# Korrelation der Cs-137-Kontamination von Pilz- und Bodenproben

Schriftliche Hausarbeit im Rahmen der Ersten Staatsprüfung für das Lehramt an Gymnasien/Gesamtschulen, dem Landesprüfungsamt für Erste Staatsprüfungen für Lehrämter an Schulen -Geschäftsstelle Kölnvorgelegt von:

> Markus Gebhardt Köln, den 17.12.16

Universität zu Köln Mathematisch-Naturwissenschaftliche Fakultät Abteilung Nuklearchemie PD Dr. Erik Strub

# Inhaltsverzeichnis

I.	Abl	Abbildungsverzeichnis					
II.	I. Tabellenverzeichnis iv						
Zu	Zusammenfassung1						
1.	Ein	leitur	ng2				
1	l.1	Vor	arbeiten 2				
1	1.2	Frag	gestellung3				
2.	The	eoreti	sche Grundlagen4				
2	2.1	Das	Atlas Projekt				
2	2.2.	Vor	arbeiten der Abteilung Nuklearchemie8				
	2.2	.1.	Vorarbeit durch Sonnauer				
	2.2.	.2.	Vorarbeit durch Schütz9				
	2.2.	.3.	Vorarbeit durch Gasper				
2	2.3.	Bod	leninformationen13				
	2.3	.1.	Bodenbestandteile und -klassifikation13				
	2.3	.2.	Vertikale Verteilung der Cs-Kontamination15				
2	2.4.	Cs-2	Aufnahme von Pilzen17				
3.	Me	ssme	thode und Proben				
	3.1.	Prol	benmaterial20				
	3.1	.1.	Probenorte				
	3.1	.2.	Probenpräparation				
	3.2.	Mes	ssmethode				
4.	Erg	ebnis	se und Diskussion				
2	4.1.	Bod	lenproben26				
	4.1	.1.	Bestimmung der Zählraten der Standards 26				
	4.1	.2.	Aktivitätsbestimmung der Realproben				
	4.1	.3.	Korrekturfaktoren				
2	4.2.	Pilz	proben32				
	4.2	.1.	Bestimmung der Zählraten der Standards				
	4.2	.2.	Aktivitätsbestimmung der Pilzproben				
2	4.3.	Bes	timmung eines Transferfaktors				
	4.3	.1.	Beziehung Boden-Pilze				
	4.3	.2.	Beziehung O-Horizont-Pilze				

5.	. Weitergehende Schlussfolgerungen				
5	5.1. Bewertung der Korrekturverfahren				
5	.2.	Ver	gleich der ermittelten Bodenkontaminationen mit den Messdaten des ATLAS-		
Р	rojek	ts		3	
5	.3.	Kor	nsistenz der Pilzmessungen4	5	
5	.4.	Tra	nsferfaktor4	5	
	5.4.	1.	Beziehung Boden-Pilz4	5	
	5.4.	2.	Beziehung O-Horizont-Pilze	9	
6.	Refl	exio	n und Ausblick5	3	
III.	Lite	ratur	verzeichnis	v	
IV.	IV. Anhangvii				
Γ	IV.I. Bodenprobenvii				
	IV.I.I. Einzelmessungen der Bodenprobenvii				
	IV.I.II. Materialdichteix				
Γ	IV.II. Pilzprobenxi				
V.	. Danksagungxii				
VI.	VI. Eigenständigkeitserklärungxii				

# I. Abbildungsverzeichnis

Abbildung 1 - Beispiel für ein Semi-Variogramm für den polnischen Datensatz des ATLAS-
Projektes (De Cort, et al., 1998)
Abbildung 2 - Vergleich der Feldliniendarstellung (l.) und der Voronoi-Polygone (r.) (De
Cort, et al., 1998)7
Abbildung 3 – Bodenartendiagramm (Blume, Stahr, & Leinweber, 2011)
Abbildung 4 - Modellprognose der vertikalen <sup>137</sup> Cs-Verteilung (Fielitz U., 2005)16
Abbildung 5 - Vergleich der <sup>137</sup> Cs - Aufnahme der Pilzgattungen (Kammerer, Hiersche, &
Wirth, 1994)
Abbildung 6 - Probenstandorte in Deutschland inkl. Kennnummer im ATLAS (De Cort, et al.,
1998)
Abbildung 7 - Probenstandort in Italien inkl. Kennnummer im ATLAS (De Cort, et al., 1998)
Abbildung 8 - Probenstandort in der Slowakei inkl. Kennnummer im ATLAS (De Cort, et al.,
1998)
Abbildung 9 - Standort der weißrussischen Steinpilzprobe (De Cort, et al., 1998)23
Abbildung 10 - Probenbehälter Boden
Abbildung 11 - Probenbehälter Pilz
Abbildung 12 - Gammaspektrum in "GammaVision" mit ROI-Markierung für Cs-137 24
Abbildung 13 - durchschnittliche Flächenaktivität der Probenorte
Abbildung 14 - Flächenaktivität nach der Durchführung der Korrekturen
Abbildung 15 - spezifische Pilzaktivität der Einzelmessungen (käuflich erworbene Pilzproben
ausgenommen)
Abbildung 16 - spezifische Aktivität der Steinpilzproben
Abbildung 17 - durchschnittliche spezifische Aktivität der Pfifferling-Proben
Abbildung 18 - Auftragung der Flächenaktivität normiert mittels dem Blumenerde-Standard
über die spezifische Aktivität
Abbildung 19 - Korrelation Steinpilz-Boden (Normierung auf Blumenerde-Standard)
Abbildung 20 - Korrelation Pilze-Boden (Blumenerde-Standard)
Abbildung 21 - Korrelation Pilze-O-Horizont (Blumenerde-Standard)
Abbildung 22 - Bestimmung der Flächenaktivität durch den Transferfaktor
Abbildung 23 - Bestimmung der Flächenaktivität durch den Transferfaktor für Pilze
unbekannter Lokalisierung
Abbildung 24 - Poisson-Verteilung des <sup>137</sup> Cs-Gehaltes im Boden

## II. Tabellenverzeichnis

Tabelle 1 - Standorte der gesammelten Proben	. 22
Tabelle 2 - Anzahl der Pilzproben	. 22
Tabelle 3 - Zählrate der Bodenstandards	. 26
Tabelle 4 – durchschnittliche Zählraten der Bodenproben. Die angegebene Unsicherheit	
berechnet sich aus der einfachen Standardabweichung der Einzelmesswerte am jeweiligen	
Standort	. 27
Tabelle 5 – durchschnittliche Flächenaktivität der Bodenproben. Die angegebene Unsicherl	heit
berechnet sich aus der einfachen Standardabweichung der Einzelmesswerte am jeweiligen	
Standort	. 28
Tabelle 6 - Mischungskoeffizienten der K-Korrektur	. 30
Tabelle 7 - Flächenkontamination nach Durchführung der D- und K-Korrektur	. 31
Tabelle 8 - Zählraten der Pilz-Standards	. 33
Tabelle 9 - durchschnittliche Zählrate der Pilzstandards	. 33
Tabelle 10 - durchschnittliche spezifische Aktivität der Steinpilz-Proben mit Angabe der	
Standardabweichung	. 35
Tabelle 11 - spezifische Aktivität der Pfifferling-Proben	. 36
Tabelle 12 - Transferfaktor der unterschiedlichen Pilzarten	. 39
Tabelle 13 - Transferfaktoren unter Berücksichtigung beider Pilzarten	. 40
Tabelle 14 - Flächenaktivität der oberen Bodenschicht	.41
Tabelle 15 - Transferfaktor der oberen 5 cm Boden	. 42
Tabelle 16 - durchschnittliche Abweichung der Flächenaktivität	. 43
Tabelle 17 - Cs-137-Flächenaktivität am 10.05.1986. Berechnet und aus dem ATLAS (De	
Cort, et al., 1998)	. 44
Tabelle 18 - Vergleich mit Sonnauer (2015)	. 46
Tabelle 19 - Vergleich mit Fielitz (2001)	. 46
Tabelle 20 - Rückrechnung von Bodenkontaminationswerte aus Pilzkontamination und den	n
Transferfaktor mit ATLAS-Vergleich (De Cort, et al., 1998)	. 47
Tabelle 21 - Transferfaktoren (Blumenerde-Standard) der Bodenschichten im Vergleich	. 49
Tabelle 22 - Tiefenmessung von Gasper (2016)	. 50
Tabelle 23 - Bestimmung der Flächenaktivität durch den Transferfaktor der oberen	
Bodenschicht	. 51
Tabelle 24 - Bodenprobenmessung auf dem "Kölner Detektor"	.vii
Tabelle 25 - Bodenprobenmessung auf dem "Mainzer Detektor" (Messungen nach ADC-	
Ausfall grau schattiert)	viii
Tabelle 26 - Dichtebestimmung des Bodenmaterials	ix
Tabelle 27 - Einzelmessungen der Pilzproben (Messung nach ADC-Ausfall grau schattiert)	.xi

## Zusammenfassung

In dieser Arbeit wurden unterschiedliche Pfifferling- und Steinpilz-Proben gesammelt und hinsichtlich ihres <sup>137</sup>Cs-Gehaltes in Form der spezifischen Aktivität mithilfe der Gammaspektrometrie untersucht. Zusätzlich wurden an den Fundorten Bodenproben bis zu einer Tiefe von 10 cm genommen. Für diese Proben wurde die Flächenaktivität ermittelt und mit der spezifischen Aktivität der Pilze durch die Bestimmung eines Transferfaktors in Zusammenhang gesetzt. Dabei konnte festgestellt werden, dass Pfifferlinge und Steinpilze zwar eine vergleichbare Tendenz zur <sup>137</sup>Cs-Akkumulation besitzen, die Aufnahme aber nicht ohne weiteres durch einen linearen, funktionellen Zusammenhang beschrieben werden kann. Vielmehr haben offenbar weitere Einflussfaktoren Auswirkungen auf die Cs-Anreicherung im Fruchtkörper des Pilzes, wobei aufgezeigt werden konnte, dass der Einfluss durch die vertikale Verteilung des <sup>137</sup>Cs in den oberen Bodenschichten vernachlässigt werden kann.

## 1. Einleitung

## 1.1 Vorarbeiten

Im Jahre 2016 jährte sich zum 30. Mal der Tag des Kernreaktor-Unfalls von Tschernobyl in der Ukraine. Am 26.04.1986 ereignete sich eine bis dahin beispiellose Nuklearkatastrophe, als ein Block des Kernkraftwerkes Tschernobyl explodierte und auf diese Weise radioaktive Nuklide aus dem Reaktor austreten konnten. Bedingt durch die damalige Wettersituation konnten sich die ausgetretenen Nuklide in weiten Teilen Europas und Asiens verteilen und sind bis heute nachweisbar (Koepp & Koepp-Schewyrina, 1996). Kurz nach dem Unfall waren dabei die Isotope <sup>131</sup>I und <sup>134</sup>Cs von besonderer Bedeutung, da sie aufgrund ihrer chemischen Eigenschaften als Halogen und Alkalimetall vom menschlichen Körper gut aufgenommen werden. So kann es beispielsweise durch Anreicherung von <sup>131</sup>I zu Schädigungen der Schilddrüse kommen (United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, 2008). Doch aufgrund ihrer vergleichsweise kurzen Halbwertszeit  $(t_{1/2})^{(131)} =$ 8,02 d;  $t_{1/2}(^{134}Cs) = 2,06 a$ ) spielen sie mittel- bis langfristig nur eine untergeordnete Rolle hinsichtlich der radiologischen Effekte. Diesbezüglich ist <sup>137</sup>Cs mit einer Halbwertszeit von  $t_{1/2}(^{137}Cs) = 30,17 a$  vom besonderen Interesse (United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, 2008). Es wird noch über Jahre hinweg Auswirkungen auf das Ökosystem haben und auf diesem Weg in den menschlichen Körper gelangen. Um die Ausbreitung des <sup>137</sup>Cs abschätzen zu können, wurde 1986 das ATLAS-Projekt (De Cort, et al., 1998) ins Leben gerufen, welches sich mit der Kartographie hinsichtlich der <sup>137</sup>Cs-Kontamination in Europa beschäftigt hat. Zu diesem Zweck wurden in weiten Teilen Europas Boden- und Luftproben gesammelt, um den <sup>137</sup>Cs-Gehalt in diesen zu bestimmen. Jedoch lagen nicht für jedes europäische Land hinreichende Messergebnisse vor, sodass manche Länder (Balkanländer) von der Kartographie ausgeschlossen wurden. Somit können in diesen Ländern die Auswirkungen auf das Ökosystem und dementsprechend auf Nahrungsmittel nur ungenau prognostiziert werden. Dies ist vor allem unter dem Gesichtspunkt bemerkenswert, dass die Balkanländer einen der größten Lieferanten für Wildpilze, wie Pfifferlinge und Steinpilze, präsentieren.

Daher hat die Arbeitsgruppe "Grundlagen der Kernchemie und analytischen Anwendungen" der Abteilung Nuklearchemie der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät der Universität zu Köln ein Projekt gestartet, um zu überprüfen, ob sich diese Lücken im ATLAS-Projekt auf der Basis der Untersuchung von Wildpilzproben schließen lassen. In dieser Hinsicht wurde durch Sonnauer (2015) zunächst ein erster Versuch unternommen, eine Proportionalität zwischen der Boden- und Pilzkontamination festzustellen. Die Ergebnisse aus dieser Arbeit sind jedoch mit Vorsicht zu betrachten, da keine genauen Flächenaktivitäten zu den Bodenproben vorlagen, sondern nur gemittelte Werte aus dem ATLAS-Projekt verwendet wurden. Um die Messung bezüglich Effizienz und Genauigkeit zu verbessern, erarbeitete Schütz (2016) eine geeignete Methode zur Aktivitätsbestimmung mittels künstlich imprägnierter Pilz- und Bodenproben als Messstandards, welche durch Gasper (2016) an Bodenproben erprobt wurde.

## 1.2 Fragestellung

Das Ziel der vorliegenden Arbeit ist, die von Schütz und Gasper etablierte Methode auf Pilzproben anzuwenden und die Ergebnisse hinsichtlich eines funktionellen Zusammenhangs zwischen den Boden- und Pilzaktivitäten zu untersuchen.

Zu diesem Zweck werden zunächst einige theoretische Grundlagen dargestellt, um den weiteren Fortgang der Arbeit zu plausibilisieren. Anschließend wird die verwendete Messmethode und die gesammelten Proben präsentiert und daraufhin die Messergebnisse vorgestellt. In einer abschließenden Diskussion werden die Ergebnisse bewertet und in einer Reflexion die Erkenntnisse eingeordnet.

## 2. Theoretische Grundlagen

Zunächst gilt es für eine angemessene Betrachtung der zu untersuchenden Thematik einige theoretische Grundlagen zu klären. Zu diesem Zweck wird an erster Stelle näher auf das ATLAS-Projekt eingegangen und daraufhin die Vorarbeiten der Abteilung Nuklearchemie durch Sonnauer, Schütz und Gasper erläutert werden. Anschließend werden die untersuchten Bodenschichten sowie die Aufnahme des Radiocäsiums durch verschiedene Pilzarten genauer präsentiert.

#### 2.1 Das Atlas Projekt

Der Atlas of Caesium deposition in europe after the Chernobyl accident ist ein Projekt unter der Schirmherrschaft der Europäischen Union gewesen, an dem sich u.a. Institute aus Weißrussland, Russland, Ukraine und der EU beteiligt haben. Das Ziel dieser Arbeit war, Informationen zur Verteilung der <sup>137</sup>Cs-Kontamination zu erarbeiten, um die Gesamtmenge der Deposition in Europa abschätzen zu können. Zu diesem Zweck wurden über 400.000 Datenmessungen vorgenommen, die auf unterschiedlichen Messmethoden beruhten. Ein Teil der Datensätze lieferte dabei Informationen zu der Gammastrahlung des in der Luft befindlichen <sup>137</sup>Cs. Für den anderen Teil wurden hingegen Bodenproben untersucht und die Aktivität des Radiocäsiums in diesem Material bestimmt. Auch bei der Entnahme von Bodenproben gab es kein vollständig einheitliches Vorgehen, was die Bestimmung einer Flächenkontamination ( $kBq/m^2$ ), mit der Absicht eines europäischen Vergleichs, erschwerte (De Cort, et al., 1998).

Bevor die erhobenen Messdaten ausgewertet wurden, wurden sie zunächst auf ihre Gültigkeit hin untersucht. Die Überprüfung lief über mehrere Schritte ab (Dubois & De Cort, 2001):

 Im ersten Schritt wurden die ermittelten Messwerte auf ihre Sinnhaftigkeit untersucht. D.h. dass zum einen negative Werte nicht berücksichtigt und Werte unterhalb der Detektionsgrenzen ausgeschlossen wurden. In manchen Fällen, wie z.B. in Deutschland, ist es jedoch aufgetreten, dass solche Werte stattdessen als "Null" gesetzt wurden (Winter, Völkle, Narrog, Meyer, & Kirchhoff, 1986). Um weitere Werte auszuschließen, welche der Logik widersprechen, wurde bei bekannten Messdaten bezüglich der <sup>134</sup>Cs-Menge, das <sup>137</sup>Cs/<sup>134</sup>Cs-Verhältnis betrachtet. Wenn der Fall zutraf, dass die Messwerte von der Isotopensignatur des beim Tschernobyl freigesetzten Cäsiums abwichen, blieben sie ebenfalls unberücksichtigt. Diesbezüglich wurde eine Abweichung von 25 % toleriert; dieser Wert wurde jedoch willkürlich gesetzt.

- In einem weiteren Schritt wurden die Probleme bei der lokalen Festlegung der Datensätze berücksichtigt. Durch Ungenauigkeiten, z.B. aufgrund von Kartenmaßstäben, konnte es vorkommen, dass Messwerte innerhalb von Seen oder Meeren lokalisiert wurden. Diese Daten wurden ebenfalls bei der Auswertung außen vorgelassen. Außerdem wurden Datensätze an Staatsgrenzen ignoriert, da nur regionale Messungen berücksichtigt wurden (Dubois & De Cort, 2001).
- In einem dritten Schritt wurden mögliche fehlerhafte Werte ausgeschlossen. Dazu wurde die räumliche Verteilung über bestimmte Gebiete betrachtet. D.h. es wurden Werte-Paare aus den gegebenen Messwerten z an zwei unterschiedlichen Standorten x und x + h in diesem Gebiet gebildet, wobei h den Abstand der beiden Messpaare zueinander darstellt. Würde in diesem Gebiet eine homogene Verteilung vorliegen, würden alle Messwerte den gleichen Wert besitzen und es würde z(x) = z(x + h) gelten. Bei der Auftragung von z(x + h) über z(x) in einem kartesischen Koordinatensystem würde sich in diesem Fall eine Diagonale zeigen. Weichen nun Messwerte von dieser idealen Gerade stark ab, wurde dies als Hinweis darauf gewertet, dass die Werte fehlerhaft sind (Dubois & De Cort, 2001).

Von der Annahme ausgehend, dass nun korrekte und gültige Messdaten vorliegen, wurden diese als gesamte Verteilung in Europa dargestellt. Im ATLAS wurden dafür zwei Methoden verwendet: Die *inverse distance weighted* (IDW)-Interpolation und die *Voronoi*- bzw. *Thiessen-Polygone* (De Cort, et al., 1998).

Die IDW-Interpolation ist eine Abschätzung aufgrund der gegebenen räumlichen Verteilung. Der Grundgedanke ist dabei, dass unbekannte Werte  $z_k$  an einem Standort  $P_k$  durch einen gewichteten Mittelwert von nahegelegener Messwerte  $z_i$  an den Orten  $P_i$  abgeschätzt werden sollen (de Lange, 2013):

$$z_k = \frac{\sum_{i=1}^n f(d_{ki}) \cdot z_i}{\sum_{i=1}^n f(d_{ki})}$$

Wobei  $d_{ki}$  den Abstand zwischen den Standorten  $P_k$  und  $P_i$  und f(d) die Gewichtungsfunktion darstellt.

Im Falle der IDW-Interpolation wurde für die Gewichtungsfunktion die inverse Distanz angenommen. Demnach gilt:

$$f(d) = \frac{1}{d_{ki}^p}$$

Daraus lässt sich ableiten, dass der lokale Einfluss der Messwerte mit der Entfernung abnimmt, da  $\lim_{d\to\infty} f(d) = 0$ . Außerdem kann durch geeignete Wahl des Exponenten p dieser Einfluss verstärkt werden. Traditionell liegt dafür der Wert bei p = 2 (Dubois & De Cort, 2001).

Um den Umkreis der zu berücksichtigenden Messpunkte festzulegen, wurde ein Semi-Variogramm (s. Abbildung 1) zur Hilfe gezogen. Dabei wurden Wertepaare gebildet und in Gruppen eingeteilt. Die mittlere Varianz dieser sog. *Lags* wurden anschließend über den Abstand *h* aufgetragen.



Abbildung 1 - Beispiel für ein Semi-Variogramm für den polnischen Datensatz des ATLAS-Projektes (De Cort, et al., 1998)

Der maximale Radius des Umkreises wurde nun über die Distanz (*range*) festgelegt, an der die Varianz beginnt zu konvergieren. Innerhalb dieses Radius' wurden anschließend die ersten 6 Messnachbarn zur Interpolation betrachtet (De Cort, et al., 1998).

Um die Messwerte inklusive der interpolierten Daten anschaulich zu präsentieren, hat man sich im Zuge des ATLAS-Projektes auf die Darstellung durch Feldlinien (*isolines*) geeinigt (Abbildung 2). Dabei stellen die *isolines* die Grenzen von Aktivitätsintervallen dar, welche farblich markiert sind, wodurch der Vorteil entsteht, dass die kontinuierliche Verteilung der Kontamination deutlich wird (De Cort, et al., 1998). Außerdem kann beobachtet werden, dass die Feldlinien oftmals an den Landesgrenzen verlaufen, was auf die unterschiedlichen Messmethoden hinweisen kann (Dubois & De Cort, 2001). Jedoch werden durch diese Form der Darstellung mögliche Abweichungen der Werte nicht berücksichtigt, da wenn für die Interpolation für eine kleine Fläche nur eine geringe Anzahl an Werten vorlag, die interpolierten Daten nicht zwingend als richtig betrachtet werden können. Zur weiteren Interpretation sollten daher im Allgemeinen statt den Interpolationswerten die im Folgenden beschriebenen *Voronoi-Polygone* genutzt werden (s. Abbildung 2).

Bei dieser Methode werden keine zusätzlichen Werte abgeschätzt, sondern die untersuchten Gebiete so in Polygone aufgeteilt, dass jeder Punkt innerhalb eines Polygons dem zugeordneten Messwert am nächsten ist. In diesen Polygonen liegen demnach homogene Werteverteilungen vor, es hat folglich jeder Punkt *i* den gleichen Messwert  $z_i = z$ . Auf diesem Wege wird vor allem deutlich, dass nur einzelne Messwerte erhoben wurden, wobei es schwierig erscheint, die Wertsprünge an den Grenzen zu erklären (de Lange, 2013; De Cort, et al., 1998).



Abbildung 2 - Vergleich der Feldliniendarstellung (I.) und der Voronoi-Polygone (r.) (De Cort, et al., 1998)

Es zeigt sich also insgesamt, dass das ATLAS-Projekt aufgrund der Auswertungsmethoden sinnige Modelle der <sup>137</sup>Cs-Deposition in Europa darstellen kann, es aber nicht den Anspruch erhebt, die Realität exakt wiederzugeben. Schon die unterschiedlichen Messmethoden und die teils willkürliche Ausgrenzung von Datensätzen stellen mögliche Fehlerquellen bei der

Darstellung dar. Insbesondere sind sowohl für die Feldliniendarstellung als auch für die Voronoi-Polygone lokale Abweichungen umso wahrscheinlicher, je weiter die ursprünglichen Messpunkte auseinanderliegen. Somit sind auch für die unten beschriebenen eigenen Messungen (vgl. 5.2) entsprechende Abweichungen vom ATLAS-Datensatz zu erwarten.

## 2.2. Vorarbeiten der Abteilung Nuklearchemie

#### 2.2.1. Vorarbeit durch Sonnauer

Mit dem Ziel, Prognosen hinsichtlich der Flächenkontamination für nicht-untersuchte Flächen des ATLAS-Projektes abzugeben, wurde durch P. Sonnauer im Jahr 2015 bereits ein erster Versuch unternommen, einen Zusammenhang zwischen der Kontamination durch <sup>137</sup>Cs von Wildpilzen und der Bodenkontamination abzuleiten (Sonnauer, 2015). Dazu untersuchte Sonnauer (2015) im Zuge seiner Staatsexamsarbeit insgesamt 44 Pilzproben unterschiedlicher Arten und verglich diese mit den Flächenkontaminationswerten, welche durch das ATLAS-Projekt gegeben wurden. Die Pilzproben waren dabei zum Teil im Einzelhandel erworben und stammten aus Osteuropäischen Ländern wie Polen und Weißrussland. Der andere Teil der untersuchten Pilze wurde in Deutschland und Nord-Italien selbst gesammelt. Als Vorteil der selbst gesammelten Proben erwies sich, dass eine genaue Lokalisierung durch genommene GPS-Koordinaten möglich war. Somit konnten die Proben präziser den Polygonen des ATLAS-Projektes zugeordnet werden. Im Gegensatz dazu konnten die gekauften Pilze in der Regel nur regional zugeordnet werden, da die Angaben der Händler zu diesem Zweck zu vage waren.

Zur Messung wurden die Proben bis zur Gewichtskonstanz getrocknet, zerkleinert und in einem Messbehälter luftdicht verpackt. Anschließend wurden die Proben mit Hilfe eines Ge(Li)-Detektors untersucht und die Aktivitäten mittels des Analyseprogramms "GammaVision32" bestimmt. Der Umstand, dass die ermittelten Aktivitäten, aufgrund der jeweiligen Messgeometrie, korrigiert werden mussten, erwies sich in der Arbeit von Sonnauer als problematisch, da die Bestimmung der Aktivität auf diesem Wege mit schwer abschätzbaren systematischen Fehlern behaftet ist. Aufgrund der Unsicherheit bei der Effizienzbestimmung des verwendeten Detektors resultiert eine weitere Unsicherheit der endgültigen Aktivitätsmesswerte, was zur Folge hatte, dass die Ergebnisse nur eingeschränkt betrachtet werden konnten.

Hinsichtlich der Auswertung zur Bestimmung eines Koeffizienten zwischen der Pilz- und Bodenkontamination stellte Sonnauer (2015) fest, dass die Flächenkontaminationswerte des ATLAS-Projekts über eine große Spannweite verteilt waren. Demnach überstreichen, an den Sammelorten, die zugeordneten Flächenkontaminationswerte in einigen Fällen, aufgrund der ungenauen Lokalisierung, zwei Größenordnungen. Dies führte zu einer großen Unsicherheit bei dem berechneten Koeffizienten zwischen der Pilz- und Bodenkontamination. Als Ergebnis erhielt Sonnauer (2015) für den Koeffizienten den Wert:

$$Pilz - Bodenkontaminations - Umrechnungsfaktor = 63,54$$

Angewandt auf die Pilzproben zur Bestimmung der Bodenkontamination ließ sich, aufgrund eines pauschal angenommenen Fehlers von 50%, welcher auf den angegebenen Auswertungsproblemen beruht, nicht konkret beurteilen, ob ein tatsächlicher klarer Zusammenhang zwischen der bestimmten spezifischen Aktivität der Pilzproben und den prognostizierten Bodenkontaminationen durch das ATLAS-Projekt vorliegt. Sonnauer (2015) empfahl daher, ebenfalls Bodenproben an den Fundorten zu untersuchen, um die gegebenen Schwankungen zu eliminieren und den Umrechnungsfaktor einschätzen zu können.

## 2.2.2. Vorarbeit durch Schütz

Um die beschriebene aufwändige Bestimmung der Aktivitäten aufgrund der veränderlichen Messgeometrie und der Effizienzkalibrierung des Ge(Li)-Detektors zu vereinfachen, entwickelte Schütz ein Messverfahren, welches auf den Vergleich mit Messstandards beruht (Schütz, 2016). Das Prinzip dabei ist, dass Standardpräparate mit bekannter Geometrie und Aktivität hergestellt werden und die eigentlichen Messproben dieser jeweiligen Geometrie angepasst werden. Auf diesem Wege kann die Aktivität einer beliebigen Probe durch den direkten Vergleich mit den Zählraten des Standardpräparates bestimmt werden, da der Geometrie- und Absorptionsfaktor vernachlässigt werden kann und sich die (unbestimmte) Effizienz des Detektors auf Standard und Messprobe in gleicher Weise auswirkt.

Insgesamt wurden zu diesem Zweck während der Staatsexamsarbeit neun Boden- und vier Pilzstandards hergestellt. Für die Bodenstandards wurden dabei sowohl Blumenerde und Sand aus dem Einzelhandel, als auch Realbodenproben aus Lohmar und Troisdorf genutzt. Zur Präparation wurden die Proben in jeweils einen Probenbehälter gegeben und mit destilliertem Wasser und einer <sup>137</sup>Cs -Lösung versetzt und gemischt. Anschließend wurden sie bis zur Gewichtskonstanz getrocknet und verschlossen. Durch den Vergleich der Aktivität der verwendeten <sup>137</sup>Cs-Lösung mit einem zertifizierten <sup>137</sup>Cs-Standard in einer geeigneten

Geometrie wurde ein Kalibrierfaktor bestimmt. Für alle Standardpräparate resultiert damit die jeweils gleiche Aktivität von (86,24  $\pm$  0,67) *Bq* je Präparat.

Für die Pilzstandards wurde analog vorgegangen, nur, dass anstatt von Bodenmaterialien Champignons zunächst zerkleinert und daraufhin auf analoge Weise präpariert wurden. Einen Sonderfall bildet jedoch der vierte Pilzstandard, da dieser nur zur Hälfte der Behälterhöhe gefüllt ist. Dies ermöglicht eine genauere Bestimmung der Aktivität von Pilzproben, für die nur eine kleine Menge an Pilzen gesammelt werden konnte.

Insgesamt decken die von Schütz (2016) präparierten Standards Bezug auf die Bodenproben damit ein Spektrum unterschiedlicher Dichten abdeckt und lassen hinsichtlich der Pilzproben eine Variabilität der gemessenen Pilzmenge zu. Damit können im Standard-Probe-Vergleich Abweichungen minimiert werden. Die verbleibenden Diskrepanzen beruhen vor allem auf der unterschiedlichen Dichte der einzelnen Standardproben. Schütz (2016) konnte zeigen, dass die Messeffizienz wie erwartet abnimmt, je größer die Dichte der Probe ist. Dieses Phänomen kann durch das Absorptionsgesetz erklärt werden, welches besagt, dass die Intensität I einer elektromagnetischen Strahlung im Medium proportional zur Dichte abnimmt. Da laut dem Absorptionsgesetz gilt:

$$I = I_0 e^{-\mu x}$$

mit  $\mu$  dem Schwächungskoeffizienten und x der Weglänge. Der Schwächungskoeffizient steht dabei im direkten Zusammenhang mit der Dichte  $\rho$  des Materials:

$$\mu = \rho \cdot \frac{N_A}{A} \sum_i \sigma_i$$

Worin  $\sigma_i$  die Wirkungsquerschnitte der einzelnen Wechselwirkungsprozesse (Photoeffekt, Compton-Streuung und Paarerzeugung) angibt und  $N_A$  der Avogadro-Konstanten entspricht.

Somit wird ersichtlich, dass die Intensität exponentiell mit dem Schwächungskoeffizienten und daher ebenso mit der Materialdichte abnimmt (Bethge, Wiedemann, & Walter, 2008; Schütz, 2016).

Des Weiteren konnte Schütz (2016) nachweisen, dass mit Abnahme der Füllhöhe des Standardpräparats die Effizienz hingegen zunimmt. Dies erklärte er dadurch, dass die Aktivität der Probe über die <sup>137</sup>Cs-Lösung festgelegt wurde und diese Lösung durch die niedrigere Füllhöhe im Gesamten in einem kleineren Volumen näher am Detektor lokalisiert ist. Dadurch

ergibt sich eine höhere gemessene Gesamtintensität, da sich die mittlere Weglänge der elektromagnetischen Strahlung im Vergleich zu einer vollen Standardprobe verkürzt.

#### 2.2.3. Vorarbeit durch Gasper

Mithilfe der durch Schütz (2016) hergestellten Bodenstandards untersuchte Gasper anschließend die Bodenkontamination unterschiedlicher Gebiete Deutschlands (Gasper, 2016). Dazu betrachtete er 44 verschiedene Proben von vier Standorten aus den Regionen Sauerland, Nordeifel und Süd-West-Bayern. An jedem der Standorte wurden dabei mehrere Proben genommen und zur Untersuchung der vertikalen Aktivitätsverteilung zwei differenzierte Bodenschichten analysiert. Zur Probenentnahme wurde die Bodenauflage zunächst entfernt und daraufhin die ersten 5 cm des Bodens mittels eines Stechzylinders aus dem Boden entnommen. Ferner wurden ebenfalls die zweiten 5 cm des Bodens - folglich die Tiefe von 5 - 10 cm - auf diese Weise ausgehoben.

Die anschließende Präparation im Labor diente dazu, die entnommenen Realproben den Messstandards anzugleichen. Aus diesem Grund wurden größere Fremdkörper in den Proben entfernt und die Proben bis zur Gewichtskonstanz getrocknet. Eine vergleichbare Messgeometrie erhielt Gasper (2016) dadurch, dass die getrocknete Bodenmasse in Behälter gegeben wurden, welche die gleichen Maße wie die Standardpräparate aufwiesen. Dadurch konnte die absolute Aktivität der Proben einfach durch das Verhältnis der Zählraten bestimmt werden. Dieses Verfahren wird im Folgenden als Standardmessverfahren bezeichnet.

Bei der Untersuchung der einzelnen Messproben eines Standortes zeigte sich, dass die Streuung der ermittelten Aktivitäten der einzelnen Messungen größer war, als der statistische Fehler der Einzelwerte. Diese Streuung wertete Gasper (2016) daher als Auswirkungen der tatsächlichen lokalen Schwankungen der Bodenaktivität. Die Aktivitäten wurden auf das Jahr 1986 zurückextrapoliert und wurden mit den damals ermittelten Bodenkontaminationswerten verglichen. Dabei ließ sich feststellen, dass die bestimmten Aktivitäten mit den ATLAS-Kontaminationswerten an 3 von 4 Standorten übereinstimmen. Ausgenommen ist der Standort Stolberg (Eifel), an welchem im Vergleich eine höhere Bodenkontamination verzeichnet wurde. Aus dieser Abweichung bei sonstiger guter Übereinstimmung der Werte folgerte Gasper (2016), dass dort augenscheinlich ein lokales Aktivitätsmaximum vorläge. Dies belegte ein weiteres Mal, dass für die genaue Ermittlung eines Boden-Pilz-Transferfaktors die Entnahme

einer Bodenprobe zwingend notwendig ist, da offensichtlich die tatsächlichen Bodenaktivitäten außerhalb der angegebenen Schwankungen des ATLAS-Projektes liegen können.

Insgesamt konnte die Standardmessmethode somit angemessene Ergebnisse liefern, jedoch machte Gasper (2016) darauf aufmerksam, dass zwar die Messgeometrie durch die Probenbehälter der Messproben und Standards vergleichbar war, die Dichten jedoch nicht übereinstimmten. Daher überprüfte er zwei verschiedene Verfahren, um die bestimmten Bodenkontaminationswerte über die Bodendichte zu korrigieren. Die Korrekturen beruhen dabei auf drei Annahmen:

- Die Bodenschichten der oberen 10 cm setzen sich größtenteils aus humosen und lehmigen Boden zusammen
- Blumenerde ist ein rein humoser Boden
- Lehm besteht zu einem Großteil aus Sand

Davon ausgehend führte Gasper (2016) zum einen eine subjektive Klassifizierung der Bodentypen (*K-Korrektur*) in die Gruppen "humos", "lehmig" und "humos/lehmig" durch. Dabei wurde die "humose" Klasse mit dem Standard der Blumenerde gleichgesetzt, die "lehmigen" Proben mit einer Linearkombination aus 50 % Blumenerde und 50 % Sand und abschließend die "humos/lehmig"-Klassifizierung als Zusammensetzung von 75 % Blumenerde und 25 % Sand festgelegt.

Als zweite Möglichkeit wurde die Korrektur durch ein lineares Mischungsverhältnis aus dem Standard der Blumenerde und des Sandes in Abhängigkeit von der Dichte erarbeitet (*D*-*Korrektur*). Bei Kenntnis der Probendichte kann auf diesem Wege eine mögliche Bodenzusammensetzung berechnet werden und auf den Standard-Proben-Vergleich in Form einer Linearkombination angewandt werden.

Die ermittelten Aktivitäten nach Anwendung der Korrekturen zeigten, dass die Streubreite der Einzelwerte eines Standorts durch die D-Korrektur signifikant reduziert werden konnten, wobei gleichzeitig die ermittelten Aktivitätswerte geringfügig niedriger ausfielen. Somit kann man annehmen, dass die korrigierten Werte, aufgrund der geringeren Streuung den tatsächlichen Aktivitäten näherkommen als die unkorrigierten Werte.

Der Vergleich zeigt jedoch, dass auch bei der Durchführung der Korrekturen die Abweichung der Werte aus Stolberg von den Werten des ATLAS-Projekts bestehen bleibt.

### 2.3. Bodeninformationen

## 2.3.1. Bodenbestandteile und -klassifikation

Im Allgemeinen ist es Ziel der vorliegenden Arbeit, einen Austauschfaktor zwischen dem Fruchtkörper von Pilzen und dem Boden zu finden, welcher unabhängig von den Eigenschaften der Bodenschichten ist. Dennoch erscheint es sinnvoll, eine Klassifizierung der Bodenschichten vorzunehmen, um etwaige Einflüsse bzw. gegebene Abweichungen der Messdaten einordnen zu können. Daher sollen kurz die grundlegenden Einflussfaktoren auf die Bodenbildungsprozesse dargestellt werden.

Der Boden ist als die oberste Schicht der Erdoberfläche definiert, in welcher belebte Masse vorliegt. Aus welchen Bestandteilen er besteht, hängt dabei von einer Vielzahl an Faktoren zusammen: Klima, Gestein, Relief, Bodenwasser, Flora und Fauna, menschliche Wirtschaftsweise, Zeit. Durch diese große Anzahl an Variablen der Bodenentwicklung kann



Abbildung 3 – Bodenartendiagramm (Blume, Stahr, & Leinweber, 2011)

man schon erkennen, dass auf kleinen Gebieten unterschiedliche Bodentypen vorliegen können. Das Klima hat im Gesamten betrachtet starken Einfluss auf die einen Verwitterung und somit den stärksten Einfluss auf die Entwicklung des Bodens, da es einen großen Bereich, wie z.B. die Temperatur, den Niederschlag oder den Wind, steuert, welcher Boden den direkt beeinträchtigt. In dieser Hinsicht bestimmt auch das Relief die Bodenentwicklung, da die Topographie die kleinklimatischen

Verhältnisse verändern kann (Faust, 2011). So kann eine Hanglage beispielsweise zu einer verstärkten Sonneneinstrahlung führen und somit zu höheren Temperaturen in den Bodenschichten. Die grundlegenden Bestandteile des Bodens können in mineralische und organische unterteilt werden. Die mineralischen Bestandteile setzen sich dabei aus drei Hauptbodenarten zusammen: Sand, Schluff und Ton (Faust, 2011). Alle mineralischen Böden, wie z.B. Lehm, setzen sich aus einem Gemisch aus diesen drei Hauptbestandteilen zusammen

(s. Abbildung 3) und weisen je nach Zusammensetzung unterschiedliche Eigenschaften auf. Grund dafür sind unteranderem unterschiedliche physikalisch-chemische Eigenschaften wie der Ionenaustausch der Bodenbestandteile. Aufgrund eines negativen Ladungsüberschusses weisen beispielsweise Tonmineralien eine hohe Kationenaustauschkapazität (*KAK*) auf. D.h. sie binden eine große Menge an Kationen, welche ausgetauscht werden können, wobei gilt, dass höherwertige Kationen stärker gebunden sind und der Austausch erschwert ist (Opp, 2011).

Ein qualitatives Maß der Austauschkapazitäten ergibt sich aus der elektrischen Leitfähigkeit und dem pH-Wert. So beschreibt die elektrische Leitfähigkeit den Gesamtgehalt an gelösten Ionen im Boden und kann daher als Maßzahl für die Intensität des Austausches genutzt werden. Der pH-Wert verändert hingegen das Reaktionsmilieu des Bodens, sodass der Stoffumsatz beeinflusst wird. Er ist daher eine Maßzahl für die Reaktionsfähigkeit des Bodens. So hat sich gezeigt, dass in einem sauren Milieu, die KAK geringer ausfällt, als in einer neutralen Umgebung (Opp, 2011).

Neben den mineralischen Tonmaterialien weisen auch organische Bestandteile einen erhöhten KAK auf. Diese organischen Bodenzusammensetzungen kommen zumeist in dem oberen Bodenprofilbereich vor und bestehen aus abgestorbenen organischen Substanzen (*Humus*), Bodenleben (*Edaphon*) und lebenden Pflanzenwurzeln. Dabei kann der Humusfraktion 80-85 % der gesamten organischen Masse zugewiesen werden, dem Edaphon hingegen 5-10 %, sowie den lebenden Pflanzenwurzeln ca. 10 %. Das Edaphon besteht dabei aus Flora (Bakterien, Pilze, Flechten etc.) und Fauna (Regenwürmer, Larven, Amöben etc.) und übernimmt in der Bodenschicht unteranderem die Aufgabe die abgestorbenen pflanzlichen und tierischen Stoffe der Humusfraktion umzusetzen, wobei die Endprodukte Wasser, Kohlenstoffdioxid und Pflanzennährstoffe sind. Folglich sind die organischen Bestandteile ebenfalls an der Bodenentwicklung elementar beteiligt (Faust, 2011).

Wenn man nun eine Bodenprobe betrachtet, kann man diese in verschiedene Horizonte bzw. Schichten parallel zur Bodenoberfläche unterteilen, in welchen die unterschiedlichen Bodenentwicklungsprozesse erkennbar sind. Man klassifiziert dabei im Allgemeinen die

- Organischen Horizonte
- Oberbodenhorizonte (A-Horizont)
- Unterbodenhorizonte (B-Horizont)
- Ausgangssubstrate (C-Horizont).

Der organische Horizont umfasst in den Klassifikationssystemen die Humusauflage, welche sich auf den Mineralböden absetzt. Darunter befindet sich der A-Horizont, welcher sich durch einen mineralischen Oberboden auszeichnet und mit humosen Substanzen angereichert ist. Dieser kann eine Tiefe von wenigen Zentimetern bis zu einigen Dezimetern umspannen. Daraufhin folgt in der Vertikalen der B-Horizont, welcher vor allem aus mineralischen Bestandteilen besteht. Das Festgestein unter diesen Schichten wird abschließend als C-Horizont klassifiziert. Somit nimmt insgesamt mit der Tiefe der organische Anteil des Bodenprofils ab und stattdessen steigt das mineralische Vorkommen an (Völkel, 2011).

### 2.3.2. Vertikale Verteilung der Cs-Kontamination

Es scheint plausibel, dass die Aufnahme von Radiocäsium durch die Pilze vom <sup>137</sup>Cs-Gehalt in den Bodenschichten abhängig ist, welche die Nährstoffe für die Pilze bereitstellen. Daher ist es von Interesse, die vertikale Verteilung des <sup>137</sup>Cs im Boden zu betrachten und die Abhängigkeiten der Verteilung näher zu beleuchten. Einen wichtigen Einflussfaktor stellt dabei die Kationenaustauschkapazität (vgl. 2.3.1) dar. Da die Humus- und Tonsubstanzen, welche sich vorwiegend im Oberboden befinden, eine große KAK aufweisen, können diese die Cs-Ionen in großen Mengen aufnehmen. Daher wird der <sup>137</sup>Cs-Gehalt in den oberen Schichten des Bodens sein Maximum haben.

Diesen Sachverhalt konnten Strebl et al. (2000) in Bodenmessungen reproduzieren, wobei sie auf Dauer einen Trend in Richtung einer Tiefenverlagerung nachwiesen. Auch Kammerer et al. (1994) konnten eine erhöhte Aktivität im O-Horizont nachweisen.

Da offensichtlich der Ionenaustausch die Cs-Verteilung beeinflusst, gilt es demnach auch den pH-Wert zu berücksichtigen. Wie bereits beschrieben ist die Intensität des Ionenaustauschs proportional abhängig vom biochemischen Milieu des Bodensubstrats. Daher führt eine Veränderung des pH-Werts ebenfalls zu einer Umverteilung des Cs-Gehaltes in den Bodenschichten (Strebl, Bossew, Kienzl, & Hiesel, 2000).

Als einen weiteren Einflussfaktor auf die vertikale Verteilung lassen sich ebenso das Edaphon, sowie die Pflanzenwurzeln nennen. Diese nehmen das Cäsium auf, setzen es biochemisch um und verlangsamen auf diese Weise die Tiefenverlagerung, da bei der Pflanzenaufnahme die Nährstoffe wieder in die oberen Schichten transportiert werden. In dieser Hinsicht spielt der Gehalt an Tonmineralen auch eine zentrale Rolle, da diese als Bindungsmedium dienen, wodurch das Cäsium leichter durch beispielsweise Wurzeln aufgenommen werden kann (Strebl, Bossew, Kienzl, & Hiesel, 2000). Den Einfluss des Edaphons und der Pflanzen- und Tierwelt auf die <sup>137</sup>Cs-Verteilung im Boden hat Fielitz (2005), aufbauend auf einen Datensatz 1996-2002, versucht durch ein aus den Jahren mathematisches Modell aus Differentialgleichungen zu beschreiben. Dabei berücksichtigte er einerseits die Migration, Fixierung und Desorption des Radiocäsiums durch die Bodenkompartimente, aber auch andererseits die unterschiedlichen Verzehrraten der Pflanzen und Tiere. Das Modell prognostizierte ebenfalls einen Trend in Richtung Tiefenverteilung und schätzte für das Jahr 2010 ein Maximum des <sup>137</sup>Cs-Gehalts in den Tiefen zwischen 10 bis 20 cm ab. Demnach liegt in dieser Schicht ca. 53 % des im Boden enthaltenen <sup>137</sup>Cs vor und in den oberen Schichten nur



Abbildung 4 - Modellprognose der vertikalen <sup>137</sup>Cs-Verteilung (Fielitz U. , 2005)

noch unter 25 %. Diese Tendenz zieht sich in den Folgejahren fort, sodass das Maximum der Verteilung sich in eine immer größere Bodentiefe verschiebt (Fielitz U. , 2005).

Gasper konnte jedoch im Jahr 2016 mit seinen Messungen in bis zu 20 cm Bodentiefe jedoch diese prognostizierte Verteilung nicht verifizieren. Seine empirischen Daten aus Lohmar und Troisdorf zeigen, dass zwischen 60-80 % des gesamten <sup>137</sup>Cs -Gehaltes noch in den oberen 5 cm des Bodens bzw. sogar 80-90 % in den oberen 10 cm vorzufinden sind (Gasper, 2016). Somit reichen die Annahmen für das Prognose-Modell von Fielitz offensichtlich nicht für eine quantitative Aussage aus und es müssten weitere Parameter bestimmt werden. Qualitativ bleibt aber die Grundannahme, dass auf Dauer eine Tiefenverteilung zu verzeichnen ist, bestehen.

## 2.4. Cs-Aufnahme von Pilzen

Im Zuge dieser Staatsexamsarbeit werden die Pilzarten Pfifferlinge und Steinpilze hinsichtlich ihrer Aufnahme von <sup>137</sup>Cs untersucht. Allgemein kann man Pilze in drei Gattungen unterteilen: Saprophyten, Parasiten, Symbionten. Die Klassifizierung läuft u.a. über die Art der Nährstoffaufnahme ab, da alle Gattungen auf Nährstoffe von externen Substraten angewiesen sind. Die Saprophyten ernähren sich dabei durch die enzymatische Zersetzung von totem Gewebe, wo hingegen parasitäre Pilze einen lebenden Wirt benötigen, um von diesem, Nährstoffe zu erhalten. Die Symbionten, unter welche die Pfifferlinge und Steinpilze fallen, leben, in Abgrenzung dazu, in einer Symbiose mit einem pflanzlichen Partner, wodurch die Nährstoffaufnahme beider optimiert wird (Strebl, Bossew, Kienzl, & Hiesel, 2000). Innerhalb dieser drei Gattungen können unterschiedliche Stärken der Cäsium-Aufnahme nachgewiesen werden (s. Abbildung 5). So nehmen offensichtlich Symbionten signifikant mehr Radiocäsium auf, als die Gattung der Saprophyten und Parasiten (Strebl, Bossew, Kienzl, & Hiesel, 2000; Kammerer, Hiersche, & Wirth, 1994).



Abbildung 5 - Vergleich der <sup>137</sup>Cs -Aufnahme der Pilzgattungen (Kammerer, Hiersche, & Wirth, 1994)

Jedoch konnten empirische Studien zeigen, dass innerhalb der Gattungen bei Artverwandten ebenfalls erhebliche Unterschiede auftreten können. So zeigt beispielsweise der Hohlfußröhrling eine bedeutsam höhere <sup>137</sup>Cs -Aktivität als andere Dickröhrlingsverwandte (Battiston, Degetto, Gerbasi, & Sbrignadello, 1989). Auch konnte bei Maronenröhrlingen eine besonders hohe Anreicherung verzeichnet werden, wohingegen Steinpilze eine niedrige Akkumulation aufweisen (Strebl, Bossew, Kienzl, & Hiesel, 2000; Fielitz U. , 2001).

Allgemein erfolgt die Anreicherung von Cäsium im Fruchtkörper des Pilzes über Pulvinsäuren, welche die Ionen aus dem Boden in den Pilz transportieren. Diese Säuren sitzen dabei im Farbstoff der Huthaut (Ternes, 2013). Jedoch wäre es offensichtlich nicht ausreichend, die Akkumulationsabweichungen der Artverwandten auf Unterschiede der Pulvinsäurenfunktion im Pilz zu reduzieren. Kaduka et al. (2006) konnten auf weitere Einflüsse hinweisen und machten verschiedene Bodeneigenschaften als Faktor der Cäsium-Anreicherung aus. So konnten sie eine statistisch signifikante Abhängigkeit zum pH-Wert und dem Tonanteil im Nährboden nachweisen (Kaduka , et al., 2006).

Um den Einfluss des Bodens auf die <sup>137</sup>Cs-Menge im Pilz zu untersuchen, hilft die Verwendung eines Transferfaktors in Form eines Quotienten aus der spezifischen Aktivität des Pilzes und der Flächenaktivität des Bodens (Fielitz U. , 2001):

$$TF = \frac{spezifische^{137}Cs - Aktivität \ der \ getrockneten \ Pilzsubstanz \ [kBq \cdot kg^{-1}]}{^{137}Cs - Flächenaktivität \ der \ getrockneten \ Bodensubstanz \ [kBq \cdot m^{-2}]}$$

Man könnte auch die jeweiligen spezifischen Aktivitäten vergleichen, jedoch liegt im Boden keine vertikale, homogene Massenverteilung vor, was zu Ungenauigkeiten bei der Bestimmung des Transferfaktors führen kann. Daher bietet sich die Verwendung der Flächenkontamination an, da auf diesem Wege die vertikale Verteilung vernachlässigt werden kann (Fielitz U., 2001). Fielitz (2001) konnte dabei für die zu untersuchenden Pfifferlinge und Steinpilze ähnliche Transferfaktoren im Bereich von  $TF \approx 27 \cdot 10^{-2} m^2 \cdot kg^{-1}$  bestimmen. Wobei Pfifferlinge mit einem Transferfaktor von  $TF(Pf) = 27.6 \cdot 10^{-2} m^2 \cdot kg^{-1}$  leicht höher ausfielen, als die Steinpilze mit  $TF(St) = 26.1 \cdot 10^{-2} m^2 \cdot kg^{-1}$ . Zur Bestimmung der Flächenaktivität des Bodens zur Ermittlung der beiden Transferfaktoren untersuchte Fielitz (2001) eine 10.000 m<sup>2</sup> -Fläche, welche er in 4 Quadrate unterteilte. In jedem dieser Quadrate entnahm er 9 Bohrproben bis zu einer Tiefe von 20 cm und fügte sie zu einer Mischprobe zusammen. Die Flächenaktivitäten der Mischproben der einzelnen Quadrate wurden abschließend für das gesamte Gebiet gemittelt. Dabei konnte Fielitz (2001) feststellen, dass nicht unerhebliche Schwankungen hinsichtlich der Flächenaktivität vorlagen. Der spezifischen Aktivität der Pilze betreffend, entnahm Fielitz (2001) auf der Probefläche mehrere Mischproben aus mindestens 3-5 Exemplaren einer Pilzgattung. Für die Gattung der Pfifferlinge konnte er im Jahr 2000 auf diesem Wege 3 Pilzproben auf dem 10.000 m<sup>2</sup>-Gebiet sammeln und bezüglich der Steinpilze weitere 24 Proben. Zur Anwendung auf den Transferfaktor wurden die Aktivitätswerte der Einzelproben gemittelt und auch hier konnte Fielitz (2001) gegebene Unsicherheiten nachweisen. Daher fasst Fielitz (2001) zusammen, dass, aufgrund dieser Unsicherheiten der Aktivitäten, der Transferfaktor mit Vorsicht betrachtet werden muss, da bei weiteren Pflanzenund Pilzproben unterschiedliche Transferfaktoren bestimmt werden konnten.

Auch Kammerer et al. (1994) haben den Transferfaktor von verschiedenen Pilzproben untersucht. Bei den ermittelten Werten kann man erkennen, dass der Austausch von Radiocäsium von Pfifferlingen und Steinpilzen mit den Bodenschichten in vergleichbaren Dimensionen abläuft. Wobei zur Berechnung dieses Faktors die spezifische Aktivität des Bodens genutzt wurden und somit Spannweiten von  $TF_{minimal}(Pf) = 0,06$  bis hinzu  $TF_{maximal}(Pf) = 0,37$  bestimmt wurden (Kammerer, Hiersche, & Wirth, 1994).

## 3. Messmethode und Proben

Folgend wird zunächst die Beschaffung und Präparation des Probenmaterials beschrieben und anschließend die durchgeführte Messmethode dargestellt. Grundsätzlich orientierte sich die Durchführung der Messreihe an den Vorarbeiten der Abteilung (vgl. 2.2)

## 3.1. Probenmaterial

## 3.1.1. Probenorte

Aufbauend auf die Messreihe von Gasper (vgl. 2.2.3) wurden die Messergebnisse für das Sauerland-Gebiet (Schmallenberg und Altastenberg) übernommen (Gasper, 2016). Zusätzlich zu diesen 22 Proben wurden in einem Zeitraum von April-November 2016 insgesamt 32 weitere Bodenproben an 7 unterschiedlichen Standorten in Deutschland (s. Abbildung 6), Italien (s. Abbildung 7) und der Slowakei (s. Abbildung 8) ausgehoben und ausgewertet.

Von Gaspers (2016) Erkenntnissen ausgehend, dass ca. 80-90 % des gesamten Cs-Gehaltes in den oberen 10 cm des Bodens liegen, wurden mit Hilfe eines metallischen Stechzylinders zwei 5-cm-Intervalle in bis zu 5 cm Tiefe aus der Bodenschicht entfernt. Zur einfacheren



Abbildung 6 - Probenstandorte in Deutschland inkl. Kennnummer im ATLAS (De Cort, et al., 1998)



Abbildung 7 - Probenstandort in Italien inkl. Kennnummer im ATLAS (De Cort, et al., 1998)



Abbildung 8 - Probenstandort in der Slowakei inkl. Kennnummer im ATLAS (De Cort, et al., 1998)

Handhabung wurden den Bodenproben Zahlenkürzel zugeordnet und hinsichtlich der Namensgebung nahegelegene Ortschaften bzw. Gemeinden genutzt (s. Tabelle 1).

Um die Bodentiefe der Probe zu kennzeichnen, wurde den Kennnummern eine weitere Ziffer angefügt. So steht die "1" für eine Bodentiefe von 0-5 cm und die "2" für das Intervall zwischen 5-10 cm. Als Beispiel steht folglich das Kürzel "15.2" für die Remscheider Bodenprobe in einer Tiefe zwischen 5 und 10 Zentimetern.

Kennnummer	Probenstandort	Gebiet	Anzahl der Bodenproben	
4 und 5	Linz	Mittelrhein, Westerwald	3	
6 und 7	Gemünd	Eifel	4	
8	Schmallenberg Sauerland		12	
9	Altastenberg	Altastenberg Sauerland		
13	Rabland	Südtirol (Italien)	6	
14	Dünnwald (Köln)	Rheingebiet	4	
15	Remscheid	Bergisches Land	2	
16	Sulovce	Oberes Nitratal	4	
		(Slowakei)		
17 Maikammer		Pfalz	9	

Tabelle 1 - Standorte der gesammelten Proben

An den Standorten der Bodenproben wurden 13 Pilzproben gesammelt, davon acht der Gattung Steinpilze und fünf Pfifferling-Proben (s. Tabelle 2). Bei der Entnahme wurde der Pilz samt Stiel vom Boden getrennt. Aufgrund der Tatsache, dass die Boden- und Pilzproben in der Regel nicht zeitgleich genommen wurden, variieren die Fundorte teilweise um bis zu 900 m (Altastenberg).

Kennummer	Probenstandort	Anzahl der Pfifferling-Proben	Anzahl der Steinpilz-Proben
4 und 5	4 und 5 Linz		1
6 und 7	Gemünd	-	1
8 Schmallenberg		1	1
9 Altastenberg		-	1
13 Rabland		1	-
14 Dünnwald (Köln)		1	-
15 Remscheid		-	1
16	16 Sulovce		1
17	17 Maikammer		2

Um die Pilzproben zu kennzeichnen, wurden diese ähnlich zu den Bodenproben mit einem Kürzel versehen. Zu diesem Zweck wurden die Kennnummern der Fundorte mit einem "Pf" für Pfifferlinge oder einem "St" für Steinpilze erweitert. So gibt folglich das Kürzel "15.St" die Remscheider Steinpilzprobe an.

Zuzüglich zu den gesammelten Proben wurden weitere Pfifferling-Proben aus Litauen, Rumänien und Serbien käuflich erworben, von welchen jedoch eine genaue Standortbestimmung nicht möglich war. Zudem konnte der Bestand um eine Steinpilz-Probe aus Weißrussland erweitert werden, welche nahe der Stadt Schodsina, ca. 50 km nordöstlich von Minsk, festgelegt werden konnte (s. Abbildung 9).



Abbildung 9 - Standort der weißrussischen Steinpilzprobe (De Cort, et al., 1998)

## 3.1.2. Probenpräparation

Für die Messung wurden die Proben wie folgt aufgearbeitet (vgl. 2.2.2): Steine und andere Fremdkörper wurden aus den **Bodenproben** entfernt. Anschließend wurde die Masse bis zur



Gewichtskonstanz getrocknet und in einen Probenbehälter mit den gleichen Maßen des Standards gegeben. Die Geometrie ist dabei durch eine kreisförmige Grundfläche von  $A = 20 \ cm^2$ und einer Höhe von  $h = 7 \ cm$  gegeben. Daraus resultiert ein Volumen von ca.  $V \approx 140 \ cm^3$  (s. Abbildung 10). Die Bodenproben wurden gewogen, die Füllhöhe der Behältnisse abgemessen und die Dichten der Präparate berechnet (s. Anhang IV.I.II). Außerdem wurden die Proben hinsichtlich Gaspers

Abbildung 10 - Probenbehälter Boden

Klassifikationssystem (2016)"humos", "lehmig" oder "humos/lehmig" eingeordnet (vgl. 2.2.3).

Die Pilzproben wurden im Labor zunächst grob gesäubert, zerkleinert und anschließend ebenfalls bis zur Gewichtskonstanz getrocknet. Daraufhin wurden die Pilzstücke in einen zylindrischen Standardbehälter mit den Maßen  $A = 19,6 \ cm^2$ ,  $h = 2,5 \ cm$  und  $V = 49 \ cm^3$  gegeben (s. Abbildung 11) und gewogen (s. Anhang Abbildung 11 - Probenbehälter Pilz



## 3.2. Messmethode

IV.II).

Die Proben wurden nach dem Standardmessverfahren gemessen (vgl. 2.2.3). Ausgewertet wurde, mithilfe des Auswertungsprogrammes Gammavision, die Nettopeakfläche der 661-keV-Linie von <sup>137</sup>Cs, korrigiert um die Untergrundmessung des jeweiligen Detektors. Der Untergrund im <sup>137</sup>Cs-Peak wurde jeweils durch eine Untergrundmessung bestimmt, welche über 2 Tage ablief. Zur Bestimmung der Nettopeakfläche wurde nach der Durchsicht aller erhaltenen Spektren die "region of interest" (ROI) einheitlich für alle Spektren eines Detektors festgelegt und so die Nettopeakflächen und der resultierende statistische Fehler bestimmt (s. Abbildung 12).



Abbildung 12 - Gammaspektrum in "GammaVision" mit ROI-Markierung für Cs-137

Der Quotient aus den gemessenen Nettozählraten der Proben ( $\dot{N}_{Probe}$ ) und der Standards  $(\dot{N}_{standard})$  spiegelt direkt das Verhältnis der Aktivitäten wider. Demnach gilt:

$$\frac{\dot{N}_{Probe}}{\dot{N}_{Standard}} = \frac{A_{Probe}}{A_{Standard}}$$

Durch eine äquivalente Umformung kann folglich die absolute Aktivität der Probe ( $A_{Probe}$ ) bestimmt werden:

$$A_{Probe} = \frac{N_{Probe}}{\dot{N}_{Standard}} \cdot A_{Standard}$$

Als Vergleichs-Standards für die Bodenproben wurden die Blumenerde- und Sand-Standards von Schütz (2016) genutzt und für die Pilzproben die von ihm hergestellten Pilz-Standards (Pilze 1, Pilze 2, Pilze 3, Pilze 4 (halb)). Zur Bestimmung der Zählraten sämtlicher Präparate wurden zwei verschiedene Ge(Li)-Halbleiter-Detektoren genutzt (nach Abteilungsnomenklatur "Kölner Burg" und "Mainzer Burg"). Die beiden Detektoren arbeiten mit unterschiedlichen Messgeometrien, da in der "Mainzer Burg" die Probe vertikal auf dem Detektor aufliegt und die Probe in der "Kölner Burg" horizontal vor diesen geschoben wird. Da beim Standardmessverfahren die Bestimmung der Aktivität relativ zum Standard in gleicher Messgeometrie erfolgt, sind trotzdem beide Messergebnisse vergleichbar, wodurch sich die effektive Messzeit verdoppeln ließ. Trotzdem wurden alle Pilz- und Bodenproben jeweils auf der "Kölner"- und "Mainzer-Burg" gemessen, um die Konsistenz der Messwerte zu belegen.

Die Messzeiten der Bodenproben resultierten dabei aus den Erfahrungen von Gasper (2016) und wurden auf t = 18.600 s für die Bodenstandards, sowie t = 79200 s für die Bodenproben festgelegt, da die geringen statistischen Fehler in dieser Messzeit von unter 1 % im Falle der Bodenstandards und ca. 4 % für die Bodenproben bestätigt werden konnten.

Bei den Pilzproben wurde aufgrund der geringeren Masse eine geringere Zählrate erwartet und die Messzeit der Pilzproben auf 2 Tage, t = 172.800 s, festgelegt. Daraus resultierte letztlich bei den Zählraten ein statistischer Fehler (Angabe aus *Gammavision*) von durchschnittlich ~13 %, mit einzelnen Abweichungen bis hinzu 25 % bei niedrigen Zählraten. Diese relativ hohen Unsicherheiten sind im Wesentlichen auf den relativ hohen Untergrund der "Kölner Burg" zurückzuführen. Vermutlich aufgrund einer leichten Kontamination von <sup>137</sup>Cs ergibt sich dort eine Untergrundzählrate von ca. 22 Ereignissen pro Stunde. Wenn nur der Mainzer Detektor betrachtet wurde, belief sich die durchschnittliche Abweichung auf ca. 5 %. Somit konnten die großen Unsicherheiten bei der Messung erklärt werden und sie wurden ebenso aufgrund des begrenzten Bearbeitungszeitraumes als vertretbar angenommen. Bei den Pilzstandards hingegen konnten schon bei einer Messzeit von t = 7200 s angemessene Messergebnisse mit einem statistischen Fehler von maximal 1 % erzielt werden.

## 4. Ergebnisse und Diskussion

## 4.1. Bodenproben

## 4.1.1. Bestimmung der Zählraten der Standards

Aufgrund des Umstandes, dass zur Bestimmung der Aktivitäten der Realproben die Zählraten der Standards bekannt sein müssen, gilt es zunächst die Standards zu charakterisieren. Schütz (2016) gibt für seine Standardpräparate eine Aktivität von  $A_{Standard} = (86,24 \pm 0,67) Bq$  an. Trotz der zeitlichen Differenz zwischen der Herstellung und der Anwendung der Standards wurde für die Auswertung der Messdaten ebenfalls dieser Wert genutzt und somit das Zerfallsgesetz vernachlässigt, da nur eine geringe Abweichung von weniger als 2 % zu erwarten ist. In Bezug auf die Messdaten spielt dies nur eine geringe Rolle, da der statistische Fehler der Messung bei durchschnittlich 13 % liegt (vgl. 3.2).

Die Blumenerdestandards (Blumenerde 1, Blumenerde 2, Blumenerde 3) und die Sandstandards (Sand 1, Sand 2, Sand 3) wurden an beiden Detektoren jeweils einmal gemessen, untergrundkorrigiert und der Mittelwert für das jeweilige Bodenmaterial berechnet. Aufgrund eines defekten Analog-Digital-Wandlers (ADC) am "Mainzer Detektor" musste die Messelektronik während der Messserie ausgetauscht werden und es wurde daher auf diesem Detektor die Standardmessung erneut durchgeführt. Daher kommt es im weiteren Verlauf zu der Unterscheidung zwischen "Mainz 1" und "Mainz 2" (s. Tabelle 3). Bis zum Zeitpunkt des Defektes wurde folglich über "Mainz 1" normiert und bei allen anschließenden Messungen über "Mainz 2".

Standard	Zählrate $[s^{-1}]$			
Stanuaru	Köln	Mainz 1	Mainz 2	
Blumenerde	0,871 ± 0,024	1,156 ± 0,020	0,962 ± 0,160	
Sand	0,635 ± 0,076	1,035 ± 0,032	0,958 ± 0,010	

ls

Zum einen zeigt sich in den Werten eine geringfügig niedrigere Effizienz der "Kölner Burg", zum anderen, dass die Zählraten des Blumenerde-Standards um bis zu 37 % höher ausfallen als die der Sand-Standards. Diese Unterschiede liegen jedoch im Rahmen der Erwartung, da

einerseits von verschiedenen Messgeometrien der Detektoren ausgegangen wird und andererseits bei dem Material mit der höheren Dichte ( $\rho_{Sand} = (1,87 \pm 0,13) g \cdot cm^{-3}$ ;  $\rho_{Blumenerde} = (0,32 \pm 0,03) g \cdot cm^{-3}$  (Schütz, 2016)) mit einem höheren Absorptionsfaktor der Probe zu rechnen ist (vgl. 2.2.2).

## 4.1.2. Aktivitätsbestimmung der Realproben

Zur Bestimmung der Aktivitäten der Realproben wurden nun die Zählraten  $\dot{N}_{l}$  der verschiedenen Bodenschichten ausgewertet (s. Anhang IV.I.I.). Zu diesem Zweck werden die untergrundkorrigierten Werte der Einzelmessungen *n* betrachtet und ein Mittelwert gebildet:

$$\frac{\overline{dN}}{dt} = \frac{1}{n} \cdot \sum_{i=1}^{n} \dot{N}_i$$

Der Fehler des Mittelwertes ist gegeben durch die Standardabweichung der Einzelmessungen am jeweiligen Standort. Zur Ermittlung der Gesamtaktivität im Boden wurden die ermittelten einzelnen Aktivitäten der Bodenschichten aufsummiert. Der Fehler dieser Summe  $\Delta \dot{N}_{Ges}$ berechnet sich dabei über die Fehlerfortpflanzung unter Berücksichtigung der Fehler  $\Delta \dot{N}_{Tiefe}$ der durchschnittlichen Zählraten der Bodenproben:

$$\Delta \dot{N}_{Ges} = \sqrt{\left(\Delta \dot{N}_{0-5}\right)^2 + \left(\Delta \dot{N}_{5-10}\right)^2}$$

Damit ergeben sich die folgenden Messwerte (Tabelle 4):

Tabelle 4 – durchschnittliche Zählraten der Bodenproben. Die angegebene Unsicherheit berechnet sich aus der einfachen Standardabweichung der Einzelmesswerte am jeweiligen Standort

Drohenert	Kennnummer	Zählraten $\dot{N}$ [10 <sup>-2</sup> s <sup>-1</sup> ]			
Probenort		0 - 5 cm	5 - 10 cm	Gesamt	
Linz	4	3,28 ± 1,00	0,83 ± 0,05	4,11 ± 1,01	
Gemünd	6	2,62 ± 0,31	0,86 ± 0,29	3,49 ± 0,42	
Schmallenberg	8	2,82 ± 0,65	1,20 ± 1,01	4,01 ± 1,20	
Altastenberg	9	3,81 ± 1,82	3,33 ± 1,72	7,13 ± 2,51	
Rabland	13	5,46 ± 3,24	3,29 ± 0,63	8,75 ± 3,30	
Dünnwald	14	2,10 ± 0,23	0,98 ± 0,19	3,08 ± 0,30	
Remscheid	15	6,33 ± 1,79	3,29 ± 0,52	9,61 ± 1,86	
Sulovce	16	2,56 ± 0,63	2,29 ± 0,38	4,85 ± 0,74	
Maikammer	17	1,62 ± 0,27	1,05 ± 0,15	2,67 ± 0,31	

In Rabland (#13) und Remscheid (#15) liegen damit vergleichsweise hohe Flächenaktivitäten, während die Böden in der Maikammer (#17) und in Köln-Dünnwald (#14) geringere Werte aufweisen.

Aus den gegebenen Zählraten der Real- und Standardproben lassen sich nun die Aktivitäten (Bodenkontaminationswerte) berechnen (vgl. 3.2). Zur Bestimmung der Flächenaktivität  $A_F$  muss dieser Zusammenhang durch die Grundfläche des Stechzylinders ( $G_{Stechzylinder} = 20 \ cm^2$ ) erweitert werden. Es gilt:

$$A_{Probe} = \frac{\dot{N}_{Probe}}{\dot{N}_{Standard}} \cdot A_{Standard}$$

$$A_{F,Probe} = \frac{A_{Probe}}{G_{Stechzylinder}}$$

Mit den Zählraten  $\dot{N}$  und der Standardaktivität  $A_{Standard} = 86,24 Bq$ . Die daraus resultierenden Bodenkontaminationswerte sind in Tabelle 5 angegeben. Als Unsicherheit ist analog zur Zählrate die Standardabweichung der Einzelmesswerte des jeweiligen Standorts angegeben.

Durkanak		Flächenaktivität $A_F \; [kBq \cdot m^{-2}]$		
Probenort	Kennnummer	Blumenerde-Standard	Sand-Standard	
Linz	4	2,21 ± 0,08	2,63 ± 0,67	
Gemünd	6	1,62 ± 0,09	1,83 ± 0,45	
Schmallenberg	8	$1,84 \pm 0,50$	2,41 ± 0,61	
Altastenberg	9	3,13 ± 1,11	3,97 ± 1,43	
Rabland	13	3,66 ± 0,94	4,51 ± 0,98	
Dünnwald	14	$1,39 \pm 0,12$	1,69 ± 0,34	
Remscheid	15	4,50 ± 0,77	5,24 ± 0,25	
Sulovce	16	2,29 ± 0,51	2,76 ± 0,93	
Maikammer	17	$1,29 \pm 0,55$	$1,58 \pm 0,70$	

Tabelle 5 – durchschnittliche Flächenaktivität der Bodenproben. Die angegebene Unsicherheit berechnet sich aus der einfachen Standardabweichung der Einzelmesswerte am jeweiligen Standort

Wie erwartet fallen die Aktivitäten, welche über die Sand-Standards berechnet wurden, allesamt größer aus als bei Normierung auf die Blumenerde-Standards (s. Abbildung 13). Im Rahmen der ermittelten Unsicherheiten stimmen die Werte jedoch überein. Dabei weisen sie mit einer durchschnittlichen Abweichung von ca. 26 % auch eine vergleichbare Unsicherheit wie bei der Normierung auf Blumenerde (ca. 21 %) auf.



Abbildung 13 - durchschnittliche Flächenaktivität der Probenorte

Die höheren Aktivitäten können generell über die geringere relative Effizienz der Sand-Standards aufgrund der höheren Dichte zurückgeführt werden (vgl. 2.2.2). Sämtliche Proben weisen eine geringe Dichte (s. Anhang IV.I.II) als der Sand-Standard auf und man kann der Annahme folgen, dass diese somit weniger durch die Absorption des Materials beeinflusst werden. Somit gilt für die relative Effizienz  $E_R$ :

$$E_{R,Sand} < E_{R,Realprobe}$$

Woraus folgt, dass der Quotient der gemessene Zählraten  $\dot{N}$  höher ausfällt, als die tatsächlichen Kernzerfälle, d.h. die Betrachtung der Zerfallsraten ohne Absorptionsfaktor  $\dot{N}_{effektiv}$ , vermuten lassen:

 $\frac{\dot{N}_{Probe}}{\dot{N}_{Standard}} > \frac{\dot{N}_{Probe,effektiv}}{\dot{N}_{Standard,effektiv}}$ 

#### 4.1.3. Korrekturfaktoren

Um die verzeichnete Differenz zwischen den Resultaten der beiden Standardberechnungen zu berücksichtigen, wurden die von Gasper (2016) beschriebenen Dichte- und Klassifizierungskorrekturen (D- und K-Korrektur) durchgeführt. Der Grundgedanke dabei ist, die Standard-Zählrate  $\dot{N}_{standard}$  als Linearkombination aus beiden Standards darzustellen:

$$\dot{N}_{Standard} = a \cdot \dot{N}_{Blumenerde} + b \cdot \dot{N}_{Sand}$$

Die Koeffizienten *a* und *b* werden dafür einerseits über eine subjektive Materialklassifikation (K-Korrektur) bestimmt oder im Falle der D-Korrektur an die Dichten der Proben (s. Anhang IV.I.II) angepasst.

Hinsichtlich der Materialklassifikation existieren dabei drei Ordnungstypen: "humos", "humos/lehmig" und "lehmig". Diesen drei Gruppen wurden demzufolge verschiedene Mischungsverhältnisse, bestehend aus Blumenerde und Sand, aufgrund ihrer Materialeigenschaften, zugeordnet. Daraus resultieren folgende Mischungskoeffizienten für die K-Korrektur:

Klasse	$a_K$	$b_K$
humos	1	0
humos/lehmig	0,75	0,25
lehmig	0,5	0,5

Bezüglich der Dichtekorrektur wurde hingegen eine Linearkombination der Dichten  $\rho$  vom Blumenerde- und Sand-Standard gebildet. Grundlegend für diese Annahme ist, dass die Realproben sich aus humoser Blumenerde und mineralischen Sand zusammensetzen. Demnach sollte die Dichte der Realproben  $\rho_{Realprobe}$  zwischen den Dichten der Blumenerde  $(\rho_{Blumenerde} = (0.32 \pm 0.03) g \cdot cm^{-3})$  und des Sandes  $(\rho_{Sand} = (1.87 \pm 0.13) g \cdot cm^{-3})$ liegen. Daraus folgt der Zusammenhang:

## $a_D \cdot \rho_{Blumenerde} + b_D \cdot \rho_{Sand} = \rho_{Realprobe}$

Somit gilt für die Koeffizienten, dass sie im bestimmten Wertebereich  $0 \le a_D, b_D \le 1$  liegen müssen und durch den Ausdruck  $a_D + b_D = 1$  normiert sind.

Für die Bodenprobe der oberen Bodenschicht aus dem Dünnwalder Forst (14.1) ergeben sich demnach beispielsweise bei einer Dichte von  $\rho_{14.1} = (0,43 \pm 0,01)g \cdot cm^{-3}$  die Mischungskoeffzienten  $a_D = 0,93$  und  $b_D = 0,07$ . Dagegen führt die Klassifizierung zu "humos" zu Werten von  $a_K = 1$  und  $b_K = 0$ .

Duckenset	Flächenkontamination $A_F [kBq \cdot m^{-2}]$		ion $oldsymbol{A}_F\left[kBq\cdot m^{-2} ight]$
Probenort	Kennnummer	D-Korrektur	K-Korrektur
Linz	4	2,29 ± 0,20	2,24 ± 0,13
Gemünd	6	1,70 ± 0,23	1,67 ± 0,19
Schmallenberg	8	1,95 ± 0,51	1,88 ± 0,49
Altastenberg	9	3,19 ± 1,14	3,15 ± 1,11
Rabland	13	3,88 ± 1,09	3,83 ± 1,05
Dünnwald	14	$1,50 \pm 0,20$	1,45 ± 0,16
Remscheid	15	4,69 ± 0,50	4,61 ± 0,61
Sulovce	16	2,49 ± 0,67	$2,38 \pm 0,58$
Maikammer	17	1,33 ± 0,56	1,31 ± 0,56

Tabelle 7 - Flächenkontamination nach Durchführung der D- und K-Korrektur

Nachdem die Koeffizienten für die einzelnen Bodenproben bestimmt sind (s. Anhang IV.I.II), können die Flächenaktivitäten unter Berücksichtigung der D- und K-Korrekturen berechnet werden (s. Tabelle 7). Durch beide Korrekturen werden die resultierenden Werte gleichermaßen eher in Richtung der auf Blumenerde-Standard normierten Werte verschoben. Auch die durchschnittlichen Abweichungen liegen bei ca. 23 % im Falle der D-Korrektur und ca. 22 % für die K-Korrektur in einem entsprechenden Rahmen, sind aber nicht wesentlich geringer als bei den unkorrigierten Werten.



Abbildung 14 - Flächenaktivität nach der Durchführung der Korrekturen

## 4.2. Pilzproben

## 4.2.1. Bestimmung der Zählraten der Standards

Die Aktivitätsbestimmung der Pilzproben erfolgte analog zum Vorgehen bei den Bodenproben. Jedes der vier, durch Schütz (2016) hergestellten, Standard-Präparate wurde auf beiden Detektoren gemessen, wobei erneut auf der "Mainzer Burg" aufgrund des beschriebenen Elektronik-Defektes zweimal eine Messung vorgenommen werden musste (s. Tabelle 8).

Droho	Zählrate $\dot{N}$ [s <sup>-1</sup> ]		
Probe	Köln	Mainz 1	Mainz 2
Standard 1	1,587 ± 0,015	1,515 ± 0,015	1,595 ± 0,016
Standard 2	$1,756 \pm 0,016$	1,800 ± 0,016	1,664 ± 0,016
Standard 3	1,594 ± 0,015	1,733 ± 0,016	1,710 ± 0,016
Standard 4	1,437 ± 0,015	1,750 ± 0,016	1,604 ± 0,016

Tabelle 8 - Zählraten der Pilz-Standards

Da der Standard 4 nur zur Hälfte gefüllt ist, gehen unter Berücksichtigung von Schützs (2016) Annahmen mit der Messung bestimmte Erwartungen einher. Einerseits wird für die Zählraten aus dem "Mainzer"-Detektor, aufgrund der Nähe zum Detektor (aufliegende Probe), ein vergleichsweise höherer Wert prognostiziert und andererseits werden weniger Ereignisse pro Zeit bei den Messwerten der "Kölner Burg" erwartet, da die Messgeometrie hier ungünstiger ist als die des vollen Präparats (vgl. 2.2.2). Diese Erwartungen wurden durch die Messungen aber nur teilweise bestätigt. Auch zeigte sich, dass die Zählraten der einzelnen Standards viel stärker voneinander abweichen als im Rahmen der statistischen Unsicherheit zu erwarten war. Als Ursache müssen vorläufig unbekannte Inhomogenitäten angenommen werden. Trotz dieser unbefriedigenden Situation bleibt festzuhalten, dass die Abweichungen immer noch kleiner sind als die Streuung der Bodenkontaminationswerte. Aufgrund dieser Tatsache wird für die weitere Aktivitätsbestimmung der Pilze, der Mittelwert aus den Zählraten der vier Standard-Präparate genutzt. Der Fehler berechnet sich dabei über die Standardabweichung der Einzelmessungen (s. Tabelle 9).

Droho	Zählrate $\dot{N}$ [ $s^{-1}$ ]		
Probe	Köln	Mainz 1	Mainz 2
Standard	1,666 ± 0,088	1,643 ± 0,145	1,649 ± 0,049

## 4.2.2. Aktivitätsbestimmung der Pilzproben

Die durchschnittlichen Zählraten wurden zur Bestimmung der <sup>137</sup>Cs-Aktivitäten der Pilzproben  $A_{Probe}$  genutzt. Dazu wurde die spezifische Aktivität  $a_{Probe}$ , berechnet:

$$a_{Probe} = \frac{A_{Probe}}{m_{Probe}}$$

Dabei gilt weiterhin der Zusammenhang für die Aktivität der Probe:

$$A_{Probe} = \frac{N_{Probe}}{\dot{N}_{Standard}} \cdot A_{Standard}$$

Auf diesem Wege kann nun die spezifische Aktivität der einzelnen Pilz-Proben bestimmt werden (s. Anhang IV.II).



Abbildung 15 - spezifische Pilzaktivität der Einzelmessungen (käuflich erworbene Pilzproben ausgenommen)

Es zeigt sich, bei näherer Betrachtung der spezifischen Aktivitäten, dass die Ergebnisse an den jeweiligen Probeorten in sich konsistent sind (s. Abbildung 15). D.h., dass die spezifischen Aktivitäten der verschiedenen Pilze an einem Standort nur geringen Schwankungen unterliegen und in der Regel innerhalb der Fehlergrenzen übereinstimmen. Ausnahme dabei bilden die Steinpilze aus der Maikammer (17.St), welche sich auch in der Größenordnung der spezifischen Aktivität erheblich von den restlichen Ergebnissen abgrenzen (vgl. 5.3). Es wurden daher jeweils die Mittelwerte der Pfifferling- und Steinpilz-Proben an einem Standort gebildet.

PROBENORT	KENNNUMMER	SPEZ. AKTIVITÄT [ $kBq/kg$ ]
LINZ	4	0,109 ± 0,005
GEMÜND	6	0,149 ± 0,004
SCHMALLENBERG	8	0,004 ± 0,004
ALTASTENBERG	9	$0,114 \pm 0,004$
REMSCHEID	15	0,134 ± 0,007
SULOVCE	16	$0,012 \pm 0,002$
MAIKAMMER	17	0,331 ± 0,093

Tabelle 10 - durchschnittliche spezifische Aktivität der Steinpilz-Proben mit Angabe der Standardabweichung

Von den Steinpilzen wurde an sieben verschiedenen Probeorten in der Regel eine Probe genommen (s. Tabelle 10). Ausgenommen ist der Standort "Maikammer" von welchem drei verschiedene Steinpilzproben vorhanden waren. Die Ergebnisse der Mittelwertberechnung zeigen, aufgrund der geringen Abweichungen, dass die Detektoren vergleichbare Messergebnisse liefern. Problematisch erscheinen einzig die Ergebnisse aus den Standorten Schmallenberg (8.St) und Maikammer (17.St). Im Falle der unterschiedlichen Steinpilz-Proben aus der Maikammer wurden verhältnismäßig große Abweichungen gemessen. Möglicherweise



Abbildung 16 - spezifische Aktivität der Steinpilzproben

ist sowohl die hohe Streuung als auch der hohe Messwert insgesamt darauf zurückzuführen, dass sich unter den vermeintlichen Steinpilzen einzelne Pilze einer anderen, stärker kontaminierten Art befanden (vgl. 5.3). Im Falle der Werte aus Schmallenberg wurde 35 offensichtlich überhaupt keine Kontamination gemessen, die sich signifikant von der Untergrundstrahlung unterscheidet (s. Abbildung 16).

PROBENORT	KENNNUMMER	SPEZ. AKTIVITÄT [ $kBq/kg$ ]
SCHMALLENBERG	8	$0,012 \pm 0,002$
RABLAND	13	$0,069 \pm 0,024$
DÜNNWALD	14	$0,050 \pm 0,001$
MAIKAMMER	17	$0,027 \pm 0,005$

Tabelle 11 - spezifische Aktivität der Pfifferling-Proben

Im Vergleich zu den Steinpilzen wurden die Pfifferling-Proben an nur vier Standorten entnommen (s. Tabelle 11). Die Ergebnisse zeigen aber ebenfalls, dass die Detektoren vergleichbare Werte liefern. Nur die Pfifferling-Probe aus Rabland (13) zeigt eine erhöhte Abweichung von ca. 35 % in den Ergebnissen der spezifischen Aktivität (s. Abbildung 17). Möglicherweise liegt der Grund dafür in dem Defekt des ADC's während der Messserie. Da sich aber nicht endgültig klären lässt, ob dies auch die Ursache der Schwankungen war, wird im Folgenden der Mittelwert der beiden Messungen weiterverwendet. Somit lassen die Resultate zusammenfassend die Erkenntnis zu, dass die ermittelten Aktivitäten zur Festlegung einer Korrelation genutzt werden können.



Abbildung 17 - durchschnittliche spezifische Aktivität der Pfifferling-Proben

## 4.3. Bestimmung eines Transferfaktors

### 4.3.1. Beziehung Boden-Pilze

Um einen Zusammenhang zwischen der Boden- und der Pilzkontamination herzustellen, wird im Folgenden ein Transferfaktor *TF*, d.h. ein Maß für den <sup>137</sup>Cs-Austausch zwischen Boden und Pilz bestimmt. In diesem Fall sind dafür die jeweiligen Aktivitäten zu betrachten. In Anlehnung an Fielitz (2001) werden hier die Flächenkontamination  $A_F$  der Bodenproben und die spezifische Aktivität der Pilzproben *a* in Relation gesetzt (vgl. 2.4). Somit gilt für den hier zu bestimmenden Transferfaktor *TF* der Zusammenhang:

$$TF = \frac{{}^{137}Cs - Flächenaktivität \ der \ getrockneten \ Bodensubstanz \ [kBq \cdot m^{-2}]}{spezifische} \frac{{}^{137}Cs - Aktivität \ der \ getrockneten \ Pilzsubstanz \ [kBq \cdot kg^{-1}]}{spezifische}$$

In dieser Arbeit wird jedoch eine graphische Auswertung verwendet, in welcher die bestimmte spezifische Aktivität der Pilzproben a über die Flächenaktivität der Bodenproben  $A_F$ aufgetragen wird. Unter der Annahme, dass es einen einheitlichen Transferfaktor gibt, lässt sich dieser dann aus der Steigung der resultierenden Geraden bestimmen. Zunächst wurden alle erhaltenen Daten aufgetragen (s. Abbildung 18)



Abbildung 18 - Auftragung der Flächenaktivität normiert mittels dem Blumenerde-Standard über die spezifische Aktivität

Bei Betrachtung des gesamten Datensatzes fällt auf, dass sich die Steinpilz-Proben aus der Maikammer (17.St) von dem Rest der Messergebnisse erheblich abgrenzen (s. Abbildung 18). Eine Erklärung dafür ist möglicherweise in der Charakterisierung der Steinpilzproben zu suchen. Es ist nicht grundsätzlich auszuschließen, dass gegebenenfalls artverwandte Pilzarten wie der Maronenröhrling mitgesammelt wurden. Dieser Pilz zeigt optische Ähnlichkeiten mit dem Steinpilz, was eine Verwechslung möglich macht. Da Maronenröhrlinge bekanntermaßen Cäsium stark anreichern, würde dies auch die vergleichsweise hohe Aktivität und deren Streubreite der Daten aus Maikammer erklären. Aufgrund dieser Problemstellung soll im weiteren Verlauf der Auswertung von der Verwendung dieser Proben abgesehen werden.



Abbildung 19 - Korrelation Steinpilz-Boden (Normierung auf Blumenerde-Standard)

Somit wurden die durchschnittlichen spezifischen Aktivitäten von sechs Steinpilz- und vier Pfifferling-Proben zunächst separat über die unterschiedlich bestimmten Flächenaktivitäten aufgetragen. Gezeigt wird das in Abbildung 19 am Beispiel einer Normierung auf den Blumenerde-Standard.

Durch eine lineare Anpassung der Form  $f(x) = b \cdot x + n$  mit einem erzwungenen Schnittpunkt im Koordinatenursprung Y(0|0), kann dementsprechend der durchschnittliche Transferfaktor TF der Proben anhand der Steigung *b* bestimmt werden, welche ebenfalls den Quotienten der Aktivitäten angibt:

$$b = \frac{\Delta y}{\Delta x} = \frac{\Delta A_F}{\Delta a}$$

Diese Bestimmung wurde auch für verschiedene unterschiedliche Normierungen durchgeführt (s. Tabelle 12)

Methode	Transferfaktor $TF \ [m^2 \cdot kg^{-1}]$		
	Steinpilz	Pfifferling	
D-Korrektur	27,45 ± 6,59	55,32 ± 7,91	
K-Korrektur	28,10 ± 6,01	54,87 ± 7,46	
Blumenerde-Standard	29,35 ± 5,32	53,07 ± 7,53	
Sand-Standard	28,53 ± 7,85	62,75 ±11,39	

Tabelle 12 - Transferfaktor der unterschiedlichen Pilzarten

Die ermittelten Transferfaktoren stimmen jeweils für die Pilzarten innerhalb der Fehlergrenzen überein (s. Tabelle 12), unabhängig von der Korrekturmethode. Weiterhin ist erkennbar, dass der Transferfaktor der Pfifferlinge etwa doppelt so hoch ist wie für Steinpilze. Diese Aussage muss insofern relativiert werden, als dass die hier erhaltenen Ergebnisse mit Vorsicht zu betrachten sind. Denn die Anzahl der Messproben ist mit  $n_{Steinpilz} = 6$  und  $n_{Pfifferling} = 4$  angesichts der hohen Abweichung von einzelnen Werten vom linearen Zusammenhang wahrscheinlich als nicht ausreichend anzusehen.

Es kann folglich von der Annahme ausgegangen werden, dass bei einer höheren Anzahl an Messereignissen die Abweichungen prozentual abnehmen sollten. Aus diesem Grund wird probehalber der Transferfaktor des gesamten Datensatzes, d.h. unter Berücksichtigung beider Pilzgattungen, bestimmt. Auch diese Daten werden mittels einer linearen Anpassung untersucht, bei welchem ein Durchlauf durch Y(0|0) erzwungen wird (s. Abbildung 20).



Abbildung 20 - Korrelation Pilze-Boden (Blumenerde-Standard)

Bei Betrachtung der jeweiligen Transferfaktoren *TF* bezüglich einer gemeinsamen Auswertung zeigt sich, dass die resultierenden Abweichungen bei der gemeinsamen Betrachtung von Pfifferlingen und Steinpilzen nicht zunehmen. Insofern könnte bei einer insgesamt nicht besonders stimmigen Datenlage auch gefolgert werden, dass beide Pilzarten einen ähnlichen Transferfaktor besitzen.

Tabelle 13 - Transferfaktoren unter Berücksichtigung beider Pilzarten

Methode	Transferfaktor $TF\left[m^2\cdot kg^{-1} ight]$
D-Korrektur	31,85 ± 5,86
K-Korrektur	32,19 ± 5,42
Blumenerde-Standard	32,59 ± 4,69
Sand-Standard	32,75 ± 6,93

## 4.3.2. Beziehung O-Horizont-Pilze

Angesichts der oben beschriebenen Datenlage wurde der Versuch unternommen, die resultierenden Unsicherheiten weiter zu reduzieren. Ausgehend von dem Aufbau der unterschiedlichen Bodenschichten, wurde dafür als Hypothese angenommen, dass die Pilze ihre Nährstoffe hauptsächlich aus dem organischen Horizont (O-Horizont), folglich aus den oberen 5 cm des Bodens, beziehen (vgl. 2.3). Aus diesem Grund würde der <sup>137</sup>Cs-Gehalt in den Fruchtkörpern vor allem von der <sup>137</sup>Cs-Menge in diesem Intervall abhängen. Daher wurde in einem weiteren Schritt der Transferfaktor ausschließlich zwischen dem O-Horizont und den Pilzen bestimmt. Zu diesem Zweck wurde zunächst die Flächenkontamination der oberen Bodenschicht berechnet. Dabei wird analog zu Abschnitt 4.1.2. vorgegangen, allerdings werden in diesem Falle nur die Zählraten der Bodenproben der oberen 5 cm genutzt. (s. Tabelle 14).

	Flächenaktivität $oldsymbol{A}_F \; [kBq \cdot m^{-2}]$			
Probenort	D-Korrektur	K-Korrektur	Blumenerde- Standard	Sand-Standard
Linz	1,870 ± 0,150	1,815 ± 0,076	1,815 ± 0,076	2,166 ± 0,561
Gemünd	1,267 ± 0,142	1,244 ± 0,124	1,214 ± 0,117	1,366 ± 0,275
Schmallenberg	1,488 ± 0,337	1,423 ± 0,295	1,394 ± 0,320	1,911 ± 0,439
Altastenberg	1,926 ± 0,934	1,885 ± 0,903	1,885 ± 0,903	2,585 ± 1,238
Rabland	2,038 ± 1,209	2,049 ± 1,189	2,038 ± 1,209	2,276 ± 1,351
Dünnwald	0,997 ± 0,218	0,969 ± 0,186	0,949 ± 0,157	1,158 ± 0,287
Remscheid	3,063 ± 0,486	2,954 ± 0,634	2,954 ± 0,634	3,425 ± 0,013
Sulovce	1,306 ± 0,400	1,259 ± 0,362	1,210 ± 0,323	1,459 ± 0,556
Maikammer	0,814 ± 0,138	0,802 ± 0,131	0,793 ± 0,136	1,038 ± 0,212

Von diesen Flächenaktivitäten  $A_F$  herrührend, kann anschließend der Transferfaktor erneut durch eine graphische Auswertung bestimmt werden (vgl. 4.3.1). Dabei werden wiederum die spezifischen Aktivitäten der Steinpilze zusammen mit denen der Pfifferlinge in Korrelation aufgetragen und eine lineare Regression mit Nulldurchgang durchgeführt (s. Abbildung 21).



Abbildung 21 - Korrelation Pilze-O-Horizont (Blumenerde-Standard)

Insgesamt ergibt sich bei weiterhin großer Abweichungen von einzelnen Werten ein stimmigeres Gesamtbild, da die Abweichungen um die lineare Regression reduziert werden konnte. Auch variiert aufgrund der Normierung und Korrektur der Fehler der Transferfaktoren nicht mehr so stark (s. Tabelle 15).

Methode	Transferfaktor $TF \ [m^2 \cdot kg^{-1}]$
D-Korrektur	20,38 ± 2,89
K-Korrektur	20,37 ± 2,70
Blumenerde -Standard	20,39 ± 2,65
Sand-Standard	22,29 ± 3,66

Tabelle 15 - Transferfaktor der oberen 5 cm Boden

## 5. Weitergehende Schlussfolgerungen

Im Folgenden werden einige weitergehende Schlussfolgerunden aus den erhaltenen Ergebnissen gezogen.

## 5.1. Bewertung der Korrekturverfahren

Im Datensatz von Gasper (2016) hatte sich die D-Korrektur als wirksame Methode erwiesen, um die Streubreite der Messungen von einzelnen Standorten merklich zu reduzieren. Daraus folgt die Erkenntnis, dass offensichtlich die D-Korrektur die zu wählende Methode zur Aktivitätsbestimmung darstellt.

Diese Tendenz kann bei Betrachtung der vorliegenden Flächenkontaminationswerte nicht bestätigt werden. Wenn die Kontamination der Probeorte betrachtet wird, an welchen mindestens vier Bodenproben gesammelt wurden (#6, #8, #9, #13, #14, #16, #17), kann keine Methode festgelegt werden, welche für alle Standorte die geringste Abweichung aufweist. Jedoch zeigt sich, dass im Mittel der Vergleich mithilfe des Blumenerde-Standards die Schwankungen verringert (s. Tabelle 16), die Unterschiede sind aber generell nicht so deutlich wie im Datensatz von Gasper (2016).

prozentuale Abweichung [%]				
D-Korrektur	K-Korrektur	Blumenerde- Standard	Sand-Standard	
26,6	25,3	23,8	29,4	

Tabelle 16 - durchschnittliche Abweichung der Flächenaktivität

Im Endeffekt bleiben auch bei der Verwendung der Korrekturverfahren die Unsicherheiten erheblich, so dass es in der Praxis wahrscheinlich keine große Rolle spielt, welche Korrekturverfahren verwendet werden bzw. auf welchen Standard normiert wird. Daher wird sich im weiteren Verlauf auf die Normierung über den Blumenerde-Standard beschränkt.

# 5.2. Vergleich der ermittelten Bodenkontaminationen mit den Messdaten des ATLAS-Projekts

Im Folgenden werden die hier erhaltenen Messergebnisse mit den Messdaten des ATLAS-Projektes verglichen. Dazu werden die Fundorte im ATLAS lokalisiert und dementsprechend das zugehörige Aktivitätsintervall erörtert (s. Abbildung 6, Abbildung 7, Abbildung 8). Dafür wurden zunächst die ermittelten Flächenaktivitäten auf den Zeitpunkt des ATLAS-Projektes zurückextrapoliert. Zu diesem Zweck wird über das Zerfallsgesetz die Anfangsaktivität  $A_0$  bestimmt:

$$A(t) = A_0 \cdot e^{-\lambda t}$$
$$\Leftrightarrow A_0 = A(t) \cdot e^{\lambda t}$$

Mit der Zerfallskonstanten  $\lambda = \frac{\ln(2)}{t_{1/2}}$ , der Zeit *t* und der Halbwertszeit  $t_{1/2}$ . Zur Bestimmung der Zeit *t* wird das zeitliche Intervall zwischen der Evaluierung der ATLAS Daten (10.05.1986) und der Probenentnahme betrachtet. Die Halbwertszeit liegt für <sup>137</sup>Cs bei  $t_{1/2} = 30,17 a$ . Daraus erhält man die theoretische Anfangsaktivität von <sup>137</sup>Cs nach dem Tschernobyl-Unfall.

Duchenout	Flächenaktivität $oldsymbol{A_{F,0}} \left[ kBq \cdot m^{-2}  ight]$				
Probenort	Extrapoliert	ATLAS			
Linz	4,319 ± 0,159	2 – 4			
Gemünd	3,162 ± 0,176	2 - 4			
Schmallenberg	3,657 ± 0,984	4 - 10			
Altastenberg	6,209 ± 2,201	4 - 10			
Rabland	7,307 ± 1,865	4 - 10			
Dünnwald	$2,780 \pm 0,234$	2 – 4			
Remscheid	9,033 ± 1,545	2 – 4			
Sulovce	4,601 ± 1,018	4 - 10			
Maikammer	2,605 ± 1,108	1 – 2			

Tabelle 17 - Cs-137-Flächenaktivität am 10.05.1986. Berechnet und aus dem ATLAS (De Cort, et al., 1998)

Bei Betrachtung der Ergebnisse wird deutlich, dass die ermittelten Aktivitäten im Wesentlichen mit den Angaben des ATLAS-Projektes übereinstimmen. Ausgenommen davon sind die Fundorte Remscheid und Linz, an welchen es zu Abweichungen von dem angegebenen Aktivitätsintervall kommt (s.Tabelle 17). Jedoch liegen diese jeweils an den Grenzen einer Isolinie (s. Abbildung 6), sodass die Abweichungen über die Messmethodik der Interpolation erklärt werden können (vgl. 2.1).

## 5.3. Konsistenz der Pilzmessungen

Im Allgemeinen zeigen die Pilzmessungen wie erwartet, unabhängig von den Detektoren, konsistente Ergebnisse (s. Tabelle 10, Tabelle 11). Die wesentliche Unsicherheit bei den Pilzmessungen liegt, neben einzelnen Werten, welche vermutlich aufgrund falscher Klassifizierung abweichen, bei den scheinbar unterschiedlichen Aktivitäten der Pilz-Standardpräparate aufgrund ihrer Messeffizienz. Im Allgemeinen ist die Streuung der Einzelwerte jedoch untereinander geringer als die Streuung der Einzelwerte der Bodenmessungen. Somit kann die Standardmessmethode ebenfalls als eine angemessene Arbeitsweise zur Aktivitätsbestimmung bei Pilzen beschrieben werden.

Bezüglich der Einzelwerte, welche von dem Gesamtbild abweichen (s. Abbildung 18), können wie beschrieben Schwierigkeiten bei der Klassifizierung der Pilzgattung aufgeführt werden. Der Steinpilz gehört zu einer Pilzart, welche optisch sehr ähnliche Artverwandte hat. Diese weisen jedoch, wie der Maronenröhrling, ein unterschiedliches Verhalten der Cs-Akkumulation auf. Daher liegt die Vermutung nahe, dass fälschlicherweise keine Steinpilze untersucht wurden.

#### 5.4. Transferfaktor

## 5.4.1. Beziehung Boden-Pilz

Die Auftragung der Flächenaktivität der Bodenproben über die spezifische Aktivität der Pilzproben lieferte eine Korrelation, welche eine lineare Beziehung vermuten ließ. Jedoch reichen die Datensätze nicht aus, um eine widerspruchsfreie Aussage hinsichtlich der einzelnen Pilzarten zu erhalten. Da die Steinpilz-Proben aus der Maikammer (17.St) als unbrauchbar eingeordnet wurden, lagen zur Anfertigung einer linearen Regression einerseits  $n_{Steinpilz} = 6$ Steinpilz-Proben vor und andererseits  $n_{Pfifferling} = 4$  Pfifferling-Proben. Angesichts der insgesamt relativ stark streuenden Einzelwerten sind daraus Transferfaktoren nur relativ ungenau bestimmbar.

Möglicherweise ließe sich dieser Umstand deutlich verbessern, wenn Pilz-/Bodenproben aus Gebieten höherer Kontamination als in Mitteleuropa berücksichtigt würden (s. Tabelle 12).

Daher wurden letztlich die Messwerte der Pfifferling- und Steinpilz-Proben gemeinsam ausgewertet, um durch die Vergrößerung des Datensatzes eine größere Signifikanz zu erreichen. Weiterhin wird vermutet, dass der ermittelte Transferfaktor der gesamten Messproben zwischen denen der einzelnen Pilzarten liegt, da sie sich annähern sollten. Bei Betrachtung der Ergebnisse konnten diese Erwartungen bestätigt werden, wenngleich der prozentuale Fehler mit minimal 14 % weiterhin im Bereich der einzelnen Pilzgattungen liegt. Doch da die Unsicherheiten nicht weiter zugenommen haben, kann formuliert werden, dass offensichtlich Pfifferlinge und Steinpilze eine vergleichbare Tendenz der Cs-Anreicherung besitzen.

Tabelle 18 - Vergleich mit Sonnauer (2015)

Transferfaktor $[kg \cdot m^{-2}]$			
Ermittelt	Sonnauer (2015)		
32,59 ± 4,69	63,54		

Bei dem Vergleich mit Sonnauers (2015) Messergebnissen fällt auf, dass der in dieser Arbeit durch die Verwendung von Bodenproben ermittelte Transferfaktor etwa um den Faktor zwei niedriger ausfällt, als der Faktor, welcher aus den Flächenkontaminationen des ATLAS-Projektes bei erheblicher Unsicherheit bestimmt wurde (s. Tabelle 18). Sonnauer (2015) hatte aufgrund der angegeben Intervallgröße der Flächenaktivität einen pauschalen Fehler von 50 % auf den Transferfaktor angewendet. Auch dieser konnte durch die Bemessung der Bodenproben der Fundorte auf ca. 14 % reduziert werden. Weiterhin spricht die Tatsache, dass bei der Anwendung des Transferfaktors durch Sonnauer (2015) im Vergleich zu den ATLAS-Daten mehrheitlich zu große Flächenaktivitäten bestimmt wurden, für den hier ermittelten Faktor, da ein geringerer Transferfaktor aufgrund des vermuteten linearen Zusammenhangs, auch zu einer ebenso reduzierten Flächenaktivität führt.

Tabelle 19 -	Vergleich	mit Fielitz	(2001)
Tabelle 19 -	Vergleich	mit Fielitz	(2001)

Transferfaktor $[10^{-2} \cdot m^2 \cdot kg^{-1}]$			
Ermittelt	Fielitz (2001)		
32,59 ± 4,69	371,7		

Um einen Vergleich mit den Erkenntnissen von Fielitz (2001) zu ermöglichen, gilt es zunächst den Transferfaktor von Fielitz zu invertieren, um die Faktoren hinsichtlich der Einheit anzugleichen. Außerdem wurden die Transferkoeffizienten für die Steinpilz- und Pfifferling-Proben von Fielitz (2001) gemittelt (s. Tabelle 19). Bei Analyse der Ergebnisse wird deutlich, dass sich die Transferfaktoren ungefähr um einen Faktor zehn unterscheiden. Jedoch ist dabei anzunehmen, dass der Transferfaktor der vorliegenden Arbeit den tatsächlichen Wert eher widerspiegelt, da in diesem Fall die Bodenproben direkt an der Pilzfundstelle genommen wurde. Fielitz hingegen hat seine Messwerte auf eine 10.000 m<sup>2</sup>-Fläche gemittelt und auf diesem Gebiet nicht unerhebliche Schwankungen der ermittelten Aktivitäten festgestellt. Daher kann man bei Fielitz (2001) Ergebnissen von einer größeren Unsicherheit ausgehen.

Duchanant	Kanananan	Flächenaktivität $A_F$ [ $kBq\cdot m^{-2}$ ]		
Probenort	Kennnummer	Extrapoliert	ATLAS	
Linz	4	6,98 ± 1,05	2-4	
Gemünd	6	9,48 ± 1,39	2 - 4	
Schmallenberg	8	0,72 ± 0,27	4 - 10	
Altastenberg	9	7,36 ± 1,09	4 - 10	
Rabland	13	4,45 ± 1,68	4 - 10	
Dünnwald	14	3,25 ± 0,47	2-4	
Remscheid	15	8,79 ± 1,34	2-4	
Sulovce	16	0,78 ± 0,17	4 - 10	
Maikammer	17	1,76 ± 0,44	1 – 2	
Schodsina (WR)	-	24,14 ± 3,76	10 - 20	
Litauen	-	24,33 ± 3,71	-	
Serbien	-	1,15 ± 0,22	-	
Rumänien	-	6,06 ± 0,95	-	

Tabelle 20 - Rückrechnung von Bodenkontaminationswerte aus Pilzkontamination und dem Transferfaktor mit ATLAS-Vergleich (De Cort, et al., 1998)

Wendet man den ermittelten Transferfaktor auf die Pilzproben an, weicht ein Großteil der berechneten Bodenkontaminationen von den ATLAS-Angaben ab. Sind es bei der Aktivitätsbestimmung der Bodenproben in Abschnitt 5.2 nur drei Werte, welche sich vom ATLAS unterscheiden und durch die Grenzlage an den *"isolines"* erklären lassen, so sind es hier hingegen lediglich vier Flächenaktivitäten, die überhaupt übereinstimmen (s. Tabelle 20, Abbildung 22). Somit kann als Schlussfolgerung formuliert werden, dass offensichtlich weitere Faktoren die Cs-Aufnahme der Pilze beeinflussen und der ermittelte einfache, lineare Zusammenhang durch diese Einflüsse modifiziert werden muss. Dies stellt möglicherweise die Existenz eines einheitlichen Transferfaktors in Frage. Aus diesem Grund ist auch der Vergleich

mit den Ergebnissen von Fielitz (2001) hinfällig, da dort ebenfalls ein allgemeiner Zusammenhang prognostiziert wird.



Abbildung 22 - Bestimmung der Flächenaktivität durch den Transferfaktor

Insofern ist die Anwendung des Transferfaktors auf die spezifische Aktivität von Pilzproben unbekannter Lokalisierung, um die Flächenkontamination deren Herkunftsländer abzuschätzen, mit dem aktuellen Erkenntnisstand kritisch zu betrachten. Aufgrund der Schwankungen können die Ergebnisse allenfalls als Tendenzen angesehen werden, jedoch lassen sich keine spezifischen Aussagen hinsichtlich der Flächenkontamination rechtfertigen. So kann formuliert werden, dass in Litauen eine höhere Kontamination vorliegt, als in Rumänien und Serbien (s. Abbildung 23), was durchaus aufgrund der Wetterlage während des Tschernobyl-Unfalls als plausibel erscheint (De Cort, et al., 1998; United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, 2008). Jedoch erscheint auch für diese Art der Aussage die empirische Grundlage derzeit recht schwach.



Abbildung 23 - Bestimmung der Flächenaktivität durch den Transferfaktor für Pilze unbekannter Lokalisierung

## 5.4.2. Beziehung O-Horizont-Pilze

Um weitere Einflussfaktoren auf die Cs-Aufnahme der Pilze zu berücksichtigen, wurde die Annahme getroffen, dass die Pilze ihre Nährstoffe hauptsächlich aus den organischen Horizont des Bodens aufnehmen (vgl. 2.3). Daher wurde ein Transferfaktor ermittelt, welcher einen Zusammenhang zwischen dem O-Horizont, folglich der oberen Bodenschicht und den Pilzproben herstellen soll. Die Erwartung dabei lag darin, dass durch die Betrachtung der oberen 5 cm des Bodens der Fehler des Transferfaktors reduziert werden kann, da der modellierte Austausch sich der Realität annähert.

Tabelle 21 - Transferfaktoren (Blumenerde-Standard) der Bodenschichten im Vergleich

Transferfaktor $A_F \left[ kg \cdot m^{-2}  ight]$			
Boden-Pilz O-Horizont-Pilz			
32,59 ± 4,69	20,39 ± 2,65		

Beim Vergleich der jeweiligen Transferfaktoren zeigte sich, dass durch die explizite Betrachtung der oberen Bodenschicht der Transferfaktor abnimmt (s. Tabelle 21). Hinsichtlich 49 des Minimalwertes des Fehlers konnte kein signifikanter Unterschied zwischen den beiden Korrelationen festgestellt werden.

Um die Legitimität des beschriebenen Transferfaktors zu prüfen, gilt es ihn ebenfalls auf die Pilzaktivität anzuwenden und die berechneten Flächenaktivitäten mit dem ATLAS (De Cort, et al., 1998) zu vergleichen. Zu diesem Zweck muss jedoch zunächst die Gesamtaktivität im Boden berechnet werden. Dazu wird für die vertikale Verteilung von <sup>137</sup>Cs eine Poisson-Verteilung anhand der Tiefenmessung von Gasper (2016) entworfen. Für die Poisson-Verteilung gilt (Hedderich & Sachs, 2016):

$$P(x) = \frac{\lambda^x e^{-\lambda}}{x!}$$

Mit der Wahrscheinlichkeit *P* für ein Ereignis *x* hinsichtlich eines Erwartungswertes  $\lambda$ . Bezüglich der Anwendung wird die Wahrscheinlichkeit als relative Häufigkeit des <sup>137</sup>Cs und das Ereignis *x* als 5 cm-Bodenintervall ( $\Delta x \triangleq 5cm$ ) interpretiert. Der Erwartungswert wird über die Betrachtung der Messung in Lohmar und Troisdorf ermittelt.

Drohantiafa [am]	Loh	nmar	Troisdorf		
Probentiere [cm]	Netcounts	Anteil [%]	Netcounts	Anteil [%]	
0-5	2306	48	4062	85	
5-10	1590	33	1923	40	
10-15	692	15	556	12	
15-20	180	4	73	2	

Tabelle 22 - Tiefenmessung von Gasper (2016)

Aus den prozentualen Anteilen erhält man hinsichtlich den Bodentiefen ausgedrückt in natürlichen Zahlen *x* einen Erwartungswert von  $\lambda_{Lohmar} = 0,43$  und  $\lambda_{Troisdorf} = 0,52$ . Zur weiteren Verwendung wird aus diesen beiden Werten der Mittelwert  $\overline{\lambda} = 0,48$  bestimmt. Somit wird umgerechnet in einer Tiefe von h = 2,4 cm ein Maximum der Verteilung erwartet.



Abbildung 24 - Poisson-Verteilung des <sup>137</sup>Cs-Gehaltes im Boden

Ferner werden die Parameter auf die Poisson-Verteilung angewandt und somit ein Modell hinsichtlich des <sup>137</sup>Cs-Gehalts in verschiedenen Bodentiefen entworfen (s. Abbildung 24). Anhand dieses Modells kann prognostiziert werden, dass sich ca. 62 % des Radiocäsiums in den oberen 5 cm des Bodens befinden. Somit kann im weiteren Verlauf die Gesamtaktivität mithilfe des Dreisatzes bestimmt werden (s. Tabelle 23).

Drohenert	Flächenaktivität $A_F$ [ $kg \cdot m^{-2}$ ]					
Probenort	O-Horizont	Gesamtaktivität	10.05.1986			
Linz	2,23 ± 0,31	3,60 ± 0,50	7,04 ± 0,97			
Gemünd	3,03 ± 0,40	4,89 ± 0,65	9,56 ± 1,27			
Schmallenberg	0,23 ± 0,08	0,37 ± 0,13	0,73 ± 0,27			
Altastenberg	2,31 ± 0,31	3,74 ± 0,50	7,43 ± 0,99			
Rabland	1,40 ± 0,52	2,25 ± 0,84	4,49 ± 1,67			
Dünnwald	1,01 ± 0,13	1,64 ± 0,21	3,28 ± 0,43			
Remscheid	2,74 ± 0,38	4,42 ± 0,62	8,87 ± 1,24			
Sulovce	0,24 ± 0,05	0,39 ± 0,08	0,79 ± 0,16			
Maikammer	0,55 ± 0,13	0,88 ± 0,21	1,77 ± 0,43			

Tabelle 23 - Bestimmung der Flächenaktivität durch den Transferfaktor der oberen Bodenschicht

Beim Vergleich der Flächenaktivitäten, welche durch die unterschiedlichen Transferfaktoren bestimmt wurden, fällt auf, dass die Messergebnisse eine vergleichbare Größe annehmen. Somit konnte durch die Modifikation der Betrachtung der Bodentiefe keine Verbesserung der Messung erzielt werden. Demnach ist die vertikale Cs-Verteilung der ersten 10 cm des Bodens offensichtlich kein entscheidender Faktor bei der Cs-Aufnahme durch den Fruchtkörper des Pilzes.

## 6. Reflexion und Ausblick

In dieser Arbeit konnte aufgezeigt werden, dass der Vergleich von Realproben mit Standardproben eine effiziente Methode der Aktivitätsbestimmung von Pilzpräparaten darstellt. Hinsichtlich der Pilzproben ergaben sich dabei Vor- und Nachteile der Pilzarten. Zwar reicht üblicherweise bei Steinpilzen eine geringere Menge für eine angemessene Messung aus als bei Pfifferlingen, dennoch ist bei der Sammlung verstärkt auf mögliche Verwechslungen zu achten.

Ansonsten stellte sich die Ermittlung adäquater Zählraten allgemein im Falle niedriger Massen als problematisch heraus, da der statistische Fehler einen vergleichsweise großen Wert einnahm. Daher sollte in Zukunft darauf geachtet werden, größere Massen zu untersuchen und ggf. die Messzeit zu erhöhen, was aufgrund der begrenzten Zeit in dieser Arbeit nicht möglich war.

Des Weiteren konnte in dieser Arbeit dargestellt werden, dass die Cs-Aufnahme eines Pilzes von weiteren Einflussfaktoren abhängt und somit keinem einfachen linearen Zusammenhang bezüglich der Bodenkontamination folgt. Mögliche Einflüsse könnten dabei der pH-Wert und Ton-Gehalt Bodens welche der des sein, den Cs-Austausch in Form der Kationenaustauschkapazität direkt beeinflussen können. Möglicherweise könnte aber auch durch Einbeziehungen von Proben aus stärker kontaminierten Gebieten die Korrelation genauer bestimmt und dann zuverlässiger zu niedrigen Aktivitäten extrapoliert werden. Allerdings zeigen auch die Literaturwerte teils unverstandene Schwankungen der Transferfaktoren. Zunächst auszuschließen ist ein deutlicher Einfluss der vertikalen Verteilung in den oberen 10 cm auf den Cs-Gehalt im Fruchtkörper, da auch bei einer Bestimmung der Bodenkontamination allein aus dem O-Horizont vergleichbare Werte ermittelt werden konnten.

## III. Literaturverzeichnis

- Battiston, G., Degetto, S., Gerbasi, R., & Sbrignadello, G. (1989). Radioactivity in Mushrooms in Northeas Italy Following the Cernobyl Accident. *Journal of Environmental Radioactivity*, Vol. 9, S. 53-60.
- Bethge, K., Wiedemann, B., & Walter, G. (2008). *Kernphysik*. Berlin Heidelberg: Springer-Verlag.
- Blume, H.-P., Stahr, K., & Leinweber, P. (2011). *Bodenkundliches Praktikum*. Heidelberg: Spektrum Akademischer Verlag.
- De Cort, M., Dubois, G., Fridman, S., Germenchuck, M., Izrael, Y., Janssens, A., . . . Avdyushin, S. (1998). *Atlas of Caesium deposition on Europe after the Chernobyl accident*. Luxemburg: Office for Official Publications of the European Communities.
- de Lange, N. (2013). Geoinformatik. Berlin Heidelberg: Springer-Verlag.
- Dubois, G., & De Cort, M. (2001). Mapping Cs-137 deposition: data validation methods and data interpretation. *Journal of Environmental Radioactivity, Vol. 53*, S. 271-289.
- Faust, D. (2011). Definition und Bodenbildungsfaktoren. In H. Gebhardt, R. Glaser, U. Radtke, & P. Reuber, *Geographie* (S. 470-476). Heidelberg: Spektrum Akademischer Verlag.
- Fielitz, U. (2001). Überprüfung von Ökosystemen nach Tschernobyl hinsichtlich der Strahlenbelastung der Bevölkerung. Göttingen: Environmental Studies.
- Fielitz, U. (2005). Untersuchungen zum Verhalten von Radiocäsium in Wildschweinen und anderen Biomedien des Waldes. Göttingen: Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit.
- Gasper, K. (2016). Analyse von Bodenproben auf Cs-137. Köln.
- Hedderich, J., & Sachs, L. (2016). *Angewandte Statistik*. Berlin Heidelberg: Springer Spektrum.
- Kaduka, M., Shutov, V., Bruk, G., Balonov, M., Brown, J., & Strand, P. (2006). Soildependent uptake of Cs-137 by mushrooms: experimental study in the Chernobyl accident areas. *Journal of Environmental Radioactivity* (89), S. 199-211.
- Kammerer, L., Hiersche, L., & Wirth, E. (1994). Uptake of Radiocaesium by Different Species of Mushrooms. *Journal of Environmental Radioactivity, Vol. 23*, S. 135-150.
- Koepp, R., & Koepp-Schewyrina, T. (1996). *Tschernobyl. Katastrophe und Langzeitfolgen*. Leipzig: B. G. Teubner Verlagsgesellschaft.
- Mansfeldt, T. (2011). Labormethoden. In H. Gebhardt, R. Glaser, U. Radtke, & P. Reuber, *Geographie* (S. 112-117). Heidelberg: Spektrum Akademischer Verlag.

- Opp, C. (2011). Bodenkörper. In H. Gebhardt, R. Glaser, U. Radtke, & P. Reuber, *Geographie* (S. 476-481). Heidelberg: Spektrum Akademischer Verlag.
- Pflugbeil, S., Paulitz, H., Claußen, A., & Schmitz-Feuerhake, I. (2006). *Gesundheitliche Folgen von Tschernobyl.* Deutsche Sektion der Internationalen Ärzte für die Verhütung des Atomkrieges.
- Schütz, C. (2016). Herstellung von Cs-137-Standards für die Messung von Boden- und Pilzproben mit Gammaspektroskopie. Köln.
- Sonnauer, P. (2015). Gamma-Spektrometrische Bestimmung von Cs-137 aus dem Tschernobyl-Fallout in europäischen Wildpilzen. Köln.
- Strebl, F., Bossew, P., Kienzl, K., & Hiesel, E. (2000). *Radionuklide in Waldökosystemen*. Wien: Umweltbundesamt GmbH.
- Ternes, W. (2013). Biochemie der Elemente. Berlin Heidelberg: Springer Spektrum.
- United Nations Scientific Commitee on the Effects of Atomic Radiation. (2013). Sources, effects and risks of ionizing radiation UNSCEAR 2013 Report. Von http://www.unscear.org/docs/publications/2013/UNSCEAR\_2013\_Report\_Vol.II.pdf abgerufen
- United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. (2008). *Sources, effects and risks of ionizing radiation UNSCEAR 2008 Report*. Von http://www.unscear.org/docs/publications/2008/UNSCEAR\_2008\_Report\_Vol.II.pdf abgerufen
- Völkel, J. (2011). Bodenentwicklung. In H. Gebhardt, R. Glaser, U. Radtke, & P. Reuber, *Geographie* (S. 481-489). Heidelberg: Spektrum Akademischer Verlag.
- Winter, M., Völkle, H., Narrog, J., Meyer, P., & Kirchhoff, K. (1986). Die Radioaktivität in der Bundesrepublik Deutschland und in der Schweiz nach dem Reaktorunfall in Tschernobyl. Karlsruhe: Fachverband für Strahlenschutz e.V.

# IV. Anhang

## IV.I. Bodenproben

## IV.I.I. Einzelmessungen der Bodenproben

Tabelle 24 - Bodenprobenmessung auf dem "Kölner Detektor"

Probeort	Kennung	netcounts	Messzeit [s]	Zählrate [ $10^{-2} \cdot s^{-1}$ ]
Linz	4_1K	3468 ± 77	79200	3,77 ± 0,10
Linz	4_2K	1113 <u>+</u> 58	79200	0,80 ± 0,07
Linz	5_1K	4705 ± 100	172800	2,12 ± 0,09
Gemünd	7_1K	2408 ± 68	79200	2,44 ± 0,09
Gemünd	7_2K	1300 ± 59	79200	1,04 ± 0,07
Schmallenberg	8_1	4863 ± 100	172800	2,21 ± 0,06
Schmallenberg	8_1_200	7793 <u>+</u> 114	172800	3,91 ± 0,07
Schmallenberg	8_1_n	4702 ± 98	172800	2,12 ± 0,06
Schmallenberg	8_1_0	5909 ± 103	172800	2,82 ± 0,06
Schmallenberg	8_1_S	6281 ± 107	172800	3,03 ± 0,06
Schmallenberg	8_1_w	5909 ± 103	172800	2,82 ± 0,06
Altastenberg	9_1	9849 <u>+</u> 128	172800	5,10 ± 0,07
Altastenberg	9_1_n	7533 ± 114	172800	3,76 ± 0,07
Altastenberg	9_1_Ok	3847 <u>+</u> 95	172800	1,62 ± 0,05
Altastenberg	9_1_w	5347 <u>+</u> 99	172800	2,49 ± 0,06
Altastenberg	9_1_s	11539 ± 130	172800	6,07 ± 0,08
Rabland	13_2_14K	7848 ± 116	172800	3,94 ± 0,07
Rabland	13_2_19K	6626 ± 109	172800	3,23 ± 0,06
Rabland	13_2K	5692 <u>+</u> 105	172800	2,69 ± 0,06
Dünnwald	14_1K	4180 ± 97	172800	1,81 ± 0,06
Dünnwald	14_2K	2884 <u>+</u> 89	172800	1,06 ± 0,05
Dünnwald	14_1bK	4902 ± 98	172800	2,23 ± 0,06
Dünnwald	14_2bK	2330 <u>+</u> 84	172800	0,74 ± 0,05
Remscheid	15_1K	9788 <u>+</u> 124	172800	5,06 ± 0,07
Remscheid	15_2K	6092 ± 106	172800	2,92 ± 0,06
Maikammer	17_1K	1634 ±61	79200	1,46 ± 0,08
Maikammer	17_2K	1433 <u>+</u> 59	79200	1,21 ± 0,07
Maikammer	17_1_1k	2170 ± 66	79200	2,14 ± 0,08
Maikammer	17_2_1k	1624 ± 60	79200	1,45 ± 0,08
Maikammer	17_3_1k	1649 ± 60	79200	1,48 ± 0,08
Maikammer	17_4_1k	1616 <u>+</u> 59	79200	1,44 ± 0,07
Maikammer	17_5_1k	1694 <u>+</u> 61	79200	1,53 ± 0,08
Sulovce	16_2K	5400 ± 103	172800	2,52 ± 0,06
Sulovce	16_2aK	4836 ±101	172800	2,19 ± 0,06
Sulovce	16_1K	6676 <u>+</u> 110	172800	3,26 ± 0,06
Sulovce	16_1aK	4690 <u>+</u> 98	172800	2,11 ± 0,06
Blumenerde 1	blerd_1	15661 <u>+</u> 136	18528,26	84,52 ± 0,73
Blumenerde 2	blerd_2	16258 ± 135	18573,68	87,53 ± 0,73
Blumenerde 3	blerd_3	16571 <u>+</u> 138	18573,86	89,21 ± 0,74
Sand 1	sand1	12192 ± 119	18574,08	65,64 ± 0,64
Sand 2	sand2	10209 ± 117	18549,78	55,04 ± 0,63
Sand 3	sand3	12999 <u>+</u> 126	18600	69,89 ± 0,68

Probeort	Kennung	netcounts	Messzeit [s]	Zählrate [ $10^{-2} \cdot s^{-1}$ ]
Schmallenberg	8.2	$31 \pm 51$	172800	$0,02 \pm 0,03$
Schmallenberg	8.2.200	1690 + 74	172800	$0.98 \pm 0.04$
Schmallenberg	8.2.N	4128 + 92	172800	$2,39 \pm 0.05$
Schmallenberg	8.2.0	772 + 69	172800	0.45 + 0.04
Schmallenberg	8.2.S	1533 + 72	172800	0.89 + 0.04
Schmallenberg	8.2.W	4269 + 92	172800	2.47 + 0.05
Altastenberg	9.2.N	6460 + 103	172800	3.74 + 0.06
Altastenberg	9.2.0	8879 + 113	172800	5.14 + 0.07
Altastenberg	9.2.S	$7608 \pm 117$	172800	$4.40 \pm 0.07$
Altastenberg	9.2	4542 + 93	172800	$2.63 \pm 0.05$
Altastenberg	9.2.W	1259 + 74	172800	$0.73 \pm 0.04$
Rabland	13.1M	12811 + 141	172800	$7.41 \pm 0.08$
Rabland	13.1.19M	$12536 \pm 137$	172800	$7.25 \pm 0.08$
Rabland	13.1.1400M	2973 + 85	172800	$1.72 \pm 0.05$
Dünnwald	14.1M	3486 + 87	172800	$2.02 \pm 0.05$
Dünnwald	14.2M	2138 + 77	172800	$1.24 \pm 0.04$
Linz	4.1M	3114 + 73	79200	$3.93 \pm 0.09$
Linz	4.2M	641 + 54	73901.08	$0.87 \pm 0.07$
Gemünd	6.1M	2359 + 70	79200	$2.98 \pm 0.09$
Gemünd	6.2M	422 + 52	79200	0.53 + 0.07
Gemünd	7.1M	1946 + 66	79200	$2.46 \pm 0.08$
Gemünd	7.2M	804 + 54	79200	$1,02 \pm 0,07$
Köln Dünnwald	14.1bM	4006 ± 94	172800	$2,32 \pm 0,05$
Köln Dünnwald	14.2bM	1514 ± 77	172800	0,88 ± 0,04
Remscheid	15.1M	13120 ± 135	172800	7,59 ± 0,08
Remscheid	15.2M	6311 ± 106	172800	3,65 ± 0,06
Maikammer	17.1M	1453 ± 60	79200	1,83 ± 0,08
Maikammer	17.2M	784 <u>+</u> 54	79200	0,99 ± 0,07
Maikammer	17.1.2M	893 <u>+</u> 53	79200	1,13 ± 0,07
Maikammer	17.2.2M	654 <u>+</u> 53	79200	0,83 ± 0,07
Maikammer	17.3.2M	890 <u>+</u> 57	79200	1,12 ± 0,07
Sulovce	16.1aM	3369 <u>+</u> 94	172800	1,95 <u>+</u> 0,05
Sulovce	16.1M	5050 <u>+</u> 102	172800	2,92 ± 0,06
Sulovce	16.2aM	3091 <u>+</u> 93	172800	1,79 <u>+</u> 0,05
Sulovce	16.2M	4555 <u>+</u> 100	172800	2,64 ± 0,06
Blumenerde 1	blerd_1mz	21750 <u>+</u> 155	18587	117,02 ± 0,83
Blumenerde 2	blerd_2mz	21228 ± 154	18587	114,21 ± 0,83
Sand 1	sand1_mz	18946 ± 145	18586	101,94 ± 0,78
Sand 2	sand2_mz	18542 ± 144	18587	99,76 ± 0,77
Sand 3	sand3_mz	19655 <u>+</u> 147	18586	105,75 ± 0,79
Sand 3a	sand3_mz_2	19814 ± 147	18586	106,61 ± 0,79
Blumenerde 1	Blerd1M	19996 ± 147	18600	107,51 ± 0,79
Blumenerde 3	Blerd3M	15799 <u>+</u> 136	18600	84,94 ± 0,73
Sand 1	Sand1M	17701 ± 144	18600	95,17 ± 0,77
Sand 2	Sand2M	$17952 \pm 144$	18600	96,52 ± 0,77

## **IV.I.II.** Materialdichte

Droho	Macco m [a]		Volumon V [am <sup>3</sup> ]	Dichto o [a/am <sup>3</sup> ] Bodonklassifizioruna		K-Korrektur		D-Korrektur	
Probe	wasse m [g]	runnone n [cm]		Denie $p[g/cm^{*}]$	Douenkiussijizierung	$a_K$	$b_K$	$a_D$	b <sub>D</sub>
13.1.1900	36 ± 1	5 ± 0,2	$100 \pm 4$	0,36 ± 0,02	sehr humos	1	0	0,98	0,02
13.1	68 ± 1	3,4 ± 0,2	68 ± 4	1,00 ± 0,06	humos	1	0	0,56	0,44
13.1.1400	$106 \pm 1$	5 ± 0,2	$100 \pm 4$	1,06 ± 0,04	lehmig	0,5	0,5	0,52	0,48
13.2.1900	$85 \pm 1$	3,4 ± 0,2	68 ± 4	1,25 ± 0,08	lehmig	0,5	0,5	0,4	0,6
13.2	$106 \pm 1$	3,9 ± 0,2	78 ± 4	1,36 ± 0,07	lehmig	0,5	0,5	0,33	0,67
13.2.1400	45 ± 1	5,1 ± 0,2	$102 \pm 4$	0,44 ± 0,02	humos	1	0	0,92	0,08
15.1	46 ± 1	3 ± 0,2	$60 \pm 4$	0,77 ± 0,05	humos	1	0	0,71	0,29
15.2	66 ± 1	3,5 ± 0,2	$70 \pm 4$	0,94 ± 0,06	lehmig	0,5	0,5	0,6	0,4
6.1	51 ± 1	4 ± 0,2	$80 \pm 4$	0,64 ± 0,03	humos	1	0	0,8	0,2
6.2	$104 \pm 1$	4,9 ± 0,2	98 ± 4	1,06 ± 0,04	lehmig	0,5	0,5	0,52	0,48
7.1	87 ± 1	4,5 ± 0,2	$90 \pm 4$	0,97 ± 0,04	humos/lehmig	0,75	0,25	0,58	0,42
7.2	$110 \pm 1$	4,5 ± 0,2	90 ± 4	1,22 ± 0,06	lehmig	0,5	0,5	0,42	0,58
14.1	38 ± 1	4,4 ± 0,2	88 ± 4	0,43 ± 0,02	humos	1	0	0,93	0,07
14.2	92 ± 1	3,3 ± 0,2	66 ± 4	1,39 ± 0,09	lehmig	0,5	0,5	0,31	0,69
14.1b	93 ± 1	4,3 ± 0,2	86 ± 4	1,08 ± 0,05	humos/lehmig	0,75	0,25	0,51	0,49
14.2b	$123 \pm 1$	4,4 ± 0,2	$88 \pm 4$	1,40 ± 0,06	lehmig	0,5	0,5	0,31	0,69
16.1	94 ± 1	4,7 ± 0,3	94 ± 6	1,00 ± 0,06	humos/lehmig	0,75	0,25	56	44
16.2	92 ± 1	3,7 ± 0,3	74 ± 6	1,24 ± 0,10	humos/lehmig	0,75	0,25	0,4	0,6
16.1a	97 ± 1	5 ± 0,3	$100 \pm 6$	0,97 ± 0,06	humos/lehmig	0,75	0,25	0,58	0,42
16.2a	$100 \pm 1$	4,8 ± 0,3	96±6	1,04 ± 0,07	humos/lehmig	0,75	0,25	0,53	0,47
8_1	73 ± 1	4,5 ± 0,2	89 ± 4	0,82 ± 0,04	lehmig	0,5	0,5	0,68	0,32
8_1_200	51 ± 1	3,9 ± 0,2	78 ± 4	0,65 ± 0,04	humos	1	0	0,79	0,21
8_1_n	$60 \pm 1$	4,8 ± 0,2	97 ± 4	0,62 ± 0,03	humos	1	0	0,8	0,2
8_1_0	$60 \pm 1$	4,1 ± 0,2	81 ± 4	0,74 ± 0,04	humos	1	0	0,73	0,27
8_1_S	69 ± 1	4,5 ± 0,2	$90 \pm 4$	0,77 ± 0,04	humos	1	0	0,71	0,29
8_1_w	39 ± 1	3,8 ± 0,2	76 ± 4	0,51 ± 0,03	humos	1	0	0,88	0,12
8.2	$107 \pm 1$	$4,8 \pm 0,2$	96 ± 4	1,12 ± 0,05	lehmig	0,5	0,5	0,48	0,52
8.2.200	92 ± 1	7,1 ± 0,2	$142 \pm 4$	0,65 ± 0,02	humos	1	0	0,79	0,21
8.2.N	87 ± 1	$6,2 \pm 0,2$	$124 \pm 4$	0,7 ± 0,02	lehmig/humos	0,75	0,25	0,75	0,25

#### Tabelle 26 - Dichtebestimmung des Bodenmaterials

0.2.0		(1 + 0)	120   4	0.02   0.02	laboria /burraa	0.75	0.25	0.00	0.22
8.2.0	$105 \pm 1$	$6,4 \pm 0,2$	$128 \pm 4$	$0,82 \pm 0,03$	lenmig/numos	0,75	0,25	0,68	0,32
8.2.S	$80 \pm 1$	$5,1 \pm 0,2$	$103 \pm 4$	$0,78 \pm 0,03$	lehmig/humos	0,75	0,25	0,7	0,3
8.2.W	84 ± 1	6,9 ± 0,2	138 ± 4	$0,61 \pm 0,02$	lehmig/humos	0,75	0,25	0,81	0,19
9_1	41 ± 1	4,5 ± 0,2	89 ± 4	0,46 ± 0,02	humos	1	0	0,91	0,09
9_1_n	$31 \pm 1$	5,0 ± 0,2	$100 \pm 4$	$0,31 \pm 0,02$	humos	1	0	1	0
9_1_0	$20 \pm 1$	3,4 ± 0,2	69 ± 4	0,29 ± 0,02	humos	1	0	1	0
9_1_w	37 ± 1	3,4 ± 0,2	69 ± 4	0,54 ± 0,03	humos	1	0	0,86	0,14
9_1_s	37 ± 1	3,8 ± 0,2	76 ± 4	0,49 ± 0,03	humos	1	0	0,89	0,11
9.2.N	64 ± 1	5,2 ± 0,2	$103 \pm 4$	0,62 ± 0,03	humos	1	0	0,8	0,2
9.2.0	55 ± 1	5,6 ± 0,2	112 ± 4	0,49 ± 0,02	humos	1	0	0,89	0,11
9.2.S	$50 \pm 1$	3,6 ± 0,2	71 ± 4	0,7 ± 0,04	lehmig/humos	0,75	0,25	0,75	0,25
9.2	81 ± 1	5,1 ± 0,2	$103 \pm 4$	0,79 ± 0,03	lehmig/humos	0,75	0,25	0,69	0,31
9.2.W	74 ± 1	5,3 ± 0,2	$106 \pm 4$	0,7 ± 0,03	lehmig/humos	0,75	0,25	0,75	0,25
4.1	63 ± 1	5,0 ± 0,2	$100 \pm 4$	0,63 ± 0,03	humos	1	0	0,8	0,2
4.2	79 ± 1	3,7 ± 0,2	74 ± 4	$1,07 \pm 0,06$	lehmig	0,5	0,5	0,52	0,48
5.1	46 ± 1	3,6 ± 0,2	72 ± 4	0,64 ± 0,04	humos	1	0	0,8	0,2
5.2	$74 \pm 1$	3,4 ± 0,2	68 ± 4	1,09 ± 0,07	lehmig	0,5	0,5	0,5	0,5
17.1	43 ± 1	5,2 ± 0,2	$104 \pm 4$	0,41 ± 0,02	humos	1	0	0,94	0,06
17.2	83 ± 1	4,9 ± 0,2	98 ± 4	0,85 ± 0,04	lehmig humos	0,75	0,25	0,66	0,34
17.1.1	$40 \pm 1$	4,3 ± 0,2	86 ± 4	0,47 ± 0,02	humos	1	0	0,9	0,1
17.1.2	$105 \pm 1$	4,9 ± 0,2	98 ± 4	1,07 ± 0,05	lehmig	0,5	0,5	0,52	0,48
17.2.1	55 ± 1	4,4 ± 0,2	88 ± 4	0,63 ± 0,03	lehmig humos	0,75	0,25	0,8	0,2
17.2.2	125 ± 1	5,0 ± 0,2	$100 \pm 4$	$1,25 \pm 0,05$	lehmig	0,5	0,5	0,4	0,6
17.3.1	$35 \pm 1$	3,5 ± 0,2	$70 \pm 4$	0,50 ± 0,03	humos	1	0	0,89	0,11
17.3.2	66 ± 1	3,3 ± 0,2	66 ± 4	$1,00 \pm 0,06$	lehmig humos	0,75	0,25	0,56	0,44
17.4.1	45 ± 1	4,9 ± 0,2	98 ± 4	0,46 ± 0,02	humos	1	0	0,91	0,09
17.4.2	128 ± 1	5 ± 0,2	$100 \pm 4$	$1,28 \pm 0,05$	lehmig	0,5	0,5	0,38	0,62
17.5.1	51 \ <i>pm</i> 1	-	-	-	humos	1	0		
17.5.2		4,6 ± 0,2	92 ± 4	1,15 ± 0,05	lehmig	0,5	0,5	0,47	0,53
17.6.1	55 \ <i>pm</i> 1	$5 \pm 0,2$	$100 \pm 4$	$0,55 \pm 0,02$	lehmig humos	0,75	0,25	0,85	0,15
17.6.2		4,6 ± 0,2	92 ± 4	1,33 ± 0,06	lehmig	0,5	0,5	0,35	0,65

## IV.II. Pilzproben

Taballa 27 Einzalmassungan dar Dilzproban	(Massung nach ADC Ausfall arou schattiont)
Tubelle 27 - Ellizennessungen der Plizproben	(Wessung nuch ADC-Ausjun gruu schuttlert)

Probe	Masse [g]	Zählrate [ $10^{-2} \cdot s^{-1}$ ]	spez. Aktivität [kBq · kg <sup>-1</sup> ]
4.St.K	20 ± 1	4,084 ± 0,125	0,106 ± 0,006
4.St.M	$20 \pm 1$	4,298 ± 0,079	0,113 ± 0,006
6.St.K	14 ± 1	4,088 ± 0,124	0,151 ± 0,011
6.St.M	14 ± 1	3,899 ± 0,060	0,146 ± 0,011
8.Pf.K	7 ± 1	0,134 ± 0,064	0,010 ± 0,005
8.Pf.K	29 ± 1	0,748 ± 0,116	0,013 ± 0,002
8.Pf.K	29 ± 1	0,766 ± 0,114	0,014 ± 0,002
8.Pf.M	29 ± 1	0,741 ± 0,068	0,013 ± 0,001
8.Pf.M	29 ± 1	0,698 ± 0,068	0,013 ± 0,001
8.St.K	10 ± 1	0,076 ± 0,114	0,004 ± 0,004
9.St.M	12 ± 1	2,653 ± 0,075	0,116 ± 0,010
9.St.M	$12 \pm 1$	2,547 ± 0,058	0,111 ± 0,010
13.Pf.K	7 ± 1	1,176 ± 0,122	0,087 ± 0,014
13.Pf.K	7 ± 1	1,356 ± 0,121	0,100 ± 0,016
13.Pf.M	7 ± 1	0,907 ± 0,091	0,049 ± 0,008
13.Pf.M	7 ± 1	0,648 ± 0,044	0,068 ± 0,012
14.Pf.K	17 ± 1	1,645 ± 0,120	0,050 ± 0,004
14.Pf.M	17 ± 1	1,601 ± 0,046	0,049 ± 0,003
15.St.K	8 ± 1	2,000 ± 0,124	0,129 ± 0,017
15.St.M	8 ± 1	2,180 ± 0,072	0,139 ± 0,019
16.St.K	20 ± 1	0,540 ± 0,120	0,014 ± 0,002
16.St.K	20 ± 1	0,432 ± 0,114	0,011 ± 0,002
16.St.M	$20 \pm 1$	0,401 ± 0,036	0,010 ± 0,001
17.Pf.M	15 ± 1	0,656 ± 0,042	$0,023 \pm 0,002$
17.Pf.K	15 ± 1	1,003 ± 0,121	0,031 ± 0,003
17.St.M	17 ± 1	10,455 ± 0,151	0,275 ± 0,014
17.St.K	17 <u>+</u> 1	14,280 ± 0,149	0,436 ± 0,026
17.St.M	6 ± 1	2,655 ± 0,054	0,233 ± 0,039
17.St.M	3 <u>±</u> 1	2,172 ± 0,049	0,381 ± 0,127
Schodsina (WR)	17 ± 1	12,242 ± 0,095	0,379 ± 0,022
Rumänien	$17 \pm 1$	3,073 ± 0,078	0,095 ± 0,006
Serbien	17 ± 1	0,584 ± 0,066	0,018 ± 0,002
Litauen	$20 \pm 1$	14,512 ± 0,115	0,382 ± 0,019

## V. Danksagung

Abschließend möchte ich einigen Menschen meinen Dank aussprechen. Allen voran den Mitarbeitern der Abteilung Nuklearchemie der Universität zu Köln, welche mich herzlich in ihr Team aufgenommen haben und mir jederzeit mit Rat und Tat ausgeholfen haben. Ein gesonderter Dank geht dabei an PD Dr. Erik Strub, der jeder Zeit ein offenes Ohr für Fragen hatte und sie mit Geduld beantwortet hat. Weiterhin möchte ich besonders Uwe Otto danken, ohne dessen Wissen über Pilze und Arbeitsfleiß wahrscheinlich keine einzige Pilzprobe den Weg ins Labor gefunden hätte und die Messreihe in diesem Ausmaß nicht gestemmt werden konnte.

Weiterhin danke ich meiner Freundin, welche mich während Arbeit zu Hause aushalten musste und meine cholerischen Ausbrüche mit einer stoischen Ruhe ertragen hat.

Diese Arbeit widme ich meinen Eltern, welche während des Studiums immer an mich geglaubt haben und auf deren Unterstützung ich immer bauen kann. Vielen Dank.

## VI. Eigenständigkeitserklärung

Ich versichere, dass ich die Schriftliche Hausarbeit selbstständig verfasst habe. Ich habe keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel benutzt. Alle Stellen und Formulierungen, die dem Wortlaut oder dem Sinn nach anderen Werken entnommen sind, habe ich in jedem einzelnen Fall unter genauer Angabe der Quelle als Entlehnung kenntlich gemacht.

Ort, Datum

Unterschrift