



Bundesministerium
für Umwelt, Naturschutz
und Reaktorsicherheit

SCHRIFTENREIHE REAKTORSICHERHEIT UND STRAHLENSCHUTZ

RADIOÖKOLOGISCHE UNTERSUCHUNGEN IN MARINEN ÖKOSYSTEMEN

BMU - 2003-626



WIR STEuern UM AUF ERNEUERBARE ENERGIEN.

BMU – 2003-626

**Radioökologische Untersuchungen in marinen
Ökosystemen**

Kanisch, Günther, Dipl. Phys.

Kellermann, Hans-Jürgen, Dipl. Phys.

Dr. Krüger, Alois

Vobach, Michael, Dipl. Biol.

IMPRESSUM

Dieser Band enthält einen Abschlussbericht über ein vom Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (BMU) gefördertes Vorhaben. Verantwortlich für den Inhalt sind allein die Autoren. Das BMU übernimmt keine Gewähr für die Richtigkeit, die Genauigkeit und Vollständigkeit der Angaben sowie die Beachtung privater Rechte Dritter. Der Eigentümer behält sich alle Rechte an der weiteren Nutzung oder Vervielfältigung des Berichts vor.

Der Bericht wurde durch die Bundesforschungsanstalt für Fischerei, Institut für Fischereiökologie erstellt.

Der Bericht gibt die Auffassung und Meinung der Auftragnehmer wieder und muss nicht mit der des BMU übereinstimmen.

Herausgeber:

Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit
Arbeitsgruppe RS I 1
Postfach 12 06 29
53048 Bonn

ISSN 1612-6386

Erscheinungsjahr: 2003

Kurzfassung

Radioökologische Untersuchungen in marinen Ökosystemen

Der Auftrag des BfS vom 1.7.1997 beinhaltete die Durchführung radioökologischer Untersuchungen in der Barentssee und im ehemaligen Versenkungsgebiet der Iberischen Tiefsee. Die Finanzierung lief von 1997 bis 2001. Für eine Zusammenfassung und Bewertung wurden den Projektdaten weitere, im Hause seit 1980 vorhandene, hinzugefügt. In diesem Bericht werden erstmals die seit 1990 festgestellten Befunde zur radioökologischen Situation im Versenkungsgebiet der Iberischen Tiefsee veröffentlicht. Der Einfluss unterschiedlicher Quellen wird aufgrund von Aktivitätsverhältnissen abgeschätzt. Hierzu wurde ergänzend zur RIMS-Methode (Mainz) ein hochauflösendes alphaspektrometrisches Verfahren zur Trennung von Pu-239 und Pu-240 erprobt und validiert. Einige signifikant höhere Aktivitäten deuten auf eine Freisetzung aus den Abfallfässern hin. Im Tiefenwasser wurde für den Beitrag aus der versenkten Radioaktivität ein Pu-238/Pu-239,240 Verhältnis von etwa 0,17 (ein gegenüber dem „fall-out“ um das 5 fache erhöhter Wert) gefunden. Eine Beeinflussung der Biozönose durch das Einbringen der Hartsubstrate „Abfallfässer“ lässt sich nicht feststellen. Der von uns im Jahre 1996 beobachtete „Amperima event“ – ein einmaliges Auftreten sehr großer Mengen von Seegurken (Holothuroidea) – war kein lokales auf das Versenkungsgebiet begrenztes Ereignis, das seine Ursache im Einbringen von Abfallfässern haben könnte.

Abstract

Radioecological studies in marine ecosystems

The BfS's mandate of 1st July 1997, was to conduct radioecological studies in the Barents Sea and at the former dumping site in the Iberian Deep Sea with financing from 1997 to 2001. For a summary and an assessment own data since 1980 were added to the project data. In this report findings of the radioecological situation at the dumping site in the Iberian Deep Sea are published for the first time since 1990. The influence of different sources is estimated by the activity ratios. In addition to the RIMS-method (Mainz) an alphaspectrometrical technique with high resolution to separate Pu-239 and Pu-240 was tested and validated. Some significantly elevated activities indicate a release from the dumped barrels. In the deep water layer the contribution of the dumped radioactivity showed a Pu-238/Pu-239,240 ratio of about 0.17 (five times as high as the "fall-out" ratio). The influence on the biocoenosis of the so-called "artificial reef effect" caused by dumped drums was investigated. With the exception of the "Amperima event" in 1996 – a unique occurrence of a large number of sea cucumber – there was no change in the composition of benthopelagic and benthic organisms throughout the years.

Inhaltsverzeichnis

1.	Zielsetzung.....	7
2.	Einzelzielsetzungen	7
2.1	Barentssee	7
2.2	Iberisches Tiefseebecken	8
3.	Methodik.....	9
3.1.	Probenbehandlung.....	9
3.2.	Probenbeschaffung	9
3.2.1.	Probenahmezeiten	9
3.2.2.	Probenahmegebiete.....	10
3.3.	Probenahmegeräte	11
3.3.1.	Biologisches Material	11
3.3.2.	Wasserproben.....	12
3.3.3.	Sedimentproben.....	12
3.4	Probenaufbereitung - Methoden	13
3.4.1	Gammamessung.....	13
3.4.1.1	Caesium-137 (Cs-137):.....	13
3.4.2	Betamessung	13
3.4.2.1	Strontium-90 (Sr-90)	13
3.4.2.2	Technetium-99 (Tc-99).....	14
3.4.3	Alphamessung	14
3.4.3.1	Plutonium-Isotope	14
3.4.3.2	Americium-241 (Am-241):.....	15
3.4.4	Höher auflösende Alpha-Spektrometrie	15
3.4.5	Pu-Bestimmung in Seewasser mit RIMS (Uni Mainz).....	24
3.4.6	Tc-Bestimmung in Seewasser mit RIMS (Uni Mainz)	25
4.	Ergebnisse	27
4.1	Tiefsee	27
4.1.1	Biologie der Tiefsee	27
4.1.1.1	Probenahme des biologischen Materials	28
4.1.1.2	Bewertung der Probenahme	28
4.1.1.3	Ergebnisse der biologischen Untersuchungen.....	29
4.1.1.4	Wirkung der Hartsubstrate auf die Biologie.....	32
4.1.2	Radioaktivität.....	33
4.1.2.1	Biota	33
4.1.2.1.1	Vorbemerkungen.....	33
4.1.2.1.2	Benthische Organismen.....	34
4.1.2.1.3	Bathypelagische Organismen	47
4.1.2.1.4	Effektive und ökologische Halbwertszeiten	51
4.1.2.2	Wasser	54
4.1.2.2.1	Vorbemerkungen.....	54
4.1.2.2.2	Messungen durch BFAFi.....	54
4.1.2.2.3	Spezialmessungen durch die Uni Mainz	63
4.1.2.3	Sediment	67
4.2	Barentssee	70
4.2.1	Gammastrahlung.....	70
4.2.1.1	Wasser	70
4.2.1.2	Fisch.....	74
4.2.1.3	Biokonzentrationsfaktor.....	83
4.2.1.4	Cs-Isotopenverhältnis	84
4.2.1.5	Cs-137 im Sediment.....	86
4.2.2	Betastrahlung	89
4.2.2.1	Strontium im Wasser.....	89
4.2.2.2	Strontium in Fisch	91

4.2.2.3	Biokonzentrationsfaktor.....	91
4.2.3	Alphastrahlung	92
4.2.3.1	Plutonium im Wasser	92
4.2.3.2	Plutonium in Fisch.....	94
4.2.3.3	Biokonzentrationsfaktor.....	94
4.2.3.4	Plutonium Isotopenverhältnis im Wasser	95
5.	Projektergebnisse	97
6.	Literatur	100
7.	Anhang.....	103
	Anhang A1:	
	Analytical Methods used at the Federal Research Centre for Fisheries for Biological MORS Samples	103
	Anhang A2:	
	Zeitreihen der Radionuklide in den Biota	114
	Anhang A3:	
	Ältere Messdaten von Pu-Isotopen, Cs-137 und Sr-90 in Meerwasser	136
	Anhang A4:	
	RIMS-Analysenberichte der Uni Mainz zu Pu-Isotopen und Tc-99 im Meerwasser.....	141
	Anhang A5:	
	Verwendung charakteristischer Verhältnisse $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ verschiedener Quellen zur Ermittlung von deren Anteilen am gesamten Aktivitätsinventar.	153

1. Zielsetzung

Im Rahmen dieses Forschungsvorhabens (1997-2001) sollen Auswirkungen von ins Meer gelangten radioaktiven Abfällen auf marine Ökosysteme untersucht werden. Ausgewählte, marine Ökosysteme für dieses Vorhaben sind einerseits im Nordostatlantik das Versenkungsgebiet für schwach radioaktive Abfallstoffe und andererseits im Polarmeer der westliche Teil der Barentssee. In die Beurteilung mit einbezogen werden die hier im Hause routinemäßig erarbeiteten Kenntnisse zur radioökologischen Situation von Nord- und Ostsee. Ziel ist die Erfassung der Dynamik radioaktiver Stoffe, des zeitlichen Verlaufs ihrer Gehalte in verschiedenen Kompartimenten und eine daraus resultierende Risikoabschätzung für das Ökosystem ebenso, wie für den Menschen. Mit Hilfe der gewonnenen Daten soll dann eine radioökologische Bewertung der marinen Ökosysteme vorgenommen werden. Damit werden gleichzeitig Unterlagen für den Beratungsbedarf der Bundesregierung bereitgestellt.

Beteiligung

Bearbeitet wird das Vorhaben durch das Institut für Fischereiökologie (IFÖ) der Bundesforschungsanstalt für Fischerei (BFAFi). Fremdleistungen als Analysen zur massenspektrometrischen Trennung von Plutoniumisotopen ausgewählter Wasserproben der Tiefsee werden von der Universität Mainz erbracht. Entsprechende Unterverträge wurden abgeschlossen. Arbeitsgruppen der IAEA vom Marine Environmental Laboratory (MEL) in Monaco haben an Reisen in die Tiefsee teilgenommen und Radionuklide in Wasserproben bestimmt. In Ergänzung der eigenen Untersuchungen bis 500 m über Grund bei rund 4600 m Wassertiefe wurden für deren Untersuchungen weitere Wasserproben aus der gesamten Wassersäule von der Oberfläche bis zum Grund geschöpft. Aus einigen Tiefen wurden jeweils Mischproben bereitet, von denen Anteile zum Qualitätsvergleich von beiden Laboratorien nach deren eigenen Methoden aufbereitet und analysiert wurden. Das Bundesamt für Seeschifffahrt und Hydrographie hat zur Vorbereitung einer eigenen Reise im Jahr 1995 ins Nordmeer unsere vor Projektbeginn beschafften Wasserproben aus dem Jahr 1994 auf Alpha- und Gammastrahler analysiert.

Die Aufgaben des Instituts für Fischereiökologie in Durchführung des Projektauftrages lassen sich folgendermaßen zusammenfassen:

- Koordination aller diesbezüglicher Aktivitäten
- Beschaffung des benötigten Probenmaterials
- Analytische Untersuchung der erlangten Proben
- Zusammenfassende Beurteilung der Ergebnisse

2. Einzelzielsetzungen

2.1 Barentssee

Die Barentssee wird im Westen durch die Linie Nordnorwegen, Bäreninsel, Spitzbergen, im Norden durch die Linie Spitzbergen, Franz Joseph Land und im Osten durch Novaja Semlja abgegrenzt. Sie ist ein Schelfmeer mit einer mittleren Tiefe von 230 Metern und einer Fläche von 1,4 Millionen Quadratkilometern. Im Winter/Frühjahr erreicht die maximale Eisfläche 0,8 bis 1,1 Millionen Quadratkilometer. Entlang der norwegisch/russischen Küste sorgen Ausläufer des Golfstromes auch im Winter für eine eisfreie Zone. Das Ökosystem Barentssee ist wegen seiner besonderen klimatischen Bedingungen und der daraus resultierenden hohen Produktivität für die Fischerei sehr bedeutend. Die Barentssee ist durch hohe internationale Fischereiaktivitäten geprägt. So wurden beispielsweise im Jahr 1995 rund 376 000 t Fisch gefangen, davon 244 000 t Kabeljau. Ebenso wie andere Gegenden, sind auch die arktischen Gebiete von anthropogenem Stoffeintrag nicht

verschont geblieben und sind ihm auch weiterhin ausgesetzt. Neben anderen Umweltchemikalien sind auch radioaktive Stoffe an solcher Kontamination beteiligt (Champ, 1997; NRPA, 2002).

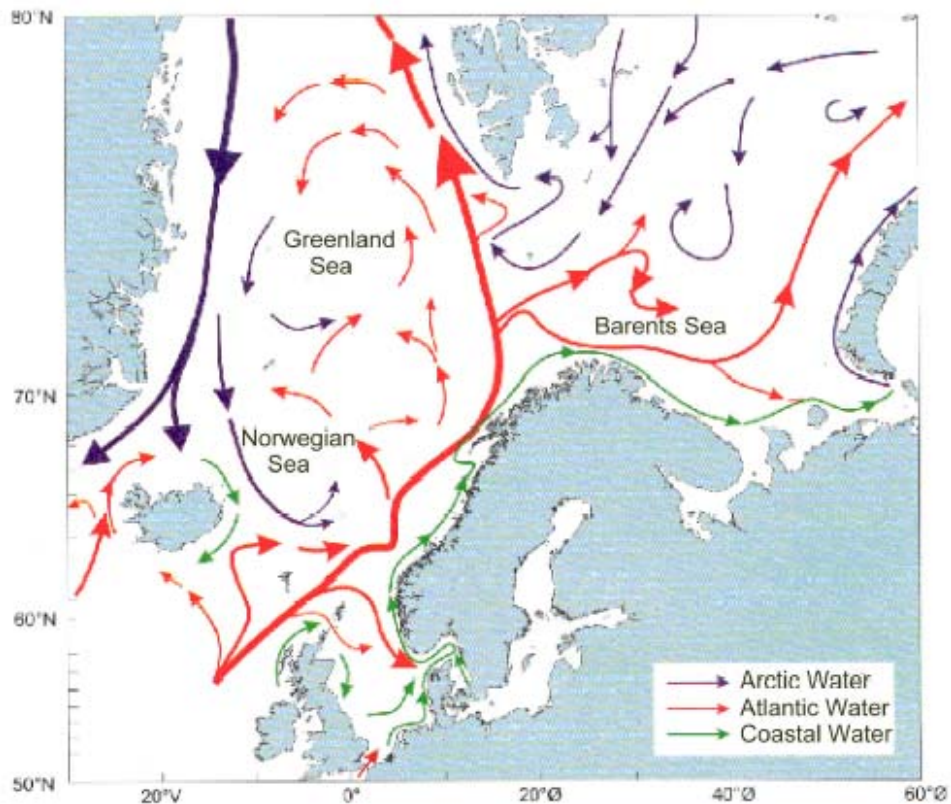


Abb. 2.1: Wasserströmungen von der Nordsee bis zur Barentssee (Aure, 1999)

Die radioaktive Belastung erfolgt neben dem "Fall- und Washout" von Resten früherer Kernwaffentests hauptsächlich aus dem Einströmen von belasteten Wasserkörpern (Nord- und Ostseewasser) entlang der Norwegischen Rinne (vergl. Abb. 2.1) (Kautsky, 1987). Die Fracht des Ostseewassers entstammt dem Tschernobyleintrag, die des Nordseewassers den Kernbrennstoffwiederaufbereitungsanlagen Sellafield in England, La Hague in Frankreich und Dounreay in Schottland. Flüssige radioaktive Abfälle werden von diesen Einrichtungen in die Irische See, den Englischen Kanal und die schottischen Küstengewässer eingeleitet. Von der entferntesten Quelle, der Irischen See aus, gelangt kontaminiertes Wasser mit einer Verzögerung von etwa 4 bis 5 Jahren durch die Nordsee und die Norwegische Rinne in die Barentssee. Diese Fracht hat dazu geführt, daß z.B. im Jahr 1981 (R.V. Cirolana, Cruise 7/81) im Wasser der Barentssee Konzentrationen des Cs-137 zwischen 30 und 50 Bq/m³ bestimmt worden sind. Mit dem Rückgang der Sellafield-Emissionen Anfang der 80er Jahre sind auch die Konzentrationen in der Barentssee zurückgegangen. Ob darüber hinaus auch frühere russische Seeeverklappungen (Yablokov, 1993; Baxter, 1998) oder Abflüsse vom Festland aus zum radioaktiven Inventar der Barentssee beitragen, scheint aufgrund der statistischen Schwankungsbreite von Auswirkungen aus den aufgezeigten südlicheren Quellen so gut wie nicht erkennbar zu sein.

2.2 Iberisches Tiefseebecken

Etwa 700 km nordwestlich der spanischen Küste liegt das ehemalige Versenkungsgebiet für schwach- und mittelaktive radioaktive Stoffe. Es erstreckt sich um den 46. Breitengrad, reicht

von 16°00'W bis zu 17°30'W und hat eine Fläche von etwa 4300 km². Während westlich des 17. Längengrades ebenes Gelände vorliegt, ist das östlichere Gebiet von in Nord-Südrichtung verlaufenden Erhebungen geprägt. Der Grund steigt dort um bis zu mehreren 100 m an. Im Tal wird eine Wassertiefe von 4700 m erreicht. Die Tiefsee im Iberischen Becken ist ein sehr dünn besiedelter Raum. Wichtige Repräsentanten sind dort die Macrouriden (Grenadierfische), die als Einzelfische bereits genügend Fleisch für eine Cs-137 Analyse liefern. Davon gibt es dort schätzungsweise 200 Tiere pro km². Von 1971 bis 1982 sind schwach radioaktive Abfallstoffe mit insgesamt etwa 35 PBq in rund 130 000 Fässern in diesem Seegebiet versenkt worden (IAEA, 1999). Der Plan war, dass aus den korrodierenden Behältern austretende radioaktive Stoffe durch die Wasserströmung großräumig verfrachtet werden. Vergleichsproben, die 125 km östlich des Versenkungsgebietes genommen sind, sollen prinzipiell die generelle Vorbelastung der Tiefsee mit künstlichen Radionukliden aus anderen Quellen anzeigen.

Die Untersuchungen im Versenkungsgebiet des Iberischen Tiefseebeckens dienen der Bearbeitung zweier Probleme. Zum einen ist zu prüfen, ob eine Beeinflussung der Biozönose bereits durch das Einbringen der Hartsubstrate "Abfallfässer" erkennbar ist. Zum anderen ist die Kontamination des Ökosystems durch das alterungsbedingte Freisetzen von Radioaktivität aus den korrodierenden Behältern in zeitlicher und räumlicher Abfolge zu erfassen.

3. Methodik

3.1. Probenbehandlung

In den Proben unserer Untersuchungsgebiete sind durchweg so geringe Aktivitäten enthalten, daß eine Messung sogleich an Bord, unmittelbar nach der Probenahme, für radioökologische Untersuchungen praktisch keine rechnerisch verwendbaren Ergebnisse liefern würde. Die Meßunschärfe wäre einfach zu groß. Stattdessen sind im Laboratorium, wie in den Meßanleitungen der Leitstellen für Radioaktivitätsüberwachung (BMU, 1992) festgelegt, umfangreiche Vorbereitungsarbeiten zur Probenaufbereitung und anschließend langandauernde Messungen erforderlich. In unserem Verfahren wird das Probenmaterial an Bord des Schiffes für die Weiterbearbeitung im Laboratorium sorgfältig vorbereitet (z.B. Filettieren von Fischen, Fällungen oder Extraktionen mit Ionenaustauschern von großvolumigen Wasserproben, Struktur bewahrendes Verpacken von Sedimentkernen) und gegen wechselseitige Beeinflussung (Kontamination) gesichert eingelagert. Die Qualität unserer Ergebnisse wird durch Teilnahme an internationalen (IAEA), wie auch in nationalen (BfS Berlin, BfG Koblenz) Ringanalysen für alle hier gemessenen Kompartimente regelmäßig überprüft.

3.2. Probenbeschaffung

3.2.1. Probenahmezeiten

Zur Probenbeschaffung für das Forschungsprojekt wurden folgende Reisen mit dem Fischereiforschungsschiff „FFS Walther Herwig III“ durchgeführt:

- 1994 (28.07.-31.08.) die 150. Reise FFS WH III „Barentssee“ (vor Projektantrag)
- 1996 (10.08.-13.09.) die 175. Reise FFS WH III „Iberische Tiefsee“
- 1997 (23.07.-28.08.) die 187. Reise FFS WH III „Barentssee“
- 1998 (14.08.-24.09.) die 198. Reise FFS WH III „Iberische Tiefsee“
- 2000 (03.01.-18.01.) die 213. Reise FFS WH III „Iberische Tiefsee“
- 2000 (16.05.-15.06.) die 217. Reise FFS WH III „Barentssee“

Zusätzlich zu den gefischten Proben von Fischen und Krebs- und Weichtieren wurden auf diesen Reisen mit dem für Spezialarbeiten gut ausgestatteten Forschungsschiff als weiteres Untersuchungsmaterial auch Wasserproben aus verschiedenen Tiefen geschöpft und Sedimentkerne gestochen.

3.2.2. Probenahmegebiete

In diesem Vorhaben sollte unter anderem untersucht werden, inwieweit das Vorkommen von radioaktiven Stoffen in geographisch deutlich voneinander getrennten Untersuchungsgebieten verschieden ist. Dazu wurden Untersuchungsgebiete ausgewählt und definiert. Sie dürfen für die Fischerei nicht zu eng gesteckt werden, denn es muß die Möglichkeit bestehen, den Fisch in gewissen Grenzen zu suchen und ihm nachzufahren. Unser Vorhaben ist nicht bestandskundlich ausgerichtet, sondern wir benötigen Probenmaterial für die Analytik. Die Probenahme von Biota, Wasser und Sediment erfolgt auf Schleppstrecken bzw. auf sogenannten Schiffsstationen. Generelle Vorgabe bei der Probenahme war, das Schiff nur innerhalb der Gebiete operieren zu lassen. Das Probenmaterial der Barentssee entstammt den Arbeitsgebieten gemäß Tabelle 3.1 (vergleiche Abb.3.1).

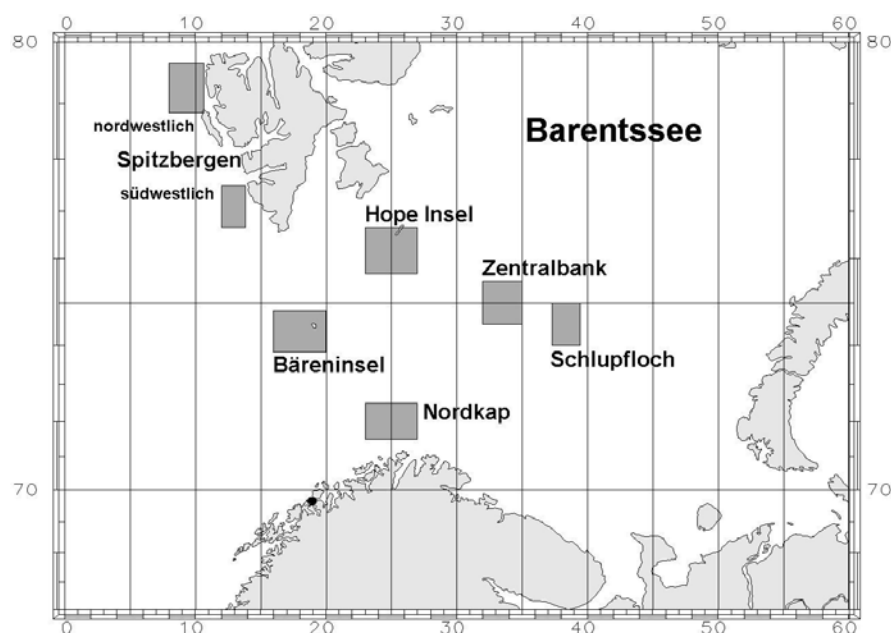


Abb. 3.1: Arbeitsgebiete in der Barentssee

Tab. 3.1: Arbeitsgebiete in der Barentssee

Gebiet	Kürzel	Rechteck	
Schlupfloch	SL	74°00'N 37°00'E	75°00'N 39°00'E
Zentralbank	ZB	74°30'N 32°00'E	75°30'N 35°00'E
Hope Insel	HI	75°40'N 23°00'E	76°40'N 27°00'E
Nordkap	NK	71°30'N 23°00'E	72°30'N 27°00'E
Bäreninsel	BI	73°50'N 07°26'E	54°25'N 07°39'E
Spitzbergen (sw)	SB	76°40'N 12°00'E	77°30'N 14°00'E
Spitzbergen (nw)	SB-N	78°40'N 08°00'E	79°40'N 11°00'E

In der Iberischen Tiefsee sind die Arbeitsgebiete geographisch gemäß Tab. 3.2 abgegrenzt (vergleiche Abb. 3.2):

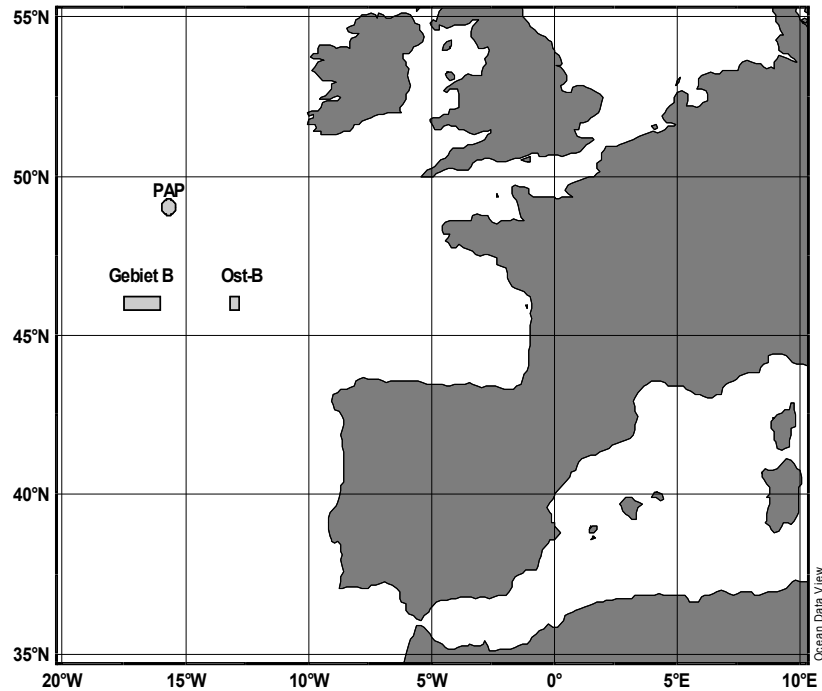


Abb. 3.2: Arbeitsgebiete in der Iberischen Tiefsee

Tab. 3.2: Arbeitsgebiete in der Iberischen Tiefsee

Gebiet	Kürzel	Rechteck	
Arbeitsgebiet	B	45°50'N 17°30'W	46°10'N 16°00'W
Referenzgebiet	B-O	45°50'N 13°15'W	46°10'N 12°45'W

3.3. Probenahmegeräte

3.3.1. Biologisches Material

In der Barentssee wurde zum Fischen das 140 Fuß Grundschieppnetz mit Standardrollengeschirr verwendet, ein von der Bundesforschungsanstalt für Fischerei üblicherweise eingesetztes Fanggeschirr. Eingesetzt wurde es in 100 bis 200 m Tiefe, abhängig vom Vorkommen der Fische.

In der Iberischen Tiefsee erfolgte die biologische Probenahme mit dem Tiefseeschließnetz (Agassiz – Trawl) und der Tiefseefalle. Das Agassiz-Trawl (Breite: 3 m, Höhe: 1 m, Länge: 2,6 m) ist mit einem Schließmechanismus ausgerüstet, der die Netzöffnung bei Bodenberührung freigibt und automatisch wieder verschließt, sobald kein Bodenkontakt mehr gegeben ist. Somit ist gewährleistet, daß nur Organismen, die auf dem Boden oder in einer dünnen Bodenoberflächenschicht leben (benthische Organismen), sowie Organismen, die sich bis zu einem Meter über dem Boden im freien Wasser bewegen (benthopelagisches Nekton), gefangen werden. Organismen der freien Wassersäule wurden beim Hieven und Fieren des Agassiz-Trawls nicht mitgefangen, da das Netz in diesen Phasen geschlossen ist.

Das am Ende des Rahmens angeschlagene Netz hat von der Flügelspitze bis zum Steertende eine Länge von 6 m. Die Maschenweite beträgt 3 cm an der Flügelspitze und verjüngt sich im Steert auf 0,5 cm. Zum Fieren und Hieven des Netzes wurden jeweils zwei Stunden benötigt. Über Grund wurde es grundsätzlich vier Stunden lang mit einer Schiffsfahrt von 2 Knoten geschleppt.

Auf unsicherem Untergrund, wo die Gefahr bestand, das Agassiz-Trawl durch Leinenbruch zu verlieren, wurde eine Tiefseefalle ausgesetzt. Mit der Falle sollten hauptsächlich Macrouridae (Grenadierfische) gefangen werden. Der Drahtwürfel (etwa 1 m Seitenlänge. Maschenweite 4 cm) mit zwei Einschwimmreusen war dafür mit beköderten Angelhaken bestückt. Zum Fangen wurde die Falle für 24 Stunden dicht über Grund ausgesetzt. Ein Betongewicht zog die an Auftriebskörpern befestigte Falle mit einer Geschwindigkeit von rund

1 m/s abwärts. Nach Ablauf der Fangzeit wurde von Bord aus durch schallgesteuerte Auslöser das Ballastgewicht freigegeben. Darauf stieg die Falle mit wiederum etwa 1 m/s zur Wasseroberfläche zurück, wo sie geborgen wurde. Es ist nicht anzunehmen, daß die gefangenen großen Fische durch die enge Einschwimmöffnung in die relativ schnell auf- oder abwärts gleitende Falle geschwommen sind. Die Herkunft dieser Fänge ist somit ebenfalls vollständig dem Bereich über Grund zuzuordnen.

3.3.2. Wasserproben

Zur Gewinnung von Seewasserproben wurden großvolumige Wasserschöpfer (400 Liter bzw. 500 Liter Gerard-Ewing-Schöpfer) eingesetzt, im Versenkungsgebiet bis zu einer Wassertiefe von 4700 m. Zur Bestimmung von Plutonium und Americium wurden 800 l Wasser, zur Bestimmung von Cäsium 600 l Wasser und zur Bestimmung von Strontium 300 l Wasser benötigt. Für einen kontinuierlichen Austausch des Wassers wird der Schöpfer mit geöffnetem Deckel gleichmäßig mit größtmöglicher Geschwindigkeit (hier etwa 1 m/sec) auf Tiefe gefiert. Das Bewahren der Wasserprobe aus der Schöpftiefe geschieht durch Schließen des Deckels vor dem Hieven. Gegenüber der handelsüblichen Ausführung sind unsere Wasserschöpfer zweifach modifiziert. Die Tiefe des an der Leine hängenden Schöpfers, insbesondere bei Probenahme dicht über Grund, wird mittels eines 12 kHz Pingersystems (kurze Schallsignale im Sekundenabstand) angefahren. Aus der Laufzeitdifferenz von direktem und am Boden reflektierten Signal wird die Höhe über Grund bestimmt. In der oberen Wassersäule dient die Schall-Laufzeit zur Tiefenbestimmung. Der Mechanismus zum Schließen des Deckels wird nicht mehr durch ein Fallgewicht ausgelöst, sondern durch eine zeitgesteuertes Freigeben der Deckelverriegelung. Das über einen Schalter abgefragte Schließen des Deckels, bewirkt eine Verdopplung des Pinger-Rhythmus, was dem Schiff eine erfolgreiche Probenahme signalisiert (Bethke und Kellermann, 1993).

3.3.3. Sedimentproben

Die Sedimentprobenahme mit Hilfe eines leichten GEMINI „Twin-Corers“ war in der Barentssee erfolgreich. In der Iberischen Tiefsee, aus etwa 4600 m Tiefe, schlug die Probenahme fehl. Trotz sorgfältig durchgeführter Anwendung des Gerätes, beim Fieren mit Halt
etwa
50 m über Grund zum Austörnen der Leine und anschließendem schnellen Aufsetzen auf den Grund, gelang keine Probenahme. Obwohl der Vorgang unter Kontrolle des hier ebenfalls eingesetzten 12 kHz Pingersystems ablief, waren später an Bord nur Restspuren von Sediment an den beiden Stechrohren zu erkennen. Das vorwiegend für den Einsatz in der flachen Ostsee konzipierte Gerät ist nach unseren Erfahrungen nicht für den Einsatz in diesen Wassertiefen geeignet. Die Bodenprobe wird offensichtlich beim Hieven wieder ausgespült.

Alternativ wurde ein Multicorer eingesetzt. Dieses schwere Gerät sticht gleichzeitig bis zu zwölf Rohre nebeneinander in den Boden. Beim Anheben werden die Rohre oben und unten durch Deckel dicht verschlossen, so daß die gezogenen Kerne samt überstehendem Wasser sicher an Bord gebracht werden können. Durch das überstehende Wasser wird die Kernoberfläche bei harten Stößen, die nicht selten beim Einholen des Corers an Bord vorkommen, gegen Umlagerung geschützt. Betrieben wurde das Gerät von uns mit nur vier Stechrohren, um einen größeren Druck auszuüben und längere Kerne zu stechen.

Ergänzend wurde in der Tiefsee ein Kastengreifer eingesetzt. Dieser sticht Quader mit 30 cm Kantenlänge und etwa 20 bis 30 cm Tiefe aus dem Meeresboden. Er arbeitet durchweg recht zuverlässig. Allerdings ist bei diesem Gerät die Sedimentoberfläche kaum gegen Verlust geschützt. Gerade die locker aufliegenden frisch sedimentierten Schwebstoffe können verloren gehen. An Bord wird zur Probengewinnung von oben in den abgestellten Baggerkasten ein Stechrohr gedrückt

3.4 Probenaufbereitung - Methoden

3.4.1 Gammamessung

3.4.1.1 Caesium-137 (Cs-137):

Biota

Zur detaillierten Beschreibung der Probenvorbereitung und gammaspektrometrischen Messung von marinen Biota (Fisch, Schalen- und Krustentiere, Algen usw.) und Sediment wird auf den Anhang A1: „Analytical methods“ (Method 01) verwiesen. Hierzu sei erwähnt, dass der Anhang speziell für die HELCOM-Projektarbeitsgruppe „MORS-PRO“ erstellt wurde und daher in Englisch abgefasst wurde

Meerwasser

Zur Cs-137-Analyse wurden bis zu 600 l angesäuertes Meerwasser (1 ml 12 M HCl pro l Wasser) eingesetzt. Zur Abtrennung des Cs-137 wurden 60 g (Trockengewicht) KCFC-Ionenaustauscher (Kaliumhexacyanocobaltat(II)ferrat(II)) mit destilliertem Wasser in eine zylindrische Durchflussskammer gespült. Auf der Zulaufseite der Kammer befand sich ein Filtervliespapier mit einem Flächengewicht von 80 g/m², auf der Ablaufseite ein solches mit 60 g/m². Die Durchflussgeschwindigkeit wurde mittels einer Wasseruhr auf maximal 1 l pro Minute eingestellt. Nach Beendigung des Wasserdurchlaufs wurde der KCFC-Ionenaustauscher mit destilliertem Wasser in Kunststoffflaschen überführt und zur weiteren Bearbeitung ins IFÖ-Labor transportiert. Dort wurde der Ionenaustauscher bei 105 °C getrocknet und das Cs-137 gammaspektrometrisch bestimmt. Allgemeinere Hinweise zur Durchführung der Gammaskopimetrie sind im Anhang A1: „Analytical methods“ (Method 01) angegeben.

3.4.2 Betamessung

3.4.2.1 Strontium-90 (Sr-90)

Biota

Die Probenvorbereitung und die Durchführung der Analyse ist im Anhang A1: „Analytical methods“ (Method 02) beschrieben.

Meerwasser

Für die Sr-90-Analyse wurden 300 l Meerwasser eingesetzt. Diese 300 l wurden auf mehrere 30 l fassende Kunststofffässer verteilt und zur weiteren Bearbeitung ins IFÖ-Labor gebracht. Aus verfahrenstechnischen Gründen wurden die 300 l in 4 Unterproben zu je 75 l aufgeteilt. Das bei der Probennahme an Bord mit 12 M HCl (1 ml pro l Wasser) angesäuerte Meerwasser wurde auf einen pH-Wert von 1-1,5 eingestellt. Daran schloss sich die Extraktion des Tochternuklids Y-90 mit HDEHP (Bis(2-ethylhexylphosphat) in n-Heptan an. Der weitere Analysengang erfolgte dann wie im Anhang A1: „Analytical methods“ (Method 02) beschrieben.

3.4.2.2 Technetium-99 (Tc-99)

Meerwasser

Die an Bord genommenen Seewasserproben (10 l) bedurften keiner speziellen Vorbehandlung.

In Mainz wurden jeweils 3 Liter einer Meerwasserprobe mit etwa 10^{10} Atomen des Tc-99m-Tracers versetzt und chemisch aufgearbeitet, wobei der wichtigste Schritt die Extraktion mit Tetraphenylarsoniumchlorid darstellt, bei der die Probe auf rund 100 ml reduziert wird. Das chemisch isolierte Technetium wurde elektrolytisch auf einer Graphitfolie abgeschieden.

3.4.3 Alphamessung

3.4.3.1 Plutonium-Isotope

Biota

Die Probenvorbereitung und die Durchführung der Analyse ist im Anhang A1: „Analytical methods“ (Method 03) beschrieben.

Meerwasser

BFAFi: Für die Pu-Analyse wurden 800 – 1000 l Meerwasser in einen ca. 1400 l fassenden Fällungsbehälter, der am Boden mit einem Ablaufhahn versehen war, gefüllt. Das Wasser wurde dann mit 1 ml 12 M HCl pro l angesäuert (pH 3). Unter ständigem Rühren und Belüften wurden nacheinander Tracer (Pu-242: 0,159 Bq und Am-243: 0,085 Bq), Eisen(III)-nitrat-Nonahydrat (0,0465g/l Wasser; d.h. 37 g für 800 l, 46 g für 1000 l bzw. 55 g für 1200 l) zugegeben, mit 10 M NaOH (etwa 800 – 1000 ml für 800 – 1000 l Seewasser) der pH-Wert auf 8,5 – 9 eingestellt und das Pu und Am enthaltende Eisenhydroxid ausgefällt. Anschließend wurde das Lösungsgemisch etwa 20 Stunden stehen gelassen, damit sich der Niederschlag absetzen konnte. Dann wurde das überstehende Wasser vorsichtig nahezu vollständig abgepumpt. Der Eisenhydroxid-Niederschlag wurde dann zusammen mit dem überstehenden Restwasser in ein 30-l-Kunststofffass abgelassen und in diesem zur weiteren Bearbeitung ins IFÖ-Labor transportiert. Der Eisenhydroxid-Niederschlag wurde nach dem Zentrifugieren in einer gerade ausreichenden Menge 8 M HNO₃ aufgelöst. Die weitere Durchführung der Pu-Analyse erfolgte dann wie im Anhang A1: „Analytical methods“ (Method 03) beschrieben.

Uni Mainz: Zur Vorbereitung für die Pu-Bestimmung durch das von der Uni Mainz verwendete RIMS-Verfahren wurden an Bord des Schiffes je Wasserprobe bis zu 30 l Seewasser in ein Kunststoffgefäß eingefüllt. Sofort danach wird mit konz. HCl (12,1 mol/l) angesäuert: es sollen 3 ml HCl je 1 Liter Seewasser verwendet werden. Bei den Proben von 1996 waren es – durch ein Versehen bedingt – wohl nur 1 ml HCl pro Liter Seewasser. Das Gefäße wurden dicht verschraubt und danach kräftig geschüttelt.

In Mainz wurden jeweils 10 Liter einer Meerwasserprobe mit einer definierten Menge Pu-236 und Pu-244 (Pu-236 nur für die Proben aus Jan. 2000) versetzt und chemisch aufgearbeitet. Die wichtigen Schritte dabei sind das Mitfällen von Plutonium an Eisenhydroxid mittels Ammoniak und die anschließende Abtrennung des Plutoniums von Eisen und anderen Elementen durch die Austauschersäule TEVA Resin SPS. Das chemisch isolierte Plutonium wurde elektrolytisch in Form des Hydroxids auf einer Tantalfolie abgeschieden und mit einer Titanschicht von etwa 1 µm Dicke mittels „Sputtern“ überzogen.

Im Falle der Wasserprobe „Irische See“ (IAEA-381 Referenzprobe) wurden 10 ml analog aufgearbeitet.

3.4.3.2 Americium-241 (Am-241):

Biota

Die Durchführung der Analyse ist im Anhang A1: „Analytical methods“ (Method 04) beschrieben.

Meerwasser

Die wässrige Phase (8 M an HNO₃) von der Pu-Extraktion (s. Text der Pu-Methode) wurde mit konz. HNO₃ auf eine Säurekonzentration von 12 M eingestellt. Es folgte eine Extraktion mit DDCP (Di-n-butyl-N,N-diethylcarbamoylphosphat) in n-Heptan. Anschließend wurde das Am mit 2 M HNO₃ aus der organischen Phase rückextrahiert. Die wässrige Phase (2 M HNO₃) wurde auf einen pH-Wert von 1 eingestellt. Ausfallendes Eisenhydroxid wurde mit Flusssäure wieder aufgelöst. Am wurde dann mit TOPO (Tri-n-octylphosphinoxid) in Cyclohexan extrahiert. Die weitere Durchführung der Am-Analyse erfolgte dann wie im Anhang A1: „Analytical methods“ (Method 04) beschrieben.

3.4.4 Höher auflösende Alpha-Spektrometrie

Die Publikation einer Arbeitsgruppe der Universität Dublin hatte gezeigt, dass man mit der Alpha-Spektrometrie auch das normalerweise nicht trennbare Multiplett der Pu-Isotope Pu-240 und Pu-239 entfalten kann, wenn höher auflösende Alpha-Detektoren (Ionenimplantierte Si-Halbleiterdetektoren) zur Messung eingesetzt werden (León Vitró et al., 1996). Dazu wurden Detektoren mit einer Halbwertsbreite von 14 keV und einer aktiven Fläche von 450 mm² verwendet und der Abstand zwischen Detektor und Präparat auf 18 mm vergrößert. Der Vielkanalanalysator wurde auf etwa 6,5 keV/Kanal eingestellt. Zur Peakentfaltung benutzte die Gruppe das primär für die Auswertung von Gammaspektren konzipierte MicroSAMPO[®]. Für einige IAEA-Referenzproben, an deren Ringanalysen (konventionelle Alpha-Spektrometrie) auch unser Labor teilgenommen hatte, wurden Ergebnisse für das Atomanzahlenverhältnis Pu-240/Pu-239 angegeben, die sowohl mit der höher auflösenden Alpha-Spektrometrie als auch mit der thermischen Ionisations-Massenspektrometrie (TIMS) erhalten wurden.

Da unser Labor ein selbst entwickeltes Alphaspektrometrie-Programm (AlkanW, vgl. Anhang A1) zur Verfügung hat, das hervorragend für die nicht-lineare Anpassung von Alpha-Peaks geeignet ist, wurden 1998 im IFÖ Vorversuche mit unseren Standard-Alpha-Kammern (Ortec 576) durchgeführt, wofür einige Detektoren mit einer spezifizierten Halbwertsbreite von 20 keV verwendet wurden. Damit wurden durchaus Halbwertsbreiten von 18 keV erreicht. Die Messung von zwei IAEA-Proben, deren ältere, noch vorhandene Präparate eingesetzt wurden, war vielversprechend. Daher wurden im Rahmen dieses Forschungsprojektes zwei neue Alpha-Kammern (Tennelec TC 256) mit 2 neuen Ionenimplantierten Si-Detektoren mit einer spezifizierten Halbwertsbreite von 13 keV (150 mm² aktive Fläche) angeschafft. Mit den Messungen wurde im Frühjahr 1999 begonnen. Die Halbwertsbreite von 13 keV ließ sich mit

entsprechend guten Alpha-Präparaten erreichen. Die mit dem Vielkanalanalysator eingestellte Auflösung betrug etwa 3,5 keV/Kanal, der Abstand zwischen Detektor und Präparat etwa 9 mm.

Bevor die erhaltenen Alphaspektren ausgewertet werden konnten, mußte noch einer bei diesen Messungen auftretenden „Störung“ der Multipletts von Pu-242 und Pu-238, die jeweils etwa in der Mitte zwischen der Haupt- und der Nebenlinie auftrat, Rechnung getragen werden. Diese Störung ist eine Folge der bei der Messung auftretenden koinzidenten Summation zwischen Alpha-Teilchen und Konversionselektronen. Mit diesem Effekt hatten sich León Vintró et al. (1996) ausführlicher auseinandergesetzt und Formeln vorgeschlagen, die dazu führten, dass formal die Alpha-Emissionswahrscheinlichkeit der Nebenlinie (links von der Hauptlinie liegend) etwas erniedrigt und diejenige der Hauptlinie im gleichen Maße erhöht wurde. Dieser Effekt und seine Auswirkung wird auch in einem IAEA-TECDOC näher erläutert (IAEA, 1999; Appendix C: „Alpha-Electron Coincidence Summing and its Influence on the Determination of the Reference Data“).

Bei unseren weiteren Analysen dieser Art wurde der koinzidenten Alpha-Elektron-Summation dadurch Rechnung getragen, dass im Fitprozess für die Isotope Pu-242 und Pu-238 je eine weitere „künstliche“, diesen Effekt repräsentierende Linie eingeführt wurde, die jeweils etwa 15 keV oberhalb der Nebenlinie lag und eine Emissionswahrscheinlichkeit von 3% bekam. Genaue Werte dafür sind zunächst unerheblich, da sowohl die Lage als auch die Amplitude dieser „künstlichen“ Linien bei der nicht-linearen Anpassung variiert wurden. Für die bei diesen Messungen zu entfaltenden Peaks von Pu-240 und Pu-239 tritt dieser Effekt ebenfalls auf. Allerdings lassen sich die „künstlichen“ Zusatzlinien von Pu-240 und Pu-239 praktisch nicht bestimmen; hierzu wäre ein noch größerer experimenteller Aufwand hinsichtlich noch besserer Detektor- und Vielkanalanalysator-Auflösung nötig, verbunden vermutlich mit noch längeren Meßzeiten. Es sei angemerkt, dass der auf die koinzidente Summation zurückgehende Peakbeitrag keinesfalls gerade die Form eines Alpha-Peaks hat. Da die Form bisher nicht näher bekannt ist, ist es für das Fitten die einfachste Approximation, dafür die Form eines Alpha-Peaks anzunehmen.

Die Auswertung von Messungen mehrerer Präparate von IAEA-Referenzproben hat ergeben, dass auch dann schon recht gute Resultate erhalten wurden, wenn die koinzidente Alpha-Elektron-Summation bei Pu-239 und Pu-240 nicht, wohl aber bei Pu-242 und Pu-238 berücksichtigt wurden. Um unter den gegebenen Voraussetzungen die Entfaltung des Pu-240+Pu-239-Multipletts optimal zu gestalten, war es auf jeden Fall erforderlich, alle in einem Spektrum enthaltenen Pu-Peaks simultan - als ein gemeinsames Multiplett - zu fitten. Dies garantierte, bei der Anpassung die best-mögliche Peakform-Beschreibung (insbesondere für die „Full width half maximum“: Fwhm) zu bekommen. Da zur Messung auch Präparate verwendet wurden, die schon bis zu zehn Jahre alt waren, wurde die Entfaltung des Pu-238-Peaks dadurch erschwert, dass aus dem damals auf dem Präparat mit-elektroplatiertem Pu-241 (Beta-Strahler) der Alpha-Strahler Am-241 nachgewachsen ist. Dieser hat ein komplexeres Spektrum als Pu-238, welches sich mit demjenigen von Pu-238 weitgehend überdeckt. Auch diese Entfaltung mußte berücksichtigt werden.

Die nachfolgenden Abbildungen zeigen exemplarisch die Auswertung des Alpha-Spektrums der Referenzprobe IAEA-135 (Sediment Irische See). Das Präparat wurde im Rahmen der damaligen konventionellen radiochemischen Analysen Ende 1992 hergestellt. Die mit der höher auflösenden Anordnung durchgeführte Messung wurde im Februar/März 2001 durchgeführt. Die Meßzeit betrug 4 Millionen Sekunden. Mit dem Präparat wurde eine Energieauflösung (Fwhm) von 15 keV erreicht. Die Fwhm wird hierbei immer für eine (fiktive) isolierte Alpha-Linie aus der gefitteten Peakform berechnet.

Abb. 3.4.1 zeigt das Auswerteprotokoll für dieses Spektrum, die folgenden Abbildungen (3.4.2 bis 3.4.3) das Spektrum des gesamten Multipletts sowie einzelne Multipletts, in logarithmischem sowie in linearem Maßstab.

Das gesamte Spektrum besteht aus 17 einzelnen Linien, von denen allein 7 Linien dem Am-241 zugeordnet sind. Alle Nebenlinien eines Isotopes wurden bei der Anpassung frei variiert, sowohl die Kanallage als auch die Amplitude betreffend. Das in Abb. 3.4.1 dargestellte Auswerteprotokoll zeigt für Pu-242 die zusätzlich zur Erklärung des auf die koinzidente Alpha-Elektron-Summutation zurückgehenden Flächenanteils eingeführte Linie bei Kanal 140,05 (vgl. auch Abb. 3.4.2). Ihre gefittete Emissionswahrscheinlichkeit (Pa) beträgt 2,78%. Bei Pu-238 ist diese Zusatzlinie aufgrund des komplexen Linienbeitrages von Am-241 zu dessen Multiplett weggefallen. Bei anderen Spektren, die kein Am-241 enthielten, war diese Linie jedoch in den meisten Fällen zu fitten.

Die Entfaltung des Multipletts von Pu-239 und Pu-240 (vgl. Abb. 3.4.2) funktionierte dadurch meist recht sicher, dass die Nebenlinie von Pu-240 als „Buckel“ im Minimum zwischen Neben- und Hauptlinie von Pu-239 bemerkbar ist, während die Pu-240-Hauptlinie ganz an der rechten Flanke des Multipletts liegt.

Die Überlagerung des Pu-238-Multipletts durch das komplexere Am-241-Multiplett ist normalerweise nur schwierig richtig auszuwerten. Die in Abb. 3.4.3 gezeigte Entfaltung ist sicherlich nur dadurch einigermaßen gelungen, dass die Zählraten von Pu-238 und Am-241 etwa von gleicher Größe sind. Bei schlechterer Fwhm würde die Auswertung deutlich erschwert. Nimmt man die bei der Auswertung dieses Spektrums erhaltenen Zählraten von Am-241, Pu-239 und Pu-240, kann man mit Hilfe eines weiteren Rechenprogramms folgenden Wert für das Aktivitätsverhältnis Pu-241/Pu-239,240 bekommen:

$$\text{Pu-241/Pu-239,240} = (14,9 \pm 1,2) \quad (1\sigma \text{ Unsicherheit; } \square \text{ bezogen auf den 1.1.1992)}$$

Ein neuerer IAEA-Vergleichswert hierfür, der aus ICPMS- und LSC-Messungen ermittelt wurde, beträgt: $(15,7 \pm 2,2)$ (Lee et al., 2001). Dies ist eine sehr gute Übereinstimmung.

Für das Aktivitätsverhältnis Pu-238/Pu-239,240 erhält man aus Abb. 3.4.1 und Zerfallskorrektur für Pu-238:

$$\text{Pu-238/Pu-239,240} = (0,207 \pm 0,015) \quad (1\sigma \text{ Unsicherheit; } \square \text{ bezogen auf den 1.1.1992)}$$

Der IAEA-Referenzwert hierfür beträgt : $43/213 = 0,202$ (Lee et al., 2001). Dies ist eine sehr gute Übereinstimmung.

Die in Abb. 3.4.1 am Ende aufgeführten Details der Energiekalibrierung zeigen, dass die gefitteten Kanallagen (Energien) weniger als 0,7 keV (entspricht weniger als 0,2 Kanäle) von der Kalibriergeraden abweichen, was die Präzision der gefitteten Peaklagen, trotz komplexer Überlagerungen, unterstreicht.

In Tabelle 3.4.1 sind die für die bei uns gemessenen IAEA-Referenzproben zusammengetragenen Ergebnisse für das Atomanzahlenverhältnis Pu-240/Pu-239, zusammen mit den IFÖ-Resultaten, dargestellt. Danach ergibt sich – mit einer Ausnahme - eine für die im IFÖ eingesetzte Methode der höher auflösenden Alpha-Spektrometrie überraschend gute Übereinstimmung mit Werten anderer Laboratorien, die ihre Analysen mit wesentlich aufwendigeren und kostenintensiven Meßsystemen durchgeführt haben. Auch die beim IFÖ-Verfahren erhaltenen Messunsicherheiten müssen sich nicht unbedingt hinter den bei anderen Verfahren erhaltenen Messunsicherheiten verstecken. Die Ausnahme ist, dass für die Probe IAEA-368 ein etwa 30% höherer Wert von uns gefunden wurde. Bei der Messung war hier mit 37 mBq Pu auf dem Präparat die untere Grenze der erforderlichen Aktivität offensichtlich schon unterschritten.

Damit ist die Validierung unserer Methode zur Bestimmung von Pu-240/Pu-239-Verhältnissen gelungen. Das Verfahren wird im Rahmen dieses Forschungsvorhabens zur Bestimmung solcher Verhältnisse in benthischen Organismen eingesetzt.

```

Datei=D:\LWFO...0\Disk-3\Sv18_4g.rpt Det. 18 Gruppe 1 Probe=13926A
-----
Programm      : AlkanW  Juli 2002                      Datum: 17.11.2002 12: 4:47

Kommentar     : IAEA-135
Kommentar     : Pos.: 2. v. Schl. v. oben
Mess-Start    : 5.06.2001 13:32:42                   Messzeit(live)= 400000 sec.
Nuklid-Katal  : alkm3                                 E-Kalibrier: BFF_KA21.DAT
NE-Dateilist  : BFF_CO10.DAT                         NE-Spektrum: D:\LWFO...SP\as010133.rpt
=====
Fit-Bereich: Kanal 77- 336      Chisqr= 1.166      Nfree= 222      IT= 8
              Minim. Methode=Poisson MLE           Fit-Verfahren=SHP
E-Kalibrierung : E0= 4376.300 keV      E1= 3.54312 keV/Kan
Peakshape-Parameter :
sl= 1.3021 s2= 1.9814 s3= 14.755 s4=0.04245 s5=0.0000 s6= 0.0000 s9= 1.8607

Fläche/Amplitude= 5.000 Disloc= 1.16 Kan. Fwhm= 15.0 keV (= 4.26 Kan)
NWG-Peak : linke Breite=1.8*Fwhm rechte Breite=1.0*Fwhm
Korrelation zw. beiden Tailing-Parametern: 0.42
-----
Nuklid=PU-242 : (Nebenlinien variiert V )
Kan=148.32 E=4901.82 ± 0.07 keV Counts= 35124.0 ± 0.58% Pa=0.7798
Kan=136.00 E=4858.17 ± 0.13 keV Counts= 8652.2 ± 1.50% Pa=0.1921
Kan=140.05 E=4872.51 ± 0.79 keV Counts= 1250.0 ± 7.95% Pa=0.0278
Summe der Einzel-Linien: Counts= 45026.2 ± 0.47% SPa=0.9997
97%-Region:Kan= 77- 154; Cts: UG= 36.2 Netto= 45025.8; YFit-Sum=100.00%
-----
Nuklid=PU-239 : (Nebenlinien variiert V )
Kan=220.27 E=5156.74 ± 0.19 keV Counts= 15018.0 ± 1.68% Pa=0.7371
Kan=216.28 E=5142.61 ± 0.48 keV Counts= 3398.9 ± 5.56% Pa=0.1668
Kan=206.08 E=5106.47 ± 0.32 keV Counts= 1936.9 ± 3.69% Pa=0.0951
Summe der Einzel-Linien: Counts= 20353.8 ± 1.36% SPa=0.9990
97%-Region:Kan= 155- 221; Cts: UG= 58.9 Netto= 24579.1; YFit-Sum=100.30%
WARNUNG: relative Standardabweichung etwa um das 1.94-fache zu groß!
-----
Nuklid=PU-240 : (Nebenlinien variiert V )
Kan=223.68 E=5168.83 ± 0.13 keV Counts= 11696.8 ± 2.18% Pa=0.7520
Kan=211.09 E=5124.22 ± 0.24 keV Counts= 3841.6 ± 2.49% Pa=0.2470
Summe der Einzel-Linien: Counts= 15538.4 ± 1.72% SPa=0.9990
97%-Region:Kan= 222- 230; Cts: UG= 19.0 Netto= 11299.0; YFit-Sum= 99.33%
-----
Nuklid=AM-241 : (Nebenlinien variiert V )
Kan=313.09 E=5485.62 ± 0.57 keV Counts= 4319.6 ± 4.52% Pa=0.7061
Kan=301.01 E=5442.82 ± 0.77 keV Counts= 641.6 ± 9.98% Pa=0.1049
Kan=328.68 E=5540.85 ± 1.05 keV Counts= 74.0 ± 16.03% Pa=0.0121
Kan=323.77 E=5523.46 ± 1.10 keV Counts= 176.5 ± 11.67% Pa=0.0288
Kan=318.70 E=5505.49 ± 3.87 keV Counts= 473.9 ± 124.52% Pa=0.0775
Kan=286.62 E=5391.83 ± 1.26 keV Counts= 81.8 ± 15.12% Pa=0.0134
Kan=309.90 E=5474.31 ± 5.71 keV Counts= 239.7 ± 79.74% Pa=0.0392
Summe der Einzel-Linien: Counts= 6007.1 ± 8.08% SPa=0.9819
97%-Region:Kan= 245- 314; Cts: UG= 22.3 Netto= 7807.7; YFit-Sum= 99.79%
WARNUNG: relative Standardabweichung etwa um das 6.29-fache zu groß!
-----
Nuklid=PU-238 : (Nebenlinien variiert V )
Kan=316.75 E=5498.58 ± 0.73 keV Counts= 5081.9 ± 9.43% Pa=0.7372
Kan=304.99 E=5456.92 ± 0.41 keV Counts= 1811.3 ± 4.00% Pa=0.2628
Summe der Einzel-Linien: Counts= 6893.3 ± 7.06% SPa=1.0000
97%-Region:Kan= 315- 334; Cts: UG= 5.2 Netto= 5086.8; YFit-Sum=100.33%
WARNUNG: relative Standardabweichung etwa um das 5.86-fache zu groß!
-----
PU-238 / PU-242 : ratio= 1.531E-01 Unc_easy= 7.07% Unc_full= 7.07%
PU-240 / PU-239 : ratio= 7.634E-01 Unc_easy= 2.19% Unc_full= 2.88%
AM-241 / PU-238 : ratio= 8.714E-01 Unc_easy= 10.73% Unc_full= 15.04%
PU-239 / PU-242 : ratio= 4.520E-01 Unc_easy= 1.43% Unc_full= 1.44%
-----
Integral der Fit-Region : 93953.0 Counts (Kan. 77- 336)
durch YFit + UG erklärt : 93948.9 Counts = 100.00 %
durch Flächen+ UG erklärt: 93966.3 Counts = 100.01 % UG= 147.5 Counts
=====
Koeffizienten der E-Kalibrierung :

E0= 4376.300 keV E1= 3.54312 keV/Kan E2= 0.00000E+00

Nuklid Kanal E_Soll E_Fit E_Diff | E_Alt E_Fit
      keV keV keV | keV -E_alt
-----
PU-242 148.32 4902.30 4901.81 -0.49 | 4892.86 8.95
PU-239 220.27 5156.59 5156.76 0.17 | 5148.50 8.26
PU-240 223.68 5168.13 5168.84 0.71 | 5160.61 8.23
AM-241 313.09 5485.56 5485.61 0.05 | 5478.23 7.38
PU-238 316.75 5499.03 5498.59 -0.44 | 5491.25 7.34

```

Abb. 3.4.1: Auswerte-Protokoll des höher aufgelösten Alpha-Spektrums der Referenzprobe IAEA-135 (Sediment Irische See)

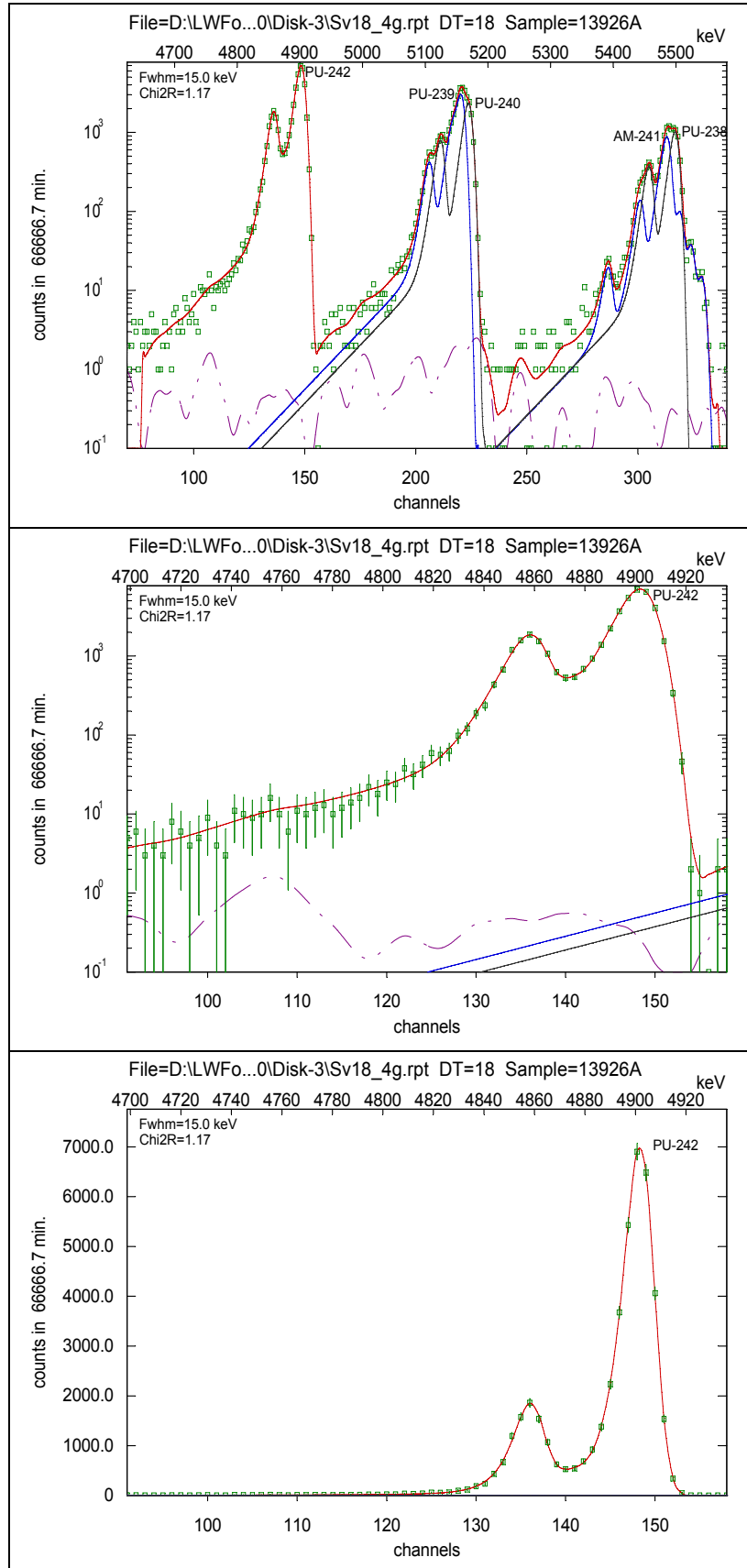


Abb. 3.4.2: Alpha-Spektrum der Referenzprobe IAEA-135 (Sediment Irische See): oben das gesamte Multiplett, darunter das Pu-242-Multiplett in logarithmischer und linearer Darstellung. Die untere recht wellige Kurve in den logarithmischen Darstellungen bei bzw. unter 1 Impuls (count) repräsentiert das geglättete Nulleffektspektrum, dessen Beitrag abgezogen wird.

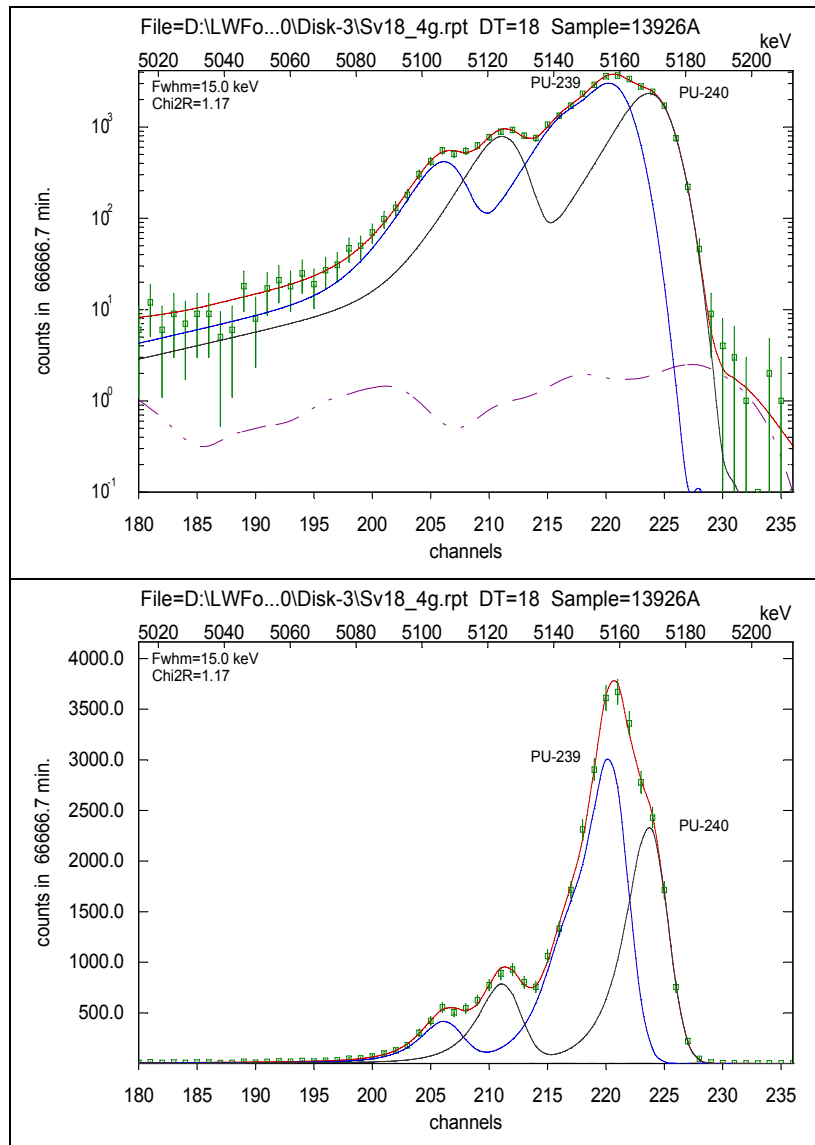


Abb. 3.4.3: Alpha-Spektrum der Referenzprobe IAEA-135 (Sediment Irische See): das Multiplett von Pu-239 u. Pu-240, in logarithmischer und linearer Darstellung. Neben der Summenfitkurve sind die Einzelnuklid-Funktionen getrennt dargestellt.

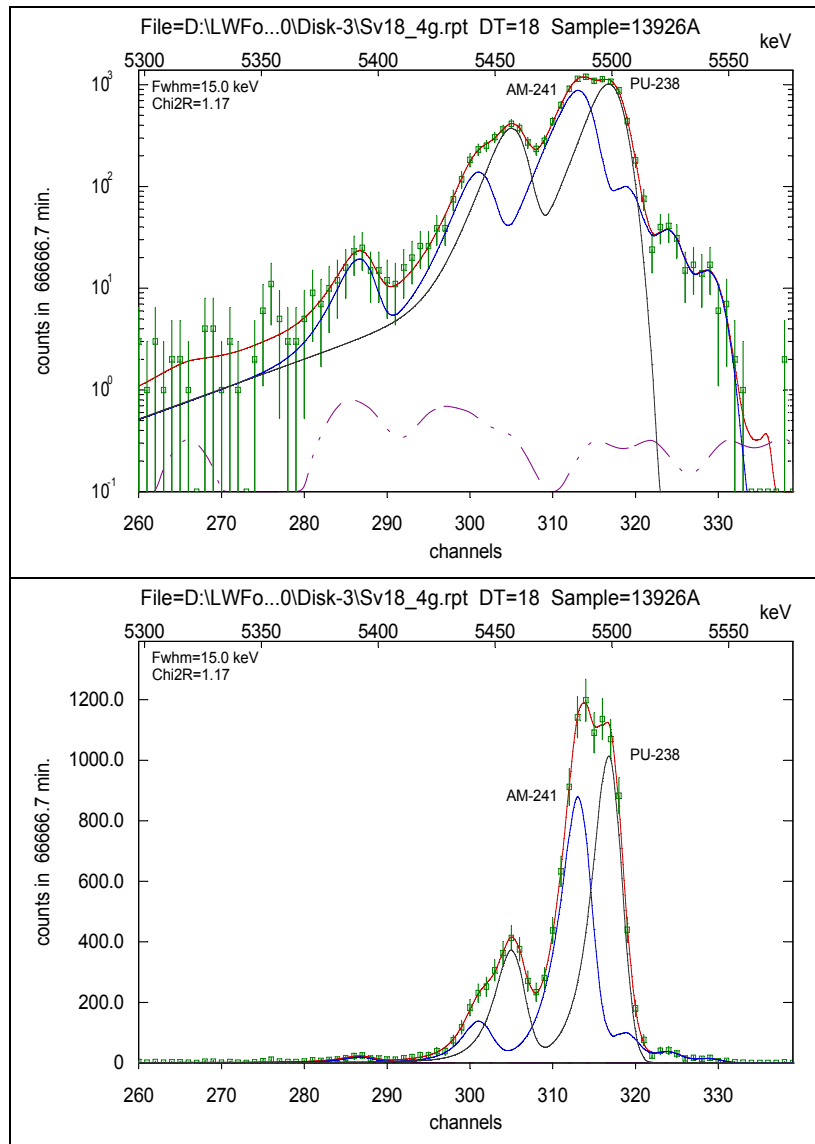


Abb. 3.4.4: Alpha-Spektrum der Referenzprobe IAEA-135 (Sediment Irische See): das Multiplett von Am-241 u. Pu-238, in logarithmischer und linearer Darstellung. Neben der Summenfitkurve sind die Einzelnuclid-Funktionen getrennt dargestellt.

Tab. 3.4.1: Zusammenstellung von Ergebnissen für das Atomanzahlenverhältnis Pu-240/Pu-239. Einige die Messungen im IFÖ charakterisierende Parameter sind ebenfalls aufgeführt.

Probe	Datum Messung	Messzeit (d)	Pu-239,240 auf Disk (mBq)		Fwhm (keV)		Atomanzahlen-Verhältnis Pu-240/Pu-239		
			AS-Messungen	BFAFi-IFÖ:	BFAFi-IFÖ	Referenzwerte	Methode	Ref.	
IAEA-135 Sediment, Irische See (1991)	03/1999	20,5	116	15,1	0,207 ± 0,006	0,211 ± 0,004	unbekannt	(1/)	
	06/2001	46,3	116	15,3	<u>0,209 ± 0,009</u>	0,207 ± 0,006	ICPMS, AMS	(2)	
					0,208 ± 0,005	0,2083 ± 0,0004	TIMS	(3)	
IAEA-368 Sediment, Mururoa Atoll (1989)	03/1999	20,5	37	15,1	0,046 ± 0,006	0,0315 ± 0,0004	TIMS	(3)	
	06/2001	46,3	37	15,6	<u>0,039 ± 0,002</u>	0,032 ± 0,004	AS	(3)	
IAEA-384 Sediment, Fangataufa (1997/98)	12/1999	20,8	257	16,1	0,0457 ± 0,0021	0,048 ± 0,004	ICPMS, AMS	(2)	
	12/1999	24,3	257	14,4	0,0508 ± 0,0017	0,049 ± 0,001	ICPMS, AMS	(6)	
	12/1999	20,8	302	14,3	0,0530 ± 0,0017				
	12/1999	24,3	302	16,5	<u>0,0481 ± 0,0023</u>				
IAEA-381 Wasser, Irische See					0,230 ± 0,007	0,22 ± 0,03	ICPMS, TIMS,	(4)	
							u. AMS		
						0,242 ± 0,022	ICPMS, AMS	(2)	
						0,242 ± 0,004	unbekannt	(1)	
IAEA-0383, Proficiency Test 1999, Mineral matrix	10/1999	26,6	128	14,7	0,682 ± 0,029 #1	0,687 ± 0,011 #1	ICPMS	(5)	

#1: Aktivitätsverhältnis

AS: Alpha-Spektrometrie; TIMS: Thermische Ionisations-Massenspektrometrie; AMS: Beschleuniger-Massenspektrometrie; ICPMS: Induktiv gekoppelte Plasma Massenspektrometrie;

Referenzen:

(1): Abschnitt „Conclusions“ in:

Lee, S.H.; Gastaud, J.; La Rosa, J.J.; Liong Wee Kwong, L.; Povinec, P.P.; Wyse, E.; Fifield, L.K.; Hausladen, P.A.; Di Tada, L.M. and Santos, G.M., 2001: Analysis of plutonium isotopes in marine samples by radiometric, ICP-MS and AMS techniques. J. Radioanal. and Nucl. Chem. 248: 757-764.

(2): Tabellen in der unter (1) angeführten Publikation.

(3): Leon Vintro, L.; Mitchell, P.I.; Condren, O.M.; Moran, M.; Vives i Batlle, J.; Sanchez-Cabeza, J.A., 1996: Determination of the ²⁴⁰Pu/²³⁹Pu atom ratio in low environmental samples by alpha spectrometry and special deconvolution. Nucl. Instr. and Meth. A 369: 597-602.

(4): Povinec, P.P et al. (28 Autoren), 2002: Certified reference material for radionuclides in seawater IAEA-381 (Irish Sea Water). J. Radioanal. and Nucl. Chem. 251: 369-374.

(5): Messung der IAEA, Lab. Seibersdorf im Rahmen des Proficiency Tests

(6): Povinec, P.P and Pham, M.K., 2000: Report on the Intercomparison Run IAEA-384 „Radionuclides in Fangataufa Lagoon Sediment“. Report IAEA/AL/126; IAEA/MEL/68. Monaco, 71 pp.

(7): Povinec, P.P; Pham, M.K. and Ballestra, S., 1999: Report on the Intercomparison Run and Certified Reference Material IAEA-381 „Radionuclides in Irish Sea Water“. Report IAEA/AL/118; IAEA/MEL/68. Monaco, 38 pp.

3.4.5 Pu-Bestimmung in Seewasser mit RIMS (Uni Mainz)

Prinzip der Methode

Die Bestimmung des Pu erfolgte mit der Methode der Resonanzionisationsmassenspektroskopie (RIMS). In Mainz wurden die zu untersuchenden Meerwasserproben mit einer definierten Menge Pu-236 (nur 2000) zur Bestimmung der chemischen Ausbeute und Pu-244 zur Ermittlung der Gesamteffizienz versetzt, chemisch aufgearbeitet und das Plutonium elektrolytisch abgeschieden. Danach wurde das Plutonium von einem Sandwichfilament atomar verdampft und in drei Stufen mit Laserlicht resonant angeregt, ionisiert und in einem Flugzeit-Massenspektrometer nachgewiesen. Für Details dieses Verfahrens wird auf die Dissertation von N. Erdmann (1998) verwiesen.

Messungen

Für die RIMS-Messungen wurden die so erhaltenen „Sandwichfilamente“ in das Flugzeit-Massenspektrometer eingebracht und elektrisch bis 900° C aufgeheizt. Dabei wandelt sich das Plutoniumhydroxid in Plutoniumoxid um, welches durch die Titanschicht diffundiert und dabei zum Metall reduziert wird. Von der heißen Titanoberfläche dampft das Plutonium atomar ab und wird in dieser Form mit Laserlicht resonant angeregt und ionisiert. Die Temperatur wurde über einen Zeitraum von 90-120 min langsam auf ca. 1100° C gesteigert, bis das Plutonium quantitativ abgedampft war.

Die resonante Anregung und Ionisation der Plutonium-Atome erfolgte über zwei atomare Niveaus und einen Rydbergzustand mit Laserlicht der Wellenlängen $\lambda_1 = 421$ nm, $\lambda_2 = 847$ nm und $\lambda_3 = 767$ nm. Dafür wurden drei Titan – Saphir – Laser genutzt, die von einem hochrepetierenden Nd: YAG Laser gepumpt wurden. Die Rydbergatome wurden feldionisiert, die erzeugten Ionen in dem Flugzeit-Massenspektrometer massengetrennt und mit einem Kanalplattendetektor nachgewiesen.

Die atomaren Zustände der Plutoniumisotope unterscheiden sich auf Grund der Isotopieverschiebungen im ersten und zweiten Anregungsschritt, so dass die Laserwellenlängen für diese Anregungsschritte auf die jeweils untersuchten Isotope eingestellt werden mussten. Der dritte Laser brauchte nicht durchgestimmt zu werden, da in diesem Übergang keine Isotopieverschiebung innerhalb der Laserlinienbreite beobachtet werden konnte. Zur Bestimmung der Isotopenverhältnisse wurden die Laser des ersten und zweiten Anregungsschritts abwechselnd für die gleiche Dauer auf die resonanten Wellenlängen der untersuchten Isotope, z. B. Pu-239 und Pu-244 eingestellt. Bei diesem Verfahren werden die Nachbarisotope 238 bzw. 240 zwar um den Faktor 1,5 unterdrückt, die Nachweiseffizienz ist jedoch deutlich höher als bei anderen Verfahren, bei denen alle Isotope gleich lang gemessen werden. Bei den Proben St 23 und St 27 (Jan. 2000) wurden die Laser während eines Teils der Messzeit auch auf die Resonanzwellenlängen der Isotope 242 und 244 eingestellt, um dieses Isotopenverhältnis genau bestimmen zu können. Die Nachweisgrenze lag für Pu-239 (und für Pu-242 bei den Messungen von St. 23 und St. 27 d. Jan. 2000) bei etwa 3×10^6 Atome / 10 l Meerwasser; für die Isotope 238 und 240 war sie wegen der angesprochenen Unterdrückung um den Faktor 1,5 schlechter.

Für die Probe 'Irische See' wurden außer der Bestimmung der Gesamtmenge an Pu-239 noch Isotopenverhältnismessungen für die Isotope 238, 240 und 242 durchgeführt.

Datenauswertung

Ausgehend von den Rohdaten wurde von den Bruttoereignissen (N_x) auf jeder Masse der Untergrund (UG) abgezogen. Das Vermessen mehrerer Blindproben lieferte den Wert für BW (Blindwert für Pu-239: $9,0 \cdot 10^6$ Atome, 3σ -Fehler: $1,9 \cdot 10^6$; für Pu-242 konnte kein Blindwert beobachtet werden). Der Pu-239-Gehalt jeder Probe (G_{239}) berechnete sich zu:

$$G_{239} = (N_{239} - UG) \cdot \frac{N_{Tracer}}{N_{244} - UG} - BW; \quad N_{Tracer} = 5 \cdot 10^9 \text{ Atome } ^{244}\text{Pu}$$

Der angegebene Fehler (3σ) ist rein statistischer Art ($\Delta E = \sqrt{E}$) und unter Vernachlässigung eines Fehlers in der eingesetzten Tracermenge, der eingesetzten Probenmenge und der Untergrundereignisse ergibt sich für ΔG_{239}

$$\Delta G_{239} = \sqrt{9 \cdot G_{239}^2 \cdot \left(\frac{N_{239}}{(N_{239} - UG)^2} + \frac{N_{244}}{(N_{244} - UG)^2} \right) + \Delta BW^2}$$

Bei einer typischen Anzahl von Untergrundereignissen $UG < 10$, $N_{239} > 50$ und $N_{244} \gg 1000$ vereinfacht sich die Formel näherungsweise zu:

$$\Delta G_{239} = \sqrt{9 \cdot G_{239}^2 \cdot \left(\frac{1}{N_{239}} + \frac{1}{N_{244}} \right) + \Delta BW^2}$$

Die Nachweisgrenze durch die Statistik ist als dreifache Wurzel des Untergrundes definiert:

$$NWG = 3 \cdot \sqrt{UG},$$

die Nachweisgrenze mit Blindwerten als Summe aus Blindwert und Nachweisgrenze durch die Statistik.

Diese Aussagen gelten auch für die übrigen Pu-Isotope.

Alle Rohdaten der Pu-Analysen (Jahre 1996, 1998 u. 2000) einschließlich der Fehlerangaben verschiedener Parameter wurden dem IFÖ von der Uni Mainz (Dr. Trautmann) zur Verfügung gestellt. Mit Hilfe eines kleinen Fortran-Programms wurde im IFÖ die obige Auswertung sowie die komplette Berechnung der Messunsicherheit und der Erkennungs- und Nachweisgrenzen (Verzicht auf Näherungsformeln) nachvollzogen.

3.4.6 Tc-Bestimmung in Seewasser mit RIMS (Uni Mainz)

Die auf Graphitfolie abgeschiedene Probe wurde in einer Kammer aus Reinstgraphit eingebracht und auf 1500°C aufgeheizt. Bei dieser Temperatur beginnt Technetium atomar abzdampfen. Über einen Zeitraum von etwa 90 Minuten wurde die Temperatur langsam auf ca. 1800°C erhöht, bis das Technetium quantitativ abgedampft war. Die resonante Anregung und Ionisation der Technetium-Atome erfolgte über zwei atomare Niveaus und einen autoionisierenden Zustand mit Hilfe dreier Farbstofflaser bei den Wellenlängen $\lambda_1 = 313 \text{ nm}$, $\lambda_2 = 821 \text{ nm}$ und $\lambda_3 = 670 \text{ nm}$.

Während der Messung wurde folgender Zyklus durchlaufen:

Für 20 Sekunden war der Magnet des Massenspektrometers auf Transmission für das Tracerisotop Tc-95m eingestellt, dann für 40 Sekunden auf Tc-99g. Währenddessen wurde

jede zweite Sekunde der Laser 2 ($\lambda_2 = 821 \text{ nm}$) geblockt, um den Untergrund zu bestimmen. Da es sich bei den verwendeten Lasern um ein gepulstes System handelte, wurden die Ereignisse für Tc-95m und Tc-99g nur innerhalb eines Zeitfensters von $20 \mu\text{s}$ aufgenommen, innerhalb dessen alle durch Resonanzionisation erzeugten Ionen das Massenspektrometer durchflogen haben. Der Untergrund auf den Massen 95 und 99 wurde ebenfalls innerhalb dieses Zeitfensters gemessen.

Datenauswertung

Ausgehend von den Rohdaten wurde von den Bruttoereignissen auf jeder Masse der Untergrund abgezogen und die Anzahl der Ereignisse zeitkorrigiert, um der unterschiedlichen Meßzeit auf den Massen 95 und 99 Rechnung zu tragen. Außerdem wurden die Ereignisse der ersten 4 Sekunden nach jeder Änderung des Magnetfeldes verworfen, um die Stabilisierung des Magnetfeldes abzuwarten. Der Tc-99g-Gehalt (N_{99}) in der Probe ergibt sich mit Hilfe der bekannten Tracermenge (T_{95}), der Meßzeitkorrektur $((20-4):(40-4) = 4/9)$, sowie den Ereignissen (E) und des Untergrundes (U) zu:

$$N_{99} = \frac{4}{9} \cdot (E_{99} - U_{99}) \cdot \frac{T_{95}}{E_{95} - U_{95}} .$$

Der angegebene Fehler ist rein statistischer Art ($\Delta E = \sqrt{E}$) □□ und – wie in der Spurenanalytik üblich – als 3σ - Fehler angegeben:

$$\Delta N_{99} = 3 \cdot \frac{4}{9} \cdot \frac{T_{95}}{E_{95} - U_{95}} \sqrt{E_{99} + U_{99} + (E_{99} - U_{99})^2 \cdot \frac{E_{95} + U_{95}}{(E_{95} - U_{95})^2}} .$$

Die Nachweisgrenze ist als dreifache Wurzel des Untergrundes auf der Masse 99 definiert:

$$NWG_{99} = 3 \cdot \frac{4}{9} \cdot \frac{T_{95}}{E_{95} - U_{95}} \sqrt{U_{99}} .$$

4. Ergebnisse

4.1 Tiefsee

Einbringung von Hartsubstraten

Zwischen 1971 und 1982 wurden im Versenkungsgebiet (Gebiet B) für schwach radioaktive Abfälle der Nuclear Energy Agency (NEA) von Belgien, England, Holland und der Schweiz ca. 130 000 Metallfässer mit schwach radioaktiven Abfallstoffen und einem Fassungsvermögen von jeweils 200 – 1500 l verklappt (IAEA, 1999). Dieses von der NEA ausgewählte Versenkungsgebiet im Nordostatlantik mit einer mittleren Wassertiefe von 4500 m ist ein Gebiet der Tiefsee und stellt ein sensibles marines Ökosystem dar.

Im Rahmen des Forschungsvorhabens „Radioökologische Untersuchungen in marinen Ökosystemen“ soll als ein Teilaspekt untersucht werden, ob eine Beeinflussung der Biozönose der Tiefsee durch das Einbringen der Hartsubstrate „Abfallfässer“ erkennbar ist.

4.1.1 Biologie der Tiefsee

Die Tiefsee ist der bei weitem ausgedehnteste Lebensraum auf der Erde. Über 50% der Erdoberfläche liegen unterhalb von 3000 m Wassertiefe. Das Pelagial und das Benthos großer und größter Tiefen sind von einer an diese besonderen Verhältnisse angepassten Fauna belebt. Das unwirtliche Milieu, in dem diese Tiefseeformen leben, lässt sich an Hand der bekannten physikalischen Parameter kurz wie folgt charakterisieren: Bereits von 200 m abwärts herrscht permanente Dunkelheit. Unterhalb von 1000 m schwanken die tiefen Temperaturwerte, die unterhalb von 4 °C liegen, in einem Bereich von nicht mehr als 0,2 – 0,3 °C, was praktisch einer Isothermie gleichkommt (Tardent, 1993). Die betroffenen Tiere sind somit der Wirkung jeglicher tages- oder jahreszeitlicher Zeitgeber (Licht, Temperatur) entzogen, die andernorts (z.B. Barentssee, Nord- und Ostsee) die zeitliche Abfolge der meisten Lebensäußerungen (z.B. Periodizität der Fortpflanzung) maßgeblich mitbestimmen. Die Tiefsee ist durch relativ konstante abiotische Bedingungen charakterisiert, wobei die Intensität und Häufigkeit von abiotischen Störungen generell gering ist.

Von küstennahen Gebieten unterscheidet sich das Tiefseegebiet durch seinen Nährstoffmangel. Da auch die in großen Tiefen lebenden Konsumenten ihren Nahrungsbedarf indirekt von der Primärproduktion belichteter, oberflächlicher Wasserschichten decken und der von dort in die Tiefe stattfindende Energietransfer mit exponentiell zunehmenden Verlusten verbunden ist (Tardent 1993), muss das Nahrungsangebot als äußerst dürftig eingestuft werden. Veränderungen in der Tiefsee-Biozönose werden auf Veränderungen in der Zufuhr von organischem Material zurückgeführt und somit auf die Oberflächenproduktivität und dort stattfindende globale Veränderungen. Nahrungsschübe durch Phytodetritus erreichen den Tiefseeboden örtlich und regional begrenzt als Auswirkung von Algenblüten an der Wasseroberfläche.

In der ständig lichtlosen Tiefsee bei konstanten niedrigen Temperaturen (s.o.), bei konstantem Salzgehalt und konstantem Druck sind die Organismen nicht an Veränderungen ihrer Umwelt angepasst. Die hochspezialisierte Fauna der Tiefsee ist durch Beeinträchtigungen auch auf Individualebene unter Umständen stärkeren Auswirkungen unterworfen als Ökosysteme, die durch größere Artenvielfalt robuster gegenüber Eingriffen von außen sind. Eine schnelle Regeneration der Tierbestände nach großskaligen Störungen ist daher nicht zu erwarten. Biologische Prozesse laufen in einem langsamen Tempo ab, bedingt durch niedrige Temperatur und Nahrungsknappheit. Eine Ausnahme bilden heiße Quellen, die einen sehr begrenzten Lebensraum intensiver biologischer Aktivität darstellen.

4.1.1.1 Probenahme des biologischen Materials

Das Institut für Fischereiökologie führt in dem Versenkungsgebiet (Gebiet B) seit 1979 Untersuchungen durch. Bis 1993 wurden jährlich – mit Ausnahme von 1991 - Fahrten in dieses Gebiet unternommen. Ergebnisse liegen als Veröffentlichung (Feldt et al. 1985; Feldt et al. 1989) bzw. als Abschlußbericht zum Forschungsvorhaben St.Sch. 967 (1988) und St.Sch. 1093 (1993) vor. Für die Beantwortung der Frage im Rahmen des oben genannten Forschungsvorhabens wurden 1996, 1998 und 2000 weitere Fahrten mit dem Fischereiforschungsschiff „Walther Herwig III“ in das im Nordostatlantik gelegene Versenkungsgebiet für schwach radioaktive Abfallstoffe (Gebiet-B) bzw. in das Vergleichsgebiet (Ost-B) durchgeführt.

In dieses Versenkungsgebiet mit einer Ausdehnung von rund 430 000 ha waren schätzungsweise 130 000 Abfallbehälter eingebracht worden. Daraus resultiert eine mittlere Dichte von 1 Behälter auf rund 3,3 ha. Das Agassiz-Trawl wurde zur Probenahme ca. 4 Stunden an einer 8500 m langen Leine (Stahlseil mit 16 mm Durchmesser) mit 2 Knoten über Grund geschleppt. Pro Hol wurde dabei ein Gebiet von überschlägig 4,4 ha befischt. Das bedeutet, dass statistisch mit 3 Hols im Mittel 4 Behälter mit dem Trawl überfahren wurden.

4.1.1.2 Bewertung der Probenahme

Bei dem Bestreben, die biologischen Tiefseedaten einer statistischen Prüfung zu unterziehen, stießen wir auf vielschichtige Probleme.

Ursprünglich wurde das Agassiz-Trawl dafür eingesetzt, benthische und benthopelagische Organismen für Untersuchungen auf Radioaktivität zu sammeln. Wegen der geringen Biomasse in der Tiefsee wurde das Agassiz-Trawl im Laufe der Jahre diversen Modifikationen unterzogen, um die Fängigkeit zu erhöhen und somit ausreichend Material für die Radioaktivitätsmessungen zu erhalten:

- an der Unterseite des Agassiz-Trawls erfolgte der Einbau von Scheuchketten, um Organismen aus dem Boden zu erhalten. Diese Veränderung führte aber zu unerwünschten erheblichen Sedimentablagerungen im Netzsteert.
- Veränderung der Maschenweite im Netzsteert, um Sedimentablagerungen zu vermeiden und reine Organismenproben zu erhalten.
- Einbau von Gewichten auf die Kufen des Agassiz-Trawls, um einen besseren Bodenkontakt herzustellen.
- Zur Vermeidung der Aufnahme radioaktiver Abfallfässer, die wiederholt ins Netz gelangten und den gesamten Fang für Radioaktivitätsuntersuchungen unbrauchbar machten, wurde die Öffnung des Agassiz-Trawls mit Abweisern versehen, was wiederum die Fängigkeit beeinflusste.
- Veränderungen am Hahnepot des Agassiz-Trawls verursachten Scheuchwirkungen mit Auswirkungen auf die Fängigkeit.

Desweiteren war die Probenahme mit dem Agassiz-Trawl in 4700 m Tiefe zu ungenau. Es wurden während der Untersuchungszeit verschiedene Schleppstrecken in unterschiedlichen Planquadraten abgefischt. Außerdem fehlt eine Aussage über die tatsächliche Fangzeit des Agassiz-Trawls am Grund. Versuche, diese zu bestimmen, scheiterten mit dem Verlust des Gerätes. Auch Veränderungen der Schleppgeschwindigkeit über Grund, hervorgerufen durch unbekannte Meeresströmungen am Boden der Tiefsee sowie Änderungen der Schiffsgeschwindigkeit während des Schleppens, haben Einfluß auf den Bodenkontakt des Agassiz-Trawls und somit auf die Fängigkeit.

Die oben genannten Modifikationen des Fanggeschirrs sowie die erwähnten zusätzlichen Faktoren führten dazu, dass die Tiefseedaten einer statistischen Prüfung nicht standhielten. Somit wurden die vorhandenen Daten nur einer Mittelwert Berechnung unterzogen.

4.1.1.3 Ergebnisse der biologischen Untersuchungen

Für die Beantwortung oben genannter Fragestellung wurden die Ergebnisse unserer Untersuchungen im Gebiet „B“ aus den Jahren 1980 bis 1990 mit denen verglichen, die mehr als 10 Jahre nach Abschluß der Verklappung erhoben wurden (1992, 1993, 1996, 1998 und 2000). Vor Beginn der Verklappung wurden keine Untersuchungen durchgeführt. Im Vergleichsgebiet „Ost-B“ wurde das Agassiz-Trawl nur im Jahr 2000 eingesetzt.

Benthopelagisches Nekton

Gebiet - B

Das benthopelagische Nekton im Gebiet-B (Versenkungsgebiet) setzte sich in den Jahren 1992 bis 1998 aus folgenden Familien zusammen:

- Macrouridae (Grenadierfische),
- Synphobranchidae (Tiefseeaale),
- Bathysauridae,
- Bathypteroidae (Stelzfische),
- Aphyonidae und Cephalopoda (Tintenfische).

Macrouridae waren am häufigsten in den Fängen vertreten, sie machten bis zu 93 % der Individuenzahl aus. Allerdings sind die Individuenzahlen in den Tiefseefängen generell sehr niedrig. Bei einer durchschnittlichen Schleppdauer von 4 Stunden pro Hol wurden 5 bis 16 Macrouridae je Hol gefangen.

Die Synphobranchidae waren mit 12 % am zweithäufigsten in den Fängen vertreten, das entspricht einer Individuenzahl von durchschnittlich 1 bis 2 Tieren pro Hol. Bathysauridae, Bathypteroidae, Aphyonidae und Cephalopoda traten nur vereinzelt in den Fängen auf.

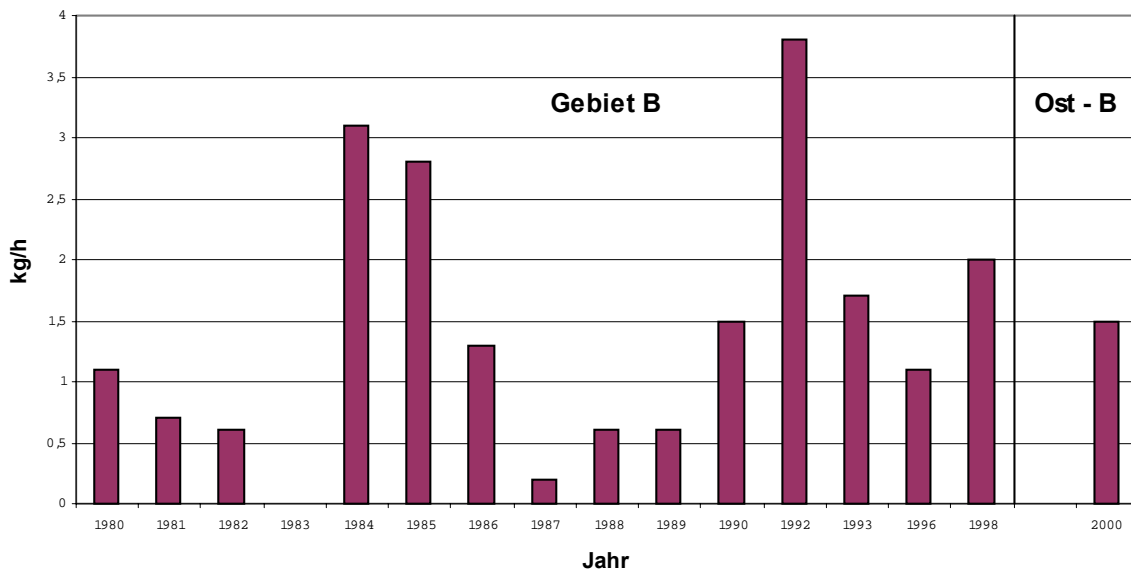


Abb. 4.1.1: Fang pro Stunde des benthopelagischen Nektons (Angaben in Feuchtwicht)

Vergleicht man die Fangzusammensetzung der Fänge aus den Jahren 1992 bis 1998 mit denen aus den Jahren 1980 bis 1990, so zeigt sich, daß die Macrouridae immer den Hauptanteil des benthopelagischen Nektons bildeten. In den Jahren 1980 bis 1990 waren sie zahlenmäßig zu 75 bis 90 % vertreten. 1992 bis 1998 vergleichbar zu 65 bis 93 %.

Auch in der Diversität ist keine Veränderung festzustellen. Die in den Fängen von 1992 bis 1998 vorkommenden Familien des benthopelagischen Nektons (s.o.) unterschieden sich nicht von denen der Jahre 1980 bis 1990. Einzelexemplare dieser Familien waren immer wieder in den Fängen anzutreffen. Die großen Schwankungen in den Fängen (kg/h) der Jahre 1980 bis 1990 mit 0,2 bis 3,1 kg/h setzten sich auch in den Jahren 1992 bis 1998 mit 1,1 bis 3,8 kg/h fort (Abb. 4.1.1).

Gebiet Ost – B

Im Vergleichsgebiet Ost – B setzte sich das benthopelagische Nekton aus Macrouridae und Aphyonidae zusammen. Auch hier waren die Macrouridae mit 92 % die häufigsten Vertreter in den Fängen, was einer Individuenzahl von durchschnittlich 2 bis 3 Tieren pro Hol entspricht. Der Fang pro Stunde lag bei 1,5 kg (Abb. 4.1.1).

Ein Vergleich mit früheren Jahren ist nicht möglich, da nur aus dem Jahre 2000 biologische Proben aus diesem Gebiet vorliegen.

Benthos

Gebiet - B

In den Agassiz-Trawl-Fängen der Jahre 1992 bis 1998 wurden folgende benthische Gruppen angetroffen:

- Actiniaria (Seeanemonen),
- Holothuroidea (Seegurken),
- Echinodermata (Seesterne und Seeigel),
- Mollusca (Schnecken und Muscheln),
- Vermes (Würmer) und
- Crustacea (Decapoda reptantia, Krebse).

Diese Gruppen waren auch in den Fängen der Jahre 1980 bis 1990 vertreten.

In den Jahren bis 1990 wurden die benthischen Fänge zahlenmäßig von den Actiniaria (Seeanemonen) dominiert. Sie machten im Mittel 50,3 % der Fänge aus, gefolgt von den Echinodermata (Seesternen) mit 16,1 % und den Holothuroidea (Seegurken) mit 14,1 %.

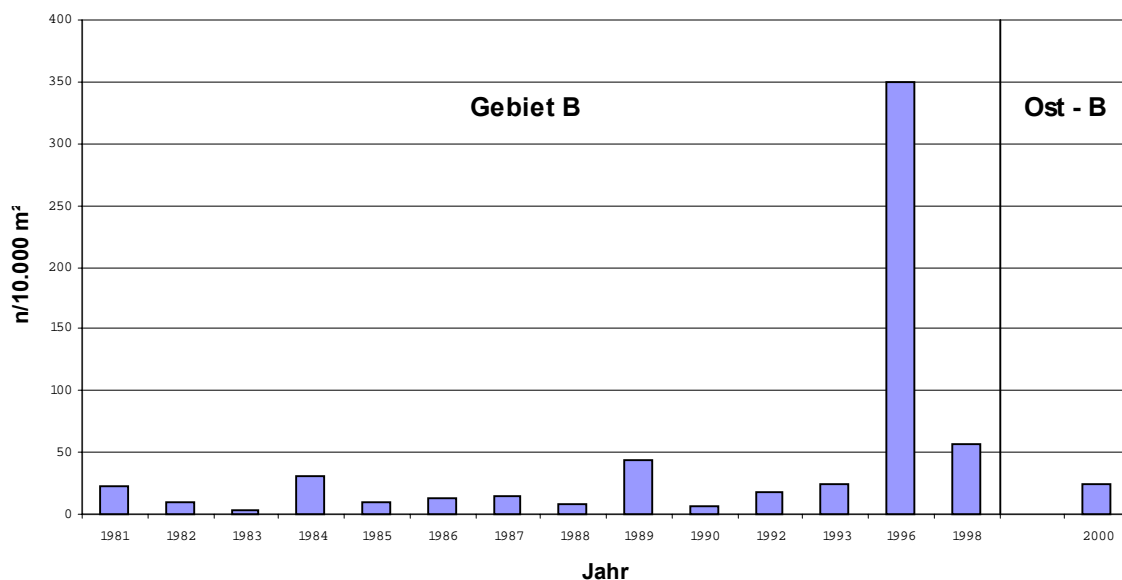


Abb. 4.1.2: Individuenzahl benthischer Gruppen pro 10.000 m²

Eine drastische Veränderung in der benthischen Organismenfauna wurde im Jahre 1996 festgestellt. Während in den Jahren davor bis zu 40 Individuen pro Hektar (10 000 m²) im Versenkungsgebiet in einer Tiefe von 4300 m gefangen wurden, stieg 1996 die Individuenzahl auf 350 Tiere pro Hektar an, um dann 1998 wieder auf 57 Tiere pro Hektar abzusinken (Abb. 4.1.2).

Gleichzeitig trat eine Verschiebung in der Dominanz der gefangenen Gruppen auf. Dominierten in den Fängen von 1980 bis 1990 die Actinaria (Seeanemonen) mit einem Anteil von 40 – 50 %, so wurden 1996 die Fänge von den Holothuroidea (Seegurken) mit einem Fanganteil von 95 % dominiert. Somit wurde die langjährige Dominanz der Actinaria (Seeanemonen) beendet. Mit dieser Veränderung trat aber auch innerhalb der Holothuroidea (Seegurken) eine Verschiebung der dominierenden Arten auf. Bis 1993 wurden die Holothuroidea (Seegurken) von den Arten *Psychropotis longicauda* und *Elpidia spec.* dominiert. 1996 trat eine Veränderung zu Gunsten von *Amperima spec.* auf, die in den Fängen mit bis zu 2600 Individuen pro Hol vertreten waren. 1998 dominierten die Holothuroidea (Seegurken) weiterhin in den Fängen mit 52 % vor den Actinaria (Seeanemonen) mit 33 % und den Echinodermata (Seesternen) mit 15 %.

Gebiet Ost – B

Auch im Vergleichsgebiet Ost-B dominierten die Holothuroidea (Seegurken) mit ihrer Individuenzahl die Fänge (69 %). Zweithäufigste Gruppe waren die Asteroidea (Seesterne) mit 27 % gefolgt von den Actinaria (Seeanemonen) mit 3 %.

Vergleiche mit den Fängen früherer Jahre sind leider nicht möglich, weil dieses Seegebiet im Jahre 2000 zum ersten Mal ausgiebig beprobt wurde.

4.1.1.4 Wirkung der Hartsubstrate auf die Biologie

Vergleicht man die Ergebnisse der Jahre 1992 bis 1998 mit denen der Jahre 1980 bis 1990, so lassen sich Veränderungen der Tiefsee-Biozönose bis auf das oben erwähnte Ereignis im Jahre 1996 nicht erkennen.

Die von uns 1996 festgestellte massive Zunahme von Holothuroidea (Seegurken) der Art *Amperima spec.* wurde auch während des Europäischen (MAST III) Projektes BENGAL im Seegebiet „Porcupine Abyssal Plain“ (PAP) nordwestlich unseres Untersuchungsgebietes (vergl. Abb. 3.2) gemacht. Auch hier kam es zu einem vermehrten Auftreten von *Amperima spec.*. Billett (1999) nannte diese Erscheinung den „Amperima event“. Der Grund für diese Veränderung ist nicht bekannt. Es könnte ausgelöst worden sein durch vermehrten Zustrom organischen Materials aus höheren Schichten, da die Individuenzahlen der anderen Gruppen im Seegebiet „Porcupine Abyssal Plain“ (Billett et al. 1999) auch eine leichte Zunahme zu verzeichnen haben. Billett et al. (1999) haben im BENGAL-Seegebiet jährlich wechselnde Schwankungen in der Zusammensetzung des von der Seeoberfläche auf den Seeboden sinkenden organischen Materials festgestellt. Eine Verknüpfung dieser beiden Beobachtungen leitet zu dem Schluß, dass Zeitpunkt, Menge und Qualität des organischen Materials, das den Seeboden der Tiefsee erreicht, Einfluß auf die Dominanz der Organismen hat. Wenn dem so ist, dann wird deutlich, wie benthische Tiefsee Lebensgemeinschaften von Langzeit-Veränderungen beeinflusst werden können. Die Ergebnisse von Billett et al. unterstreichen, dass der auch von uns gleichzeitig im Jahr 1996 beobachtete „Amperima event“ kein lokales auf das Versenkungsgebiet begrenztes Ereignis war, das seine alleinige Ursache im Einbringen von Abfallfässern haben könnte. Die Gründe für das plötzliche Auftreten von *Amperima spec.* in den Fängen 1996 und das Ausbleiben in den Fängen 1998 bleiben allerdings unklar.

Zwischen dem Versenkungsgebiet (Gebiet-B) und dem Vergleichsgebiet (Ost-B) ist die Zusammensetzung der benthopelagischen Fauna identisch, ein Unterschied ist in der Individuenzahl festzustellen, die im Gebiet B im Mittel um den Faktor 4 höher ist als im Vergleichsgebiet Ost-B.

Auch bei den benthischen Organismen wurden in beiden Arbeitsgebieten dieselben benthischen Gruppen angetroffen, mit der Ausnahme, dass die Individuenzahl im Gebiet B auch bei den benthischen Organismen im Mittel um den Faktor 4 bis 5 höher ist als in Ost-B. Frühere Untersuchungen (Feldt 1985) deuten darauf hin, dass die Topographie im Seegebiet Einfluß auf die Individuenzahl hat. Im Gebiet Ost-B haben wir es mit einem ebenen Meeresboden zu tun, während das Gebiet B durch Täler, „Canon“ und Gebirge gekennzeichnet ist.

Wir haben das Agassiz ursprünglich hauptsächlich dafür eingesetzt, benthische und benthopelagische Organismen für Untersuchungen auf Radioaktivität zu sammeln. Zusätzlich wurde durch Auszählen der Fangmenge eine grobe Besiedlungsdichte abgeschätzt. Diese mittlere Besiedlungsdichte auf der abgeschleppten Fläche hat sich nach unseren Zählungen offensichtlich durch das Einbringen der Hartsubstrate nicht auffallend geändert. Wie sich die Struktur der Lebensgemeinschaft durch das Einbringen der Fässer, also eines Hartsubstrates, in den Lebensraum einer Weichbodengesellschaft verändert hat, ob sich die Organismen jetzt bevorzugt an den Behältern aufhalten und die umgebende Fläche dementsprechend leicht verödet ist, läßt sich mit unserer Fangmethode nicht untersuchen. Die ungezielte Probenahme sagt nichts über die Auswirkungen aus, da die Abstände zu den Fässern zu groß sind. Es kommt darauf an, mit moderner Technik auf und neben den Fässern und im Sediment im Nahbereich der Fässer eventuelle Veränderungen festzustellen. Da sich der Energie- (Nahrungs-) eintrag nicht geändert hat, muß durch die Aufteilung der Energie auf Hart- und Weichbodenfauna letztere verarmt sein. Zur Beantwortung dieser Hypothese wäre der Einsatz spezieller Geräte nötig (z.B. Roboter

Systeme mit Video- Aufzeichnung), was weitere sehr hohe finanzielle Aufwendungen nötig macht.

4.1.2 Radioaktivität

4.1.2.1 Biota

4.1.2.1.1 Vorbemerkungen

Seit 1979 wurden jährlich radioökologische Untersuchungen im NEA-Versenkungsgebiet (unser Arbeitsgebiet B) für schwach-radioaktiven Abfall sowie in Vergleichsgebieten, darunter in dem 1967 einmalig zu einer Versuchsversenkung genutzten Gebiet (A), durchgeführt. Ergebnisse dieser Arbeiten wurden bereits früher veröffentlicht (Feldt et al., 1985; Feldt et al., 1989).

In den letzten 10 Jahren wurde das Untersuchungsprogramm weitgehend auf das aus großen Tiefen entnommene Seewasser sowie die in unmittelbarer Sedimentnähe entnommenen Benthos-Organismen sowie die in Sedimentnähe gefangenen Fische und andere fischähnliche Organismen (bathypelagisches Nekton) reduziert.

Tiefseeorganismen werden als sehr empfindliche Indikatoren für in der Tiefsee vorhandene Radionuklide betrachtet. So sind z.B. die Seegurken (Holothuroidea) sehr gute Indikatoren für die in der oberen Sedimentschicht vorhandenen Radionuklide, da sie auf dem Sediment leben, die obere Sedimentschicht aufnehmen und später wieder ausscheiden. Seegurkenproben bestehen daher zum größeren Teil aus Sediment. Seeanemonen (Actiniaria) sind mit einem Fortsatz im Sediment verankert, entnehmen ihre Nahrung jedoch aus dem an ihrem Standort vorbeifließenden Wasser. Seesterne (Asteroidea) leben ebenfalls auf dem Sediment. Prominente Vertreter des Bathypelagials sind vor allem die Grenadierfische (Macrouridae; es sind „Rundfische“), die eine Gesamtlänge von über 80 cm erreichen können, sowie die deutlich kleineren Tiefseeaale (Synphobranchidae).

Als Ergänzung zu den im Untersuchungszeitraum (1997 bis 2001) erhaltenen Ergebnissen wird hier erstmalig seit 1989 der Versuch gemacht, vorhandene Zeitreihen über künstliche Radionuklide ab 1980 darzustellen und auszuwerten. Dabei ist anzumerken, dass die in den 20 Jahren von uns verwendeten Vergleichsgebiete wechselten. Biota-Proben wurden 1996 nur im NEA-Gebiet B genommen. 1996 wurden zusätzlich zum Gebiet B Proben aus dem östlich gelegenen Vergleichsgebiet „Ost-B“ genommen, während in 2000 Proben nur aus dem Gebiet „Ost-B“ geholt wurden.

Die in benthischen Organismen gamma-spektrometrisch sehr gut nachweisbaren Radionuklide der natürlichen Zerfallsreihen sind recht interessant und zeigen gerade für Ra-226 (bis zu mehreren Hundert Bq/kg Trockenmasse TM), Pb-210 (bis zu 1000 Bq/kg TM) sowie Th-228-Zerfallsprodukte sehr viel höhere Aktivitätswerte als die künstlichen Radionuklide. Sie werden hier jedoch nicht weiter behandelt; eine ausführliche Diskussion erfolgte schon früher (Feldt et al., 1985).

Zur Erstellung der Zeitreihen ab 1980 wurden für jede(s) Probenart/Radionuklid die Jahresmittelwerte und deren Standardabweichungen ermittelt. Je nach dem, ob in einem zu mittelnden Datensatz Werte „< Nachweisgrenze (NWG)“ enthalten waren oder nicht, wurden zwei verschiedene Verfahren benützt. Waren keine „<NWG“-Werte enthalten, wurde die Berechnung zur Eliminierung des möglichen Beitrages von Ausreißern mit Hilfe einer sogenannten „robusten Methode“ durchgeführt. Diese wurde bei der US Environmental Protection Agency (EPA) entwickelt und beruht auf der Verwendung von Mahalanobis-Distanzen (Singh and Nocerino, 2002; Singh and Nocerino, 1995; Singh, 1993), wobei Meßunsicherheiten der Einzelwerte nicht berücksichtigt werden. Dies Verfahren ist deutlich robuster, d.h. Mittelwert und Standardabweichung reagieren weniger empfindlicher auf das

Vorliegen von Ausreißern, als das 1989 vom britischen „Analytical Methods Committee“ veröffentlichte Verfahren (AMC, 1989a; AMC, 1989b). Bei Vorliegen von „<NWG“-Werten wurde das Verfahren nach Helsel und Cohn (1988) verwendet, welches auch im allgemeinen Kapitel IV.4 der „Messanleitungen für die Überwachung der Radioaktivität in der Umwelt...“ (BMU, 1992) beschrieben wird. Für beide Verfahren stehen bei der BFAFi-Leitstelle entwickelte Fortran-90-Routinen zur Verfügung.

Eine besondere Schwierigkeit bei der Erstellung der Zeitreihen ergab sich daraus, dass von 1984 bis 1990 bei der Probenahme mit dem Agassiz-Schlitten jeweils mindestens einmal eins von den im NEA-Versenkungsgebiet B versenkten Fässern mit radioaktivem Abfall an Bord des Schiffes geholt wurde. Dies führte leider zu Kontaminationen auch solcher Proben, die auf nachfolgenden Stationen an Bord geholt wurden. Bei der Aufarbeitung der Proben später im Labor traten auch Querkontaminationen auf. Da wir bei der vorliegenden Auswertung hauptsächlich daran interessiert sind, Unterschiede zwischen Versenkungsgebiet und Vergleichsgebieten zu erkennen, oder Abweichungen vom globalen Fallout, die auf eine Auswirkung der versenkten Radioaktivität schließen lassen würden, mussten alle derartige Kontaminationen von Proben oder auch nur bestimmter Radionuklide einer Probe gefunden und ausgeschlossen werden. Dies führte letztlich dazu, dass gerade aus den 80er Jahren oft nur noch wenige Proben oder Radionuklidwerte eines Jahres für die Auswertung übrig blieben.

Dass oft sehr kleine Anzahlen an Messwerten (nur 1 oder 2 Werte) je Jahr vorlagen, kommt in den folgenden zu besprechenden grafischen Darstellungen nicht zum Ausdruck. Die den Grafiken zugrundeliegenden (statistischen) Informationen, inklusive der Anzahlen der Werte eines Jahres, sind jedoch in einem Anhang A2 dargestellt. Die grafisch dargestellten „Fehlerbalken“ repräsentieren die einfache Standardabweichung des Jahresmittelwertes. Für jeden Mittelwert wurde der jeweils größere Wert von der Streu-Standardabweichung und den gemittelten Standardabweichungen der Einzelmesswerte als seine Standardabweichung verwendet, dividiert durch die Wurzel der Anzahl der Messwerte.

4.1.2.1.2 Benthische Organismen

Im Untersuchungszeitraum gelangten folgende Anzahlen von Proben des Benthos zur Analyse:

Jahr	Anzahl
1996	70
1998	70
2000	29

Sehr oft wurden – wegen kleiner Einzelprobenmassen – Proben des gleichen Typs von mehreren Stationen eines Arbeitsgebietes zu einer Mischprobe zusammengefasst. In fast allen Fällen enthielt eine zu untersuchende Probe mehrere Individuen.

Zeitreihen

Die wesentlichen zu diskutierenden künstlichen Radionuklide sind Cs-137, Sr-90, die Pu-Isotope und Am-241. Am-241 wurde hierbei gamma-spektrometrisch bestimmt.

Abb. 4.1.3 zeigt die Zeitreihen der relevanten Radionuklide in den **Holothuroidea** (Seegurken; Anmerkung: die Seegurken bestehen größtenteils aus Sediment).

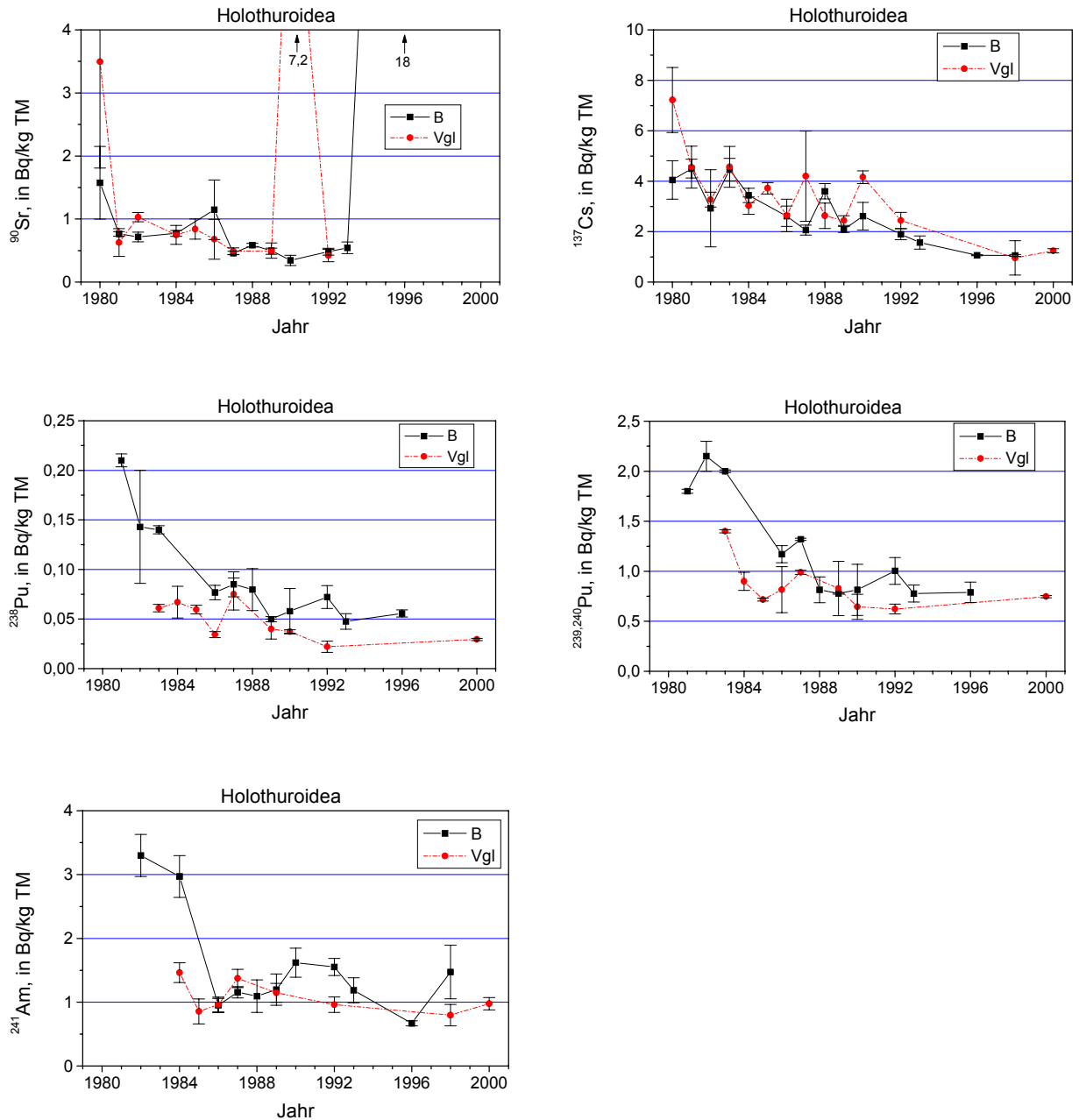


Abb. 4.1.3: Zeitreihen der spezifischen Aktivitäten von Radionukliden in *Holothuroidea* (Seegurken) im NEA-Versenkungsgebiet B und den zu „Vgl“ zusammengefassten Vergleichsgebieten

Bei den Radionukliden Sr-90 und Cs-137 ist kein Unterschied zwischen dem Versenkungsgebiet B und den Vergleichsgebieten zu erkennen. Für die beiden nach oben herausfallenden Sr-90-Werte, je einer im Gebiet B und im Vergleichsgebiet, gibt es derzeit keine Erklärung. Sie werden als Ausreißer behandelt. Bei den Radionukliden Pu-239,240 und Am-241 ist nur in der ersten Hälfte der 80er Jahre, bis etwa 1984, im Versenkungsgebiet B eine leichte Erhöhung gegenüber den Vergleichsgebieten zu vermuten. Es ist aber davon auszugehen, dass die alpha-spektrometrischen Bestimmungen der Pu-Isotope damals mit einer deutlich größeren Messunsicherheit behaftet waren, als sie etwa ab Ende der 80er Jahre erreicht wurden. Zum einen war dies dadurch bedingt, dass damals die Messzeiten nur bis zu 7 Tage betragen, während später, nach einer Aufstockung der Anzahl der Alpha-Kammern meist 11 bis 20 Tage zur Messung verwendet wurden, zum anderen wurden Auswertverfahren einschließlich der Behandlung von Blindwerten später zunehmend

verbessert. Daher kann aus der Zeitreihe für Pu-239,240 in Holothuroidea gegenwärtig nicht auf eine Erhöhung im Versenkungsgebiet geschlossen werden. Beim weitgehend gamma-spektrometrisch bestimmten Am-241 ist ab 1986 kein signifikanter Unterschied zwischen dem Versenkungsgebiet B und den Vergleichsgebieten zu erkennen. In den Jahren davor Jahren war die Messungenauigkeit, einmal wegen damals kürzerer Messzeiten, aber auch wegen der damals noch ungenügend entwickelten Methode zur Selbstabsorptions-Korrektur, deutlich größer und noch nicht gut quantifizierbar. Daher lassen die zwei in den Jahren 1982 und 1984 höheren Mittelwerte im Gebiet B noch keinen Schluss auf eine generelle Erhöhung im Versenkungsgebiet zu.

Für Cs-137 ist eine Abnahme über den Zeitraum von 20 Jahren festzustellen, sowohl im Versenkungsgebiet B als auch in den Vergleichsgebieten. Auch für Sr-90 deutet sich dies an; leider fehlen dazu aber noch Daten aus den letzten Jahren. Bei Pu-239,240 und Am-241 ist eine Abnahme, sowohl im Versenkungsgebiet B als auch in den Vergleichsgebieten, kaum erkennbar. Die zeitliche Abnahme in den Zeitreihen wird im Abschnitt 4.1.2.1.4 behandelt.

Abb. 4.1.4 zeigt die Zeitreihen von Cs-137 und/oder Pu-239,240 in **Actiniaria** (Seeanemonen) und **Astroidea** (Seesterne).

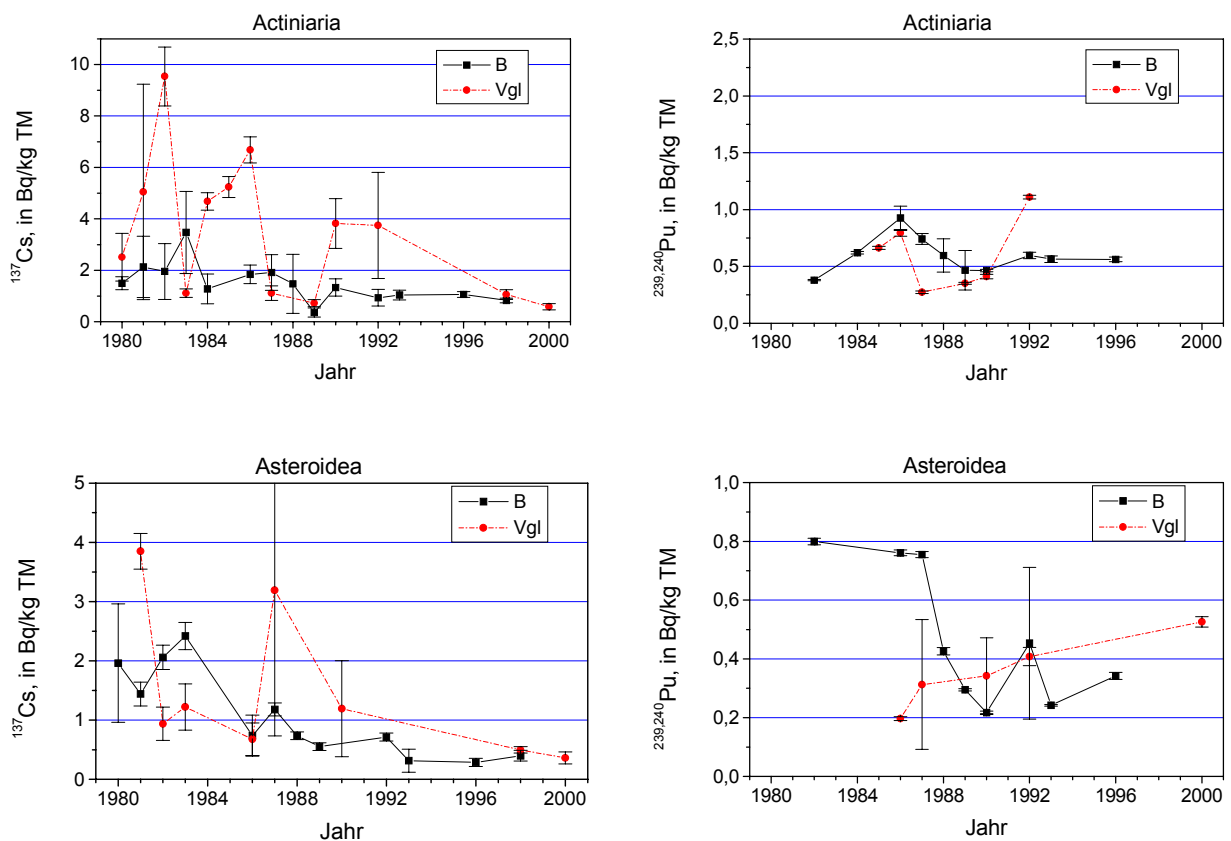


Abb. 4.1.4: Zeitreihen der spezifischen Aktivitäten von Radionukliden in Actiniaria (Seeanemonen) und Astroidea (Seesterne) im NEA-Versenkungsgebiet B und den zu „Vgl“ zusammengefassten Vergleichsgebieten

Bei der Cs-137-Zeitreihe der Actiniaria ist auffällig, dass die Jahresmittelwerte der Vergleichsgebiete oft deutlich über denen aus dem NEA-Versenkungsgebiet B liegen. Dies ist auf Proben aus dem 1967 für eine einmalige Versuchsversenkung genutzten Gebiet zurückzuführen, welches uns als Vergleichsgebiet A diente. 1992 wurde zuletzt Proben aus

diesem Gebiet geholt. Eine solche 2-3fache Erhöhung im Gebiet A konnte jedoch nicht für Sr-90 und die Pu-Isotope gefunden werden, wohl aber für bestimmte natürliche Radionuklide, K-40, Pb-210, und Ra-228/Th-228. Letzteres Verhalten wurde früher von uns im Vergleich zwischen dem NEA-Versenkungsgebiet B und dem Gebiet A auch in Sedimenten gefunden (Feldt et al., 1989). Es wurde seinerzeit gefolgert, dass die Erhöhung von Cs-137 und Pb-210 im Gebiet A durch komplexe biogeochemische Prozesse bedingt ist und auch damit zu tun haben kann, dass im Gebiet A die Wassertiefe 5200 m (4700 m im NEA-Gebiet B) beträgt und das Sediment dort einen 2fach kleineren Calciumcarbonat-Gehalt als in anderen Gebieten hat.

Für Pu-239,240 in Actinaria und Asteroidea ist kein signifikanter Unterschied zwischen dem NEA-Versenkungsgebiet B und den Vergleichsgebieten festzustellen.

Abb. 4.1.5 zeigt für die einzelnen Radionuklide Zeitreihen in **Benthos (alle)**, nachdem die alle untersuchten Benthos-Proben jeweils zusammengefasst wurden. Es zeigt sich hierbei, dass insbesondere für Sr-90, Cs-137 und Am-241 kein signifikanter Unterschied zwischen dem NEA-Versenkungsgebiet B und den Vergleichsgebieten festzustellen ist. Allenfalls bei den Pu-Isotopen könnte man, mehr noch bei Pu-238, als bei Pu-239,240, eine sehr schwache Erhöhung im NEA-Gebiet B gegenüber den Vergleichsgebieten vermuten, die statistisch aber nicht signifikant ist. Dies wird später im Abschnitt über die Aktivitätsverhältnisse näher betrachtet. Die in Vergleichsgebieten etwas höheren Cs-137-Aktivitäten sind, wie bereits oben erläutert, auf den Beitrag der Actinaria zurückzuführen.

Aus der Betrachtung der verschiedenen Zeitreihen der Aktivitätskonzentrationen der Radionuklide im Benthos ergeben sich noch keine unmittelbaren signifikanten Hinweise, dass im NEA-Versenkungsgebiet (B) höhere Aktivitäten als in den betrachteten Vergleichsgebieten vorliegen.

Aktivitätsverhältnisse von Radionukliden in Benthos

Besondere Beachtung bei dem Versuch, die Herkunft von Radionukliden in der marinen Umwelt festzustellen, finden die Aktivitätsverhältnisse von Radionukliden. Für die überaus dominierende Quelle von Radionukliden im Meer, den globalen Fallout, sind solche Verhältnisse genau bekannt. Bei Abweichungen von diesen kann der Einfluss einer weiteren Quelle vermutet werden. Für das Meerwasser (Nordatlantik) gut dokumentierte Aktivitätsverhältnisse sind:

Cs-137/Sr-90:	1,45 1,48 1,50	1972-1973; (OECD/NEA, 1985, Annex I) 1990 2000 Der Wert 1,5 wird auch von Livingston und Povinec (2000) angeführt.
Pu-238/Pu-239,240:	0,036	für das Jahr 1983; in 40-50 °Nord, beinhaltet auch den SNAP-9A-Satellitenabsturz (Pentreath, 1988)
Pu-240/Pu-239:		
Atomanzahlen-Verh.:	0,180 ± 0,007(1σ)	Nördl. Hemisphäre (Kelley et al., 1999)
(Aktiv.-Verh.):	0,662 ± 0,026(1σ)	
Pu-241/Pu-239,240:	12-16	Aktivitätsverhältnis, bezg. auf 1.1.1962 (Roos et al., 1994)
Pu-241/Pu-239:	0,00194 ± 0,00014 (1σ)	Atomanzahlenverhältnis, bezogen auf den 1.1.2000 (Kelley et al., 1999). Dieser Wert entspricht einem Aktivitäts-Verhältnis Pu-241/Pu-239,240 von 12,3 bezogen auf den 1.1.1962.

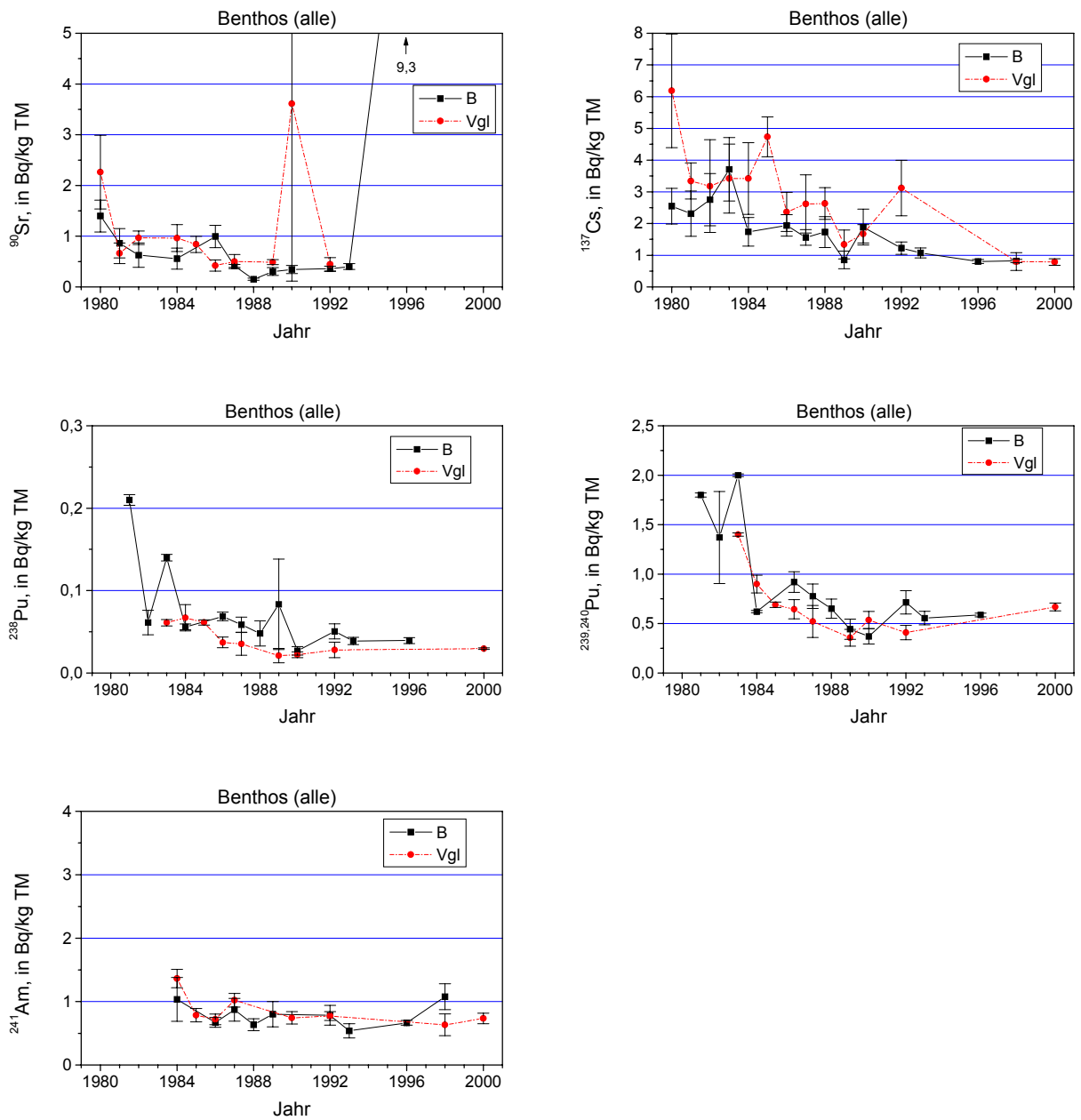


Abb. 4.1.5: Zeitreihen der spezifischen Aktivitäten von Radionukliden in **Benthos**-Proben (alle benthischen Organismen zusammengefasst) im NEA-Versenkungsgebiet B und den zu „Vgl“ zusammengefassten Vergleichsgebieten

Das für Pu-241 gewählte Bezugsdatum, der 1.1.1962, liegt in der Mitte des Zeitraumes von 1961-1963, in dem über 75% des Kernwaffenfallouts erzeugt wurden (Cooper et al., 2000). Das von Kelley et al. (1999) bestimmte Pu-241/Pu-239 beschreibt den Stand von 1971/1972, da sie aus diesen Jahren archivierte Bodenproben des Environmental Measurements Laboratory (EML) erneut mit TIMS untersuchten. Auch danach fanden noch Kernwaffentests statt, die zum totalen Pu-Fallout-Inventar noch wenige Prozent beitragen können. Nimmt man an, dass in 1976/77 noch 5% zum Pu-Fallout-Inventar hinzukamen, betrüge das Aktivitätsverhältnis Pu-241/Pu-239,240 am 1.1.1977: $12,3 \times 0,4845 + 0,05 \times 12,3 = 6,58$ (0,4845 ist hierbei der Pu-241-Abklingfaktor 1.1.62 – 1.1.77). Dies zurückgerechnet auf den 1.1.1962 ergibt den Wert $6,58 / 0,4845 = 13,6$. Dies ist in etwa der Wert, der sich aus

verschiedenen Messungen des daraus abgeleiteten Aktivitätsverhältnisses Am-241/Pu-239,240 ergibt, wie die nachfolgende Aufstellung zeigt:

Am-241/Pu-239,240	Bezugsjahr	daraus hier berechnet: Pu-241/Pu-239,240 am 1.1.1962:	Referenzen:
0,28	1983	13,8	Pentreath, 1988
0,30 ± 0,07	1984	14,1	Bunzl et al., 1988
0,33 ± 0,05	1990	13,8	Bunzl et al., 1994
0,38 ± 0,09	1991	15,6	Bunzl et al., 1995
0,36 ± 0,02	2000	13,5	Michel et al., 2002

Aus der Aufstellung ergibt sich ein robuster Mittelwert von 13,8 für das Aktivitätsverhältnis Pu-241/Pu-239,240, bezogen auf den 1.1.1962. Hierbei ist zu beachten, dass aus dem Fallout-Beitrag von Pu-241 langsam aber stetig durch dessen radioaktiven Zerfall Am-241 nachwächst.

Durch biogeochemische Prozesse in der Wassersäule bedingt, können sich diese Aktivitätsverhältnisse im Meerwasser, abhängig auch von der Tiefe in der Wassersäule, ändern. Im Meerwasser gelöste Pu-Isotope, sowie noch stärker Am-241, lagern sich an Partikel an, die durch den vertikalen Transport, abhängig von der Teilchengröße, verschieden schnell in die Tiefe transportiert werden. Dabei ist davon auszugehen, dass von dem stärker an Partikeln haftenden Am-241 mehr Aktivität auf dem Sediment ankommt als von den Pu-Isotopen. Das Verhältnis Am-241/Pu-239,240 verschiebt sich dabei zu größeren Werten.

Die marinen Organismen nehmen die verschiedenen Radionuklide unterschiedlich stark auf. Da die Biota-Konzentrationsfaktoren in der Tiefsee nicht bekannt sind, sind, mit einer Ausnahme, für die Organismen der Tiefsee die auf den globalen Fallout zurückgehenden Aktivitätsverhältnisse nicht bekannt. Einzig das Aktivitätsverhältnis Pu-238/Pu-239,240 hat den unschätzbaren Vorteil, dass es weder durch biogeochemische Prozesse in der Wassersäule noch durch den Anreicherungsprozess in den Tiefsee-Biota verändert wird. Allerdings gibt es auch hier eine Ausnahme bei den Prozessen in der Wassersäule, die später im Zusammenhang mit dem Fallout von der „Nevada Test Site“ erläutert wird.

Im folgenden werden die Aktivitätsverhältnisse Pu-238/Pu-239,240 und Am-241/Pu-239,240 betrachtet, deren Zeitreihen für Actinaria, Asteroidea, Holothuroidea und allen zu „Benthos (alle)“ zusammengefassten Proben in Abb. 4.1.6 dargestellt sind.

Für das Verhältnis Pu-238/Pu-239,240 ist in der ersten Hälfte der 80er Jahre kaum ein Unterschied zwischen dem NEA-Versenkungsgebiet und den Vergleichsgebieten zu erkennen. Erst ab etwa Ende der 80er Jahre wird erkennbar, bisher am wenigsten ausgeprägt bei den Actinaria, dass dieses Aktivitätsverhältnis im NEA-Versenkungsgebiet, mit einem Mittelwert bei etwa 0,07, größer ist als in den Vergleichsgebieten, wo es um 0,04 herum liegt. Die relativ kleinen in Abb. 4.1.6 dargestellten Messunsicherheiten werden nicht zusätzlich durch einen Beitrag der sogenannten „biologische Variabilität“ vergrößert, wie es sonst bei der Betrachtung von Messunsicherheiten bei Radionuklidaktivitäten zu beachten ist.

In Tabelle 4.1.1 sind sowohl für das NEA-Versenkungsgebiet B als auch für die Vergleichsgebiete die in Frage kommenden Jahresmittelwerte für Pu-238/Pu-239,240 dargestellt, die im Hinblick auf den radioaktiven Zerfall von Pu-238 einheitlich auf das Jahr 1990 bezogen wurden. Die durch Mittelung über die Jahre erhaltenen Mittelwerte (für Gebiet B und die Vergl.-Gebiete) wurden mit Hilfe der neueren, recht robusten, aus dem Rüstzeug der Quantenmechanik entlehnten Methode nach Cofino et al. (2000) berechnet, die ausdrücklich die Unsicherheiten der Jahresmittelwerte einzubeziehen gestattet.

Der Unterschied der Mittelwerte zwischen dem NEA-Versenkungsgebiet und den Vergleichsgebieten ist nach einem sehr einfachen „Chi-Quadrat-Test“ (vgl. Debertin and Helmer, 1988; Kapitel 1.5.2) als signifikant zu betrachten. Der für die Vergleichsgebiete zu entnehmende mittlere Wert von etwa 0,0439 ist zwar 29% größer als der auf das Jahr 1990 bezogene Literaturwert von 0,034 (s. oben), kommt diesem Wert aber sehr viel näher als der Wert von 0,0715 aus dem Gebiet B.

Tab. 4.1.1: Auswertung der auf das Jahr 1990 bezogenen Aktivitätsverhältnisse Pu-238/Pu-239,240 in den zusammengefassten Benthos-Proben („Benthos (alle)“) (N: Anzahl der Proben je Jahr; Mittelwert und dessen Standardabweichung mit der robusten Cofino-Statistik berechnet)

NEA-Versenkungsgebiet B				Vergleichsgebiete			
Jahr	N	Pu-238/ Pu-239,240	rel. StdAbw (%)	Jahr	N	Pu-238/ Pu-239,240	rel. StdAbw (%)
1987	10	0,0740	10,6	1987	6	0,0623	10,1
1988	5	0,0675	19,6	1989	5	0,0443	7,3
1989	8	0,0684	5,9	1990	12	0,0447	5,7
1990	5	0,0753	4,8	1992	12	0,0408	7,6
1992	12	0,0704	3,1	2000	6	0,0445	3,7
1993	17	0,0720	4,9				
1996	13	0,0712	2,3				
<i>Mittelwert:</i>		0,0715				0,0439	
<i>StdAbw</i>		± 0,0018				±0,0013	
<i>des Mw:</i>							

Daher bleibt als einzige Folgerung diejenige, dass Freisetzungen aus den im NEA-Versenkungsgebiet B versenkten Fässern mit radioaktivem Abfall die Ursache für das dort höhere Pu-238/Pu-239,240-Aktivitätsverhältnis sein müssen.

Betrachtet man in Abb. 4.1.6 die Zeitreihen für das Aktivitätsverhältnis Am-241/Pu-239,240, so ergibt sich kein so klares Bild wie für das Pu-Isotopenverhältnis. Die Verhältnisse schwanken über die Jahre deutlich zwischen etwa 1 und 2. Dies ist neben der durch die Gamma-Spektrometrie des Am-241 bedingten höheren Messunsicherheit auch eine Folge der „biologischen Variabilität“, da anzunehmen ist, dass Am-241 und Pu-239,240 von den verschiedenen Benthos-Arten, über die jeweils gemittelt wurde, unterschiedlich angereichert werden. Die Holothurien spiegeln noch am ehesten die Oberflächenschicht des Sedimentes wieder. Bei diesen, wie auch bei „Benthos (alle)“, liegen die Verhältnisse in den Vergleichsgebieten zwar etwas höher als im NEA-Versenkungsgebiet B, dieser Unterschied kann aber noch nicht als signifikant betrachtet werden. Das mittlere Verhältnis Am-241/Pu-239,240 liegt grob gerundet bei 1,5. Dieser Wert ist jedoch deutlich größer als der in der nördlichen Hemisphäre für die Deposition bekannte Wertebereich von etwa 0,33 – 0,38 in den 90er Jahren (s. Aufstellung weiter oben).

Das Marine Environment Laboratory (MEL) der IAEA, das auch an der von uns 1992 durchgeführten Seereise teilnahm und Wasserproben aus der Tiefe analysierte, fand darin ein Aktivitätsverhältnis Am-241/Pu-239,240 zwischen 0,22 und 0,35 (Baxter et al., 1995). Auch dies sind Werte, die deutlich kleiner sind als die von uns in benthischen Organismen gefundenen.

Wir nehmen an, dass der Befund eine Folge davon ist, dass für die im Oberflächenwasser des Meeres deponierten Pu-Isotope und Am-241 bekannt ist, dass sich Am-241 deutlich stärker an im Wasser befindliche Partikel anlagert und mit diesen zusammen sedimentiert und damit effektiver sedimentiert als die Pu-Isotope. Dies führt zu einem höheren Verhältnis Am-241/Pu-239,240 im Sediment (und damit auch im Benthos) als im oberflächennäheren Meerwasser.

Atomanzahlenverhältnisse Pu-240/Pu-239 in benthischen Organismen

In den benthischen Organismen sind die Pu-Aktivitätskonzentrationen höher als z.B. im Boden. Mit der konventionellen Methode der Alpha-Spektrometrie wurden bei vielen Proben in der Regel einige Zehn mBq an Pu-239,240 auf den Edelstahlplättchen abgeschieden. Daher bot es sich an, gemäß den Veröffentlichungen einer Arbeitsgruppe der Universität Dublin zu versuchen, das Verhältnis Pu-240/Pu-239 mit Hilfe der höher auflösenden Alpha-Spektrometrie zu bestimmen. Dies wurde erstmalig in der BFAFi für dieses Forschungsvorhaben angewendet. Die Einzelheiten des hier angewendeten Verfahrens sind in Kapitel 3.4.4 ausführlicher beschrieben. Da unser Labor seit vielen Jahren an den Ringanalysen der IAEA teilnimmt, standen aus den dabei durchgeführten konventionellen alpha-spektrometrischen Analysen Pu-Präparate zur Verfügung. Eine Reihe davon genügten auch der Anforderung nach einer hohen Energie-Auflösung. Die Validierung dieser Methode anhand dieser Pu-Präparate war sehr erfolgreich (vgl. Kap. 3.4.4). Daher wurden diverse Pu-Präparate von schon früher durchgeführten alpha-spektrometrischen Analysen daraufhin getestet, ob damit bei der Messung in den neuen TC-256-Alphakammern mit den höher-auflösenden Detektoren (13 keV Fwhm) Auflösungen (Halbwertsbreiten, Fwhm) von gut unter 20 keV zu erreichen waren. Mit solchen Präparaten, die auch einige zehn mBq an Pu-239,240 enthielten, wurden dann Langzeitmessungen von in der Regel 30 oder mehr Tagen durchgeführt.

Abb. 4.1.7 zeigt beispielhaft ein bei diesen Messungen erhaltenes Alpha-Spektrum.

Tabelle 4.1.2 zeigt die bei solchen Messungen erhaltenen Ergebnisse. Es wurden in der Regel ältere, schon früher hergestellte Präparate verwendet, da bei vielen in neueren Jahren durchgeführten Pu-Analysen die erzielbare Halbwertsbreite zu schlecht war (über 20 keV). Die relativen Standardabweichungen der gemessenen Verhältnisse Pu-240/Pu-239 lagen überwiegend unter 10%. Für das NEA-Versenkungsgebiet (B) und die Gruppe der Vergleichsgebiete wurden robuste Mittelwerte und Standardabweichungen mit dem Verfahren nach Cofino et al. (2000) berechnet, da das herkömmliche Verfahren der gewichteten Mittelwertbildung (Debertin und Helmer, 1988) deutliche Abweichungen von der Normalverteilung anzeigte. Man erhält:

NEA-Versenkungsgebiet B: $0,159 \pm 0,0046 (1\sigma)$

Vergleichsgebiete: $0,166 \pm 0,0071 (1\sigma)$

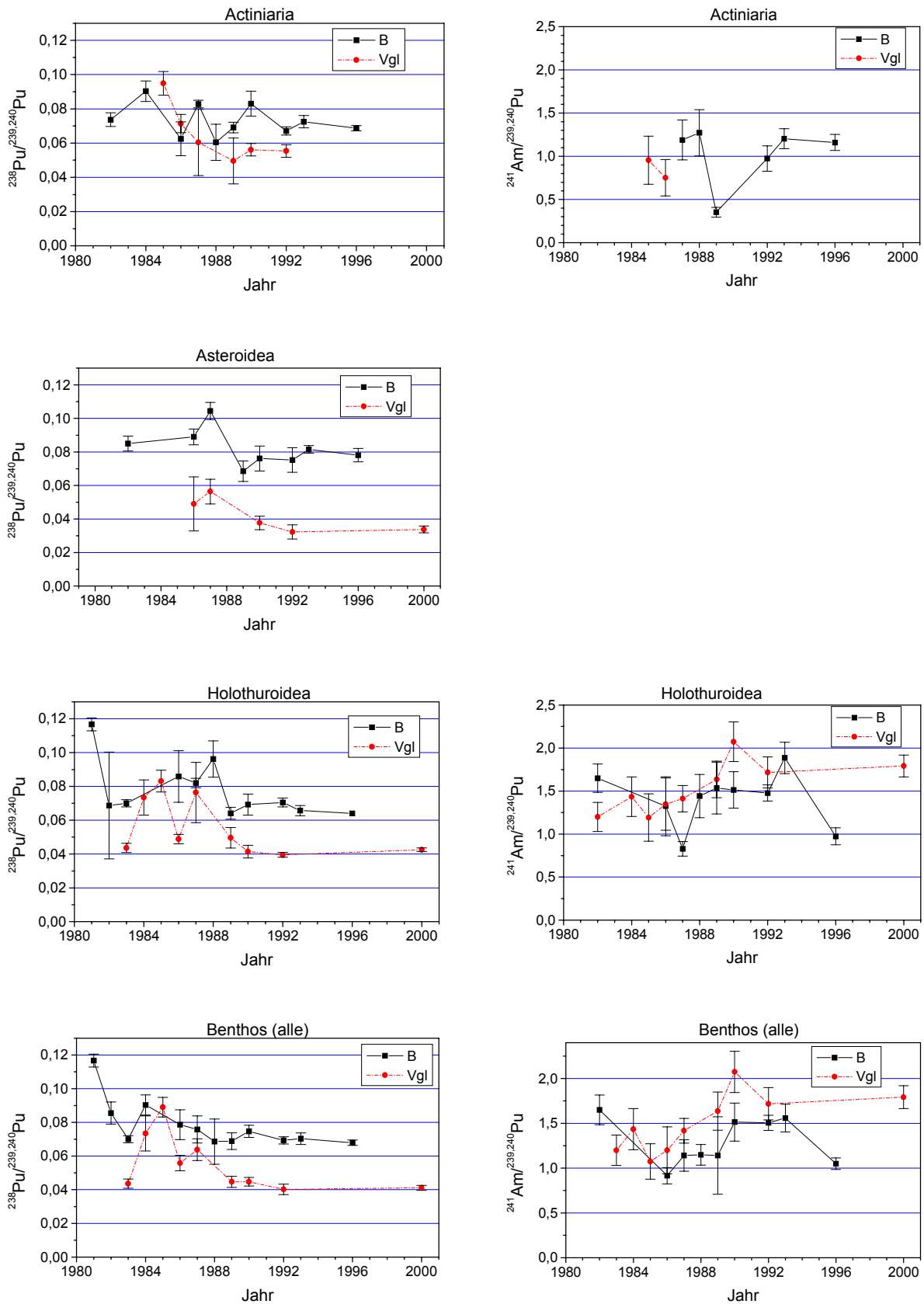


Abb. 4.1.6: Zeitreihen der Aktivitätsverhältnisse Pu-238/Pu-239,240 und Am-241/Pu-239,240 in Actiniaria, Asteroidea, Holothuroidea und in zu „Benthos (alle)“ zusammengefaßten Proben im NEA-Versenkungsgebiet B und den zu „Vgl“ zusammengefaßten Vergleichsgebieten

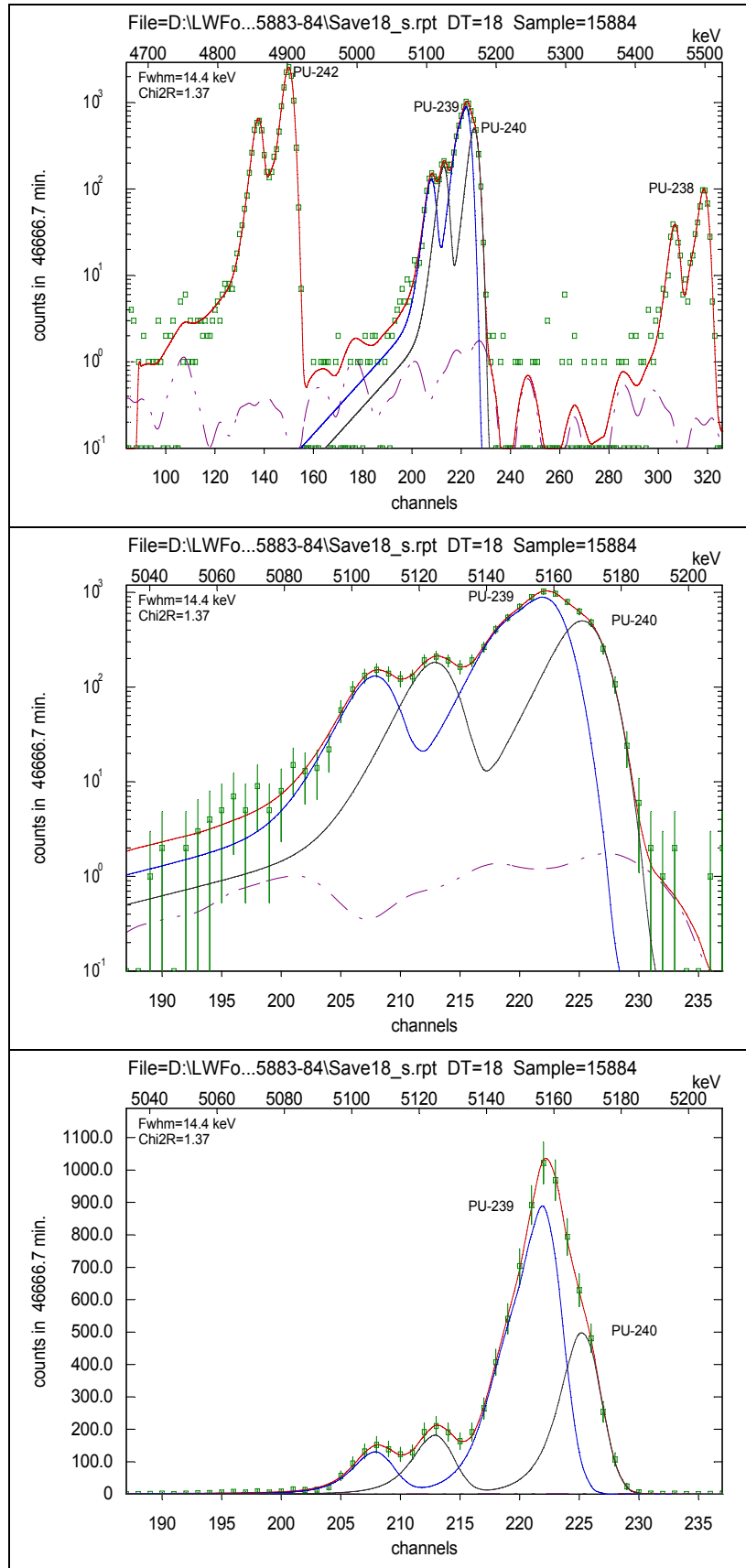


Abb. 4.1.7: Mit höher-auflösender Alpha-Spektrometrie gemessenes Spektrum einer Probe von *Actinaria abyssorum* aus dem Versenkungsgebiet B. Das Pu-239+Pu-240-Multiplett ist in der Mitte logarithmisch und unten linear dargestellt. Neben der gefitteten Summenkurve sind die für Pu-239 und Pu-240 angepassten einzelnen Kurven dargestellt. Die untere recht wellige Kurve in den logarithmischen Darstellungen repräsentiert den Nulleffekt.

Diese Mittelwerte sind statistisch nicht signifikant verschieden. Sie liegen jedoch beide etwas unterhalb des für den globalen Fallout bekannten Wertes von 0,18 für das Atomanzahlenverhältnis Pu-240/Pu-239.

Die Literatur gibt einen Hinweis darauf, dass diese kleinen Abweichung vom globalen Fallout-Wert einen realen Hintergrund hat. Buesseler und Sholkovitz (1987) veröffentlichten eine Untersuchung, in der die Atomanzahlenverhältnisse Pu-240/Pu-239 in verschiedenen Sedimenten des Atlantiks mit Hilfe der genaueren, aber eben erheblich aufwendigeren und kostenintensiven Methode der Massenspektrometrie gemessen wurden. Sie analysierten Sediment-Kerne aus verschiedenen Gebieten des Nordatlantiks, von der US-Ostküste bis etwa nordwestlich Spanien/Portugal. An den zwei Positionen nordwestlich Portugals (ca. 13°W; 46 und 50°N) fanden sie die Werte 0,15 und 0,16 des Atomanzahlenverhältnisses Pu-240/Pu-239; weiter südwestlich gehend wurden Werte 0,14, 0,12 und 0,11 gefunden. Die niedrigsten Werte, 0,09 bis 0,12, wurden etwa 70°W, 30-40°N ermittelt. Weiterhin fanden sie in einem Transsekt, von der Ostküste der USA in einer Richtung ausgehend, so dass die Wassertiefe von Position zu Position zunahm (von 90 m bis 4990 m), eine strenge Abnahme des Verhältnisses Pu-241/Pu-239: Werte von 0,195 (90 m Tiefe); 0,176 (501 m); 0,152 (1275 m); 0,137 (2362 m); 0,128 (2700 m); 0,105 (4469 m) und 0,101 (4990 m). Das Porenwasser dieser Sedimentkerne hingegen wies Werte zwischen 0,18 und 0,20 auf.

Tabelle 4.1.2: Ergebnisse der Messungen des Atomanzahlenverhältnisses Pu-240/Pu-239 in benthischen Organismen mit Hilfe der höher-auflösenden Alpha-Spektrometrie der BFAFi. (Mittelwert und dessen Standardabweichung wurden mit der robusten Cofino-Statistik berechnet)

Probe-nr.	Probenart	Ge-biet	Probenahme-Datum	Messzeit (Tage)	Pu-239,240 auf Disk (mBq)	Fwhm (keV)	Atomanzahlen-Verhältnis Pu-240/Pu-239	rel. Standard-abw. (1 σ , %)
NEA-Versenkungsgebiet:								
12470	Actiniaria	B	02.08.1989	27,8	1090	18,8	0,1329	2,4
14346	Psychropotis long.	B	13.03.1992	27,8	81	14,4	0,1760	4,2
14348	Psychropotis long.	B	13.03.1992	27,8	97	17,4	0,1860	6,8
14347	Psychropotis long.	B	13.03.1992	33,6	99	17,5	0,1595	6,3
14319	Holothuroidea	B	13.03.1992	33,6	26	16,1	0,1585	8,3
14509	Actiniaria	B	10.04.1993	34,7	146	24,1	0,1357	6,8
14576	Ophiuroidea	B	15.04.1993	33,6	60	15,8	0,1718	5,1
15998	Actiniaria (large)	B	06.09.1996	26,6	91	13,9	0,1505	3,9
15883	Actinauge abyss	B	05.09.1996	30,5	24	15,4	0,1366	9,2
15884	Actinauge abyss	B	06.09.1996	32,4	41	14,4	0,1476	6,2
12476	Actiniaria	B	27.07.1989	31,3	43	17,8	0,1615	10,1
13121	Psychropotis long.	B	28.07.1990	20,1	63	14,1	0,1724	5,6
<i>rob. Mittelwert (nach Cofino):</i>							0,159	
<i>StdAbw. des Mittelwertes:</i>							0,0046	
							(\square 2,9%)	
Vergleichsgebiete:								
13073	Holothuroidea	A	11.08.1990	31,3	34	16,7	0,1846	7,5
13084	Holothuroidea	P4	20.08.1990	20,1	57	14,1	0,1717	6,2
13928	Actinauge	A	03.04.1992	46,3	17	14,6	0,1189	8,8
13941	Holothuroidea	A	03.04.1992	46,3	25	16,9	0,1535	9,3
16430	Holothuroidea	B-O	13.01.2000	34,9	41	18,7	0,1643	11,2
16435	Holothuroidea	B-O	09.01.2000	34,9	39	17,7	0,1619	9,5
<i>rob. Mittelwert (nach Cofino)</i>							0,166	
<i>StdAbw. des Mittelwertes:</i>							0,0071	
							(\square 4,3%)	

Buesseler und Sholkovitz (1987) erklären dies durch ein einfaches Modell mit einer speziellen Eigenschaft und Auswirkung desjenigen troposphärischen Fallouts, der auf die Kernwaffentests auf der „Nevada Test Site“ (NTS) zurückgeht, die 1951 bis 1958 durchgeführt wurden. Der NTS-Fallout, der am globalen Fallout nur einen kleinen Anteil hat, zeichnet sich jedoch durch zwei Eigenschaften aus:

- a) Sein charakteristisches Atomanzahlenverhältnis Pu-240/Pu-239 ist mit einem Wert von 0,035 deutlich kleiner als das des globalen Fallouts (0,18).
- b) Während die anderen Kernwaffentests überwiegend in einer gewissen Höhe stattfanden, wurden die Tests auf der NTS in Bodennähe durchgeführt. Hierbei wurden Bodensilikate verdampft, die anschließend als kleine inerte Partikel, die die Pu-Isotope trugen, rekondensierten. Die in den Atlantik eingetragenen Partikel führten zu einer geochemischen Separation des NTS-Fallout-Plutoniums (Pu-240/Pu-239=0,035) von dem aus der Stratosphäre eingetragenen Pu aus den anderen Kernwaffenversuchen (Pu-240/Pu-239=0,18), indem sie in der Wassersäule aufgrund der Teilchengröße schneller sedimentierten als das andere Pu. Nähere Hinweise zur unterschiedlichen physikalisch/chemischen Form von globalem Fallout-Plutonium und dem NTS-Fallout-Plutonium findet man bei Buesseler (1997).

Für große Wassertiefen im Nordatlantik ist nach dieser Vorstellung davon auszugehen, dass das Pu aus dem NTS-Fallout sich bereits vollständig im Sediment befindet, während das Pu aus den anderen Kernwaffenversuchen sich noch zu einem beträchtlichen Anteil in der Wassersäule befindet, dies umso mehr, je tiefer die Wassersäule ist. Dies führt dazu, dass im Tiefsee-Sediment der relative Anteil des NTS-Pu am Gesamt-Pu merklich ist höher als z.B. im Boden, wo eine solche „Entmischung“ nicht stattfindet. Der Befund von Buesseler und Sholkovitz (1987), dass das Atomanzahlenverhältnis im Porenwasser solcher Tiefsee-Sedimente zwischen 0,18 und 0,20 lag, zeigt, dass das an den NTS-Partikeln haftende Pu fest gebunden bleibt und nicht in Lösung geht. Bei etwa gleichen Wassertiefen wird man im Atlantik finden, dass mit zunehmender Entfernung von der US-Ostküste die Deposition des NTS-Fallouts abnimmt, der NTS-Anteil des Pu im Sediment also abnimmt und daher das im Sediment beobachtete Verhältnis zunimmt, von etwa 0,09 nahe der US-Ostküste bis herauf zu Werten von 0,15 bzw. 0,16 nordwestlich Spanien/Portugal.

Der von uns in benthischen Organismen im NEA-Versenkungsgebiet B gefundene Wert für das Atomanzahlenverhältnis Pu-240/Pu-239 von 0,159 als auch der entsprechende Wert aus den Vergleichsgebieten, 0,166, stimmt also sehr gut mit den von Buesseler und Sholkovitz bereits 1987 für ein nahes Atlantik-Gebiet veröffentlichten Werten.

Die Abweichung vom Wert des globalen Fallouts, 0,18, kann also mit dem speziellen Einfluss des Fallouts von Tests auf der Nevada Test Site erklärt werden. Ein ursächlicher Zusammenhang mit Auswirkungen von möglichen Freisetzungen aus den radioaktiven Abfall-Fässern ist demnach nicht herzustellen.

Aktivitätsverhältnisse Pu-241/Pu-239,241 in benthischen Organismen aus 1989-1992

Ein weiteres Plutonium-Isotop, das man in die Untersuchungen einbeziehen kann, ist der Beta-Strahler Pu-241 (Hwz 14,35 Jahre). Aus ihm wird durch radioaktiven Zerfall ganz langsam der Alpha-Strahler Am-241 nachgebildet. Da uns ein radiochemisches Verfahren zur Direkt-Bestimmung von Pu-241 nicht zur Verfügung steht, bietet sich die Möglichkeit an, die zur Messung von Pu-238 und Pu-239,240 vor vielen Jahren bereits hergestellten Pu-Alpha-Präparate zur Nachmessung des inzwischen auf diesen Präparaten nachgebildeten Am-241 zu verwenden. Aus dem Am-241 kann dann mit Hilfe des radioaktiven Zerfalls auf das Pu-241 geschlossen werden.

Die Alpha-Peaks von Am-241 und Pu-238 überlagern sich so, dass man sie ohne vorangehenden größeren messtechnischen Aufwand - Messung unter hoher Auflösung, hat aber sehr geringe Nachweiswahrscheinlichkeit zur Folge - mit einfachen Mitteln nicht entfalten kann. Daher muss bei der zweiten Messung, die am besten 5 bis 10 Jahre nach der ersten erfolgt, die Zählrate für die Summe Pu-238 + Am-241 ermittelt werden, von der dann die Zählrate der 1. Messung (Pu-238 allein) abzuziehen ist. Als zusätzliche Erschwernis kommt hinzu, dass die von uns verwendete Pu-242-Tracer-Lösung ebenfalls Pu-241 enthält; der sich daraus durch radioaktiven Zerfall aufbauende Am-241-Beitrag zur Peak-Summe Pu-238 + Am-241 muss ebenfalls abgezogen werden. Bevor man diesen Abzug durchführt, werden alle Zählraten mit Zerfallskorrekturen auf den Startzeitpunkt der 2. Messung bezogen. Da in der Regel die 1. und die 2. Messung auf verschiedenen Detektoren erfolgten, sind die Zählraten der 1. Messung mit dem Verhältnis der Detektornachweiswahrscheinlichkeiten (Messung 2 / Messung 1) auf die Messung des bei der 2. Messung benutzten Detektors zu beziehen. Die Nettozählraten für Pu-242 (Tracer) und Pu-239,240 werden über beide Messungen gemittelt und dabei geprüft, ob sie innerhalb der statistischen Zählunsicherheit übereinstimmen. Zur Durchführung dieser Berechnungen wurde ein Fortran-Programm entwickelt, das im Gegensatz zu einer MS Excel-Anwendung auch die numerischen Berechnungen für das Gesetz zur Fortpflanzung der Messunsicherheiten auszuführen gestattet, wobei die partiellen Ableitungen nach den Parametern numerisch durch einen Differenzenquotienten approximiert werden. In die Berechnungen gingen insgesamt 17 Parameter ein, wovon für 15 Parameter die Messunsicherheiten berücksichtigt wurden (12 Zählraten: 3 Nuklide (je 1 Brutto- und 1 Nulleffektzählrate, je 2 Messungen); 2 Nachweiswahrscheinlichkeiten und das Aktivitätsverhältnis Pu-241/Pu-242 der verwendeten Pu-242-Tracerlösung).

Insgesamt 14 Proben benthischer Organismen der Jahre 1989 bis 1992 wurden für eine Wiederholungsmessung ausgesucht. Diese Messung wurde im Februar/März 2001 durchgeführt. Tabelle 4.1.3 zeigt die Ergebnisse dieser Messungen. Die Daten in der Tabelle wurden bereits nach der Größe des Pu-241/Pu-239,240-Verhältnisses sortiert.

Die Pu-241/Pu-239,240-Verhältnisse aus den Vergleichsgebieten liegen offenbar am unteren Ende des Wertebereiches. Allerdings sind die beiden ersten knapp unter 10 liegenden Werte wegen ihrer zu großen Messunsicherheiten nicht zu verwerfen. Bei 2 Proben treten recht hohe Werte (33 und 54) auf. Dies kann durchaus dahingehend bewertet werden, dass diese Proben in unmittelbarer Nähe von radioaktiven Fässern gelebt haben könnten. Der überwiegende Teil der Proben jedoch weist Messwerte zwischen etwa 13 und 20 auf. Alle Werte wurden auf den 1.1.1962 bezogen, um einen direkten Vergleich mit für den globalen Fallout bekannten Werten des Aktivitätsverhältnisses durchführen zu können.

Verschiedene robuste statische Auswertungen des Datensatzes mit 14 Werten führt zu folgenden Schätzungen des Mittelwertes und seiner Standardabweichung (bezogen auf 1.1.1962):

Cofino-Verfahren:	15,6 ± 0,7
US EPA-Verfahren:	15,8 ± 0,5
AMC 1989-Verfahren:	15,9 ± 0,5
Medianwert:	16

Tab. 4.1.3: Ergebnisse der alpha-spektrometrischen Messungen des Aktivitätsverhältnisses Pu-241/Pu-239,240 in benthischen Organismen aus den Jahren 1989-1992. Bezugsdatum für das Aktivitätsverhältnis: 1.1.1962. Die Daten in der Tabelle sind nach aufsteigendem Aktivitätsverhältnis sortiert. Messzeit der 2. Messung: 20 Tage.

Probe Nr.	Probenart	Gebiet	Probenahme datum	Datum 1. Messung des Pu	Zeitdifferenz bis 2. Messung (a)	Aktivitätsverhältnis Pu-241/Pu239,240	rel. Stdabw (%)
13057	Actinauge abyss.	P5	01.04.1990	19.12.1991	9,2	9,25	41
12487	Holothuroidea	C	03.08.1989	04.05.1990	10,8	9,53	50
12483	Psychropotis long.	C	03.08.1989	27.04.1990	10,8	13,2	5,8
12469	Holothuroidea	B	02.08.1989	04.07.1990	10,6	14,9	13,5
13077	Psychropotis long.	A	11.08.1990	06.04.1993	7,9	14,9	23
13121	Psychropotis long.	B	28.07.1990	09.01.1992	9,1	15,8	8,3
14346	Psychropotis long.	B	13.03.1992	06.04.1993	7,9	15,9	8,4
12465	Psychropotis long.	B	02.08.1989	18.07.1990	10,6	16,1	8,4
14348	Psychropotis long.	B	13.03.1992	06.04.1993	7,9	16,1	7,2
12477	Psychropotis long.	B	27.07.1989	04.04.1990	10,9	16,2	7,9
13128	Actiniaria	B	28.07.1990	23.12.1991	9,2	17,5	22
14576	Ophiuroidea	B	15.04.1993	15.07.1994	6,6	19,5	8,7
12470	Actiniaria	B	02.08.1989	16.02.1990	11,0	33,1	2,7
12475	Asteroidea	B	27.07.1989	18.07.1990	10,6	53,8	6,0

Der weiter oben aus einer Zusammenstellung von Falloutwerten für das Verhältnis Am-241/Pu-239,240 sich ergebende Wert für das auf den 1.1.1962 bezogene Aktivitätsverhältnis Pu-241/Pu-239,240 von 13,8 ist keineswegs sehr genau. Daher kann hier noch nicht auf einen signifikanten Unterschied zu dem in benthischen Organismen gefundenen Wert von 15,6 geschlossen werden.

4.1.2.1.3 Bathypelagische Organismen

Im Untersuchungszeitraum gelangten folgende Anzahlen von Proben des bathypelagischen Nektons (d.h. Fische, die in unmittelbarer Nähe des Meeresbodens, in etwa 4700 m Tiefe gefangen wurden) zur Analyse:

Jahr	größere Grenadierfische: (Macrouridae)	Sonstige:
1996	28	11
1998	38	15
2000	11	2

Die durchaus zahlreichen Grenadierfische wurden bereits an Bord des Schiffes einzeln in Organe zerlegt: in Filet, Rumpf (Skelett mit Kopf), Haut und Leber. Alle diese Proben wurden dann für spätere Untersuchungen im Labor eingefroren. Im Labor wurden die Organproben zunächst verascht, bevor sie gamma-spektrometrisch analysiert wurden.

Die oben unter sonstige aufgeführten Fischproben bestanden im wesentlichen aus kleineren Exemplaren von Fischen (Probenanzahlen in 1998-2000): Macrouridae (Grenadierfisch) (14); Synphobranchidae (Tiefseeaal) (6); Aphyonidae (ähnlich Grenadierfisch) (2); Bathypteroidae (Stelzfisch) (2); Bathysauridae (aalähnlicher Fisch) (1); Cephalopoda (Tintenfisch) (2). Diese Proben wurden als Mischproben behandelt und nicht filetiert, d.h. als Gesamtfischproben analysiert.

Zeitreihen

Wir beschränken uns hier auf die Diskussion des gamma-spektrometrisch bestimmten Cs-137 im Filet der großen Grenadierfische (Macrouridae) sowie in den anderen Proben, die als Gesamtfisch analysiert wurden. Wie schon bei den benthischen Organismen werden die aus früheren Untersuchungen ab 1980 verfügbaren Daten in die Zeitreihen mit einbezogen. Die meisten dieser Daten beziehen sich auf Gesamtfischproben kleinerer Exemplare von Fischen. Bei den Macrouriden wurden ab etwa der zweiten Hälfte der 80er Jahre immer mehr große Exemplare gefangen, so dass von diesen ab 1989 – nach Zerlegung in verschiedene Organe - überwiegend das Filet analysiert wurde. Die Tiefseeaale (Synphobranchidae) wurden als Gesamtfisch analysiert. Cs-137-Meßwerte in den Fischproben werden generell auf die Feuchtmasse bezogen.

Abb. 4.1.8 zeigt die für Cs-137 in Macrouridae und Synphobranchidae erhaltenen Zeitreihen. Darüber hinaus zeigt Tabelle 4.1.4 detailliert die an den größeren Macrouriden, von den das Filet analysiert wurde, bestimmten Kenndaten.

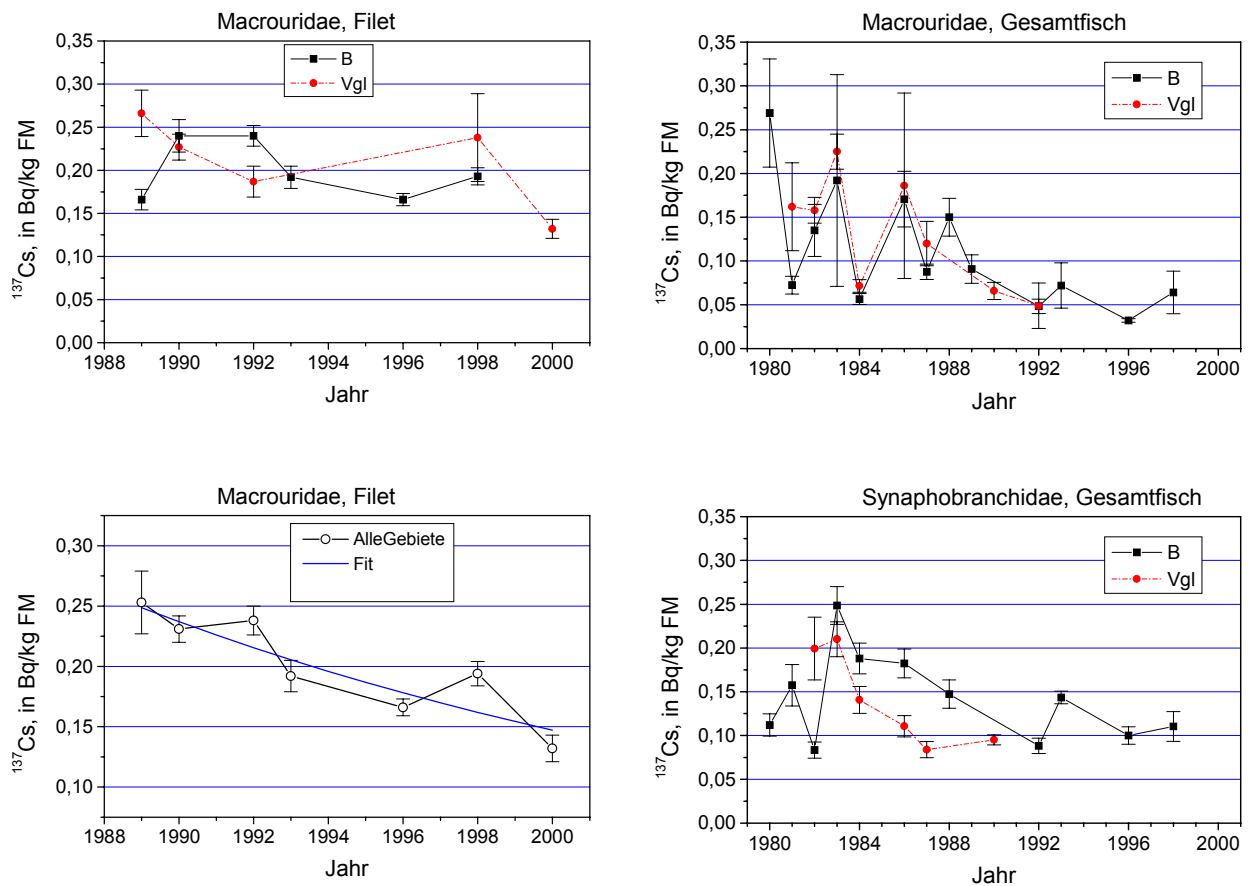


Abb. 4.1.8: Zeitreihen von Cs-137 in Macrouridae und Synphobranchidae im NEA-Versenkungsgebiet B und den zu „Vgl“ zusammengefassten Vergleichsgebieten. Bei Macrouridae (Filet) ergibt sich die linke untere Grafik durch Zusammenfassung der Proben aus dem Versenkungsgebiet B und den Vergleichsgebieten. Die eingezeichnete Fitkurve einer angepassten Exponentialfunktion repräsentiert eine effektive Halbwertszeit von $(14,5 \pm 4,1)$ Jahren.

Tab. 4.1.4: Ergebnisse der gamma-spektrometrischen Untersuchungen im Filet von Macrouridae (*Coryphaenoides sp.*; Grenadierfische)

Jahr	Anzahl Fische	mittlere Fischlänge LT und Bereich cm	mittleres Fischgewicht und Bereich g	mittlere Aktivitätswerte Bq/kg FM		Cs-137-Biokonzentrationfaktor, auf Oberflächenwasser bezogen l/kg
				K-40	Cs-137	
<i>NEA-Versenkungsgebiet (B):</i>						
1989	1	79	2400	52,0 ± 3,6	0,166 ± 0,012	
1990	14	70 (60-75)	1622 (804-2800)	65,1 ± 1,1	0,240 ± 0,019	
1992	32	67 (52-80)	1677 (540-2871)	72,5 ± 1,2	0,240 ± 0,012	
1993	12	77 (50-80)	2465 (1493-3397)	65,3 ± 0,4	0,192 ± 0,013	
1996	28	68 (34-84)	1685 (140-3220)	81,4 ± 1,0	0,166 ± 0,007	
1998	34	64 (45-85)	1229 (350-3300)	86,6 ± 1,0	0,193 ± 0,010	
<i>Vergleichsgebiete:</i>						
1989	8	66 (60-74)	1247 (874-2249)	74,9 ± 1,1	0,266 ± 0,027	
1990	11	54 (45-72)	568 (410-2410)	81,3 ± 1,7	0,227 ± 0,015	
1992	4	69 (60-78)	1660 (953-2465)	71,1 ± 1,2	0,187 ± 0,018	
1998	4	70 (69-80)	1700 (1670-2620)	84,6 ± 1,0	0,238 ± 0,051	
2000	11	71 (66-86)	1908 (1280-3175)	76,5 ± 1,5	0,132 ± 0,011	
<i>alle Gebiete zusammengefasst (*):</i>						
1989	9				0,253 ± 0,026	86
1990	25				0,231 ± 0,011	82
1992	36				0,238 ± 0,012	92
1993	12				0,192 ± 0,013	77
1996	28				0,166 ± 0,007	76
1998	38				0,194 ± 0,010	96
2000	11				0,132 ± 0,011	71

Der Vergleich zwischen dem NEA-Versenkungsgebiet B und anderen Gebieten zeigt für Cs-137 bei den Macrouriden, sowohl bei den Filet-Proben der größeren Fische als auch bei Gesamtfisch-Proben der kleineren Fische, keinen signifikanten Unterschied. Bei den Filet-Proben ist erst dann eine zeitliche Abnahme erkennbar, wenn die Proben aus Gebiet B und den Vergleichsgebieten zusammengefasst (Tabelle 4.1.4, *) werden. Bei der längeren Zeitreihe der Gesamtfisch-Proben der Macrouriden ist eine zeitliche Abnahme gut erkennbar. Wie wir das generell von Fischen wissen, ist die Cs-137-Aktivität im Filet etwas höher als in den Gesamtfischproben, speziell auch durch die dazugehörigen unterschiedlichen Größen der Tiere bedingt. Bei den Tiefseeaalen (Synphobranchidae) ist ebenfalls eine zeitliche Abnahme erkennbar. Deren Aktivitätswerte liegen geringfügig über denen der Gesamtfisch-Macrouridae.

Von Pentreath (1983) wurde an 7 Exemplaren von *Coryphaenoides Armatus* (Nematonurus), die im Juni 1980 im NEA-Versenkungsgebiet mit beköderten Fallen in der Tiefe gefangen wurden, eine mittlere Cs-137-Konzentration von 0,31 Bq/kg Feuchtmasse bestimmt. Auch bei 4 aus Vergleichsgebieten gefangenen Exemplaren wurde ein mittlerer Wert von 0,30 gefunden. Mit Hilfe der an unsere Zeitreihe des Macrouriden-Filets angepassten Exponentialfunktion können wir für 1980 einen Wert von 0,38 Bq/kg FM zurück extrapolieren. Für die sicher etwas unsichere Methode dieser Extrapolation ist das aber noch eine brauchbare Übereinstimmung.

Im übrigen würde man die in den Tiefsee-Macrouriden (Filet) gemessenen Cs-137-Werte auch für im oberflächennahen Wasser lebenden Fische des Nordatlantiks erwarten. Diese

kann man bei einer Cs-137-Konzentration im Oberflächenwasser von etwa 2 mBq/l (=0,002 Bq/l) und einem Biokonzentrationsfaktor von 100 (IAEA, 1985) abschätzen zu $0,002 \times 100$ Bq/kg = 0,2 Bq/kg.

Wenn man Biokonzentrationsfaktoren für Tiefseefische bestimmen wollte, würde man zu deren Berechnung zunächst die Aktivitätskonzentrationen des Wasserkörpers zugrunde legen, in dem die Fische leben. Mit den in Kap. 4.1.2.2 noch darzustellenden Cs-137-Aktivitätskonzentrationen des Tiefenwassers (Größenordnung 10 m über dem Sediment), die bei etwa 0,05 mBq/L oder niedriger liegen, käme man auf Konzentrationsfaktoren, die 4000 oder deutlich mehr betragen. Dies ist ein für den marinen Bereich viel zu hoher Konzentrationsfaktor, der in keinem anderen marinen Bereich beobachtet wurde. Die in den Macrouridae gefundene Cs-137-Aktivität lässt sich eigentlich nur so erklären, dass das Futter der Fische aus biologischem Material besteht, das aus der obersten Wasserschicht stammt, wo die Cs-137-Konzentration im Wasser deutlich höher ist als in der großen Tiefe. Damit liegt es nahe, den Biokonzentrationsfaktor durch Bezug auf die Aktivitätskonzentration im Oberflächenwasser zu berechnen. Zu diesem Zweck wurden für die Jahre 1989 bis 2000 aus einer an unsere Cs-137-Messdaten der Wasseroberfläche angepassten Exponentialfunktion die für das jeweilige Jahr erforderlichen Cs-137-Konzentrationen interpoliert. Die damit jahrweise berechneten Cs-137-Konzentrationsfaktoren sind in der letzten Spalte in Tabelle 4.1.4 aufgeführt. Die sieben zwischen 71 und 96 liegenden Konzentrationsfaktoren lassen sich zu einem Mittelwert von (83 ± 9) zusammenfassen. Dieser Konzentrationsfaktor ist geringfügig kleiner als der sonst im marinen Bereich verwendete Wert von 100 für Cs-137.

Dieser Befund legt die These nahe, dass man in herkömmlicher Weise die Cs-137-Aktivität von in etwa 5000 m Tiefe lebenden Tiefseefischen, zumindest aber der Macrouriden, so abschätzen kann, als lebten diese, wie z.B. in der Nordsee oder in der Barentssee, in nur vergleichsweise geringen Wassertiefen. Ein entscheidender Unterschied zu Nordsee und Barentssee ist jedoch, dass bei den Tiefseefischen der Rücktransport der von ihnen aufgenommenen Aktivität zur Oberfläche praktisch unterbunden ist, auch der kommerziellen Fischerei sind diese Fische nicht zugänglich.

Bei den insgesamt zu erwartenden sehr niedrigen Pu- und Am-Aktivitäten in diesen Tiefseefischen wird im Skelett die Aktivitätskonzentration höher als im Filet sein, weswegen deren Analyse vorgezogen wurde. In Tabelle 4.1.5 sind die Ergebnisse von alpha-spektrometrischen Analysen weniger Poolproben vom Skelett (einschließlich des Kopfes) von Macrouriden dargestellt. Die Aktivitätskonzentration von Pu-239,240 im Skelett ist um rund das 100fache niedriger als die entsprechende Aktivitätskonzentration von Cs-137 im Filet. Bei der bisher geringen Anzahl von Analysen ist noch nicht auf einen deutlichen Unterschied zwischen dem NEA-Versenkungsgebiet B und dem Vergleichsgebiet Ost-B zu schließen. Bis auf einen Wert von 0,092 aus dem Gebiet B liegen alle anderen Werte des Aktivitätsverhältnisses Pu-238/Pu-239,240 zwischen 0,041 und 0,047, der Mittelwert von 0,044 stimmt sehr gut mit dem im Benthos der Vergleichsgebiete ermittelten Wert überein. Ob dieses Aktivitätsverhältnis im Gebiet B tatsächlich niedriger als dort in den benthischen Organismen (0,072) ist, kann erst nach weiteren Analysen geklärt werden. Da wir hier große Fische betrachten, ist wegen ihrer Mobilität unbedingt damit zu rechnen, dass sie sich auch außerhalb des Versenkungsgebietes aufhalten und dort Nahrung aufnehmen können. Damit können in einzelnen Fischen auch durchaus „unerwartete“ Verhältnisse auftreten.

Das im Skelett gefundene Aktivitätsverhältnis Am-241/Pu-239,240 zeigt bis auf einen sehr niedrigen Wert noch keinen erkennbaren Unterschied zwischen den Gebieten. Die zwischen 0,6 und 1,5 liegenden Werte (im Mittel etwa 0,85) sind deutlich höher als für den globalen Fallout bekannte Werte zwischen 0,3 und 0,4. Sie sind ebenfalls höher als die von IAEA/MEL 1992 im Tiefenwasser gemessenen Verhältnisse zwischen 0,22 und 0,35 (Baxter et al., 1995). Die Am-241/Pu-239,240-Verhältnisse reichen eher an die im Benthos gefundenen Werte zwischen etwa 1 und 2 heran.

Tab. 4.1.5: Ergebnisse von alpha-spektrometrischen Untersuchungen in Poolproben des Skelettes (inkl. Kopf) von Macrouridae (*Coryphaenoides sp.*; Grenadierfische). (Aktivitätswerte in mBq/kg FM)

Probe- nr	Anzahl Fische	Station	Pu-238 ±%		Pu-239,240 ±% (1σ)		Am-241 ±% (1σ)		Pu-238/ Pu-239,240 ±% (1σ)		Am-241/ Pu-239,240 ±% (1σ)	
<i>Probenahme Aug./Sept. 1996, NEA-Gebiet B:</i>												
16143	3	51	0,069	18	1,47	4,5	0,0407	4,3	0,047	19	0,028	4,5
16144	4	87	0,234	8,6	2,55	4,1	2,35	3,3	0,092	9,5	0,922	5,3
16145	2	49	0,017	42	0,395	6,4	0,241	8,5	0,043	42	0,610	11
<i>Probenahme Jan. 2000, Gebiet Ost-B:</i>												
16725	2	6	0,054	17	1,36	4,3	0,875	11	0,040	18	0,643	12
16726	3	12	0,047	18	1,0	4,7	0,582	9	0,047	19	0,582	10
16727	2	16	0,064	16	1,56	4,4	2,27	7,6	0,041	17	1,455	8,8
16728	2	22+28	0,080	16	1,7	4,5	1,51	14	0,047	17	0,888	15

Für zwei im Jahre 1985 im Versenkungsgebiet gefangene Fische fanden Kershaw et al. (1989) im Skelett von 2 Fischen (*Coryphaenoides*) Aktivitätsverhältnisse von etwa 0,025 für Pu-238/Pu-239,240 und 0,67 bzw. 2,4 für Am-241/Pu-239,240. Die Pu-239,240-Werte lagen bei 2,5 bzw. 3,0 mBq/kg FM. Die Pu-238/Pu-239,240 sind eher niedrig im Vergleich zu den von uns im Benthos gefundenen Werten (0,07). Das Am-241/Pu-239,240 liegt dagegen im Bereich der von uns im Benthos gefundenen Werte. Im Filet dieser beiden Fische fanden die Autoren dagegen höhere Werte für Pu-238/Pu-239,240: 0,13 bzw. 0,17; Am-241/Pu-239,240 lag bei 0,52 bzw. 0,77. Dies unterstreicht, dass die Fisch-Kompartimente Filet und Skelett hinsichtlich der Anreicherung von Transuranen unterschiedliche Eigenschaften haben: die biologischen Halbwertszeiten im Filet sind deutlich kleiner zu erwarten als diejenigen im Skelett. Damit hat die Aufnahme von Transuranen im Skelett eine über einen größeren Zeitraum integrierende Wirkung, so dass die Aktivitätsgehalte im Skelett erheblich langsamer auf Veränderungen der Konzentrationen in der Nahrung reagieren als im Filet.

4.1.2.1.4 Effektive und ökologische Halbwertszeiten

Die in den vorangegangenen Abschnitten dargestellten Zeitreihen der Aktivitäten verschiedener Radionuklide in den Tiefsee-Organismen wurden daraufhin untersucht, ob sich daraus ökologische Halbwertszeiten ableiten lassen. Man versucht, an eine Zeitreihe der Aktivitätskonzentration $A(t_i - t_0)$ eine einfache Exponentialfunktion anzupassen:

$$A(t_i - t_0) = A_0 \cdot \exp(-B \cdot (t_i - t_0)),$$

worin $(t_i - t_0)$ die auf den Anfangszeitpunkt t_0 bezogenen Zeitdifferenzen (in Jahren) sind. Aus der nichtlinearen Anpassung, die man mit oder ohne Wichtung mit den Standardabweichungen der Jahresmittelwerte durchführen kann, erhält man die Parameter A_0 und B . B (in der Einheit 1/Jahr) stellt hierbei die effektive Rate dar, mit der die Aktivität in der Zeitreihe abnimmt. Aus dieser ergibt sich die effektive Halbwertszeit:

$$T_{\text{eff}} = \frac{\ln(2)}{B}$$

Die effektive Rate B der Abnahme besteht aus der Summe zweier Raten, der durch den radioaktiven Zerfall des Radionuklids bedingten physikalischen Zerfallsrate, λ_{ph} (1/Jahr), und der ökologischen Rate λ_{eco} (1/Jahr), die durch die beteiligten ökologischen (nicht-radioaktiven) Prozesse bedingt ist:

$$B = \lambda_{ph} + \lambda_{eco}$$

Hieraus lässt sich die ökologische Halbwertszeit (in Jahren) ableiten:

$$T_{eco} = \frac{\ln(2)}{B - \lambda_{ph}}$$

Im folgenden wird auf die für Cs-137 ermittelten effektiven und ökologischen Halbwertszeiten eingegangen. Die Anpassung der Exponentialfunktion (Fit) wurde jeweils mit und ohne Wichtung mit den Standardabweichungen durchgeführt. War der für die effektive Rate B erhaltene Unterschied zwischen beiden Varianten zu groß, war Vorsicht geboten. Es wurden nur „brauchbare“ Fälle herausgesucht. So war es z.B. nicht möglich, eine brauchbare Anpassung an die Cs-137-Zeitreihe in den Actinaria hinzubekommen. Es sei hier erwähnt, dass auch Anpassungen an die Zeitreihen für Sr-90 und Pu-239,240 versucht wurden. In der überwiegenden Zahl der Fälle wurden aber keine „brauchbaren“ Halbwertszeiten erhalten, zumeist fehlten einige Jahre darin, so dass diese Radionuklide hier nicht weiter betrachtet werden.

In der Tabelle 4.1.6 sind die für Cs-137 erhaltenen effektiven und ökologischen Halbwertszeiten der verwertbaren Zeitreihen dargestellt. Im Vergleich zwischen gewichteter und ungewichteter Anpassung werden letztendlich die aus dem gewichteten Fit ermittelten Parameter verwendet, da in der Regel die aus der Anpassung erhaltene Unsicherheit des Parameters B im ungewichteten Fall größer war. Da bei den in Frage kommenden Zeitreihen der Aktivitätskonzentrationen signifikante Unterschiede zwischen den Gebieten nicht gefunden wurden, werden Parameter B verwendet, die für die zu „Benthos (alle)“ zusammengefassten Proben erhalten wurden.

Für das Cs-137 im Filet der Macrouridae, die in rund 4700 m Tiefe gefangen wurden, ergibt sich eine effektive Halbwertszeit von $(14,5 \pm 4,1)$ Jahren, die ökologische Halbwertszeit beträgt entsprechend (28 ± 8) Jahre. Da wir bereits in einem vorangehenden Abschnitt im Zusammenhang mit dem Konzentrationsfaktor das Verhalten des Cs-137 in diesen Tiefseefischen in enge Beziehung zur Cs-137-Aktivitätskonzentration gesetzt hatten, bietet es sich an, die effektive Halbwertszeit des Cs-137 im Oberflächenwasser heranzuziehen. Aus unseren eigenen Oberflächenwasser-Messwerten von Cs-137 (Jahre 1990, 1996, 1998 u. 2000) lassen sich folgende effektive und ökologische Halbwertszeiten ableiten:

$$\begin{array}{ll} \text{gewichtete Anpassung : } T_{eff} = (16,2 \pm 1,1) \text{ Jahre;} & T_{eco} = (34,9 \pm 2,3) \text{ Jahre} \\ \text{ungewichtete Anpassung: } T_{eff} = (15,9 \pm 1,0) \text{ Jahre;} & T_{eco} = (33,8 \pm 2,0) \text{ Jahre} \end{array}$$

Die geringe Abweichung der effektiven Halbwertszeiten zwischen Macrouriden-Filet und Oberflächenwasser ist aufgrund der dazugehörigen Unsicherheiten nicht als signifikant einzustufen. Dies legt den Schluss nahe, dass neben dem Konzentrationsfaktor der Macrouriden auch der zeitliche Verlauf des Cs-137 in den Macrouridae, über das von der Oberflächenschicht herabsinkende Futter, von demjenigen im Oberflächenwasser gesteuert ist. Die biologische Halbwertszeit, mit der die Macrouridae das Cs-137 über Futter aufnehmen und auch wieder ausscheiden, spielt hierbei keine Rolle, da hinsichtlich des zeitlichen Verhaltens der Aktivitätsaufnahme durch den Fisch der Fall des Gleichgewichtes vorliegt.

Tab. 4.1.6: Effektive und ökologische Halbwertszeiten für Cs-137 in Biota, die aus Anpassungen einer Exponentialfunktion an die Zeitreihen erhalten wurden.

Gebiete: NEA-Versenkungsgebiet B, Vergleichsgebiete Vgl, sowie alle Gebiete zusammengefasst; Hinweis: auch die Fische (Macrouridae) stammen aus einer Tiefe von etwa 4700 m; angegebene Parameterunsicherheiten: 1σ

Probenart	Gebiet		Anzahl Jahre	T_{eff} (a)	T_{eff} (a)	T_{eco} (a)
				gew.Fit	ungew.Fit	aus gew.Fit
Holothuroidea	B	ab 1980	14	$7,6 \pm 0,5$	$9,8 \pm 1,7$	$10,1 \pm 0,7$
Holothuroidea	Vgl	ab 1980	14	$11,4 \pm 1,9$	$9,1 \pm 2,3$	$18,2 \pm 3,1$
Holothuroidea	alle	ab 1980	16	$7,2 \pm 0,5$	$8,8 \pm 1,1$	$9,5 \pm 0,7$
Asteroidea	B	ab 1980	12	$5,9 \pm 1,1$	$6,3 \pm 1,4$	$7,3 \pm 1,3$
Asteroidea	Vgl	ab 1980	9	$7,0 \pm 2,5$	---	$9,1 \pm 3,3$
Asteroidea	alle	ab 1980	15	$5,0 \pm 2,1$	$7,4 \pm 4,4$	$6,0 \pm 2,5$
Benthos (alle)	B	ab 1980	14	$10,4 \pm 1,1$	$9,6 \pm 2,3$	$15,8 \pm 1,7$
Benthos (alle)	Vgl	ab 1980	14	$8,0 \pm 0,9$	$8,1 \pm 2,0$	$10,8 \pm 1,4$
Benthos (alle)	alle	ab 1980	16	$8,4 \pm 0,8$	$9,5 \pm 2,4$	$11,5 \pm 1,2$
Macrouridae, Gesamtfisch	B	ab 1980	13	$11,2 \pm 3,1$	$9,0 \pm 3,6$	$17,9 \pm 4,9$
Macrouridae, Gesamtfisch	Vgl	ab 1980	9	---	---	
Macrouridae, Gesamtfisch	alle	ab 1980	14	$9,1 \pm 1,9$	$13,1 \pm 5,8$	$13,0 \pm 2,8$
Macrouridae, Filet	B	ab 1990	5	$14,9 \pm 7,6$	$17,1 \pm 7,8$	30 ± 15
Macrouridae, Filet	Vgl	ab 1989	5	$12,9 \pm 3,0$	---	$22,6 \pm 5,3$
Macrouridae, Filet	alle	ab 1989	6	$14,5 \pm 4,1$	$14,5 \pm 3,3$	$28,0 \pm 7,9$

In den als Gesamtfisch analysierten kleineren Exemplaren der Macrouriden wurden eine kürzere effektive und ökologische Halbwertszeit gefunden, ($9,1 \pm 1,9$) Jahre, bzw. ($13,0 \pm 2,8$) Jahre, vgl. auch die Zeitreihe in Abb. 4.1.8. Dass diese Halbwertszeiten kleiner als beim Filet der Macrouriden ausfallen, könnte einen Effekt der Probenahme als Ursache haben. Ab etwa Mitte der 80er Jahre wurden in zunehmendem Maße größere Exemplare gefangen, die ab 1989 dann als einzelne Fische filetiert und untersucht wurden. Wir können davon ausgehen, dass größere Tiere auch eine im Mittel etwas höhere Cs-137-Konzentration haben als kleine Exemplare. In der Cs-137-Zeitreihe für die Gesamtfisch-Macrouriden wurden also bis etwa Ende der 80er Jahre größere Tiere, danach zunehmend kleinere Tiere zu Poolproben zusammengefasst. Dies begünstigt die Beobachtung einer – scheinbar – kleineren effektiven Halbwertszeit.

Bei den auf dem Sediment lebenden benthischen Organismen wurden die Holothuroidea (Seegurken), die Asteroidea (Seesterne) und alle zu „Benthos (alle)“ zusammengefassten benthischen Proben ausgewertet. Es ergaben sich durchweg kleinere effektive und ökologische Halbwertszeiten als bei den Fischen (Macrouridae). Diese ökologischen Halbwertszeiten werden vor allem durch die Prozesse bestimmt, die im Sediment zu einer Reduktion der im Oberflächenbereich vorherrschenden Sediment-Aktivitätskonzentration führen. Es sind dies vor allem: a) die langsam ablaufende Diffusion des Radionuklides in tiefere Schichten hinein, b) die schneller ablaufende durch im Sediment lebende Mikroorganismen verursachte Bioturbation, sowie c) die spontane Verfrachtung von Aktivität von der Oberfläche bis in eine Tiefe von einigen cm durch im Sediment lebende Würmer, vor allem Sipunculida, was die stärkste Form der Bioturbation darstellt. Letztere Form der Bioturbation führt zu den in Sedimentkernen des Atlantiks oft zu beobachtenden „sub-surface maxima“ von Cs-137, aber auch Pu-239,240, bei Sediment-Tiefen von etwa 3 bis 8 cm

(Smith et al., 1986/87, Smith et al., 1989). Hierzu wird auch auf das Kapitel 4.1.2.3 verwiesen. Eine weitere Möglichkeit der Reduktion der Aktivitätskonzentration in der Oberflächenschicht des Sedimentes besteht in der Remobilisierung und/oder „Redissolution“ des Radionuklids, wodurch Aktivität wieder in das Wasser zurückgeführt wird.

Es kann von uns derzeit nicht beurteilt werden, ob die in den benthischen Organismen beobachteten kürzeren ökologischen Cs-137-Halbwertszeiten von etwa 6 bis 12 Jahren durch die zuvor genannten Prozesse erklärt werden können, da uns das dafür erforderliche modell-bezogene Rüstzeug nicht zur Verfügung steht.

4.1.2.2 Wasser

4.1.2.2.1 Vorbemerkungen

Bei bereits in früheren Jahren bis 1993 vom IFÖ im NEA-Versenkungsgebiet (B) und in Vergleichsgebieten durchgeführten Analysen von großvolumigen Meerwasserproben ergaben sich ab etwa Ende der 80er Jahre signifikant höhere Werte des Aktivitätsverhältnisses Pu-238/Pu-239,240 im Versenkungsgebiet B als in dem auf dem selben Breitengrad weiter östlich liegenden Vergleichsgebiet „Ost-B“. Die wichtigen bis 1993 erhaltenen Meßergebnisse für Cs-137, Sr-90 und die Plutonium-Isotope sind diesem Bericht als Anhang A3 beigefügt.

Ab 1992 wurde an den Forschungsfahrten auch das Marine Environment Laboratory (MEL) der IAEA in Monaco beteiligt. MEL-Mitarbeiter nahmen im wesentlichen eigene Wasserproben, welche in Monaco neben Cs-137, Sr-90 und Pu-Isotopen z.T. auch auf C-14 und I-129 analysiert wurden. Das MEL war speziell daran interessiert, dies wurde auch so realisiert, mit einer Reihe von Meerwasserproben möglichst komplette Vertikalprofile in der Wassersäule zu erhalten. Vom MEL sind deren Meßergebnisse bereits verschiedentlich veröffentlicht worden (zum Verhältnis Pu-238/Pu-239,240: Baxter et al., 1995 (Proben von 1992), Livingston und Povinec, 2000 (Proben von 1996); zu C-14 und/oder I-129: Baxter et al., 1995, Povinec et al., 2000; Povinec et al., 2001). Die vom MEL für das Vertikalprofil aus dem Versenkungsgebiet B der Fahrt in 1992 veröffentlichten Ergebnisse (Baxter et al., 1995) bestätigten unsere Meßergebnisse hinsichtlich des erhöhten Aktivitätsverhältnisses Pu-238/Pu-239,240 im Versenkungsgebiet B.

Ab 1996 schickten wir Dr. G. Raisbeck (Centre de Spectrométrie de Masse et de Spectrométrie Nuclaire, Orsay Campus, Frankreich) kleinvolumige Meerwasserproben (Tiefenwasser) zur Untersuchung auf I-129. Diese Ergebnisse wurden noch nicht veröffentlicht.

Ab 1996 bekam im Rahmen dieses Forschungsvorhabens das Institut für Kernchemie der Uni Mainz (Dr. Trautmann) den Auftrag, die mit der Alpha-Spektrometrie an Wasserproben nicht auflösbaren Pu-Isotope Pu-239 und Pu-240 zu messen und das Verhältnis Pu-238/Pu-239 zu bestimmen. Darüber hinaus sollte die Uni Mainz Analysen von Tc-99 an einer bestimmten Anzahl von Meerwasserproben durchführen. Über diese mit der RIMS-Methode durchgeführten Spezialmessungen wird im übernächsten Abschnitt berichtet.

4.1.2.2.2 Messungen durch BFAFi

A) Pu-Messungen

1996 und 1998 wurden Wasserproben, aber auch Biotaprogen, überwiegend auf Stationen im NEA-Versenkungsgebiet (B) genommen. Um mehr Proben auch aus dem auf demselben Breitengrad weiter östlich davon gelegenen Gebiet, mit „Ost-B“ bezeichnet, zu bekommen,

wurde im Januar 2000 eine ergänzende kürzere Forschungsfahrt in dieses Vergleichsgebiet durchgeführt. Im Gegensatz zu den bis 1993 ausschließlich im Tiefenwasser (ca. 10 m über dem Meeresboden) erfolgten Messungen der Pu-Konzentrationen wurden ab 1996 großvolumige Wasserproben aus verschiedenen Tiefen genommen. Die Probenahmetiefen werden im folgenden als Höhe über dem Meeresboden angegeben. Lediglich die als von der Oberfläche stammend gekennzeichneten Proben kommen aus einer Wassertiefe von nur wenigen Metern. Die Volumina der Proben lagen insgesamt zwischen etwa 750 und 1000 Litern, wofür jeweils zwei Probenahmeholer mit den 400 l- bzw. 500 l-Wasserschöpfern erforderlich waren. In Tabelle 4.1.7 sind die von 1996 bis 2000 erhaltenen Meßwerte der Plutonium-Aktivitätskonzentrationen dargestellt. Die für das Aktivitätsverhältnis angegebenen Meßunsicherheiten sind zum Teil kleiner als man aus der Fehlerfortpflanzung aus den Meßunsicherheiten für Pu-238 und Pu-239,240 erhalten würde. Dies liegt daran, dass letzteres nicht gemacht wurde, da die Meßunsicherheit dieses Aktivitätsverhältnisses sich allein aus den Meßunsicherheiten der beiden Nettozählraten zusammensetzt; weitere Unsicherheiten, wie z.B. diejenige der zugesetzten Traceraktivität gehen daher nicht ein.

Um die erhaltenen Meßwerte der Aktivitätskonzentrationen von Pu-238 und Pu-239,240 sowie das Aktivitätsverhältnis Pu-238/Pu-239,240 besser interpretieren zu können, wurden sie in Abbildung 4.1.9 in drei Grafiken dargestellt. Da wir im Zeitraum 1996 bis 2000 nicht mit signifikanten zeitlichen Änderungen der Meßgrößen rechnen, wurde die Zeitabhängigkeit dabei weggelassen, d.h., die Meßwerte aller 3 Jahre einbezogen. Lediglich die Unterscheidung zwischen den Stationen des Gebietes B (B1, B2, B3) und Ost-B ist hierbei von Interesse.

In früheren Jahren hatten wir das Aktivitätsverhältnis Pu-238/Pu-239,240 als Hauptindikator für Unterschiede zwischen dem NEA-Versenkungsgebiet B und dem Vergleichsgebiet Ost-B angesehen. Bei Pu-239,240 waren dagegen Unterschiede nicht so augenfällig. Die in Abb. 4.1.9 dargestellte Grafik über das Aktivitätsverhältnis bestätigt, dass im Vergleichsgebiet Ost-B deutlich niedrigere Werte als in den anderen Gebieten gefunden wurden. Bis 100 m über dem Meeresboden lag dort das Verhältnis sogar knapp unter 0,03, einem Wert, der nach Kapitel 4.1.2.1 sehr gut mit dem für globalen Fallout für 1998 zu erwartenden Wert von 0,032 übereinstimmt. In den Gebieten B1, B2 und B3 ist insgesamt ein höheres Aktivitätsverhältnis festzustellen, wobei die Meßwerte aber zwischen ca. 0,035 bis 0,07 streuen.

Die Grafik für Pu-239,240 in Abb. 4.1.9 zeigt, dass kaum ein Unterschied zwischen dem Vergleichsgebiet Ost-B und den 3 Gebieten im Versenkungsgebiet besteht. Augenfällig ist hier, dass Pu-239,240 offenbar eine besondere Schichtung in der Wassersäule über dem Meeresboden zeigt. Die Aktivitätskonzentrationen der 150 m-Schicht liegen in den drei B-Gebieten zwischen den Werten der 100 m-Schicht (dort niedrigere Werte) und der 50 m-Schicht (dort höhere Werte). Ein B3-Konzentrationswert aus der Tiefe 25 m über dem Meeresboden zeigt den höchsten Wert von 10 µBq/l.

Bei der Grafik zum Aktivitätsverhältnis kann man diese Schichtung, jedoch in umgekehrter Reihenfolge, wiederfinden. Dies, sowie der Umstand, dass bei Pu-239,240 der Unterschied zwischen dem Vergleichsgebiet und dem Versenkungsgebiet kaum ausgeprägt ist, läßt vermuten, dass der entsprechende beim Aktivitätsverhältnis Pu-238/Pu-239,240 sehr wohl beobachtete Unterschied hauptsächlich auf die Konzentrationen des Pu-238 zurückzuführen sein muß. Die Pu-238-Grafik in Abb. 4.1.9 bestätigt dies hervorragend in zweierlei Weise: a) die Pu-238-Konzentration ist in Ost-B rund um das 2fache kleiner als in den B-Gebieten, b) die Pu-238-Konzentration zeigt in den Gebieten B1, B2 und B3 kaum Unterschiede. Daraus folgt, dass die beim Aktivitätsverhältnis Pu-238/Pu-239,240 beobachtete Streuung innerhalb der Gebiete B1, B2 und B3 überwiegend aus der entsprechenden Streuung der Pu-239,240-Konzentration in diesen drei Gebieten resultiert, weniger aus der Streuung der Pu-238-Werte.

Um diesen Befund deutlicher herauszuarbeiten, wurde für alle 3 Grafiken der Abb. 4.1.9 eine (robuste, ungewichtete) Mittelung über jeweils alle Proben der Tiefen 25 m bis 250 m über dem Meeresboden durchgeführt. Das Ergebnis ist in Tabelle 4.1.8 dargestellt.

Tab. 4.1.7: Ergebnisse der im Meerwasser an großvolumigen Proben alpha-spektrometrisch bestimmten Aktivitätskonzentrationen der Plutoniumisotope sowie des Aktivitätsverhältnisses Pu-238/Pu-239,240; Messungen durch BFAFi

Probe-Nr.	Datum Probenahme	Gebiet	Station	Probenahmetiefe über Meeresgrund	Volumen (l)	Chem. Ausb. (%)	Pu-238 (µBq / l)	Pu-239,240 (µBq / l)	Pu-238 / Pu-239,240
Walther-Herwig-III Fahrt Nr. 175 (1996):									
15353	17.08.1996	Ost-B	13+14	50 m	996	75,3	0,226 ± 10%	7,81 ± 3,4%	0,0290 ± 10%
15358	26.08.1996	B1	56	Oberfl.: 6 m (MP)	1000	64,6	0,0998 ± 20%	1,52 ± 5,2%	0,0657 ± 20%
15354	19.08.1996	B1	20-23	50 m (MP)	945	65,0	0,284 ± 11%	8,32 ± 3,4%	0,0341 ± 11%
15355	21.08.1996	B1	30+31	100 m	900	66,2	0,372 ± 9,5%	6,40 ± 3,7%	0,0581 ± 9,2%
15356	24.08.1996	B1	40+41	150 m	963	75,6	0,424 ± 8,0%	7,81 ± 3,4%	0,0543 ± 7,6%
15357	25.08.1996	B2	46+47	50 m	959	57,2	0,435 ± 9,2%	9,35 ± 3,4%	0,0465 ± 8,9%
15359	02.09.1996	B2	64+65	100 m	989	74,8	0,445 ± 8,7%	6,28 ± 3,6%	0,0708 ± 8,4%
15360	03.09.1996	B2	72+75	150 m	941	77,9	0,410 ± 8,9%	7,53 ± 3,6%	0,0544 ± 8,6%
15361	05.09.1996	B3	79+80	50 m	981	77,9	0,352 ± 9,4%	9,80 ± 3,4%	0,0359 ± 9,0%
15362	07.09.1996	B3	89+90	100 m	813	74,0	0,398 ± 10%	5,95 ± 3,8%	0,0668 ± 10%
15363	08.09.1996	B3	93+94	150 m	743	76,5	0,396 ± 10%	6,83 ± 3,8%	0,0580 ± 10%
Walther-Herwig-III Fahrt Nr. 198 (1998):									
15867	09.10.1998	Ost-B	54-57, 60+61	25 m (MP)	801	67,8	0,142 ± 19%	4,95 ± 2,4%	0,0288 ± 19%
15864	02.09.1998	B3	26	Oberfl.: 6 m	801	76,8	0,0759 ± 26%	1,50 ± 4,4%	0,0506 ± 27%
15862	29.08.1998	B3	2-6,8	25 m (MP)	800	73,8	0,642 ± 7,7%	10,1 ± 1,9%	0,0638 ± 8,0%
15863	31.08.1998	B3	16+17	100 m	793	67,9	0,520 ± 9,5%	9,47 ± 2,1%	0,0549 ± 9,7%
15865	08.09.1998	B3	38+39	250 m	777	61,2	0,424 ± 9,4%	7,29 ± 2,1%	0,0582 ± 9,7%
15866	07.09.1998	B3	43+44	500 m	763	72,0	0,308 ± 10%	6,96 ± 2,0%	0,0443 ± 11%
Walther-Herwig-III Fahrt Nr. 213 (2000):									
16356	08.01.2000	Ost-B	2+3	100 m	807				
16357	09.01.2000	Ost-B	9+10	250 m	733				
16375	durch Glasbruch: Mischung der Proben #1) 16356 and 16357				1540	119,91	0,074 ± 13%	2,64 ± 3,8%	0,0280 ± 13%
16358	11.01.2000	Ost-B	17+18	500 m	803	80,32	0,204 ± 13%	5,23 ± 4,0%	0,0391 ± 14%
16359	12.01.2000	Ost-B	27	Oberfl.	830	76,31	0,302 ± 10%	6,32 ± 3,9%	0,0478 ± 11%

Die relativen 1-sigma-Unsicherheiten stellen Gesamtunsicherheiten dar.

Die Tiefen über Meeresgrund - sie werden vom Meeresboden aus berechnet - sind nur „ungefähre“ Werte!

(MP): Mischprobe

#1: nur das Verhältnis Pu-238/Pu-239,240 wird als aussagekräftig angenommen

Ost-B: 46°00'N 13°00'W

B1: 46°05'N 17°10'W

B2: 45°55'N 17°10'W

B3: 46°05'N 16°40'W

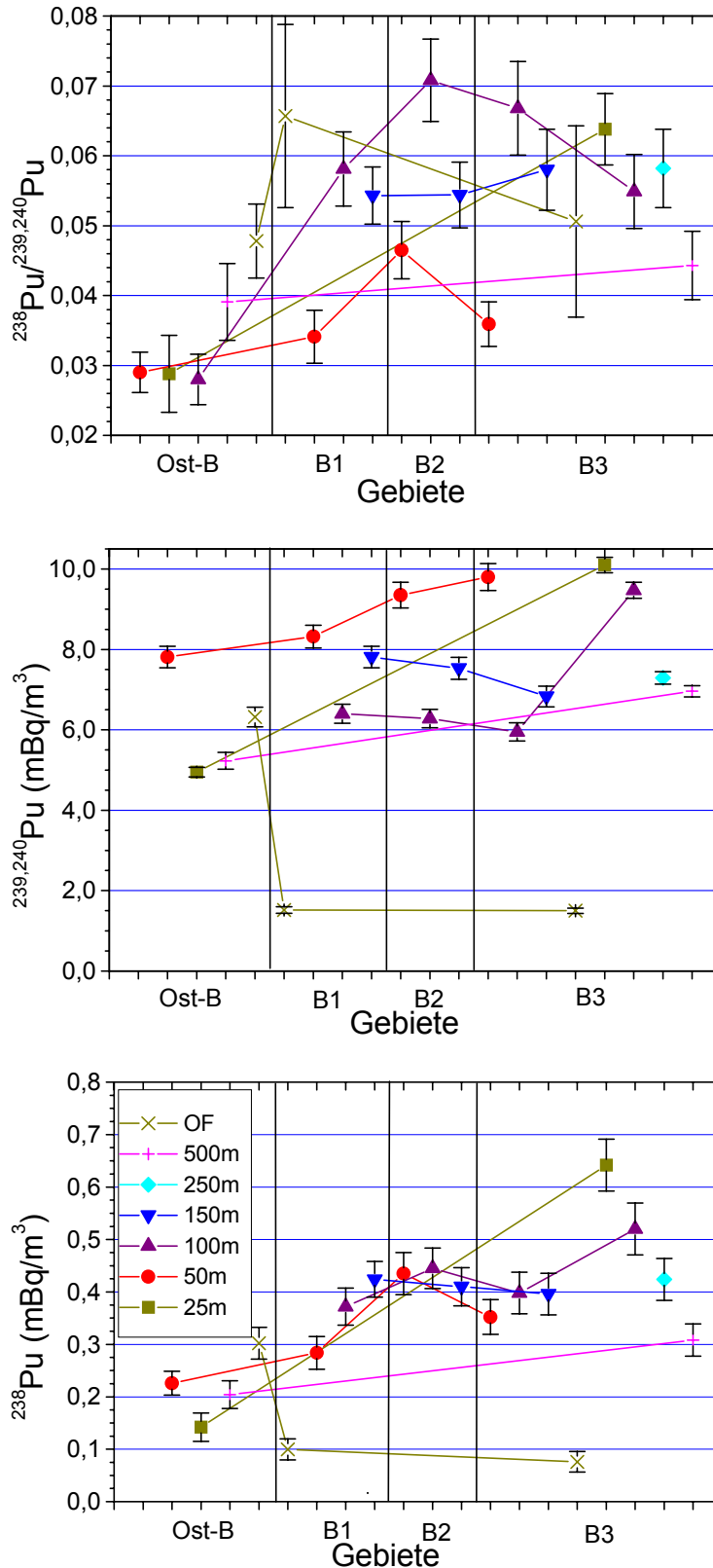


Abb. 4.1.9: Gebietsabhängige Darstellung der Plutonium-Aktivitätskonzentrationen und des Verhältnisses Pu-238/Pu-239,240, ohne Unterscheidung nach Jahren. Alle „Höhenangaben“ werden vom Meeresboden aus gemessen, lediglich „OF“ kennzeichnet die Wasseroberfläche. Meßpunkte gleicher Höhe über dem Meeresboden sind durch Linien miteinander verbunden. Fehlerbalken: 1σ-Standardabweichungen. Die Legende ist identisch für die 3 Grafiken.

Tab. 4.1.8: Über die Jahre 1996, 1998 u. 2000 sowie über alle Probenahmetiefen bis maximal 250 m über dem Meeresgrund gemittelte Werte der Plutonium-Aktivitätskonzentrationen und des Aktivitätsverhältnisses Pu-238/Pu-239,240

Gebiet	Pu-238 μBq/l	Pu-239,240 μBq/l	Pu-238/Pu-239,240
Ost-B	0,18 ± 30%	6,4 ± 30%	0,029 ± 1%
B1	0,36 ± 16%	7,6 ± 8,1%	0,054 ± 9,3%
B2	0,43 ± 2,7%	7,7 ± 18%	0,057 ± 16%
B3	0,42 ± 3,6%	8,3 ± 14%	0,059 ± 6,2%
(B1,B2,B3)	0,41 ± 3,6%	7,9 ± 9,2%	0,057 ± 5,2%

Demnach ist im Versenkungsgebiet B (B1, B2, B3) die Pu-238-Aktivitätskonzentration um etwa das 2fache größer als im Vergleichsgebiet, während der entsprechende Faktor für Pu-239,240 im Mittel nur etwa 1,2 beträgt. Damit ist die beim Aktivitätsverhältnis Pu-238/Pu-239,240 beobachtete Erhöhung um etwa den Faktor 2 fast vollständig auf das Pu-238 allein zurückzuführen. Es sei hier angemerkt, dass der Faktor 2 sich auf den Zeitraum 1996 bis 2000 bezieht. Anfang der 90er Jahre waren von uns für das Gebiet B bis um das 3- oder 4fache gegenüber dem Vergleichsgebiet Ost-B erhöhte Verhältnisse Pu-238/Pu-239,240 beobachtet worden, auch vom MEL bei der Untersuchung ihrer Tiefenwasserproben aus dem Jahre 1992 (Baxter et al., 1995).

Bei zwei im NEA-Versenkungsgebiet genommenen Oberflächenproben lagen die Aktivitätskonzentrationen von Pu-238 und Pu-239,240 deutlich unter denen der Tiefenwasserproben (vgl. Abb. 4.1.9, Tab. 4.1.7), während sich die entsprechenden Konzentrationen im Gebiet Ost-B von denen im Tiefenwasser kaum unterschieden. Das Verhältnis Pu-238/Pu-239,240 hingegen zeigte keinen signifikanten Unterschied zwischen den Gebieten. Zwei aus der Schicht 500 m über Meeresboden genommene Proben, je eine in den Gebieten B3 und Ost-B zeigten bei allen 3 Meßgrößen keinen deutlichen Unterschied untereinander, jedoch etwas niedrigere Werte als in den jeweiligen tieferen Wasserschichten.

Von einigen älteren, noch vorhandenen Alpha-Präparaten aus Pu-Analysen von Proben aus den Jahren 1988, 1990 und 1992 wurden in 2001 Wiederholungsmessungen im Hinblick auf das Nachwachsen von Am-241 durch radioaktiven Zerfall des damals elektrochemisch mit abgeschiedenen Betastrahlers Pu-241 durchgeführt (vgl. auch den entsprechenden Abschnitt im Kapitel über Biota). Da die auf den Präparaten abgeschiedenen Pu-239,240-Aktivitäten insgesamt unter 10 mBq lagen, also niedriger als bei den Benthosproben, ergaben sich nur für insgesamt drei der Proben ermittelte Werte für das Aktivitätsverhältnis Pu-241/Pu-239,240, die als nachgewiesen betrachtet werden konnten. Diese sind in der Tabelle 4.1.9 dargestellt. Zwar sind die Werte von dem für globalen Fallout zu erwartenden Wert von knapp 14 (vgl. entsprechenden Abschnitt im Kapitel über Biota) angesichts der noch großen Meßunsicherheiten nicht sehr verschieden. Für eine Beurteilung würde man bei diesen Meßunsicherheiten allerdings eine deutlich größere Anzahl von Messungen benötigen, so daß die drei Meßwerte nicht weiter bewertet werden sollen. Es ist geplant, von diesen Proben mit wenigen Jahren Abstand nochmals Wiederholungsmessungen durchzuführen.

Tab. 4.1.9: Ergebnisse der alpha-spektrometrischen Messungen des Aktivitätsverhältnisses Pu-241/Pu-239,240 in alten Meerwasserproben. Bezugsdatum für das Aktivitätsverhältnis: 1.1.1962. Zweite Messung (je 23 Tage lang) im Jan./Febr. 2001.

Probe-nr.	Gebiet	Probenahme datum	Datum 1. Messung des Pu	Aktivitätsverhältnis Pu-241/Pu-239,240	rel. Stdabw (%)
11772	B	30.03.1988	29.06.1988	14,8	24
11773	B	02.04.1988	18.07.1988	16,4	19
13001	B	02.08.1990	30.11.1990	23,4	25

Da die im übernächsten Abschnitt zu besprechenden Spezialmessungen des Atomanzahlenverhältnisses Pu-240/Pu-239 im Meerwasser keine eindeutigen Schlußfolgerungen zulassen, kann eine Bewertung der Resultate für Pu-Isotope im Meerwasser bereits hier vorgenommen werden. **Die von 1996 bis 2000 durchgeführten Untersuchungen haben den in früheren Jahren bereits festgestellten Befund bestätigt, dass das im NEA-Versenkungsgebiet (B) das Aktivitätsverhältnis Pu-238/Pu-239,240 im Tiefenwasser höher ist als im Vergleichsgebiet Ost-B, allerdings ist die Erhöhung jetzt (Faktor 2) weniger deutlich als damals (Faktor 3-4).** Es konnte eindeutig festgestellt werden, daß der jetzige Faktor 2 (im Tiefenwasser) praktisch vollständig durch den etwa 2fachen Unterschied der Aktivitätskonzentration von Pu-238 zwischen dem Versenkungsgebiet B und dem Vergleichsgebiet Ost-B verursacht wird. Die Aktivitätskonzentration von Pu-239,240 hingegen ist im Mittel im Tiefenwasser des Versenkungsgebietes nur etwa 20% höher als im Gebiet Ost-B. Allerdings zeigten die Pu-239,240-Meßwerte ein auffälliges Verhalten in den verschiedenen untersuchten Schichten über dem Meeresboden: die höchsten Konzentrationen wurden in den 25 und 50 m-Schichten (über dem Meeresboden) gefunden, während sie in der 100 m-Schicht niedriger als in der 150 m-Schicht waren.

Es ist also allein das Pu-238 im Tiefenwasser für den Unterschied zwischen Versenkungs- und Vergleichsgebiet verantwortlich. Dies widerspricht nicht den bei der Untersuchung im Benthos gefundenen Resultaten. Dort wurde gezeigt, dass das Aktivitätsverhältnis Pu-238/Pu-239,240 im Versenkungsgebiet etwa 1,6fach über dem aus den Vergleichsgebieten lag. Alle anderen dort diskutierten Hinweise auf Pu-239, Pu-240 und Pu-241 in den benthischen Organismen ergaben keine Hinweise auf signifikante Abweichungen (bzw. nicht erklärbare Abweichungen) von den für den globalen Fallout erwarteten jeweiligen Verhältnissen Pu-240/Pu-239 und Pu-241/Pu-239,240. Also kann auch beim Benthos davon ausgegangen werden, dass der gefundene Unterschied des Verhältnisses Pu-238/Pu-239,240 zwischen Versenkungs- und Vergleichsgebiet nur vom Pu-238 ausgeht.

Nimmt man an, dass dieses Pu-238 auf zwischenzeitlich stattgefundenen Freisetzungen aus den im Versenkungsgebiet liegenden Fässern mit radioaktivem Abfall zurückgeht, wäre eigentlich zu erwarten, dass man für Pu-238, vom Meeresboden aus in höhere Schichten der Wassersäule gehend, durch Diffusion bedingt eine Abnahme seiner Aktivitätskonzentration findet. Dies ist aber nach Abb. 4.1.9 nicht der Fall.

Nimmt man an, dass das Pu-238 aus den Fässern stammt, ist auch eine Erhöhung von Pu-239,240 zu erwarten, da wir davon ausgehen, dass in den Fässern vermutlich mehr Pu-239,240 als Pu-238 enthalten ist. Dies belegen unsere früheren alpha-spektrometrischen Messungen der Pu-Isotope an solchen Tiefseebiota der 80er Jahre, die zusammen mit radioaktiven Abfallfässern an Bord der „Walther Herwig“ gekommen waren. Bei solchen Proben wurde ein maximales Verhältnis Pu-238/Pu-239,240 von 1 gefunden, während die meisten Werte deutlich darunter lagen, aber auch deutlich oberhalb von etwa 0,2. Wir

können die Existenz charakteristischer Aktivitätsverhältnisse Pu-238/Pu-239,240 verschiedener Quellen nutzen, um daraus Verhältnisse von Aktivitätsinventaren zu berechnen, was uns in Umkehrung daraus auch einen Rückschluss auf das Aktivitätsverhältnis der „unbekannten“ Quelle „versenkte Radioaktivität“ erlaubt. Im Anhang A5 werden Formeln für zwei Varianten dargestellt, die uns diesen Rückschluss gestatten. Dies wird hier in verkürzter Form wiedergegeben.

Es seien in der Tiefsee: R_F , R_D und R_S die Aktivitätsverhältnisse Pu-238/Pu-239,240 für Fallout, für versenkte Radioaktivität (Dumping) und für das gesamte im Versenkungsgebiet B vorhandene Pu-Inventar; $f_9 = I_{S,9} / I_{F,9}$ das Verhältnis der Pu-239,240-Inventare aus gesamtem Inventar und dem Fallout-Inventar; $f_8 = I_{S,8} / I_{F,8}$ das Verhältnis der Pu-238-Inventare aus gesamtem Inventar und dem Fallout-Inventar. Für f_9 und f_8 entnehmen wir unseren Messungen (Tab. 4.1.8) die Werte $f_9 = 7,9/6,4 = 1,234$ und $f_8 = 0,41/0,18 = 2,28$. Für R_F verwenden wir aus der Literatur (Pentreath, 1988) den auf 1998 bezogenen Wert von 0,032. Für R_S entnehmen wir Tabelle 4.1.8 den Wert 0,057. Nach Anhang A5 können wir das Pu-238/Pu-239,240-Aktivitätsverhältnis R_D auf zweierlei Weise abschätzen:

$$R_D = \frac{R_F \cdot (f_8 - 1)}{(f_9 - 1)} = \frac{0,032 \cdot (2,28 - 1)}{(1,234 - 1)} = 0,175 ,$$

oder

$$R_D = \frac{R_S \cdot f_9 - R_F}{f_9 - 1} = \frac{0,057 \cdot 1,234 - 0,032}{1,234 - 1} = 0,164 .$$

Damit haben wir abgeschätzt, dass das – wie wir vermuten - aus der Quelle „versenkte Radioaktivität“ freigesetzte Plutonium ein Pu-238/Pu-239,240-Verhältnis von etwa 0,17 hat. Dies liegt in der Tat in dem von uns als realistisch angesehenen Bereich für dieses Verhältnis: bei unseren früheren Biota-Messungen (80er Jahre) hatten wir dafür Einzelwerte bis 1,0 gefunden. Zum Vergleich können dazu auch frühere Sellafield-Ableitungen in die Irische See dienen, für die dieses Verhältnis bei etwa 0,2 lag (Kanisch et al., 2000). Dieser Beitrag aus der Versenkung führte also in der Tiefsee im Untersuchungszeitraum 1996 bis 2000 zu einer nur etwa 20%igen Aufstockung des vorhandenen Fallout-Plutonium-Inventars. Dies hat für die Tiefsee eine nur geringe Bedeutung.

Wenn der Beitrag von Pu-238 bei unseren Messungen als herausragend gegenüber Pu-239,240 angesehen werden muss, kommt man nicht umhin, auch die Frage zu stellen, ob dieses Pu-238 im Versenkungsgebiet nicht durch Vermischung mit atlantischen Wassermassen von der Südhalbkugel, welches durch großräumigen Transport in dieses Gebiet gelangte, zustande gekommen sein könnte. Auf der Südhalbkugel liegt jedenfalls als Beitrag vom SNAP-9A-Satelliten-Absturz (1964, nur Pu-238 wurde freigesetzt) ein höheres Verhältnis Pu-238/Pu-239,240 von etwa 0,18 vor (Bourlat et al., 1996). Diese Hypothese kann aber zum jetzigen Zeitpunkt nicht abschließend geklärt werden. Auf dem – wie auch immer langen - Transportweg in den Nordostatlantik würde das Verhältnis 0,18, durch Verdünnung bedingt, auch deutlich abnehmen. Zudem bleibt dann offen, warum unser Vergleichsgebiet „Ost-B“ davon nicht betroffen ist.

B) Cs-137 u. Sr-90

In der Tabelle 4.1.10 sind die in den Jahren 1996 bis 2000 erhaltenen Ergebnisse von gamma-spektrometrischen Messungen des Cs-137 sowie des mit radiochemischen Verfahren analysierten Betastrahlers Sr-90 zusammengestellt. Hinsichtlich der Tiefenangaben sind die am Anfang des Abschnittes über unsere Pu-Messungen im

Meerwasser gegebenen Anmerkungen zu beachten. Die Sr-90-Proben des Jahres 1996 wurden dankenswerterweise von Dr. J. Herrmann vom Bundesamt für Seeschifffahrt und Hydrographie (BSH) analysiert.

Für beide Radionuklide, Cs-137 und Sr-90, ist festzustellen, daß die Aktivitätskonzentrationen in den Tiefenwasserproben so niedrig sind, daß in einigen Fällen nur Werte unterhalb der Nachweisgrenze gefunden wurden, selbst bei den Gammamessungen des Cs-137, die z.T. mit Meßzeiten von 2 bis 3 Wochen durchgeführt wurden. Trotzdem scheint die Cs-137-Konzentration im Tiefenwasser des NEA-Versenkungsgebietes (B) etwa doppelt so hoch wie im Vergleichsgebiet Ost-B zu sein. Dies gilt offenbar auch für Sr-90. Das Verhältnis Cs-137/Sr-90 liegt im Tiefenwasser aller Gebiete, abweichend vom Fallout-Wert 1,5 (Nyffeler et al., 1996), bei näherungsweise dem Wert von 1. Die im Gebiet Ost-B 1998 in der Schicht 100 m über dem Meeresboden gefundenen höheren, nahezu identischen Werte von Cs-137 und Sr-90 legen den Schluß nahe, dass diese Probe wohl nicht aus der angegebenen Tiefe stammt, sondern von weiter oben.

Für die wenigen Wasserproben von der Meeresoberfläche wurde deren Cs-137-Konzentration zu einer Zeitreihe zusammengestellt mit dem Ziel, aus der Abnahme über die Zeit eine effektive Halbwertszeit ableiten zu können. Dazu wurden auch 2 Werte vom Oberflächenwasser aus dem Jahre 1990 hinzugenommen (vgl. Tabellen im Anhang A3). Das Ergebnis ist in Abb. 4.1.10 grafisch dargestellt.

Aus den Cs-137-Messwerten der Jahre 1990, 1996, 1998 u. 2000 lassen sich folgende effektive und ökologische Halbwertszeiten ableiten (vgl. Kap. 4.1.2.1), wobei die Meßunsicherheiten bei der Least-squares-Anpassung als statistische Gewichte berücksichtigt bzw. nicht berücksichtigt wurden:

$$\begin{array}{ll} \text{gewichtete Anpassung : } T_{\text{eff}} = (16,2 \pm 1,1) \text{ Jahre;} & T_{\text{eco}} = (34,9 \pm 2,3) \text{ Jahre} \\ \text{ungewichtete Anpassung: } T_{\text{eff}} = (15,9 \pm 1,0) \text{ Jahre;} & T_{\text{eco}} = (33,8 \pm 2,0) \text{ Jahre} \end{array}$$

Die zur effektiven Halbwertszeit von 16,2 Jahre (gewichtete Anpassung) gehörende Kurve wurde in Abb. 4.1.10 mit eingezeichnet. Von Bourlat et al. (1996) wurde für Oberflächenwasser sowohl des Atlantiks als auch des Pazifiks eine effektive Halbwertszeit von 14 Jahren angegeben. Dies korrespondiert mit einer ökologischen Halbwertszeit von etwa 25 Jahren, welche den Zeitverlauf des Verlusts von stabilen (nicht-radioaktiven) Caesium-Atomen aus der Oberflächenschicht durch vertikale und andere Transportvorgänge charakterisiert.

Tab. 4.1.10: Ergebnisse der im Meerwasser an großvolumigen Proben bestimmten Aktivitätskonzentrationen von Cs-137 und Sr-90 (Messungen durch BFAFi; die Sr-90-Analysen der Proben von 1996 wurden vom BSH, Dr. J. Herrmann, durchgeführt.)

Probe-Nr.	Datum Probenahme	Gebiet	Station	Probenahmetiefe über Meeresgrund	Cs-137		Sr-90		
					Volumen (l)	Konzentration (mBq / l)	Probe-Nr.	Volumen (l)	Konzentration (mBq / l)
Walther-Herwig-III Fahrt Nr. 175 (1996):									
15188	17.08.1996	Ost-B	15	50 m	437,5	0,022±27%		420	0,040 ± 18%
15198	26.08.1996	B1	56	Oberfl.: 6 m (MP)	448	2,11±7%		440	1,30 ±1,8%
15189	19.08.1996	B1	20-23	50 m (MP)#1	459,5	1,35 ±7%		440	1,10 ±2,5%
15190	21.08.1996	B1	32	100 m	453	<0,070		330	0,060 ±15%
15191	24.08.1996	B1	44	150 m	475	0,043±18%		420	0,050 ±12%
15192	25.08.1996	B2	48	50 m	433	0,044±20%		440	0,070 ±12%
15193	02.09.1996	B2	66	100 m #2	453	(2,14 ±7%)			nicht analys.
15194	02.09.1996	B2	67	150 m	442	0,057±13%			nicht analys.
15195	05.09.1996	B3	78	50 m	454	0,049 ±20%		440	0,040 ±18%
15197	08.09.1996	B3	92	100 m	372	0,041 ±25%			nicht analys.
15196	05.09.1996	B3	81	150 m	430	0,048±19%			nicht analys.
Walther-Herwig-III Fahrt Nr. 198 (1998):									
15851	09.09.1998	Ost-B	54-57, 60+61	25 m (MP)	583	0,023 ±28%	16106	479	0,026±122%
15848	02.09.1998	B3	26	Oberfl.: 6 m	602	2,03±7%	16104	280	1,36 ±6%
15850	05.09.1998	B3	41+42	500 m	598	0,044 ±15%	16105	540	0,051±40%
15849	03.09.1998	B3	30+31	250 m	575	0,077 ±12%	16107	585	0,13±19%
15847	30.08.1998	B3	11+12	100 m	598	0,086 ±9%	16103	596	0,084±20%
15846	29.08.1998	B3	2-6, 8	25 m (MP)	596	0,058 ±13%	16102	545	0,067±22%
Walther-Herwig-III Fahrt Nr. 213 (2000):									
16364	12.01.2000	Ost-B	26/27	Oberfl.	586	1,88 ±7%	16419	265	1,36±3,5%
16363	11.01.2000	Ost-B	19/20	500 m	532	<0,040	16418	280	0,063±33%
16362	09.01.2000	Ost-B	7/8	250 m	504	<0,026	16416	276	<0,19
16361	08.01.2000	Ost-B	4/5	100 m	497	0,732±7%	16415	264	0,754±8,5%
16360	12.01.2000	Ost-B	23/34	20m	517	<0,019	16417	279	<0,26

Die relativen 1-sigma-Unsicherheiten stellen Gesamtunsicherheiten dar.

Die Tiefen über Meeresgrund sind nur „ungefähre“ Werte!

(MP): Mischprobe

#1: Probe enthält offenbar zum Teil Oberflächenwasser

#2: Deckel des Schöpfers nicht ordentlich geschlossen: Probe stammt praktisch von der Oberfläche.

Ost-B: 46°00'N 13°00'W

B1: 46°05'N 17°10'W

B2: 45°55'N 17°10'W

B3: 46°05'N 16°40'W

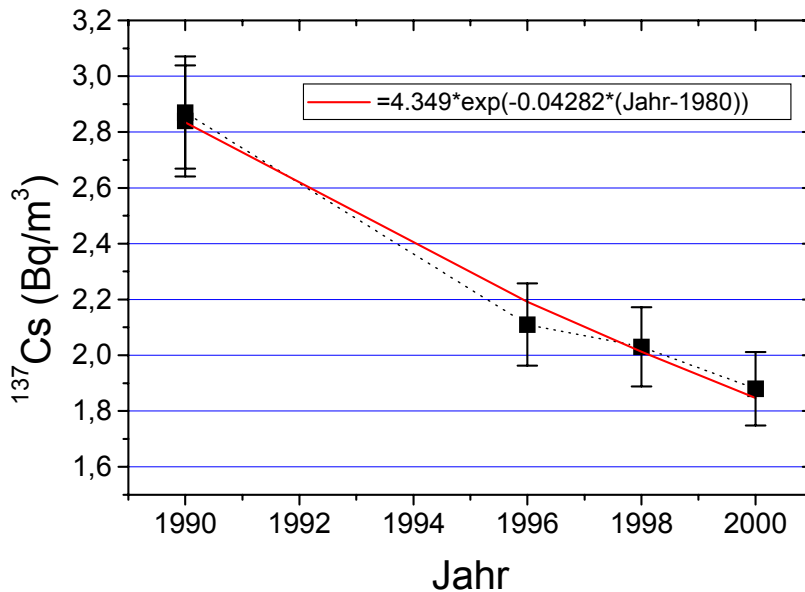


Abb. 4.1.10: Zeitreihe der Cs-137-Konzentration im Oberflächenwasser (keine Unterscheidung von Gebieten). Eingezeichnet ist die angepasste Exponentialfunktion.

Dahlgaard et al. (1995) haben speziell für den Nordostatlantik längere effektive Halbwertszeiten von 19 und 21 Jahren für Sr-90 und Cs-137 angegeben, die mit ökologischen Halbwertszeiten von 55 und 72 Jahren korrespondieren.

Die 3 von uns im Zeitraum 1996 bis 2000 im Oberflächenwasser erhaltenen Verhältnisse Cs-137/Sr-90, mit Werten von 1,62, 1,49 und 1,38, ergeben mit dem Mittelwert von 1,50 genau den für den Fallout angenommenen Wert.

4.1.2.2.3 Spezialmessungen durch die Uni Mainz

A) Pu-Messungen

Das Institut für Kernchemie der Universität Mainz bekam den Auftrag, mit Hilfe der dort installierten und bereits erprobten, sehr aufwendigen Methode der Resonanzionisationsmassenspektrometrie (RIMS) das Atomanzahlverhältnis Pu-240/Pu-239 an einer Reihe von Wasserproben der Jahre 1996, 1998 und 2000 zu bestimmen. Das verwendete Verfahren wurde im Kapitel 3.4.5 bereits näher beschrieben. Von den etwa 30 Litern, die der Uni Mainz von jeder Wasserprobe zur Verfügung gestellt wurden, wurden jeweils etwa 10 Liter für eine RIMS-Analyse eingesetzt. Bei diesem Verfahren werden nur die Pu-Isotope mit sehr langen Halbwertszeiten nachgewiesen. Daher werden Pu-238 und Pu-241 hierbei, zumindest bei den niedrigen Aktivitäten in unseren Meerwasserproben, nicht erfasst.

Die von der Uni Mainz zur Verfügung gestellten Einzelberichte sind im Anhang A4 aufgeführt. Die bei den RIMS-Messungen erhaltenen Ergebnisse sind in der Tabelle 4.1.11 zusammen mit den bei der konventionellen Alphaspektrometrie durch die BFAFi erhaltenen Werten für die Aktivitätskonzentrationen von Pu-Isotope Pu-238 und Pu-239,240 dargestellt. Die Möglichkeit zum Vergleich mit den von der BFAFi bestimmten Pu-239,240-Konzentrationen ist dadurch gegeben, dass von der Uni Mainz die Werte für Pu-240 und für Pu-239 zusätzlich als Aktivitätskonzentrationen angegeben wurden. In Tabelle 4.1.11 sind alle Werte der für die 3 Jahre durchgeführten Messungen aufgeführt.

Tab. 4.1.11: Vergleichende Zusammenstellung der Ergebnisse der an Meerwasserproben der Jahre 1996, 1998 und 2000 von BFAFi und der Uni Mainz durchgeführten Plutonium-Analysen

Station	Gebiet	Tiefe über Grund	Pu-238/ Pu-239,240 (Bq / Bq)	Pu-239,240 (µBq / l)	Pu-239,240 (µBq / l)	Verhältnis der Pu-239,240- Werte	Pu-240/Pu-239 (Atomanz.- Verhältnis)
			BFAFi	BFAFi	Uni Mainz	Mainz/ BFAFi	Uni Mainz
Proben von 1996:							
13	Ost-B	50 m	0,0290 ± 10%	7,81 ± 1,5%	16,4 ± 38%	2,1	0,32 ± 14%
20-23	B1	50 m	0,0341 ± 11%	8,32 ± 1,7%	15,7 ± 36%	1,9	0,11 ± 17%
40	B1	150 m	0,0543 ± 7,6%	7,81 ± 1,6%	32,6 ± 36%	4,2	0,044 ± 25%
56	B1	Oberfläche, Mischpr.	0,0657 ± 20%	1,52 ± 4,3%	21,6 ± 43%	14,0	<0,065
46	B2	50 m	0,0465 ± 8,9%	9,35 ± 1,7%	29,5 ± 33%	3,1	0,051 ± 15%
64	B2	100 m	0,0708 ± 8,4%	6,28 ± 2,0%	23,0 ± 41%	3,7	0,066 ± 42%
72	B2	150 m	0,0544 ± 8,6%	7,53 ± 1,9%	26,0 ± 37%	3,5	0,020 ± 60%
79	B3	50 m	0,0359 ± 9,0%	9,80 ± 1,5%	17,7 ± 32%	1,8	0,087 ± 7%
88	B3	Deckel lose!	0,0668 ± 10%	5,95 ± 2,3%	17,0 ± 38%	2,8	0,034 ± 50%
93	B3	150 m	0,0580 ± 10%	6,83 ± 2,3%	11,4 ± 33%	1,7	0,090 ± 10%
Proben von 1998:							
61	Ost-B	25 m	0,0288 ± 19%	4,95 ± 2,4%	5,1 ± 16%	1,0	0,096 ± 69%
8	B3	25 m	0,0638 ± 8%	10,1 ± 1,9%	6,4 ± 13%	0,6	0,165 ± 42%
12	B3	100 m	0,0549 ± 9,7%	9,47 ± 2,1%	6,7 ± 9%	0,7	0,090 ± 39%
31	B3	250 m	0,0582 ± 9,7%	7,29 ± 2,1%	4,2 ± 12%	0,6	0,153 ± 39%
42	B3	500 m	0,0443 ± 11%	6,96 ± 2,0%	14,6 ± 8%	2,1	0,059 ± 43%
26	B3	Oberfläche	0,0506 ± 27%	1,50 ± 4,4%	2,0 ± 25%	1,3	0,39 ± 54%
<i>robust. Mittelwert (Cofino):</i>							0,12 ± 69%
Proben von 2000:							
23A	Ost-B	20 m	k. Messung	k. Messung	A: 7,86 ± 9%		A: 0,129 ± 25%
23B					B: 10,3 ± 9%		B: 0,129 ± 24%
2+3 / 5	Ost-B	100 m	k. Messung	k. Messung	6,77 ± 24%		0,257 ± 49%
9+10/ 8	Ost-B	250 m	k. Messung	k. Messung	5,55 ± 15%		0,191 ± 33%
17+18	Ost-B	500 m	0,0391 ± 14%	5,23 ± 4,0%	7,83 ± 12%	1,5	0,167 ± 30%
27A	Ost-B	Oberfläche	0,0478 ± 11%	6,32 ± 3,9%	A: 5,6 ± 10%	0,9	A: 0,085 ± 35%
27B	Ost-B	Oberfläche	0,0478 ± 11%	6,32 ± 3,9%	B: 8,6 ± 9%	1,4	B: 0,122 ± 24%
<i>robust. Mittelwert (Cofino):</i>							0,14 ± 39%

Die relativen 1-sigma-Unsicherheiten stellen Gesamtunsicherheiten dar.

Die Tiefen über Meeresgrund sind nur „ungefähre“ Werte!

Ost-B: 46°00'N 13°00'W

B1: 46°05'N 17°10'W

B2: 45°55'N 17°10'W

B3: 46°05'N 16°40'W

Die für das Atomanzahlverhältnis Pu-240/Pu-239 der Proben von 1996 gefundenen Werte liegen, bis auf wenige Ausnahmen, unterhalb von 0,1 und weisen vergleichsweise große Messunsicherheiten auf. Solche Werte sind erheblich niedriger als der für den globalen Fallout bekannte Wert von 0,18 (vgl. Kap. 4.1.2.1). Werte um etwa 0,05 charakterisieren eigentlich waffenfähiges Plutonium. Wir gehen jedoch nicht davon aus, dass wir dieses im

Atlantik erwarten können. Die – nach unserer Ansicht – zu niedrigen Werte für Pu-240/Pu-239 gehen einher mit dem Befund, dass die entsprechenden Messwerte für die Aktivitätskonzentration von Pu-239,240 mehrfach höher als die entsprechenden von BFAFi gemessenen sind. Dies könnte darauf deuten, dass die in Mainz gefundenen Werte für Pu-239 zu hoch sein könnten; multipliziert man die für das Verhältnis Pu-240/Pu-239 angeführten Werte mit diesem „Überhöhungsfaktor“ (vorletzte Spalte in Tab. 4.1.11), rückt das derart korrigierte Pu-240/Pu-239 schon dichter an den für Fallout bekannten Wert von 0,18 heran.

Bei den später analysierten Proben der Jahre 1998 und 2000 ist die Übereinstimmung zwischen dem alphaspektrometrisch bestimmten (BFAFi) und den mit RIMS gemessenen Aktivitätskonzentrationen Pu-239,240 schon erheblich besser. Im Mittel wurden höhere Werte für das Verhältnis Pu-240/Pu-239 erreicht, 0,12 für 1998 und 0,14 für 2000, diese liegen aber noch deutlich unterhalb des Fallout-Wertes von 0,18. Insgesamt sind aber die Messunsicherheiten für Pu-240/Pu-239 noch viel zu hoch, als dass gesicherte Aussagen aus den Messergebnissen entnommen werden können. Nach Aussage der Uni Mainz waren für Pu-240 die Zählereignisse überwiegend zu gering, um ein sinnvolles Isotopenverhältnis Pu-240:Pu-239 angeben zu können.

Zum Test der Methoden wurde eine Meerwasserprobe aus der Irischen See (Referenzprobe IAEA-381) sowohl von der BFAFi als auch von der Uni Mainz untersucht. Die Pu-Konzentrationen im Wasser der Irischen See war hoch genug, dass wir, bei einem Probenvolumen von 10 Liter, das im Kapitel 3.4.4 beschriebene Verfahren zur alphaspektrometrischen Trennung von Pu-240 und Pu-239 einsetzen konnten. Wir verwendeten 10 Liter für die Analyse, die Uni Mainz das 1000fach kleinere Volumen von 10 ml. Die erhaltenen Ergebnisse sind in Tabelle 4.1.12 zusammengestellt. Der von der BFAFi mit höher auflösender Alpha-Spektrometrie erhaltene Wert für Pu-240/Pu-239 ist bereits im Kap. 3.4.4 bewertet worden. Mit der RIMS-Methode fand die Uni Mainz im Vergleich zu den IAEA-Referenzwerten einen niedrigeren Wert für Pu-240/Pu-239, die Aktivitätskonzentrationen von Pu-239, Pu-240 und Pu-239,240 stimmten angesichts der Messunsicherheiten, auch derjenigen der Referenzwerte, überein. Bei den kürzerlebigen Pu-Isotopen Pu-238 und Pu-241, die mit dem RIMS-Verfahren schwieriger zu bestimmen sind, wurden offenbar zu hohe Werte gefunden; möglicherweise war der Untergrund dafür noch zu hoch. Das langlebige Pu-Isotop Pu-242 wurde von der Uni Mainz im Wasser der Irischen See ebenfalls gefunden, möglicherweise aber mit zu hohem Wert; 1 Messwert für den IAEA-Referenzwert ist aber ebenfalls nicht ausreichend für einen sinnvollen Vergleich. Der Test zeigt die Leistungsfähigkeit des RIMS-Verfahrens bei dem gegenüber unserer Alpha-Spektrometrie 1000fach geringeren Ausgangsvolumen von nur 10 ml. Dies sehr geringe Volumen ermöglicht allerdings auch eine Beeinflussung des Ergebnisses durch eine nicht auszuschließende Inhomogenität der Ausgangswasserprobe.

B) Tc-99-Messungen

Lediglich Wasserproben von 1996 wurden mit dem RIMS-Verfahren auf den langlebigen Betastrahler Tc-99 untersucht. Das Verfahren ist in Kapitel 3.4.6 beschrieben. Zur Analyse wurden 3 Liter Meerwasser eingesetzt. Ein Problem bei der im Vorwege durchzuführenden radiochemischen Analyse verursachte die im Meerwasser recht hohe Konzentration von stabilem Strontium. Der von der Uni Mainz zur Verfügung gestellten Berichte ist im Anhang A4 aufgeführt.

Tab. 4.1.12: Meerwasserprobe IAEA-381 aus der Irischen See: Zusammenstellung der Meßergebnisse für Plutoniumisotope; Bezugsdatum: 7.9.1993; 1 σ -Unsicherheiten

Nuklid	IAEA-Werte* (mBq/l)	BFAFi-Werte (1999+2000) (aus 10 L) (mBq/l)	Werte der Uni Mainz RIMS, aus 10 ml (mBq/l)
Pu-238	3,2 (3,1 – 3,5)	3,2 ± 0,1	130 ± 42 (ca. 138 zum Bezugsdatum)
Pu-239	8,1 (7,7 - 8,5)	nb	9,0 ± 0,5
Pu-240	6,7 (6,5 - 7,0)	nb	5,7 ± 0,7
Pu-241	190 (180-300)	nb	826 ± 273 (ca. 1178 zum Bezugsdatum)
Pu-239+240	13,5 (13,1 - 14,5)	13,3 ± 0,4	14,7 ± 0,9
Pu-242	0,0045 ± 0,0001 (1 Wert!)	nb	0,107 ± 0,018
Pu-238/ Pu-239+240	0,24 ± 0,03	0,243	
Pu-241/ Pu-239+240	19,2 ± 4,3	nb	
Pu-240/ Pu-239 #	0,242 ± 0,004	0,230 ± 0,007	0,17 ± 0,03

Massenverhältnis; * Bereiche sind 95% Konfidenzintervalle des Medianwertes; nb: nicht bestimmt; Legende: vgl. Tab. 4.1.7

Die Ergebnisse sind in Tabelle 4.1.13 dargestellt. Von Dahlgard et al. (1995) wird ein Tc-99-Referenzwert von 5 μ Bq/l für Oberflächenwasser des Nordostatlantiks angegeben. Die meisten der mit RIMS gemessenen Tc-99-Werte in unseren Wasserproben stimmen unter Beachtung der Messunsicherheiten damit überein, lediglich bei zwei Proben (B2, 100 m über dem Meeresboden; B3, 150 m über dem Meeresboden) wird ein um eine Größenordnung kleinerer Wert gefunden.

Tab. 4.1.13: Ergebnisse der an Meerwasserproben des Jahres 1996 von der Uni Mainz durchgeführten Technetium-99-Analysen

Gebiet	Station	Probenahmetiefe über Grund	Tc-99 ($\mu\text{Bq/l}$)
Ost-B	13	50 m	$5,13 \pm 14\%$
B1	56	Oberfläche:6 m	$4,11 \pm 13\%$
B1	20-23	50 m	$3,42 \pm 20\%$
B1	30+31	100 m	
B1	40	150 m	$8,90 \pm 18\%$
B2	46	50 m	$4,11 \pm 5.3\%$
B2	64	100 m	$0,55 \pm 52\%$
B2	72	150 m	$<3,76$
B3	79	50 m	$3,76 \pm 36\%$
B3	89+90	100 m	
B3	93	150 m	$0,38 \pm 18\%$

Legende: vgl. Tab. 4.1.7

4.1.2.3 Sediment

Im Jahr 1998 konnte aus den verschiedenen Einsätzen mit dem Multicorer im Versenkungsgebiet „B“ letztlich nur ein brauchbarer Kern von knapp über 8 cm Länge gestochen werden. Im Referenzgebiet „Ost-B“, in dem anschließend gearbeitet wurde, brach die Tiefseeleine bevor der Multicorer dort eingesetzt wurde, so dass eine Probenahme nicht mehr möglich war. Daraufhin wurde im Jahr 2000 eine zusätzliche Reise in das Referenzgebiet organisiert. Das Schiff stand wegen der stets hochgradigen Auslastung terminlich nur für Untersuchungen im Referenzgebiet zur Verfügung. Dort wurde ein Kastengreifer mit 30 cm Stechbox zur Probenahme benutzt. Aus einem ungestört an Bord gebrachten Meeresbodenblock konnte ein etwa 20 cm langer Kern ausgestochen werden.

Die Kerne wurden an Bord schockgefrostet und im gefrorenen Zustand ins Laboratorium transportiert und in diesem Zustand bis zur Bearbeitung gelagert. Sie wurden, an der Oberfläche beginnend, in 1 cm dicke Scheiben zerlegt, diese wurden einzeln gefriergetrocknet und auf Gammastrahlung analysiert. Von den künstlichen Radionukliden trat nur das Cs-137 mit überwiegend auswertbarer Konzentration auf. In allen Schichten blieb die Aktivität des Cs-137 unter 2 Bq/kg Trockensubstanz. In Natura ist in einer Volumeneinheit neben dem Bodenmaterial auch das Porenwasser vorhanden. Daher ist es zweckmäßig, die Aktivität pro Volumeneinheit anzugeben. Das Gewichtsverhältnis von ursprünglichem zu getrocknetem Boden und die im Meßgut bestimmte Dichte gehen ein in die Umrechnung der auf Trockengewicht bezogenen Meßwerte auf die ursprünglich pro Liter vorhanden gewesene Aktivität.

Der Kern aus dem Versenkungsgebiet (1998) hatte die höchste Aktivität (1,1 Bq/Liter) in der Schicht von 1 cm bis 2 cm unter der Oberfläche (vergl. Abb. 4.1.11). Die oberste Schicht enthielt mit 0,6 Bq/Liter signifikant weniger. Unterhalb der 2 cm Schicht zeigten sich zurückgehende Werte, ab 6 cm Tiefe um und unter 0,25 Bq/Liter.

Der Kern aus dem Vergleichsgebiet hat in der obersten Schicht mit 0,7 Bq/Liter eine etwas höhere Konzentration als der im Versenkungsgebiet. Darunter zeigt sich bei diesem Kern aber eine ganz andere Struktur (Abb. 4.1.12). Hier treten vergleichsweise niedrige Werte bei 2 und 3 cm auf. Zwischen 4 und 6 cm tritt dort ein weiteres Maximum mit 0,5 Bq/Liter auf. Unter 6 cm sind fast alle Werte unterhalb der Nachweisgrenze von etwas unter 0,2 Bq/Liter. Lediglich noch der Wert bei 8 cm ist ein realer Messwert, der sich allerdings gut in diese Reihe eingliedert. Nachdem sich solche unterhalb der Nachweisgrenze liegenden Werte in allen weiteren Proben von 9 cm bis 12 cm gezeigt hatten, wurde auf eine Untersuchung des noch vorhandenen Materials aus größerer Tiefe verzichtet.

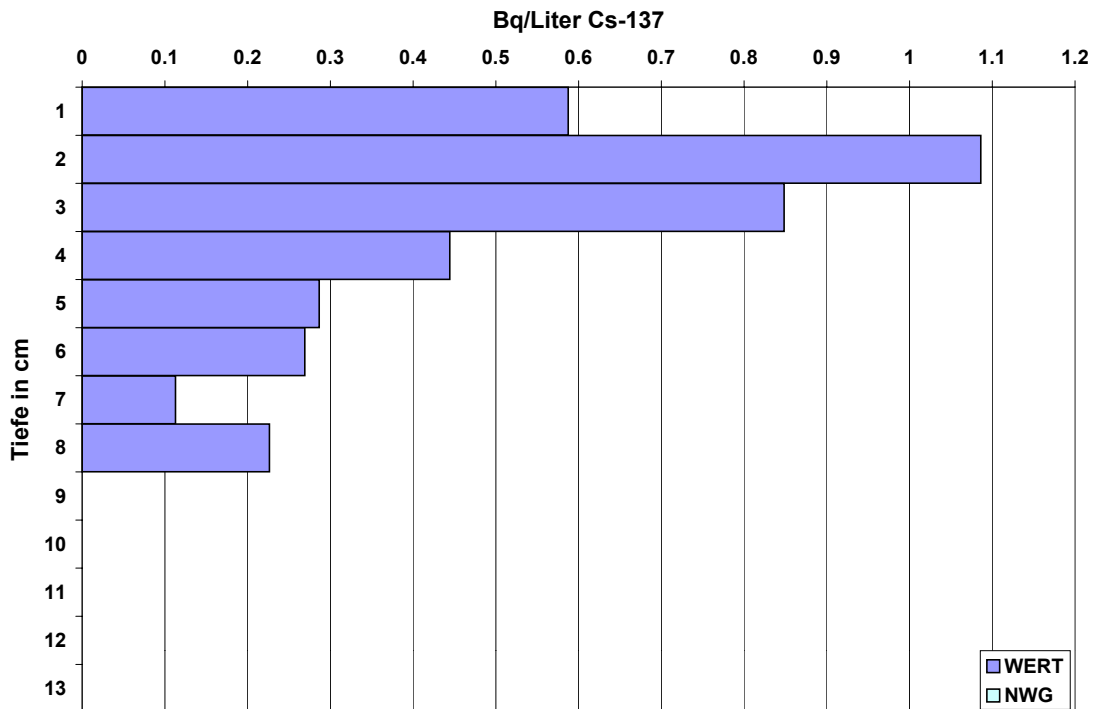


Abb. 4.1.11: Cs-137 im Sedimentkern aus dem Versenkungsgebiet (1998). Messwerte (WERT) bzw. Nachweisgrenze (NWG)

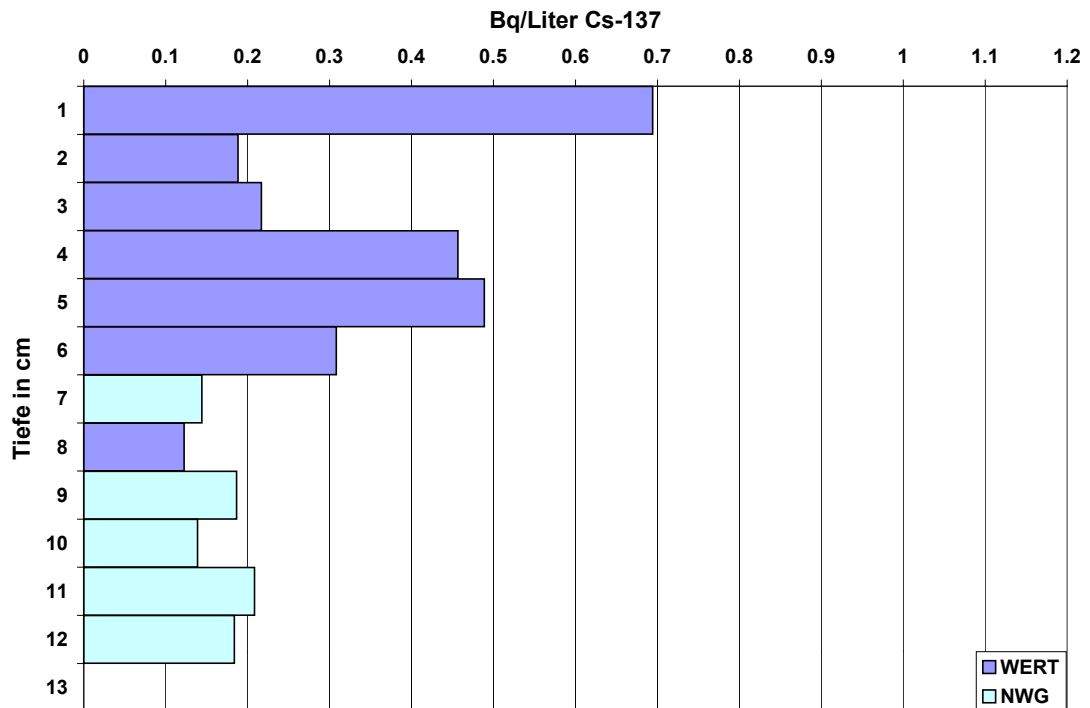


Abb. 4.1.12: Sedimentkern aus dem Vergleichsgebiet (2000). Messwerte (WERT) bzw. Nachweisgrenze (NWG)

Eine Erklärung für die Form des Profils im Vergleichsgebiet ergibt sich möglicherweise aus der Bioturbation. Der Meeresboden ist nicht unbelebt. Jedoch ist die Individuendichte durchaus unterschiedlich. Es gibt in der Tiefsee, ebenso wie anderenorts auch, zweifellos „Inseln“ mit höherer Besiedlungsdichte und dazwischen eher verödete Bereiche. Solche Inseln können sich auch in erkennbaren Zeiträumen verlagern. Verschiedene wurmartige Organismen leben knapp unter der Oberfläche im Meeresboden. Zum Teil haben sie sich tunnelartige Umgebungen geschaffen und halten sich dort in einem von ihnen selbst angetriebenen Wasserkreislauf auf (Gage, 1991). Durch diesen Wasserkreislauf, der auch die Stoffwechselprodukte abtransportiert, können geochemische Prozesse induziert werden, die durch Lösen und Auswaschen eine Änderung der örtlich am Sediment sorbierten Cs-137 Aktivität bewirken.

Das Inventar an Radioaktivität im Boden ergibt sich als Bq pro Quadratmeter. Es ist die Summe aller aus der Wassersäule eingetragenen Aktivität, vermindert durch den radioaktiven Zerfall. Ein horizontaler Austausch wird durchweg als so gering angesehen, dass praktisch kein Stofftransport erfolgt. Wegen der regional unterschiedlichen Wandergeschwindigkeit des Cäsiums in die Tiefe als Folge der örtlichen Bodencharakteristika, ist zur Abschätzung der Beaufschlagung das Inventar unter der Oberfläche besser geeignet als der Gehalt in einer bestimmten Tiefe. Unter Einbeziehung der Schichtdicke, aus der die Meßprobe stammt, wird aus den tiefenabhängigen Konzentrationen die Gesamtmenge pro Quadratmeter bilanziert.

Der Kern im Versenkungsgebiet aus dem Jahr 1998 enthielt aufsummiert bis 8 cm Tiefe die Menge von 38,6 Bq/m² im Jahr 1998. Aus den Meßergebnissen im Kern des Vergleichsgebietes aus dem Jahr 2000 ergab sich eine Menge von 26,3 Bq/m² im Jahr 2000. Hierbei wurde der Wert bei 7 cm mit seiner Nachweisgrenze einbezogen. Diese Bilanzierungen unterschätzen die tatsächlichen Aktivitätsmengen, weil alle Werte unter 9 cm Tiefe, als Null angenommen wurden. Allerdings sind tiefer unten keine größeren Depots von Aktivität zu erwarten. Vielmehr ist aufgrund der Verlagerungsvorgänge in die Tiefe praktisch eine exponentielle Abnahme zu erwarten. Mit der Vorstellung eines Abfalls auf weiteren 10 cm Länge auf 2 % des untersten Meßwertes läßt sich abschätzen, daß die obigen Bilanzierungen um etwa 4 bis 8 Bq/m² zu niedrig ausgefallen sind.

Die höhere Bilanz im Versenkungsgebiet, auch eine Zerfallskorrektur gibt keine wesentliche Änderung, als im Vergleichsgebiet geht einher mit den Ergebnissen der über Grund genommenen Wasserproben. Darin treten ebenfalls im Versenkungsgebiet die höheren Werte auf. Daß im Vergleichsgebiet trotz der niedrigeren Konzentrationen im Wasser in der obersten Bodenschicht höhere Werte gemessen wurden, als im Versenkungsgebiet, muß nicht als Widerspruch zu gleich groß angenommenen Verteilungsfaktoren angesehen werden. Wie bereits diskutiert, sind in diesem Kern offenbar durch Bioturbation Aktivitäten aus 2 und 3 cm Tiefe teils nach oben und teils nach unten verfrachtet worden. Das erklärt die dort erhöhte Konzentration in der obersten Schicht.

Die im Jahr 1998 im Versenkungsgebiet summierten 39 Bq/m², denen die geschätzten 6 Bq/m² hinzugefügt werden sollten, ergeben die gleiche Größenordnung wie die dort in den Jahren 1983 und 1984 gezogenen Kerne. Damals beispielsweise bilanzierte 46 – 86 Bq/m² ergeben zerfallskorrigiert im Jahr 1998 noch 33 bis 60 Bq/m².

4.2 Barentssee

4.2.1 Gammastrahlung

An Gammastrahlern wurde durchgehend das Cs-137 gefunden. Daneben konnte zu Beginn der Untersuchungen in einigen Proben auch das Isotop Cs-134 nachgewiesen werden.

4.2.1.1 Wasser

Im Jahr 1994 wurden bereits auf dem Anfahrtsweg an zwei Positionen in der Norwegischen Rinne mit der Schiffspumpe großvolumige Wasserproben von Oberflächenwasser entnommen. Ebenso erfolgte nur an der Oberfläche die Probenahme in den Arbeitsgebieten Nordkap und Spitzbergen. Demgegenüber wurde in den Gebieten Bäreninsel, Hope Insel und Zentralbank zusätzlich der Wassers schöpfer dicht über Grund eingesetzt.

Die über Grund gemessenen Werte des Cs-137 liegen innerhalb der Meßgenauigkeit alle bei etwa 3,0 Bq/m³ (vergl. Abb. 4.2.1). An Zentralbank sind die Oberflächenwerte etwa gleich hoch. In den beiden anderen Gebieten sind die Werte über Grund rund 15 % niedriger als an der Oberfläche. An den Oberflächenwerten ist generell ein abnehmender Gradient von den Lofoten über Nordkap und Hope Insel sowie Bäreninsel nach Spitzbergen hin zu registrieren. An den beiden Positionen vor Nordkap geht die Abnahme auch deutlich mit der Entfernung zur Küste einher. Die Werte gehen von 8,4 auf knapp unter 3 Bq/m³ zurück. Die höchsten Konzentrationen wurden vor den Lofoten gemessen. Weiter südlich, in Höhe von Ålesund, wurden auf der Hinreise 8,2 und drei Wochen später auf der Rückreise 8,1 Bq/m³ gemessen. Das sind zwei Werte, die innerhalb der Meßgenauigkeit von 1,5 % übereinstimmen und dadurch anzeigen, dass dort über längere Zeit unveränderte Werte vorliegen.

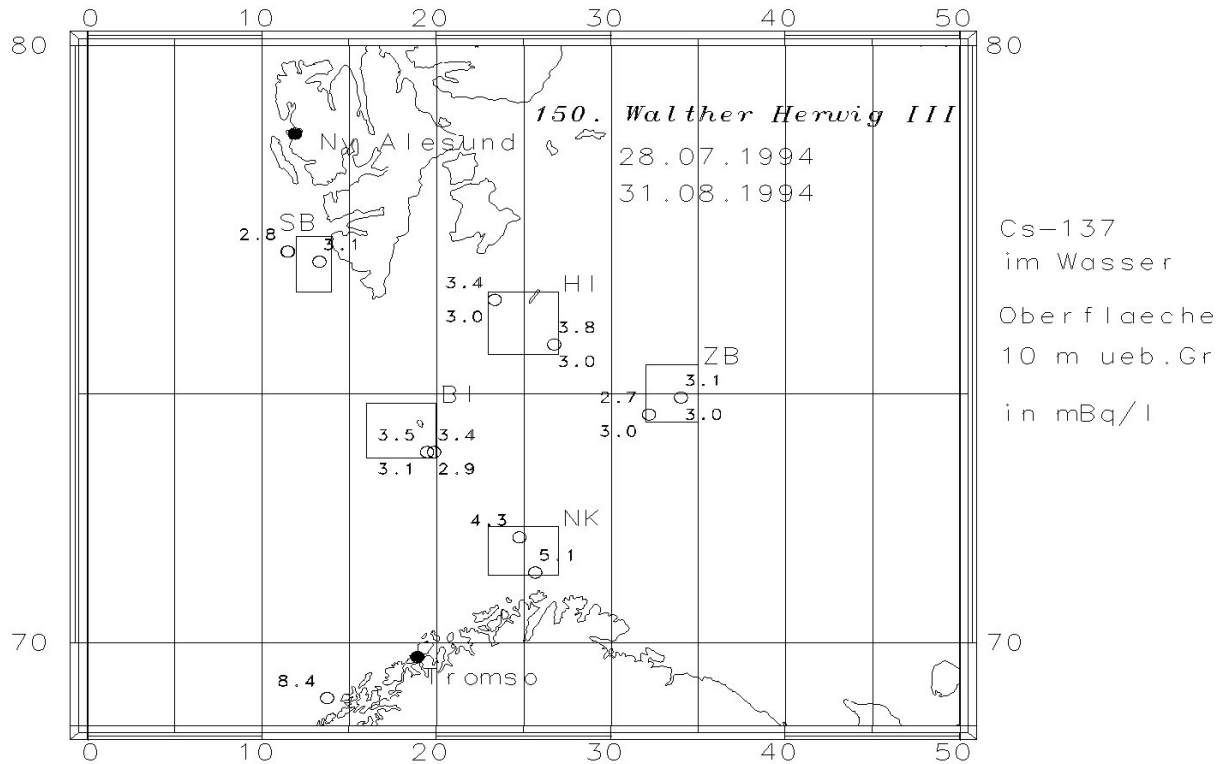


Abb. 4.2.1: Cs-137 Konzentrationen (Bq/m³) im Wasser im Jahr 1994

Im Jahr 1997 wurde die vorgegebene Quote an Wasserproben ausschließlich in den Arbeitsgebieten der Barentssee geschöpft. Zusätzlich zu den Gebieten Nordkap, Bäreninsel, Hope Insel und Zentralbank wurde auch etwas weiter östlich, im sogenannten Schlupfloch gearbeitet. Das ist ein Gebiet, das gerade außerhalb der norwegischen als auch der russischen Wirtschaftszone liegt. Es ist in ein norwegisches und ein russisches Interessensgebiet aufgeteilt. Westlich von Spitzbergen wurde diesmal ein weiter nördlich gelegenes Arbeitsgebiet angefahren. Der Schöpfer wurde an allen Wasserstationen in Tiefen von 10 m und von 100 m über Grund eingesetzt. Zusätzlich wurde einmal an der Position Nordkap eine Probe Oberflächewasser gepumpt (vergleiche Abb. 4.2.2).

Das Oberflächenwasser an Nordkap enthielt mit 4,1 Bq/m³ im Jahr 1997 die höchste Konzentration an Cs-137. Das war drei Jahre vorher ebenso an den Proben aus dem Bereich der Barentssee festgestellt worden. Einzig in dieser Probe wurde daneben 0,040 Bq/m³ Cs-134 mit etwa 20 % Unschärfe bestimmt. An allen Positionen war die Cs-137 Konzentration in 100 m über Grund rund 3 % niedriger als 10 m über Grund. Zusammen mit den 1994 bestimmten Verhältnissen von Grund- zu Oberflächenwerten wird der Einblick vermittelt, daß, abgesehen vom Gebiet Nordkapbank, in der Barentssee kein ausgeprägtes Tiefenprofil für Cs-137 existiert. Über Grund ist ein Gradient vom östlichsten Gebiet Schlupfloch zum nordwestlichsten Gebiet Spitzbergen mit einer Abnahme von 3,1 auf 2,7 Bq/m³ zu verzeichnen.

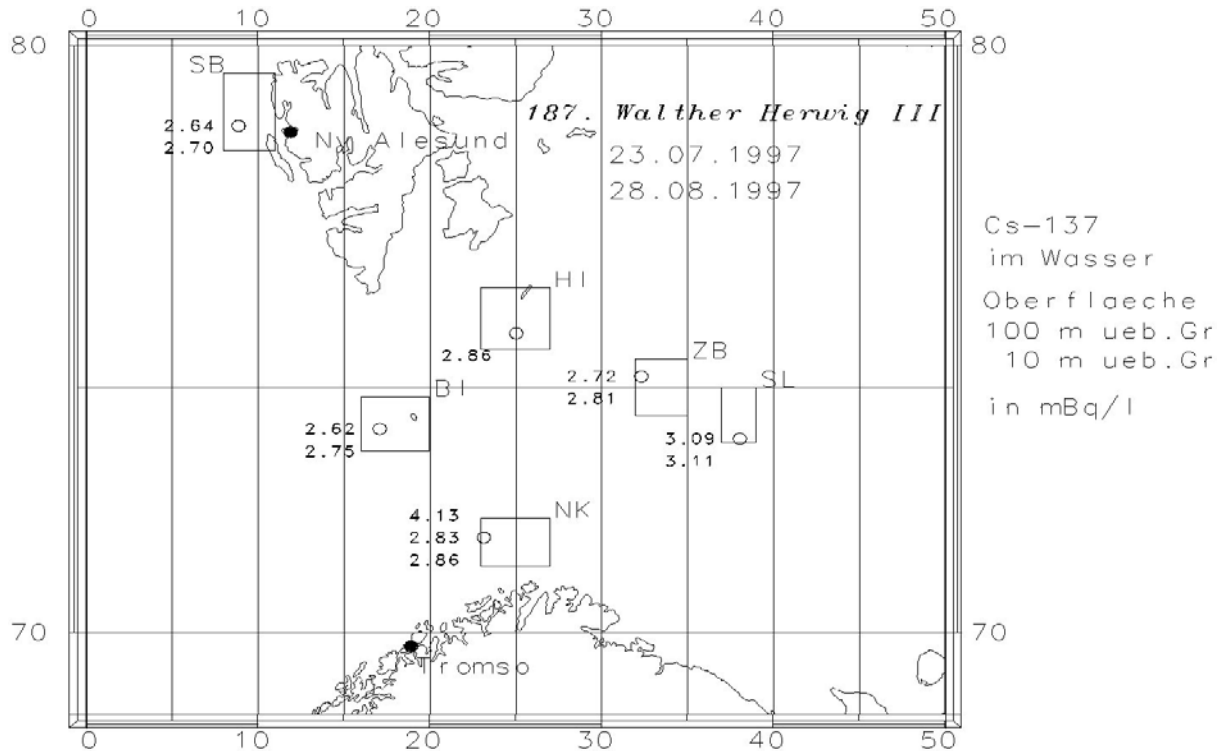


Abb. 4.2.2: Cs-137 Konzentrationen (Bq/m^3) im Wasser im Jahr 1997

Im Jahr 2000 wurden in den Arbeitsgebieten Nordkap, Zentralbank, Bäreninsel und südwestlich Spitzbergen an jeweils einer Station Oberflächenwasser und Wasser von 10 m über Grund genommen (vergleiche Abb. 4.2.3). Zusätzlich wurde Oberflächenwasser in der Norwegischen Rinne in Höhe von Tromsø (69°N), südlich der Lofoten (65°N) und in Höhe von Storrega (62°N) gepumpt. Die südlichste Position hatte mit $10,6 \text{ Bq}/\text{m}^3$ die höchste Cs-137 Konzentration. Nur dort konnte zusätzlich $0,055 \text{ Bq}/\text{m}^3$ Cs-134 bestimmt werden. In der Mitte der Norwegischen Rinne waren es noch $4,58 \text{ Bq}/\text{m}^3$ Cs-137. In Höhe von Tromsø war dann ein Abfall auf $2,75 \text{ Bq}/\text{m}^3$ zu verzeichnen. Etwas höhere Werte traten an Nordkap ($2,98$) und Zentralbank ($2,92$) auf, niedrigere an Bäreninsel ($2,32$) und Spitzbergen ($2,37$). Die in den beiden vorhergehenden Reisen gesehenen höheren Werte im Oberflächenwasser an Nordkap wurden im Jahre 2000 nicht beobachtet. Diese Reise erfolgte jahreszeitlich fast ein viertel Jahr früher. In Tromsø lagen noch Schneereste in den Straßen. Mit Ausnahme von Bäreninsel war an den übrigen Barentssee-Stationen, ebenso wie im Jahr 1994, ein geringer Rückgang (dieses mal 10 %) des Cs-137 im Wasser von der Oberfläche zum Boden hin zu beobachten.

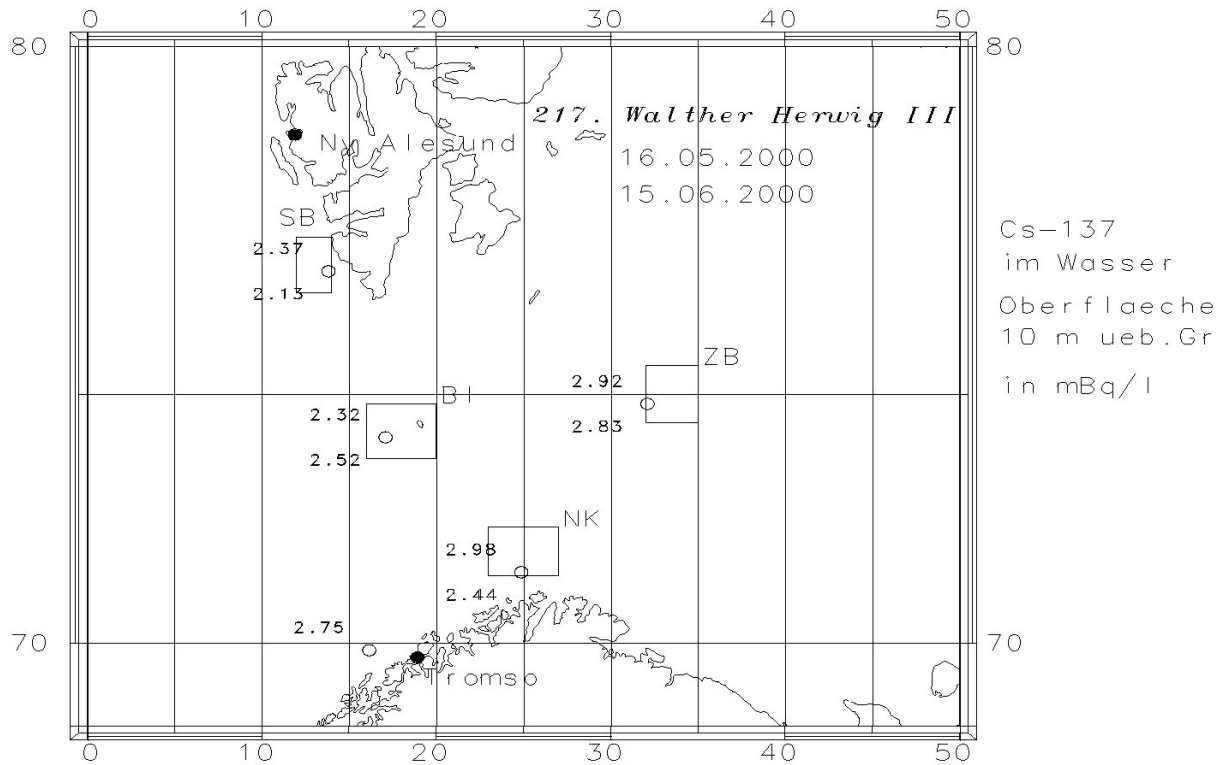


Abb. 4.2.3: Cs-137 Konzentrationen (Bq/m^3) im Wasser im Jahr 2000

Da wir durchgängig aus allen drei Untersuchungen nur Bodenwasser gemessen haben, wurde daraus für die Jahre 1994, 1997 und 2000 ein Mittelwert als Referenz für die Barentssee ermittelt und gemeinsam mit Daten von Sazykina (1998) aus den Jahren 1979 bis 1994 sowie von IAEA (2000) (GLOMARD: Global Marine Radioactivity Database) aus den Jahren 1970 bis 1994 in Abb. 4.2.4 dargestellt.

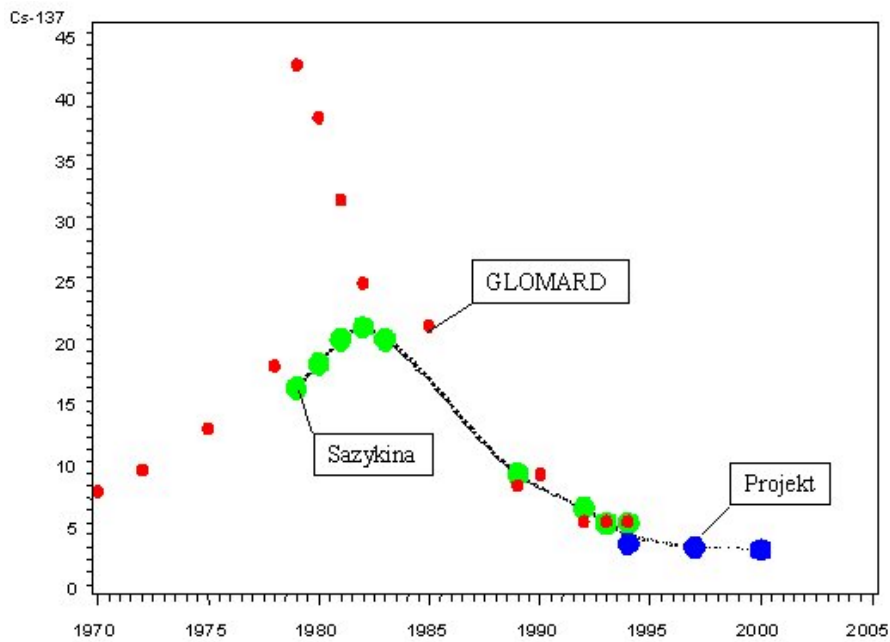


Abb. 4.2.4: Cs-137 Konzentrationen (Bq/m^3) im Wasser der Barentssee

Die Werte von Sazykina und die daran anschließenden eigenen wurden durchgehend mit einer Spline-Kurve verbunden. Sie fügen sich gut zusammen. Abgesehen von den relativ hohen Werten von 1979, 1980 und 1981 aus GLOMARD zeigen die übrigen Jahre prinzipiell das gleiche Bild. Die angesprochenen höheren Werte sind offenbar lokal aufgetreten und nicht als Referenz für die gesamte Barentssee verwendbar. In dieser Darstellung wird deutlich, daß unsere Untersuchungen ab 1994 erst begonnen haben, nachdem die hohen Konzentrationen im Wasser als Folge der Sellafield Emissionen (Jackson et al., 2000) in den 70er Jahren durch die Barentssee bereits durchgelaufen waren (vergleiche Abb. 4.2.5).

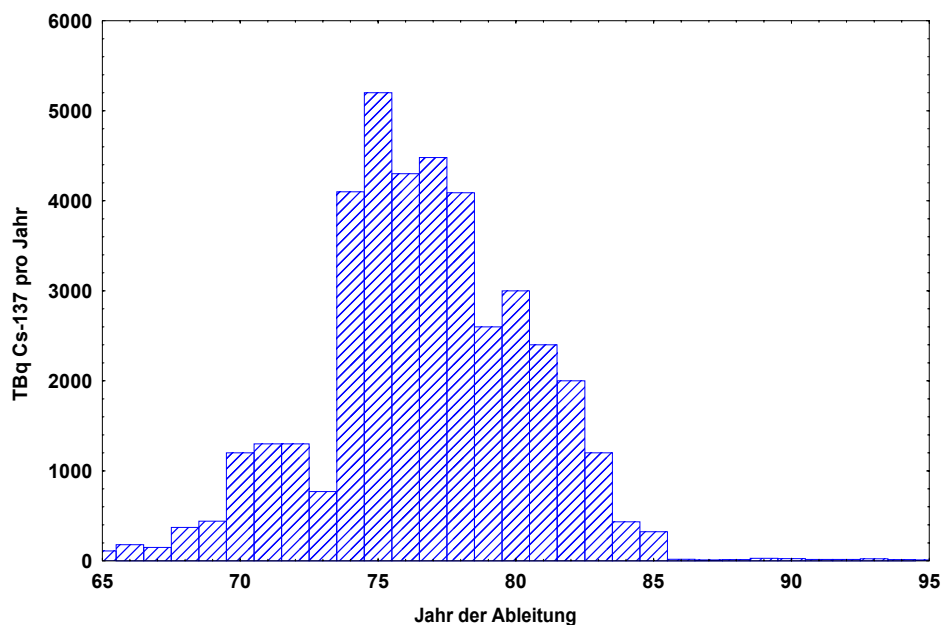


Abb. 4.2.5: Cs-137 Emissionen in Sellafield

4.2.1.2 Fisch

Aus diesem Projekt wurden insgesamt 250 Stück Filetproben von Kabeljau auf Gammastrahlung emittierende Radionuklide analysierten. In den zugehörigen Untersuchungsjahren 1994, 1997 und 2000 entstammten die Fische den Gebieten Tromsø (TR), Nordkap (NK), Zentralbank (ZB), Hopen Insel (HI), Bäreninsel (BI), südwestliches (SB) und nordwestliches (SN) Spitzbergen. Im nordwestlichen Spitzbergen wurde im Jahr 1997, im südwestlichen in den Jahren 1994 und 2000 gefischt. Im einzig 1997 angefahrenen Gebiet Schlupfloch (SL) wurde kein Kabeljau gefangen. Auch an Hope Insel war die Fischerei auf Kabeljau im Jahre 1997 erfolglos. Die Tabelle 4.2.1 stellt die Probenübersicht dar.

Tabelle 4.2.1: Übersicht der auf Gammastrahlung untersuchten Kabeljauproben

Gebiet	1994	1997	2000	Total
TR			3	3
NK	21	24	24	69
ZB	29	18	23	70
HI	17			17
BI	26	27	18	71
SB	11		3	14
SN		6		6
Total	104	75	71	250

Im Jahre 1994 waren die für eine Meßproben von etwa 6 kg zusammen filetierten Fische zwar längenmäßig erfaßt worden, sie wurden aber nicht bewußt exakt nach Längengruppen sortiert. Erst nachdem eine Abhängigkeit der Cs-137 Konzentration von der Fischlänge erkannt war, wurden während der beiden nachfolgenden Reisen die Kabeljaufänge nach Längengruppen (10 cm Intervalle) getrennt zu Untersuchungsmaterial aufgearbeitet. Dabei waren die kürzesten Fische 20 cm, die längsten zwischen 110 cm und 120 cm lang. Soweit die Fänge es hergaben, wurden an Bord bis zu fünf Stück Proben der gleichen Längengruppe pro Gebiet bereitet. In allen gemessenen Proben konnten die Cs-137 Gehalte oberhalb der Nachweisgrenze bestimmt werden.

Kovarianzanalyse von Gehalten in Kabeljau

Mittels der Prozedur „Generelle Lineare Modelle“ (GLM) aus dem Statistik-Software-Paket SAS wurden diese Daten auf unterschiedliche Mittelwerte analysiert. Die Cs-137 Gehalte wurden vorweg logarithmisch transformiert, mit dem Erfolg, daß die Residuen normalverteilt wurden. Das ist eine notwendige Voraussetzung für die Varianzanalyse. Die drei Untersuchungsjahre und die sieben Arbeitsgebiete bestimmten die beiden Klassen. Die Fischlänge wurde als Kovariable definiert. Funktionell tauglich beschreibbar war ihr Einfluß durch ein Polynom dritten Grades, mit dem Logarithmus der Fischlänge als Variable (vergleiche Abb. 4.2.6 bis 4.2.11).

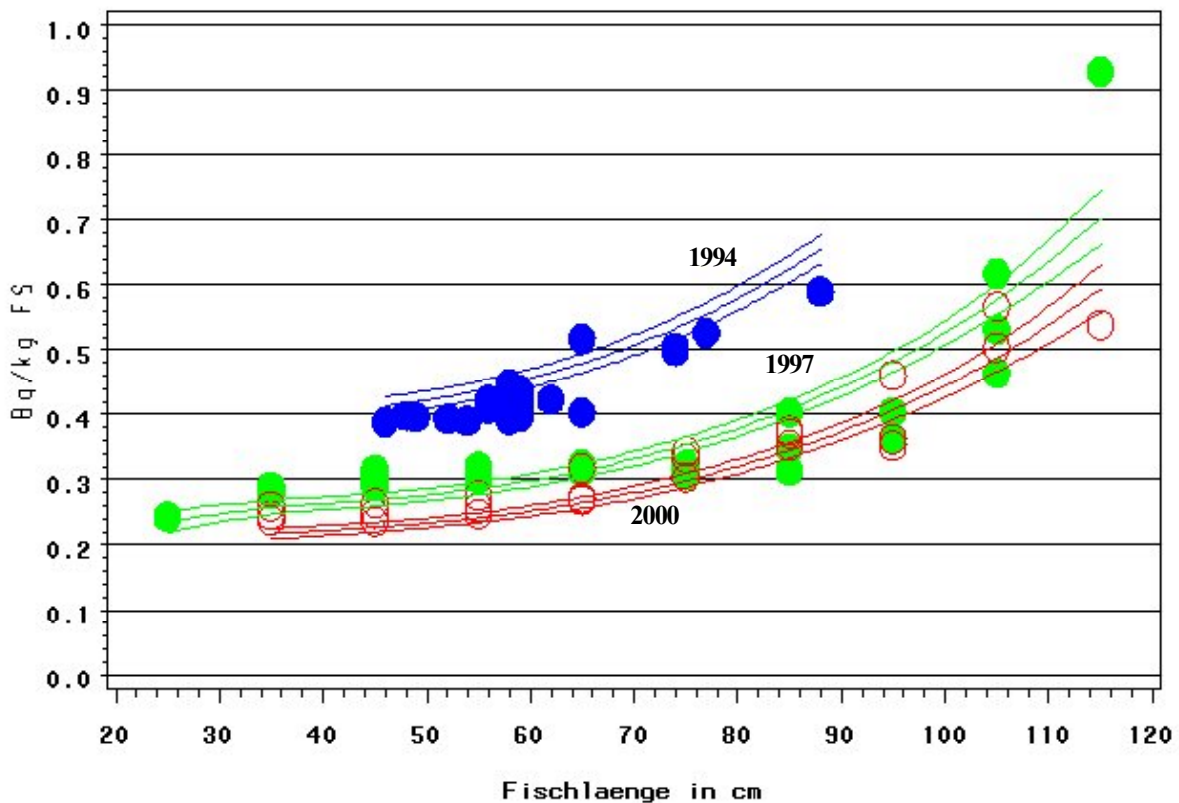


Abb. 4.2.6: Cs-137 in Kabeljau an Nordkap 1994, 1997 und 2000

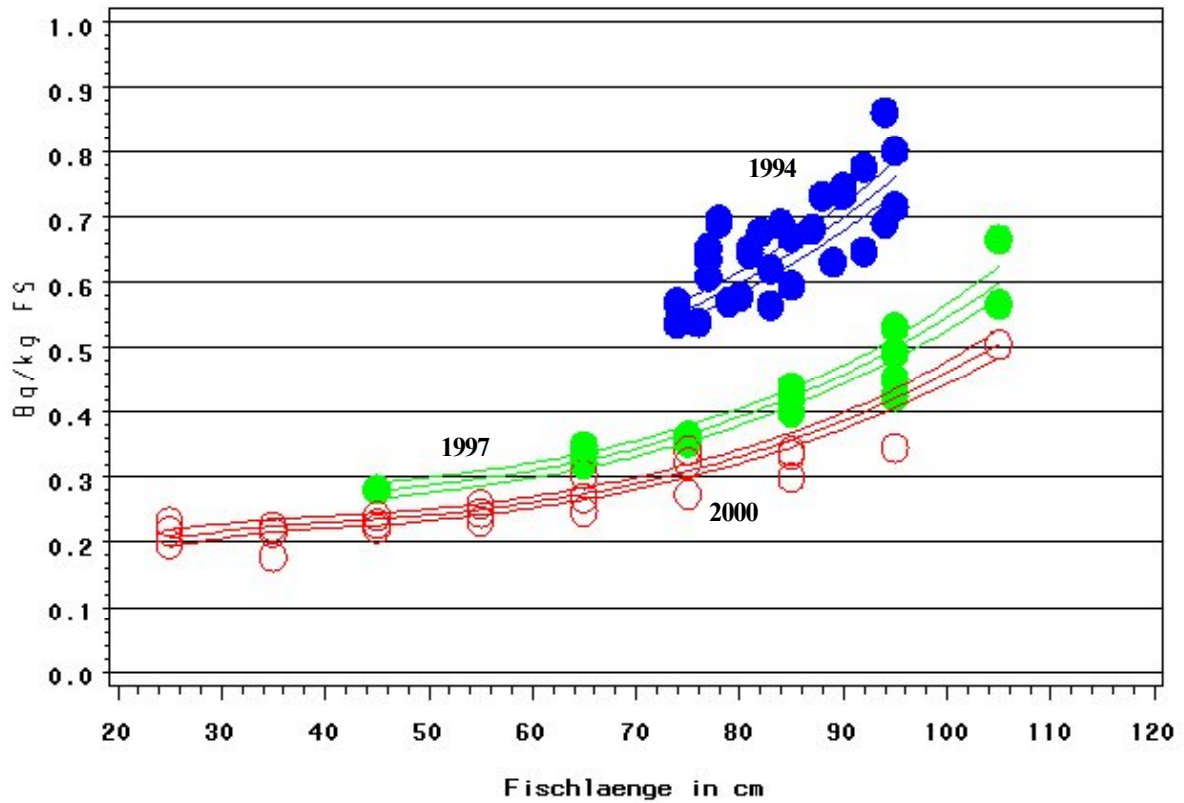


Abb. 4.2.7: Cs-137 in Kabeljau an Zentralbank 1994, 1997 und 2000

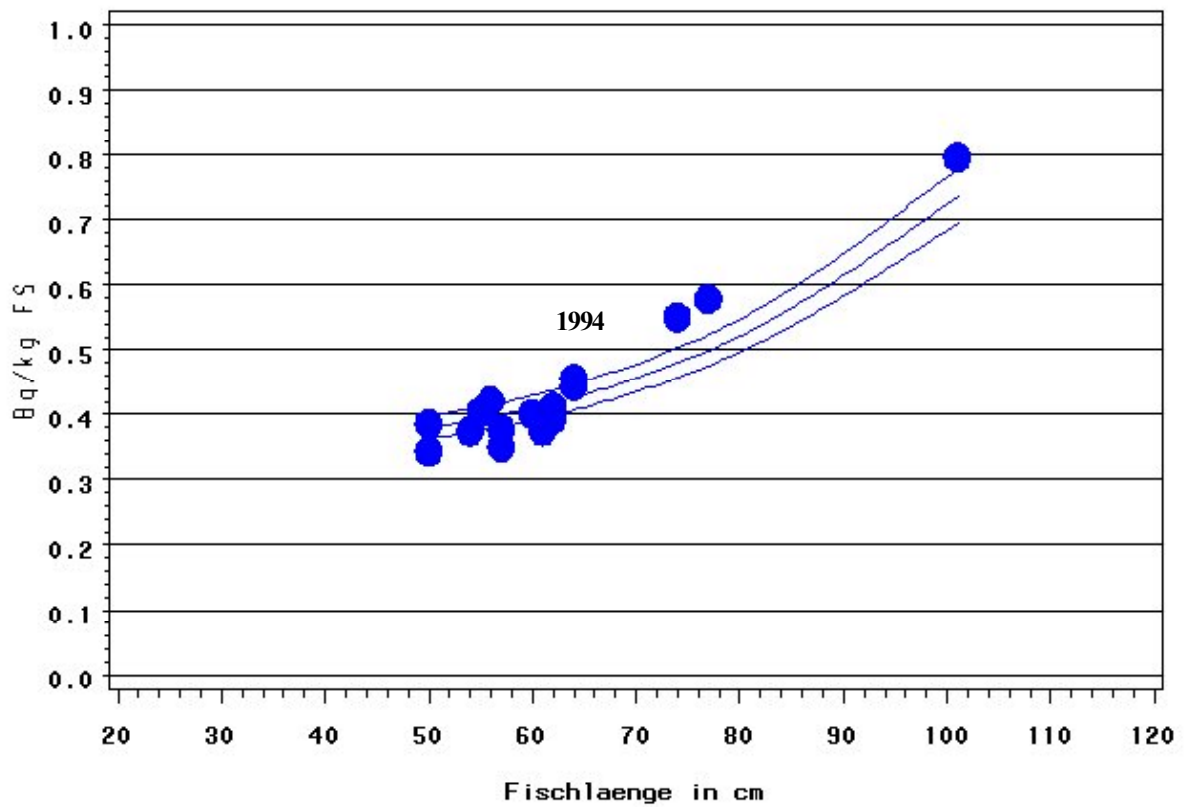


Abb. 4.2.8: Cs-137 in Kabeljau an Hopen Insel 1994

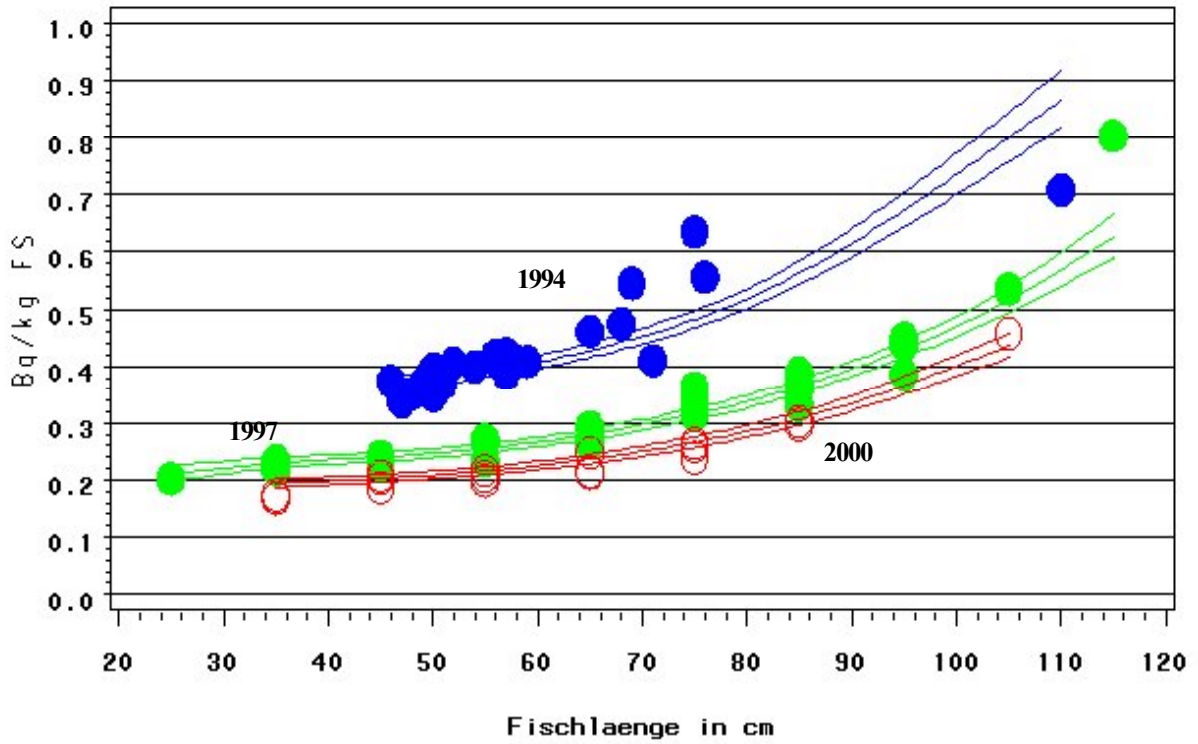


Abb. 4.2.9: Cs-137 in Kabeljau an Bäreninsel 1994, 1997 und 2000

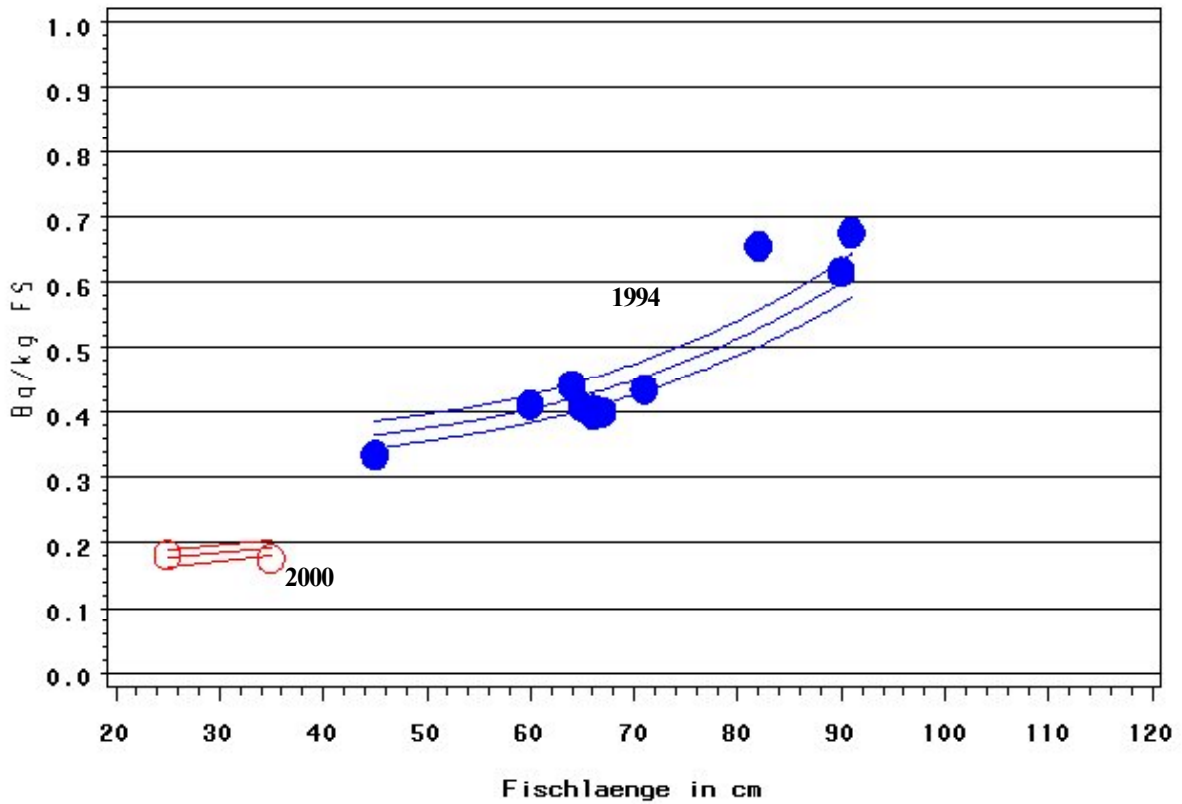


Abb. 4.2.10: Cs-137 in Kabeljau südwestlich Spitzbergen 1994 und 2000

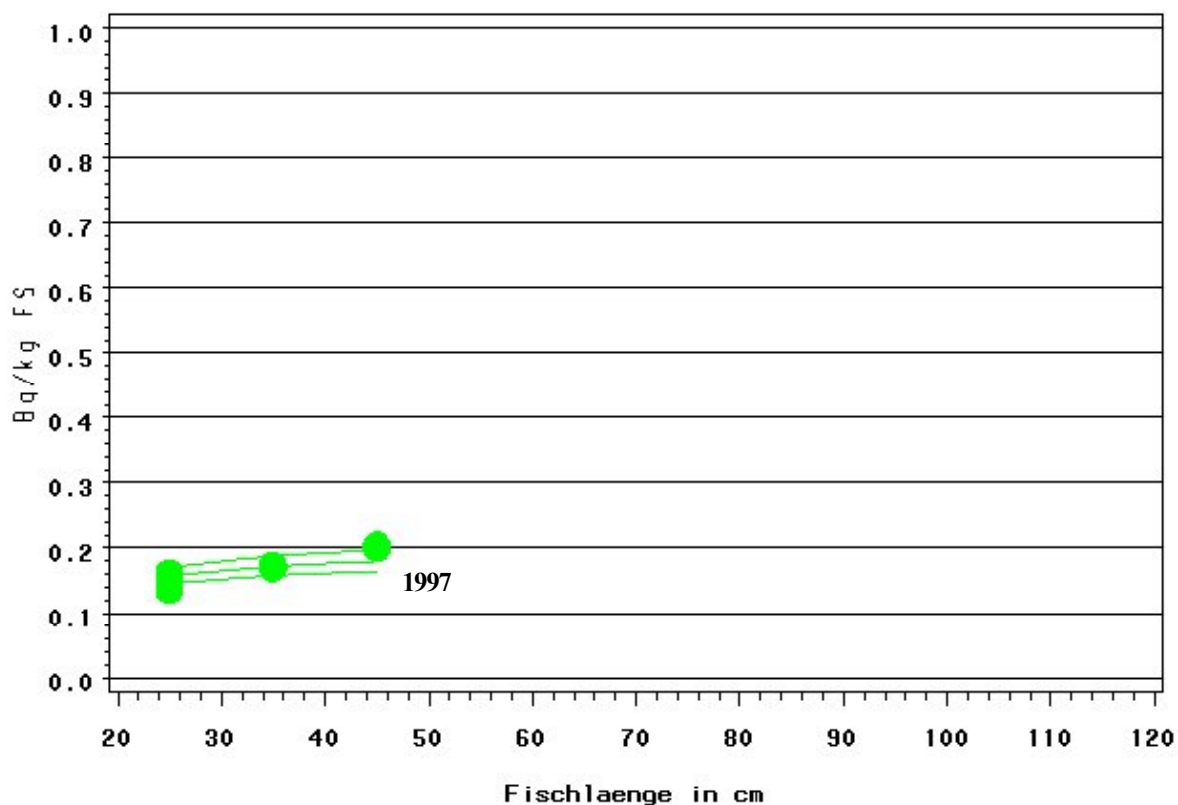


Abb. 4.2.11: Cs-137 in Kabeljau nordwestlich Spitzbergen 1997

a) Gebietsabhängigkeit

Diese Untersuchung sollte in Kabeljau der Barentssee mögliche gebietsspezifisch unterschiedliche Gehalte aufdecken. Um zu vermeiden, daß Unterschiede lediglich dadurch angezeigt werden, weil in einem Gebiet nur kleinere Fische gefangen wurde, wie z.B. nordwestlich vor Spitzbergen und in einem anderen Gebiet hauptsächlich größere, wie z.B. an Zentralbank, wurden die Schätzer und ihre Streubereiche in jedem Gebiet für Fische von 70 cm Länge berechnet, unabhängig davon, ob dort tatsächlich so lange gefangen wurden. In der Tabelle 4.2.2 sind Kennungen dafür angegeben, ob Gebiete nur zufällig verschieden (ns = nicht signifikant) erscheinen oder statistisch signifikante unterschiedlich (s) sind.

Tabelle 4.2.2: Statistisch signifikante Unterschiede durch die Herkunftsgebiete

	TR	NK	ZB	HI	BI	SB	SN
TR	--	ns	ns	s	s	s	s
NK	ns	--	s	s	s	s	s
ZB	ns	s	--	s	s	s	s
HI	s	s	s	--	ns	ns	s
BI	s	s	s	ns	--	ns	s
SB	s	s	s	ns	ns	--	s
SN	s	s	s	s	s	s	--

Eine Zusammenstellung der Rücktransformierten Schätzer und Konfidenzintervalle für Cs-137 in Kabeljaufilet, angegeben in Bq/kg FM, enthält die Tabelle 4.2.3.

Tabelle 4.2.3: Cs-137 in Kabeljaufilet (Bq/kg FM) nach Gebieten

Gebiet	Schätzer	95% Konfidenzintervall	
TR	0,394	0,351	0,441
NK	0,359	0,349	0,369
ZB	0,372	0,362	0,382
HI	0,323	0,306	0,340
BI	0,320	0,311	0,330
SB	0,319	0,302	0,337
SN	0,239	0,218	0,263

Das Verhältnis zwischen dem kleinstem Schätzer (nordwestlich Spitzbergen) und dem größten (vor Tromsø) ist lediglich 1,7. Beide Gebiete mit den Extremwerten liegen gewissermaßen außerhalb der Barentssee. Der Schätzer für Tromsø hat, bedingt durch die wenigen Proben, ein breites Konfidenzintervall. Die Gebiete innerhalb der Barentssee zeigen noch kleinere Unterschiede. Bei ihnen deutet das größte Verhältnis zwischen Zentralbank und Südwestlich Spitzbergen mit 1,17 lediglich geringe Unterschiede an. Festzustellen ist, daß innerhalb der Barentssee die Werte ziemlich dicht beieinander sind. Diese Schätzung der räumlichen Verteilung basiert auf den Gehalten in den Jahren 1994, 1997 und 2000.

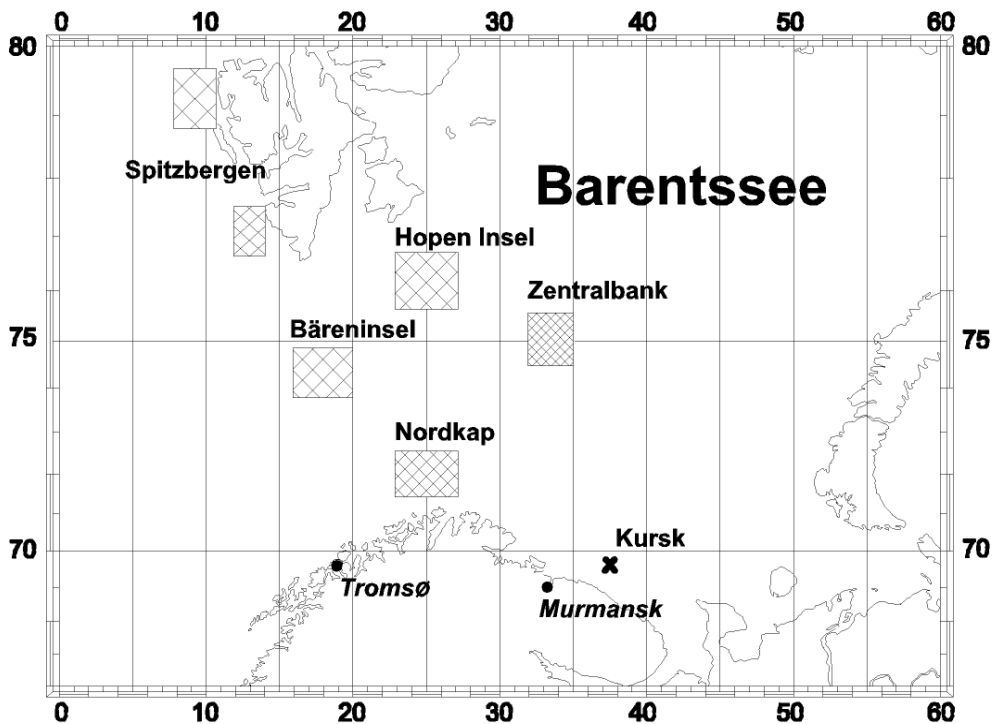


Abb. 4.2.12: Gebietsspezifische Gehalt des Cs-137 in Kabeljau

Eine grafische Zusammenfassung der Ergebnisse in den Tabellen 4.2.2 und 4.2.3 erfolgte in der Abbildung 4.2.12. Unterschiedlich hohe Gehalte im Kabeljaufilet sind durch unterschiedliche Schraffurdichten dargestellt, wobei hohe Dichte hohe Gehalte widerspiegelt. In der Abbildung haben die nach Tabelle 4.2.2 nicht signifikant verschiedenen Gebiete gleiche Schraffurdichte erhalten. Weil Nordkap und Zentralbank signifikant verschieden sind, Tromsø aber wegen der geringen Probenanzahl von beiden nicht signifikant verschieden ist, wurde letztere Position nicht mit aufgenommen, weil sie nicht in das beschriebene Abbildungsschema paßt. In der Abbildung ist ein Gradient erkennbar. Von Zentralbank aus nehmen die Gehalte ab über Nordkapbank zu vergleichbaren Werten an Hope Insel, Bäreninsel und südwestlich Spitzbergen. Die geringsten Gehalte finden sich nordwestlich Spitzbergen. Da vor Tromsø im Wasser die höchsten Konzentrationen gemessen wurden, ist im Prinzip zu erwarten, daß bei höherer Fischprobenzahl und daraus

resultierendem kleinerem Konfidenzintervall dort sich ebenfalls die höchsten Gehalte im Filet stabilisieren werden.

b) Zeitabhängigkeit

In der anderen Klasse der Varianzanalyse, in den Untersuchungsjahren, sind die Gehalte aller Jahre signifikant voneinander verschieden. Ein Zusammenstellung der zurücktransformierten Schätzer zeigt Tabelle 4.2.4, hier ebenfalls für 70 cm lange Kabeljau.

Tabelle 4.2.4: Cs-137 in Kabeljaufilet (Bq/kg FM) der Länge 70 cm

Jahr	Schätzer	95% Konfidenzintervall	
1994	0,476	0,447	0,475
1997	0,302	0,290	0,313
2000	0,255	0,246	0,264

Eine Abnahme ist hier deutlich erkennbar, zwischen 1994 und 1997 mehr als drei mal stärker als zwischen 1997 und 2000. Mit der simplen Modellvorstellung, daß die Werte exponentiell abfallen und gegen einen festen Endwert streben, werden zur Beschreibung des Verlaufs drei Parameter benötigt: ein Anfangswert, der Endwert und die Halbwertszeit für den Abklingterm. Es stehen hier allerdings lediglich drei Wertepaare für eine Schätzung zur Verfügung. Somit werden die drei Parameter bestimmt und es bleibt die Schätzunsicherheit offen. Mit diesen Daten allein ist nicht prüfbar, ob das skizzierten Modell den Vorgang richtig beschreibt. Die drei Modellparameter wurden mittels der Software „Model Maker“ bestimmt zu:

Anfangswert	0,51 Bq/kg FM (Januar 1994)
Endwert	0,22 Bq/kg FM
Halbwertszeit	2,0 Jahre

Bezogen auf Januar 1994 war nach diesem Modell eine Erhöhung um 0,29 Bq/kg FM gegenüber einem vermuteten Endwert von 0,22 Ba/kg FM im Kabeljau von 70 cm Länge festzustellen. Diese Aufstockung geht mit einer Halbwertszeit von rund 2 Jahren zurück (vergl. Abb. 4.2.13).

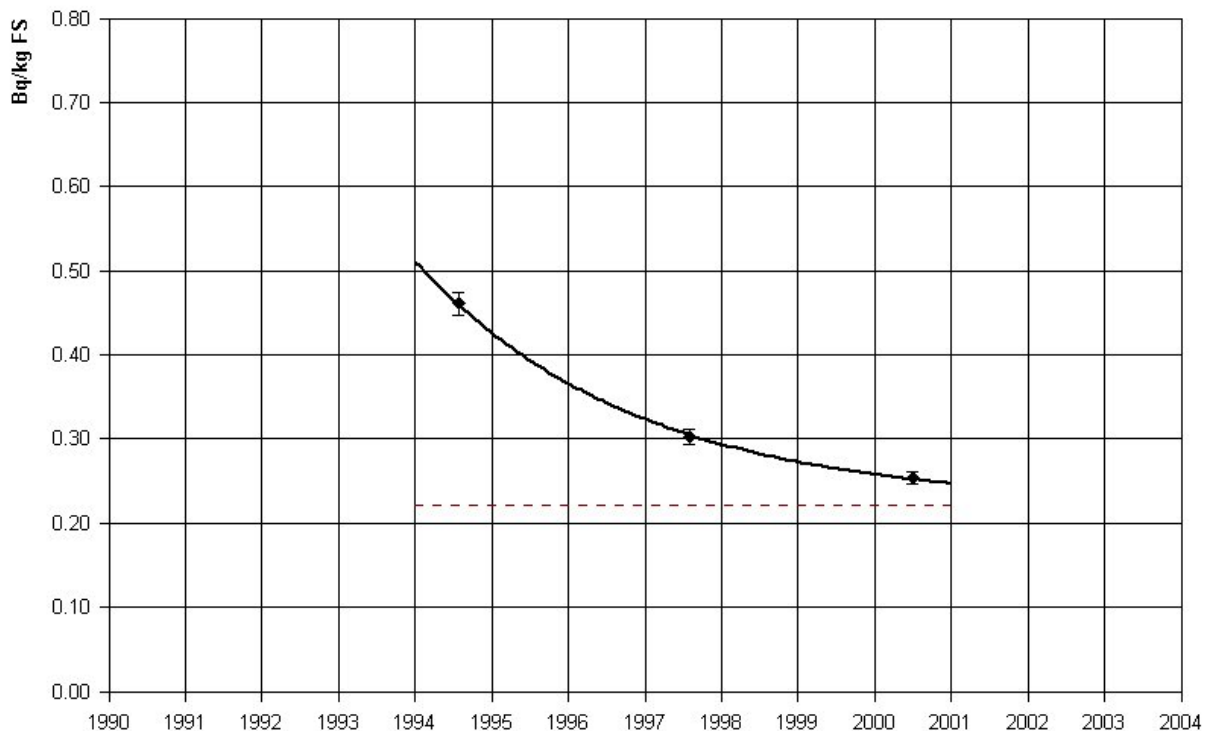


Abb. 4.2.13: Abnahme der Cs-137 Gehalte in Kabeljau von 70 cm Länge Bereits vor Beginn des Projektes hat das IFÖ Messungen an Proben aus der Barentssee durchgeführt. Seit 1992 werden Filetproben von Fischen der Barentssee auf Radionuklide untersucht (Kellermann, 1992). Diese Proben entstammten aus an Bord verarbeiteten Fängen der kommerziellen Fischerei (Frosterplatten). Mitfahrende Wissenschaftler der Bundesforschungsanstalt für Fischerei haben während ihrer bestandskundlichen Untersuchungen Fangdatum und Fangpositionen der zugehörigen Hols protokolliert. Dieses Probenmaterial stammt von Kabeljau, Rotbarsch und Schellfisch. Diesen Ergebnisdaten hinzugefügt wurden die Untersuchungsergebnisse von Doggerscharben, die mit dem Fischereiforschungsschiff auf den Projektfahrten 1994 und 2000 gefangen wurden. Abweichen von der üblichen Vorgehensweise wurden die kleinen Doggerscharben als einzige Fischart nicht filetiert, sondern als Ganzfisch zu Probenmaterial verarbeitet.

Varianzanalyse von Gehalten in Fischen

Die Cs-137 Gehalte dieser Daten wurden ebenfalls einer Varianzanalyse (Proc GLM, SAS) unterzogen. Auch für diese Untersuchung wurden die Gehalte logarithmisch transformiert. Informationen über Fischlängen lagen bei den Proben der kommerziellen Fischerei nicht vor. Daher wurde statt einer Kovarianzanalyse, wie mit den Projektdaten, eine Varianzanalyse mit den beiden Klassen Fischart und Probenahmejahr (1992 – 2001) durchgeführt.

a) Fischart

Die Gehalte zeigen, wie in Abb. 4.2.14 dargestellt, die abfallende Rangordnung: Kabeljau, Rotbarsch, Schellfisch, Doggerscharben.

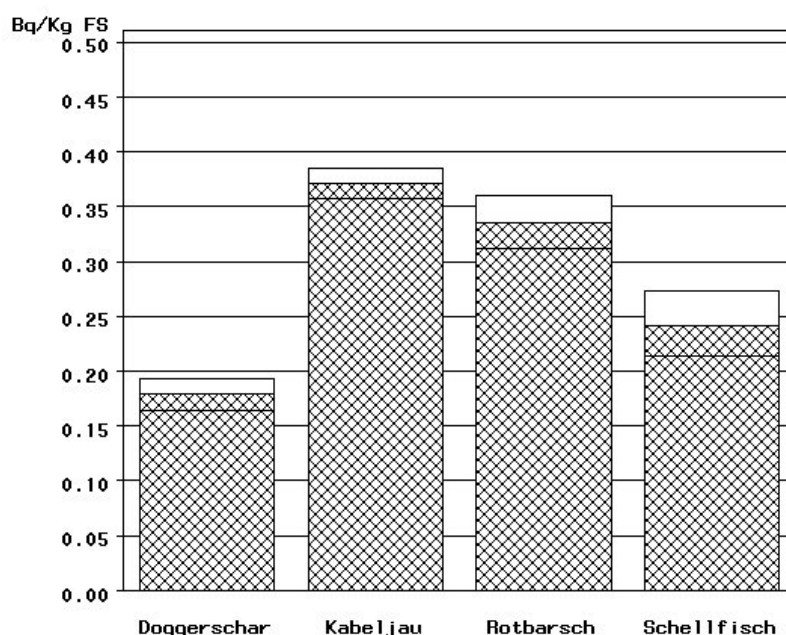


Abb. 4.2.14: Cs-137 in Fischen der Barentssee (1992-2001) als Ergebnis einer Varianzanalyse: Mittelwert und dessen 95% Konfidenzintervalle

Die Mittelwerte für Kabeljau und Rotbarsch sind nicht signifikant verschieden, ebenfalls nicht diejenigen für Schellfisch und Doggerscharben. Unterschiede zwischen diesen beiden Gruppen sind jedoch signifikant. Dieses Ergebnis bestätigt die zweckmäßige Wahl des Kabeljau als Referenzfisch für die Barentssee, um Cs-137 Gehalte in Fischen zu kontrollieren.

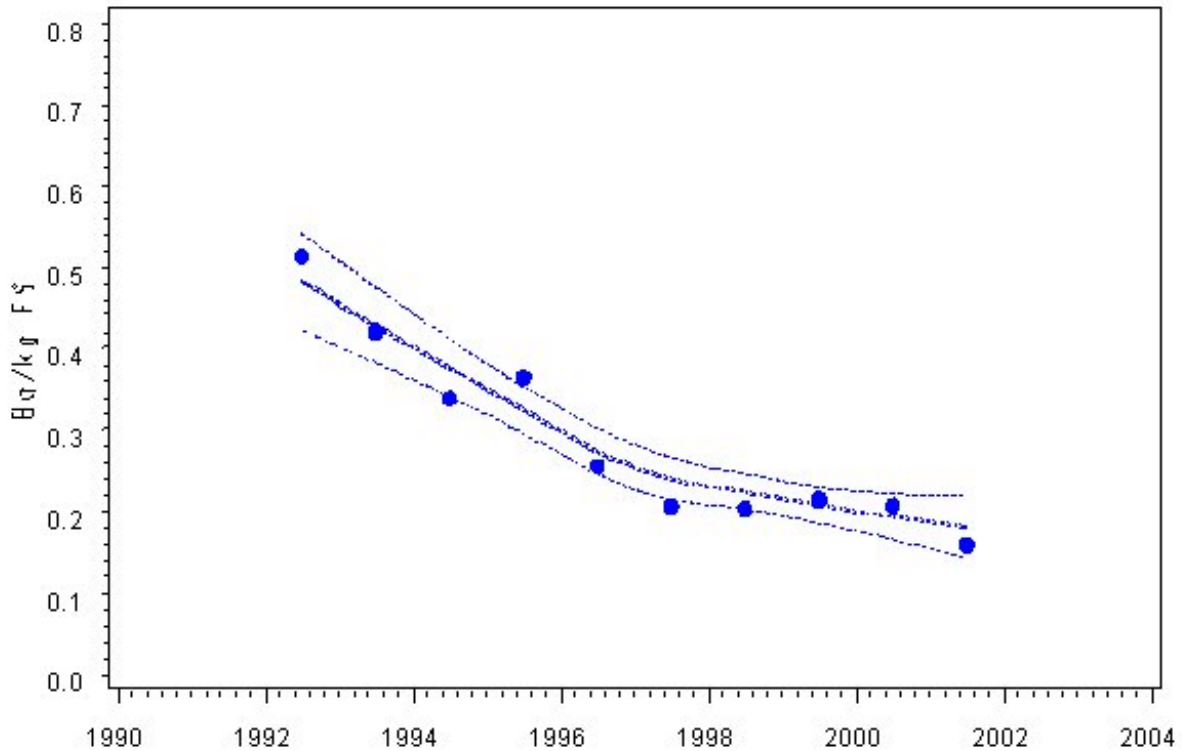


Abb. 4.2.15: Cs-137 Gehalte in Fischen der Barentssee mit LOESS Glättungskurve

b) Zeitabhängigkeit

Die Ergebnisreihe der Klasse Probenahmejahr zeigt genau so wie diejenige aus den Kabeljaudaten des Projektes einen abnehmenden Trend, allerdings überlagert durch eine gut sichtbare Streuung. Um diese weitgehendst auszublenden, wurde die Datenreihe mittels der Prozedur LOESS in SAS (vergl. Abb. 4.2.15) geglättet. Als Ergebnis zeigt sich quasi ein Zweistufen Prozeß. Eine schnellere Abnahme bis etwa 1997 und danach eine langsamere. Innerhalb des Konfidenzbereichs ist der zweite Teil auch mit einem konstanten Term verträglich. An diese Reihe wurde ebenfalls das Modell mit der Kombination eines exponentiell abfallenden und eines konstanten Terms angepaßt. Das Ergebnis ist als Kurve mit dem Konfidenzband (Standardabweichung) in Abb. 4.2.16 gemeinsam mit den Jahresdaten (Mittelwert und Standardabweichung) dargestellt. Die Modellparameter wurden geschätzt zu:

Anfangswert	$0,38 \pm 0,03$ Bq/kg FM (Januar 1994)
Endwert	$0,18 \pm 0,02$ Bq/kg FM
Halbwertszeit	$1,8 \pm 0,4$ Jahre

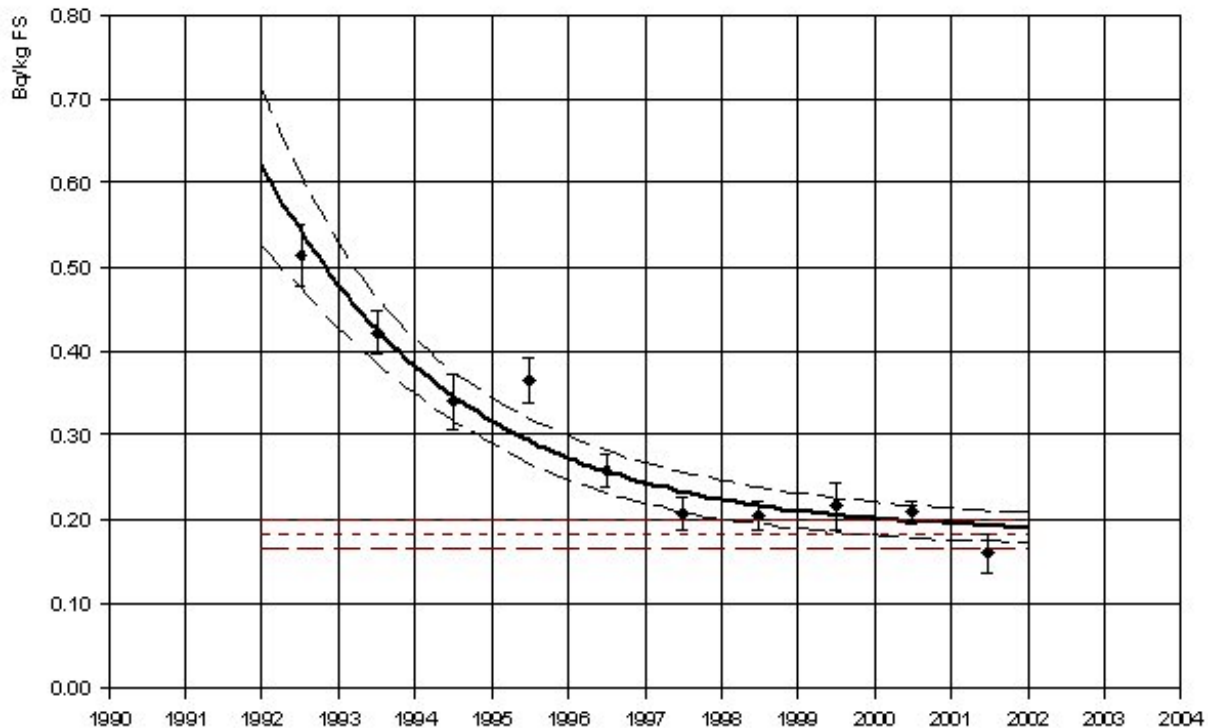


Abb. 4.2.16: Cs-137 Gehalte in Fischen nach der Varianzanalyse mit dem Modell des Abklingens

Die Halbwertszeiten für beide Gruppen mit 2,0 bzw. 1,8 Jahre stimmen innerhalb der Unschärfe überein. Dagegen wurden für die Reihe „Fische“ sowohl der Anfangs- als auch der Endwert kleiner geschätzt als für die Reihe „Kabeljau“. In der Reihe „Fische“ hatte Kabeljau entsprechend der gefundenen Rangfolge die höchsten Gehalte gezeigt, rund das 1,3 Fache des Mittelwertes über die vier Gruppen. Daher ist es nicht verwunderlich, wenn bei einer Untersuchung mit ausschließlichen Werten von Kabeljau sich tatsächlich höhere Schätzer herauskommen. Das Verhältnis der Anfangswerte ist mit 0,51 zu 0,38 rund 1,3, also gerade das eben beschriebene Verhältnis. Die Endwerte stehen im Verhältnis 0,22 zu 0,18, was einen Faktor 1,2 ergibt. Bei der gegebenen Unschärfe der Schätzer ist das Ergebnis auch noch als gute Übereinstimmung mit dem Faktor 1,3 anzusehen.

4.2.1.3 Biokonzentrationsfaktor

Zur Bestimmung des Biokonzentrationsfaktors (Bioconcentrationfactor BCF) wurden Mittelwerte über alle Wasserproben der Barentssee von der jeweiligen Reise gebildet. Aus dem Ergebnis der Varianzanalyse wurden geschätzte Cs-137 Gehalte für 70 cm lange Fische abgeleitet. Aus diesen Werten ergeben sich die in Tabelle 4.2.5 dargestellten Biokonzentrationsfaktoren. Diese Faktoren wurden schlicht berechnet als Quotient aus den angegebenen Zahlen für Gehalt im Fisch und Konzentration im Wasser.

Tabelle 4.2.5: Biokonzentrationsfaktoren für Caesium

Jahr	Wasser mBq/l	Fisch Bq/kg FM	BCF l/kg
1994	3,33 +/- 0,16	0,461	138
1997	2,93 +/- 0,12	0,302	103
2000	2,56 +/- 0,11	0,254	99

Der abnehmende Gang des Faktors von 1994 bis 2000 findet seine Erklärung in der Dynamik des Systems Wasser / Fisch. Das System hatte sich im Jahr 1994 offenbar nicht in

einem dynamischen Gleichgewichtszustand befunden. Auf die bereits beschriebene abnehmende Konzentration im Wasser (insbesondere vor 1994) reagiert der Fisch aufgrund der biologischen Halbwertszeit für die Austauschprozesse verzögert. Er hat noch Gehalte gespeichert, die in dieser Situation mit abnehmenden Werten im Wasser noch aus früheren höheren Konzentrationen im Wasser entstanden sind. Daher fallen die angegebenen Faktoren zu hoch aus. Die im Jahr 2000 gefangenen Fische stammten aus einer Zeit mit wenig geänderten Cs-137 Konzentration im Wasser. Die beiden letzten Faktoren stimmen ziemlich gut mit dem von der IAEA (1985) als Referenz für Cs im Fisch angegebenen Wert von 100 l/kg überein.

4.2.1.4 Cs-Isotopenverhältnis

Nach dem Tschernobylunfall (28.04.1986) wurde wieder Cs-134 in Umweltproben nachgewiesen. In Wasserproben der Barentssee konnte es im Jahr 1994 an den beiden Positionen entlang der Norwegische Rinne mit $0,21 \text{ Bq/m}^3$ (20% Standardfehler) nachgewiesen werden. Weiter nördlich in der Barentssee war kein Nachweis in den großvolumigen Wasserproben (NWG ca. $0,15 \text{ Bq/m}^3$) mehr möglich. In Fischen konnte es zwischen 1992 und 1995 mit geringer werdendem Erfolg gemessen werden.

Tabelle 4.2.6: Verhältnis der Caesiumisotope in Fischfiletproben

Fangdatum	Meßbare Proben	Unter NWG	Cs-134/Cs-137	Standardfehler
April/Mai 1992	15	3	0,0300	0,0019
März 1993	25	17	0,0246	0,0008
Juli/August 1994	31	75	0,0169	0,0015
April 1995	7	14	0,0151	0,0015

Bei der Unfall bedingten Freisetzung des Cs-134 wird von einem Verhältnis des Cs-134 zum Cs-137 von 0,54 (Aarkrog, 1988) ausgegangen. Beide Isotope haben sich gleichartig in der Umwelt ausgebreitet. An Positionen, wo vor dem Unfall kein Cs-134 vorhanden gewesen ist, erlaubt das danach gemessenen Verhältnis der Cs-Isotope die Abschätzung des prozentualen Anteils des Cs-137 von Tschernobyl aus dem Gehalt an Cs-137. Dazu muß das Isotopenverhältnis wegen des unterschiedlichen physikalischen Zerfalls der Isotope der Zeitdifferenz vom Unfall bis zur Probenahme entsprechend berechnet werden.

Der von Sellafield herkommende Einstrom enthält neben dem Cs-137 auch geringe Aktivitäten an Cs-134. Es wurde im Zeitraum 1989 bis 1994 im Verhältnis von etwa 0,05 in die Irische See eingeleitet. Nach einer Fließzeit von 4 bis 5 Jahren wird dieses Verhältnis etwa 0,012. Ein Vergleich mit den Ergebnissen in Tabelle 4.2.6 verdeutlicht das Vorkommen von Tschernobyl-Cs nicht nur durch den Zeitraum des Nachweises, sondern auch über die aufgefundenen Anteile. Wenn vereinfachend so gerechnet wird, als ob der Cs-134 Eintrag nur durch den Tschernobyl Unfall erfolgen würde, dann ergäben sich die Cs-137 Anteile aus dieser Quelle wie in Tabelle 4.2.7 zusammengefaßt.

Tabelle 4.2.7: Cs-137 aus Tschernobyl in Filet von Fischen der Barentssee

Fangdatum	Cs-134/Cs-137	Unfall-Anteil
April/Mai 1992	0,0300	0,36
März 1993	0,0246	0,39
Juli/August 1994	0,0169	0,41
April 1995	0,0151	0,46

Der festzustellende Anstieg der geschätzten Tschernobyl Anteile wird offenbar dadurch verursacht, weil der aus Kernbrennstoffaufbereitungsanlagen stammende Teil gegenüber dem radioaktiv zerfallenden Tschernobylanteil, der aus einem einmaligen Ereignis stammt,

zunehmend an Gewicht gewinnt. Mit der Software ModelMaker wurde eine Simulation für den zeitlichen Verlauf des Auftretens von Tschernobyl Caesium gerechnet. Das am Unfallort charakteristische Isotopenverhältnis wird durch Zumischung von Cs-137 auf einen Bruchteil davon verdünnt, der durch den physikalischen Zerfall mit der Zeit kleiner wird. An dem im Wasser ermittelten Wert in der Norwegischen Rinne im Jahr 1994 angepaßt ist dieses Abklingen in Abb. 4.2.17 aufgetragen.

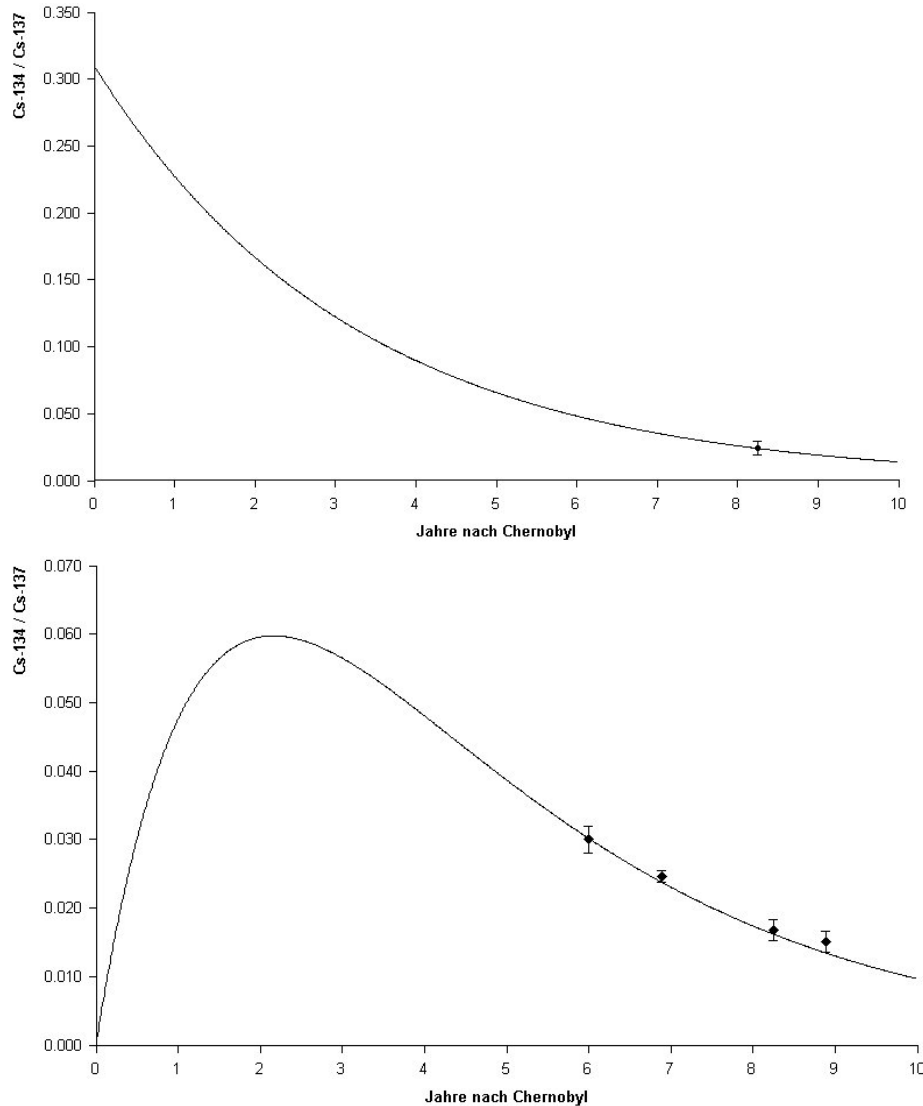


Abb. 4.2.17: Cs-134 im Wasser der südlichen Norwegischen Rinne und in Fischen der Barentssee mit simulierten Verlaufskurven

Angenommen wurde in dieser Simulation, dass das Tschernobylsignal kurzfristig einsetzt und danach der Einstrom dann konstant bleibt. Beide Isotope werden durch den Fisch gleichartig akkumuliert. Mit der Annahme, daß der Fisch zu Beginn nur Cs-137 und kein Cs-134 aufgenommen hatte, erfolgt quasi ein teilweiser Austausch des Cs-137 durch Cs-134. Ein Gleichgewichtszustand stellt sich dann ein, wenn im Fisch dasselbe Isotopenverhältnis erreicht ist, wie im Wasser. Infolge der biologischen Halbwertszeit erfolgt die Zunahme im Fisch nicht unmittelbar, sondern mit einer daraus resultierenden Verzögerung. Ausgehend von den in der Norwegischen Rinne geschätzten Verhältnissen im Wasser, wurde die Aufnahme im Fisch ebenfalls simuliert. Dabei wurde eine weitere Isotopenverdünnung bis zur Barentssee derartig angenommen, daß die in Abb. 4.2.17 gezeigte Simulation der Aufnahme durch den Fisch optimal die im Filet von Fischen der Barentssee ermittelten Verhältnisse wiedergab. Ein Wert für den Biokonzentrationsfaktor geht in diese Simulation

nicht ein. Er ist für beide Caesiumisotope gleich. Durch die Betrachtung des Isotopenverhältnisses kürzt er sich in der Beziehung heraus.

Als biologische Halbwertszeit wurde in dieser Simulation die zwischen 1992 und 2001 aus der Abnahme des Cs-137 in Fischen der Barentssee ermittelte Halbwertszeit von 2 Jahren verwendet. Diese Simulation beschreibt das Abklingen des Isotopenverhältnisses im Fisch sehr gut. Die beiden durch Anpassung bestimmten Verdünnungsfaktoren für das Isotopenverhältnis (Wasser 0,57 und Fisch 0,71) multipliziert ergeben 0,4. Das ist zahlenmäßig gleich dem Unfall-Anteil, wie er im Mittel in Tabell 4.2.7 angegeben worden ist.

4.2.1.5 Cs-137 im Sediment

Sedimentkerne wurden in den Jahren 1994 und 1997 mit dem Gemini-Twin-Corer gestochen und sogleich an Bord in Schichten zerlegt. Im Jahr 1994 sollte erst einmal ein Überblick über die Kontamination des Meeresbodens mit Cs-137 gewonnen werden. Verteilt innerhalb der ausgewählten Untersuchungsgebiete Nordkap, Zentralbank, Hope Insel und Bäreninsel wurden diverse Kerne gezogen. Das Stechrohr ging oftmals schräg in den Boden. Geschnitten werden konnten die Kerne an Bord aber nur senkrecht zur Stechachse. Bei dünnen Scheiben würden dann die einzelnen Segmente aus verschiedenen Tiefen stammen. Um hier eine Verfälschung zu vermeiden, wurde für die erste Übersicht die obere Schicht in einer Dicke von 5 cm als eine Probe behandelt. Die Abb. 4.2.18 zeigt eine Zusammenstellung von Einzelwerten nach Gebieten. Sie liegen etwa zwischen 1 und 7 Bq/kg Trockenmasse und reihen sich damit ein in andere Messungen (Foyn, 1997).

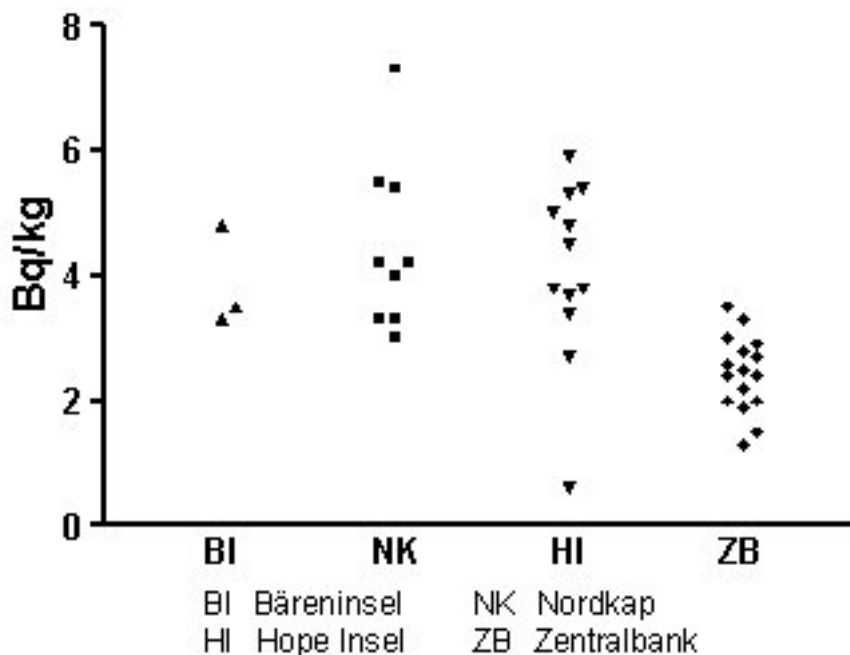


Abb. 4.2.18: Cs-137 in der oberen 5 cm tiefen Sedimentschicht

Im Mittel sind die Werte an Nordkap am höchsten, gefolgt von etwa vergleichbaren Werten an Bäreninsel und Hope Insel. Die niedrigsten Werte zeigten sich an Zentralbank. Eine Varianzanalyse bestätigt signifikante (5% Niveau) Unterschiede zwischen Zentralbank und allen übrigen Gebieten. Insgesamt zeigen die Werte innerhalb der Gebiete eine breite Streuung, was aber durchaus so zu erwarten ist, weil sedimentspezifische Kenngrößen wie z.B. Korngrößenzusammensetzung unberücksichtigt blieben. Die sorbierte Menge ändert

sich mit der Größe der Kornoberfläche und feinkörniges Material besitzt eine große Oberfläche.

Im Jahre 1997 wurde in allen Arbeitsgebieten Nordkap, Zentralbank, Schlupfloch, Hopen Insel, Bäreninsel und nordwestlich Spitzbergen der Twin-Corer abermals eingesetzt. Für Untersuchungen wurden nur sauber ausgestochene Kerne verwendet, bei denen der Corer nicht schräg in den Boden eingedrungen war. Beginnend an der Oberfläche wurden diese in Scheiben von 2, 3, 4 und 5 cm Dicke zerlegt. Von allen Kernen eines Gebietes wurden für diese Tiefen Mittelwerte der Cs-137 Gehalte gebildet. Die derart gewonnenen Profile der einzelnen Gebiete zeigt die Abb 4.2.19 . Es ist festzustellen, dass es offenbar generell zwei verschiedene Profilarten gibt. Zum einen sind die höchsten Gehalte in der obersten Schicht zu finden, mit quasi exponentiellem Abfall in den tieferen Schichten. Zum anderen zeigen sich die höchsten Gehalte erst in der darunter liegenden Schicht. Zur ersten Gruppe zählen die Gebiete Nordkap, Spitzbergen und Hope Insel, zur zweiten die Gebiete Schlupfloch, Zentralbank und Bäreninsel. Dieser Rückgang in der obersten Schicht hat offenbar dazu geführt, dass in der obersten Schicht im Jahr 1994, was dem Mittelwert aus den beiden oberen Schichten im Jahr 1997 entspricht, an Zentralbank und Bäreninsel im Mittel niedrigere Gehalte bestimmt wurden als an Nordkap und Hope Insel.

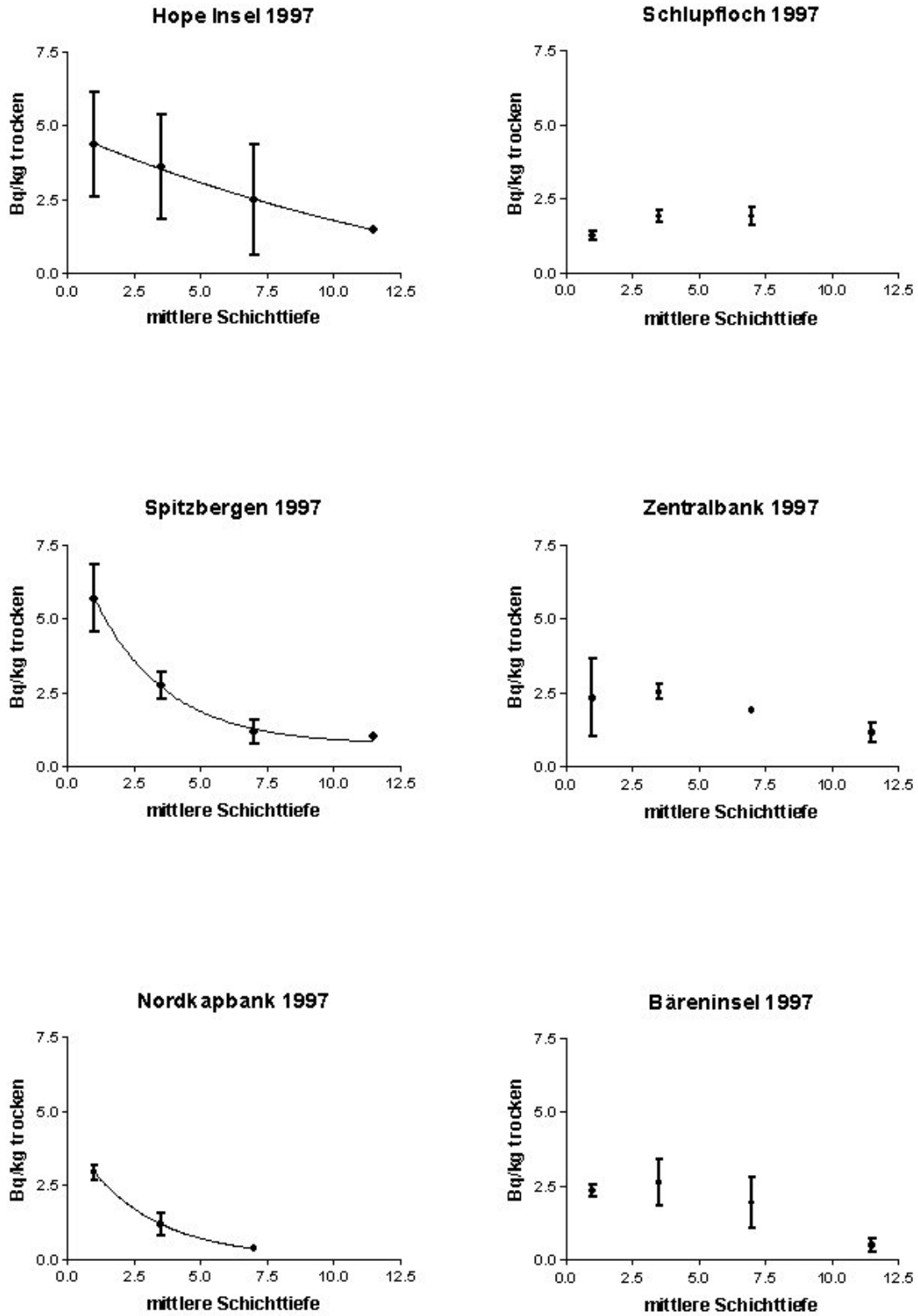


Abb. 4.2.19: Cs-137 in Sedimentkernen der Arbeitsgebiete. Mittelwerte und Standardabweichungen jeweils von bis zu drei Kernen.

4.2.2 Betastrahlung

An Betastrahlern analysiert wurde an dem Probenmaterial ausschließlich das Sr-90.

4.2.2.1 Strontium im Wasser

Im Jahr 1994 wurden Wasserproben von der Oberfläche und teilweise zusätzlich von 10 m über Grund auf Sr-90 analysiert. Im Jahr 1997 stammten die Proben aus 10 m und 100 m über Grund. Lediglich an Nordkap wurde ergänzend eine Oberflächenprobe genommen. Im Jahr 2000 wurden nur Proben 10 m über Grund geschöpft. An den Proben des Jahres 1994 zeigten sich über Grund durchweg geringfügig höhere Konzentrationen als an der Oberfläche. Die Oberflächenproben hatten an Nordkap die höchsten Werte, gefolgt von Hope Insel. Auch hatte die küstenferne Station südwestlich Spitzbergen ebenso hohe Werte wie Hope Insel. Richtung Küste nahm es um 20% ab.

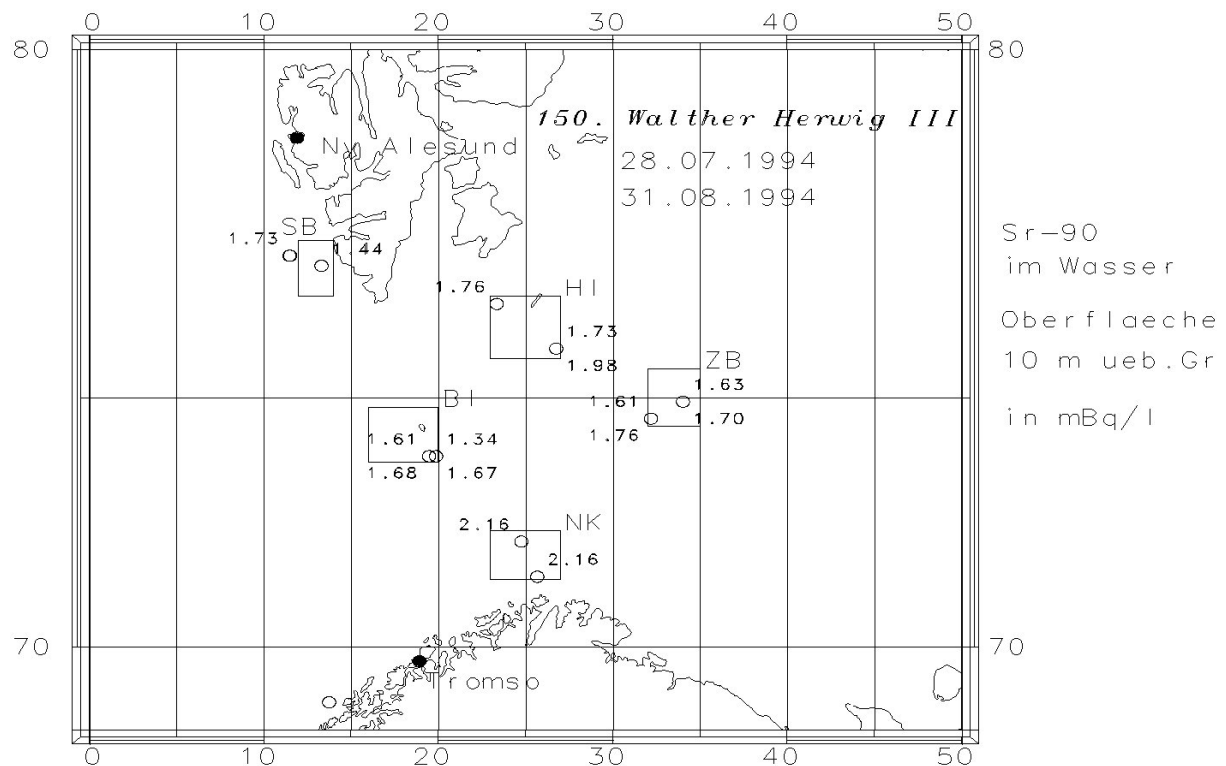


Abb. 4.2.20: Sr-90 im Wasser im Jahr 1994

Die Proben des Jahres 1997 aus 100 m über Grund hatten mit Ausnahme des Gebietes nordwestlich Spitzbergen etwas niedrigere Konzentrationen als die aus tieferen Schichten (Abb.4.2.21). Die niedrigsten Werte wurden, wie auch im Jahr 1994, an Bäreninsel bestimmt. Abgesehen von der Oberflächenwasserprobe an Nordkap, wurden die höchsten Werte nur in diesem Jahr untersuchten Gebiet Schlupfloch angetroffen. Von dort aus fallen die Werte über Zentralbank und Hope Insel nach nordwestlich Spitzbergen ab.

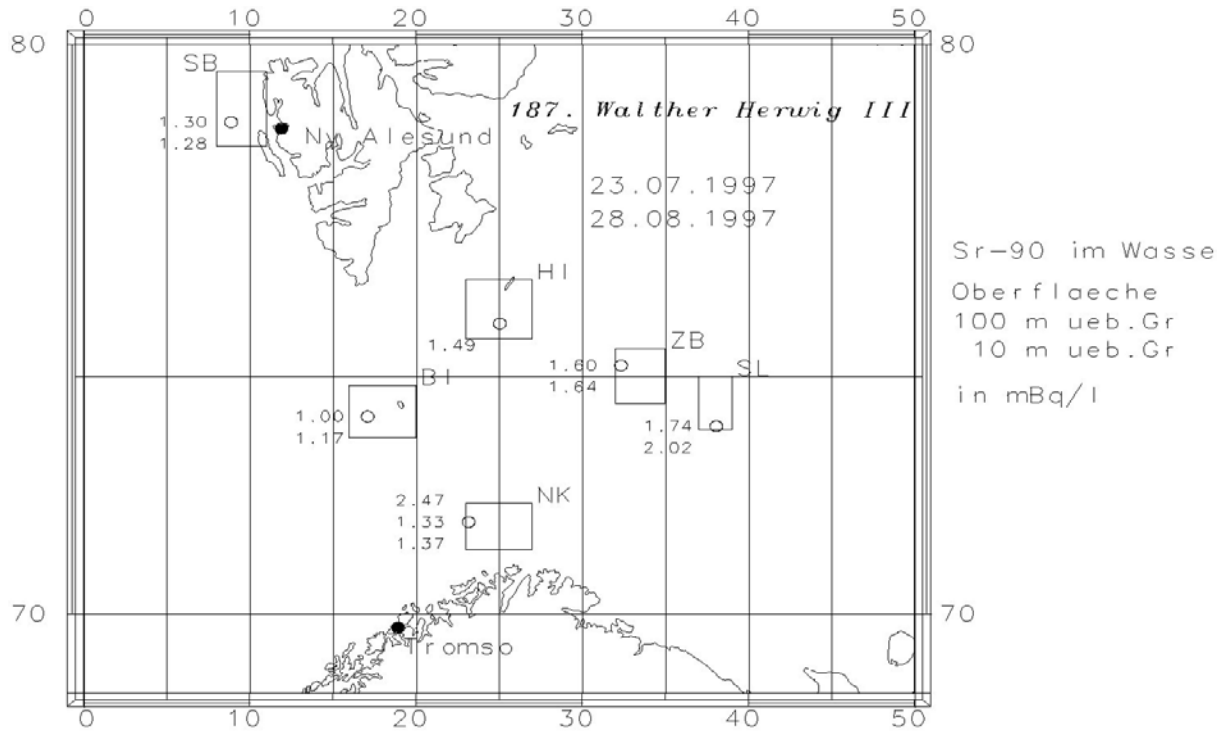


Abb. 4.2.21: Sr-90 im Wasser im Jahr 1997

Die im Jahr 2000 ermittelten Werte über Grund haben den höchsten Wert an Nordkap. Von dort aus fallen sie über Zentralbank und auch Bäreninsel nach südwestlich Spitzbergen hin wieder ab (vergleiche Abb. 4.2.22).

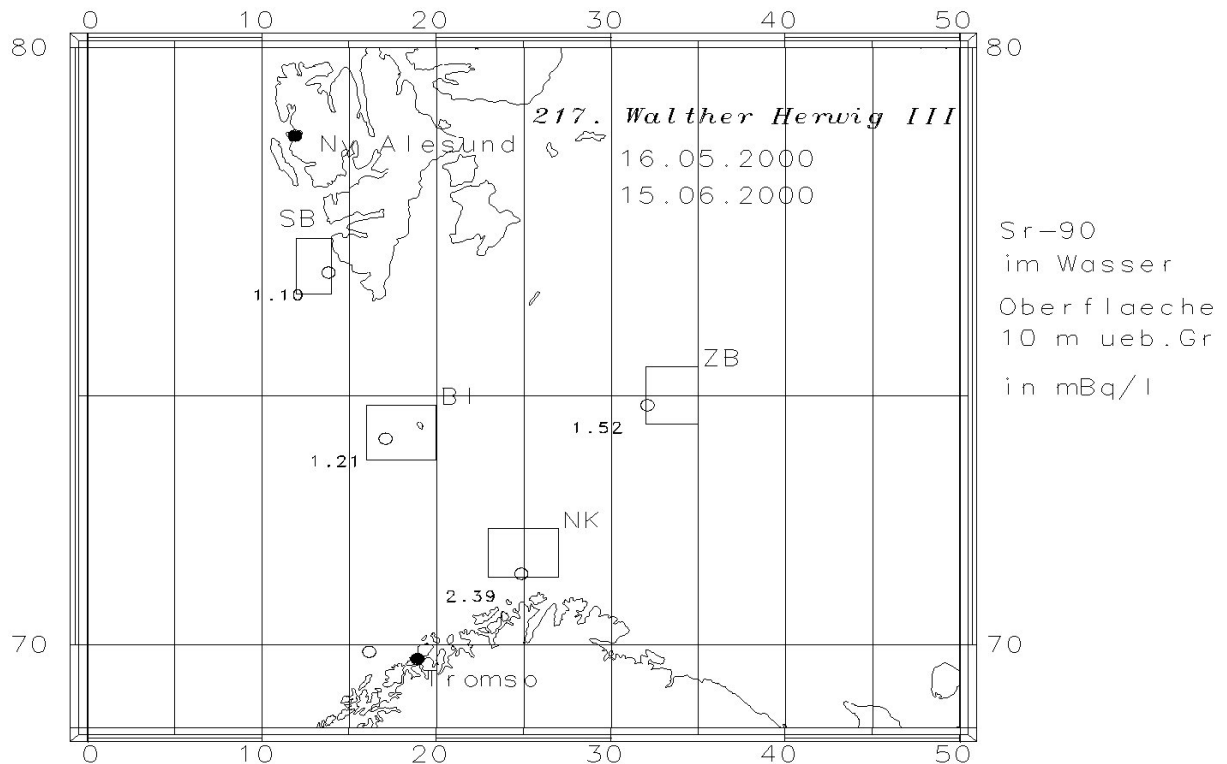


Abb. 4.2.22: Sr-90 im Wasser im Jahr 2000

4.2.2.2 Strontium in Fisch

Von den Filetproben des Kabeljau aus dem Jahr 1994 wurden insgesamt 25 Stück auf Sr-90 analysiert. Das Sr-90 zeigte sich im Fischfleisch nicht so häufig wie das Cs-137, das in allen Proben einwandfrei nachweisbar war. Für dieses Radionuklid lagen die Gehalte bei 15 Proben unterhalb der Nachweisgrenze, lediglich an 10 Proben war ein Meßwert verfügbar (Tab. 4.2.8). Dabei war eine regionale Abstufung zu erkennen. An Nordkap war der Anteil an nachgewiesenen Werten höher als der unterhalb der Nachweisgrenze, an Zentralbank und Hope Insel waren beide Gruppen gleich stark. An Bäreninsel und südwestlich Spitzbergen schließlich überwogen Werte unterhalb der Nachweisgrenze. Dieser Rückgang des Anteils an verwendbar gemessenen Proben geht regional einher mit der beobachteten Abnahme der Sr-90 Konzentration im Wasser.

Tab. 4.2.8: Probenzahl oberhalb und unterhalb der Nachweisgrenze

Gebiet	Nachgewiesen	Unterhalb NWG
ZB	4	4
HI	2	2
BI	1	4
SB	0	4
NK	3	1
Summe	10	15

Bedingt durch die radiochemische Probenaufbereitung war die Nachweisgrenze nicht konstant. Sie schwankte hier zwischen 0,6 und 5,2 mBq/kg FM. Die Meßwerte überdeckten den Bereich von 0,9 bis 3,9 mBq/kg FM. Mit einem speziellen statistischen Verfahren (Helsel und Cohn, 1988) wird unter Berücksichtigung von zensierten Daten, das sind hier die Werte unterhalb der Nachweisgrenze, der Mittelwert über eine angenommene Normalverteilung von Meßwerten errechnet. Hiernach ergibt sich über alle Gebiete ein mittlerer Gehalt von 1,35 +/- 0,17 mBq/kg FM im Filet von Kabeljau.

Zum Vergleich ergab sich an Kabeljauproben von kommerziellen Schiffen aus den Jahren 1992, 1993 und 1995, die ausschließlich vor der nordnorwegischen Küste und an Bäreninsel gewonnen wurden, folgendes Bild. Von ebenfalls 25 im IFÖ analysierten Proben waren lediglich 10 Stück unterhalb der Nachweisgrenze. Als Mittelwert resultiert daraus 1,55 +/- 0,15 mBq/kg FM. Alle diese 50 Proben gemeinsam ausgewertet habe als Mittelwert 1,47 +/- 0,11 mBq/kg FM. Im Jahr 1997 konnte Sr-90 nur in einer von 13 Proben mit 1,48 mBq/kg FM nachgewiesen werden. Die Nachweisgrenzen lagen bei diesen Proben zwischen 1,6 und 2,1 mBq/kg. Im Jahr 2000 wurden keine weiteren Proben auf Sr-90 analysiert.

4.2.2.3 Biokonzentrationsfaktor

Zum Abschätzen eines Biokonzentrationsfaktors stehen Werte für Fische nur aus dem Jahr 1994 zur Verfügung. Der leichte Rückgang der Konzentration im Wasser hat offenbar dazu geführt, daß bei gleicher Meßempfindlichkeit im Jahr 1997 fast alle Gehalte im Fischfleisch unterhalb der Nachweisgrenze lagen. Bekannt ist, dass Strontium wie das chemisch ähnliche Element Kalzium hauptsächlich in den Gräten eingelagert wird und fast nicht im Fleisch. Damit findet der niedrige BCF von 0,8 l/kg eine Erklärung (vergleiche Tab. 4.2.9).

Tab. 4.2.9: Biokonzentrationsfaktor für Strontium

Jahr	Wasser mBq/l	Fisch mBq/kg	BCF l/kg
1994	1,73 +/- 0,06	1,47 +/- 0,11	0,8
1997	1,53 +/- 0,11		
2000	1,55 +/- 0,29		

4.2.3 Alphastrahlung

An Alphastrahler analysiert wurde Plutonium. Gemessen wurde das Pu-238 und die Summe aus den beiden Isotopen Pu-239 und Pu-240, die in der gängigen Alphaspektroskopie linienmäßig nicht aufzutrennen sind. Das Summenergebnis wird als Pu-239/240 angegeben.

4.2.3.1 Plutonium im Wasser

Für das Jahr 1994 sind bei den Pu-239/240 Konzentrationen im Wasser Werte mit extremen Schwankungen zwischen 9,2 und 26,2 mBq/l ermittelt worden (vergleiche Abb. 4.2.23). Besonders auffallend ist, dass an zwei örtlich dicht nebeneinander liegenden Stationen an Bäreninsel, wo der zweite Wert mehr als doppelt so hoch ist wie der erste. Jedoch wurde die westliche Station (niedriger Wert) am 7.8.1994 und die östliche zwei Wochen später am 20.8.1994 beprobt. Zwischendurch wurden an Hope Insel und Zentralbank Proben genommen. Nach der zweiten Probe an Bäreninsel wurde anschließend im Gebiet Nordkap gearbeitet. Es hat hier den Anschein als sei zwischen Hope Insel, Zentralbank und Bäreninsel örtlich und zeitlich begrenzt ein Wasserkörper gewesen, der höhere Pu-239/240 Fracht hatte. Auffallend ist sowohl an Hope Insel, wie auch an Zentralbank, ein ausgeprägter Gradient. An den weiter außen liegenden Seiten der Arbeitsgebiete wurden Konzentrationen wie an Nordkap bzw. an der ersten Probe von Bäreninsel ermittelt. Der niedrigere Wert von 11,1 mBq/l an Bäreninsel ist durchaus verträglich mit dem von 12,7 mBq/l, der in Höhe der Lofoten bei der Abreise vorgefunden wurde. Ein weiteres Indiz für eine möglicherweise ungewöhnliche Kontamination ist das Verhältnis von Pu-238 zu Pu-239/240. Während das Verhältnis in den Wasserproben überwiegend bis 0,11 ging, stieg bei den Proben mit höheren Pu-239/240 Konzentrationen das Verhältnis auf 0,12 bis 0,15 an. Die anderen ebenfalls bestimmten Radionuklide, Cs-137 und Sr-90, vermitteln dagegen das Bild einer gleichmäßigeren Verteilung. In den anschließenden Untersuchungsjahren 1997 und 2000 ist solch ein Phänomen nicht wieder beobachtet worden (vergleiche Abb. 4.2.24 und 4.2.25).

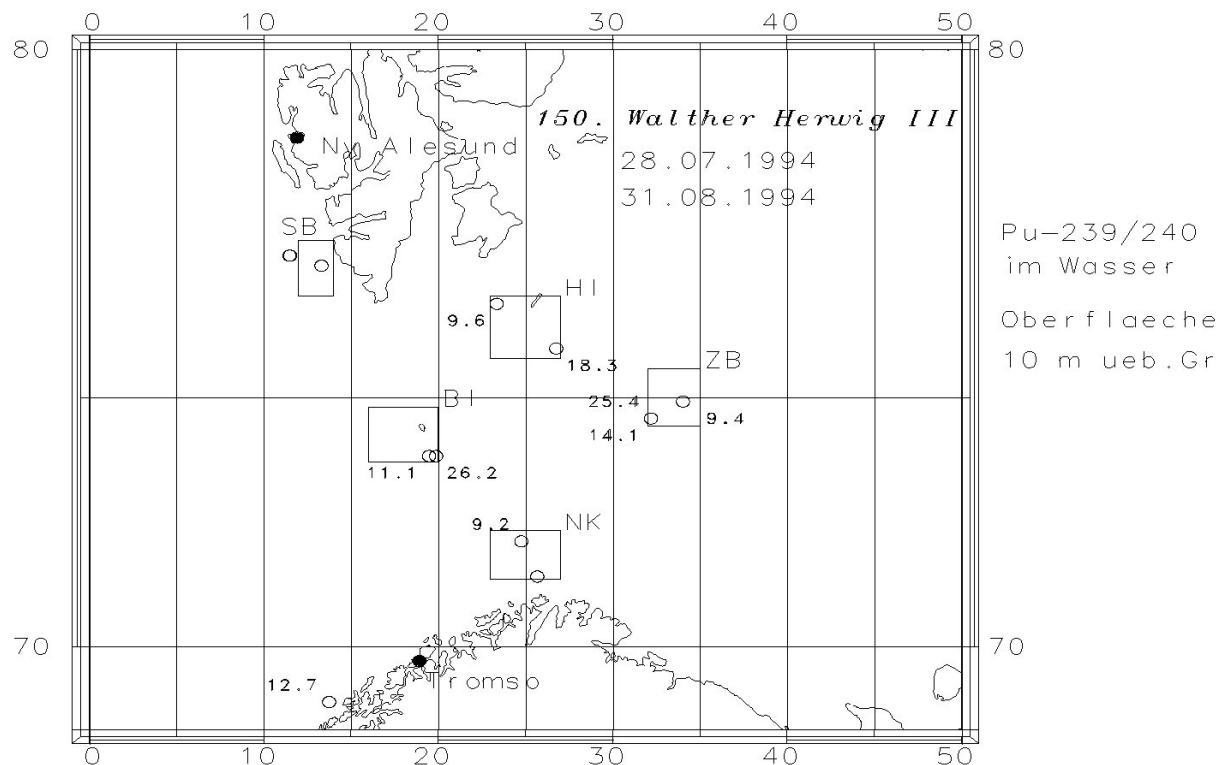


Abb. 4.2.23: Pu-239/240 im Wasser in $\mu\text{Bq/l}$ im Jahr 1994

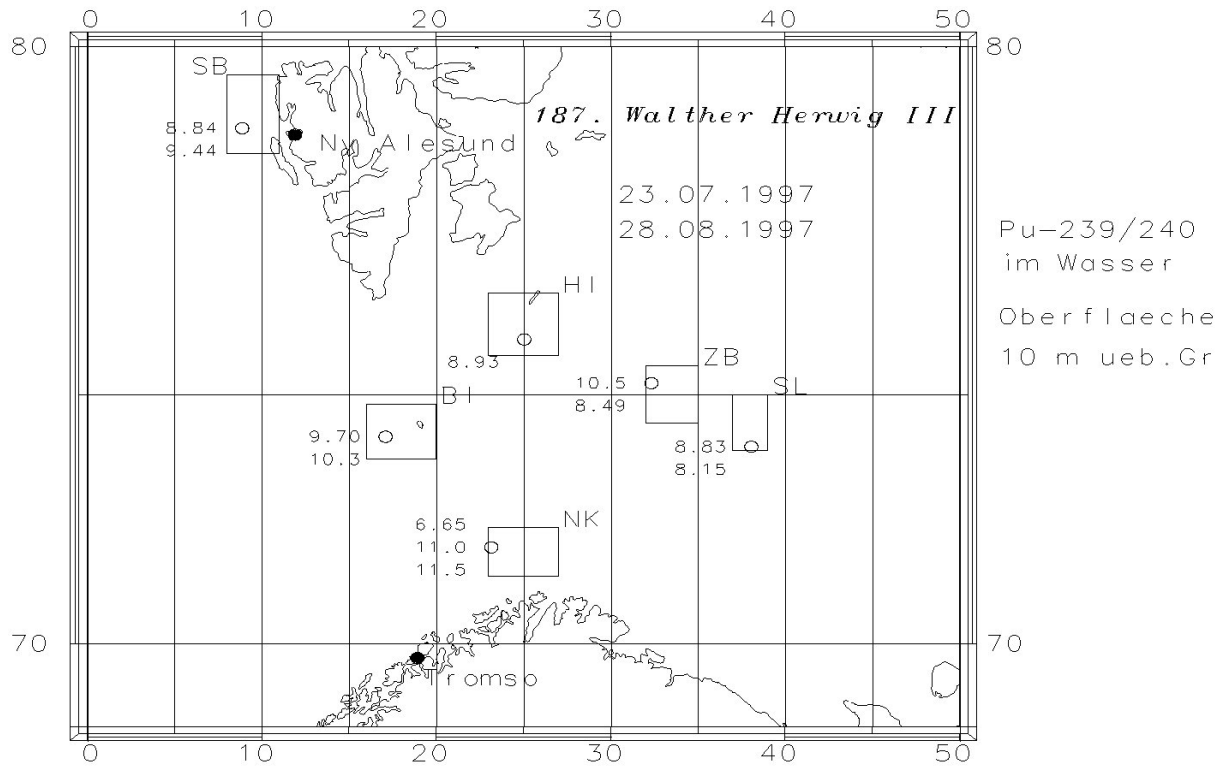


Abb. 4.2.24: Pu-239/240 im Wasser in µBq/l im Jahr 1997

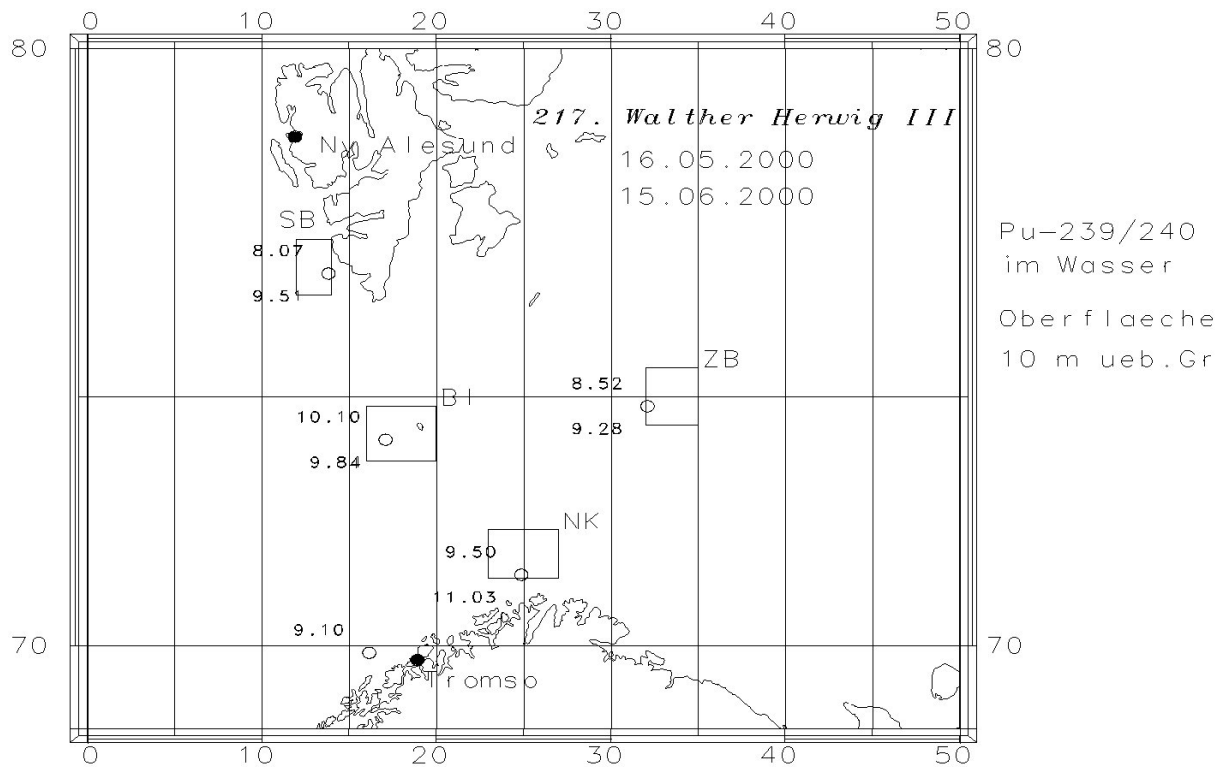


Abb. 4.2.25: Pu-239/240 im Wasser in µBq/l im Jahr 2000

4.2.3.2 Plutonium in Fisch

Von den Filetproben des Kabeljau aus dem Jahr 1994 wurden insgesamt 23 Stück auf Plutonium analysiert. Der Pu-238 Gehalt lag bei nur einer einzigen Probe oberhalb der Nachweisgrenze von etwa 0,01 bis 0,02 mBq/kg FM. Das Pu-239/240 zeigte sich im Fischfleisch anders als das Cs-137, das in allen Proben einwandfrei nachweisbar war. Für dieses Radionuklid lagen die Gehalte bei 13 Proben unterhalb der Nachweisgrenze, lediglich an 10 Proben war ein Meßwert verfügbar. Dabei war eine regionale Abstufung zu erkennen. An Bäreninsel und Hopen Insel war der Anteil an nachgewiesenen Werten höher als der unterhalb der Nachweisgrenze, an Zentralbank und Nordkap überwogen Werte unterhalb der Nachweisgrenze. Südwestlich Spitzbergen schließlich waren alle Ergebnisse unterhalb der Nachweisgrenze, wie aus Tabelle 4.2.10 ersichtlich. Dieser Rückgang des Anteils an verwendbar gemessenen Proben geht regional ungefähr einher mit den beobachteten Variationen der Pu-239/240 Konzentration im Wasser.

Tab. 4.2.10: Probenzahl oberhalb und unterhalb der Nachweisgrenze

Gebiet	Nachgewiesen	Unterhalb NWG
ZB	2	4
HI	3	2
BI	4	1
SB	0	3
NK	1	3
Summe	10	13

Bedingt durch die radiochemische Probenaufbereitung war die Nachweisgrenze nicht konstant. Sie schwankte hier zwischen 0,01 und 0,04 mBq/kg FM. Die Meßwerte überdeckten den Bereich von 0,015 bis 0,062 mBq/kg FM. Mit einem speziellen statistischen Verfahren wird unter Berücksichtigung von zensierten Daten, das sind hier die Werte unterhalb der Nachweisgrenze, der Mittelwert über eine angenommene Normalverteilung von Meßwerten errechnet. Hiernach ergibt sich über alle Gebiete ein mittlerer Gehalt von 0,018 +/- 0,003 mBq/kg FM im Filet von Kabeljau.

Im Jahr 1997 wurden nur Proben aus dem Gebiet Bäreninsel auf Plutonium untersucht. Von sieben Proben hatten 4 Stück Gehalte unterhalb der Nachweisgrenze. Als Mittelwert ergab die Abschätzung 0,028 +/- 0,005 mBq/kg FM. Im Jahr 2000 entstammten die untersuchten Proben dem Gebiet Zentralbank. Von ebenfalls 7 Proben lag bei lediglich einer der Gehalte unterhalb der Nachweisgrenze. Als Mittelwert ergab die Abschätzung die gleichen Zahlen wie im Jahr 1997 an Bäreninsel, wiederum 0,028 +/- 0,005 mBq/kg FM.

4.2.3.3 Biokonzentrationsfaktor

Ausgehend von Mittelwerten von Pu-239/240 im Wasser und im Kabeljau gemäß Tabelle 4.2.11 wurde der jeweilige Biokonzentrationsfaktor (Bioconcentrationfactor BCF) als Verhältnis von Konzentration im Fisch und Konzentration im Wasser bestimmt. Dabei wurden die Mittelwerte aus allen vorhandenen Analysewerte von Proben der Barentssee errechnet.

Tab. 4.2.11: Plutonium Biokonzentrationsfaktor

Jahr	Wasser µBq/l	Kabeljau µBq/kg FM	BCF l/kg
1994	15,4 +/- 2,5	18 +/- 3	1,2
1997	9,4 +/- 0,4	28 +/- 5	3,0
2000	9,5 +/- 0,3	28 +/- 5	2,9

Der Biokonzentrationsfaktor ist als Verhältnis der Konzentrationen definiert, wenn der Stoffaustausch zwischen den Kompartimenten, hier Wasser und Fisch, einen Gleichgewichtszustand erreicht hat. Falls dynamisch Änderungen beispielsweise im Wasser vorkommen, dann ist in diesem Modell mit entsprechenden Differentialgleichungen zu rechnen. Wegen der biologischen Halbwertszeit für die Angleichung, zeigen sich Konzentrationsänderungen im Fisch verzögert gegenüber denen im Wasser. So ist der relativ kleine BCF für 1994 erklärbar. Im Wasser waren höhere Konzentrationen gemessen worden und es war noch nicht genügend Zeit für entsprechende höhere Aufnahme in den Fisch verstrichen. In den Jahren 1997 und 2000 dagegen lagen offenbar ausgeprägter stationäre Verhältnisse vor und es zeigte sich für beide Jahre ein übereinstimmender BCF von rund 3 l/kg für Kabeljaufilet.

4.2.3.4 Plutonium Isotopenverhältnis im Wasser

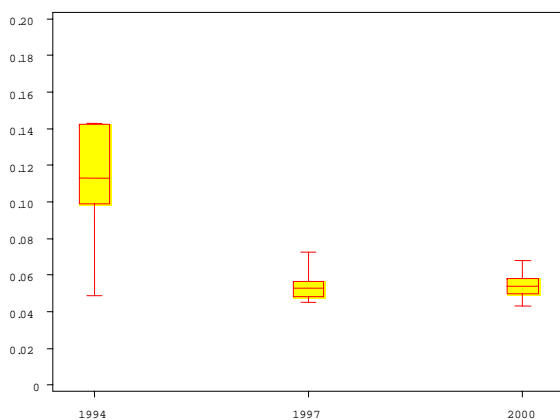


Abb: 4.2.26: Verhältnis von Pu-238 zu Pu-239/240

Die Abbildung 4.2.26 gibt als Box und Whisker-Plot einen Eindruck von der Verteilung der Verhältnisse von Pu-238 zu Pu-239/240. In die Box vom 25% Quantil bis zum 75% Quantil ist der Median eingezeichnet. Die Whisker gehen bis zum kleinsten bzw. größten Wert. Der Median des Verhältnisses war im Jahr 1994 mit 0,11 etwa doppelt so hoch wie in den beiden anderen Jahren, in denen er gleichbleibend rund 0,055 war. Das einzige extrem niedrige Verhältnis wurde 1994 an Hope Insel festgestellt, an der von Zentralbank abgewandten Seite. Dort war auch weniger Pu-239/240 bestimmt worden.

Für Proben aus dem Jahr 2000 sind in der Abbildung 4.2.27 die Konzentrationen für beide Plutoniumisotope und für ihr Verhältnis eingetragen. Darin mit aufgenommen sind die beiden Stationen entlang der Norwegischen Rinne und diejenige nördlich Tromsø. Stationen über Grund sind durch das Anhängsel „G“ gekennzeichnet. Auffällig ist der Anstieg der Pu-239/240 Konzentration von Bergen bis Nordkap. Durch die Barentssee hindurch und bis Spitzbergen zeigen sich etwa gleichbleibende Werte. Beim Pu-238 dagegen deutet sich für die Oberflächenproben eine Abnahme in der gleichen Probenfolge an. Proben über Grund haben für beide Isotope zumeist höhere Konzentrationen als an der Oberfläche. Im Pu-Verhältnis verstärken sich die beiden unterschiedlichen Konzentrationsverläufe. Das Verhältnis geht von fast 0,14 in der südlichen Norwegischen Rinne auf konstante Werte von 0,05 in der Barentssee zurück. Proben vom Grund zeigen keine systematischen Unterschiede gegenüber denjenigen von der Oberfläche an.

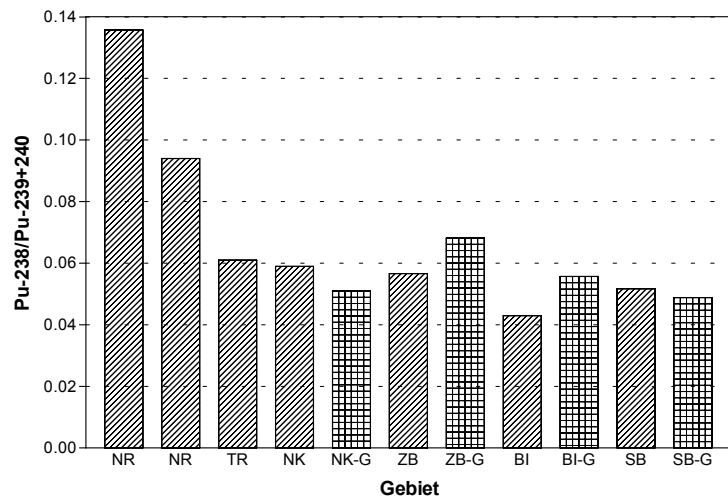
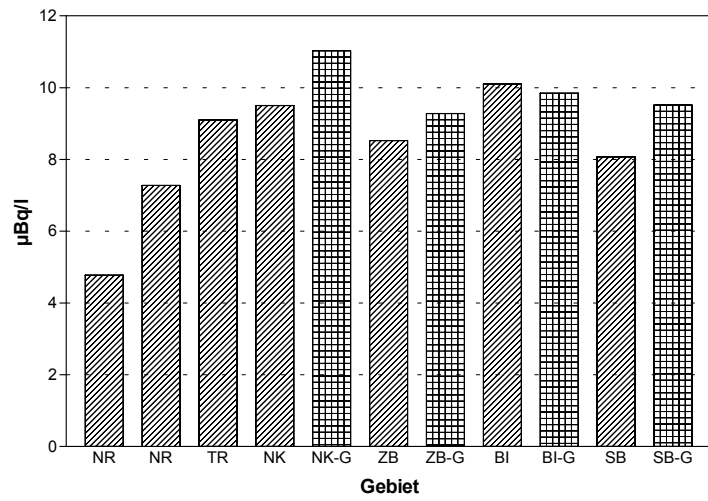
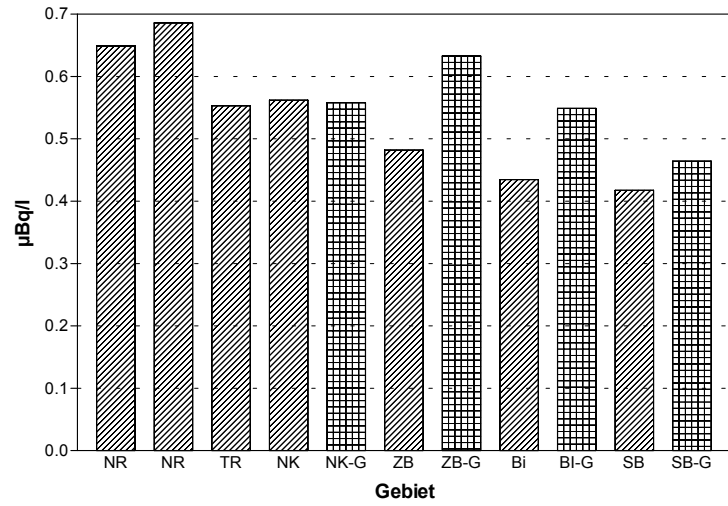


Abb. 4.2.27: Plutonium im Wasser im Jahr 2000.
Oben: Pu-238. Mitte: Pu-239,240. Unten: Aktivitätsverhältnis.

5. Projektergebnisse

Für dieses Projekt wurden Daten im Zeitraum von 1997 bis 2000 erhoben. Dieses ist ein relativ enges Zeitfenster, um die getätigten Beobachtungen in den verschiedenen Ökosystemen sachgerecht zu deuten und langfristig ablaufende Änderungen von kurzzeitig auftretenden Beeinträchtigung zu unterscheiden. Hierfür steht auch die Beurteilungsgrundlage, bei uns das Untersuchungsmaterial, zum Teil nicht mit der gewünschten Informationsschärfe zur Verfügung. Gerade biologisches Probenmaterial zeigt allgemein in den Analyseergebnissen von Schadstoffen, und genauso auch für Radionuklide, eine erhebliche Individualstreuung. Als Richtwert kann in solchen Fällen als Lagewert beispielsweise der Mittelwert mit einem nur durch höhere Probenzahlen enger werdendem Vertrauensintervall bestimmt werden. Hier sind aber Grenzen gesetzt. In der Tiefsee ist der Zeitaufwand für Geräteeinsätze bei Probenahmen im Grundnähe erheblich. Gemeint ist damit die Zeitspanne, während der das Gerät außenbords ist. Eingeschlossen darin sind die Transferzeiten zum und vom rund 5000 m entfernten Grund. In der zur Verfügung stehenden Schiffszeit ist daher nur eine begrenzte Anzahl von Einsätzen durchführbar. Als weiteres Problem kommt in dem weit entfernt liegenden Tiefseegebiet hinzu, daß nach Ausfall von Spezialgeräten während einer Reise bestimmte Probenahmen nicht mehr möglich sind. Das führt zu gravierenden Informationslücken.

Wenn außerdem die Besiedlungsdichte so gering ist, daß nur wenig Biomasse pro Einsatz erhalten wird, dann steht nun einmal wenig Material für die Beurteilung zur Verfügung. Das Problem mit der geringen Biomasse zeigt sich ebenso in der Ostsee beim Dorsch und in der Nordsee beim Kabeljau. Durch den Bestandsrückgang haben wir an verschiedenen Positionen überhaupt keinen Fang mehr und haben Schwierigkeiten, die eigenen langjährigen Untersuchungsreihen aussagekräftig fortzuführen.

Wir haben daher, um augenblicklich einen grundsätzlichen Überblick zu gewinnen, als Ergänzung der Projektdaten die weiteren hier im Hause seit längerem analysierten Daten mit in die Beurteilung einbezogen. Die älteren Radioaktivitätsdaten (1980 –1993), insbesondere der Tiefsee-Biota, sind in diesem Bericht erstmalig in derart kompakter Form, insbesondere auch die Zeitreihen, ausgewertet worden. Damit reicht der Datenbestand für das Tiefseegebiet bis zum Anfang der achtziger Jahre zurück. Aus der Barentssee wurden im Jahr 1992 erste Fischproben mitgebracht. Leider bestehen in den Zeitreihen trotz der Zusammenführung aller vorhandener Daten etliche Lücken, weil nicht bei jeder Forschungsreise alle Arbeitsgebiete beprobt werden konnten. Trotzdem zeichnen sich einige typische Verläufe ab.

In den untersuchten Gebieten sind stets Einwirkungen von verschiedenen Quellen radioaktiver Stoffe zu erwarten. So ist beispielsweise in der Tiefsee die generelle Frage, ob die Radioaktivität aus den versenkten Fässern, oder ob sie aus abgesunkenem radioaktivem Fallout auf die Wasseroberfläche stammt. Allein aus der Radionuklidkonzentration in der Probe kann nicht auf eine bestimmte Quelle rückgeschlossen werden. Bessere Einsicht bringen in solchen Fällen oftmals die relativen Anteile der Konzentrationen verschiedener Radionuklide. Allerdings können beispielsweise Nuklidverhältnisse im Oberflächenwasser nicht bedenkenlos auf Nuklidverhältnisse in der über Grund vorgefundenen Biosphäre übertragen werden. Denn durch unterschiedlich starke, stoffspezifische Anreicherung im biologischen Material erfolgt eine Änderung dieses Verhältnisses. Die zu einer adäquaten Umrechnung benötigten Anreicherungsfaktoren sind aber nicht ausreichend genug bekannt. Günstiger ist es, wenn verschiedene Isotope eines Atoms vorkommen, wie beispielsweise beim Plutonium. Dann sind die durch chemisches Verhalten geprägten Anreicherungsfaktoren gleich und folglich bleibt das Isotopenverhältnis beim Durchgang durch das Nahrungsnetz unverändert. In diesem speziellen Fall werden bei Vorhandensein von zwei Quellen Rückschlüsse auf ihre Einflussstärke möglich. Vom Plutonium wird einerseits das Isotop Pu-238 und andererseits die Summe der Isotope Pu-239 und Pu-240 beobachtet. Weil deren Verhältnis für Material aus dem Kernwaffenfallout ein anderes ist als

für Reststoffe aus der friedlich genutzten Kerntechnik, wie in den Abfallfässern, bietet sich hier die Möglichkeit, die Beeinflussung durch beide Quellen feststellen zu können.

Die Gegenüberstellung von Proben aus dem Versenkungsgebiet, Gebiet „B“, und aus dem Vergleichsgebiet, Gebiet „B-Ost“ hat bezüglich der Alphastrahler ergeben, daß bei den meisten der diskutierten Isotopenverhältnissen sich in Biota keine signifikanten Unterschiede hervortun. Eine Ausnahme bildet allerdings das Pu-Isotopenverhältnis. Hierin zeigt sich im Versenkungsgebiet bereits ab Anfang der neunziger Jahre ein erhöhter Anteil des Pu-238. Bei der Versenkung der Abfallstoffe in ausbetonierten Fässern war davon ausgegangen worden, dass sich nach Korrosionseinwirkungen an den versenkten Fässern daraus entweichende Radioaktivität mit geringer Quellstärke großvolumig verteilt und somit örtlich nur in geringer Konzentration auftreten sollte.

Das im Versenkungsgebiet beobachtete höhere Pu-Isotopenverhältnis kann durchaus als Signal dafür gewertet werden, dass aus den Abfallbehältern frei gesetzte Radioaktivität in der Biosphäre angekommen ist.

Beim Cs-137 haben wir im Versenkungsgebiet über Grund im Wasser höhere Konzentrationen ermittelt als im Vergleichsgebiet. In Benthosproben, ebenso wie in den Macrouridae ist dagegen kein wesentlicher gebietsbezogener Unterschied zu erkennen. Die Cs-Aufnahme durch Fisch erfolgt nach unseren Deutungen weniger unmittelbar aus dem sie umgebenden Wasser, sondern hauptsächlich über die aufgenommene Nahrung. Insbesondere in tiefen Gewässern stellt sich deutlicher der Transfer über die Nahrung dar. Die Primärproduktion, das sind durch Sonneneinstrahlung gewachsene Algen, erfolgt in der obersten bis zu etwa 100 m tiefen Schicht. Darunter erfolgt der Nahrungstransfer durch „fressen und gefressen werden“. So gelangt die zum Leben nötige Energie in Form von Biomasse bis zum Grund. Das Cs wird in der obersten Schicht quasi als Wirkung seiner Konzentration im Oberflächenwasser in das Nahrungsnetz eingebracht und dann weitertransportiert. **Damit steht die Cs-137 Aktivität im Futter der über Grund lebenden Macrouridae viel enger in Beziehung zur Cs-137 Konzentration im Oberflächenwasser als zu der im Wasser über Grund.** Der ermittelte Konzentrationsfaktor aus dem Gehalt im Fisch über Grund und der Konzentration im Oberflächenwasser stimmt gut überein mit dem von der IAEA empfohlenen Richtwert von 100 l/kg. Parallel wurde solche Beziehung von uns auch an Dorsch der Ostsee beobachtet, der nach dem Tschernobyl-Unfall in Wassertiefen gefangen worden war, wo sich das Cs-137 zu der Zeit noch in der Eindringphase befand. Solche Gebiete waren damals durch hohe Gradienten der Cs-137 Konzentration in die Tiefe charakterisiert.

Weil im Versenkungsgebiet die Cs-137 Konzentration im Oberflächenwasser genau so hoch ist, wie im Vergleichsgebiet, unterscheiden sich die Gehalte in den Macrouridae der Tiefsee nicht. Es wird bei Zusammenfassung der Daten aus allen Gebieten ein Abklingen der Cs-137 Aktivität sichtbar. Diese geschieht mit einer effektiven Halbwertszeit von rund 15 Jahren. Die so ermittelte ökologische Halbwertszeit ist etwa dieselbe Halbwertszeit, mit der die Konzentration im Oberflächenwasser durch Rückgang des atmosphärischen Eintrags und durch Verteilen bzw. Absinken des Inventars in größere Tiefen abnimmt.

Höhere Konzentrationen des Cs-137 im Wasser des Versenkungsgebietes deuten wie beim Pu-238 auf die versenkten Fässer als Quellen hin. Wenn sich im Gegensatz zum Pu beim Cs in den Biota für beide Gebiete gleich hohe Cs-137 Gehalte darstellen, dann liegt das am unterschiedlichen Adsorptionsverhalten der beiden Nuklide. Das Cs verbleibt größtenteils im gelösten Zustand im Wasser, während sich das Pu mit hoher Affinität beispielsweise an Schwebstoffe anlagert und so über den Wasser/Kiemen Pfad durch Sorption an der Kiemenoberfläche einen Weg in den Fisch hinein findet. Daher spiegeln sich für dieses Element lokale Konzentrationen im Wasser auch im Fisch und ebenso in anderem biologischen Material wieder.

Eine Gegenüberstellung der mittleren Cs-137 Gehalte in unseren Leitfischen, Macrouridae in der Tiefsee, Kabeljau in der Nordsee und in der Barentssee und dem gleiche Fisch in der Ostsee, der dort allerdings Dorsch genannt wird, ergibt in etwa folgende momentanen Werte:

Barentssee	0,3 Bq/kg FM
Nordsee	0,6 Bq/kg FM
Ostsee	20,0 Bq/kg FM
Tiefsee	0,2 Bq/kg FM

Die höchsten Gehalte sind in der Ostsee zu finden. Die dort noch vorhandenen Bestände des Tschernobyl Unfalls werden aufgrund der hydrologischen Bedingungen nur sehr zögernd über den einzigen Ausfluß durch den Skagerak abgebaut. Es existiert eine relativ hohe Austauschzeit. Daher sind dort die Gehalte im Fisch jetzt am höchsten. Die Nordsee tauscht zwar relativ schnell ihr Wasser aus, aber hier wird zusätzlich zu dem im Atlantikwasser vorhandenen Cs-137 immer noch solches von der Kernbrennstoffwiederaufbereitungsanlage Sellafield stammendes nachgeliefert. Wenn jetzt auch die Emissionen gegenüber früheren sehr stark zurückgegangen sind, so tritt jetzt eine Remobilisierung aus dem Sediment der Irischen See in Erscheinung und sorgt immer noch für einen merklichen Quellterm.

Aus beiden jetzt in unseren Breiten erkennbaren Quellen strömt belastetes Wasser entlang der Norwegischen Rinne in die Barentssee. Auf dem Weg dorthin wird es allerdings mit weiterem Atlantikwasser durchmischt, so dass die Konzentration des Cs-137 unterwegs stetig abnimmt. Durch die Barentssee läuft das Wasser in einem großen Wirbel. Daher treten dort keine wesentlichen Konzentrationsunterschiede mehr auf. Auch ist lediglich eine geringe Schichtung zu erkennen. Regionale Unterschiede in den Gehalten im Kabeljau sind wohl eher auf das Futterangebot zurückzuführen.

Bei einem Vergleich der betrachteten marinen Ökosysteme hinsichtlich ihrer radioaktiven Kontamination ist folgendes festzustellen: In der Tiefsee des im Nordostatlantik gelegenen NEA-Versenkungsgebietes macht der globale Fallout den größten Anteil der Radioaktivität aus, die dort bis 1982 versenkte Radioaktivität liefert nur einen kleinen Beitrag. Die Situation in der Nordsee wird wesentlich durch die radioaktiven Ableitungen der Wiederaufarbeitungsanlagen Sellafield und La Hague bestimmt, sowie durch den Zustrom von mit Tschernobyl-Caesium belastetem Wasser aus der Ostsee. Der Tschernobyl-Fallout bestimmt dominierend die radioaktive Kontamination der Ostsee. In der gering belasteten Barentssee stellen die Ableitungen der europäischen Wiederaufarbeitungsanlagen, der entlang der Norwegischen Küste transportierte Tschernobyl-Eintrag aus der Ostsee sowie der globale Fallout die Hauptkomponenten dar.

6. Literatur

Aarkrog, A., 1988: The radiological impact of the Chernobyl debris compared with that from nuclear weapons fallout. *J. Environ. Radioactivity* 6: 151-62.

Analytical Methods Committee, 1989a: Robust Statistics - How Not to Reject Outliers. Part 1: Basic Concepts. *Analyst* 114: 1693-1697.

Analytical Methods Committee, 1989b: Robust Statistics - How Not to Reject Outliers. Part 2: Inter-laboratory Trials. *Analyst* 114: 1699-1702.

Aure, J. et al, 1999: Havets miljø. *FiskenHav, Særrn.* 2.

Baxter, M.S.; Fowler, S.W.; Povinec, P.P., 1995: Observations on Plutonium in the Oceans. *Appl. Radiat. Isot.* 46: 1213-1223.

Baxter, M.S.; Harms, I.; Osvath, I.; Povinec, P.P.; Scott, E.M., 1998: Modelling the Potential Radiological Consequences of Radioactive Waste Dumping in the Kara Sea. *J. Environ. Radioactivity*, Vol.39, No.2, pp.161-181.

Bethke, E.; Kellermann, H.-J., 1994: Wasserprobenahme über Grund mit FFS „Walther Herwig III“. *Inf. Fischwirtsch.* 41(1):37-41.

Billett, D.; Bett, B.; Lampitt, R., 1999: Long-term change in abyssal communities. *Deep-Sea newsletter*, No. 28: 7-8.

Bourlat, Y.; Milliès-Lacroix, J.-C.; Le Petit, G.; Bourguignon, J., 1996: ^{90}Sr , ^{137}Cs and $^{239+240}\text{Pu}$ in World Ocean Water Samples Collected from 1992 to 1994. In: Guéguéniat, P.; Germain, P.; Métivier, H. (Coordinators): *Radionuclides in the Oceans – Inputs and Inventories*. Les Editions de Physique 1996, Les Ulis cedex A, France, pp. 75-93.

Buesseler, K.O., 1997: The Isotopic Signature of Fallout Plutonium in the North Pacific. *J. Environ. Radioactivity* 24: 69-83.

Buesseler, K.O.; Sholkovitz, E.R., 1987: The geochemistry of fallout plutonium in the North Atlantic: II. $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ ratios and their significance. *Geochim. Cosmochim. Acta* 51: 2623-2637.

Bundesminister für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (BMU), 1992: *Meßanleitungen für die Überwachung der Radioaktivität in der Umwelt und zur Erfassung radioaktiver Emissionen aus kerntechnischen Anlagen*. Letzte Ergänzungslieferung: 1.10.2000. Gustav Fischer Verlag, Stuttgart.

Bunzl, K.; Förster, H.; Kracke, W.; Schimmack, W., 1994: Residence Times of Fallout $^{239+240}\text{Pu}$, ^{238}Pu , ^{241}Am and ^{137}Cs in the Upper Horizons of an Undisturbed Grassland Soil. *J. Environ. Radioactivity* 22: 11-27.

Bunzl, K.; Kracke, W., 1988: Cumulative Deposition of ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{241}Am from Global Fallout in Soils from Forest, Grassland and Arable Land in Bavaria (FRG). *J. Environ. Radioactivity* 8: 1-14.

Bunzl, K.; Kracke, W.; Schimmack, W.; Auerswald, K., 1995: Migration of Fallout $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am and ^{137}Cs in the Various Horizons of a Forest Soil Under Pine. *J. Environ. Radioactivity* 22: 11-27.

Cofino, W.P.; van Stokkum, I.H.M.; Wells, D.E.; Ariese, F.; Wegener, J.-W.M.; Peerboom, R.A.L., 2000: A new model for the inference of population characteristics from experimental data using uncertainties. Application to interlaboratory studies. *Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems* 53: 37-55.

Cooper, L.W.; Kelley, J.M.; Bond, L.A.; Orlandini, K.A.; Grebmeier, J.M., 2000: Sources of the transuranic elements plutonium and neptunium in arctic marine sediments. *Mar. Chem.* 69: 253-276.

Dahlgaard, H., 1994: Marine radioecology. In: *Radioecology. Lectures in environmental radioactivity*, pp. 153-163. Ed. by E.Holm. World Scientific Publishing Co., Singapore.

Dahlgaard, H.; Chen, Q.; Herrmann, J.; Nies, H.; Ibbett, R.D.; Kershaw, P.J., 1995: On the background level of ^{99}Tc , ^{90}Sr and ^{137}Cs in the North Atlantic. *J. Mar. Systems* 6: 571-578.

Debertin, K.; Helmer, R.G., 1988. *Gamma- and X-Ray Spectrometry with Semiconductor Detectors*. North-Holland, Amsterdam, 399 pp.

Erdmann, N., 1998: *Resonanzionisationsmassenspektroskopie zur Bestimmung der Ionisationsenergien von Berkelium und Californium und zur Spurenanalytik von Plutonium*. Dissertation am Fachbereich Chemie und Pharmazie der Johannes Gutenberg-Universität Mainz, Mainz, 87 pp.

Feldt, W.; Kanisch, G.; Vobach, M.: *Strahlenrisiko der Bevölkerung durch Radionuklide aus der Tiefsee*, 1988. Abschlußbericht zum Forschungsvorhaben St.Sch. 967; 1-42.

- Feldt, W.; Kanisch, G.; Kanisch, M.; Vobach, M., 1985: Radioecological studies of sites in the Northeast Atlantic used for dumping of low-level radioactive wastes - Results of the research cruises of FRV "Walther Herwig" 1980-1984. Arch.Fisch.Wiss. 35(3): 91-195.
- Feldt, W.; Kanisch, G.; Kanisch, M.; Vobach, M., 1985: Radioecological studies of sites in the Northeast Atlantic used for dumping of low-level radioactive wastes – Results of the research cruises of FRV „Walther Herwig“ 1980-1984. Arch. Fisch. Wiss. 35(9): 91-195.
- Feldt, W.; Kanisch, G.; Vobach, M., 1989: Deep-sea biota of the Northeast Atlantic and their radioactivity. In: F. Nyffeler and W. Simmons (Eds.) Interim oceanographic description of the North-East Atlantic site for the disposal of low-level radioactive waste. Vol. 3. Paris: OECD/NEA, p. 178-204.
- Feldt, W.; Kanisch, G.; Vobach, M., 1989: Deep-sea biota of the Northeast Atlantic and their radioactivity. In: F. Nyffeler and W. Simmons (Eds.), Interim oceanographic description of the North-East Atlantic site for the disposal of low-level radioactive waste. Vol. 3. Paris: OECD/NEA, 178-204.
- Foyn, L.; Svaeren, I., 1997: Distribution and sedimentation of radionuclides in the Barents Sea. ICES Journal of Marine Science, 54, S. 333-340.
- Gage, J.D.; Tyler, P.A., 1991: Deep-sea biology. Cambridge University Press.
- HELCOM, 1989: Three Years Observations of the Levels of Some Radionuclides in the Baltic Sea After the Chernobyl Accident. Baltic Sea Environment Proceedings 31.
- HELCOM, 1995: Radioactivity in the Baltic Sea 1984 – 1991. Baltic Sea Environment Proceedings 61.
- Helsel, D.R.; Cohn, T.A., 1988: Estimation of Descriptive Statistics for Multiply Censored Water Quality Data. Water Resour. Res. 24: 1997-2004.
- IAEA (International Atomic Energy Agency), 1999: Inventory of radioactive waste disposals at sea. IAEA TEC DOC 1105. ISSN 1011 - 4289. Wien.
- IAEA, 1985: Sediment Kd's and Concentration Factors for Radionuclides in the Marine Environment. International Atomic Energy Agency, Vienna. Tech.Rep. Ser. 247: 1-73.
- IAEA, 1999: Intercomparison of alpha particle spectrometry software packages. International Atomic Energy Agency, Vienna. IAEA-TECDOC-1104, 57 pp.
- IAEA, 2000: Global marine radioactivity database (GLOMARD). International Atomic Energy Agency, Vienna. IAEA-TECDOC-1146, 51 pp.
- ICES ACFM, 2002: Arctic Fishery Working Group Report.
- Jackson, D.; Lambers, B.; Gray, J., 2000: Radiation doses to members of the public near to Sellafield, Cumbria, from liquid discharges 1952-98. J. Radiol. Prot. 20: 139-167.
- Kanisch, G.; Nagel, G.; Krüger, G.; Kellermann, H.-J., 2000: Radiological implications from the temporal development of radioactivity in marine food from the North Sea. Kerntechnik 65: 183-189.
- Kanisch, G.; Vobach, M.: Radionuklide in der Tiefsee, 1993: Abschlußbericht zum Forschungsvorhaben St.Sch. 1093; 1-44.
- Kautsky, H., 1987: Investigations on the distribution of Cs-134 and Sr-90 and the water mass transport times in the Northern North Atlantic and the North Sea. Dt.Hydrogr.Z. 40, S. 49-69.
- Kellermann, H.-J., 1992: Radioaktivität in Fischen aus dem Eingang zur Barentssee. Inf. Fischw. 39(3), S. 134-136.
- Kellermann, H.-J., 1996: Radioaktivität im Kabeljau (*Gadus morhua*) der Barentssee. Deutscher Beitrag zum Arctic Monitoring and Assessment Programme. Dt.Hydrogr.Z. Supplement 6, S. 99-104.
- Kelley, J.M.; Bond, L.A.; Beasley, T.M., 1999: Global distribution of Pu isotopes and ²³⁷Np. Sci. Total Environ. 237/238: 483-500.
- Kershaw, P.J.; Pentreath, R.J.; Dickson, R.R.; Lovett, M.B., 1989: Caesium and Transuranium Radionuclides in Seawater, Sediments and Biota, on and around the NEA Dumpsite. In: F. Nyffeler and W. Simmons (Eds.) Interim oceanographic description of the North-East Atlantic site for the disposal of low-level radioactive waste. Vol. 3. Paris: OECD/NEA, p. 88-94.
- Lee, S.H.; Gastaud, J.; La Rosa, J.J.; Liang Wee Kwong, L.; Povinec, P.P.; Wyse, E.; Fifield, L.K.; Hausladen, P.A.; Di Tada, L.M.; Santos, G.M., 2001: Analysis of plutonium isotopes in marine samples by radiometric, ICP-MS and AMS techniques. J. Radioanal. and Nucl. Chem. 248: 757-764.
- León Vintró, L.; Mitchell, P.I.; Condren, O.M.; Moran, M.; Vives i Batlle, J.; Sánchez-Cabeza, J.A., 1996: Determination of the ²⁴⁰Pu/²³⁹Pu atom ratio in low environmental samples by alpha spectrometry and special deconvolution. Nucl. Instr. and Meth. A 369: 597-602.

- Livingston, H.D.; Povinec, P.P., 2000: Anthropogenic marine radioactivity. *Ocean & Coastal Management* 43: 689-712.
- Michel, H.; Barci-Funel, G.; Dalmaso, J.; Ardisson, G.; Appleby, P.G.; Haworth, E.; El-Daoushy, F., 2002: Plutonium and americium inventories in atmospheric fallout and sediment cores from Blelham Tarn, Cumbria (UK). *J. Environ. Radioactivity* 59: 127-137.
- Miyao, T.; Hirose, K.; Aoyama, M.; Igarashi, Y., 1998: Temporal Variation of ^{137}Cs and $^{239,240}\text{Pu}$ in the Sea of Japan. *J. Environ. Radioactivity* 40: 239-250.
- ModelMaker (Version 3), 1997. Cherwell Scientific Publishing Limited. The Magdalen Centre, Oxford Science Park, Oxford OX4 4GA, Great Britain.
- NRPA (The Norwegian Radiation Protection Authority), 2002: Norwegian „Transport and Effects Programme“: Radionuclide uptake and transfer in pelagic food chains of the Barents Sea and resulting doses to man and biota URL: http://www.npolar.no/transeff/Effects/Radionuclides/Progress/4192NRPA_finalreport.pdf (25.11.2002)
- Nyffeler, F.; Cigna, A.A.; Dahlgard, H.; Livingston, H.D., 1996: Radionuclides in the Atlantic Ocean: A Survey. In: Guéguéniat, P.; Germain, P.; Métivier, H. (Coordinators): Radionuclides in the Oceans – Inputs and Inventories. Les Editions de Physique 1996, Les Ulis cedex A, France, pp. 1-28.
- OECD/NEA, 1985: Review of the continued suitability of the dumping site for radioactive waste in the North-East Atlantic. OECD/NEA, Paris, 448 p.
- Pentreath, R.J., 1983: Biological Studies. In: P.A. Gurbutt and R.R. Dickson (Eds.): Interim oceanographic description of the North-East Atlantic site for the disposal of low-level radioactive waste. OECD/NEA, Paris, pp. 101-118.
- Pentreath, R.J., 1988: Sources of artificial radionuclides in the marine environment. In: J.C. Guary, P. Guegueniat and R.J. Pentreath (Eds.): Radionuclides: A tool for oceanography. London: Elsevier Applied Science. p. 12-34.
- Povinec, P.P.; La Rosa, J.J.; Lee, S.H.; Mulsow, S.; Osavth, I.; Wyse, E., 2001: Recent developments in radiometric and mass spectrometry methods for marine radioactivity measurements. *J. Radioanal. and Nucl. Chem.* 248: 713-718.
- Povinec, P.P.; Oregioni, B.; Jull, A.J.T.; Kieser, W.E.; Zhao, X.-L., 2000: AMS measurements of ^{14}C and ^{129}I in seawater around radioactive waste dump sites. *Nucl. Instr. Meth. Res. B* 172: 672-678.
- Roos, P.; Holm, E.; Persson, R.B.R.; Aarkrog, A.; Nielsen, S.P., 1994: Deposition of ^{210}Pb , ^{137}Cs , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{238}Pu , and ^{241}Am in the Antarctic Peninsula Area. *J. Environ. Radioactivity* 24: 235-251.
- Sazykina, T. G., 1998: Long-Distance Radionuclide Transfer in the Arctic Seas related to Fish Migrations. *Radiation Protection Dosimetry* 75(1-4), 219-222.
- Singh, A., 1993: Omnibus robust procedures for assessment of multivariate normality and detection of multivariate outliers. In: G.P. Patil and C.R. Rao (Eds.) *Multivariate Environmental Statistics*. Elsevier, Netherlands, pp. 445-488.
- Singh, A.; Nocerino, J., 2002: Robust estimation of mean and variance using environmental data sets below detection limit observations. *Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems* 60: 69-86.
- Singh, A.; Nocerino, J.M., 1995: Robust Procedures for the Identification of Multiple Outliers. In: J. Einax (Ed.) *Chemometrics in Environmental Chemistry - Statistical Methods*, Vol. 2G. Springer, Germany, pp. 229-277.
- Smith, J.N.; Boudreau, B.P.; Noshkin, V., 1986/87: Plutonium and ^{210}Pb distributions in northeast Atlantic sediments: subsurface anomalies caused by non-local mixing. *Earth Planet. Sci. Lett.* 81: 15-28.
- Smith, J.N.; Noshkin, V.; Boudreau, B.P., 1989: Non-local Mixing in Deep-Sea Sediments. In: F. Nyffeler and W. Simmons (Eds.) *Interim oceanographic description of the North-East Atlantic site for the disposal of low-level radioactive waste*. Vol. 3. Paris: OECD/NEA, p. 138-146.
- Tardent, P., 1993: *Meeresbiologie*, Thieme, Stuttgart, 305 Seiten.
- The SAS System (Version 8.1), 2000. SAS Institute Inc., Cary, NC, USA.
- Yablokov, A.V.; Karasev, V.K.; Romyantsev, V.M.; Kookev, M.E.; Petrov, O.J., 1993: White Book no.3: Facts and Problems Related to Radioactive Waste Disposal in Seas Adjacent to the Territory of the Russian Federation. (Materials for a Report by the Government Commission on Matters Related to Radioactive Waste Disposal at Sea, Created by Decree No. 613 of the Russian Federation President, October 24, 1992). Moscow: Small World Publishers.

7. Anhang

Anhang A1

Analytical Methods used at the Federal Research Centre for Fisheries for Biological MORS Samples

G. Kanisch, A. Krüger

Federal Research Centre for Fisheries, Institute of Fisheries Ecology, Hamburg, Germany
September 1998, updated in autumn 2002

1. Introduction

The analytical methods used at our Institute (Institute for Fisheries Ecology, code BFFG within MORS) have been published in Germany partly in the "Guide to methods for the monitoring of radioactivity in the environment and for registration of radioactive emissions from nuclear power installations" (BMU, 1992; updated in 1994; in German). At present, only the methods for fish and flesh of mussels and shrimps are published. However, the radiochemical procedures for invertebrates and *Fucus vesiculosus* are practically the same. Especially for the detailed description of the radiochemical procedures this work should be consulted.

In the following some general remarks concerning aspects of the sample pre-treatment as well as the measurement procedures are given.

2. Sample pre-treatment

Biota samples (fish, benthic organisms, aquatic plants) having been caught by bottom trawls (1 hour per station) are stored deep frozen (-20 °C) after pooling several specimen into one sample. Larger fishes (especially cod) are already dissected on board before freezing to obtain the fillet. From cod the livers are also taken. Mussels and aquatic plants are analysed as a whole.

For radioactivity measurements, each biota sample (fresh weight ranging from 1-10 kg, or even less in case of benthos) is dried for 2 days in the laboratory now at a temperature of 110 °C (few years earlier 130 °C). Up to the end 1995, the samples were ashed in large ovens using a 154 hour temperature programme with a maximum temperature of 460 °C (controlled by an Apple PC). Only for cod liver samples (very fatty), a more slowly and longer operating temperature programme was used with the maximum temperature reduced to 390 °C.

Two tests were made in 1991 (with North Sea fish, 12 samples) and in 1992 (with Baltic Sea cod, 8 samples) to ensure that significant losses of Cs-137 do not occur by the ashing procedure. From each fish sample (after thawing) 1 kg flesh was taken and directly measured in a 1 L Marinelli beaker. The calibration for K-40 and Cs-137 was taken from corresponding calibrations with liquid solutions without applying self-attenuation corrections. Then each 1 kg sample was dried and ashed. The ash was then measured in a 50 mL container. The calibration was again taken from calibrations with liquid solutions, but now calculated self-attenuation corrections for ash were applied. The results for the means of the ratios "ash measurement / direct measurement" indicated that the average losses of Cs-137 were about 1%. Therefore, it was concluded that significant ashing losses of Caesium needed not to be considered.

In autumn of 1995, the complete ashing ovens' electric equipment including electronic regulators was replaced by new devices. Also, the Apple PC was replaced by a DOS PC on which a new temperature controlling programme was applied. Thereafter, in 1996, the test

from 1991/1992 was repeated. Unfortunately, the result for 460 °C was, that a Cs-137 loss of some percent was found. Even at the lower temperature of 430 °C a loss of about 2.5% was found. Therefore, from 15th of October 1996 on a maximum temperature of 420 °C is being used.

After completion of the gamma spectrometric determination from the ash this sample is ashed further, now at 500 °C for the purpose of the radiochemical determination of Sr, Pu and Am.

3. Analytical methods used for MORS biota

3.1 Method 01: Gammaspectrometric analysis

The detailed procedure for gammaspectrometric measurements of fish is given in the method "G- γ -SPEKT-FISCH-01" (BMU, 1992). This method can also be used for ashed material of other marine organisms.

3.1.1 Equipment

For the analysis of gamma emitting nuclides several Ge-detectors (p-type GeLi's and HPGe's and 1 n-type HPGe) are being used. Their relative efficiencies are between 20 and 48%, energy resolution values vary from 1.8 to 2.3 keV at 1.33 MeV. The detectors are placed within lead shieldings of 10 cm lead and inner layers of copper, cadmium and plexi glass. Multichannel buffer modules (stand alone modules, controlled by PC) are used for recording of the spectra (4096 channels per detector, approximate energy range 30 to 2000 keV, 0.46 keV/channel).

For the measurement of ashes of the biological material two different measurement containers are used: a small 50 mL container and a larger container of approximately 200 mL. Both containers are cylindrical plastic containers.

3.1.2 Evaluation of spectra

A self-written Fortran programme is used on a PC which is based on the principles of SAMPO80 (Koskelo et al., 1981). As it is was not published some details are given below.

- automatic peak search routine from SAMPO80, modified by an additional smoothing operation;
- list of peaks to be fitted: combined from i) the automatic peak search, ii) from user-defined characteristic peaks of those radionuclides for which detection limits have to be calculated and iii) from such user-defined peaks, which are known beforehand to be overlooked by the peak search (very weak lines near to intensive peaks, or lines within close multipletts);
- peak fitting function: Gaussian with left side tailing, an additional left side step function and a background polynomial (2 or 3 parameters); the left wing of the step function can have an exponential decay to the left, which may be equivalent to another tailing component (important for larger peaks, also for energies less than 100 keV);
- peak fitting is done by the method of multi-linear regression (up to 15 peaks in one multiplett); in addition non-linear parameters (Fwhm, peak position, relative step height) are varied by a simple grid search: the Fwhm from calibration, however, is altered only within small limits, and only if the peak area uncertainty is less than 10% and a significant improvement of the reduced chi-square is obtained;
- graphical package to show each multiplett together with the fitted total function, background function and, if existent, the associated peak area from the independent background measurements;
- subtraction of background net peak count rates and propagation of uncertainties;

- automatic energy re-calibration of each sample spectrum;
- full energy peak efficiencies (for the water solutions) are stored for each detector as two-dimensional functions with up to 10 parameters and dependent on the variables gamma energy (keV) and filling height (cm); these allow automatic interpolation for the desired filling height of volume (cylindrical) sources; the underlying basic efficiency curve is based on a linear curve in the log-log representation (for higher energies) multiplied by a low energy-function approaching the value of 1.0 for higher energies, which is taken from Jäckel et al. (1987) and does not depend on the filling height; the up to 10 parameters have to be estimated from a laborious series of calibration measurements;
- since the end of 1994, automatically numerically calculated self-attenuation corrections are applied for each peak down to 40 keV (see below); these are based on the geometry of the detector, the sample size (filling height of cylindrical source), the bulk sample density and on the mass-attenuation coefficients of the measured matrix;
- radionuclide identification, calculation of activities and associated uncertainties by use of a linear equation system: a quadratic matrix (rank=number of present radionuclides) containing sums of gamma-emission probabilities and a vector containing sums of efficiency corrected net counting rates are constructed; from this vector and the matrix-inverse the radionuclide activities and their uncertainties are calculated, however, uncertainties of the emission probabilities can not be considered; this methods weights more than 1 line from a radionuclide according to their emission probabilities, in contrast to least squares methods which weights according to the peak count rate uncertainties; for each peak net count rate an U-Test is used to compare the measured count rate and its uncertainty with that calculated from the radionuclide activities and uncertainties, which clearly can indicate problems with the nuclide identification; the library contains 55 radionuclides with 527 lines (with special emphasis on the naturally-occurring decay series);
- automatic correction for coincidence summing losses depending on the filling height, at least for Cs-134, Co-60; these loss corrections are obtained from calibration measurements and are stored in a filling height dependent form in a separate file.
- calculation of detection limits (based on quantiles $k_{\alpha}=3$ and $k_{\beta}=1.645$);
- activity results and detection limits for the radionuclides are automatically transferred into our „data base file“.

To obtain self-attenuation corrections use was made of the geometry dependent numerical calculations of simplified „total efficiencies“ for cylindrical samples of water and for the ash as they were described by Nakamura (1970), who developed an analytical solution for this case. The formula (combinations of multiple integrals) is here solved by numerical Gauss-Legendre integration. For the case of a cylinder diameter greater than that of the detector an extension of Nakamura's formulae was developed. For the biota ashes the mass attenuation coefficients have been calculated from the approximate elemental composition of fish fillet (Atlantic cod) ash. They have been verified experimentally by transmission experiments. It was then verified that they can, at least for energies larger than 100 keV, also be used for the ash of *Fucus vesiculosus* representing ashes of aquatic plants. It turned out that the attenuation corrections of our fish ash counting geometries can amount to about 5 and more per cent for Cs-137.

3.1.3 Background determinations

Peaks in the background are due to K-40, the decay series of Ra-226 and Th-232, interactions of cosmic rays with the material of the shielding and the detector and possible contaminations with artificial nuclides (e.g. Co-60 in the steel of the shielding).

To obtain good estimates of the background peaks, from some (2-4) subsequent background measurements (at least 4000 min counting time per measurement) the background net peak counting rates are calculated as weighted means. For the uncertainty of the mean net

counting rates two standard deviations are calculated: an "internal" and an "external" standard deviation (see Debertin and Helmer, 1988). If the background line is under statistical control, both uncertainties are very similar. If not, the external standard deviation will be larger than the internal standard deviation; this is especially the case for the background lines of the Ra-226 series. The larger of both uncertainties is used as the desired standard deviation.

The background determinations are repeated nearly every half of a year, or if a contamination is suspected.

3.1.4 Efficiency calibration

In earlier years the detectors were calibrated with a laborious procedure for differing filling heights in the two measurement containers using ashes and sediments of differing densities. From the set of measured efficiencies a formula is constructed, which allows interpolation between energy, density and filling height. The nuclides normally used are: Pb-210, Am-241, Cd-109, Co-57, Ce-139, Ba-133, Be-7/Sr-85, Cs-137, Mn-54, Zn-65 and Y-88 (Physikalisch-Technische Bundesanstalt, Braunschweig). To determine losses due to coincident summing the important nuclides Cs-134 and Co-60 were added to these nuclides. The uncertainty of the efficiency is estimated to be 5%. The overall uncertainty of the calibration of a single line nuclide is assumed to be 7%.

Since 1994 the detectors are calibrated only with liquid solutions. Self-attenuation corrections are calculated for each sample and energy.

At present the calibration procedure cannot be repeated every year. By regular participation in national intercalibration exercises with higher activity contents of the samples, especially of those for which true values are known, it is clearly shown whether re-calibrations are necessary.

3.1.5 Checking

To control the stability of the detectors a Eu-152 source is counted every two weeks (on Monday) in a good reproducible geometry for 15 minutes on each detector. Net counting rates and the Fwhm of the lines at 122, 779 and 1408 keV are recorded; the relative 1s counting uncertainties do not exceed 1%.

The quality of the calibration of the 250 mL containers, which was done in the summer of 1994, was verified in detail in 1994 by measurements of standard samples and by sediment samples from a national intercalibration exercise in 1995, because from the autumn of 1994 on the new method of utilising calculated self-attenuation corrections was used and had to be checked. In the sediment intercalibration exercise of 1995 even for Pb-210 and Am-241 very good results were obtained with this method. Since 1997 three different of these multi-nuclide spiked standard sediment samples with known activities are measured each year on each detector.

3.2 Method 02 : analysis of Strontium-90

3.2.1 Radiochemical procedures

Two different versions of the method are used.

The first version is a relatively short Y-90 extraction method which is described in the guide "G-Sr-90-FISCH-01" (BMU, 1992). After drying the ash and addition of Y-carrier the ash is digested with slightly boiling 12 M HCl. After adjusting the acidic solution to pH 1-1.5 the Y-90 is extracted with HDEHP (Bis(2-ethylhexyl) hydrogen phosphate) in n-heptane. After purification of the organic phase with 1 M HCl, Y is re-extracted with 9 M HCl. The aqueous

phase is then purified by extraction with Adogen-464 (Trioctylmethylammonium chloride). Adogen-464 is used as a reagent for the group separation for the actinides and lanthanides (see Keller, 1971, chapter 10.5.3). For further purification Y is then precipitated as $Y(OH)_3$ using ammonia. The $Y(OH)_3$ precipitate is re-dissolved with a few drops of 7.2 M HNO_3 . Finally, Y is precipitated as Y oxalate and fixed on a disc for the measurement of Y-90. After the measurement the chemical Y-yield is obtained by complexometric titration of the measured precipitate.

If Pu or Am has also to be determined from the same ash, or if ashes of benthic animals or aquatic plants have to be analysed, a second version of the method is used, which is a modified version of the classical nitric acid method. Refer to method "G-Sr-90-FISCH-02" (BMU, 1992) for a detailed description. After adding Sr-carrier and Sr-85 (as well as Pu-242 and Am-243, if necessary), a Sr purification with iron hydroxide from an acetate buffered solution is applied to reduce the influence of disturbing anions and cations. Y-90 and other elements (trivalent and higher) are separated by an iron hydroxide precipitation. The combined precipitates of the acetate and iron hydroxide precipitation are used for the Pu and Am determination. After addition of Y-carrier, further re-precipitation and waiting a period of up to 14 days for the ingrowth of Y-90 from Sr-90 from the cleaned Sr solution, Y is separated from Sr by extraction with HDEHP in n-heptane and precipitated as oxalate for beta measurement. The Sr-yield is determined by gamma counting of Sr-85. The Y-yield is obtained by complexometric titration of the measured precipitate.

3.2.2 Measurement

The oxalate precipitates are measured with gas flow anticoincidence counters (Tracerlab, AC-1) with background counting rates between 0.25 and 0.33 cpm. The calibration of the detectors is done with a few Y-90 precipitates (Sr-90 standard solution from the PTB, Braunschweig, being in equilibrium with Y-90) covering a definite range around an average value of 40 mg/cm^2 of the oxalate precipitate. Thus, the Y-90 efficiency is calibrated density dependent. The calibration is repeated every few years.

Each sample is counted up to 4 times within a period of one week, with counting times of 500 min, in order to follow the decay of Y-90. The measured decay curve is evaluated by weighted multi-linear regression utilising a Fortran programme developed for routine Sr-90 analysis. This technique enables one to detect and resolve possible interferences from following sources: 1) interference from the short-living Ac-228 (6.1 h) resulting in an excess of the 1. count; 2) interference from short-living precipitated radon or thoron products again resulting in an excess of the 1. count; and 3) possible interference from long-lived nuclides producing an additional quasi constant background count rate. Possible malfunctions of the counter can also be detected by this method. The analysis of the decay also gives hints, whether the used background count rate has changed significantly.

3.2.3 Checking

The background count rate is controlled during measurement campaigns by use of a few aged blind Y-oxalate precipitates. These measurements are intensified whenever it is indicated by bad Y-90 decay curves or other obvious reasons. The stability of the efficiencies of the detectors are controlled weekly by the measurement of self-prepared precipitates of about 100 Bq Sr-90/Y-90.

3.3 Method 03 : Analyses of Plutonium isotopes

3.3.1 Radiochemical Procedure

The radiochemical method for Pu is described in detail in the method "G- α -SPEKT-FISCH-01" (BMU, 1992).

After a 2nd ashing at 500 °C and drying the tracers Pu-242 (about 0.08 Bq) and, if Am has also to be determined, Am-243 (about 0.068 Bq) (tracer solutions obtained from EML, New York) are added to the ash. The ash is digested twice with slightly boiling 8 M HNO₃. Pu^{VI,V} is reduced with NaNO₂ to Pu^{IV} and extracted from a nitric acid solution with TOPO (Tri-n-octylphosphine oxide) in cyclohexane. The nitric acid phase is used later for the Am analysis (see below). The Pu is converted from the purified organic phase to the aqueous phase by means of a reducing extraction (reduction of Pu^{IV} to Pu^{III}) with a solution of ascorbic acid in 1 M HCl. This step is followed by a LaF₃-coprecipitation of PuF₃ and dissolution of the precipitate in a mixture of saturated boric acid and conc. HNO₃. The Pu is then reduced with NaNO₂ and adsorbed on an anion exchange resin (Dowex 1x2). Subsequently, the Pu is eluted with a mixture of dilute HCl and dilute HF. This solution is evaporated to dryness. Finally, Pu is electrodeposited on a stainless steel plate from a solution containing ammonium oxalate and HCl. Commercial LSC counting plastic vials are used as electroplating cells, which are thrown away after the analysis. The electroplating is done for 2 hours at 300 mA.

3.3.2 Equipment

Measurements are performed with eight ORTEC 576 Alpha Spectrometer Systems. Each module contains 2 detectors. Up to 1994 16 silicon surface barrier detectors (ruggedised type, 100 μ , 8 detectors with 300 mm², 8 detectors with 450 mm²) were used. In 1994 and 1997, 6 of them were replaced by new Ultra Ion-Implanted Silicon detectors (ORTEC, 300 mm², 100 μ , 19 keV Fwhm). The distance between the sample and the detector surface is about 4 mm for the older detectors, but smaller for the four newer detectors. The modules were connected to two multichannel buffer modules (MCD/PC, FAST Electronics, Munich, Germany) via two 8-input multiplexer. At the end of 1993 the old ADC's and multiplexer were replaced by new ones. At the end of 1999 the MCA system was completely replaced, consisting mainly of three Analog Multiplexers CI 8224, two Acquisition Interface Modules CI 556 AIM and a basic Genie 2000 software for driving the multichannel analysers and handling the spectra. The channel resolution (was and) is 512 channels per detector. The energy range used is from 4-8 MeV (approximately 8 keV/channel). The counting times varied earlier from 7 to 12 days, since about 1995 from 12 to 23 days.

3.3.3 Measurement and evaluation of the spectra

The tracers Pu-242 and Am-243 are used for chemical yield determination. For energy and efficiency calibration a mixed standard sample (Pu-239, Am-241, Cm-244; Amersham/Buchler) was used until the middle of 1992. Corrections for the difference in detector radius and sample radius, based on geometrical considerations, were obtained by a Fortran programme (Ruffle, 1967) or by published tables (Lindeken & Montan, 1967). The energy calibration is repeated approximately twice a year (because of a relative high activity of the Amersham mixed standard with a larger sample-detector difference).

In the middle of 1992 an alpha sample self-prepared by electroplating Am-241 from a solution was calibrated by the PTB (Braunschweig). Since then, the efficiency can be determined more precisely, as the estimation of a geometrical correction factor is unnecessary. This is usually done not more than once per year.

Up to 1991, alpha peak counting rates for non-overlapping Pu peaks were computed by simply integrating the channel contents for the peak regions (gross counting rates) and, for the same regions, subtracting the integrals from corresponding background spectra (average counting rates from a few subsequently measured blind samples are used). For the calculation of statistical uncertainties it was assumed that the (integrated) counting rates can be interpreted as if they were measured with a single channel counter.

Since about 1991 we have a self-written Fortran programme available ("Alkan"), which allows non-linear least squares fitting of complex alpha peak multiplets. It is based on the excellent empirical peakshape description given by Bortels and Collaers (1987). Depending on the peak shape we can work with one or two tail components for a peak. It is ideally suited for overlapping peaks in case of a bad source with larger peak width and more pronounced tailing. It also allows deconvolution in the case of a significant energy shift during the measurement (however, this now occurs very seldom). For peaks with sufficient counting statistics the smaller lines of the Pu- and Am-isotopes are also varied (positions and heights relative to the main line of the isotope) to obtain an optimal fitting result. If the counting statistics are bad, the smaller lines of the isotopes can be held fixed at pre-determined parameters during fitting. Before the fitting is done, from each sample spectrum a smoothed detector background spectrum is subtracted. Using such a programme, the precise re-calibration of the energy is no problem and can be applied to each analysed spectrum as long as a second peak besides the tracer peak exists.

The calculation of the final activity results including uncertainties and detection limits was done with an additional BASIC programme. This required average net blank count rates (detector background already subtracted) with uncertainties for each measured radionuclide. These are obtained from the analyses of a certain number of blank samples, which are performed routinely at a rate of about 10% of all analysed routine samples.

In the autumn of 2000, this programme was replaced by a completely new program version developed with Lahey Fortran 90/95 and Winteracter GUI which is now running under MS Windows. The formula for calculating the sample activity concentration values depends now on more than 20 parameters, which nearly all may have an attributed uncertainty. In the case of Am-241 determination, possible additional background contributions are considered now: i) Am-241 impurity in the Am-243 tracer solution, and ii) Am-241 impurity from the Pu-242 tracer solution which may have built up Am-241 from the Pu-241 impurity. The task of calculating the complete uncertainty propagation has been drastically simplified by making use of calculating the partial derivatives by a very simple numerical method; thus, it is no longer necessary to develop "huge" analytical formulae for the complete description of the measurand's uncertainty. As a result, a complete uncertainty budget can be obtained showing for each of the over 20 parameters its relative "per cent" contribution to the combined variance. This numerical method makes it also very simple by an additional numerical iterative algorithm to derive values for the decision and the detection limit, which now depend on all uncertainties considered in the calculation of the combined uncertainty.

Since the autumn of 2001, a new version of the alpha peak fitting programme ("AlkanW") was developed, also with Lahey Fortran 90/95 and Winteracter GUI, which is now running under MS Windows. Additionally, the above mentioned source code for calculating the complete analytical result including the uncertainty estimation was integrated in AlkanW. The peak fitting algorithm was slightly modified to take now Pearson's Chi-square for minimisation by using the fitting function itself for defining statistical weights, which shows an improved peak area preservation. In the early 2002, this was again changed by implementing the ultimate method, from the statistical point of view, for fitting Poisson distributed counting data: the Poisson Maximum Likelihood Estimation. This method was recently demonstrated to be unbiased with respect to the fitted peak area regardless the size of the area (Hauschild and Jentschel, 2001). All other methods, including Pearson's Chi-square and, even more, the commonly used Neyman's Chi-Square, are known to give biased peak areas, especially in the case of low counting statistics spectra.

3.3.4 Checking

The detector background is controlled approximately once per year by long-term measurement (23 days or more) of specially cleaned stainless steel plates. These (smoothed) background spectra are subtracted from the sample spectra. The quality of the energy calibration is controlled by recording from each sample spectrum the fitted channel positions of Pu-242, Pu-239,240 and Pu-238, as far as they can be fitted. Our experience is that these positions, which are determined quite precisely by the fitting programme (and recorded since 1993), were very stable (unless there were electronic malfunctions): average variations for the Pu-242 peak were about one channel, i.e. about 8 keV.

Approximately once per year it is controlled how much the activity concentration of the tracer solutions could have changed over the time. For this purpose 6 or more „100% standards“ from the tracer solutions are prepared and measured. This had also to be done in June 1995, because we had to separate radiochemically the Am-241 having been built up from the Pu-241 in our Pu-242 solution, because we then started with our Am analysis. The „100% standards“ of Pu-242 are prepared by giving the amount of Pu-242 tracer (0.25 mL) directly into the ammonium oxalate and HCl solution in the electrodeposition cell just before starting with the electrodeposition.

3.4 Method 04 : Analysis of Americium-241

3.4.1 Radiochemical Procedure

Our method for Am is used since the autumn of 1995 and is not described elsewhere. A short description is given here.

After adjusting the Am containing nitric acid phase obtained from the Pu extraction (see text for the Pu method) to pH 1, the Am is extracted with TOPO in cyclohexane. From the organic phase the Am is re-extracted with 8 M HNO₃. The Am is then converted to a 9 M HCl solution. This solution is passed through a mixed-bed ion exchanger (cation exchanger (Dowex 50x8), upper layer; anion exchanger (Dowex 1x8), lower layer). Subsequently, the 9 M HCl eluate is converted to a 12 M HNO₃ solution and the Am extracted by DDCP (di-n-butyl N,N-diethylcarbamoyl phosphate) in n-heptane. The next step is the re-extraction of Am with 2 M HNO₃. From this phase, the Am is then converted to a methanol/nitric acid solution. This solution is passed through an anion exchanger (Dowex 1x4). Then the Am containing ion exchanger is washed with a CH₃OH / NH₄SCN / HCl-solution. Am is eluted from the exchanger by a mixture of CH₃OH / HCl. Finally, Am is electrodeposited in the same way as Pu.

Details about the equipment, measurement and evaluation of spectra and checking are the same as outlined for the Pu procedure.

4. Intercalibration

Table 1 shows for some radionuclides the normalised results of our measurements on international intercalibration samples from the IAEA. The samples are taken from that time period in which data have been produced for MORS. Am-241 was measured by gamma-ray spectrometry in earlier years, but by alpha-spectrometry since the end of 1994. The radionuclides averages over all IAEA samples and the corresponding standard deviations are also given in Table 1. It has to be noted, that the deviations from the reference values are greater for K-40 and Cs-137 (approximately 8%), than for Cs-134 and Am-241 (< 2%). This is not understood, because the determination of the two nuclides Cs-134 and Am-241 is more

complicated. In the case of Cs-134, losses by coincident summing have always been corrected automatically by our programme.

The relative standard deviations quoted in Table 1 reflect very well our assumed overall calibration uncertainty of 7% for single line gamma emitters. The standard deviations for the Pu isotopes are slightly higher.

Our Sr-90 results are most often lower than the reference values, the latter could be established in only a few cases. They are at the lower end, especially in those cases where only few measured values spanning a large range were delivered to IAEA. Our feeling is that the lower Sr-90 values are the more realistic ones. However, our value for IAEA-315 might have suffered from an undetected loss of Sr.

Our results of the DHI intercomparison on Baltic Sea sediment are also included in Table 1. Here, the deviations from the reference values are low for K-40, Cs-134 and Cs-137.

From the national intercalibration exercises, those organised by the Bundesanstalt für Gewässerkunde (in Koblenz) with sediments from the river Rhine, which were spiked with many gamma emitting radionuclides as well as Sr-89/Sr-90 with levels significantly above environmental levels, are of special interest for the judgement of our measurements. Their "true" activity reference values are known precisely from spiking and in most cases confirmed by the means from all laboratories. These exercises are repeated about every three years. Two spiked samples, S2 and S3, were distributed: S3 had the higher activity values, S2 the lower ones, but still much more than natural river sediments usually contain.

Table 2 shows for the years 1983 to 2000 our normalised results for selected radionuclides including Sr-90, which was measured by our combined Sr-89/Sr-90 method (not having been used for MORS samples). Since 1992, Sr-90 was no longer analysed to avoid cross contaminations from the higher Am-241 activities. Except for Sr-90 and Am-241, the deviations from unity are smaller than those presented in Table 1. The reason for the bias of the Co-60 and Cs-137 values in the 2000 exercise is not yet clear.

Literature

Bortels, G., Collaers, P., 1987: Analytical function for fitting peaks in alpha-particle spectra from Si detectors. *Appl. Radiat. Isot.* 38: 831-837.

Bundesminister für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (BMU), 1992: Meßanleitungen für die Überwachung der Radioaktivität in der Umwelt und zur Erfassung radioaktiver Emissionen aus kerntechnischen Anlagen. Stand: 1.9.1992. Updated in 1994. Gustav Fischer Verlag, Stuttgart

(Ministry for Environment, Nature Conservation and Reactor Safety, 1992: Guide to methods for the monitoring of radioactivity in the environment and for registration of radioactive emissions from nuclear power installations. Status: 1.9.1992.)

Debertin, K., Helmer, R.G., 1988. *Gamma- and X-Ray Spectrometry with Semiconductor Detectors*. North-Holland, Amsterdam, 399 pp.

Hauschild, T., Jentschel, M., 2001: Comparison of maximum likelihood estimation and chi-square statistics applied to counting experiments. *Nucl. Instrum. Meth. A* 457: 384-401.

Jäckel, B., Westmeier, W., Patzelt, P., 1987: On the Photopeak Efficiency of Germanium Gamma-Ray Detectors. *Nucl. Instrum. Meth. A* 261: 543-548.

Keller, G., 1971. *The Chemistry of the Transuranium Elements*. Weinheim, Verlag Chemie, 235 pp.

Koskelo, M.J., Aarnio, P.A., Routti, J.T., 1981: SAMPO80: An accurate gamma spectrum analysis method for minicomputers. *Nucl. Instrum. Meth.* 190: 89-99.

Lindeken, C.L., Montan, D.N., 1967: Tables for Calculating Geometry Factors for Disk Sources and Detectors. *Health Phys.* 13: 405-407.

Nakamura, T., 1970. Calculation of the Detection Efficiency of a 3" dia. x 3" NaI(Tl) Crystal for a thick Disk Source. *Nucl. Instrum. Meth.* 86: 163-168.

Ruffle, M.P., 1967. The Geometrical Efficiency of a Parallel-Disc Source and Detector System. Nucl. Instrum. Meth. 52: 354-356.

Tabellen

Table 1: International intercalibration exercises (IAEA): (IAEA-326,327 updated June 10, 2001). Activity concentration ratios (our mean/reference value). (Am-241 was measured by gamma spectrometry, since 1994 by alpha spectrometry)

Sample	year	Sr-90	K-40	Co-60	Cs-134	Cs-137	Pu-238	Pu-239/40	Am-241 □
MA-B-3(fish)	1986	-	0.989	-	-	1.0	-	-	-
IAEA-306(sediment)	1989	0.729	0.893	-	0.962	0.891	0.824	1.00	1.05
IAEA-307(seaplant)	1989	-	0.877	-	0.925	0.861	1.08	1.10	-
IAEA-308 (seaweed)	1989	0.750	0.911	-	1.063	0.911	-	1.00	-
IAEA-352(fish)	1989	-	0.962	-	-	0.963	-	-	-
IAEA-367(sediment)	1991	-	-	0.630	-	0.897	-	0.903	0.898
IAEA-368(sediment)	1991	-	-	0.833	-	-	0.965	0.913	1.00
IAEA-134 (cockles)	1992	1.417	0.939	0.911	-	0.940	1.000	1.040	1.26
IAEA-135 (sediment)	1992	0.980	0.905	0.833	0.962	0.932	1.074	1.094	0.934
IAEA-375 % (soil)	1992	1.058	0.969	-	1.105	1.016	1.437	1.147	-
IAEA-300 (sediment)	1993	0.954	0.949	0.493	1.096	0.987	0.933	0.969	-
IAEA-315 (sediment)	1993	0.237*	0.902	1.118	1.050	0.954	1.008	1.010	0.970
IAEA-326 (soil)	1994	0.965	0.942	-	0.906 A	0.870A	0.754	0.951	1.012 (α)
IAEA-327 (soil)	1994	1.084	0.926	-	-	0.961	0.820	0.981	0.973 (α)
IAEA-134 #	1997	0.854	0.915	0.887	-	0.944	1.023	1.053	1.025 (α)
IAEA-307 #	1997	0.694	0.873	-	-	0.839	1.080	1.075	-
IAEA-384 (sediment)	1998	-	0.928	0.996	-	0.440A	1.136	1.102	1.111 (α)
IAEA-414 (Fishfl.) (preliminary)	2000	-	0.944	-	-	1.009	0.957	1.000	0.975 (α)
Mean:		0.898	0.927	0.838	1.023	0.940	1.007	1.021	1.019
Median:		0.954	0.927	0.860	1.050	0.944	1.004	1.005	1.000
Standard deviation		0.264	0.033	0.198	0.072	0.053	0.166	0.070	0.098
DHI sediment	1989	-	0.981	-	0.978	1.008	0.862	0.947	1.092

%: final values not available until now

#: these two samples were again analysed in 1997 during the international Mururoa project.

*: not used for summary statistics

A: no definite Cs reference values due to sample inhomogeneity

Table 2: National riverine sediment intercalibration exercises, organised by the Bundesanstalt für Gewässerkunde, Koblenz :

Activity concentration ratios (our mean/reference value); (Am-241 always measured by gamma spectrometry. For values in parentheses the mean of all laboratories was used, as no true reference values existed. Sr-90 was here measured by a combined Sr-89/Sr-90-method)

Year	sample	Sr-90	K-40	Co-57	Co-60	Zn-65	Cs-134	Cs-137	Am-241
1983	S2	0.895	(1.095)	0.965	0.983	0.982	0.959	0.985	0.916
	S3	-	(1.130)	0.972	1.001	1.026	0.974	0.997	0.920
1986	S2	1.017	(0.963)	0.990	1.028	1.052	1.011	1.017	0.967
	S3	-	(1.016)	0.997	1.035	1.049	1.016	1.040	0.986
1989	S2	0.934	(0.919)	1.004	1.000	1.016	(0.996)	(0.993)	0.972
	S3	-	(1.023)	0.998	0.977	1.004	(1.086)	(1.006)	0.950
1992	S3	-	(1.017)	0.951	0.967	-	(1.087)	(0.953)	0.976
1995	S2	-	(0.985)	1.016	1.000	1.007	-	(0.972)	0.994
	S3	-	(0.981)	1.036	1.012	1.024	-	(0.974)	1.015
2000 (*)	S2	-	(0.952)	0.974	1.059	0.963	0.962	1.076	0.967
	S3	-	(0.952)	0.987	1.077	0.994	0.991	(0.974)	1.004
Mean:		0.949	1.003	0.990	1.013	1.012	1.009	0.999	0.970
Median:		0.934	0.985	0.990	1.001	1.012	0.996	0.993	0.972
Standard dev.		0.062	0.063	0.024	0.034	0.028	0.048	0.035	0.031

*) preliminary values

Anhang A2:

Zeitreihen der Radionuklide in den Biota

Zeitreihen der Radionuklide in den Biota

Erläuterungen zu den Tabellen:

nal: Anzahl aller Messungen; nc: Anzahl zensierter Werte

Mean und Stdv%: mit R nach der Zahl gekennzeichnete Werte sind mit einem robusten Verfahren ermittelt wurden (allerdings nur dort anwendbar, wo nc=0 ist); in allen anderen Fällen ergaben sich keine Abweichungen. Zensierte Datensätze wurden, soweit anwendbar, mit dem Helsel & Cohn-Verfahren ausgewertet.

StDev% ist die rel. Standardabweichung des Mittelwertes: der jeweils größere Wert von Streu-Standardabweichung und dem gemittelten Messwerte-Fehler.

Query: Holothurien aus dem Gebiet B

```
select probe,index,arge,jahr,ptyp,part,amat,einheit,ft,Sr_90,CS_137,Co_60,Pu_238,Pu_239,Am_241,Am_241r,Puverh,kont,pk from atlbiof where (
  arge like 'B%' and arge <> 'BO' ) and (part like 'Holoth%' or part lik
  e 'Psycho%') and (amat is null or amat like '%gs%')
```

Nuklid=Sr-90 Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1980	2	0	1.5745	1.5745	36.6	0.9990	2.1500
1981	1	0	0.7640	0.7640	4.8	0.7640	0.7640
1982	2	0	0.7165	0.7165	10.8	0.6390	0.7940
1984	2	1	0.7720	0.7720	6.2	0.7720	<0.8300
1986	3	0	1.1467	0.9930	41.2	0.4170	2.0300
1987	4	0	0.4600	0.4590	6.0	0.3940	0.5280
1988	1	0	0.5860	0.5860	4.9	0.5860	0.5860
1989	2	0	0.4980	0.4980	24.3	0.3770	0.6190
1990	2	0	0.3445	0.3445	23.4	0.2640	0.4250
1992	6	0	0.4815	0.4465	11.3	0.3310	0.6630
1993	7	2	0.5445	0.4360	16.9	0.4050	0.9880
1996	1	0	18.6000	18.6000	2.9	18.6000	18.6000

Nuklid=Cs-137 Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1980	2	0	4.0500	4.0500	18.8	3.2900	4.8100
1981	1	0	4.5000	4.5000	8.2	4.5000	4.5000
1982	2	0	2.9300	2.9300	52.2	1.4000	4.4600
1983	2	0	4.4600	4.4600	9.9	4.0200	4.9000
1984	1	0	3.4400	3.4400	8.3	3.4400	3.4400
1986	5	0	2.6062R	3.2800	15.5R	1.6500	6.3100
1987	4	0	2.0600	2.0600	9.5	1.6500	2.4700
1988	2	0	3.5950	3.5950	8.5	3.2900	3.9000
1989	2	0	2.0900	2.0900	5.7	2.0100	2.1700
1990	2	0	2.6100	2.6100	21.1	2.0600	3.1600
1992	6	0	1.9000	1.9450	11.5	1.3000	2.6800
1993	8	1	1.5674	1.5800	16.7	<0.4410	2.7500
1996	22	0	1.0643R	1.0350	2.1R	0.6170	1.2600
1998	27	0	1.0587	1.0800	3.6	0.5920	1.3800

Nuklid=Pu-238 Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1981	1	0	0.2100	0.2100	3.1	0.2100	0.2100
1982	2	0	0.1430	0.1430	39.9	0.0860	0.2000
1983	1	0	0.1400	0.1400	2.9	0.1400	0.1400
1986	3	0	0.0768	0.0780	9.5	0.0636	0.0889
1987	3	0	0.0850	0.0844	14.8	0.0635	0.1070
1988	2	0	0.0798	0.0798	26.6	0.0586	0.1010
1989	2	0	0.0499	0.0499	5.3	0.0497	0.0500
1990	2	0	0.0579	0.0579	39.4	0.0351	0.0807
1992	6	0	0.0722	0.0712	15.9	0.0303	0.1060
1993	7	1	0.0476	0.0491	16.7	<0.0102	0.0692
1996	4	0	0.0556R	0.0523	6.5R	0.0333	0.0641

Nuklid=Pu-239,240 Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1981	1	0	1.8000	1.8000	1.1	1.8000	1.8000
1982	2	0	2.1500	2.1500	7.0	2.0000	2.3000
1983	1	0	2.0000	2.0000	0.7	2.0000	2.0000
1986	3	0	1.1705R	1.0700	7.3R	0.5590	1.2800
1987	3	0	1.3200R	1.3200	0.7R	0.7650	1.3200
1988	2	0	0.8150	0.8150	15.8	0.6860	0.9440
1989	2	0	0.7780	0.7780	0.8	0.7720	0.7840
1990	2	0	0.8140	0.8140	31.4	0.5580	1.0700
1992	6	0	1.0038	1.0545	13.3	0.4840	1.3300
1993	7	0	0.7772R	0.7080	10.9R	0.1700	1.0600
1996	4	0	0.7895	0.7740	12.8	0.5700	1.0400

Nuklid=Am-241gamma Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1982	1	0	3.3000	3.3000	10.0	3.3000	3.3000
1984	1	0	2.9700	2.9700	11.0	2.9700	2.9700
1986	3	1	0.9540	0.9320	11.3	0.9320	<5.1500
1987	4	0	1.1551R	1.2500	7.7R	0.9650	2.5000
1988	4	0	1.0945	1.1280	23.3	0.5220	1.6000
1989	2	0	1.1965	1.1965	20.4	0.9530	1.4400
1990	2	1	1.6200	1.6200	14.0	1.6200	<11.8000
1992	6	2	1.5524	1.6050	8.6	<0.7660	1.9200
1993	8	5	1.1879	0.9821	16.5	<0.6570	<13.8000
1996	22	8	0.6694	0.6002	5.8	0.4010	<26.1000
1998	27	5	1.4741	1.0600	28.5	0.3490	12.3000

Nuklid=Am-241Rch Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1996	3	0	0.8357	0.8520	9.1	0.6960	0.9590

Nuklid=Pu-238/Pu-239+240 Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1981	1	0	0.1167	0.1167	3.3	0.1167	0.1167
1982	2	0	0.0687	0.0687	45.6	0.0374	0.1000
1983	1	0	0.0700	0.0700	3.0	0.0700	0.0700
1986	3	0	0.0859	0.0831	17.8	0.0609	0.1138
1987	3	0	0.0820R	0.0811	3.4R	0.0639	0.0830
1988	2	0	0.0962	0.0962	11.2	0.0854	0.1070
1989	2	0	0.0641	0.0641	5.4	0.0638	0.0644
1990	2	0	0.0692	0.0692	9.0	0.0629	0.0754
1992	6	0	0.0705	0.0710	3.7	0.0626	0.0797
1993	7	1	0.0657	0.0659	4.6	0.0575	0.0757
1996	4	0	0.0640	0.0628	4.5	0.0584	0.0719

Nuklid=Am-241/Pu-239,240 Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1982	1	0	1.6500	1.6500	10.0	1.6500	1.6500
1986	2	0	1.3243	1.3243	25.9	0.9813	1.6673
1987	3	0	0.8282R	0.9242	10.2R	0.7311	1.6732
1988	2	0	1.4422	1.4422	17.5	1.1895	1.6949
1989	2	0	1.5356	1.5356	19.6	1.2345	1.8367
1990	1	0	1.5140	1.5140	14.0	1.5140	1.5140
1992	4	0	1.4784	1.4386	6.4	1.4122	1.6241
1993	3	0	1.8863R	1.8857	9.7R	1.6102	1.8868
1996	4	0	0.9739R	1.0054	10.2R	0.8981	1.2026

Query: Holothurien aus Vergleichsgebieten

```
select probe,index,arge,jahr,ptyp,part,amat,einheit,ft,Sr_90,CS_137,Co_60,Pu_238,Pu_239,Am_241,Am_241r,Puverh,kont,pk from atlbiof where (not(arge like 'B%') or arge like 'BO' ) and (part like 'Holoth%' or part like 'Psychro%') and (amat is null or amat like '%gs%')
```

Nuklid=Sr-90 Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1980	2	0	3.4950	3.4950	48.2	1.8100	5.1800
1981	3	1	0.6275	0.4800	35.0	0.4800	1.0600
1982	1	0	1.0300	1.0300	7.2	1.0300	1.0300
1984	3	0	0.7476R	0.9210	20.1R	0.5550	1.7600
1985	1	0	0.8400	0.8400	19.0	0.8400	0.8400
1986	3	0	0.6797	0.5520	46.5	0.2070	1.2800
1987	3	0	0.4900R	0.5320	10.7R	0.4480	1.0100
1989	1	0	0.4890	0.4890	10.0	0.4890	0.4890
1990	2	0	7.2240	7.2240	95.2	0.3480	14.1000
1992	5	2	0.4214	0.3914	23.6	0.2730	<1.5000

Nuklid=Cs-137 Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1980	2	0	7.2150	7.2150	17.9	5.9200	8.5100
1981	3	0	4.5567	4.8600	18.2	2.9900	5.8200
1982	1	0	3.2700	3.2700	9.1	3.2700	3.2700
1983	4	0	4.5650	4.7850	17.7	2.4500	6.2400
1984	3	0	3.0303R	3.4500	11.3R	2.6100	7.9500
1985	2	0	3.7200	3.7200	6.1	3.5000	3.9400
1986	3	0	2.6367	2.6100	24.5	1.5300	3.7700
1987	4	1	4.2039	3.5000	42.6	<0.9500	9.1200
1988	1	0	2.6300	2.6300	19.0	2.6300	2.6300
1989	2	0	2.4350	2.4350	8.0	2.2400	2.6300
1990	5	0	4.1633R	4.1000	6.1R	0.8310	4.2500
1992	5	0	2.4420	2.6100	13.2	1.4800	3.3100
1998	2	0	0.9585	0.9585	71.1	0.2770	1.6400
2000	12	0	1.2416	1.2950	6.9	0.5590	1.6700

Nuklid=Pu-238 Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1983	1	0	0.0610	0.0610	6.2	0.0610	0.0610
1984	2	0	0.0670	0.0670	23.9	0.0510	0.0830
1985	1	0	0.0596	0.0596	7.5	0.0596	0.0596
1986	3	0	0.0344R	0.0380	8.7R	0.0307	0.0584
1987	2	0	0.0752	0.0752	21.5	0.0591	0.0914
1989	2	0	0.0399	0.0399	25.2	0.0299	0.0500
1990	5	0	0.0375R	0.0361	4.8R	0.0103	0.0383
1992	5	0	0.0221	0.0217	25.6	0.0025	0.0352
2000	5	0	0.0295	0.0303	3.5	0.0263	0.0322

Nuklid=Pu-239,240 Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1983	1	0	1.4000	1.4000	1.2	1.4000	1.4000
1984	2	0	0.9000	0.9000	10.0	0.8100	0.9900
1985	1	0	0.7170	0.7170	1.9	0.7170	0.7170
1986	3	0	0.8157	0.7530	28.1	0.4540	1.2400
1987	2	0	0.9895	0.9895	2.1	0.9690	1.0100
1989	2	0	0.8285	0.8285	32.8	0.5570	1.1000
1990	5	0	0.6448	0.6750	19.5	0.2730	0.9630
1992	5	0	0.6219R	0.5540	8.0R	0.0670	0.7440
2000	5	0	0.7463R	0.7390	1.5R	0.5960	0.7600

Nuklid=Am-241gamma Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1983	3	2	0.0000	0.0000	0.0	<0.9630	<2.2100
1984	3	1	1.4616	1.4200	10.6	1.4200	<19.6000
1985	2	1	0.8550	0.8550	23.0	0.8550	<0.9420
1986	3	0	0.9600	0.9640	12.5	0.8260	1.0900
1987	4	1	1.3732	1.3500	10.4	1.2200	1.5800
1988	1	0	<2.5900	<2.5900	0.0	<2.5900	<2.5900
1989	2	1	1.1470	1.1470	13.0	<0.9880	1.8000
1990	5	4	0.0000	0.0000	0.0	<0.6850	<15.4000
1992	5	2	0.9607	0.9505	12.6	<0.6160	<9.7200
1998	2	1	0.7993	0.7993	21.0	<0.7170	1.2400
2000	12	4	0.9776	0.8894	10.0	0.6890	<17.7000

Nuklid=Am-241Rch Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
2000	5	0	1.0184	0.9970	4.8	0.9030	1.1500

Nuklid=Pu-238/Pu-239+240 Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1983	1	0	0.0436	0.0436	6.3	0.0436	0.0436
1984	2	0	0.0734	0.0734	14.2	0.0630	0.0838
1985	1	0	0.0831	0.0831	7.7	0.0831	0.0831
1986	3	0	0.0488R	0.0505	5.8R	0.0471	0.0676
1987	2	0	0.0764	0.0764	23.4	0.0585	0.0943
1989	2	0	0.0496	0.0496	12.2	0.0455	0.0537
1990	5	0	0.0414	0.0398	9.0	0.0312	0.0535
1992	5	0	0.0395R	0.0394	3.7R	0.0373	0.0512
2000	5	0	0.0425	0.0424	2.6	0.0410	0.0441

Nuklid=Am-241/Pu-239,240 Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1983	1	0	1.2000	1.2000	14.1	1.2000	1.2000
1984	1	0	1.4343	1.4343	16.0	1.4343	1.4343
1985	1	0	1.1925	1.1925	23.1	1.1925	1.1925
1986	3	0	1.3481	1.4475	22.6	0.7774	1.8194
1987	2	0	1.4117	1.4117	10.8	1.2590	1.5644
1989	1	0	1.6364	1.6364	13.0	1.6364	1.6364
1990	1	0	2.0741	2.0741	11.1	2.0741	2.0741
1992	3	0	1.7176	1.7876	10.5	1.3770	1.9882
2000	3	0	1.7918	1.8624	7.1	1.6184	1.8945

Query: Holothurien, keine Gebietsunterscheidung

```
select probe,index,arge,jahr,ptyp,part,amat,einheit,ft,Sr_90,CS_137,Co_60,Pu_238,Pu_239,Am_241,Am_241r,Puverh,kont,pk from atlbiof where (part like 'HoToth%' or part like 'Psychro%') and (amat is null or amat like '%gs%')
```

Nuklid=Sr-90 Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1980	4	0	1.6560R	1.9800	17.9R	0.9990	5.1800
1981	4	1	0.6717	0.6220	22.7	0.4800	1.0600
1982	3	0	0.8210	0.7940	13.8	0.6390	1.0300
1984	5	1	0.8943	0.7720	25.8	0.5550	1.7600
1985	1	0	0.8400	0.8400	19.0	0.8400	0.8400
1986	6	0	0.7350R	0.7725	25.2R	0.2070	2.0300
1987	7	0	0.4700R	0.4710	5.5R	0.3940	1.0100

1988	1	0	0.5860	0.5860	4.9	0.5860	0.5860
1989	3	0	0.4950	0.4890	14.1	0.3770	0.6190
1990	4	0	0.3457R	0.3865	11.6R	0.2640	14.1000
1992	11	2	0.4649	0.4498	10.5	0.2730	<1.5000
1993	7	2	0.5445	0.4360	16.9	0.4050	0.9880
1996	1	0	18.6000	18.6000	2.9	18.6000	18.6000

Nuklid=Cs-137 Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1980	4	0	5.6325	5.3650	19.5	3.2900	8.5100
1981	4	0	4.5425	4.6800	12.9	2.9900	5.8200
1982	3	0	3.0433	3.2700	29.3	1.4000	4.4600
1983	6	0	4.8177R	4.6000	7.9R	2.4500	6.2400
1984	4	0	3.1667R	3.4450	7.6R	2.6100	7.9500
1985	2	0	3.7200	3.7200	6.1	3.5000	3.9400
1986	8	0	2.6259R	2.9450	12.3R	1.5300	6.3100
1987	8	1	3.1286	2.3900	29.7	<0.9500	9.1200
1988	3	0	3.2733	3.2900	11.2	2.6300	3.9000
1989	4	0	2.1438R	2.2050	4.7R	2.0100	2.6300
1990	7	0	2.7769	3.1600	20.6	0.8310	4.2500
1992	11	0	2.1464	2.1500	9.2	1.3000	3.3100
1993	8	1	1.5674	1.5800	16.7	<0.4410	2.7500
1996	22	0	1.0643R	1.0350	2.1R	0.6170	1.2600
1998	29	0	1.0518	1.0800	4.7	0.2770	1.6400
2000	12	0	1.2416	1.2950	6.9	0.5590	1.6700

Nuklid=Pu-238 Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1981	1	0	0.2100	0.2100	3.1	0.2100	0.2100
1982	2	0	0.1430	0.1430	39.9	0.0860	0.2000
1983	2	0	0.1005	0.1005	39.3	0.0610	0.1400
1984	2	0	0.0670	0.0670	23.9	0.0510	0.0830
1985	1	0	0.0596	0.0596	7.5	0.0596	0.0596
1986	6	0	0.0596	0.0610	15.4	0.0307	0.0889
1987	5	0	0.0811	0.0844	11.0	0.0591	0.1070
1988	2	0	0.0798	0.0798	26.6	0.0586	0.1010
1989	4	0	0.0499R	0.0499	6.2R	0.0299	0.0500
1990	7	0	0.0361	0.0361	23.9	0.0103	0.0807
1992	11	0	0.0494	0.0352	20.6	0.0025	0.1060
1993	7	1	0.0476	0.0491	16.7	<0.0102	0.0692
1996	4	0	0.0556R	0.0523	6.5R	0.0333	0.0641
2000	5	0	0.0295	0.0303	3.5	0.0263	0.0322

Nuklid=Pu-239,240 Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1981	1	0	1.8000	1.8000	1.1	1.8000	1.8000
1982	2	0	2.1500	2.1500	7.0	2.0000	2.3000
1983	2	0	1.7000	1.7000	17.6	1.4000	2.0000
1984	2	0	0.9000	0.9000	10.0	0.8100	0.9900
1985	1	0	0.7170	0.7170	1.9	0.7170	0.7170
1986	6	0	0.8927	0.9115	16.2	0.4540	1.2800
1987	5	0	1.0768	1.0100	10.0	0.7650	1.3200
1988	2	0	0.8150	0.8150	15.8	0.6860	0.9440
1989	4	0	0.7190R	0.7780	9.2R	0.5570	1.1000
1990	7	0	0.6931	0.6750	15.6	0.2730	1.0700
1992	11	0	0.7803	0.7440	14.8	0.0670	1.3300
1993	7	0	0.7772R	0.7080	10.9R	0.1700	1.0600
1996	4	0	0.7895	0.7740	12.8	0.5700	1.0400
2000	5	0	0.7463R	0.7390	1.5R	0.5960	0.7600

Nuklid=Am-241gamma Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1982	1	0	3.3000	3.3000	10.0	3.3000	3.3000
1983	3	2	0.0000	0.0000	0.0	<0.9630	<2.2100
1984	4	1	1.7908	1.5300	22.7	1.4200	<19.6000
1985	2	1	0.8550	0.8550	23.0	0.8550	<0.9420
1986	6	1	0.9475	0.9480	8.7	0.8260	<5.1500
1987	8	1	1.3948	1.2500	12.7	0.9650	2.5000
1988	5	1	0.9707	0.8160	24.0	0.5220	<2.5900
1989	4	1	1.2481	1.1965	18.4	0.9530	1.8000
1990	7	5	1.1678	1.1248	11.0	<0.6850	<15.4000
1992	11	4	1.2460	1.1723	10.8	<0.6160	<9.7200
1993	8	5	1.1879	0.9821	16.5	<0.6570	<13.8000
1996	22	8	0.6694	0.6002	5.8	0.4010	<26.1000
1998	29	6	1.4363	1.0400	27.3	0.3490	12.3000
2000	12	4	0.9776	0.8894	10.0	0.6890	<17.7000

Nuklid=Am-241Rch Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1996	3	0	0.8357	0.8520	9.1	0.6960	0.9590
2000	5	0	1.0184	0.9970	4.8	0.9030	1.1500

Nuklid=Pu-238/Pu-239+240 Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
------	-----	----	------	--------	--------	-----	-----

1981	1	0	0.1167	0.1167	3.3	0.1167	0.1167
1982	2	0	0.0687	0.0687	45.6	0.0374	0.1000
1983	2	0	0.0568	0.0568	23.3	0.0436	0.0700
1984	2	0	0.0734	0.0734	14.2	0.0630	0.0838
1985	1	0	0.0831	0.0831	7.7	0.0831	0.0831
1986	6	0	0.0626R	0.0643	9.5R	0.0471	0.1138
1987	5	0	0.0762	0.0811	8.6	0.0585	0.0943
1988	2	0	0.0962	0.0962	11.2	0.0854	0.1070
1989	4	0	0.0568	0.0587	7.9	0.0455	0.0644
1990	7	0	0.0493	0.0448	11.9	0.0312	0.0754
1992	11	0	0.0575	0.0626	8.4	0.0373	0.0797
1993	7	1	0.0657	0.0659	4.6	0.0575	0.0757
1996	4	0	0.0640	0.0628	4.5	0.0584	0.0719
2000	5	0	0.0425	0.0424	2.6	0.0410	0.0441

Nuklid=Am-241/Pu-239,240 Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1982	1	0	1.6500	1.6500	10.0	1.6500	1.6500
1983	1	0	1.2000	1.2000	14.1	1.2000	1.2000
1984	1	0	1.4343	1.4343	16.0	1.4343	1.4343
1985	1	0	1.1925	1.1925	23.1	1.1925	1.1925
1986	5	0	1.3386	1.4475	14.9	0.7774	1.8194
1987	5	0	1.2304	1.2590	14.7	0.7311	1.6732
1988	2	0	1.4422	1.4422	17.5	1.1895	1.6949
1989	3	0	1.5692	1.6364	11.3	1.2345	1.8367
1990	2	0	1.7940	1.7940	15.6	1.5140	2.0741
1992	7	0	1.4167R	1.4436	5.0R	1.3770	1.9882
1993	3	0	1.8863R	1.8857	9.7R	1.6102	1.8868
1996	4	0	0.9739R	1.0054	10.2R	0.8981	1.2026
2000	3	0	1.7918	1.8624	7.1	1.6184	1.8945

Query: Actiniaria aus dem Gebiet B

```
select probe,index,arge,jahr,ptyp,part,amat,einheit,ft,Sr_90,CS_137,Co_60,Pu_238,Pu_239,Am_241,Am_241r,Puverh,kont,pk from atlbiof where ( arge like 'B%' and arge <> 'BO' ) and part like 'Actin%'
```

Nuklid=Sr-90 Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1980	3	0	0.4917R	0.7400	41.4R	0.2410	2.7000
1981	2	0	1.6930	1.6930	47.7	0.8860	2.5000
1982	2	1	0.9845	0.9845	3.3	<0.0382	1.9500
1984	6	2	0.6893	0.4075	53.6	<0.1070	2.4400
1986	1	0	1.5900	1.5900	12.0	1.5900	1.5900
1987	1	0	0.4980	0.4980	15.0	0.4980	0.4980
1988	1	0	0.1780	0.1780	8.1	0.1780	0.1780
1989	3	1	0.2693	0.2890	44.4	<0.0531	0.4660
1992	3	2	0.0000	0.0000	0.0	0.2420	<0.5130
1993	4	0	0.3857	0.3875	24.7	0.2010	0.5670

Nuklid=Cs-137 Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1980	3	0	1.4974R	1.4100	16.6R	0.9250	1.5900
1981	2	0	2.1320	2.1320	55.7	0.9440	3.3200
1982	2	0	1.9545	1.9545	55.5	0.8690	3.0400
1983	3	0	3.4740	3.0600	45.6	0.9620	6.4000
1984	4	1	1.2802	1.0295	45.4	<0.5160	2.8900
1986	7	0	1.8411	1.3000	19.7	0.7180	3.1500
1987	3	0	1.9123	1.9900	36.2	0.6770	3.0700
1988	3	1	1.4728	0.6760	77.7	<0.5180	3.7300
1989	3	1	0.3585	0.2330	49.1	0.2330	<4.6500
1990	2	0	1.3315	1.3315	25.4	0.9930	1.6700
1992	3	0	0.9330	1.0400	34.5	0.3290	1.4300
1993	5	1	1.0392	1.0000	18.4	0.7130	1.6500
1996	16	0	1.0592	1.0550	10.5	0.4780	1.9200
1998	18	3	0.8275	0.7555	11.0	<0.1260	1.5500

Nuklid=Pu-238 Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1982	1	0	0.0280	0.0280	5.2	0.0280	0.0280
1984	1	0	0.0560	0.0560	6.4	0.0560	0.0560
1986	2	0	0.0568	0.0568	4.6	0.0542	0.0594
1987	3	0	0.0558	0.0571	25.4	0.0307	0.0797
1988	2	0	0.0345	0.0345	7.7	0.0319	0.0372
1989	3	0	0.0330R	0.0495	40.8R	0.0165	0.4650
1990	1	0	0.0385	0.0385	8.5	0.0385	0.0385
1992	3	0	0.0397R	0.0395	3.4R	0.0215	0.0398
1993	4	0	0.0464R	0.0455	3.8R	0.0335	0.0487
1996	7	0	0.0386	0.0387	4.4	0.0325	0.0452

Nuklid=Pu-239,240 Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1982	1	0	0.3800	0.3800	1.3	0.3800	0.3800
1984	1	0	0.6200	0.6200	1.8	0.6200	0.6200

1986	2	0	0.9250	0.9250	11.4	0.8200	1.0300
1987	3	0	0.7422R	0.6850	6.5R	0.3730	0.8030
1988	2	0	0.5965	0.5965	24.7	0.4490	0.7440
1989	3	0	0.4660R	0.6790	37.3R	0.2530	4.8800
1990	1	0	0.4640	0.4640	2.3	0.4640	0.4640
1992	3	0	0.5967R	0.5620	4.8R	0.3160	0.6320
1993	4	0	0.5642R	0.5795	5.0R	0.5130	0.7200
1996	7	0	0.5623	0.5530	3.6	0.4990	0.6540

Nuklid=Am-241gamma Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1983	1	0	<0.6900	<0.6900	0.0	<0.6900	<0.6900
1984	4	4	0.0000	0.0000	0.0	<0.3570	<13.2000
1986	2	2	0.0000	0.0000	0.0	<0.5930	<0.7340
1987	3	1	0.6585	0.6560	42.1	<0.3220	1.1400
1988	5	4	0.0000	0.0000	0.0	<0.5280	<22.3000
1989	3	2	0.0000	0.0000	0.0	<0.1970	<2.1100
1990	2	2	0.0000	0.0000	0.0	<1.3900	<1.6000
1992	3	2	0.0000	0.0000	0.0	<0.2370	0.6160
1993	5	3	0.6486	0.6830	9.5	<0.5550	<2.3000
1996	16	7	0.7620	0.7036	12.2	0.4040	<18.6000
1998	18	5	0.8302	0.5590	23.3	<0.1610	<8.0800

Nuklid=Am-241Rch Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1996	7	0	0.6597R	0.6280	3.9R	0.2350	0.7390

Nuklid=Pu-238/Pu-239+240 Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1982	1	0	0.0737	0.0737	5.4	0.0737	0.0737
1984	1	0	0.0903	0.0903	6.6	0.0903	0.0903
1986	2	0	0.0625	0.0625	15.8	0.0526	0.0724
1987	3	0	0.0828R	0.0834	2.7R	0.0823	0.0993
1988	2	0	0.0605	0.0605	17.4	0.0500	0.0710
1989	3	0	0.0691R	0.0729	4.5R	0.0652	0.0953
1990	1	0	0.0830	0.0830	8.8	0.0830	0.0830
1992	3	0	0.0671	0.0680	3.6	0.0625	0.0708
1993	4	0	0.0725	0.0730	5.0	0.0653	0.0789
1996	7	0	0.0687	0.0691	2.2	0.0624	0.0739

Nuklid=Am-241/Pu-239,240 Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1987	2	0	1.1887	1.1887	19.4	0.9577	1.4197
1988	1	0	1.2717	1.2717	21.0	1.2717	1.2717
1989	1	0	0.3525	0.3525	16.0	0.3525	0.3525
1992	1	0	0.9747	0.9747	15.1	0.9747	0.9747
1993	2	0	1.2038	1.2038	9.6	1.1475	1.2601
1996	5	0	1.1594R	1.1673	8.0R	0.9515	3.7275

Query: Actiniaria aus Vergleichsgebieten

```
select probe,index,arge,jahr,ptyp,part,amat,einheit,ft,Sr_90,CS_137,Co_60,Pu_238,Pu_239,Am_241,Am_241r,Puverh,kont,pk from atlbiof where (
not(arge like 'B%') or arge like 'BO' ) and part like 'Actin%'
```

Nuklid=Sr-90 Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1980	5	1	1.7511	0.7770	45.0	0.7030	<7.2000
1981	2	1	0.5487	0.5487	12.0	<0.1950	1.0000
1982	1	0	1.2000	1.2000	12.0	1.2000	1.2000
1984	1	0	1.7300	1.7300	4.4	1.7300	1.7300
1986	2	0	0.7370	0.7370	46.5	0.3940	1.0800
1987	1	0	<0.3960	<0.3960	0.0	<0.3960	<0.3960
1992	1	0	1.2100	1.2100	21.0	1.2100	1.2100

Nuklid=Cs-137 Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1980	3	0	2.5105R	3.6300	36.8R	1.3700	11.5000
1981	2	0	5.0475	5.0475	82.9	0.8650	9.2300
1982	1	0	9.5400	9.5400	12.0	9.5400	9.5400
1983	1	0	1.1100	1.1100	15.0	1.1100	1.1100
1984	2	1	4.6800	4.6800	7.3	<1.1000	8.8100
1985	1	0	5.2400	5.2400	7.8	5.2400	5.2400
1986	3	0	6.6798R	6.0600	7.6R	1.6100	7.3100
1987	2	0	1.1085	1.1085	25.4	0.8270	1.3900
1989	1	0	0.7210	0.7210	19.0	0.7210	0.7210
1990	4	1	3.8190	3.1850	25.3	2.7900	6.6100
1992	2	0	3.7450	3.7450	54.9	1.6900	5.8000
1998	1	0	1.0600	1.0600	18.0	1.0600	1.0600
2000	4	2	0.5861	0.5687	21.3	<0.4540	0.8780

Nuklid=Pu-238 Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1985	1	0	0.0629	0.0629	7.0	0.0629	0.0629
1986	3	1	0.0539	0.0533	9.8	0.0533	<0.2030
1987	1	0	0.0165	0.0165	32.0	0.0165	0.0165
1989	1	0	0.0174	0.0174	27.0	0.0174	0.0174
1990	3	0	0.0226R	0.0232	6.3R	0.0221	0.0619
1992	1	0	0.0615	0.0615	6.4	0.0615	0.0615

Nuklid=Pu-239,240 Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1985	1	0	0.6630	0.6630	1.9	0.6630	0.6630
1986	3	0	0.7937	0.7900	3.6	0.7460	0.8450
1987	1	0	0.2730	0.2730	4.2	0.2730	0.2730
1989	1	0	0.3510	0.3510	2.3	0.3510	0.3510
1990	3	0	0.4095R	0.4340	4.9R	0.3850	1.0800
1992	1	0	1.1100	1.1100	1.5	1.1100	1.1100

Nuklid=Am-241gamma Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1982	1	0	<1.9800	<1.9800	0.0	<1.9800	<1.9800
1984	2	2	0.0000	0.0000	0.0	<2.4200	<8.4100
1985	1	0	0.6330	0.6330	29.0	0.6330	0.6330
1986	3	2	0.0000	0.0000	0.0	0.5610	<6.7700
1987	2	2	0.0000	0.0000	0.0	<0.6100	<0.9330
1989	1	0	<0.4390	<0.4390	0.0	<0.4390	<0.4390
1990	4	4	0.0000	0.0000	0.0	<0.8070	<9.2800
1992	2	2	0.0000	0.0000	0.0	<0.6840	<1.0800
1998	1	0	<0.9880	<0.9880	0.0	<0.9880	<0.9880
2000	4	4	0.0000	0.0000	0.0	<0.4500	<1.7600

Nuklid=Pu-238/Pu-239+240 Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1985	1	0	0.0949	0.0949	7.3	0.0949	0.0949
1986	3	1	0.0714	0.0714	7.5	0.0714	<0.2402
1987	1	0	0.0604	0.0604	32.3	0.0604	0.0604
1989	1	0	0.0496	0.0496	27.1	0.0496	0.0496
1990	3	0	0.0561	0.0573	6.5	0.0535	0.0574
1992	1	0	0.0554	0.0554	6.6	0.0554	0.0554

Nuklid=Am-241/Pu-239,240 Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1985	1	0	0.9548	0.9548	29.1	0.9548	0.9548
1986	1	0	0.7520	0.7520	28.0	0.7520	0.7520

Query: Actiniaria, keine Gebietsunterscheidung

```
select probe,index,arge,jahr,ptyp,part,amat,einheit,ft,Sr_90,CS_137,Co_60,Pu_238,Pu_239,Am_241,Am_241r,Puverh,kont,pk from atlbiof where part like 'Actin%'
```

Nuklid=Sr-90 Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1980	8	1	1.5298	0.7585	35.8	0.2410	<7.2000
1981	4	1	1.1416	0.9430	42.7	<0.1950	2.5000
1982	3	1	1.0627	1.2000	52.3	<0.0382	1.9500
1984	7	2	0.8458	0.5470	40.6	<0.1070	2.4400
1986	3	0	1.0213	1.0800	33.9	0.3940	1.5900
1987	2	1	0.3480	0.3480	15.0	<0.3960	0.4980
1988	1	0	0.1780	0.1780	8.1	0.1780	0.1780
1989	3	1	0.2693	0.2890	44.4	<0.0531	0.4660
1992	4	2	0.4349	0.2197	59.8	0.2420	1.2100
1993	4	0	0.3857	0.3875	24.7	0.2010	0.5670

Nuklid=Cs-137 Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1980	6	0	1.3239R	1.5000	10.9R	0.9250	11.5000
1981	4	0	1.7224R	2.1320	40.5R	0.8650	9.2300
1982	3	0	1.9748R	3.0400	44.9R	0.8690	9.5400
1983	4	0	1.7554R	2.0850	33.5R	0.9620	6.4000
1984	6	2	2.3639	1.0295	57.2	<0.5160	8.8100
1985	1	0	5.2400	5.2400	7.8	5.2400	5.2400
1986	10	0	1.8254R	1.9700	15.5R	0.7180	7.3100
1987	5	0	1.2865R	1.3900	21.5R	0.6770	3.0700
1988	3	1	1.4728	0.6760	77.7	<0.5180	3.7300
1989	4	1	0.4704	0.4695	29.8	0.2330	<4.6500
1990	6	1	2.7643	2.2300	31.7	0.9930	6.6100
1992	5	0	1.1227R	1.4300	23.6R	0.3290	5.8000
1993	5	1	1.0392	1.0000	18.4	0.7130	1.6500
1996	16	0	1.0592	1.0550	10.5	0.4780	1.9200

1998 19 3 0.8412 0.7980 10.3 <0.1260 1.5500
 2000 4 2 0.5861 0.5687 21.3 <0.4540 0.8780

Nuklid=Pu-238 Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1982	1	0	0.0280	0.0280	5.2	0.0280	0.0280
1984	1	0	0.0560	0.0560	6.4	0.0560	0.0560
1985	1	0	0.0629	0.0629	7.0	0.0629	0.0629
1986	5	1	0.0551	0.0542	5.1	0.0533	<0.2030
1987	4	0	0.0460	0.0439	30.5	0.0165	0.0797
1988	2	0	0.0345	0.0345	7.7	0.0319	0.0372
1989	4	0	0.0278R	0.0334	33.8R	0.0165	0.4650
1990	4	0	0.0284R	0.0309	16.3R	0.0221	0.0619
1992	4	0	0.0406	0.0397	20.2	0.0215	0.0615
1993	4	0	0.0464R	0.0455	3.8R	0.0335	0.0487
1996	7	0	0.0386	0.0387	4.4	0.0325	0.0452

Nuklid=Pu-239,240 Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1982	1	0	0.3800	0.3800	1.3	0.3800	0.3800
1984	1	0	0.6200	0.6200	1.8	0.6200	0.6200
1985	1	0	0.6630	0.6630	1.9	0.6630	0.6630
1986	5	0	0.8006R	0.8200	2.4R	0.7460	1.0300
1987	4	0	0.5335	0.5290	23.5	0.2730	0.8030
1988	2	0	0.5965	0.5965	24.7	0.4490	0.7440
1989	4	0	0.4277R	0.5150	26.1R	0.2530	4.8800
1990	4	0	0.4277R	0.4490	4.7R	0.3850	1.0800
1992	4	0	0.5127R	0.5970	16.3R	0.3160	1.1100
1993	4	0	0.5642R	0.5795	5.0R	0.5130	0.7200
1996	7	0	0.5623	0.5530	3.6	0.4990	0.6540

Nuklid=Am-241gamma Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1982	1	0	<1.9800	<1.9800	0.0	<1.9800	<1.9800
1983	1	0	<0.6900	<0.6900	0.0	<0.6900	<0.6900
1984	6	6	0.0000	0.0000	0.0	<0.3570	<13.2000
1985	1	0	0.6330	0.6330	29.0	0.6330	0.6330
1986	5	4	0.0000	0.0000	0.0	0.5610	<6.7700
1987	5	3	0.5338	0.3509	31.7	<0.3220	1.1400
1988	5	4	0.0000	0.0000	0.0	<0.5280	<22.3000
1989	4	3	0.0000	0.0000	0.0	<0.1970	<2.1100
1990	6	6	0.0000	0.0000	0.0	<0.8070	<9.2800
1992	5	4	0.0000	0.0000	0.0	<0.2370	<1.0800
1993	5	3	0.6486	0.6830	9.5	<0.5550	<2.3000
1996	16	7	0.7620	0.7036	12.2	0.4040	<18.6000
1998	19	6	0.8118	0.5380	22.6	<0.1610	<8.0800
2000	4	4	0.0000	0.0000	0.0	<0.4500	<1.7600

Nuklid=Am-241Rch Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1996	7	0	0.6597R	0.6280	3.9R	0.2350	0.7390

Nuklid=Pu-238/Pu-239+240 Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1982	1	0	0.0737	0.0737	5.4	0.0737	0.0737
1984	1	0	0.0903	0.0903	6.6	0.0903	0.0903
1985	1	0	0.0949	0.0949	7.3	0.0949	0.0949
1986	5	1	0.0646	0.0714	6.8	0.0526	<0.2402
1987	4	0	0.0813	0.0828	9.8	0.0604	0.0993
1988	2	0	0.0605	0.0605	17.4	0.0500	0.0710
1989	4	0	0.0707	0.0691	13.4	0.0496	0.0953
1990	4	0	0.0561R	0.0574	5.3R	0.0535	0.0830
1992	4	0	0.0642	0.0653	5.3	0.0554	0.0708
1993	4	0	0.0725	0.0730	5.0	0.0653	0.0789
1996	7	0	0.0687	0.0691	2.2	0.0624	0.0739

Nuklid=Am-241/Pu-239,240 Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1985	1	0	0.9548	0.9548	29.1	0.9548	0.9548
1986	1	0	0.7520	0.7520	28.0	0.7520	0.7520
1987	2	0	1.1887	1.1887	19.4	0.9577	1.4197
1988	1	0	1.2717	1.2717	21.0	1.2717	1.2717
1989	1	0	0.3525	0.3525	16.0	0.3525	0.3525
1992	1	0	0.9747	0.9747	15.1	0.9747	0.9747
1993	2	0	1.2038	1.2038	9.6	1.1475	1.2601
1996	5	0	1.1594R	1.1673	8.0R	0.9515	3.7275

Query: Asteroidea aus dem Gebiet B

```
select probe,index,arge,jahr,ptyp,part,amat,einheit,ft,Sr_90,CS_137,Co_60,Pu_238,Pu_239,Am_241,Am_241r,Puverh,kont,pk from atlbiof where ( arge like 'B%' and arge <> 'BO' ) and part like 'Astero%'
```

Nuklid=Sr-90 Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1980	2	0	1.1450	1.1450	6.6	1.0700	1.2200
1981	1	0	0.4600	0.4600	8.5	0.4600	0.4600
1982	1	0	<0.1690	<0.1690	0.0	<0.1690	<0.1690
1984	2	1	0.4233	0.4233	31.0	<0.3170	0.6880
1986	1	0	1.1200	1.1200	8.3	1.1200	1.1200
1987	1	0	<0.1070	<0.1070	0.0	<0.1070	<0.1070
1988	1	0	0.1270	0.1270	18.0	0.1270	0.1270
1989	1	0	0.0707	0.0707	28.0	0.0707	0.0707
1992	2	2	0.0000	0.0000	0.0	<0.1490	<0.2780
1993	2	1	0.1187	0.1187	20.0	<0.1550	0.1600
1996	1	0	<0.0839	<0.0839	0.0	<0.0839	<0.0839

Nuklid=Cs-137 Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1980	2	0	1.9610	1.9610	50.9	0.9620	2.9600
1981	1	0	1.4400	1.4400	14.0	1.4400	1.4400
1982	1	0	2.0600	2.0600	10.0	2.0600	2.0600
1983	1	0	2.4200	2.4200	9.5	2.4200	2.4200
1986	3	1	0.7379	0.7080	46.8	<0.4600	1.3500
1987	1	0	1.1800	1.1800	9.3	1.1800	1.1800
1988	1	0	0.7360	0.7360	9.0	0.7360	0.7360
1989	1	0	0.5520	0.5520	12.0	0.5520	0.5520
1990	2	2	0.0000	0.0000	0.0	<0.3620	<0.9850
1992	2	1	0.7135	0.7135	9.4	<0.1140	1.3700
1993	4	2	0.3154	0.1951	61.7	<0.1040	0.8560
1996	16	5	0.2849	0.1170	24.2	0.0677	<0.8380
1998	14	2	0.3977	0.3225	22.7	0.0818	0.9600

Nuklid=Pu-238 Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1982	1	0	0.0680	0.0680	5.0	0.0680	0.0680
1986	1	0	0.0677	0.0677	5.1	0.0677	0.0677
1987	1	0	0.0789	0.0789	4.7	0.0789	0.0789
1988	1	0	<0.0204	<0.0204	0.0	<0.0204	<0.0204
1989	1	0	0.0202	0.0202	8.8	0.0202	0.0202
1990	2	0	0.0166	0.0166	9.5	0.0154	0.0177
1992	2	0	0.0322	0.0322	50.0	0.0161	0.0483
1993	3	0	0.0196R	0.0198	2.7R	0.0194	0.0261
1996	1	0	0.0267	0.0267	3.8	0.0267	0.0267

Nuklid=Pu-239,240 Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1982	1	0	0.8000	0.8000	1.4	0.8000	0.8000
1986	1	0	0.7610	0.7610	1.3	0.7610	0.7610
1987	1	0	0.7550	0.7550	1.4	0.7550	0.7550
1988	1	0	0.4260	0.4260	2.9	0.4260	0.4260
1989	1	0	0.2950	0.2950	1.3	0.2950	0.2950
1990	2	0	0.2175	0.2175	2.3	0.2160	0.2190
1992	2	0	0.4535	0.4535	57.0	0.1950	0.7120
1993	3	0	0.2420	0.2450	1.2	0.2360	0.2450
1996	1	0	0.3420	0.3420	3.4	0.3420	0.3420

Nuklid=Am-241gamma Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1986	1	0	0.6460	0.6460	19.0	0.6460	0.6460
1987	1	0	<0.4330	<0.4330	0.0	<0.4330	<0.4330
1988	2	1	0.3930	0.3930	20.0	0.3930	<0.5240
1989	1	0	<0.3360	<0.3360	0.0	<0.3360	<0.3360
1990	2	2	0.0000	0.0000	0.0	<0.6090	<28.0000
1992	1	0	1.1500	1.1500	17.0	1.1500	1.1500
1993	4	4	0.0000	0.0000	0.0	<0.2690	<0.5330
1996	16	16	0.0000	0.0000	0.0	<0.2260	<16.1000
1998	14	9	0.5521	0.4075	14.6	<0.2080	<8.4400

Nuklid=Am-241Rch Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1992	1	0	0.0591	0.0591	5.1	0.0591	0.0591
1996	1	0	0.0738	0.0738	2.9	0.0738	0.0738

Nuklid=Pu-238/Pu-239+240 Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1982	1	0	0.0850	0.0850	5.2	0.0850	0.0850
1986	1	0	0.0890	0.0890	5.3	0.0890	0.0890
1987	1	0	0.1045	0.1045	4.9	0.1045	0.1045
1988	1	0	<0.0479	<0.0479	0.0	<0.0479	<0.0479
1989	1	0	0.0685	0.0685	8.9	0.0685	0.0685
1990	2	0	0.0761	0.0761	9.8	0.0713	0.0808
1992	2	0	0.0752	0.0752	9.8	0.0678	0.0826
1993	3	0	0.0815R	0.0822	2.8R	0.0808	0.1065

1996 1 0 0.0781 0.0781 5.1 0.0781 0.0781

Nuklid=Am-241/Pu-239,240 Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1986	1	0	0.8489	0.8489	19.0	0.8489	0.8489
1988	1	0	0.9225	0.9225	20.2	0.9225	0.9225
1992	1	0	1.6152	1.6152	17.0	1.6152	1.6152

Query: Asteroidea aus Vergleichsgebieten

```
select probe,index,arge,jahr,ptyp,part,amat,einheit,ft,Sr_90,CS_137,Co_60,Pu_238,Pu_239,Am_241,Am_241r,Puverh,kont,pk from atlbiof where (not(arge like 'B%') or arge like 'BO' ) and part like 'Astero%'
```

Nuklid=Sr-90 Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1981	1	0	0.8100	0.8100	24.0	0.8100	0.8100
1982	1	0	0.6790	0.6790	33.0	0.6790	0.6790
1984	1	0	<0.5080	<0.5080	0.0	<0.5080	<0.5080
1986	2	2	0.0000	0.0000	0.0	<0.1380	<0.2110
1990	2	2	0.0000	0.0000	0.0	<0.0808	<0.3410
1992	2	1	0.1532	0.1532	35.0	<0.1330	0.2400

Nuklid=Cs-137 Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1981	1	0	3.8500	3.8500	7.8	3.8500	3.8500
1982	1	0	0.9370	0.9370	30.0	0.9370	0.9370
1983	2	0	1.2210	1.2210	31.9	0.8320	1.6100
1984	1	0	<1.3500	<1.3500	0.0	<1.3500	<1.3500
1985	1	0	6.2600	6.2600	7.3	6.2600	6.2600
1986	3	0	0.6746R	1.0100	40.6R	0.3390	4.9600
1987	2	0	3.1855	3.1855	77.1	0.7310	5.6400
1990	4	2	1.1932	0.5768	68.4	<0.2010	<5.7400
1992	3	2	0.0000	0.0000	0.0	<0.1870	<1.5300
1998	2	1	0.4968	0.4968	11.0	<0.0951	0.9460
2000	10	4	0.3605	0.2907	28.0	0.0993	0.9850

Nuklid=Pu-238 Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1986	1	0	<0.0097	<0.0097	0.0	<0.0097	<0.0097
1987	2	1	0.0189	0.0189	13.0	<0.0153	0.0301
1990	3	0	0.0085R	0.0116	31.1R	0.0051	0.0270
1992	3	1	0.0092	0.0060	49.2	0.0060	<0.0330
2000	1	0	0.0178	0.0178	5.1	0.0178	0.0178

Nuklid=Pu-239,240 Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1986	1	0	0.1970	0.1970	3.3	0.1970	0.1970
1987	2	0	0.3128	0.3128	70.7	0.0917	0.5340
1990	3	0	0.3420	0.2980	38.2	0.1410	0.5870
1992	3	0	0.4084R	0.3720	7.7R	0.1970	0.4490
2000	1	0	0.5260	0.5260	3.4	0.5260	0.5260

Nuklid=Am-241gamma Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1983	1	0	<1.3500	<1.3500	0.0	<1.3500	<1.3500
1984	1	0	*****	*****	0.0	*****	<29.5000
1985	1	0	1.0500	1.0500	15.0	1.0500	1.0500
1986	3	3	0.0000	0.0000	0.0	<0.6260	<1.2100
1987	2	1	0.7555	0.7555	21.0	<0.5420	1.2400
1990	4	4	0.0000	0.0000	0.0	<0.4690	<117.0000
1992	3	3	0.0000	0.0000	0.0	<0.1940	<2.0200
1998	2	1	0.4523	0.4523	18.0	<0.2610	0.7740
2000	10	7	0.4227	0.3222	20.8	<0.1530	<6.1600

Nuklid=Am-241Rch Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
2000	1	0	0.4430	0.4430	2.7	0.4430	0.4430

Nuklid=Pu-238/Pu-239+240 Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1986	1	0	<0.0490	<0.0490	0.0	<0.0490	<0.0490
1987	2	1	0.0564	0.0564	13.1	0.0564	<0.1668
1990	3	0	0.0377R	0.0389	10.8R	0.0365	0.0460
1992	3	1	0.0323	0.0302	13.0	0.0302	<0.0887
2000	1	0	0.0338	0.0338	6.1	0.0338	0.0338

Nuklid=Am-241/Pu-239,240 Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1987	1	0	2.3221	2.3221	21.1	2.3221	2.3221

Query: Asteroidea, keine Gebietsunterscheidung

```
select probe,index,arge,jahr,ptyp,part,amat,einheit,ft,Sr_90,CS_137,Co_60,Pu_238,Pu_239,Am_241,Am_241r,Puverh,kont,pk from atlbiof where part like 'Astero%'
```

Nuklid=Sr-90 Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1980	2	0	1.1450	1.1450	6.6	1.0700	1.2200
1981	2	0	0.6350	0.6350	27.6	0.4600	0.8100
1982	2	1	0.3818	0.3818	33.0	<0.1690	0.6790
1984	3	2	0.0000	0.0000	0.0	<0.3170	0.6880
1986	3	2	0.0000	0.0000	0.0	<0.1380	1.1200
1987	1	0	<0.1070	<0.1070	0.0	<0.1070	<0.1070
1988	1	0	0.1270	0.1270	18.0	0.1270	0.1270
1989	1	0	0.0707	0.0707	28.0	0.0707	0.0707
1990	2	2	0.0000	0.0000	0.0	<0.0808	<0.3410
1992	4	3	0.0000	0.0000	0.0	<0.1330	<0.2780
1993	2	1	0.1187	0.1187	20.0	<0.1550	0.1600
1996	1	0	<0.0839	<0.0839	0.0	<0.0839	<0.0839

Nuklid=Cs-137 Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1980	2	0	1.9610	1.9610	50.9	0.9620	2.9600
1981	2	0	2.6450	2.6450	45.6	1.4400	3.8500
1982	2	0	1.4985	1.4985	37.5	0.9370	2.0600
1983	3	0	1.6207	1.6100	28.3	0.8320	2.4200
1984	1	0	<1.3500	<1.3500	0.0	<1.3500	<1.3500
1985	1	0	6.2600	6.2600	7.3	6.2600	6.2600
1986	6	1	1.4248	0.8590	51.1	0.3390	4.9600
1987	3	0	0.9555R	1.1800	19.2R	0.7310	5.6400
1988	1	0	0.7360	0.7360	9.0	0.7360	0.7360
1989	1	0	0.5520	0.5520	12.0	0.5520	0.5520
1990	6	4	0.8063	0.1791	70.6	<0.2010	<5.7400
1992	5	3	0.6860	0.4009	42.3	<0.1140	<1.5300
1993	4	2	0.3154	0.1951	61.7	<0.1040	0.8560
1996	16	5	0.2849	0.1170	24.2	0.0677	<0.8380
1998	16	3	0.4116	0.3225	21.5	0.0818	0.9600
2000	10	4	0.3605	0.2907	28.0	0.0993	0.9850

Nuklid=Pu-238 Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1982	1	0	0.0680	0.0680	5.0	0.0680	0.0680
1986	2	1	0.0363	0.0363	5.1	<0.0097	0.0677
1987	3	1	0.0374	0.0301	59.3	<0.0153	0.0789
1988	1	0	<0.0204	<0.0204	0.0	<0.0204	<0.0204
1989	1	0	0.0202	0.0202	8.8	0.0202	0.0202
1990	5	0	0.0154	0.0154	23.4	0.0051	0.0270
1992	5	1	0.0188	0.0161	41.5	0.0060	0.0483
1993	3	0	0.0196R	0.0198	2.7R	0.0194	0.0261
1996	1	0	0.0267	0.0267	3.8	0.0267	0.0267
2000	1	0	0.0178	0.0178	5.1	0.0178	0.0178

Nuklid=Pu-239,240 Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1982	1	0	0.8000	0.8000	1.4	0.8000	0.8000
1986	2	0	0.4790	0.4790	58.9	0.1970	0.7610
1987	3	0	0.4602	0.5340	42.4	0.0917	0.7550
1988	1	0	0.4260	0.4260	2.9	0.4260	0.4260
1989	1	0	0.2950	0.2950	1.3	0.2950	0.2950
1990	5	0	0.2189R	0.2190	13.1R	0.1410	0.5870
1992	5	0	0.3850	0.3720	24.8	0.1950	0.7120
1993	3	0	0.2420	0.2450	1.2	0.2360	0.2450
1996	1	0	0.3420	0.3420	3.4	0.3420	0.3420
2000	1	0	0.5260	0.5260	3.4	0.5260	0.5260

Nuklid=Am-241gamma Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1983	1	0	<1.3500	<1.3500	0.0	<1.3500	<1.3500
1984	1	0	*****	*****	0.0	*****	<29.5000
1985	1	0	1.0500	1.0500	15.0	1.0500	1.0500
1986	4	3	0.0000	0.0000	0.0	<0.6260	<1.2100
1987	3	2	0.0000	0.0000	0.0	<0.4330	1.2400
1988	2	1	0.3930	0.3930	20.0	0.3930	<0.5240
1989	1	0	<0.3360	<0.3360	0.0	<0.3360	<0.3360
1990	6	6	0.0000	0.0000	0.0	<0.4690	<117.0000
1992	4	3	0.0000	0.0000	0.0	<0.1940	<2.0200
1993	4	4	0.0000	0.0000	0.0	<0.2690	<0.5330
1996	16	16	0.0000	0.0000	0.0	<0.2260	<16.1000

1998 16 10 0.5610 0.4173 12.7 <0.2080 <8.4400
 2000 10 7 0.4227 0.3222 20.8 <0.1530 <6.1600

Nuklid=Am-241Rch Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1992	1	0	0.0591	0.0591	5.1	0.0591	0.0591
1996	1	0	0.0738	0.0738	2.9	0.0738	0.0738
2000	1	0	0.4430	0.4430	2.7	0.4430	0.4430

Nuklid=Pu-238/Pu-239+240 Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1982	1	0	0.0850	0.0850	5.2	0.0850	0.0850
1986	2	1	0.0567	0.0567	3.3	<0.0490	0.0890
1987	3	1	0.0676	0.0564	28.0	0.0564	<0.1668
1988	1	0	<0.0479	<0.0479	0.0	<0.0479	<0.0479
1989	1	0	0.0685	0.0685	8.9	0.0685	0.0685
1990	5	0	0.0547	0.0460	16.4	0.0365	0.0808
1992	5	1	0.0494	0.0403	22.3	0.0302	<0.0887
1993	3	0	0.0815R	0.0822	2.8R	0.0808	0.1065
1996	1	0	0.0781	0.0781	5.1	0.0781	0.0781
2000	1	0	0.0338	0.0338	6.1	0.0338	0.0338

Nuklid=Am-241/Pu-239,240 Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1986	1	0	0.8489	0.8489	19.0	0.8489	0.8489
1987	1	0	2.3221	2.3221	21.1	2.3221	2.3221
1988	1	0	0.9225	0.9225	20.2	0.9225	0.9225
1992	1	0	1.6152	1.6152	17.0	1.6152	1.6152

Query: Benthos (alle) aus dem Gebiet B

```
select probe,index,arge,jahr,ptyp,part,amat,einheit,ft,Sr_90,CS_137,Co
_60,Pu_238,Pu_239,Am_241,Am_241r,Puverh,kont,pk from atlbiof where (
arge like 'B%' and arge <> 'BO' ) and (ptyp like 'bent%') and (amat is
null or amat like '%gs%')
```

Nuklid=Sr-90 Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1980	8	0	1.3971R	1.1450	22.4R	0.2410	3.7000
1981	7	1	0.8590	0.7640	33.6	0.3390	2.5000
1982	7	3	0.6267	0.4040	38.4	<0.0382	<6.5500
1984	11	5	0.5571	0.2680	37.1	<0.1070	2.4400
1986	8	1	0.9940	1.0565	22.1	0.3500	2.0300
1987	8	3	0.4136	0.4205	7.3	<0.1070	0.5280
1988	3	0	0.1525R	0.1780	13.7R	0.1270	0.5860
1989	7	1	0.3028	0.2890	25.7	<0.0531	0.6190
1990	2	0	0.3445	0.3445	23.4	0.2640	0.4250
1992	11	4	0.3585	0.3310	14.6	<0.1490	0.6630
1993	16	5	0.4019	0.3740	14.5	<0.1550	0.9880
1996	2	1	9.3210	9.3210	2.9	<0.0839	18.6000

Nuklid=Cs-137 Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1980	8	0	2.5484	2.2750	21.5	0.9250	4.8100
1981	7	1	2.3109	1.4400	31.1	0.5620	4.9300
1982	9	1	2.7528	2.0600	29.8	<0.6570	8.1900
1983	11	2	3.7104	3.0600	27.1	0.8080	11.7000
1984	8	2	1.7370	1.3800	25.6	<0.4100	3.4400
1986	19	3	1.9403	1.3500	17.5	<0.2730	6.3100
1987	12	1	1.5613	1.7300	15.8	<0.4830	3.0700
1988	9	1	1.7320	0.9110	28.3	<0.5180	3.9000
1989	8	2	0.8512	0.5965	32.8	0.2330	<4.6500
1990	7	2	1.8876	1.6700	30.1	<0.3620	4.4800
1992	17	5	1.2250	1.3500	15.9	<0.1140	<3.3800
1993	24	7	1.0729	1.0750	14.6	<0.1040	2.7500
1996	57	6	0.8046	0.8890	7.7	0.0677	1.9200
1998	59	5	0.8199	0.9110	6.6	0.0818	1.5500

Nuklid=Pu-238 Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1981	1	0	0.2100	0.2100	3.1	0.2100	0.2100
1982	4	0	0.0612R	0.0770	24.3R	0.0280	0.2000
1983	1	0	0.1400	0.1400	2.9	0.1400	0.1400
1984	1	0	0.0560	0.0560	6.4	0.0560	0.0560
1986	6	0	0.0686	0.0657	7.6	0.0542	0.0889
1987	10	2	0.0586	0.0603	15.6	<0.0248	0.1070
1988	5	1	0.0480	0.0372	31.7	<0.0204	0.1010
1989	8	1	0.0833	0.0349	65.9	0.0111	0.4650
1990	5	0	0.0269R	0.0351	19.7R	0.0154	0.0807
1992	12	0	0.0505	0.0441	18.0	0.0070	0.1060
1993	17	1	0.0389	0.0426	11.6	0.0050	0.0692
1996	13	0	0.0393	0.0387	9.2	0.0119	0.0641

Nuklid=Pu-239,240 Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1981	1	0	1.8000	1.8000	1.1	1.8000	1.8000
1982	4	0	1.3700	1.4000	33.8	0.3800	2.3000
1983	1	0	2.0000	2.0000	0.7	2.0000	2.0000
1984	1	0	0.6200	0.6200	1.8	0.6200	0.6200
1986	6	0	0.9200	0.9250	11.4	0.5590	1.2800
1987	10	0	0.7765R	0.7600	15.9R	0.1960	1.8900
1988	5	0	0.6498	0.6860	14.9	0.4260	0.9440
1989	8	0	0.4426R	0.4870	23.1R	0.1410	4.8800
1990	5	0	0.3702R	0.4640	21.1R	0.2160	1.0700
1992	12	0	0.7138	0.6720	16.5	0.1250	1.3300
1993	17	0	0.5552	0.5930	12.3	0.1140	1.0600
1996	13	0	0.5869R	0.5830	3.2R	0.3420	1.0400

Nuklid=Am-241gamma Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1982	3	2	0.0000	0.0000	0.0	<0.6870	3.3000
1983	5	5	0.0000	0.0000	0.0	<0.4710	<4.2700
1984	8	5	1.0335	0.6069	33.5	<0.3570	<13.2000
1986	9	6	0.6708	0.6336	11.4	<0.5930	<5.1500
1987	12	6	0.8710	0.6802	20.6	<0.3220	<8.3200
1988	16	10	0.6364	0.5429	14.9	0.3930	<22.3000
1989	8	5	0.8005	0.6963	25.0	<0.1970	<2.1100
1990	7	6	0.0000	0.0000	0.0	<0.6090	<28.0000
1992	16	10	0.7827	0.4857	20.2	<0.2370	<116.0000
1993	24	19	0.5389	0.3267	20.5	<0.2690	<13.8000
1996	57	34	0.6643	0.6052	5.5	<0.2260	<26.1000
1998	59	19	1.0759	0.8550	19.1	<0.1610	12.3000

Nuklid=Am-241Rch Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1992	1	0	0.0591	0.0591	5.1	0.0591	0.0591
1996	12	0	0.5503	0.6405	14.8	0.0738	0.9590

Nuklid=Pu-238/Pu-239+240 Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1981	1	0	0.1167	0.1167	3.3	0.1167	0.1167
1982	4	0	0.0855R	0.0793	7.8R	0.0374	0.1000
1983	1	0	0.0700	0.0700	3.0	0.0700	0.0700
1984	1	0	0.0903	0.0903	6.6	0.0903	0.0903
1986	6	0	0.0786	0.0778	11.3	0.0526	0.1138
1987	10	2	0.0758	0.0817	10.6	<0.0131	<0.1852
1988	5	1	0.0686	0.0710	19.6	<0.0479	0.1070
1989	8	1	0.0689	0.0648	5.9	0.0638	0.0953
1990	5	0	0.0747	0.0754	4.8	0.0629	0.0830
1992	12	0	0.0693	0.0693	3.1	0.0562	0.0826
1993	17	1	0.0703	0.0694	4.9	0.0438	0.1065
1996	13	0	0.0679R	0.0678	2.3R	0.0179	0.0781

Nuklid=Am-241/Pu-239,240 Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1982	1	0	1.6500	1.6500	10.0	1.6500	1.6500
1986	3	0	0.9152R	0.9813	9.9R	0.8489	1.6673
1987	5	0	1.1412	0.9577	15.3	0.7311	1.6732
1988	4	0	1.1486R	1.2306	10.0R	0.9225	1.6949
1989	3	0	1.1412	1.2345	37.8	0.3525	1.8367
1990	1	0	1.5140	1.5140	14.0	1.5140	1.5140
1992	6	0	1.5046R	1.4386	5.7R	0.9747	1.6241
1993	5	0	1.5581	1.6102	9.9	1.1475	1.8868
1996	9	0	1.0497R	1.0795	6.1R	0.8981	3.7275

Query: Benthos (alle) aus Vergleichsgebieten

```
select probe,index,arge,jahr,ptyp,part,amat,einheit,ft,Sr_90,CS_137,Co_60,Pu_238,Pu_239,Am_241,Am_241r,Puverh,kont,pk from atlbiof where (not(arge like 'B%') or arge like 'BO' ) and (ptyp like 'bent%') and (amat is null or amat like '%gs%')
```

Nuklid=Sr-90 Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1980	7	1	2.2633	1.8100	32.1	0.7030	<7.2000
1981	9	3	0.6621	0.4800	30.7	<0.1950	1.9500
1982	4	0	0.9697R	1.1150	13.7R	0.6790	8.6000
1984	6	1	0.9627	0.7540	27.4	<0.5080	1.7600
1985	1	0	0.8400	0.8400	19.0	0.8400	0.8400
1986	12	4	0.4218	0.2613	25.8	<0.1380	1.2800
1987	5	1	0.4997	0.4480	27.9	0.2950	1.0100
1989	1	0	0.4890	0.4890	10.0	0.4890	0.4890
1990	4	2	3.6120	0.1741	96.8	<0.0808	14.1000
1992	8	3	0.4458	0.3026	29.6	<0.1330	<1.5000

Nuklid=Cs-137 Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1980	5	0	6.1860	5.9200	28.8	1.3700	11.5000
1981	9	0	3.3430R	3.8500	17.1R	0.8650	9.2300
1982	6	2	3.1797	2.1035	45.7	<0.9320	9.5400
1983	13	2	3.4179	2.2600	31.9	0.8320	15.0000
1984	8	3	3.4215	2.4650	33.4	<0.5420	8.8100
1985	4	0	4.7350	4.5900	13.3	3.5000	6.2600
1986	14	2	2.3661	1.4800	25.7	0.3390	7.3100
1987	10	2	2.6183	1.1085	35.1	<0.4900	9.1200
1988	1	0	2.6300	2.6300	19.0	2.6300	2.6300
1989	5	1	1.3387	0.7210	33.9	0.6520	2.6300
1990	29	16	1.6747	0.9897	17.3	<0.2010	<35.7000
1992	17	3	3.1180	1.7400	28.4	<0.1870	16.0000
1998	5	1	0.7999	0.9460	35.3	<0.0951	1.6400
2000	26	6	0.7879	0.7900	13.1	0.0993	1.6700

Nuklid=Pu-238 Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1983	1	0	0.0610	0.0610	6.2	0.0610	0.0610
1984	2	0	0.0670	0.0670	23.9	0.0510	0.0830
1985	2	0	0.0613	0.0613	5.1	0.0596	0.0629
1986	8	2	0.0371	0.0360	17.4	<0.0097	<0.2030
1987	6	2	0.0352	0.0233	39.1	<0.0153	0.0914
1989	5	1	0.0211	0.0174	41.3	0.0036	0.0500
1990	12	0	0.0220R	0.0226	16.0R	0.0051	0.0619
1992	12	2	0.0280	0.0191	33.7	0.0025	0.1170
2000	6	0	0.0295R	0.0292	3.2R	0.0178	0.0322

Nuklid=Pu-239,240 Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1983	1	0	1.4000	1.4000	1.2	1.4000	1.4000
1984	2	0	0.9000	0.9000	10.0	0.8100	0.9900
1985	2	0	0.6900	0.6900	3.9	0.6630	0.7170
1986	8	0	0.6449R	0.7495	15.0R	0.1970	1.2400
1987	6	0	0.5210	0.4035	30.6	0.0917	1.0100
1989	5	0	0.3556R	0.3890	24.1R	0.0958	1.1000
1990	12	0	0.5347	0.4480	16.2	0.1410	1.0800
1992	12	0	0.4089R	0.4785	17.6R	0.0450	1.9500
2000	6	0	0.6678	0.6925	5.8	0.5260	0.7600

Nuklid=Am-241gamma Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1982	4	4	0.0000	0.0000	0.0	<0.8160	<1.9800
1983	9	8	0.0000	0.0000	0.0	<0.6480	<2.4400
1984	8	6	1.3619	1.3797	10.6	<1.0200	<29.5000
1985	4	1	0.7857	0.7440	13.3	0.6330	1.0500
1986	14	10	0.7185	0.6567	11.6	0.5610	<7.0400
1987	10	6	1.0221	0.9241	10.6	<0.5420	1.5800
1988	1	0	<2.5900	<2.5900	0.0	<2.5900	<2.5900
1989	5	4	0.0000	0.0000	0.0	<0.2140	<3.9300
1990	29	27	0.7434	0.6138	13.1	<0.4690	<154.0000
1992	17	12	0.7722	0.6940	9.0	<0.1940	<29.6000
1998	5	3	0.6343	0.4539	27.0	<0.2610	1.2400
2000	26	15	0.7332	0.6114	11.3	<0.1530	<17.7000

Nuklid=Am-241Rch Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
2000	6	0	1.0175R	0.9645	4.3R	0.4430	1.1500

Nuklid=Pu-238/Pu-239+240 Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1983	1	0	0.0436	0.0436	6.3	0.0436	0.0436
1984	2	0	0.0734	0.0734	14.2	0.0630	0.0838
1985	2	0	0.0890	0.0890	6.6	0.0831	0.0949
1986	8	2	0.0558	0.0529	8.1	0.0434	<0.2402
1987	6	2	0.0638	0.0595	10.1	0.0564	<0.1668
1989	5	1	0.0447	0.0455	7.3	0.0376	<0.0848
1990	12	0	0.0447	0.0423	5.7	0.0312	0.0574
1992	12	2	0.0402	0.0393	7.6	0.0291	<0.4533
2000	6	0	0.0411	0.0419	3.7	0.0338	0.0441

Nuklid=Am-241/Pu-239,240 Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1983	1	0	1.2000	1.2000	14.1	1.2000	1.2000
1984	1	0	1.4343	1.4343	16.0	1.4343	1.4343
1985	2	0	1.0736	1.0736	18.4	0.9548	1.1925
1986	4	0	1.1991	1.1125	21.9	0.7520	1.8194
1987	3	0	1.4177R	1.5644	9.7R	1.2590	2.3221
1989	1	0	1.6364	1.6364	13.0	1.6364	1.6364
1990	1	0	2.0741	2.0741	11.1	2.0741	2.0741

1992 3 0 1.7176 1.7876 10.5 1.3770 1.9882
 2000 3 0 1.7918 1.8624 7.1 1.6184 1.8945

=====
 Query: Benthos (alle), keine Gebietsunterscheidung

```
select probe,index,arge,jahr,ptyp,part,amat,einheit,ft,Sr_90,CS_137,Co
_60,Pu_238,Pu_239,Am_241,Am_241r,Puverh,kont,pk from atlbiof where (
ptyp like 'bent%') and (amat is null or amat like '%s%')
```

Nuklid=Sr-90 Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1980	15	1	1.8971	1.2200	21.1	0.2410	<7.2000
1981	16	4	0.7621	0.6220	21.4	<0.1950	2.5000
1982	11	3	1.4694	0.6790	49.7	<0.0382	8.6000
1984	17	6	0.6955	0.5550	23.9	<0.1070	2.4400
1985	1	0	0.8400	0.8400	19.0	0.8400	0.8400
1986	20	5	0.6579	0.3956	18.7	<0.1380	2.0300
1987	13	4	0.4300	0.4470	13.5	<0.1070	1.0100
1988	3	0	0.1525R	0.1780	13.7R	0.1270	0.5860
1989	8	1	0.3258	0.3330	22.0	<0.0531	0.6190
1990	6	2	2.5318	0.3060	91.4	<0.0808	14.1000
1992	19	7	0.3942	0.3310	15.7	<0.1330	<1.5000
1993	16	5	0.4019	0.3740	14.5	<0.1550	0.9880
1996	2	1	9.3210	9.3210	2.9	<0.0839	18.6000

Nuklid=Cs-137 Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1980	13	0	2.9351R	3.2900	16.5R	0.9250	11.5000
1981	16	1	3.2279	3.1550	18.3	0.5620	9.2300
1982	15	3	2.9766	2.0600	24.2	<0.6570	9.5400
1983	24	4	3.5741	2.4350	20.4	0.8080	15.0000
1984	16	5	2.5203	1.9050	25.5	<0.4100	8.8100
1985	4	0	4.7350	4.5900	13.3	3.5000	6.2600
1986	33	5	2.1156	1.4300	15.2	<0.2730	7.3100
1987	22	3	2.0428	1.5200	21.6	<0.4830	9.1200
1988	10	1	1.8247	1.1505	24.5	<0.5180	3.9000
1989	13	3	1.0412	0.7060	23.4	0.2330	<4.6500
1990	36	18	1.7296	1.0196	14.8	<0.2010	<35.7000
1992	34	8	2.1417	1.4650	22.4	<0.1140	16.0000
1993	24	7	1.0729	1.0750	14.6	<0.1040	2.7500
1996	57	6	0.8046	0.8890	7.7	0.0677	1.9200
1998	64	6	0.8182	0.9125	6.5	0.0818	1.6400
2000	26	6	0.7879	0.7900	13.1	0.0993	1.6700

Nuklid=Pu-238 Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1981	1	0	0.2100	0.2100	3.1	0.2100	0.2100
1982	4	0	0.0612R	0.0770	24.3R	0.0280	0.2000
1983	2	0	0.1005	0.1005	39.3	0.0610	0.1400
1984	3	0	0.0535R	0.0560	3.8R	0.0510	0.0830
1985	2	0	0.0613	0.0613	5.1	0.0596	0.0629
1986	14	2	0.0517	0.0553	11.2	<0.0097	<0.2030
1987	16	4	0.0503	0.0469	15.5	<0.0153	0.1070
1988	5	1	0.0480	0.0372	31.7	<0.0204	0.1010
1989	13	2	0.0599	0.0202	57.0	0.0036	0.4650
1990	17	0	0.0234R	0.0232	12.4R	0.0051	0.0807
1992	24	2	0.0394	0.0307	17.3	0.0025	0.1170
1993	17	1	0.0389	0.0426	11.6	0.0050	0.0692
1996	13	0	0.0393	0.0387	9.2	0.0119	0.0641
2000	6	0	0.0295R	0.0292	3.2R	0.0178	0.0322

Nuklid=Pu-239,240 Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1981	1	0	1.8000	1.8000	1.1	1.8000	1.8000
1982	4	0	1.3700	1.4000	33.8	0.3800	2.3000
1983	2	0	1.7000	1.7000	17.6	1.4000	2.0000
1984	3	0	0.8067	0.8100	13.2	0.6200	0.9900
1985	2	0	0.6900	0.6900	3.9	0.6630	0.7170
1986	14	0	0.7829	0.7755	10.6	0.1970	1.2800
1987	16	0	0.6721R	0.7200	14.6R	0.0917	1.8900
1988	5	0	0.6498	0.6860	14.9	0.4260	0.9440
1989	13	0	0.4295R	0.3890	16.9R	0.0958	4.8800
1990	17	0	0.5261	0.4620	14.0	0.1410	1.0800
1992	24	0	0.5958R	0.5580	13.1R	0.0450	1.9500
1993	17	0	0.5552	0.5930	12.3	0.1140	1.0600
1996	13	0	0.5869R	0.5830	3.2R	0.3420	1.0400
2000	6	0	0.6678	0.6925	5.8	0.5260	0.7600

Nuklid=Am-241gamma Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1982	7	6	0.0000	0.0000	0.0	<0.6870	3.3000
1983	14	13	0.0000	0.0000	0.0	<0.4710	<4.2700
1984	16	11	1.1478	0.8815	14.6	<0.3570	<29.5000
1985	4	1	0.7857	0.7440	13.3	0.6330	1.0500

1986	23	16	0.7286	0.6852	7.8	0.5610	<7.0400
1987	22	12	0.8729	0.6610	13.2	<0.3220	<8.3200
1988	17	11	0.6355	0.5637	14.3	0.3930	<22.3000
1989	13	9	0.7050	0.4399	24.4	<0.1970	<3.9300
1990	36	33	0.9771	0.9017	9.8	<0.4690	<154.0000
1992	33	22	0.8442	0.6940	9.1	<0.1940	<116.0000
1993	24	19	0.5389	0.3267	20.5	<0.2690	<13.8000
1996	57	34	0.6643	0.6052	5.5	<0.2260	<26.1000
1998	64	22	1.0381	0.7960	18.3	<0.1610	12.3000
2000	26	15	0.7332	0.6114	11.3	<0.1530	<17.7000

Nuklid=Am-241Rch Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1992	1	0	0.0591	0.0591	5.1	0.0591	0.0591
1996	12	0	0.5503	0.6405	14.8	0.0738	0.9590
2000	6	0	1.0175R	0.9645	4.3R	0.4430	1.1500

Nuklid=Pu-238/Pu-239+240 Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1981	1	0	0.1167	0.1167	3.3	0.1167	0.1167
1982	4	0	0.0855R	0.0793	7.8R	0.0374	0.1000
1983	2	0	0.0568	0.0568	23.3	0.0436	0.0700
1984	3	0	0.0870R	0.0838	3.6R	0.0630	0.0903
1985	2	0	0.0890	0.0890	6.6	0.0831	0.0949
1986	14	2	0.0661	0.0658	8.2	0.0434	<0.2402
1987	16	4	0.0704	0.0752	8.8	<0.0131	<0.1852
1988	5	1	0.0686	0.0710	19.6	<0.0479	0.1070
1989	13	2	0.0588	0.0638	7.5	0.0376	0.0953
1990	17	0	0.0535	0.0535	7.4	0.0312	0.0830
1992	24	2	0.0550	0.0581	6.3	0.0291	<0.4533
1993	17	1	0.0703	0.0694	4.9	0.0438	0.1065
1996	13	0	0.0679R	0.0678	2.3R	0.0179	0.0781
2000	6	0	0.0411	0.0419	3.7	0.0338	0.0441

Nuklid=Am-241/Pu-239,240 Einheit BQ/KG TM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1982	1	0	1.6500	1.6500	10.0	1.6500	1.6500
1983	1	0	1.2000	1.2000	14.1	1.2000	1.2000
1984	1	0	1.4343	1.4343	16.0	1.4343	1.4343
1985	2	0	1.0736	1.0736	18.4	0.9548	1.1925
1986	7	0	1.1848	0.9813	14.3	0.7520	1.8194
1987	8	0	1.2459R	1.3394	10.4R	0.7311	2.3221
1988	4	0	1.1486R	1.2306	10.0R	0.9225	1.6949
1989	4	0	1.5570R	1.4354	9.9R	0.3525	1.8367
1990	2	0	1.7940	1.7940	15.6	1.5140	2.0741
1992	9	0	1.5174	1.4436	6.3	0.9747	1.9882
1993	5	0	1.5581	1.6102	9.9	1.1475	1.8868
1996	9	0	1.0497R	1.0795	6.1R	0.8981	3.7275
2000	3	0	1.7918	1.8624	7.1	1.6184	1.8945

Query: Macrouridae (GS) aus Gebiet B

```
select probe,index,arge,jahr,ptyp,part,amat,einheit,ft,Sr_90,CS_137,Co
_60,Pu_238,Pu_239,Am_241,Am_241r,Puverh,kont,pk from atlbiof where (
arge like 'B%' and arge <> 'BO') and (ptyp like 'Bath%') and (part lik
e 'Macrou%') and (amat is null or amat like '%gs%')
```

Nuklid=Sr-90 Einheit BQ/KG FM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1980	1	0	0.2106	0.2106	14.0	0.2106	0.2106
1981	1	0	0.0079	0.0079	16.0	0.0079	0.0079
1982	1	0	<0.0203	<0.0203	0.0	<0.0203	<0.0203
1984	1	0	<0.0225	<0.0225	0.0	<0.0225	<0.0225
1986	2	2	0.0000	0.0000	0.0	<0.0364	<0.0376

Nuklid=Cs-137 Einheit BQ/KG FM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1980	1	0	0.2694	0.2694	23.0	0.2694	0.2694
1981	1	0	0.0724	0.0724	14.0	0.0724	0.0724
1982	1	0	0.1350	0.1350	22.0	0.1350	0.1350
1983	2	0	0.1917	0.1917	62.5	0.0720	0.3115
1984	1	0	0.0565	0.0565	11.0	0.0565	0.0565
1986	5	0	0.1706R	0.2272	18.7R	0.0933	0.6093
1987	1	0	0.0877	0.0877	10.0	0.0877	0.0877
1988	2	0	0.1502	0.1502	14.4	0.1286	0.1719
1989	1	0	0.0908	0.0908	18.0	0.0908	0.0908
1990	1	0	<0.5939	<0.5939	0.0	<0.5939	<0.5939
1992	1	0	0.0483	0.0483	17.0	0.0483	0.0483
1993	2	0	0.0719	0.0719	36.1	0.0459	0.0979
1996	5	0	0.0322R	0.0330	6.5R	0.0312	0.0658
1998	7	1	0.0641	0.0341	38.2	0.0248	0.2010

Nuklid=Pu-238 Einheit BQ/KG FM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1986	1	0	<0.0014	<0.0014	0.0	<0.0014	<0.0014
1988	1	0	<0.0021	<0.0021	0.0	<0.0021	<0.0021
1989	1	0	<0.0002	<0.0002	0.0	<0.0002	<0.0002
1990	1	0	0.0003	0.0003	25.0	0.0003	0.0003
1992	1	0	0.0004	0.0004	16.0	0.0004	0.0004
1996	3	0	0.0004	0.0004	22.3	0.0003	0.0006

Nuklid=Pu-239,240 Einheit BQ/KG FM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1986	1	0	<0.0023	<0.0023	0.0	<0.0023	<0.0023
1988	1	0	0.0067	0.0067	14.0	0.0067	0.0067
1989	1	0	0.0005	0.0005	15.0	0.0005	0.0005
1990	1	0	0.0054	0.0054	4.2	0.0054	0.0054
1992	1	0	0.0075	0.0075	3.3	0.0075	0.0075
1996	3	0	0.0088R	0.0084	3.5R	0.0050	0.0092

Nuklid=Am-241gamma Einheit BQ/KG FM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1984	1	0	<0.0311	<0.0311	0.0	<0.0311	<0.0311
1986	3	3	0.0000	0.0000	0.0	<0.0834	<0.1069
1987	1	0	<0.3663	<0.3663	0.0	<0.3663	<0.3663
1988	5	5	0.0000	0.0000	0.0	<0.0258	<5.2273
1989	1	0	<0.0806	<0.0806	0.0	<0.0806	<0.0806
1990	1	0	<1.0490	<1.0490	0.0	<1.0490	<1.0490
1992	1	0	<0.0429	<0.0429	0.0	<0.0429	<0.0429
1993	2	2	0.0000	0.0000	0.0	<0.0478	<0.4723
1996	5	5	0.0000	0.0000	0.0	<0.0221	<0.3800
1998	7	7	0.0000	0.0000	0.0	<0.0501	<0.2820

Nuklid=Am-241Rch Einheit BQ/KG FM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1996	3	0	0.0033	0.0034	16.0	0.0024	0.0042

Nuklid=Pu-238/Pu-239+240 Einheit BQ/KG FM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1988	1	0	<0.3172	<0.3172	0.0	<0.3172	<0.3172
1989	1	0	<0.2879	<0.2879	0.0	<0.2879	<0.2879
1990	1	0	0.0476	0.0476	25.4	0.0476	0.0476
1992	1	0	0.0480	0.0480	16.3	0.0480	0.0480
1996	3	0	0.0481R	0.0500	5.5R	0.0461	0.0610

Query: Macrouidae (GS) aus Vergleichsgebieten

```
select probe,index,arge,jahr,ptyp,part,amat,einheit,ft,Sr_90,CS_137,Co
_60,Pu_238,Pu_239,Am_241,Am_241r,Puverh,kont,pk from atlbiof where (
not (arge like 'B%') or arge like 'BO') and (ptyp like 'Bath%') and (p
art like 'Macrou%') and (amat is null or amat like '%gs%')
```

Nuklid=Sr-90 Einheit BQ/KG FM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1980	3	0	0.0349R	0.0441	21.7R	0.0256	0.1300
1981	4	1	0.0108	0.0113	18.6	<0.0059	0.0151
1982	2	1	0.0278	0.0278	4.6	<0.0241	0.0435
1984	1	0	<0.0090	<0.0090	0.0	<0.0090	<0.0090
1986	2	0	0.0691	0.0691	62.7	0.0258	0.1124
1987	2	1	0.0064	0.0064	25.0	0.0064	<0.0118
1992	1	0	<0.0160	<0.0160	0.0	<0.0160	<0.0160

Nuklid=Cs-137 Einheit BQ/KG FM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1980	2	0	0.0915	0.0915	30.1	0.0640	0.1191
1981	4	0	0.1619	0.1617	30.5	0.0466	0.2777
1982	2	0	0.1582	0.1582	9.3	0.1493	0.1672
1983	1	0	0.2250	0.2250	8.9	0.2250	0.2250
1984	2	1	0.0715	0.0715	10.0	0.0715	<0.1112
1985	3	2	0.0000	0.0000	0.0	<0.0245	0.0715
1986	2	0	0.1858	0.1858	56.6	0.0806	0.2910
1987	3	0	0.1202	0.1232	21.1	0.0747	0.1626
1989	1	0	<0.1375	<0.1375	0.0	<0.1375	<0.1375
1990	5	2	0.0658	0.0575	15.2	0.0519	0.1004
1992	2	0	0.0489	0.0489	52.5	0.0232	0.0746
2000	2	2	0.0000	0.0000	0.0	<0.0579	<0.0759

Nuklid=Pu-238 Einheit BQ/KG FM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1984	1	0	0.0004	0.0004	33.0	0.0004	0.0004
1985	3	3	0.0000	0.0000	0.0	<0.0011	<0.0040

1987 1 0 <0.0020 <0.0020 0.0 <0.0020 <0.0020
 1992 2 0 0.0001 0.0001 28.2 0.0001 0.0002

Nuklid=Pu-239,240 Einheit BQ/KG FM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1984	1	0	0.0047	0.0047	6.3	0.0047	0.0047
1985	3	1	0.0028	0.0027	13.4	0.0027	<0.0050
1987	1	0	0.0025	0.0025	34.0	0.0025	0.0025
1992	2	0	0.0087	0.0087	77.0	0.0020	0.0153

Nuklid=Am-241gamma Einheit BQ/KG FM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1984	2	2	0.0000	0.0000	0.0	<0.0252	<0.0952
1985	2	2	0.0000	0.0000	0.0	<0.0484	<0.1085
1986	2	2	0.0000	0.0000	0.0	<0.3038	<0.9758
1987	3	3	0.0000	0.0000	0.0	<0.0285	<0.7905
1989	1	0	<0.3294	<0.3294	0.0	<0.3294	<0.3294
1990	5	5	0.0000	0.0000	0.0	<0.0547	<0.2302
1992	2	2	0.0000	0.0000	0.0	<0.0347	<0.0455
2000	2	2	0.0000	0.0000	0.0	<0.0740	<0.0975

Nuklid=Pu-238/Pu-239+240 Einheit BQ/KG FM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1984	1	0	0.0830	0.0830	33.6	0.0830	0.0830
1985	2	2	0.0000	0.0000	0.0	<0.3532	<0.5406
1987	1	0	<0.8075	<0.8075	<0.3	<0.8075	<0.8075
1992	2	0	0.0322	0.0322	62.4	0.0121	0.0523

Query: Macrouridae (GS), keine Gebietsunterscheidung

```
select probe,index,arge,jahr,ptyp,part,amat,einheit,ft,Sr_90,CS_137,Co_60,Pu_238,Pu_239,Am_241,Am_241r,Puverh,kont,pk from atlbiof where (
ptyp like 'Bath%') and (part like 'Macrou%') and (amat is null or amat
like '%gs%')
```

Nuklid=Sr-90 Einheit BQ/KG FM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1980	4	0	0.1026	0.0871	41.5	0.0256	0.2106
1981	5	1	0.0101	0.0104	17.2	<0.0059	0.0151
1982	3	2	0.0000	0.0000	0.0	<0.0203	0.0435
1984	2	2	0.0000	0.0000	0.0	<0.0090	<0.0225
1986	4	2	0.0425	0.0236	55.3	0.0258	0.1124
1987	2	1	0.0064	0.0064	25.0	0.0064	<0.0118
1992	1	0	<0.0160	<0.0160	0.0	<0.0160	<0.0160

Nuklid=Cs-137 Einheit BQ/KG FM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1980	3	0	0.0923R	0.1191	24.4R	0.0640	0.2694
1981	5	0	0.1440	0.1254	29.4	0.0466	0.2777
1982	3	0	0.1505	0.1493	9.3	0.1350	0.1672
1983	3	0	0.2028	0.2250	34.5	0.0720	0.3115
1984	3	1	0.0595	0.0565	10.5	0.0565	<0.1112
1985	3	2	0.0000	0.0000	0.0	<0.0245	0.0715
1986	7	0	0.1764R	0.2272	18.6R	0.0806	0.6093
1987	4	0	0.1121	0.1055	17.6	0.0747	0.1626
1988	2	0	0.1502	0.1502	14.4	0.1286	0.1719
1989	2	1	0.0908	0.0908	18.0	0.0908	<0.1375
1990	6	3	0.0654	0.0605	12.5	0.0519	<0.5939
1992	3	0	0.0487	0.0483	30.4	0.0232	0.0746
1993	2	0	0.0719	0.0719	36.1	0.0459	0.0979
1996	5	0	0.0322R	0.0330	6.5R	0.0312	0.0658
1998	7	1	0.0641	0.0341	38.2	0.0248	0.2010
2000	2	2	0.0000	0.0000	0.0	<0.0579	<0.0759

Nuklid=Pu-238 Einheit BQ/KG FM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1984	1	0	0.0004	0.0004	33.0	0.0004	0.0004
1985	3	3	0.0000	0.0000	0.0	<0.0011	<0.0040
1986	1	0	<0.0014	<0.0014	0.0	<0.0014	<0.0014
1987	1	0	<0.0020	<0.0020	0.0	<0.0020	<0.0020
1988	1	0	<0.0021	<0.0021	0.0	<0.0021	<0.0021
1989	1	0	<0.0002	<0.0002	0.0	<0.0002	<0.0002
1990	1	0	0.0003	0.0003	25.0	0.0003	0.0003
1992	3	0	0.0001R	0.0002	22.8R	0.0001	0.0004
1996	3	0	0.0004	0.0004	22.3	0.0003	0.0006

Nuklid=Pu-239,240 Einheit BQ/KG FM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
------	-----	----	------	--------	--------	-----	-----

1984	1	0	0.0047	0.0047	6.3	0.0047	0.0047
1985	3	1	0.0028	0.0027	13.4	0.0027	<0.0050
1986	1	0	<0.0023	<0.0023	0.0	<0.0023	<0.0023
1987	1	0	0.0025	0.0025	34.0	0.0025	0.0025
1988	1	0	0.0067	0.0067	14.0	0.0067	0.0067
1989	1	0	0.0005	0.0005	15.0	0.0005	0.0005
1990	1	0	0.0054	0.0054	4.2	0.0054	0.0054
1992	3	0	0.0083	0.0075	46.7	0.0020	0.0153
1996	3	0	0.0088R	0.0084	3.5R	0.0050	0.0092

Nuklid=Am-241gamma Einheit BQ/KG FM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1984	3	3	0.0000	0.0000	0.0	<0.0252	<0.0952
1985	2	2	0.0000	0.0000	0.0	<0.0484	<0.1085
1986	5	5	0.0000	0.0000	0.0	<0.0834	<0.9758
1987	4	4	0.0000	0.0000	0.0	<0.0285	<0.7905
1988	5	5	0.0000	0.0000	0.0	<0.0258	<5.2273
1989	2	2	0.0000	0.0000	0.0	<0.0806	<0.3294
1990	6	6	0.0000	0.0000	0.0	<0.0547	<1.0490
1992	3	3	0.0000	0.0000	0.0	<0.0347	<0.0455
1993	2	2	0.0000	0.0000	0.0	<0.0478	<0.4723
1996	5	5	0.0000	0.0000	0.0	<0.0221	<0.3800
1998	7	7	0.0000	0.0000	0.0	<0.0501	<0.2820
2000	2	2	0.0000	0.0000	0.0	<0.0740	<0.0975

Nuklid=Am-241Rch Einheit BQ/KG FM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1996	3	0	0.0033	0.0034	16.0	0.0024	0.0042

Nuklid=Pu-238/Pu-239+240 Einheit BQ/KG FM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1984	1	0	0.0830	0.0830	33.6	0.0830	0.0830
1985	2	2	0.0000	0.0000	0.0	<0.3532	<0.5406
1987	1	0	<0.8075	<0.8075	<0.3	<0.8075	<0.8075
1988	1	0	<0.3172	<0.3172	0.0	<0.3172	<0.3172
1989	1	0	<0.2879	<0.2879	0.0	<0.2879	<0.2879
1990	1	0	0.0476	0.0476	25.4	0.0476	0.0476
1992	3	0	0.0502R	0.0480	11.5R	0.0121	0.0523
1996	3	0	0.0481R	0.0500	5.5R	0.0461	0.0610

Query: Synaphobranchidae (GS) aus Gebiet B

```
select probe,index,arge,jahr,ptyp,part,amat,einheit,ft,Sr_90,CS_137,Co
_60,Pu_238,Pu_239,Am_241,Am_241r,Puverh,kont,pk from atlbiof where (
arge like 'B%' and arge <> 'BO') and (ptyp like 'Bath%') and (part lik
e 'Synapho%') and (amat is null or amat like '%gs%')
```

Nuklid=Sr-90 Einheit BQ/KG FM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1980	2	1	0.0205	0.0205	21.0	<0.0240	0.0291
1981	1	0	<0.0102	<0.0102	0.0	<0.0102	<0.0102
1982	1	0	<0.0070	<0.0070	0.0	<0.0070	<0.0070
1984	2	1	0.0124	0.0124	11.0	<0.0105	0.0195
1987	1	0	<0.0277	<0.0277	0.0	<0.0277	<0.0277
1993	1	0	<0.0160	<0.0160	0.0	<0.0160	<0.0160

Nuklid=Cs-137 Einheit BQ/KG FM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1980	2	0	0.1121	0.1121	11.3	0.1050	0.1192
1981	1	0	0.1575	0.1575	15.0	0.1575	0.1575
1982	1	0	0.0834	0.0834	11.0	0.0834	0.0834
1983	1	0	0.2485	0.2485	8.7	0.2485	0.2485
1984	1	0	0.1880	0.1880	9.3	0.1880	0.1880
1986	1	0	0.1825	0.1825	9.0	0.1825	0.1825
1987	1	0	<0.2228	<0.2228	0.0	<0.2228	<0.2228
1988	1	0	0.1474	0.1474	11.0	0.1474	0.1474
1992	1	0	0.0881	0.0881	10.0	0.0881	0.0881
1993	3	0	0.1436R	0.1425	5.0R	0.1013	0.1448
1996	1	0	0.1000	0.1000	10.0	0.1000	0.1000
1998	6	0	0.1104	0.1010	15.4	0.0668	0.1740

Nuklid=Pu-238 Einheit BQ/KG FM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1987	1	0	<0.0013	<0.0013	0.0	<0.0013	<0.0013
1992	1	0	<0.0001	<0.0001	0.0	<0.0001	<0.0001
1993	2	0	0.0000	0.0000	25.8	0.0000	0.0001

Nuklid=Pu-239,240 Einheit BQ/KG FM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
------	-----	----	------	--------	--------	-----	-----

1987	1	0	0.0016	0.0016	35.0	0.0016	0.0016
1992	1	0	0.0004	0.0004	16.0	0.0004	0.0004
1993	2	0	0.0007	0.0007	28.9	0.0005	0.0009

Nuklid=Am-241gamma Einheit BQ/KG FM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1984	1	0	<0.0511	<0.0511	0.0	<0.0511	<0.0511
1987	1	0	<0.4897	<0.4897	0.0	<0.4897	<0.4897
1988	2	2	0.0000	0.0000	0.0	<0.7509	<1.1032
1992	1	0	<0.0391	<0.0391	0.0	<0.0391	<0.0391
1993	3	3	0.0000	0.0000	0.0	<0.0171	<0.2997
1996	1	0	<0.0699	<0.0699	0.0	<0.0699	<0.0699
1998	6	6	0.0000	0.0000	0.0	<0.0177	<0.9430

Nuklid=Pu-238/Pu-239+240 Einheit BQ/KG FM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1987	1	0	<0.8440	<0.8440	<0.3	<0.8440	<0.8440
1992	1	0	<0.1537	<0.1537	0.0	<0.1537	<0.1537
1993	2	0	0.0662	0.0662	26.4	0.0574	0.0750

Query: Synaphobranchidae (GS) aus Vergleichsgebieten

```
select probe,index,arge,jahr,ptyp,part,amat,einheit,ft,Sr_90,CS_137,Co_60,Pu_238,Pu_239,Am_241,Am_241r,Puverh,kont,pk from atlbiof where (not(arge like 'B%') or arge like 'BO') and (ptyp like 'Bath%') and (part like 'Synapho%') and (amat is null or amat like '%gs%')
```

Nuklid=Sr-90 Einheit BQ/KG FM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1980	1	0	0.0067	0.0067	15.0	0.0067	0.0067
1982	1	0	<0.0228	<0.0228	0.0	<0.0228	<0.0228
1986	1	0	<0.0168	<0.0168	0.0	<0.0168	<0.0168
1990	1	0	<0.0061	<0.0061	0.0	<0.0061	<0.0061

Nuklid=Cs-137 Einheit BQ/KG FM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1980	1	0	0.1385	0.1385	11.0	0.1385	0.1385
1982	1	0	0.1993	0.1993	18.0	0.1993	0.1993
1983	1	0	0.2100	0.2100	9.5	0.2100	0.2100
1984	1	0	0.1407	0.1407	11.0	0.1407	0.1407
1986	2	1	0.1107	0.1107	11.0	0.1107	<0.1301
1987	1	0	0.0839	0.0839	11.0	0.0839	0.0839
1990	3	0	0.0915R	0.0965	6.0R	0.0865	0.2493

Nuklid=Pu-238 Einheit BQ/KG FM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1987	1	0	<0.0010	<0.0010	0.0	<0.0010	<0.0010
1990	1	0	0.0001	0.0001	31.0	0.0001	0.0001

Nuklid=Pu-239,240 Einheit BQ/KG FM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1987	1	0	<0.0012	<0.0012	0.0	<0.0012	<0.0012
1990	1	0	0.0008	0.0008	6.1	0.0008	0.0008

Nuklid=Am-241gamma Einheit BQ/KG FM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1984	1	0	<0.0369	<0.0369	0.0	<0.0369	<0.0369
1986	2	2	0.0000	0.0000	0.0	<0.0569	<0.0637
1987	1	0	<0.0202	<0.0202	0.0	<0.0202	<0.0202
1990	3	3	0.0000	0.0000	0.0	<0.0395	<0.5580

Nuklid=Pu-238/Pu-239+240 Einheit BQ/KG FM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1990	1	0	0.0681	0.0681	31.6	0.0681	0.0681

Query: Synaphobranchidae (GS), keine Gebietsunterscheidung

```
select probe,index,arge,jahr,ptyp,part,amat,einheit,ft,Sr_90,CS_137,Co_60,Pu_238,Pu_239,Am_241,Am_241r,Puverh,kont,pk from atlbiof where (ptyp like 'Bath%') and (part like 'Synapho%') and (amat is null or amat like '%gs%')
```

Nuklid=Sr-90 Einheit BQ/KG FM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1980	3	1	0.0131	0.0067	61.3	0.0067	0.0291
1981	1	0	<0.0102	<0.0102	0.0	<0.0102	<0.0102
1982	2	2	0.0000	0.0000	0.0	<0.0070	<0.0228
1984	2	1	0.0124	0.0124	11.0	<0.0105	0.0195
1986	1	0	<0.0168	<0.0168	0.0	<0.0168	<0.0168
1987	1	0	<0.0277	<0.0277	0.0	<0.0277	<0.0277
1990	1	0	<0.0061	<0.0061	0.0	<0.0061	<0.0061
1993	1	0	<0.0160	<0.0160	0.0	<0.0160	<0.0160

Nuklid=Cs-137 Einheit BQ/KG FM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1980	3	0	0.1209	0.1192	8.3	0.1050	0.1385
1981	1	0	0.1575	0.1575	15.0	0.1575	0.1575
1982	2	0	0.1414	0.1414	41.0	0.0834	0.1993
1983	2	0	0.2292	0.2292	8.4	0.2100	0.2485
1984	2	0	0.1643	0.1643	14.4	0.1407	0.1880
1986	3	1	0.1275	0.1107	22.1	0.1107	0.1825
1987	2	1	0.0839	0.0839	11.0	0.0839	<0.2228
1988	1	0	0.1474	0.1474	11.0	0.1474	0.1474
1990	3	0	0.0915R	0.0965	6.0R	0.0865	0.2493
1992	1	0	0.0881	0.0881	10.0	0.0881	0.0881
1993	3	0	0.1436R	0.1425	5.0R	0.1013	0.1448
1996	1	0	0.1000	0.1000	10.0	0.1000	0.1000
1998	6	0	0.1104	0.1010	15.4	0.0668	0.1740

Nuklid=Pu-238 Einheit BQ/KG FM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1987	2	2	0.0000	0.0000	0.0	<0.0010	<0.0013
1990	1	0	0.0001	0.0001	31.0	0.0001	0.0001
1992	1	0	<0.0001	<0.0001	0.0	<0.0001	<0.0001
1993	2	0	0.0000	0.0000	25.8	0.0000	0.0001

Nuklid=Pu-239,240 Einheit BQ/KG FM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1987	2	1	0.0011	0.0011	35.0	<0.0012	0.0016
1990	1	0	0.0008	0.0008	6.1	0.0008	0.0008
1992	1	0	0.0004	0.0004	16.0	0.0004	0.0004
1993	2	0	0.0007	0.0007	28.9	0.0005	0.0009

Nuklid=Am-241gamma Einheit BQ/KG FM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1984	2	2	0.0000	0.0000	0.0	<0.0369	<0.0511
1986	2	2	0.0000	0.0000	0.0	<0.0569	<0.0637
1987	2	2	0.0000	0.0000	0.0	<0.0202	<0.4897
1988	2	2	0.0000	0.0000	0.0	<0.7509	<1.1032
1990	3	3	0.0000	0.0000	0.0	<0.0395	<0.5580
1992	1	0	<0.0391	<0.0391	0.0	<0.0391	<0.0391
1993	3	3	0.0000	0.0000	0.0	<0.0171	<0.2997
1996	1	0	<0.0699	<0.0699	0.0	<0.0699	<0.0699
1998	6	6	0.0000	0.0000	0.0	<0.0177	<0.9430

Nuklid=Pu-238/Pu-239+240 Einheit BQ/KG FM :

Jahr	nal	nc	Mean	Median	StDev%	Min	Max
1987	1	0	<0.8440	<0.8440	<0.3	<0.8440	<0.8440
1990	1	0	0.0681	0.0681	31.6	0.0681	0.0681
1992	1	0	<0.1537	<0.1537	0.0	<0.1537	<0.1537
1993	2	0	0.0662	0.0662	26.4	0.0574	0.0750

Anhang A3:

Ältere Messdaten von Pu-Isotopen, Cs-137 und Sr-90 in Meerwasser

Tabelle 1 : Aktivitätskonzentrationen von Plutonium-Isotopen in großvolumigen Seewasserproben
Entnahmetiefe etwa 10 m über dem Sediment
Aktivitätskonzentrationswerte in $\mu\text{Bq/L} \pm 1\text{s SD} (\%)$

Probe	Datum	Gebiet, Station	Position	Volumen L	Chem. Ausb. %	^{238}Pu $\mu\text{Bq/L}$	$^{239,240}\text{Pu}$ $\mu\text{Bq/L}$	Ratio $^{238}\text{Pu} / ^{239,240}\text{Pu}$
9945	10.04.1986	D, Stat. 8-9	41°57.0'N/22°45.0'W	800	71.4	0.66 \pm 14%	17. \pm 2.6%	0.038
10263	08.05.1986	B, Stat. 58-60	45°54.5'N/16°42.7'W	1200	87.8	0.42 \pm 20%	9.3 \pm 2.8%	0.045
11029	16.04.1987	B, Stat. 20	46°05.0'N/16°39.3'W	811	78.9	0.60 \pm 23%	7.4 \pm 4.5%	0.082
11030	17.04.1987	B, Stat. 23	46°00.0'N/17°14.5'W	810	69.3	1.0 \pm 17%	9.4 \pm 4.2%	0.109
11031	25.04.1987	D, Stat. 33	42°19.5'N/22°21.0'W	1202	84.2	0.42 \pm 21%	8.9 \pm 3.0%	0.047
11032	02.05.1987	GME, Stat. 58	31°52.8'N/24°45.0'W	1200	74.3	< 0.28	1.3 \pm 13.0%	---
11033	07.05.1987	GME, Stat. 76	31°44.2'N/24°42.0'W	790	61.4	< 0.52	1.4 \pm 21.0%	---
11772	30.03.1988	B, Stat. 10	46°04.8'N/16°42.0'W	1140	64.6	0.93 \pm 22%	13. \pm 3.1%	0.070
11773	02.04.1988	B, Stat. 16	46°04.0'N/17°08.6'W	1194	79.2	0.79 \pm 20%	11. \pm 3.0%	0.071
11774	12.04.1988	GME, Stat. 25	31°33.5'N/25°02.0'W	1205	73.2	< 0.26	2.2 \pm 7.6%	---
12376	25.07.1989	östl. B, St. 1	45°59.0'N/12°57.2'W	1192	73.7	< 0.46	4.1 \pm 5.6%	---
12377	27.07.1989	B, Stat. 7	45°52.8'N/16°45.0'W	1215	33.0	0.97 \pm 10%	12.3 \pm 1.8%	0.079
13003	10.08.1990	A, Stat. 30	42°50.0'N/14°30.0'W	1201	74.1	< 0.26	3.0 \pm 6.0%	---
13000	30.07.1990	B, Stat. 10	46°02.5'N/17°13.0'W	1182	45.4	1.27 \pm 13%	9.7 \pm 3.5%	0.130
13001	02.08.1990	B, Stat. 18	46°00.0'N/17°13.0'W	1210	75.6	0.91 \pm 11%	7.3 \pm 2.9%	0.125
13002	04.08.1990	Östl. B, St.24	46°00.0'N/13°00.0'W	1179	83.5	0.16 \pm 49%	5.3 \pm 3.5%	0.029
13004	14.08.1990	P1, Stat. 43	41°30.0'N/10°10.0'W	1196	80.0	< 0.24	4.9 \pm 3.8%	---
13005	17.08.1990	P3, Stat. 65	38°25.0'N/10°20.0'W	1177	71.3	0.10 \pm 89%	3.8 \pm 5.1%	0.026
13006	19.08.1990	P4, Stat. 78	37°00.5'N/11°24.2'W	1211	76.8	0.60 \pm 15%	6.3 \pm 3.3%	0.096
139978	08.03.1992 11.03.1992	östl. B und B (Misch- probe)	Stationen 13 + 20	2369	63.1	0.49 \pm 6.1%	6.0 \pm 1.7%	0.081
13999	13.03.1992	B, Stat. 25	46°00.0'N/17°00.0'W	1191	57.0	0.77 \pm 7.2%	6.8 \pm 2.4%	0.113
14000	24.03.1992	P5, Stat. 36	34°03.1'N/14°35.6'W	1186	76.3	0.12 \pm 18%	3.4 \pm 2.9%	0.035
14001	01.04.1992	A, Stat. 43	42°37.0'N/14°20.0'W	1186	65.4	0.12 \pm 19%	2.9 \pm 3.4%	0.041
14002	05.04.1992	A, Stat. 51	42°50.0'N/14°30.2'W	1200	78.5	0.11 \pm 18%	2.2 \pm 3.6%	0.050
14437	03.04.1993	östl. B, Stat. 1	46°00.0'N/13°00.0'W	1189	65.6	0.16 \pm 14%	4.9 \pm 2.3%	0.032
14441	11.04.1993	östl. B, Stat. 22	45°59.0'N/13°00.0'W	1219	70.3	0.17 \pm 13%	5.2 \pm 2.2%	0.032
14438	05.04.1993	B, Stat. 2	46°00.0'N/17°10.0'W	1197	68.7	0.85 \pm 5.6%	7.7 \pm 1.8%	0.110
14439	07.04.1993	B, Stat. 6	46°10.0'N/17°10.0'W	1197	71.2	1.50 \pm 3.9%	9.4 \pm 1.6%	0.159
14440	09.04.1993	B, Stat. 18	46°05.0'N/16°39.0'W	1217	40.6	0.54 \pm 9.5%	6.8 \pm 2.6%	0.080

Table 2 : Vertical profiles of radionuclides in seawater
 Site A (old dumpsite)
 Station 34, 11.08.1990 (42°50.0'N; 14°30'W)
 water depth 5250 m, 240 L samples

depth m	90Sr		134Cs		137Cs		137Cs-N	ratio 137Cs-N / 90Sr
	mBq/L	1sSD%	mBq/L	1sSD%	mBq/L	1sSD%	mBq/L	
0	2.14	(5.6)	<0.096		2.84	(7.2)	2.84	1.33
50	1.59	(5.4)	<0.25		2.80	(7.7)	2.80	1.76
100	2.13	(6.1)	<0.23		2.98	(7.6)	2.98	1.40
180	2.08	(5.6)	<0.10		3.72	(7.2)	3.72	1.79
240	2.38	(3.8)	<0.24		4.25	(7.4)	4.25	1.79
500	2.26	(3.0)	<0.27		2.91	(7.9)	2.91	1.29
740	1.57	(5.7)	<0.12		2.32	(7.4)	2.32	1.48
1030	1.51	(5.0)	0.949	(6.0)	8.11	(7.1)	1.47	0.97
2000	0.713	(3.4)	<0.23		1.04	(9.6)	1.04	1.46
3000	0.102	(24.)	<0.13		0.405	(12.)	0.405	3.97
4000	<0.17		<0.098		<0.078			
5180	0.083	(11.)	<0.11		0.752	(8.6)	0.752	9.07

137Cs-N : net 137Cs after subtraction of Chernobyl 137Cs derived from 134Cs

Mean ratio 137Cs-N / 90Sr :

- a) 1.55 ± 0.22 in the samples from 0 to 740 m
- b) 1.54 ± 0.21 in the samples from 0 to 2000 m (excluding the 1030 m sample)

Table 3 : Vertical profiles of radionuclides in seawater
 Site P4
 station 82, 20.08.1990 (37°00.0'N; 11°25.0'W)
 water depth 5070 m, 240 L samples

depth m	90Sr		134Cs		137Cs		137Cs-N	ratio 137Cs-N / 90Sr
	mBq/L	1sSD%	mBq/L	1sSD%	mBq/L	1sSD%	mBq/L	
0	2.08	(5.4)	0.748	(6.7)	8.11	(7.1)	2.87	1.38
100	1.89	(3.1)	0.230	(23.)	5.01	(7.2)	3.40	1.80
240	1.75	(9.0)	<0.093		2.83	(7.4)	2.83	1.62
750	1.51	(5.8)	<0.19		2.05	(7.7)	2.05	1.36
1030	1.26	(3.2)	0.577	(9.5)	5.27	(7.2)	1.23	0.98
2000	0.359	(8.2)	<0.13		1.27	(8.0)	1.27	3.54
3000	0.058	(30.)	<0.13		0.423	(11.)	0.423	7.28
4000	0.054	(13.)	<0.13		0.656	(9.5)	0.656	12.2
5060	<0.046		<0.13		0.718	(9.3)	0.718	>15.5

137Cs-N : net 137Cs after subtraction of Chernobyl 137Cs derived from 134Cs

Mean ratio 137Cs-N / 90Sr :

- 1.54 ± 0.21 in the samples from 0 to 750 m

Table 4 : Vertical profiles of radionuclides in seawater
 Site B (NEA dumpsite)
 Station 31, 15.03.1992 (46°00.0'N; 17°00.0'W)
 water depth 4660 m, 400 L samples

depth m	90Sr		134Cs		137Cs		137Cs-N	ratio
	mBq/L	1sSD%	mBq/L	1sSD%	mBq/L	1sSD%	mBq/L	137Cs-N / 90Sr
1000	1.39	(7.3)	<0.059		1.76	(7.2)	1.76	1.27
3000	0.479	(7.4)	<0.055		0.790	(7.6)	0.790	1.65
3660	0.145	(16.)	<0.063		0.399	(8.8)	0.399	2.75
4160	0.121	(18.)	<0.054		0.351	(8.6)	0.351	2.90
4560	<0.180		<0.052		0.508	(8.0)	0.508	>2.82
4650	<0.077		0.247		2.76	(7.1)	(0)	--

The deepest sample (4650 m) completely represents Chernobyl caesium:
 measured ratio 137Cs/134Cs = 11.2
 Chernobyl ratio 137Cs/134Cs = 11.6

Table 5 : Vertical profiles of radionuclides in seawater
 Site B (NEA dumpsite)
 Station 33, 16.03.1992 (46°08.0'N; 16°41.0'W)
 water depth 4720 m, 400 L samples

depth m	90Sr		134Cs		137Cs		137Cs-N	ratio
	mBq/L	1sSD%	mBq/L	1sSD%	mBq/L	1sSD%	mBq/L	137Cs-N / 90Sr
1000	1.23	(7.7)	<0.053		1.50	(7.2)	1.50	1.22
3000	0.236	(13.)	<0.056		0.676	(7.8)	0.676	2.86
3720	0.190	(30.)	<0.081		0.481	(9.5)	0.481	2.53
4220	0.063	(11.)	<0.068		0.426	(8.6)	0.426	6.76
4620	0.242	(17.)	<0.070		0.866	(7.8)	0.866	3.58
4710	0.119	(23.)	<0.091		0.514	(9.1)	0.514	4.32

Table 6 : Vertical profiles of radionuclides in seawater
 Site A (old dumpsite)
 Station 43, 01.04.1992 (42°37.0'N; 14°20.0'W)
 water depth 5260 m, 400 L sample

depth m	90Sr		134Cs		137Cs		137Cs-N	ratio
	mBq/L	1sSD%	mBq/L	1sSD%	mBq/L	1sSD%	mBq/L	137Cs-N / 90Sr
1200	1.31	(2.9)	<0.061		1.83	(7.2)	1.83	1.40

Table 7 : Vertical profiles of radionuclides in seawater
 Site A (old dumpsite)
 Station 51, 05.04.1992 (42°50.0'N; 14°30.0'W)
 water depth 5260 m, 400 L sample

depth m	90Sr		134Cs		137Cs		137Cs-N	ratio
	mBq/L	1sSD%	mBq/L	1sSD%	mBq/L	1sSD%	mBq/L	137Cs-N / 90Sr
5250	0.073	(23.)	<0.058		0.075	(23.)	0.075	1.02

Table 8 : Activity concentrations of ⁹⁰Sr and caesium isotopes in 400 L water samples collected 1993 from the NEA dumpsite and from a comparison site - sampling near to the bottom (1s SD uncertainties given in µBq/l)

Sample	Date	meter above sea floor	position	⁹⁰ Sr µBq/L	¹³⁴ Cs µBq/L	¹³⁷ Cs µBq/L

Sampling site "East of B" :						
14431	03.04.93	10	46°00.0'N/13°00.0'W	< 55	< 31	< 30
14436	14.04.93	10	45°59.0'N/13°01.0'W	< 26	< 34	< 34
NEA dumping site :						
14432	05.04.93	270	46°00.0'N/17°10.0'W	< 35	< 43	58±13
14433	08.04.93	10	46°00.0'W/17°10.0'W	38±5	< 35	38±10
14434	08.04.93	10	46°10.0'N/17°10.0'W	125±6	< 42	128±17
14435	10.04.93	10	46°04.0'N/16°41.0'W	48±14	< 38	102±14

Anhang A4:

RIMS-Analysenberichte der Uni Mainz zu Pu-Isotopen und Tc-99 im Meerwasser

Auswertung Meerwasserproben des Jahres 1996 (Nov. 1998)

Probe	St 13	St 20-23	St 40	St 46	St 56	St 64	St 72	St 79	St 88	St 93
Bruttoereignisse										
239	277	497	507	1615	154	224	560	3264	562	1712
240	98	67	27	111	9	25	28	313	51	186
244	4818	5944	2445	8763	1143	1581	3082	32963	4827	26775
Untergrund	13	13	5	30	10	11	17	33	33	35
Isotopenverhältnisse (korriert auf Meßzeit)										
239/244	1.4E-02	2.0E-02	5.1E-02	4.5E-02	3.2E-02	3.4E-02	4.4E-02	2.5E-02	2.8E-02	1.6E-02
statistischer Fehler (1s)	8.9E-04	9.6E-04	2.4E-03	1.2E-03	2.8E-03	2.5E-03	2.0E-03	4.4E-04	1.3E-03	3.9E-04
systematischer Fehler (30%)	4.1E-03	6.1E-03	1.5E-02	1.4E-02	9.5E-03	1.0E-02	1.3E-02	7.4E-03	8.3E-03	4.7E-03
240/239	3.2E-01	1.1E-01	4.4E-02	5.1E-02	< 6.5E-02	6.6E-02	2.0E-02	8.7E-02	3.4E-02	9.0E-02
statistischer Fehler (1s)	4.4E-02	1.9E-02	1.1E-02	7.5E-03	3.0E-02	2.8E-02	1.2E-02	5.9E-03	1.7E-02	9.0E-03
Gehalt 239Pu										
[Atome/l]	8.2E+06	1.2E+07	3.1E+07	2.7E+07	1.9E+07	2.0E+07	2.7E+07	1.5E+07	1.7E+07	9.4E+06
[µBa/l]	7.5	11.2	28.1	24.8	17.4	18.5	24.2	13.4	15.1	8.6
Fehler (svs.+stat.) [Atome/l]	3.0E+06	4.2E+06	1.1E+07	8.9E+06	7.4E+06	7.6E+06	9.2E+06	4.7E+06	5.7E+06	3.1E+06
[µBa/l]	2.7	3.9	9.7	8.1	6.8	6.9	8.3	4.3	5.2	2.8
Gehalt 240Pu										
[Atome/l]	2.7E+06	1.4E+06	1.4E+06	1.4E+06	1.3E+06	1.3E+06	5.4E+05	1.3E+06	5.6E+05	8.5E+05
[µBa/l]	8.9	4.6	4.5	4.7	4.2	4.5	1.8	4.3	1.9	2.8
Fehler (svs.+stat.) [Atome/l]	1.0E+06	5.3E+05	5.8E+05	5.0E+05	7.5E+05	7.6E+05	3.8E+05	4.1E+05	3.4E+05	2.9E+05
[µBa/l]	3.5	1.8	2.0	1.7	2.5	2.5	1.3	1.4	1.2	1.0
Gesamtaktivität [µBa/l]	16.4	15.7	32.6	29.5	21.6	23.0	26.0	17.7	17.0	11.4
Fehler(gesamt) [µBa/l]	6.2	5.6	11.7	9.8	9.3	9.4	9.6	5.7	6.4	3.8
Effizienz bezogen auf Pu-244	4.0E-06	4.9E-06	2.0E-06	7.3E-06	9.4E-07	1.3E-06	2.6E-06	2.7E-05	4.0E-06	2.2E-05
Nachweisgrenze (Pu-244)	2.7E+06	2.2E+06	3.3E+06	2.3E+06	1.0E+07	7.6E+06	4.8E+06	6.3E+05	4.3E+06	8.0E+05

Plutoniumbestimmung in Meerwasserproben des Jahres 1998

Prinzip:

Die zu untersuchenden Meerwasserproben wurden mit einer definierten Menge des Tracerisotops ^{244}Pu versetzt, chemisch aufgearbeitet und das Plutonium elektrolytisch abgeschieden. Danach wurde das Plutonium von einem Sandwichfilament atomar verdampft und in drei Stufen mit Laserlicht resonant angeregt, ionisiert und in einem Flugzeit - Massenspektrometer nachgewiesen.

Prozedur:

Jeweils 10 Liter einer Meerwasserprobe wurden mit $5 \cdot 10^9$ Atomen des ^{244}Pu – Tracers versetzt und chemisch aufgearbeitet. Die wichtigen Schritte dabei sind das Mitfällen von Plutonium an Eisenhydroxid mittels Ammoniak und die darauffolgende Abtrennung des Plutoniums von Eisen durch die Austauschersäule TEVA Resin SPS. Das chemisch isolierte Plutonium wurde elektrolytisch in Form des Hydroxids auf einer Tantalfolie abgeschieden und mit einer Titanschicht von etwa 1 μm Dicke mittels Sputtern überzogen.

Für die RIMS – Messungen wurden die so erhaltenen „Sandwichfilamente“ in das Flugzeit – Massenspektrometer eingebracht und elektrisch bis 900°C aufgeheizt. Dabei wandelt sich das Plutoniumhydroxid in Plutoniumoxid um, welches durch die Titanschicht diffundiert und dabei zum Metall reduziert wird. Von der heißen Titanschicht dampft das Plutonium atomar ab und wird in dieser Form mit Laserlicht resonant angeregt und ionisiert. Die Temperatur wurde über einen Zeitraum von 90-120 min langsam auf ca. 1100°C gesteigert, bis das Plutonium quantitativ abgedampft war.

Die resonante Anregung und Ionisation der Plutonium – Atome erfolgte über zwei atomare Niveaus und einen Rydbergzustand bei den Wellenlängen $\lambda_1 = 421\text{ nm}$, $\lambda_2 = 847\text{ nm}$ und $\lambda_3 = 767\text{ nm}$ mit Hilfe dreier Titan – Saphir – Laser, die von einem hochrepetierenden Nd:YAG Laser gepumpt wurden. Die Rydbergatome wurden feldionisiert, die erzeugten Ionen in dem Flugzeit – Massenspektrometer massengetrennt und mit einem Kanalplattendetektor nachgewiesen.

Die atomaren Zustände der Plutoniumisotope unterscheiden sich auf Grund der Isotopieverschiebungen im ersten und zweiten Anregungsschritt, so daß die Laserwellenlängen für diese Anregungsschritte auf die jeweils untersuchten Isotope eingestellt werden mußten. Der dritte Laser brauchte nicht durchgestimmt zu werden, da in diesem Übergang keine Isotopieverschiebung innerhalb der Laserlinienbreite beobachtet werden konnte. Zur Bestimmung der Isotopenverhältnisse wurden die Laser des ersten und zweiten Anregungsschritts abwechselnd für die gleiche Dauer auf die resonanten Wellenlängen der untersuchten Isotope ^{239}Pu und ^{244}Pu eingestellt. Bei diesem Verfahren werden die Nachbarisotope 238 bzw. 240 zwar um den Faktor 1,5 unterdrückt, die Nachweiseffizienz ist jedoch deutlich höher als bei anderen Verfahren, bei denen alle Isotope gleich lang gemessen werden. Die Nachweisgrenze lag für ^{239}Pu bei etwa 4×10^6 Atome / 10 l Meerwasser; für die Isotope 238 und 240 war sie wegen der Unterdrückung um den Faktor 1,5 schlechter.

Datenauswertung:

Ausgehend von den Rohdaten wurde von den Bruttoereignissen (N_x) auf jeder Masse der Untergrund (UG) abgezogen. Das Vermessen mehrerer Blindproben lieferte den Wert für BW (Blindwert: $1,2 \cdot 10^7$ Atome, 3σ – Fehler: $8 \cdot 10^6$). Der ^{239}Pu Gehalt jeder 10 Liter Probe (G_{239}) berechnete sich zu:

$$G_{239} = (N_{239} - UG) \cdot \frac{N_{Tracer}}{N_{244} - UG} - BW ; \quad N_{Tracer} = 5 \cdot 10^9 \text{ Atome } ^{244}Pu$$

Der angegebene Fehler (3σ) ist rein statistischer Art ($\Delta E = \sqrt{E}$) und unter Vernachlässigung eines Fehlers in der eingesetzten Tracermenge, der eingesetzten Probenmenge und der Untergründereignisse ergibt sich für ΔG_{239}

$$\Delta G_{239} = \sqrt{9 \cdot G_{239}^2 \cdot \left(\frac{N_{239}}{(N_{239} - UG)^2} + \frac{N_{244}}{(N_{244} - UG)^2} \right) + \Delta BW^2}$$

Bei einer typischen Anzahl von Untergründereignissen $UG < 10$, $N_{239} > 50$ und $N_{244} \gg 1000$ vereinfacht sich die Formel näherungsweise zu:

$$\Delta G_{239} = \sqrt{9 \cdot G_{239}^2 \cdot \left(\frac{1}{N_{239}} + \frac{1}{N_{244}} \right) + \Delta BW^2}$$

Die Nachweisgrenze durch die Statistik ist als dreifache Wurzel des Untergrundes definiert:

$$NWG = 3 \cdot \sqrt{UG}$$

die Nachweisgrenze mit Blindwerten als Summe aus Blindwert und Nachweisgrenze durch die Statistik.

Für ^{240}Pu waren die Zählereignisse durchgehend zu gering, um ein sinnvolles Isotopenverhältnis $^{240}Pu:^{239}Pu$ angeben zu können.

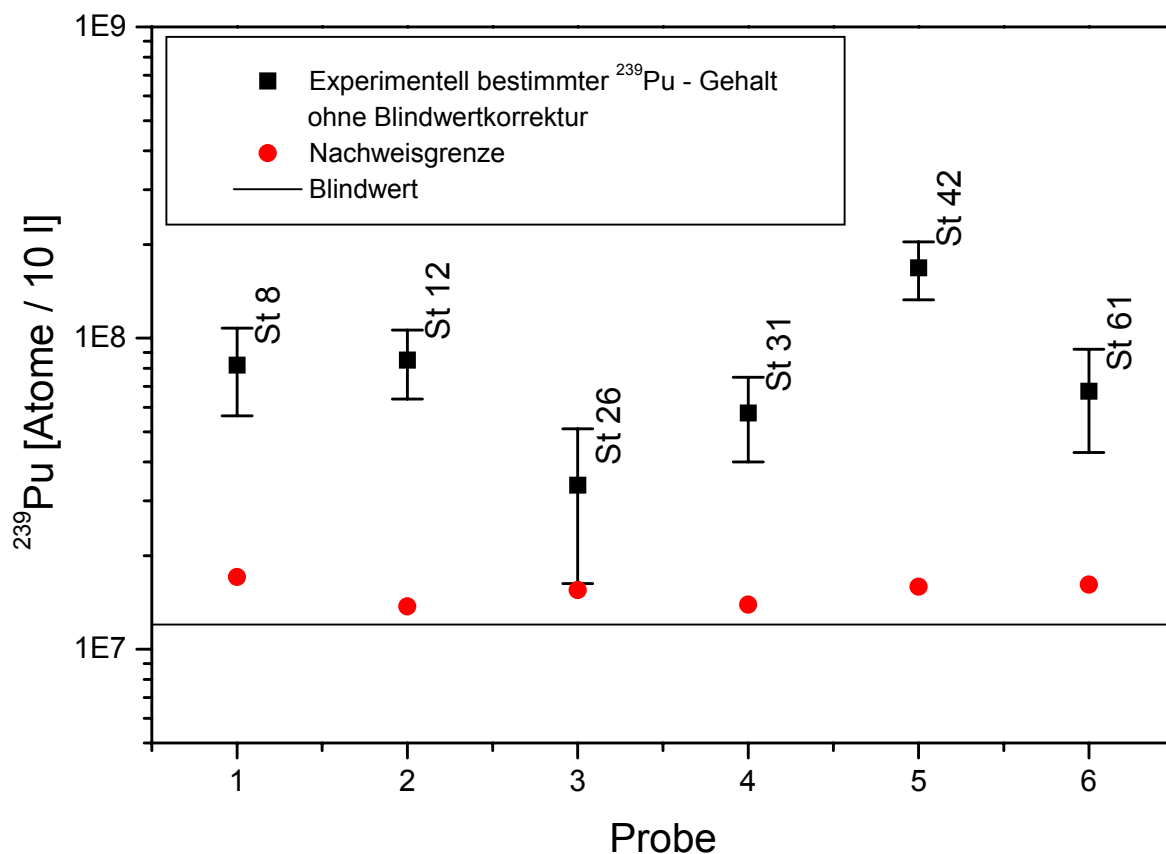
Ergebnisse:

Probe	²³⁹ Pu – Gehalt: G_{239} [Atome / 10 l]	3σ - Fehler: ΔG_{239} [Atome / 10 l]	Nachweisgrenze aus Statistik [Atome / 10 l]	Nachweisgrenze mit Blindwerten [Atome / 10 l]
St8	$7,0 \cdot 10^7$	$2,6 \cdot 10^7$	$5 \cdot 10^6$	$1,7 \cdot 10^7$
St12	$7,3 \cdot 10^7$	$2,1 \cdot 10^7$	$2 \cdot 10^6$	$1,4 \cdot 10^7$
St26	$2,2 \cdot 10^7$	$1,7 \cdot 10^7$	$4 \cdot 10^6$	$1,6 \cdot 10^7$
St31	$4,6 \cdot 10^7$	$1,7 \cdot 10^7$	$2 \cdot 10^6$	$1,4 \cdot 10^7$
St42	$1,6 \cdot 10^8$	$3,6 \cdot 10^7$	$4 \cdot 10^6$	$1,6 \cdot 10^7$
St61	$5,6 \cdot 10^7$	$2,5 \cdot 10^7$	$4 \cdot 10^6$	$1,6 \cdot 10^7$

Rohdaten:

Probe	Ereignisse ²⁴⁴ Pu	Ereignisse ²³⁹ Pu	Ereignisse ²⁴⁰ Pu	Ereignisse Untergrund
St8	6286	108	13	5
St12	9960	171	10	2
St26	6306	45	9	3
St31	10834	127	12	3
St42	6533	223	10	3
St61	5647	79	6	3

Plot der Meßwerte:



Plutoniumbestimmung in Meerwasserproben des Jahres 2000

Prinzip:

Die zu untersuchenden Meerwasserproben wurden mit einer definierten Menge ^{236}Pu zur Bestimmung der chemischen Ausbeute und ^{244}Pu zur Ermittlung der Gesamteffizienz versetzt, chemisch aufgearbeitet und das Plutonium elektrolytisch abgeschieden. Danach wurde das Plutonium von einem Sandwichfilament atomar verdampft und in drei Stufen mit Laserlicht resonant angeregt, ionisiert und in einem Flugzeit - Massenspektrometer nachgewiesen.

Prozedur:

Jeweils 10 Liter einer Meerwasserprobe wurden mit einer definierten Menge ^{236}Pu und ^{244}Pu versetzt und chemisch aufgearbeitet. Die wichtigen Schritte dabei sind das Mitfällen von Plutonium an Eisenhydroxid mittels Ammoniak und die anschließende Abtrennung des Plutoniums von Eisen und anderen Elementen durch die Austauschersäule TEVA Resin SPS. Das chemisch isolierte Plutonium wurde elektrolytisch in Form des Hydroxids auf einer

Tantalfolie abgeschieden und mit einer Titanschicht von etwa 1 μm Dicke mittels Sputtern überzogen.

Im Falle der Probe 'Irische See' wurden 10 ml analog aufgearbeitet.

Für die RIMS – Messungen wurden die so erhaltenen „Sandwichfilamente“ in das Flugzeit – Massenspektrometer eingebracht und elektrisch bis 900° C aufgeheizt. Dabei wandelt sich das Plutoniumhydroxid in Plutoniumoxid um, welches durch die Titanschicht diffundiert und dabei zum Metall reduziert wird. Von der heißen Titanoberfläche dampft das Plutonium atomar ab und wird in dieser Form mit Laserlicht resonant angeregt und ionisiert. Die Temperatur wurde über einen Zeitraum von 90-120 min langsam auf ca. 1100° C gesteigert, bis das Plutonium quantitativ abgedampft war.

Die resonante Anregung und Ionisation der Plutonium – Atome erfolgte über zwei atomare Niveaus und einen Rydbergzustand mit Laserlicht der Wellenlängen $\lambda_1 = 421$ nm, $\lambda_2 = 847$ nm und $\lambda_3 = 767$ nm. Dafür wurden drei Titan – Saphir – Laser genutzt, die von einem hochrepetierenden Nd:YAG Laser gepumpt wurden. Die Rydbergatome wurden feldionisiert, die erzeugten Ionen in dem Flugzeit – Massenspektrometer massengetrennt und mit einem Kanalplattendetektor nachgewiesen.

Die atomaren Zustände der Plutoniumisotope unterscheiden sich auf Grund der Isotopieverschiebungen im ersten und zweiten Anregungsschritt, so daß die Laserwellenlängen für diese Anregungsschritte auf die jeweils untersuchten Isotope eingestellt werden mußten. Der dritte Laser brauchte nicht durchgestimmt zu werden, da in diesem Übergang keine Isotopieverschiebung innerhalb der Laserlinienbreite beobachtet werden konnte. Zur Bestimmung der Isotopenverhältnisse wurden die Laser des ersten und zweiten Anregungsschritts abwechselnd für die gleiche Dauer auf die resonanten Wellenlängen der untersuchten Isotope, z. B. ^{239}Pu und ^{244}Pu eingestellt. Bei diesem Verfahren werden die Nachbarisotope 238 bzw. 240 zwar um den Faktor 1,5 unterdrückt, die Nachweiseffizienz ist jedoch deutlich höher als bei anderen Verfahren, bei denen alle Isotope gleich lang gemessen werden. Bei den Proben St 23 und St 27 wurden die Laser während einem Teil der Messzeit auch auf die Resonanzwellenlängen der Isotope 242 und 244 eingestellt, um dieses Isotopenverhältnis genau bestimmen zu können. Die Nachweishgrenze lag für ^{239}Pu (und für ^{242}Pu bei den Messungen von St 23 und St 27) bei etwa 3×10^6 Atome / 10 l Meerwasser; für die Isotope 238 und 240 war sie wegen der angesprochenen Unterdrückung um den Faktor 1,5 schlechter.

Für die Probe 'Irische See' wurden außer der Bestimmung der Gesamtmenge an ^{239}Pu noch Isotopenverhältnismessungen für die Isotope 238, 240 und 242 durchgeführt.

Datenauswertung:

Ausgehend von den Rohdaten wurde von den Bruttoereignissen (N_x) auf jeder Masse der Untergrund (UG) abgezogen. Das Vermessen mehrerer Blindproben lieferte den Wert für BW (Blindwert für ^{239}Pu : $9,0 \cdot 10^6$ Atome, 3σ – Fehler: $1,9 \cdot 10^6$; für ^{242}Pu konnte kein Blindwert beobachtet werden). Der ^{239}Pu Gehalt jeder Probe (G_{239}) berechnete sich zu:

$$G_{239} = (N_{239} - UG) \cdot \frac{N_{Tracer}}{N_{244} - UG} - BW; \quad N_{Tracer} = 5 \cdot 10^9 \text{ Atome } ^{244}\text{Pu}$$

Der angegebene Fehler (3σ) ist rein statistischer Art ($\Delta E = \sqrt{E}$) und unter Vernachlässigung eines Fehlers in der eingesetzten Tracermenge, der eingesetzten Probenmenge und der Untergrundeignisse ergibt sich für ΔG_{239}

$$\Delta G_{239} = \sqrt{9 \cdot G_{239}^2 \cdot \left(\frac{N_{239}}{(N_{239} - UG)^2} + \frac{N_{244}}{(N_{244} - UG)^2} \right) + \Delta BW^2}$$

Bei einer typischen Anzahl von Untergrundeignissen $UG < 10$, $N_{239} > 50$ und $N_{244} \gg 1000$ vereinfacht sich die Formel näherungsweise zu:

$$\Delta G_{239} = \sqrt{9 \cdot G_{239}^2 \cdot \left(\frac{1}{N_{239}} + \frac{1}{N_{244}} \right) + \Delta BW^2}$$

Die Nachweisgrenze durch die Statistik ist als dreifache Wurzel des Untergrundes definiert:

$$NWG = 3 \cdot \sqrt{UG},$$

die Nachweisgrenze mit Blindwerten als Summe aus Blindwert und Nachweisgrenze durch die Statistik.

Diese Aussagen gelten auch für die übrigen Pu-Isotope.

In den Proben St 23 und St 27 wurde in je zwei unabhängigen Einzelmessungen ^{242}Pu nachgewiesen. Für ^{240}Pu waren die Zählereignisse bis auf die Probe 'Irische See' zu gering, um ein sinnvolles Isotopenverhältnis $^{240}\text{Pu} : ^{239}\text{Pu}$ angeben zu können (siehe Rohdaten).

Ergebnisse:

Probe	²³⁹ Pu – Gehalt: G_{239} [Atome / 10 l]	3σ - Fehler: ΔG_{239} [Atome / 10 l]	Nachweisgrenze aus Statistik [Atome / 10 l]	Nachweisgrenze mit Blindwerten [Atome / 10 l]
St 5	$3,8 \cdot 10^7$	$2,1 \cdot 10^7$	$4 \cdot 10^6$	$1,3 \cdot 10^7$
St 8	$3,6 \cdot 10^7$	$1,2 \cdot 10^7$	$2 \cdot 10^6$	$1,1 \cdot 10^7$
St 20	$5,3 \cdot 10^7$	$1,3 \cdot 10^7$	$3 \cdot 10^6$	$1,2 \cdot 10^7$
St 23*	$6,6 \cdot 10^7$	$9 \cdot 10^6$	$2 \cdot 10^6$	$1,1 \cdot 10^7$
St 27*	$5,4 \cdot 10^7$	$7 \cdot 10^6$	$2 \cdot 10^6$	$1,1 \cdot 10^7$

*Ergebnisse sind gewichtete Mittelwerte von 2 unabhängigen Einzelmessungen.

Probe	²⁴² Pu – Gehalt: G_{242} [Atome / 10 l]	3σ - Fehler: ΔG_{242} [Atome / 10 l]	Nachweisgrenze aus Statistik [Atome / 10 l]
St 20*	$8,7 \cdot 10^7$	$1,2 \cdot 10^7$	$3 \cdot 10^6$
St 27*	$6,1 \cdot 10^7$	$1,2 \cdot 10^7$	$3 \cdot 10^6$

*Ergebnisse sind gewichtete Mittelwerte von 2 unabhängigen Einzelmessungen.

Ergebnisse der Probe 'Irische See':

²³⁹ Pu – Gehalt: G_{239} [Atome / 10 ml]	3σ - Fehler: ΔG_{239} [Atome / 10 ml]	Nachweisgrenze aus Statistik [Atome / 10 ml]	Nachweisgrenze mit Blindwerten [Atome / 10 ml]
$9,9 \cdot 10^7$	$1,6 \cdot 10^7$	$2 \cdot 10^6$	$1,1 \cdot 10^7$

Isotopenverhältnis	238 : 239	240 : 239	241 : 239	242 : 239
Meßwert	-*	0,17	-*	0,18
3σ - Fehler	-*	0,06	-*	0,08

*Angabe der Isotopenverhältnisse macht wegen geringer Zählstatistik keinen Sinn (siehe Rohdaten).

Rohdaten ²³⁹Pu – Messung:

Es wurden jeweils 10 l Meerwasser eingesetzt.

Probe	²⁴⁴ Pu – Tracer [10 ⁹ Atome]	Ereignisse ²⁴⁴ Pu	Ereignisse ²³⁹ Pu	Ereignisse ²⁴⁰ Pu	Ereignisse Untergrund
St 5	5	5090	50	8	2
St 8	5	14277	131	15	3
St 20	5	16562	217	27	11
St 23A	5	22869	315	27	6
St 23B	10	38082	331	29	6
St 27A	5	24596	279	17	6
St 27B	10	45564	346	29	7

Rohdaten ²⁴²Pu – Messung:

Es wurden jeweils 10 l Meerwasser eingesetzt.

Probe	²⁴⁴ Pu – Tracer [10 ⁹ Atome]	Ereignisse ²⁴⁴ Pu	Ereignisse ²⁴² Pu	Ereignisse Untergrund
St 23A	5	12074	197	7
St 23B	10	31933	303	5
St 27A	5	6364	76	12
St 27B	10	28824	200	6

Rohdaten der Probe 'Irische See':

Es wurde 10 ml Meerwasser eingesetzt. Abbildung 2 zeigt das Massenspektrum dieser Messung.

²⁴⁴ Pu – Tracer [10 ⁹ Atome]	Ereignisse ²⁴⁴ Pu	Ereignisse ²³⁹ Pu	Ereignisse Untergrund
5	16679	333	3

Zählereignisse zur Ermittlung der Isotopenverhältnisse für die Probe 'Irische See':

Isotop	238	240	241	242
Ereignisse	19	76	14*	63
Ereignisse 239	290	421	333*	299
Untergrund	4	4	3*	10

* Bei diesen Daten ist der ^{241}Pu -Gehalt um etwa den Faktor 1,5 unterschätzt, da die Laser nicht auf die Wellenlängen von ^{241}Pu eingestellt waren.

Abbildung 1: ^{239}Pu – Meßwerte der Meerwasserproben :

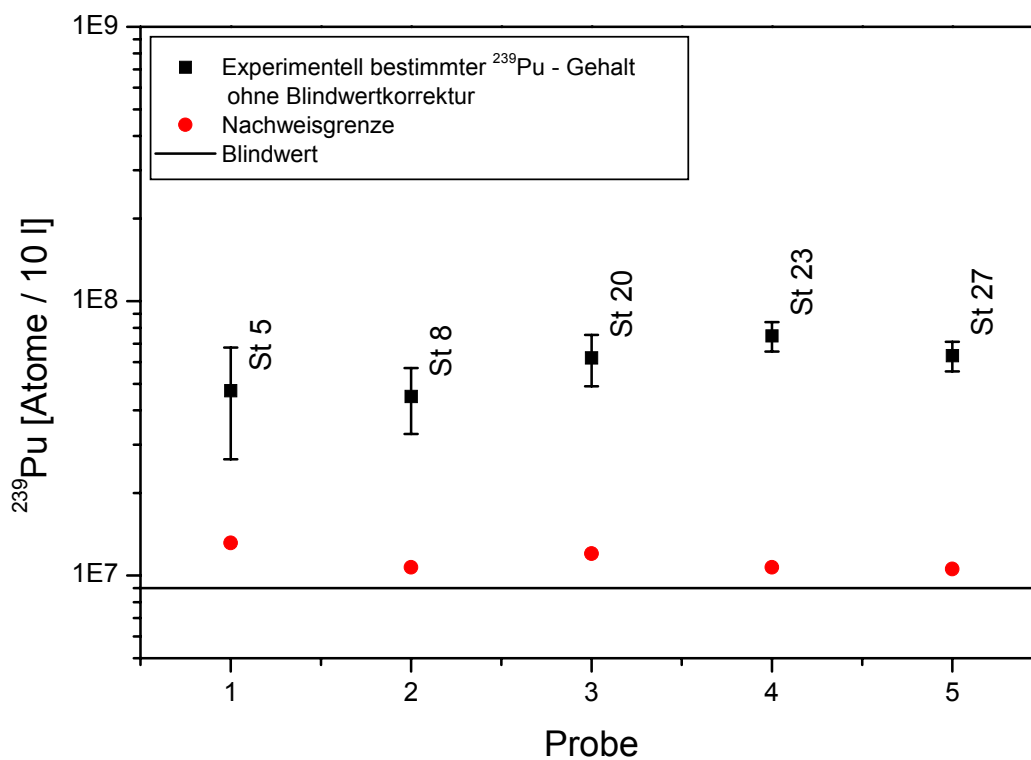
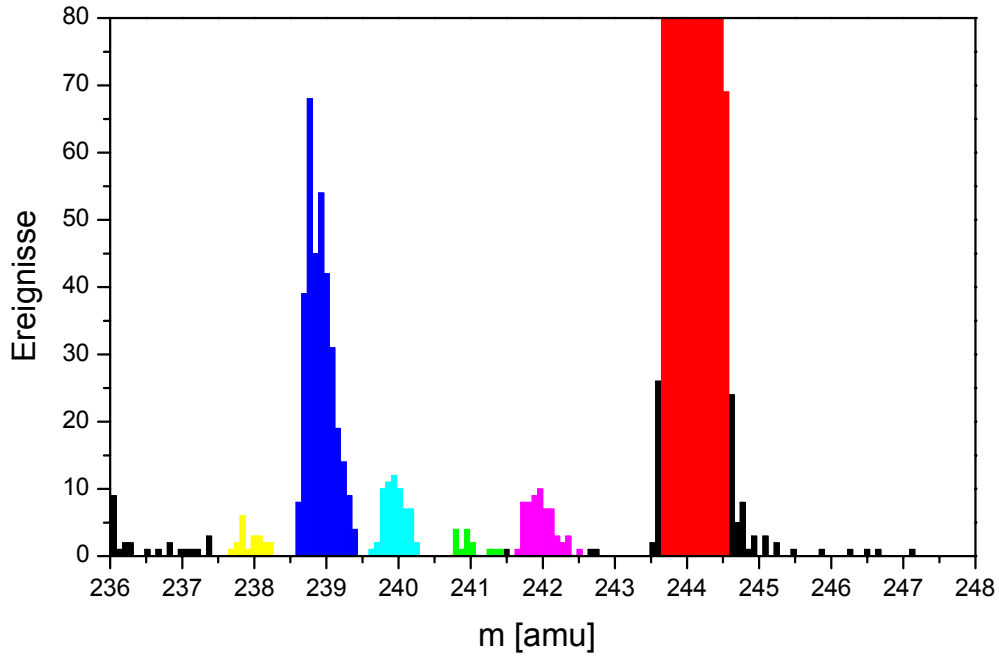


Abbildung 2: Massenspektrum der Probe 'Irische See' zur Bestimmung des ^{239}Pu – Gehaltes:
Neben dem Tracerisotop ^{244}Pu sind die Pu-Isotope 239, 240 und 242 gut zu erkennen.
Weiterhin sieht man in dem Massenspektrum mit einer geringen Anzahl an Ereignissen noch
die Isotope ^{238}Pu und ^{241}Pu .



Technetiumbestimmung in Meerwasserproben des Jahres 1996

Prinzip

Die zu untersuchenden Meerwasserproben wurden mit einer definierten Menge des Tracerisotops Tc-95m versetzt und chemisch aufgearbeitet. Danach wurden die Proben in einer Laser-Ionenquelle atomar verdampft und das Technetium wurde in drei Stufen mit Laserlicht resonant angeregt, ionisiert und in einem doppelfokussierenden Massenspektrometer nachgewiesen.

Prozedur

Jeweils 3 Liter einer Meerwasserprobe wurden auf etwa 100 ml reduziert mit etwa 10^{10} Atomen des Tc-95m-Tracers versetzt und chemisch aufgearbeitet, wobei der wichtigste Schritt die Extraktion mit Tetraphenylarsoniumchlorid darstellt. Das chemisch isolierte Technetium wurde elektrolytisch auf einer Graphitfolie abgeschieden. Die so erhaltene Probe wurde in einer Kammer aus Reinstgraphit eingebracht und auf 1500°C aufgeheizt. Bei dieser Temperatur beginnt Technetium atomar abzdampfen. Über einen Zeitraum von etwa 90 Minuten wurde die Temperatur langsam auf ca. 1800°C erhöht, bis das Technetium quantitativ abgedampft war. Die resonante Anregung und Ionisation der Technetium-Atome erfolgte über zwei atomare Niveaus und einen autoionisierenden Zustand mit Hilfe dreier Farbstofflaser bei den Wellenlängen $\lambda_1 = 313\text{ nm}$, $\lambda_2 = 821\text{ nm}$ und $\lambda_3 = 670\text{ nm}$.

Während der Messung wurde folgender Zyklus durchlaufen:

Für 20 Sekunden war der Magnet des Massenspektrometers auf Transmission für das Tracerisotop Tc-95m eingestellt, dann für 40 Sekunden auf Tc-99g. Währenddessen wurde jede zweite Sekunde der Laser 2 ($\lambda_2 = 821\text{ nm}$) geblockt, um den Untergrund zu bestimmen. Da es sich bei den verwendeten Lasern um ein gepulstes System handelte, wurden die Ereignisse für Tc-95m und Tc-99g nur innerhalb eines Zeitfensters von $20\ \mu\text{s}$ aufgenommen, innerhalb dessen alle durch Resonanzionisation erzeugten Ionen das Massenspektrometer durchfliegen haben. Der Untergrund auf den Massen 95 und 99 wurde ebenfalls innerhalb dieses Zeitfensters gemessen.

Datenauswertung

Ausgehend von den Rohdaten wurde von den Bruttoereignissen auf jeder Masse der Untergrund abgezogen und die Anzahl der Ereignisse zeitkorrigiert, um der unterschiedlichen Messzeit auf den Massen 95 und 99 Rechnung zu tragen. Außerdem wurden die Ereignisse der ersten 4 Sekunden nach jeder Änderung des Magnetfeldes verworfen, um die Stabilisierung des Magnetfeldes abzuwarten. Der Tc-99g-Gehalt (N_{99}) in der Probe ergibt sich mit Hilfe der bekannten Tracermenge (T_{95}), der Messzeitkorrektur ($(20-4):(40-4) = 4/9$), sowie den Ereignissen (E) und des Untergrundes (U) zu:

$$N_{99} = \frac{4}{9} \cdot (E_{99} - U_{99}) \cdot \frac{T_{95}}{E_{95} - U_{95}} .$$

Der angegebene Fehler ist rein statistischer Art ($\Delta E = \sqrt{E}$) und – wie in der Spurenanalytik üblich – als 3σ - Fehler angegeben:

$$\Delta N_{99} = 3 \cdot \frac{4}{9} \cdot \frac{T_{95}}{E_{95} - U_{95}} \sqrt{E_{99} + U_{99} + (E_{99} - U_{99})^2 \cdot \frac{E_{95} + U_{95}}{(E_{95} - U_{95})^2}}$$

Die Nachweisgrenze ist als dreifache Wurzel des Untergrunds auf der Masse 99 definiert:

$$NWG_{99} = 3 \cdot \frac{4}{9} \cdot \frac{T_{95}}{E_{95} - U_{95}} \sqrt{U_{99}}$$

Ergebnisse

Probe	Tc-99g – Gehalt [Atome/3 Liter]	3σ - Fehler: ΔN ₉₉ [Atome/3 Liter]	Nachweisgrenze [Atome/3 Liter]
St 20 – 23	1,0 · 10 ⁸	5,9 · 10 ⁷	4,1 · 10 ⁷
St 40	2,6 · 10 ⁸	1,4 · 10 ⁸	9,5 · 10 ⁷
St 72	< Nachweisgrenze	-	1,1 · 10 ⁸
St 13	1,5 · 10 ⁸	6,4 · 10 ⁷	4,4 · 10 ⁷
St 79	1,1 · 10 ⁸	1,2 · 10 ⁸	8,1 · 10 ⁷
St 46	1,2 · 10 ⁸	1,9 · 10 ⁷	1,2 · 10 ⁷
St 56	1,2 · 10 ⁸	4,5 · 10 ⁷	3,1 · 10 ⁷
St 64	1,6 · 10 ⁷	2,5 · 10 ⁷	1,8 · 10 ⁷
St 93	1,1 · 10 ⁷	5,9 · 10 ⁶	4,0 · 10 ⁶

Rohdaten:

Probe	Ereignisse auf Masse 95	Untergrund auf Masse 95	Ereignisse auf Masse 99	Untergrund auf Masse 99	Tracer Tc-95m [Atome]
St 20-23	33317	4272	15508	14597	7,38 · 10 ⁹
St 40	27780	8001	36341	34830	7,58 · 10 ⁹
St 72	25584	7910	41551	41747	7,31 · 10 ⁹
St 13	17102	3692	6643	5877	5,74 · 10 ⁹
St 79	7348	2283	2701	2494	6,12 · 10 ⁹
St 46	60525	5583	10598	7952	5,67 · 10 ⁹
St 56	22974	3524	7156	6270	5,65 · 10 ⁹
St 64	26577	3184	3001	2852	5,77 · 10 ⁹
St 93	82815	4553	1886	1552	5,89 · 10 ⁹

Anhang A5:

Verwendung charakteristischer Verhältnisse $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ verschiedener Quellen zur Ermittlung von deren Anteilen am gesamten Aktivitätsinventar

Verwendung charakteristischer Verhältnisse $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ verschiedener Quellen zur Ermittlung von deren Anteilen am gesamten Aktivitätsinventar

Variante 1:

Gegeben sei:

(Indizes: F: Fallout, D: Dumping, S: Summe aus F+D)

$$R_F = \frac{^{238}\text{Pu}}{^{239,240}\text{Pu}} \quad \text{Verhältnis für F_{allout} (z.B. 0,032)}$$

$$R_D = \frac{^{238}\text{Pu}}{^{239,240}\text{Pu}} \quad \text{Verhältnis für versenkte Radioaktivität (D_{umping}, z.B. 0,1-0,8)}$$

$I_{a,\text{Nuk}}$ Inventare im Versenkungsgebiet (z.B. in GBq oder TBq), bzw. auch Aktivitätskonzentrationen
a : F oder D, oder S für Summe F+D; Nuk = Nuklidname, mit Massenzahl abgekürzt; Index 239,240 wird mit 239 abgekürzt!

Annahme :

$$I_{S,238} = f \cdot I_{F,238} \quad \text{experimenteller Befund für Pu-238: wir haben z.B. } f = 2,28 \text{ gefunden}$$

Frage: Wie groß ist das gesamte Aktivitätsinventar von $^{239,240}\text{Pu}$ $I_{S,239}$?

Es gilt:

$$I_{F,239} = \frac{I_{F,238}}{R_F}, \quad I_{D,239} = \frac{I_{D,238}}{R_D} .$$

$$I_{D,238} = I_{S,238} - I_{F,238} = f \cdot I_{F,238} - I_{F,238} = I_{F,238} \cdot (f - 1)$$

Weiterhin gilt:

$$I_{D,239} = \frac{I_{D,238}}{R_D} = \frac{I_{F,238} \cdot (f - 1)}{R_D} = \frac{R_F \cdot I_{F,239} \cdot (f - 1)}{R_D} = I_{F,239} \cdot q, \quad \text{mit } q = R_F \cdot \frac{f - 1}{R_D}$$

Damit folgt:

$$I_{S,239} = I_{F,239} + I_{D,239} = I_{F,239} + I_{F,239} \cdot q = I_{F,239} \cdot (1 + q), \quad \text{mit } q = R_F \cdot \frac{f - 1}{R_D} \quad \text{(A5.1)}$$

Dies bedeutet: wenn für ^{238}Pu das f-fache des Fallout-bezogenen Inventars gefunden wird, dann ist entsprechend das gefundene gesamte $^{239,240}\text{Pu}$ -Inventar um das (1+q)-fache größer als das $^{239,240}\text{Pu}$ -Inventar des Fallouts.

Ist das Verhältnis $\frac{I_{S,239}}{I_{F,239}}$ aus Messungen bekannt, kann man aus Gl. (A5.1) auch das uns unbekannte R_D , das $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ -Verhältnis für die Quelle „versenkte Radioaktivität“, nach folgender Gleichung berechnen:

$$R_D = \frac{R_F \cdot (f - 1)}{\left(\frac{I_{S,239}}{I_{F,239}} - 1 \right)} \quad (\text{A5.2})$$

Variante 2:

(vgl. auch: Buessler & Sholkovitz (1987), St. 2626)

Gegeben seien die drei Aktivitätsverhältnisse:

$$R_F = \frac{{}^{238}\text{Pu}}{{}^{239,240}\text{Pu}} \quad \text{Verhältnis für } \underline{\text{Fallout}} \text{ (z.B. 0,032)}$$

$$R_D = \frac{{}^{238}\text{Pu}}{{}^{239,240}\text{Pu}} \quad \text{Verhältnis für versenkte Radioaktivität (} \underline{\text{Dumping}} \text{) (z.B. 0,1-0,8)}$$

$$R_S = \frac{{}^{238}\text{Pu}}{{}^{239,240}\text{Pu}} \quad \text{Verhältnis für } \underline{\text{Summe/Mischung}} \text{ aus beiden (Fallout+Dumping)}$$

Frage: Gesucht ist zunächst das Aktivitäts-Verhältnis:

$$\frac{A({}^{239,240}\text{Pu})_F}{A({}^{239,240}\text{Pu})_D} = \frac{I_{F,239}}{I_{D,239}}$$

Es ist:

$$(I_{F,238} + I_{D,238}) = R_S \cdot (I_{F,239} + I_{D,239})$$

$$(R_F \cdot I_{F,239} + R_D \cdot I_{D,239}) = R_S \cdot (I_{F,239} + I_{D,239})$$

$$R_F \cdot I_{F,239} - R_S \cdot I_{F,239} = R_S \cdot I_{D,239} - R_D \cdot I_{D,239}$$

$$I_{F,239} \cdot (R_F - R_S) = I_{D,239} \cdot (R_S - R_D)$$

$$\frac{I_{F,239}}{I_{D,239}} = \frac{(R_S - R_D)}{(R_F - R_S)} = \frac{(R_D - R_S)}{(R_S - R_F)}$$

Dies ist letztendlich die Formel, die bei Buessler & Sholkovitz angeführt ist.

Nun rechnet man damit das Summen-Inventar aus:

$$I_{S,239} = I_{F,239} + I_{D,239} = I_{F,239} + I_{F,239} \cdot \frac{(R_S - R_F)}{(R_D - R_S)} = I_{F,239} \cdot \left(1 + \frac{(R_S - R_F)}{(R_D - R_S)} \right) = I_{F,239} \cdot \frac{(R_D - R_F)}{(R_D - R_S)}$$

das heißt, der Quotient:

$$\frac{I_{S,239}}{I_{F,239}} = \frac{(R_D - R_F)}{(R_D - R_S)} \quad (\text{A5.3})$$

gibt den Faktor an, um den das Summen-Inventar gegenüber dem Fallout-Inventar erhöht ist, wenn für alle drei Komponenten (Fallout, Dumping, Summe) die entsprechenden Aktivitätsverhältnisse $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ bekannt sind (für Summe aus unseren Messungen).

Ist das Verhältnis $\frac{I_{S,239}}{I_{F,239}}$ aus Messungen bekannt, kann man aus Gl. (A5.3) auch das uns unbekannte R_D , das $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ -Verhältnis für die Quelle „versenkte Radioaktivität“, nach folgender Gleichung berechnen:

$$R_D = \frac{R_S \cdot \frac{I_{S,239}}{I_{F,239}} - R_F}{\frac{I_{S,239}}{I_{F,239}} - 1} \quad (\text{A5.4})$$

Rechenbeispiel:

Der von uns im Tiefenwasser gemessene Faktor für die Erhöhung des gesamten $^{239,240}\text{Pu}$ gegenüber dem Fallout- $^{239,240}\text{Pu}$ ist 1,234. Dazu wird das in etwa passende Verhältnis $R_D = (^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu})_{\text{Dumping}}$ gesucht.

Variante 1:		Variante 2:	
Gegeben: $R_F = 0,032$ $f = 2,28$		Gegeben: $R_F = 0,032$ $R_S = 0,057$	
Dann ist:		Dann ist:	
R_D	Faktor (1+q) Gl. (A5.1)	R_D	Faktor $\frac{(R_D - R_F)}{(R_D - R_S)}$ Gl. (A5.3)
0,70	1,059	0,70	1,039
0,50	1,082	0,50	1,056
0,30	1,137	0,30	1,103
0,25	1,164	0,25	1,130
0,20	1,205	0,20	1,175
0,18	1,228	0,18	1,203
0,175	1,234	0,175	1,212
0,17	1,241	0,17	1,221
0,164	1,250	0,164	1,234
0,16	1,256	0,16	1,243
0,15	1,273	0,15	1,269
0,10	1,410	0,10	1,581