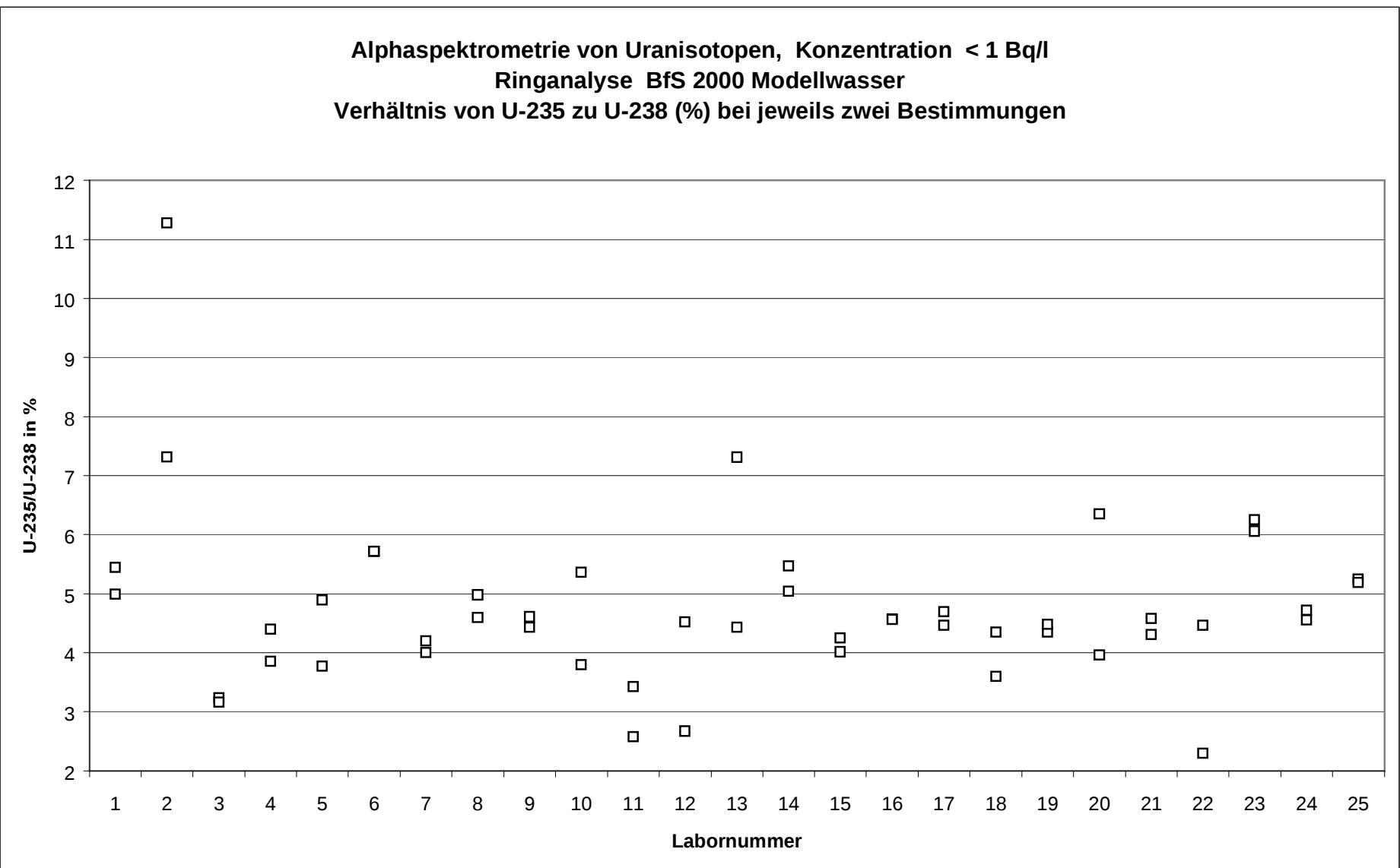


Abbildung 17

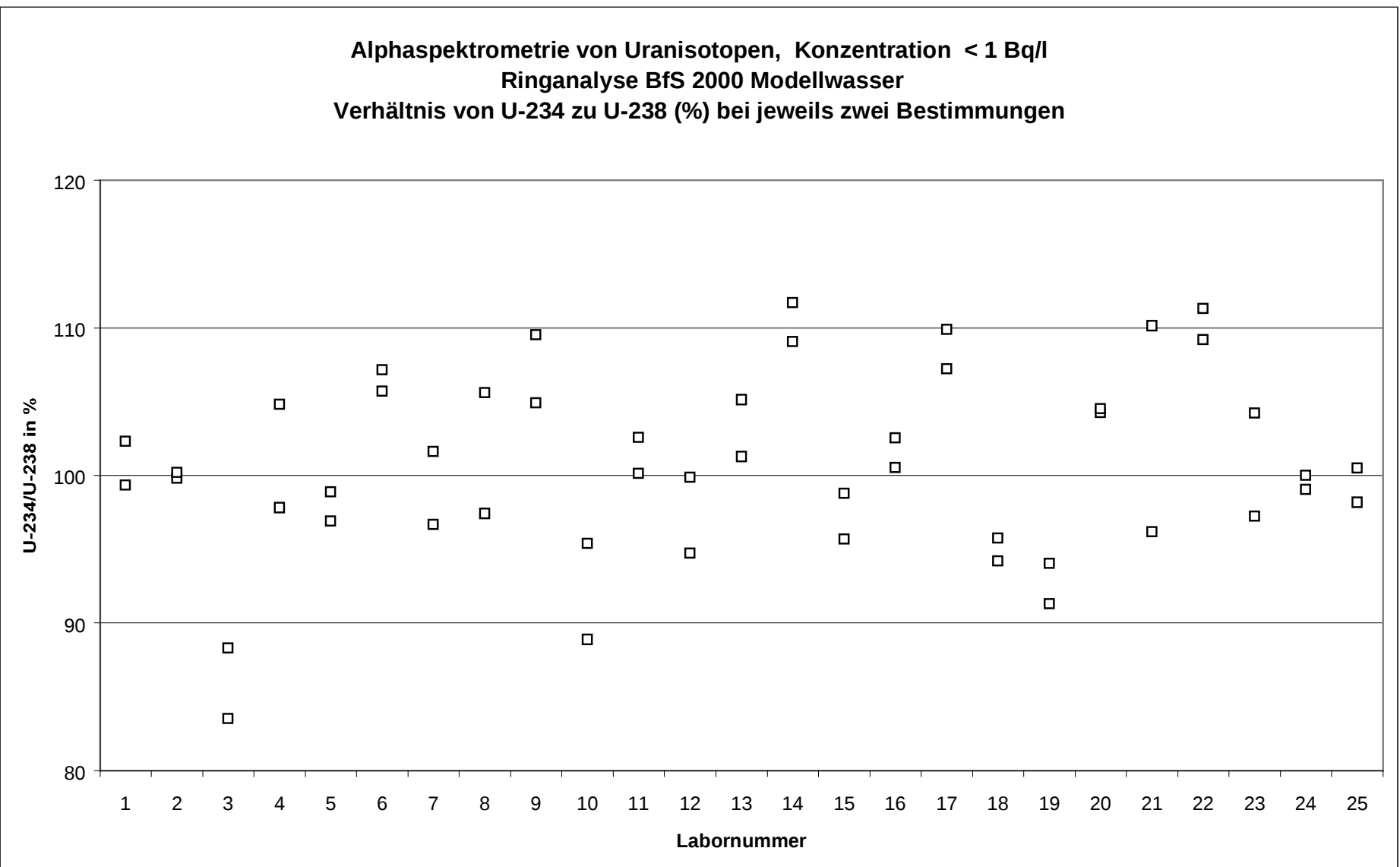


Abbildung 18

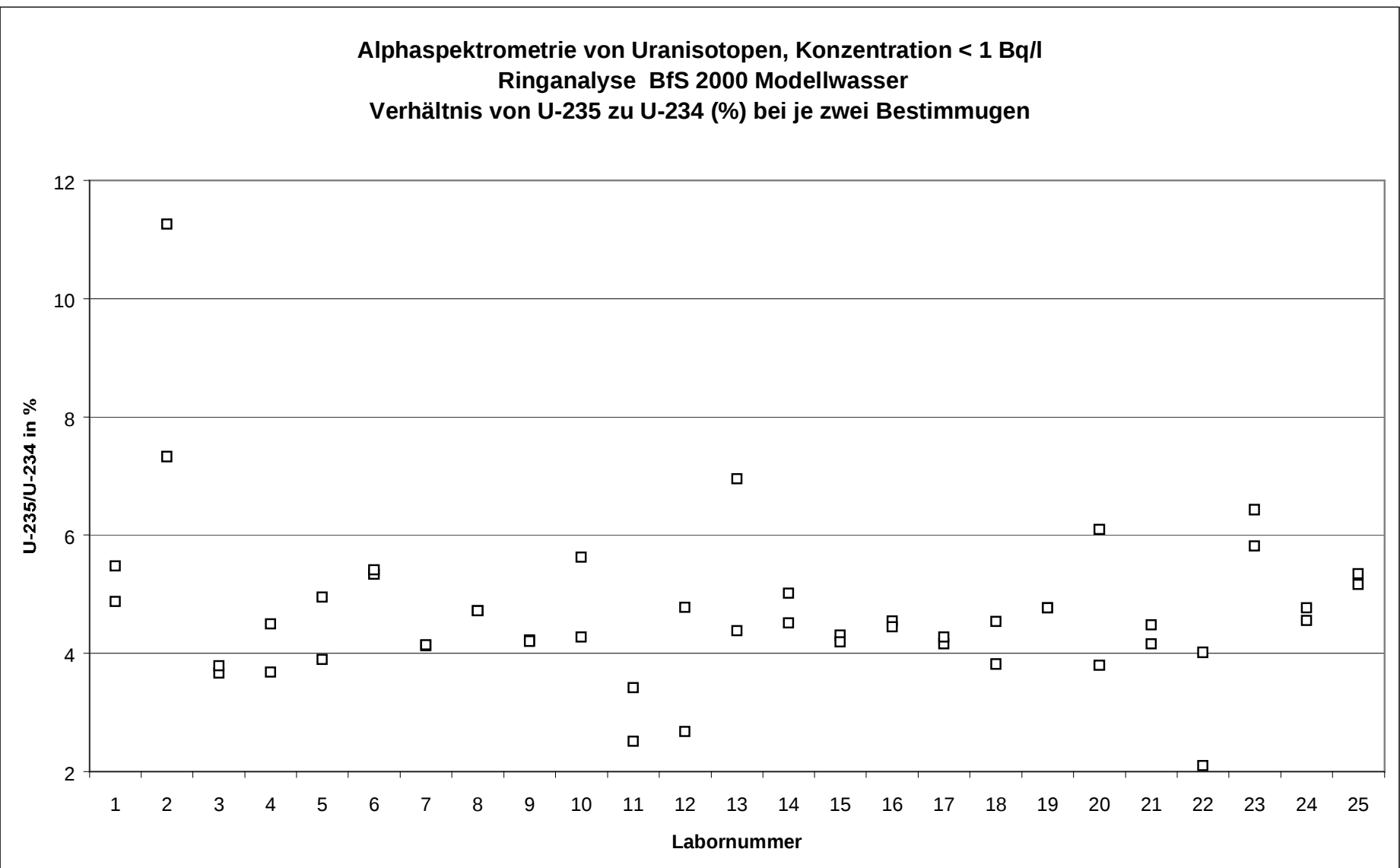


Abbildung 19

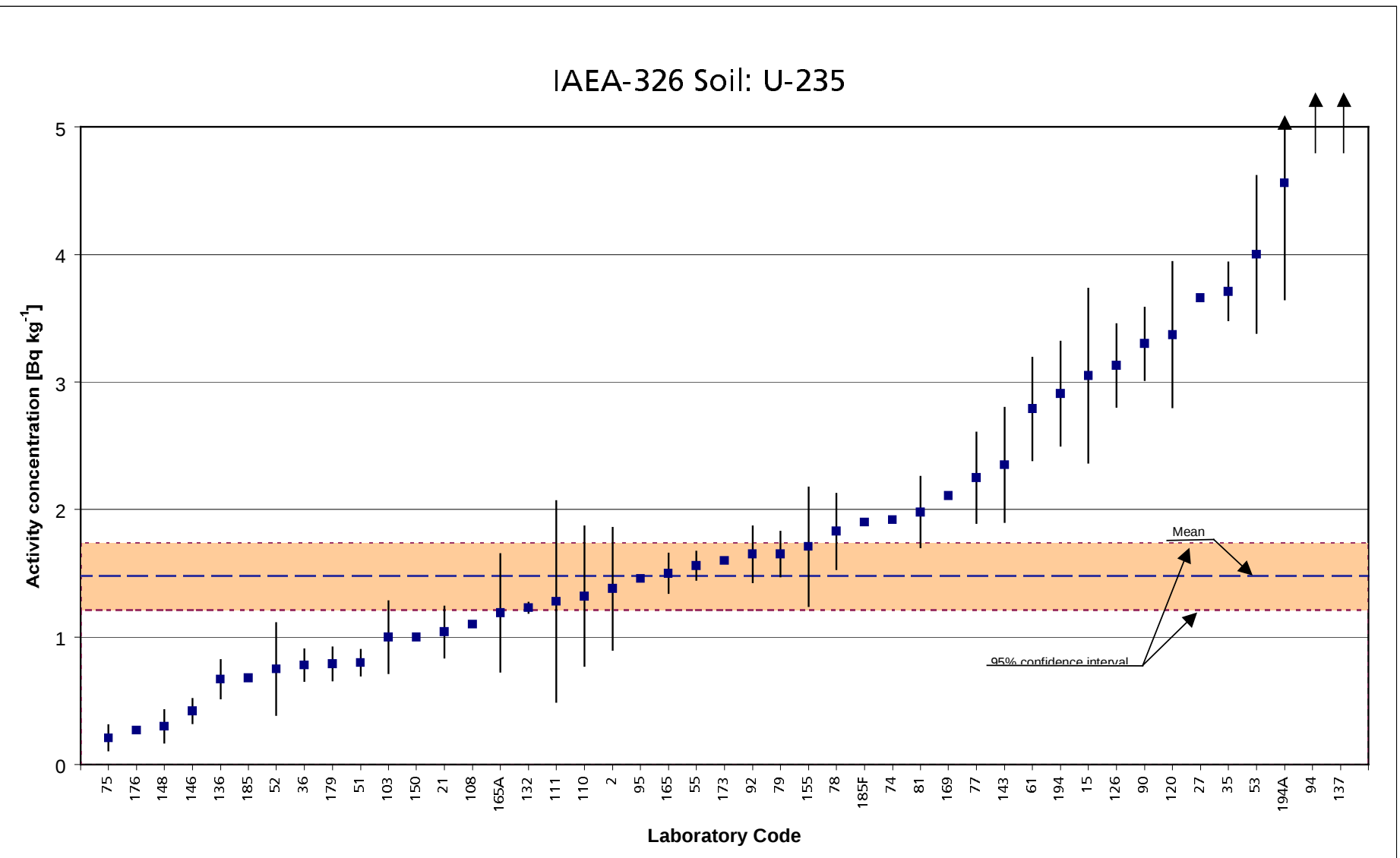


Abbildung 20

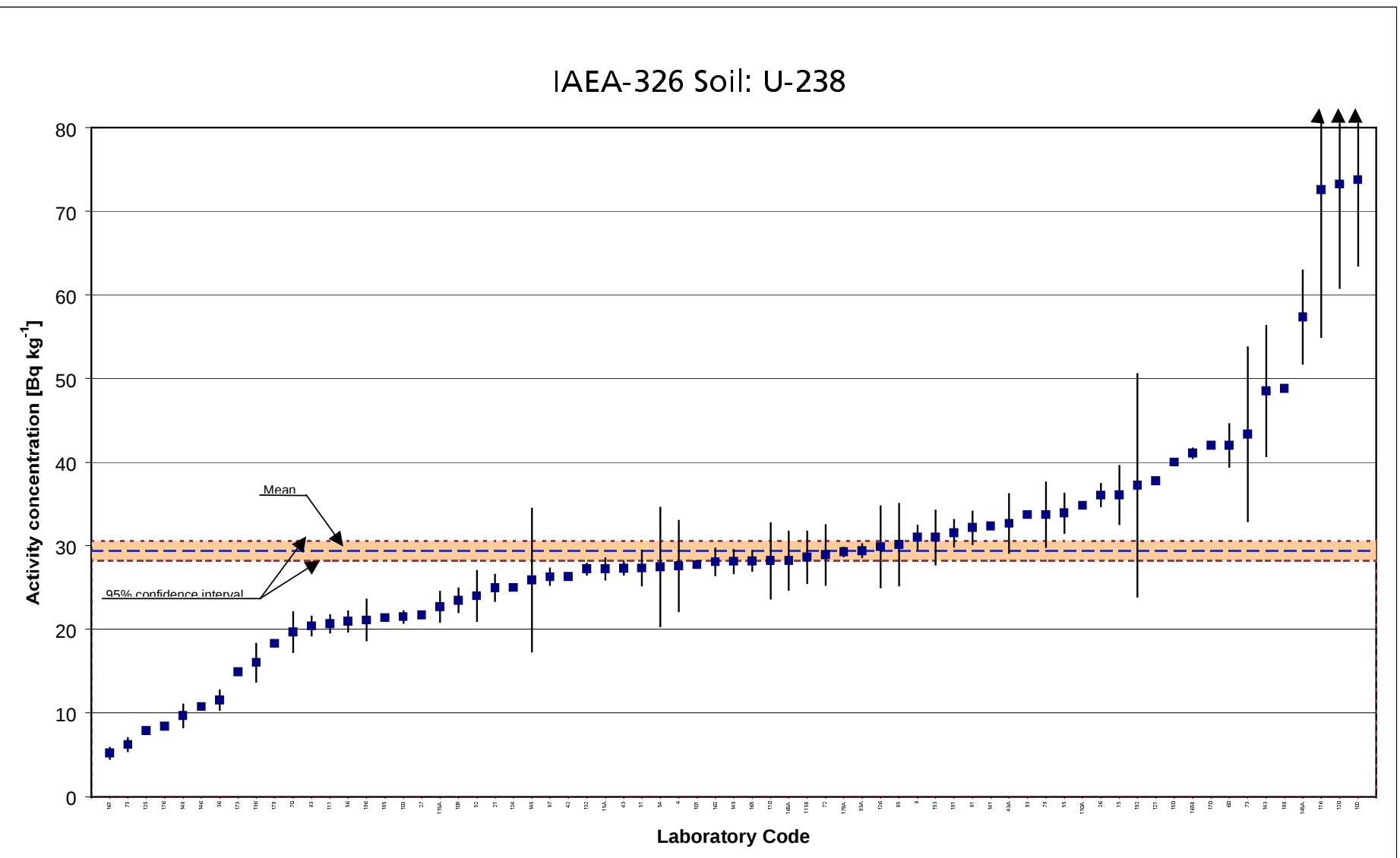




Abbildung 21

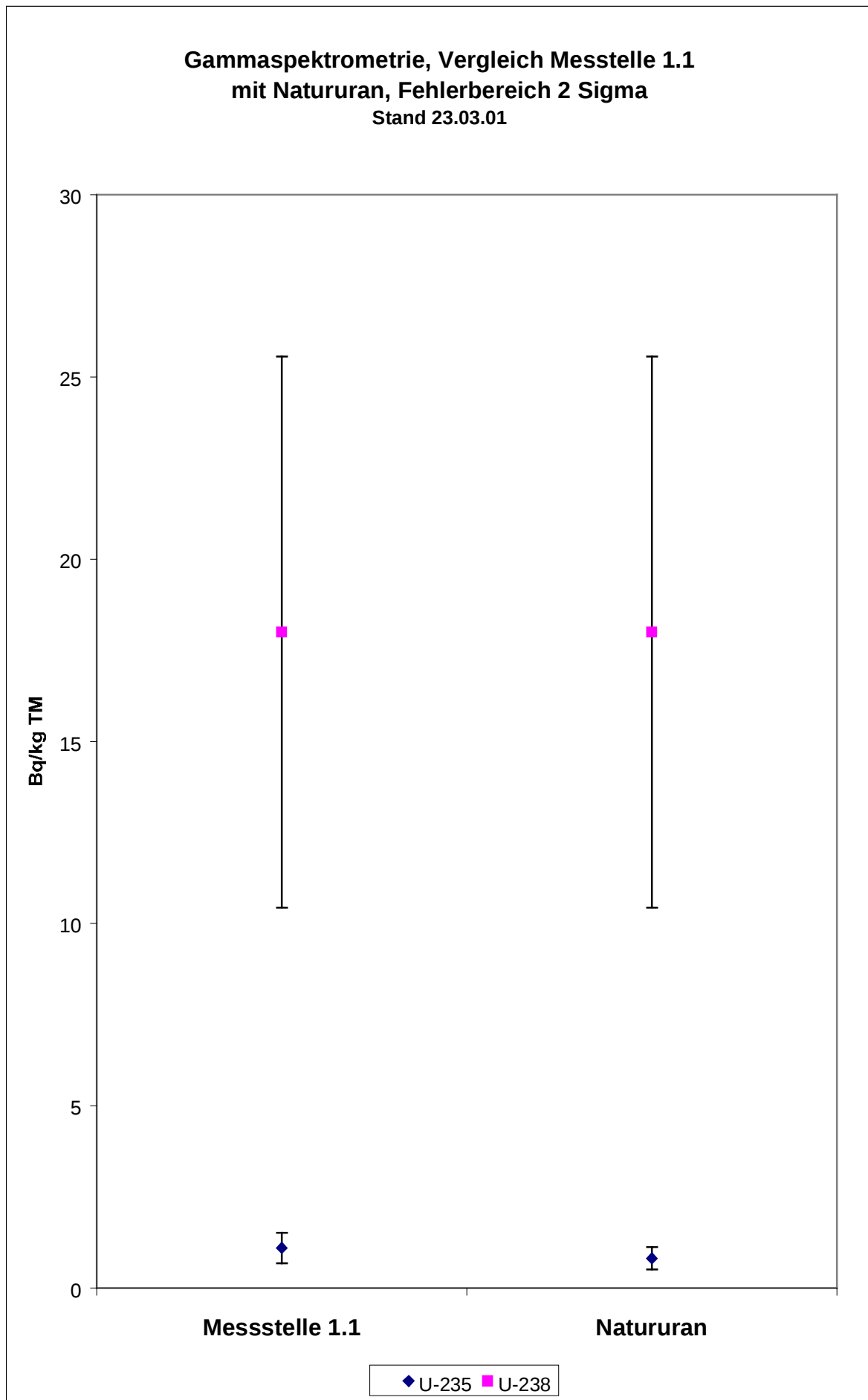




Abbildung 22

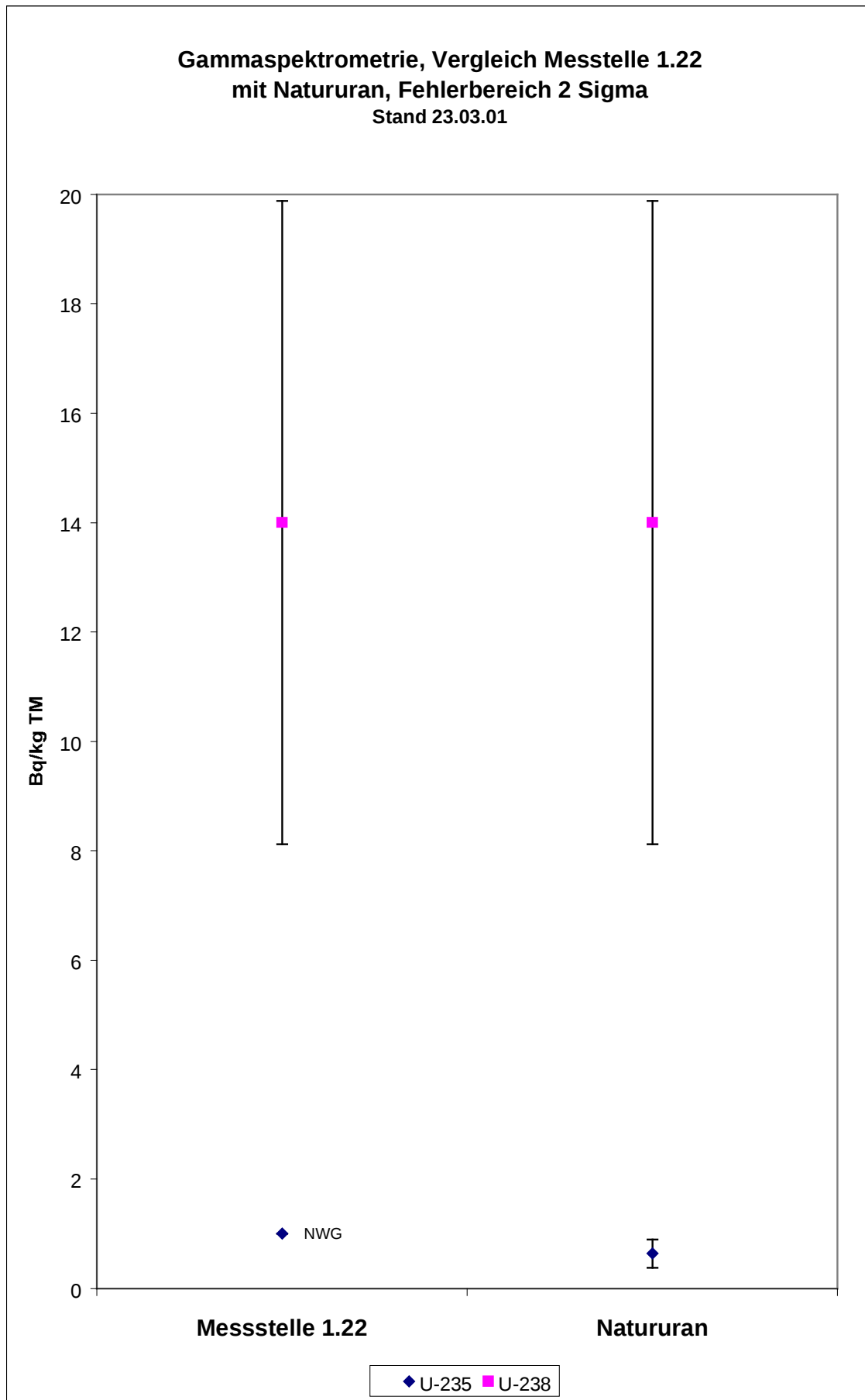




Abbildung 23

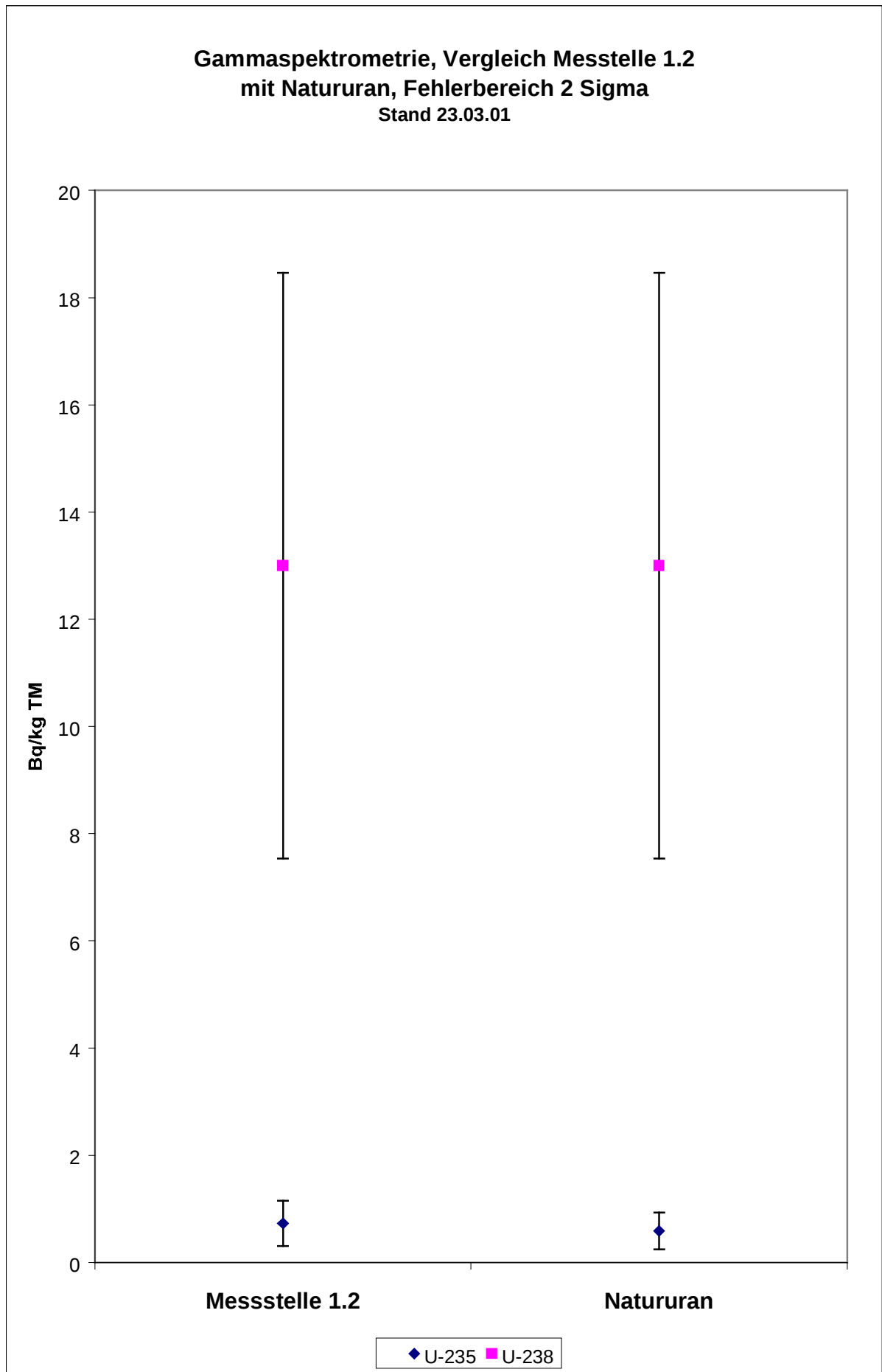




Abbildung 24

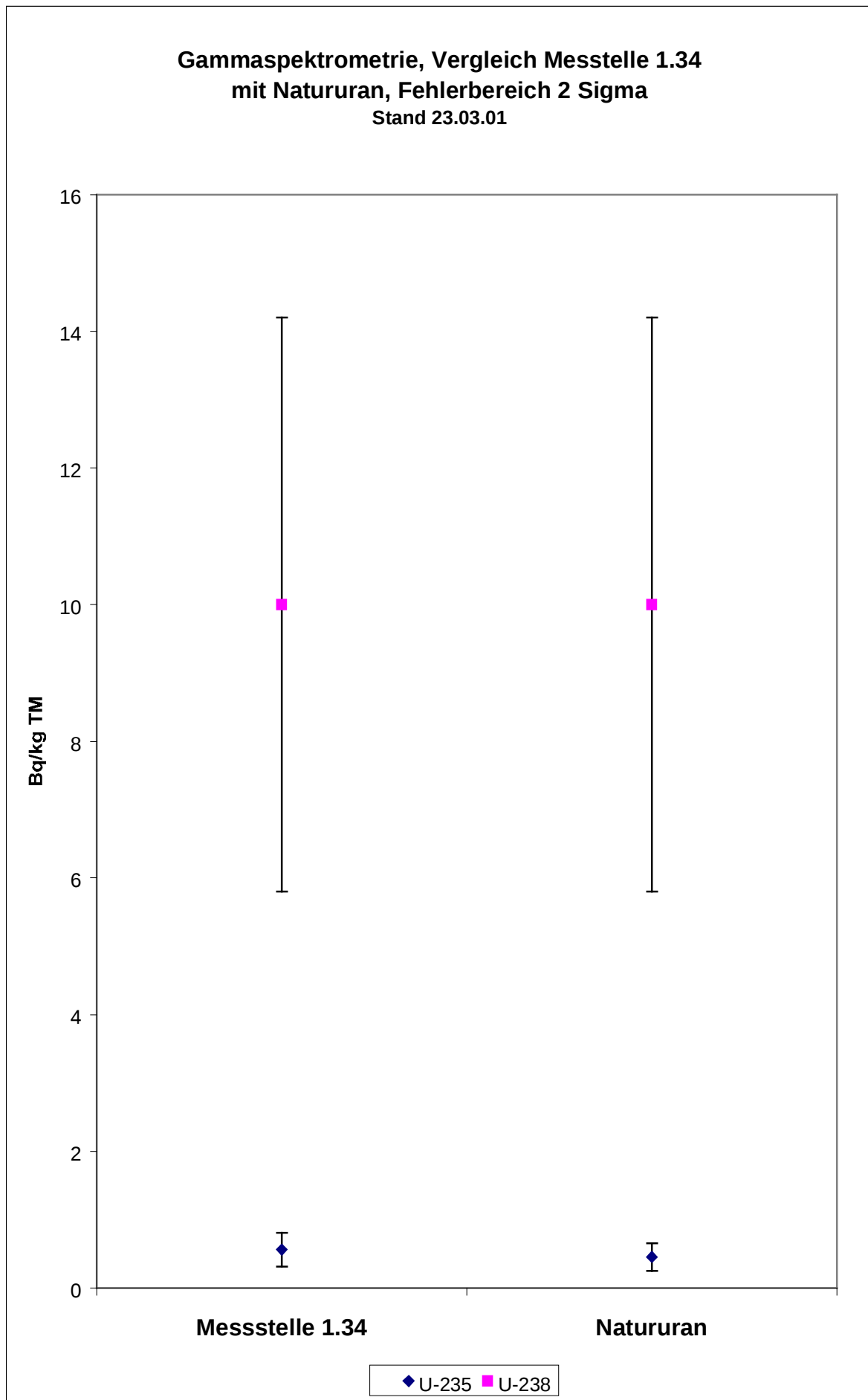




Abbildung 25

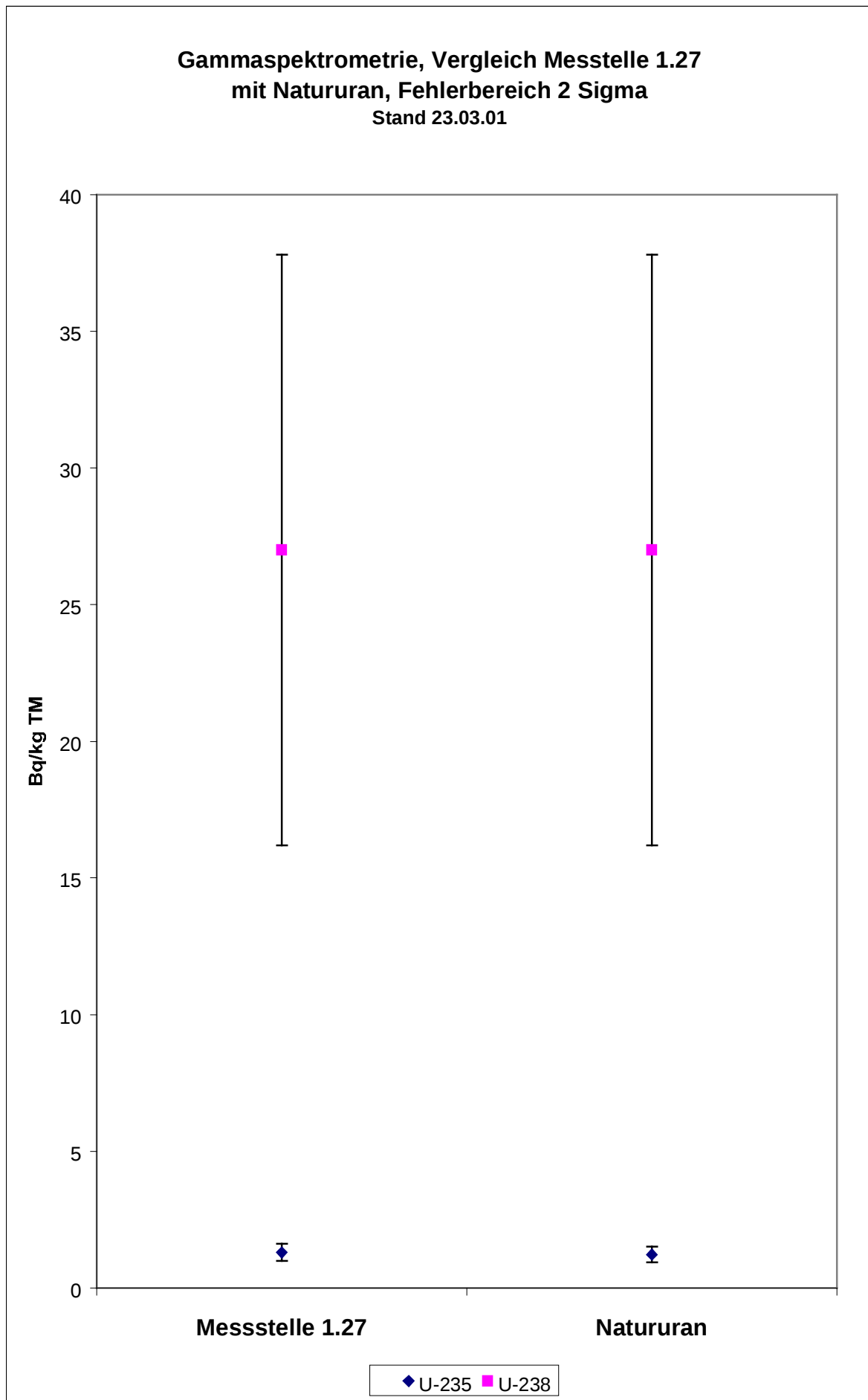




Abbildung 26

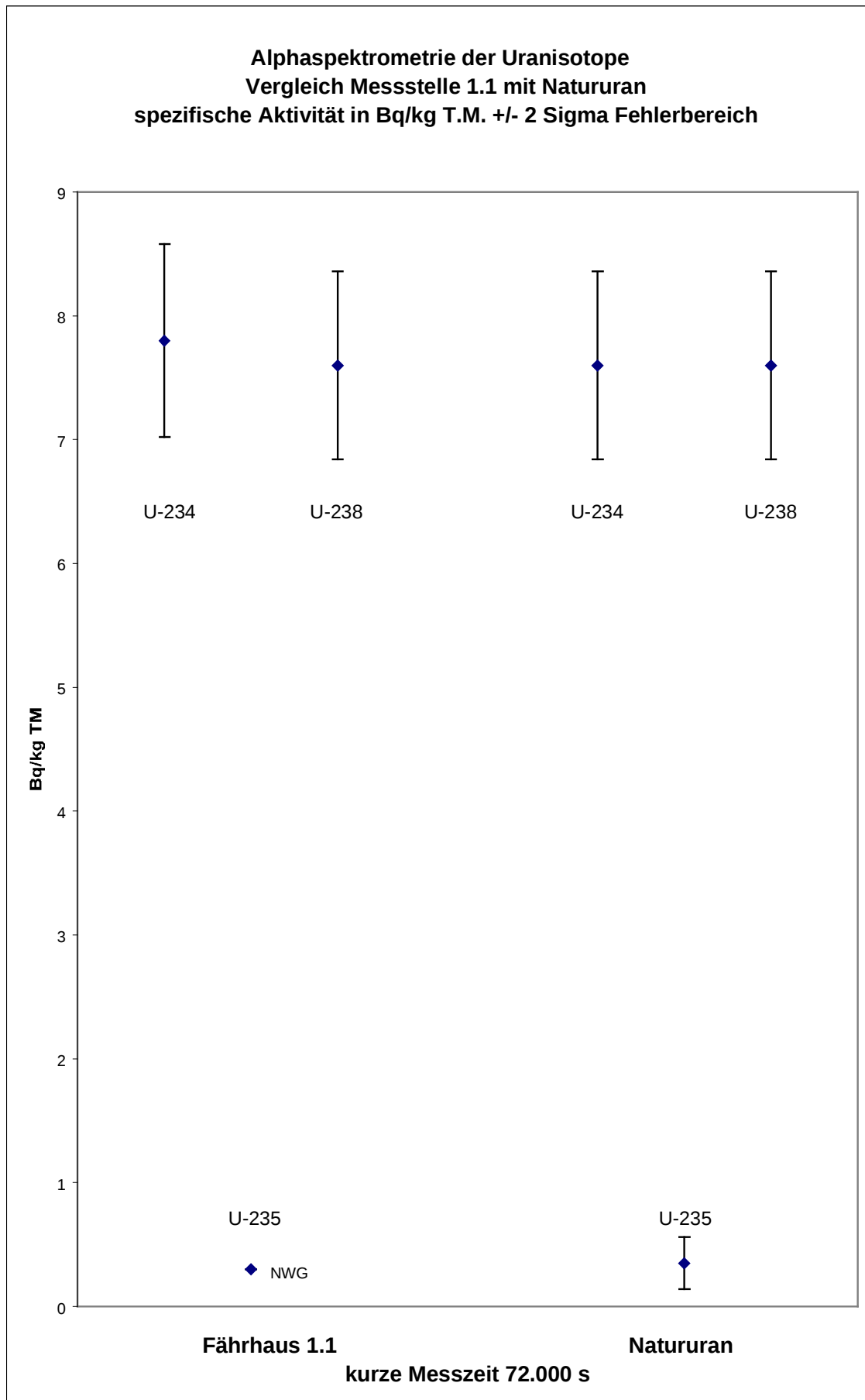




Abbildung 27

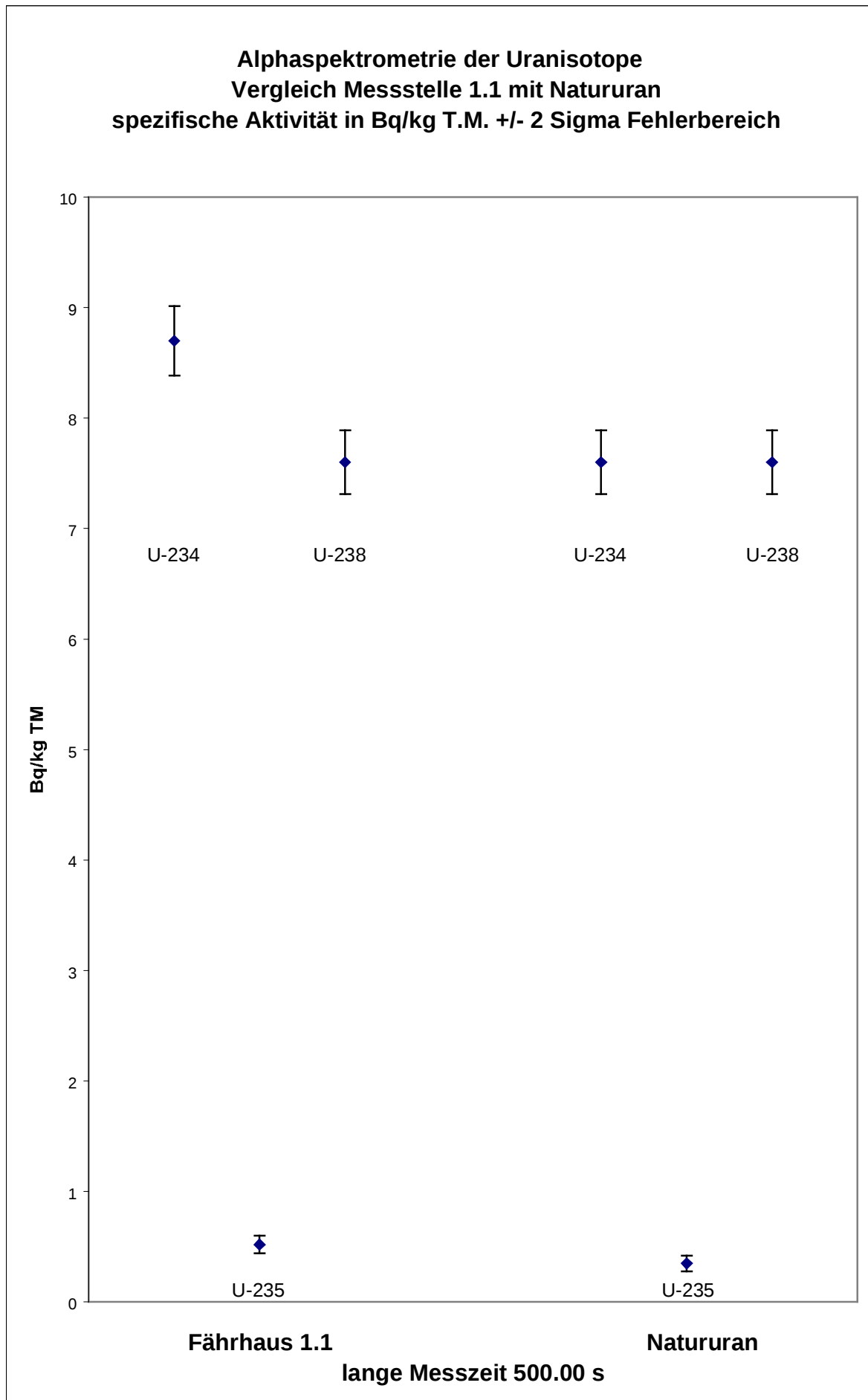




Abbildung 28

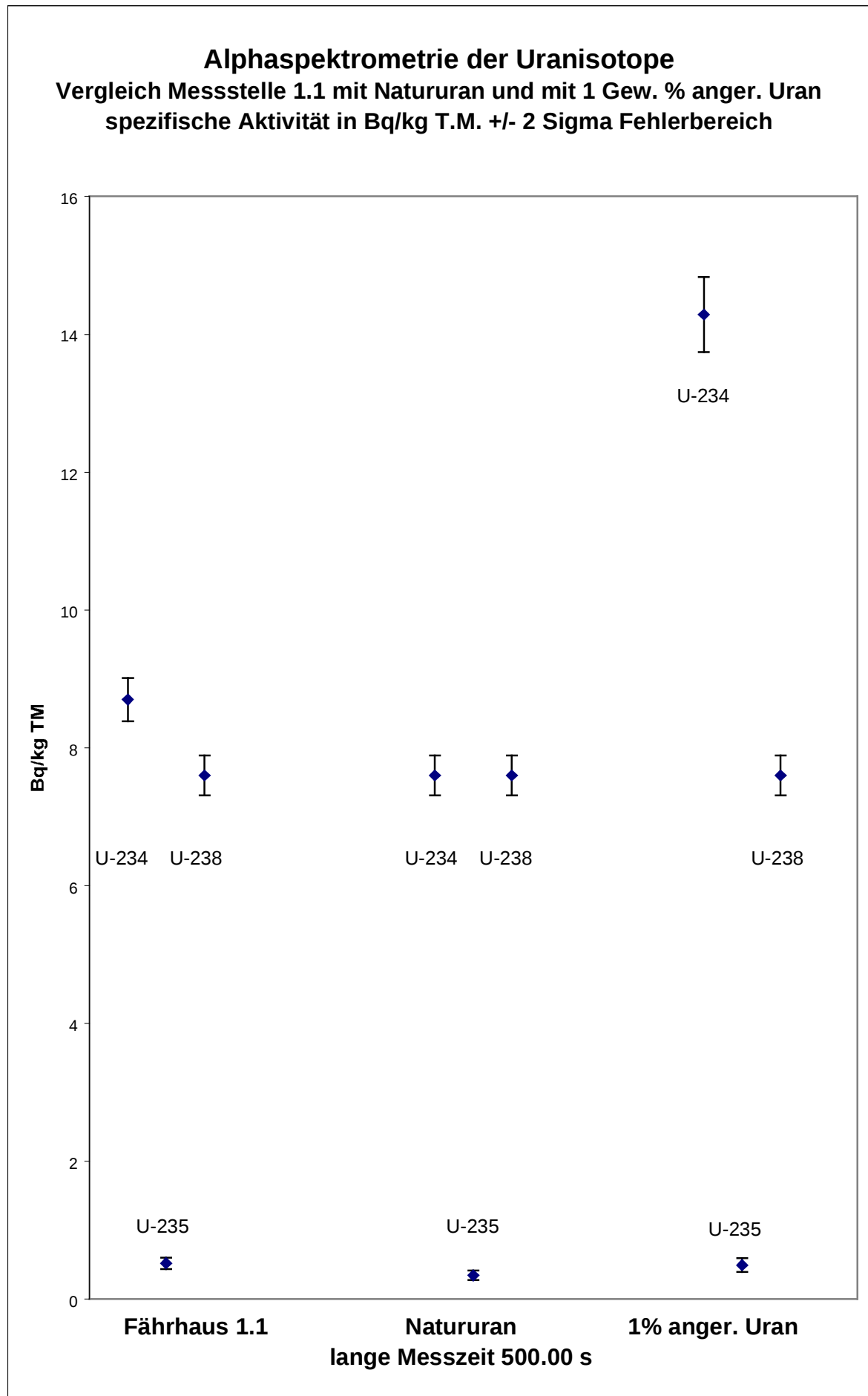




Abbildung 29

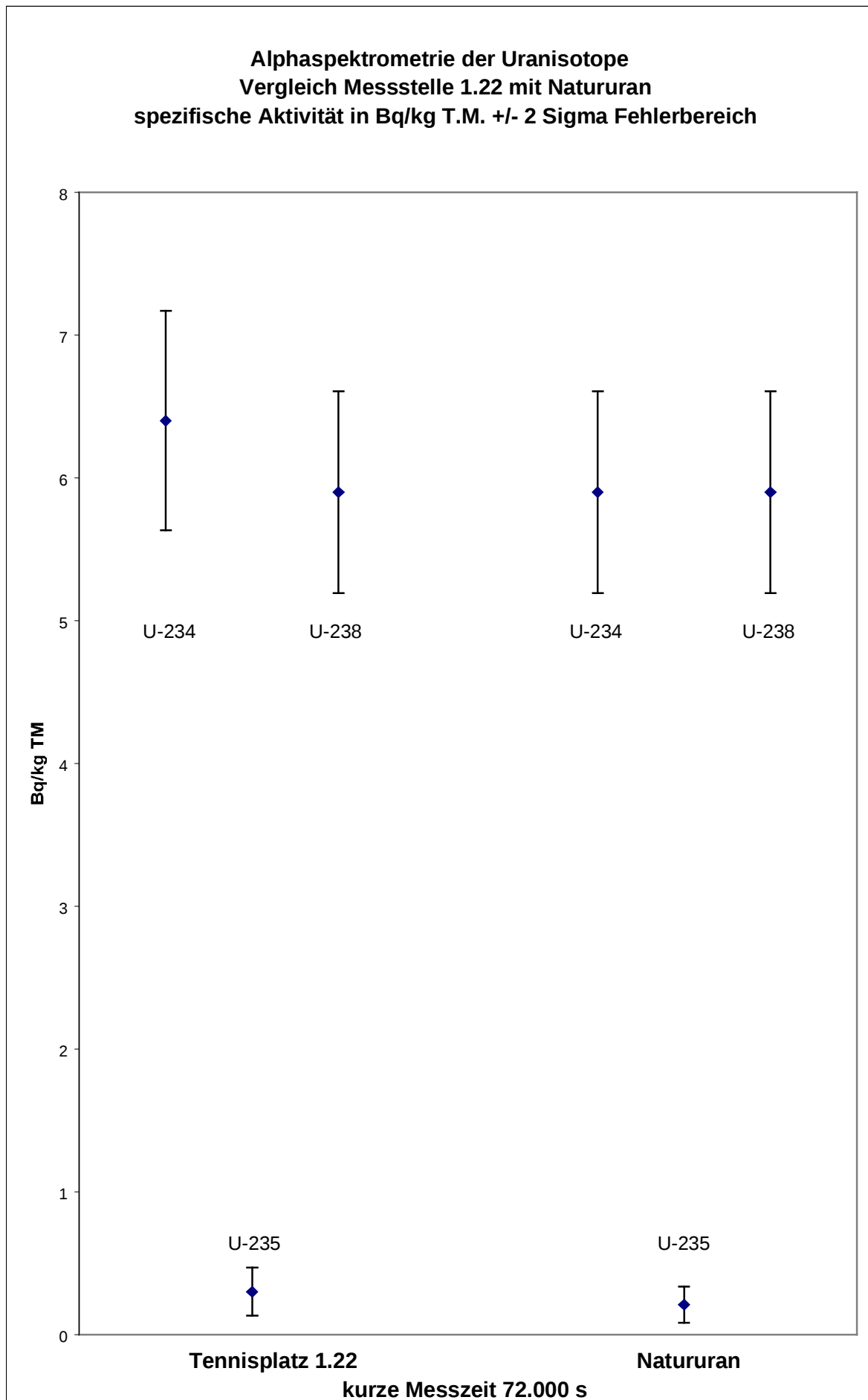




Abbildung 30

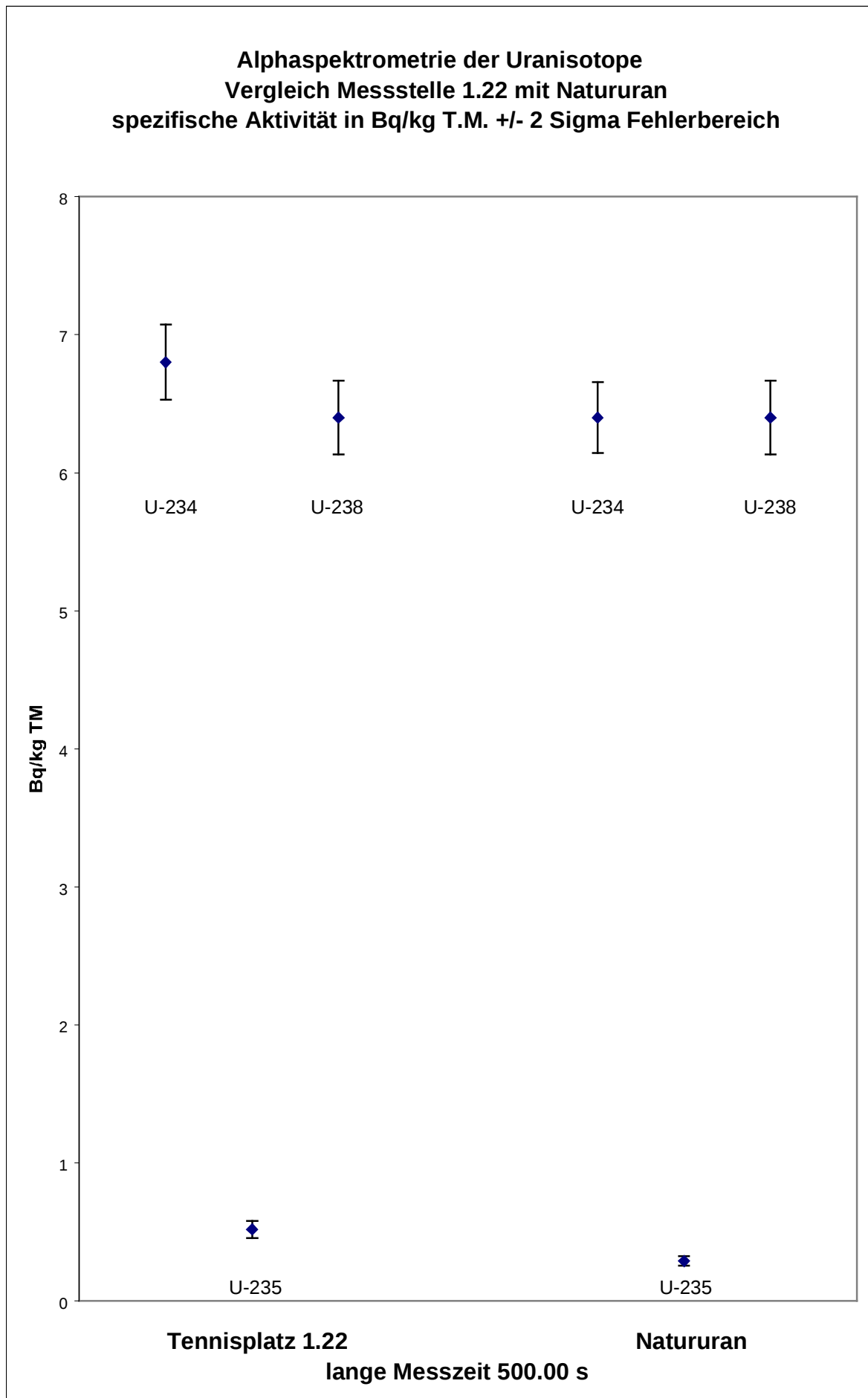




Abbildung 31

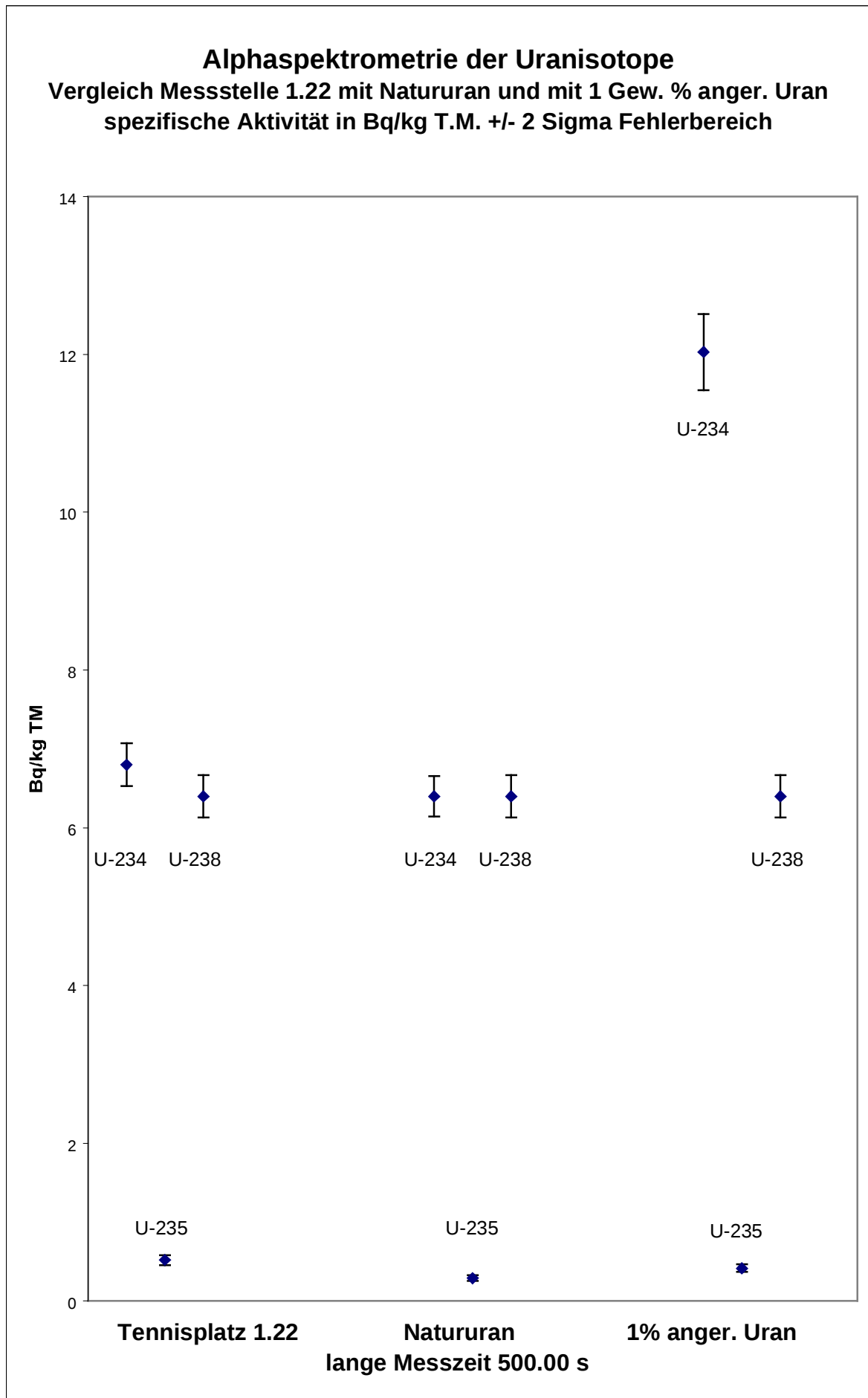




Abbildung 32

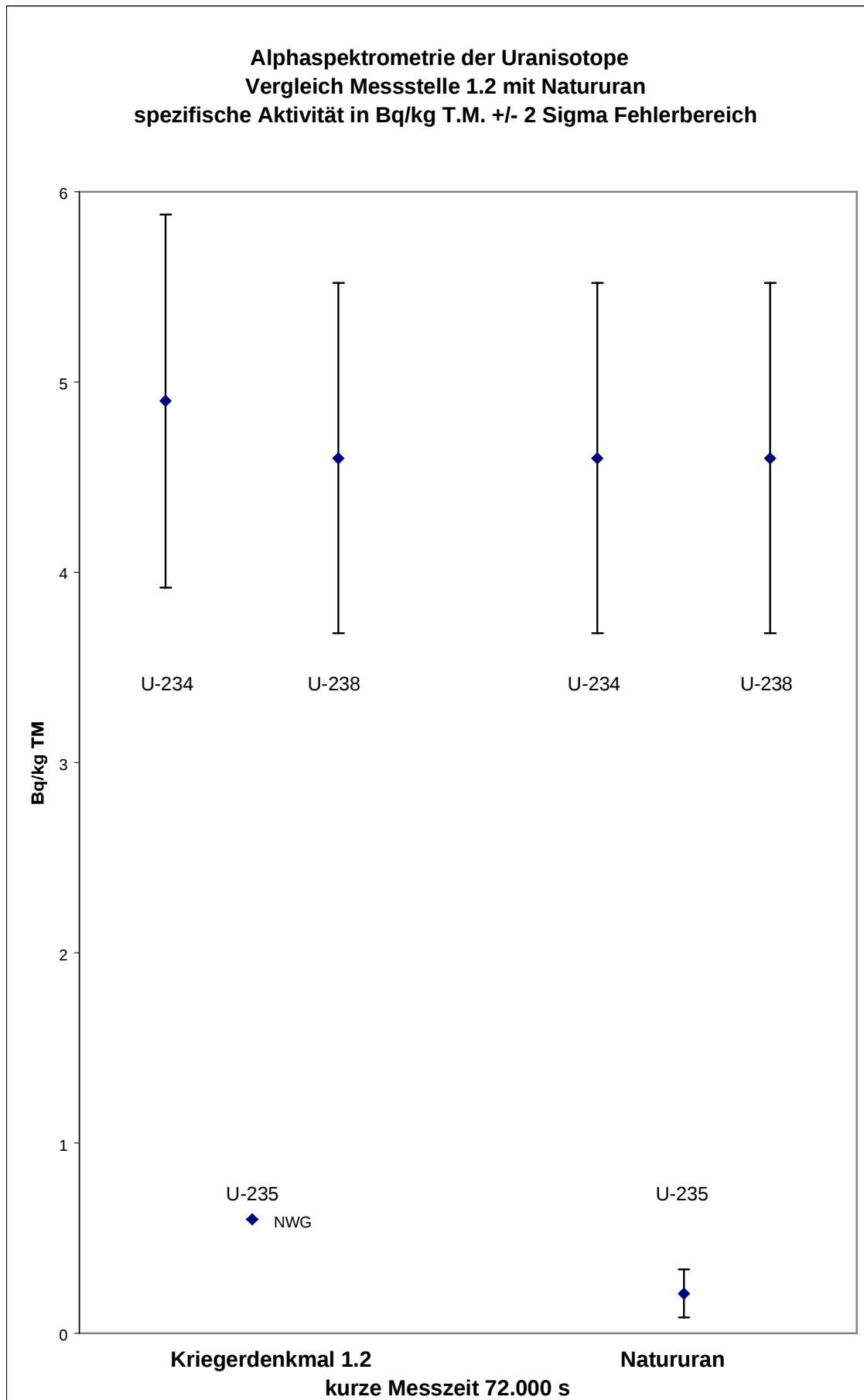




Abbildung 34

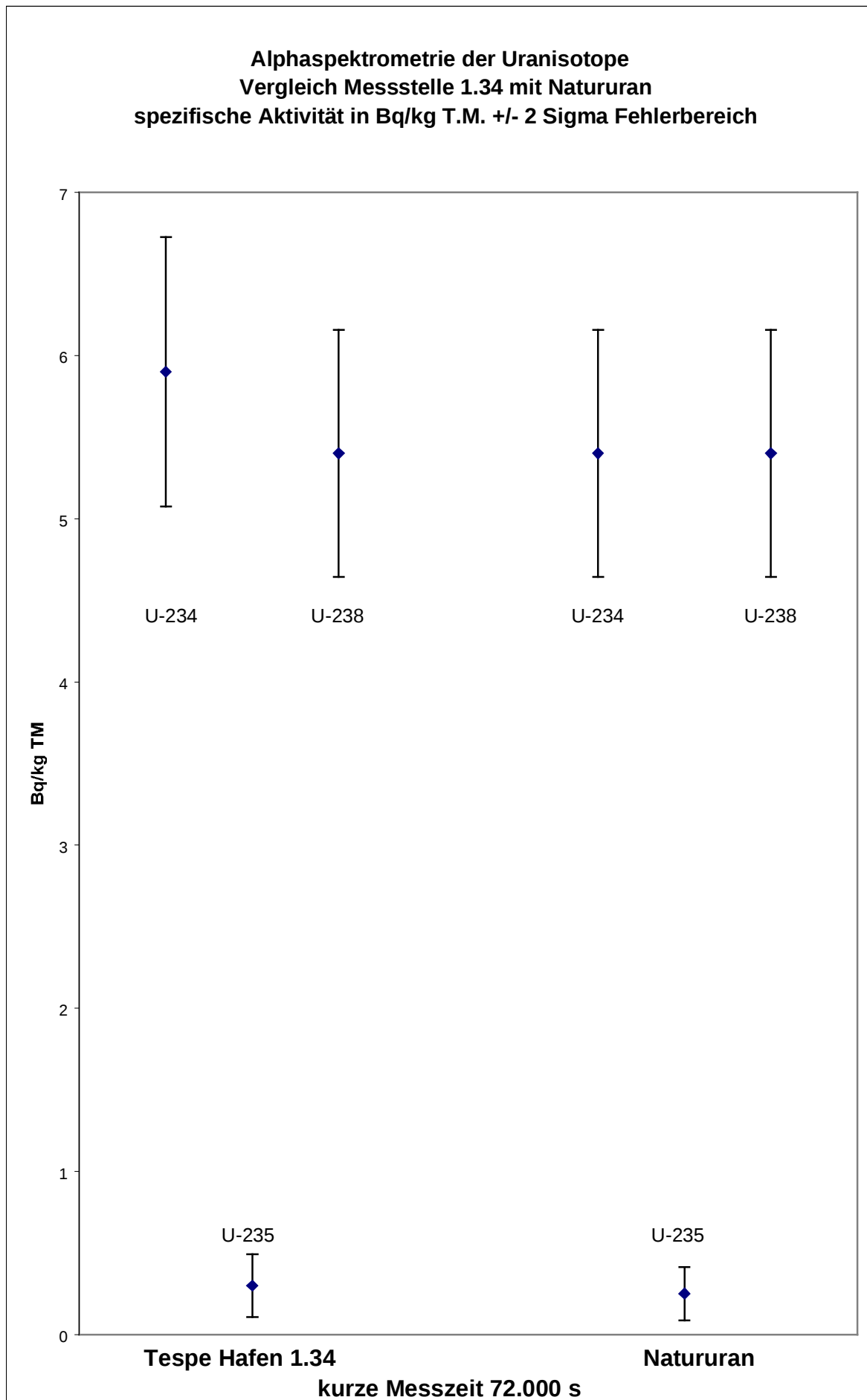




Abbildung 35

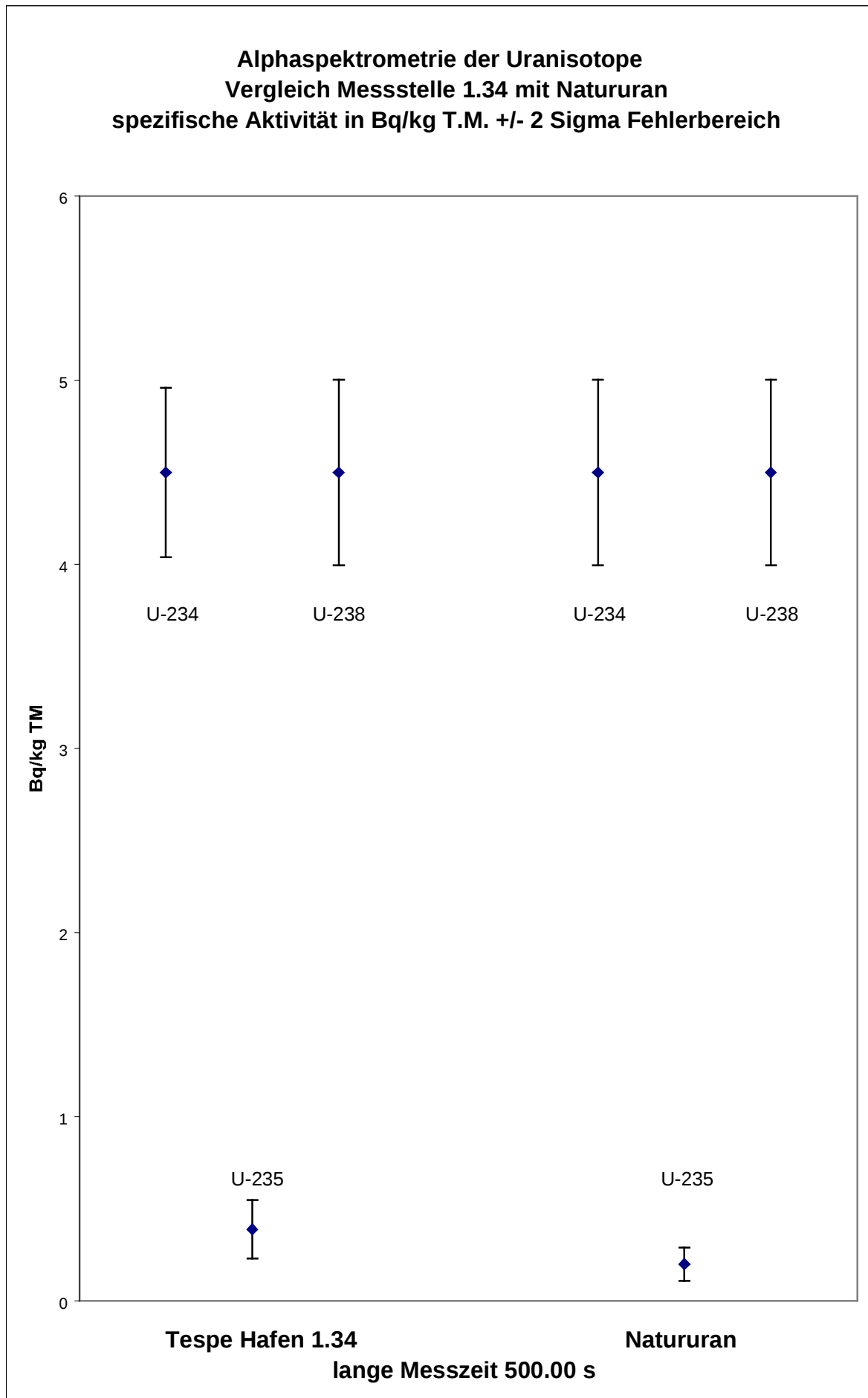




Abbildung 36

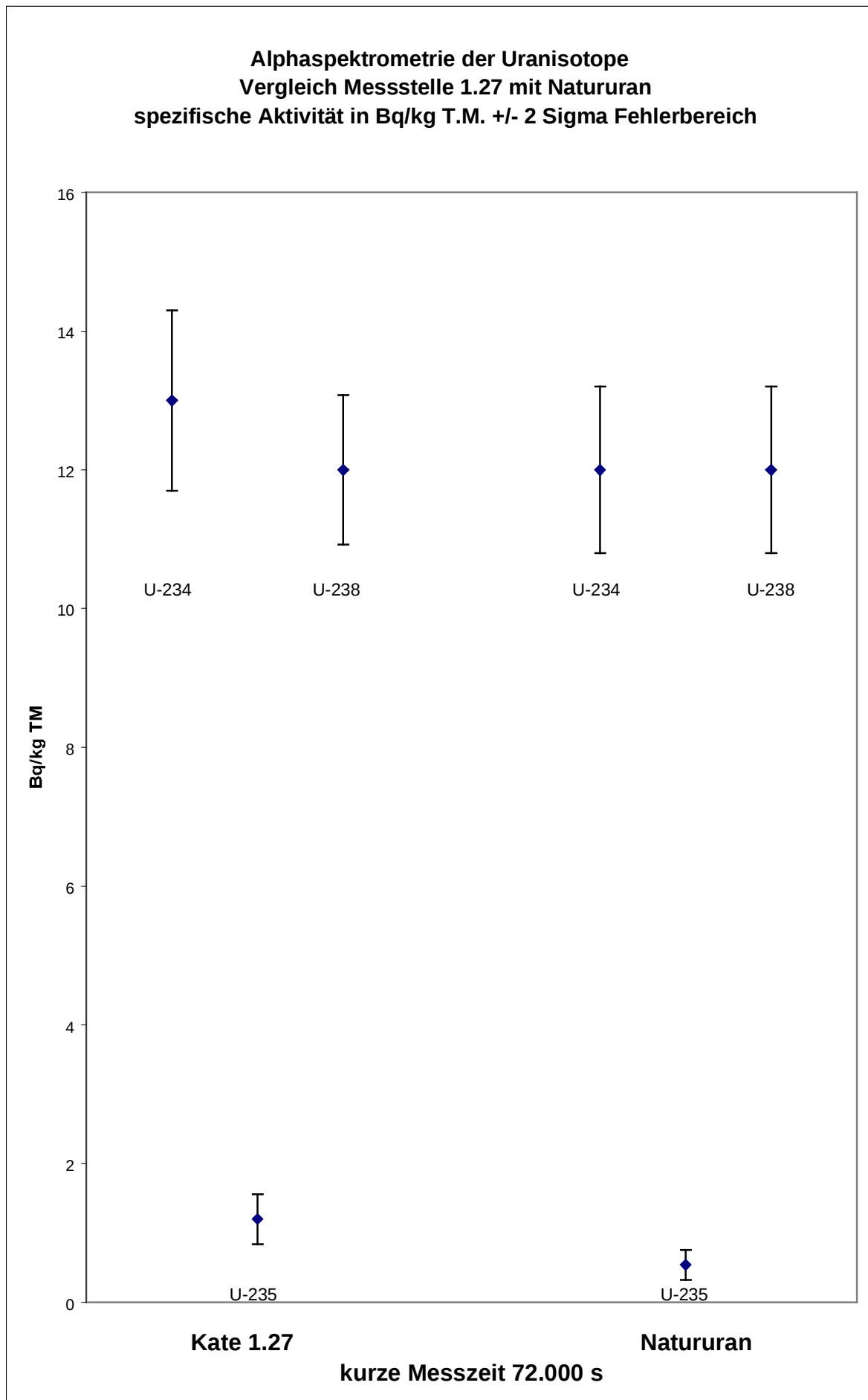




Abbildung 37

