



HELMHOLTZ  
ZENTRUM FÜR  
UMWELTFORSCHUNG  
UFZ

*Dissertation 15/2006*

**Natürliche Radionuklide in der Umwelt - Ein Beitrag zur  
Lokalisierung und Charakterisierung natürlicher Heißer  
Teilchen in festen Proben**

Antje Böhnke

ISSN 1860-0387

# **Natürliche Radionuklide in der Umwelt – Ein Beitrag zur Lokalisierung und Charakterisierung natürlicher Heißer Teilchen in festen Proben**

Von der Fakultät für Physik und Geowissenschaften

der Universität Leipzig

genehmigte

DISSERTATION

zur Erlangung des akademischen Grades

doctor rerum naturalium

Dr. rer. nat.

vorgelegt

von Diplom-Geologin Antje Böhnke

geboren am 13.09.1970 in Dresden

Gutachter: Prof. Dr. W. Ehrmann (Universität Leipzig)

Dr. habil. H.C. Treutler (Helmholtz-Zentrum für Umweltforschung GmbH - UFZ)

Prof. Dr. G. Bernhard (Forschungszentrum Rossendorf)

Tag der Verleihung:

# Inhaltsverzeichnis

<b>Inhaltsverzeichnis .....</b>	<b>i</b>
<b>Abbildungsverzeichnis .....</b>	<b>iii</b>
<b>Tabellenverzeichnis .....</b>	<b>vii</b>
<b>Zusammenfassung .....</b>	<b>ix</b>
<b>1 Einleitung und Fragestellungen .....</b>	<b>1</b>
<b>2 Theoretische Grundlagen .....</b>	<b>5</b>
<b>2.1 Radioaktivität in der Umwelt.....</b>	<b>5</b>
2.1.1 Der radioaktive Zerfall .....	5
2.1.2 Strahlungsarten .....	6
2.1.3 Radionuklide.....	10
2.1.4 Strahlenexposition .....	11
<b>2.2 Uran und Thorium in der Natur.....</b>	<b>13</b>
2.2.1 Uran .....	13
2.2.2 Uranisotope.....	14
2.2.3 Thorium .....	15
<b>2.3 Heiße Teilchen.....</b>	<b>19</b>
2.3.1 Definitionen.....	19
2.3.2 Gefährdungspotential von Heißen Teilchen .....	19
<b>3 Material und Methoden .....</b>	<b>22</b>
<b>3.1 Autoradiographie.....</b>	<b>22</b>
<b>3.2 Festkörperspurdetektoren .....</b>	<b>23</b>
3.2.1 Arten und Anwendung von Festkörperspurdetektoren .....	23
3.2.2 Der Festkörperspurdetektor CR-39.....	23
3.2.3 Spurbildungsmechanismen in Festkörperspurdetektoren .....	24
3.2.3.1 Latente Spuren .....	24
3.2.3.2 Ätzprozess.....	25
3.2.3.3 Registrierschwelle.....	27
<b>3.3 Spurmuster (Autoradiogramme) von Alphateilchen auf dem Festkörperspurdetektor     CR-39 .....</b>	<b>28</b>
3.3.1 Spurmuster Heißer Teilchen .....	28
3.3.2 Spurmuster der homogen verteilten Alphaemitter (Background).....	32
<b>3.4 Techniken und Methoden zur Lokalisierung und Identifizierung natürlicher Heißer     Teilchen in festen Proben .....</b>	<b>34</b>
3.4.1 Probenpräparation.....	34
3.4.2 Ortsbestimmung natürlicher Heißer Teilchen in festen Proben mit Festkörperspurdetektoren .....	35
3.4.2.1 Vorbereitung von Probe und Festkörperspurdetektor für die Exposition.....	35
3.4.2.2 Ätztechnik für die Festkörperspurdetektoren .....	37
3.4.2.3 Lichtmikroskopische Untersuchungen .....	37
3.4.3 Identifizierung natürlicher Heißer Teilchen mittels Elektronenmikroskopie.....	40
3.4.3.1 Messbedingungen.....	40
3.4.3.2 Physikalischer Hintergrund.....	41
3.4.3.3 Energiedispersive und wellenlängendispersive Analyse.....	43
3.4.3.4 Darstellung der Ergebnisse der elektronenmikroskopischen Untersuchungen.....	45
3.4.3 Grenzen der beschriebenen Methode zur Lokalisierung und Identifizierung natürlicher Heißer Teilchen in festen Proben .....	45

<b>3.5</b>	<b><i>Spektrometrie</i></b> .....	<b>47</b>
3.5.1	Gammaspektrometrie .....	47
3.5.2	Alphaspektrometrie .....	47
<b>4</b>	<b>Ergebnisse</b> .....	<b>48</b>
<b>4.1</b>	<b><i>Ergebnisse der Lokalisierung und Charakterisierung natürlicher Heier Teilchen in festen Proben</i></b> .....	<b>48</b>
4.1.1	Industrielle Reststoffe, Industrieprodukte und Nebenprodukte .....	48
4.1.1.1	Theisenschlamm .....	49
4.1.1.2	Mansfelder Kupferschlacke .....	56
4.1.1.3	Urantailings Dnkritz .....	56
4.1.1.4	Haldenmaterial (Uranerzbergbau) von Lengelfeld .....	61
4.1.1.5	Fllungsrckstnde aus der Wasserbehandlungsanlage Schlema-Alberoda .....	66
4.1.1.6	Kraftwerksaschen .....	68
4.1.1.7	Phosphatgesteine, Phosphorgips und Versuchsbausteine von Brasilien .....	70
4.1.1.8	Phosphatdnger, Stickstoffdnger .....	77
4.1.1.9	Uranblech .....	80
4.1.2	Natrliche Vorkommen (Gesteine, Sedimente, Minerale) .....	81
4.1.2.1	Kupferschiefer .....	82
4.1.2.2	Fluss- und Bachsedimente des Mansfelder Landes .....	85
4.1.2.3	Sedimente aus dem Schlsselstollen .....	90
4.1.2.4	Seesedimente vom Sen See .....	92
4.1.2.5	berflutungssedimente von Elbe und Mulde .....	93
4.1.2.6	Sedimente aus der Luppe .....	95
4.1.2.7	Seesedimente aus Sdamerika .....	99
4.1.2.8	Monazitsande von Brasilien .....	100
4.1.2.9	Zirkone von Bornholm .....	105
4.1.2.10	Autunit (Uranphosphatglimmer) .....	106
4.1.2.11	Uranhaltiges Konglomerat der Blind River-Formation, Canada .....	107
4.1.2.12	Uranhaltiger Granit von Menzenschwand .....	110
4.1.2.13	Gesteinsproben verschiedener Regionen Sachsens .....	112
<b>4.2</b>	<b><i>Methodische Ergebnisse</i></b> .....	<b>115</b>
4.2.1	Abhngigkeit der Anzahl von Sternspurmustern von der Expositionszeit .....	115
4.2.2	Abhngigkeit der Anzahl von Sternspurmustern bzw. der Anzahl natrlicher Heier Teilchen von der Korngre des exponierten Materials .....	117
4.2.3	Vergleich von durch Gammaspektrometrie und Autoradiographie ermittelten Radioaktivittsgehalten .....	118
4.2.4	Einfluss von Lsungs- und Kristallisationsprozessen auf den Gehalt an natrlichen Heien Teilchen .....	120
4.2.4.1	Auflsung einer Autunitprobe .....	120
4.2.4.2	Chemische Behandlung einer uranhaltigen Konglomeratprobe (Canada) .....	122
4.2.4.3	Uranylacetat Dihydrat ( $\text{CH}_3\text{COO}_2\text{UO}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ ) .....	123
4.2.4.4	Przipitat aus einer $^{210}\text{Pb}$ -Lsung .....	123
<b>5</b>	<b>Diskussion und Schlussfolgerungen</b> .....	<b>125</b>
<b>6</b>	<b>Ausblick</b> .....	<b>131</b>
<b>7</b>	<b>Literaturverzeichnis</b> .....	<b>132</b>
	<b>Danksagung</b> .....	<b>140</b>
	<b>Anhang</b> .....	<b>141</b>
	<b>Bibliographische Daten</b>	
	<b>Zusammenfassung der wissenschaftlichen Ergebnisse zur Dissertation</b>	
	<b>Wissenschaftlicher Werdegang</b>	
	<b>Anlagen (Tafeln)</b>	

## Abbildungsverzeichnis

Abb. 1	Periodensystem der Elemente. ....	5
Abb. 2	Der Alphazerfall .....	6
Abb. 3	Durchdringungsvermögen ionisierender Strahlung.....	7
Abb. 4	Nebelkammerbild eines Alphastrahlers.....	8
Abb. 5	Zusammensetzung der jährlichen Strahlenbelastung der Bevölkerung in Deutschland. ....	11
Abb. 6	Prinzip der Probenanordnung und Spurentstehung bei der Autoradiographie mit Festkörperspurdetektoren. ....	22
Abb. 7	Schematische Darstellung der Kettenspaltung in Polymeren.....	24
Abb. 8	Seitenansicht und räumliche Ansicht der Ätzspur eines ionisierenden Teilchens ....	25
Abb. 9	Charakteristische Ätzspuren (Ätzkegel) von Alphateilchen in einem CR-39 Festkörperspurdetektor. ....	25
Abb. 10	Schematische Seitenansicht eines geätzten Detektors.....	26
Abb. 11	Phänomen des kritischen Winkels $\alpha_0$ beim Ätzen .....	27
Abb. 12	Autoradiogramm (Festkörperspurdetektor CR-39) und REM-Aufnahme eines radioaktiven Partikels.....	28
Abb. 13	Festkörperspurdetektor-Autoradiogramme und schematische Seitenansicht einer Probenanordnung bei der Autoradiographie mit Festkörperspurdetektoren. Formen von Sternspurmustern in Abhängigkeit von der räumlichen Lage der Alphaemitter.....	29
Abb. 14	Formen von Sternspurmustern: Sternspurmuster mit hoher und geringer Spurdichte.....	30
Abb. 15	Formen von Sternspurmustern: große und kleine Sternspurmuster .....	30
Abb. 16	Symmetrische und asymmetrische Sternspurmuster.....	31
Abb. 17	Autoradiogramm mit Ätzspuren von Alphateilchen mit sternenförmiger Anordnung (Heiße Teilchen-Spur) und chaotischer Anordnung (Background-Spurmuster) .....	32
Abb. 18	Cluster-Spurmuster.....	33
Abb. 19	In Kunststoff (Epoxydharz) eingebettete und polierte Sedimentprobe .....	34
Abb. 20	Für die Exposition präparierte Probe und Festkörperspurdetektor, schematische Darstellung .....	35
Abb. 21	Schematische Experimentanordnung von Probe und Detektor bei der Exposition...	36
Abb. 22	Schematische Darstellung des Ätzgestells .....	37
Abb. 23	Ätzspuren von Alphateilchen auf einem Festkörperspurdetektor CR-39.....	38
Abb. 24	Fixierung von Probe und zugehörigem Detektor auf dem Mikroskopiertisch und markierte Probenoberfläche. ....	38
Abb. 25	Markierung einer Probe und Dokumentation der Markierungen .....	39
Abb. 26	Aufsicht auf ein Detektor-Probe-Arrangement und eine geritzte Probenoberfläche unter dem Lichtmikroskop .....	40
Abb. 27	Wechselwirkungen zwischen den Primärelektronen eines Elektronenstrahls und dem bombardierten Probenausschnitt .....	41
Abb. 28	Modellmäßig angenommene Atomhülle mit den Elektronenschalen K, L, M, und N zur Darstellung des Prinzips der Anregung bei der Röntgenspektrometrie ...	42
Abb. 29	Termschema zur Bezeichnung der Röntgenemissionslinien der K-, L- und M-Serien.....	43
Abb. 30	Charakteristisches Röntgenemissionsspektrum (EDX-Spektrum) und Sekundärelektronenbild eines detektierten Probenbereiches .....	45

Abb. 31	Prinzipdarstellung zur Erklärung methodischer Grenzen der Elektronenmikroskopie .....	46
Abb. 32	Die Schlackehalde der ehemaligen Kupferhütte Helbra.....	49
Abb. 33	Topografische Karte von Helbra und Hergisdorf .....	50
Abb. 34	EDX-Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines natürlichen Heißen Teilchens der Theisenschlamm-Probe 233 a. ....	53
Abb. 35	EDX-Spektrum, lichtmikroskopische Aufnahme, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Theisenschlamm-Probe 360 f. ....	54
Abb. 36	EDX-Spektrum, REM-Aufnahme und Cluster-Spurbild eines Partikels aus gediegen Blei. Theisenschlamm 361 q .....	55
Abb. 37	Lage der Aufbereitungsbetriebe Crossen und Lengenfeld.....	57
Abb. 38	Geographische Lage des Aufbereitungsbetriebes Crossen und seiner Absetzanlagen Dänkritz I und II und Helmsdorf.....	58
Abb. 39	Charakteristische Spurbilder natürlicher Heiße Teilchen der Dänkritz-Proben.....	59
Abb. 40	Polierte Oberfläche einer eingebetteten Dänkritz-Probe und Sternspurmuster auf dem mit der Probe korrelierten Detektor .....	60
Abb. 41	EDX-Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines natürlichen Heißen Teilchens aus dem Tailingsmaterial Lengenfeld (298 g).....	62
Abb. 42	EDX-Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines natürlichen Heißen Teilchens aus dem Tailingsmaterial Lengenfeld (298 q).....	63
Abb. 43	EDX-Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild von Heißen Teilchen aus dem Tailingsmaterial Lengenfeld (298 l) .....	64
Abb. 44	Elementverteilungsbilder der Lengenfeld-Probe 298 l.....	65
Abb. 45	Standorte der Wasserbehandlungsanlagen in Sachsen und Thüringen.....	66
Abb. 46	Autoradiogramm einer Rückstandsprobe von Schlema-Alberoda (Probe 404) .....	68
Abb. 47	Lage der Kohlekraftwerke Lippendorf, Deuben und Mumsdorf.....	69
Abb. 48	Brasilien mit Lage der beschriebenen Karbonatit-Komplexe in den Bundesstaaten Goiás und Minas Gerais.....	71
Abb. 49	Anzahl der Heiße Teilchen-Spuren pro cm <sup>2</sup> in Abhängigkeit vom Probenmaterial (brasilianische Phosphatgesteine und –produkte und Zuschlagstoffe) .....	72
Abb. 50	Charakteristische Sternspurmuster in den Versuchsbausteinen.....	73
Abb. 51	Charakteristische Sternspurmuster in Sand und Phosphorgips.....	73
Abb. 52	EDX-Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines natürlichen Heißen Teilchens der Probe Concentrate of rock Tapira-Araxá (276 j) .....	74
Abb. 53	EDX-Spektrum, Spur und REM-Aufnahme eines natürlichen Heißen Teilchens der Probe Phosphate rock Araxá (275 z) .....	75
Abb. 54	EDX-Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens aus der Probe Phosphate rock Araxá (275 t) .....	76
Abb. 55	Beispiele für typische Sternspurmuster in den Phosphatdünger-Proben .....	78
Abb. 56	EDX-Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Phosphat-Düngerprobe (291 e).....	79
Abb. 57	Überblick über die Mansfelder Mulde.....	82
Abb. 58	EDX-Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild von natürlichen Heißen Teilchen der Kupferschiefer-Probe 185 a .....	84
Abb. 59	Überblick über das Gewässersystem der Mansfelder Mulde mit Lage der Probennahmepunkte.....	86
Abb. 60	Schematische Darstellung der westlichen Mansfelder Mulde mit Gewässernetz und Lage der Halden mit Abraum- und Verarbeitungsrückständen der Erzverhüttung.....	87

Abb. 61 EDX-Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines charakteristischen natürlichen Heißen Teilchens in den Bachsedimenten des Mansfelder Landes (Probe 377 l).....	88
Abb. 62 Gewässersystem der Mansfelder Mulde mit den Probenahmepunkten und der Anzahl der Sternspurmuster pro cm <sup>2</sup> . Das Gewässerbild ist mit der schematisch gezeichneten abgedeckten geologischen Übersichtskarte der Mansfelder Mulde hinterlegt.....	88
Abb. 63 EDX-Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild (Cluster) eines stängligen Partikels (Probe 393 i).....	89
Abb. 64 Mundloch des Schlüsselstollens.....	90
Abb. 65 Charakteristisches Sternspurmuster in der Sedimentprobe 211 (Schlüsselstollen)...	91
Abb. 66 Gewässernetz von Elbe und Mulde.....	93
Abb. 67 EDX-Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines natürlichen Heißen Teilchens aus den Überflutungssedimenten der Mulde (Probe 231 c).....	94
Abb. 68 Alte Luppe bei Horburg.....	95
Abb. 69 Gewässerlandschaft westlich von Leipzig an der Grenze von Sachsen zu Sachsen-Anhalt mit Weißer Elster und Luppe.....	96
Abb. 70 Flusslauf der Weißen Elster und Detailkarte mit der schematischen Darstellung der IAA Culmitzsch und Trünzig.....	97
Abb. 71 EDX-Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines natürlichen Heißen Teilchens der Probe Zöschen (Nr. 272 a).....	98
Abb. 72 Südamerika mit Lage der Region Biobio und der Provinz Neuquen.....	99
Abb. 73 Charakteristische Sternspurmuster der Sedimentproben von Caviahue 1 (Expositionsnummern 308 und 312).....	100
Abb. 74 Brasilien mit Bundesstaaten und Fundort der monazithaltigen Strandsande im Bundesstaat Espírito Santo.....	101
Abb. 75 Heller und dunkler Monazitsand.....	101
Abb. 76 Aktivitätskonzentrationen (Thoriumreihe) der untersuchten Monazitsande.....	102
Abb. 77 Autoradiogramm eines hellen Monazitsandes.....	102
Abb. 78 Beispiele für typische Clusterspurmuster auf den Autoradiogrammen der Monazitsand-Proben.....	103
Abb. 79 Sedimentkörner des hellen Monazitsandes und korrelierter Festkörperspurdetektor.....	103
Abb. 80 Lichtmikroskopische Aufnahme der mit der Elektronenstrahlmikrosonde untersuchten Probenoberfläche (Monazitsand hell, Probe 234).....	104
Abb. 81 Die Ostseeinsel Bornholm.....	105
Abb. 82 Rasterelektronenmikroskop-Aufnahme eines Zirkonkristalls.....	105
Abb. 83 Autunitkristalle aus dem Steinbruch Bergen.....	106
Abb. 84 Autoradiogramme eines Autunitkristalls aus dem Steinbruch Bergen nach einer Expositionszeit von 90 Minuten und nach 64 Stunden.....	107
Abb. 85 Anschliff eines Blind River-Konglomerates.....	107
Abb. 86 Canada mit Lage des Lake Elliot Districts am Nordufer des Huronsees.....	108
Abb. 87 Autoradiogramme der Blind River-Proben 205 und 358 mit charakteristischen Sternspurmustern, Clusterspurmustern und Backgroundspurmustern.....	109
Abb.88a EDX-Spektrum eines natürlichen Heißen Teilchens der Blind River-Konglomeratprobe 205 k.....	109
Abb.88b REM-Aufnahme und Spurmuster des natürlichen Heißen Teilchens aus der Blind River-Konglomeratprobe 205 k.....	110
Abb. 89 Deutschland mit Lage von Schwarzwald und Menzenschwand.....	110
Abb. 90 Autoradiogramme typischer Sternspurmuster der Granitproben von Menzenschwand.....	111

Abb. 91	Deutschland mit den Fundpunkten der untersuchten Gesteinsproben im Bundesland Sachsen.....	112
Abb. 92	Autoradiogramme mit charakteristischen Sternspurmustern von Gesteinsproben aus der Region Sachsen. ....	113
Abb. 93	Typische Autoradiogramme mit Sternspurmustern und Backgroundspurmustern von Gesteinsproben aus der Region Sachsen.....	114
Abb. 94	Die Anzahl von Sternspurmustern (pro cm <sup>2</sup> ) in Abhängigkeit von der Expositionszeit bei Phosphatgesteinen und Phosphorgipsen von Brasilien .....	115
Abb. 95	Die Anzahl von Sternspurmustern (pro cm <sup>2</sup> ) in Abhängigkeit von der Expositionszeit bei einer Probe des uranhaltigen Granits von Menzenschwand....	116
Abb. 96	Anzahl von Sternspurmustern pro cm <sup>2</sup> bei jeweils 5 und 8 Wochen exponierten Proben aus der Probengruppe der brasilianischen Phosphatgesteine .....	116
Abb. 97	Die Anzahl von Heiße Teilchen-Spuren in Abhängigkeit von der Korngröße. Probe: Haldenmaterial (Uranerzbergbau) von Lengsfeld.....	117
Abb. 98	Die Anzahl von Heiße Teilchen-Spuren in Abhängigkeit von der Korngröße bei den Sedimenten aus der Luppe .....	117
Abb. 99	Korngrößenabhängige Zahl von Sternspurmustern in Proben der brasilianischen Phosphatgesteine und Phosphorgipse .....	118
Abb.100	Synoptische Gegenüberstellung von Anzahl der Sternspurmuster und entsprechenden Elementgehalten (Thorium und Uran) von Sedimentproben der Elbe und Mulde.....	119
Abb.101	Autoradiogramm einer aufgelösten und wieder auskristallisierten Autunitprobe bei einer Expositionszeit von 4 Stunden.....	121
Abb.102	Autoradiogramm einer aufgelösten und wieder auskristallisierten Autunitprobe bei einer Expositionszeit von 4 Tagen.....	121
Abb.103	Autoradiogramme der nach Schmelze und Auflösung auskristallisierten Konglomeratproben, denen Kohlenstoff und Schwefel zugesetzt wurde.....	122
Abb.104	Autoradiogramme einer 7 Tage exponierten Probe des <sup>210</sup> Pb-Präzipitats .....	124

## Tabellenverzeichnis

Tab. 1	Reichweite von Alphateilchen in verschiedenen Materialien.....	7
Tab. 2	Vergleich der Eigenschaften von $\alpha$ -, $\beta$ - und $\gamma$ -Strahlung.....	9
Tab. 3	Die häufigsten primordialen und kosmogenen Radionuklide .....	10
Tab. 4	Die Uran-Radium-Zerfallsreihe .....	17
Tab. 5	Die Thorium-Zerfallsreihe.....	18
Tab. 6	Aufnahmeenergien verschiedener Kunststoffdetektoren im Vergleich .....	23
Tab. 7	Nomenklatur der Spurdichte in Abhängigkeit von der Anzahl der Spuren.....	33
Tab. 8	Übersicht der untersuchten anthropogenen Proben.....	48
Tab. 9	Elementgehalte für Theisenschlamm .....	51
Tab. 10	Ergebnisse der Gammaskopie der elektronenmikroskopisch untersuchten Dänkritz-Proben. ....	60
Tab. 11	Überblick über die exponierte Uranblech-Probe und Ergebnisse der lichtmikroskopischen Auswertung des Alphaspuren-Inventars auf den Festkörperspurdetektoren .....	80
Tab. 12	Übersicht der untersuchten Proben natürlicher Vorkommen.....	81
Tab. 13	Durchschnittsgehalte der wichtigsten Haupt- und Spurenmetalle im Kupferschiefer .....	83
Tab. 14	Überblick über die exponierten Sedimentproben des Schlüsselstollens und Ergebnisse der lichtmikroskopischen Auswertung des Alphaspuren-Inventars auf den Festkörperspurdetektoren .....	91
Tab. 15	Tabellarische Gegenüberstellung der Ergebnisse von Autoradiographie und Gammaskopie (Sedimente von Elbe und Mulde).....	119
Tab. 16	Übersicht über die Verteilung der Radioaktivitätskonzentration in den unter- suchten anthropogenen Materialien.....	125
Tab. 17	Übersicht über die Verteilung der Radioaktivitätskonzentration in den unter- suchten natürlichen Materialien .....	125
Tab. 18	Überblick über die in den einzelnen Proben gefundenen natürlichen Heißen Teilchen und deren Charakteristika.....	127



## Zusammenfassung

In der vorliegenden Arbeit wurden Vorkommen, Verbreitung, Entstehung und mineralogische Eigenschaften von natürlichen Heißen Teilchen untersucht und die radioökologische Relevanz dieser Teilchen beurteilt. Natürliche Heiße Teilchen sind  $\mu\text{m}$ -große, punktförmige Partikel mit einer im Vergleich zur umgebenden Probenmatrix sehr hohen spezifischen Alphaaktivität. Im Gegensatz zu den beispielsweise beim Reaktorunfall von Tschernobyl entstandenen Heißen Teilchen, die im englischen Sprachgebrauch als Hot Particles bezeichnet werden, kann die Entstehung der natürlichen Heißen Teilchen nicht auf künstliche Spaltprozesse zurückgeführt werden.

Kenntnisse über die Existenz von natürlichen Heißen Teilchen in einer zu untersuchenden Probe sind aus verschiedenen Gründen wichtig. Natürliche Heiße Teilchen in einer Probe führen stets zu einer inhomogenen Verteilung der Radioaktivitätskonzentration. Eine Nichtbeachtung des Vorhandenseins natürlicher Heißer Teilchen kann beispielsweise bei Messungen von Radionuklidkonzentrationen, die generell unter Annahme einer homogenen Kontamination der Probe erfolgen, zu Fehlinterpretationen der Aktivitätskonzentration der Gesamtprobe führen. Auch aus gesundheitlichen Aspekten sollte das Auftreten natürlicher Heißer Teilchen nicht ignoriert werden. Von natürlichen Heißen Teilchen geht eine potentielle Gefahr aus, insbesondere dann wenn sie inkorporiert werden, da sie hohe lokale Strahlendosen bewirken. Bedeutsam sind hier vor allem belastete Feinstäube, da diese tief in den Atemtrakt des Menschen eindringen können.

Bisher ist über das Auftreten von natürlichen Heißen Teilchen in der Umwelt wenig bekannt. Ziel der vorliegenden Arbeit war es deshalb, Untersuchungen durchzuführen, mit deren Hilfe es möglich ist, natürliche Heiße Teilchen in der Umwelt zu erfassen und zu charakterisieren.

Hierzu werden zu Beginn der Arbeit zunächst relevante Fragen zu Radioaktivität in der Umwelt und zu Heißen Teilchen theoretisch behandelt. Anschließend wird detailliert auf die Methode der Autoradiographie und Festkörperspurdetektoren eingegangen, die es ermöglichen, den genauen Ort, die Anzahl und Verteilung von radioaktiven Partikeln auf der Schnitt- oder Oberfläche einer Probe anzugeben. Basierend auf diesen methodischen Betrachtungen, werden durch Laborexperimente ermittelte charakteristische Spurmusterbildungen von Alphaemittern dokumentiert und interpretiert. Ausgehend von den daraus gewonnenen Erkenntnissen wird im weiteren Verlauf der Arbeit eine Detektionstechnik entwickelt, mit deren Hilfe es möglich ist, den Ort natürlicher Heißer Teilchen in festen Proben zu bestimmen und zu markieren. Daran schließt sich eine Beschreibung der elektronenmikroskopischen Untersuchungen zur Identifizierung der lokalisierten natürlichen Heißen Teilchen an. Darin wird auf Messbedingungen, physikalischen Hintergrund der Elektronenmikroskopie und die synoptischer Dokumentation der gewonnenen Analysenwerte eingegangen. Das nachfolgende Kapitel erklärt die Grenzen der beschriebenen Methoden bei der Identifizierung natürlicher Heißer Teilchen.

Unter Nutzung der entwickelten Detektionstechnik, sowie der elektronenmikroskopischen Methoden, wird im weiteren Verlauf ein breites Spektrum an Proben – anthropogene Ablagerungen (industrielle Reststoffe, Industrieprodukte, Nebenprodukte) und natürliche Ablagerungen (Gesteine, Sedimente, Minerale) – untersucht. Dazu wird jede Probe hinsichtlich ihrer mineralogischen Zusammensetzung, geographischen Herkunft und Entstehung beschrieben und jeweils die Ergebnisse der Ortsbestimmung natürlicher Heißer Teilchen (lichtmikroskopische Untersuchungen) und Identifizierung der natürlichen Heißen Teilchen (elektronenmikro-

skopische Untersuchungen) dokumentiert und interpretiert. In einem weiteren Kapitel werden die Ergebnisse methodischer Experimente zu natürlichen Heißen Teilchen beschrieben. Dazu gehören Versuche zum Verhalten natürlicher Heißer Teilchen bei Lösungs-, Schmelz- und Kristallisationsprozessen sowie Testexpositionen, die die Abhängigkeit von Spurmusterbildungen von der Korngröße der Probe und der Dauer der Exposition zeigen.

In einem abschließenden Kapitel werden die gewonnenen Ergebnisse zusammengefasst und diskutiert.

Die Untersuchungsergebnisse zeigen, dass natürliche Heiße Teilchen – die punktförmige Verteilung der Radioaktivitätskonzentration in radionuklidhaltigen Proben – eine natürliche und ubiquitär vorkommende Erscheinungsform von Radioaktivität sind. Radioaktivität hat weit verbreitet eine diskrete Komponente. Natürliche Heiße Teilchen werden nach bisherigen Erkenntnissen nicht durch eine anthropogene Bearbeitung radionuklidhaltiger Proben erzeugt. Gehalte von natürlichen Heißen Teilchen in anthropogenen Proben lassen sich immer auf im Originalgestein vorhandene natürliche Heiße Teilchen zurückführen. Im Gegensatz dazu weisen Laborexperimente darauf hin, dass eine Bearbeitung (chemische Behandlung) von Proben mit natürlichen Heißen Teilchen deren Verschwinden bzw. eine homogene Verteilung der Radioaktivitätskonzentration nach sich ziehen kann.

Die untersuchten natürlichen Heißen Teilchen bestehen aus natürlichen Mineralen, die als wesentliche Bestandteile Uran und/oder Thorium führen. Natürliche Heiße Teilchen sind überwiegend an die Korngrößen  $<63 \mu\text{m}$  gebunden. Die Größe der detektierten Heißen Teilchen liegt zwischen 1 und  $100 \mu\text{m}$ . Je nach Probenart sind Partikelgrößen unter  $10 \mu\text{m}$  häufig (z.B. Theisenschlamm). Dabei handelt es sich oft nicht um singuläre Partikel sondern um Säume an größeren Körnern, um Hohlräumfüllungen, um Aggregate oder Einsprengungen in größeren Partikeln, um Verwachsungen mit anderen Mineralen oder in einer Kohlenstoffmatrix. Durch eine anthropogene Bearbeitung (Mahlen, Bergbau) oder aber natürliche Prozesse (beispielsweise Verwitterung) können solche an Partikeln haftenden, winzigen natürlichen Heißen Teilchen separiert und so zum Gesundheitsrisiko werden. Besonders Teilchen  $<10 \mu\text{m}$  bergen hier ein Gefährdungspotential, da sie extrem flugfähig und leicht inkorporierbar sind.

Zusammenfassend lässt sich sagen, dass natürliche Heiße Teilchen ein weit verbreitetes Phänomen der natürlichen Radioaktivität in der Umwelt darstellen. Wegen ihrer radiologischen Bedeutung sollten Materialien, natürliche und anthropogene, mit Gehalten von natürlichen Heißen Teilchen, unter einer genauen Beobachtung stehen.

# 1 Einleitung und Fragestellungen

Obwohl erst vor 110 Jahren durch Henri Becquerel entdeckt, prägen Radioaktivität und die damit verbundenen ionisierenden Strahlen seit der Entstehung der Erde die Umwelt und die Entwicklung des Lebens auf der Erde. Radioaktivität ist eine natürliche Erscheinung. Sie erreicht uns aus den Gesteinen und Böden unserer Umgebung, aus dem Wasser und aus der Luft. Allerdings leben wir heute in der modernen Zivilisationsgesellschaft in einer durch weiträumige Umverteilungen von natürlichen Stoffen nachhaltig veränderten Umwelt (SIEHL 1996). Das heißt, wir haben es mit einer zivilisatorisch veränderten Exposition durch natürliche Radionuklide zu tun. Hinzu kommt die Exposition durch künstlich erzeugte Radionuklide.

Die Radionuklide, die wir heute in der Umwelt vorfinden können, lassen sich nach VALKOVIĆ (2000) in drei Gruppen einteilen:

1. Natürlich vorkommende Radionuklide mit langen Halbwertszeiten und ihre kürzer lebigen Tochternuklide. Sie existieren seit der Entstehung der Erde, z.B.  $^{238}\text{U}$  mit einer Halbwertszeit von  $4,5 \times 10^9$  Jahren.
2. Natürlich vorkommende Radionuklide mit kürzeren Halbwertszeiten, die ständig durch die kosmische Strahlung in der Atmosphäre gebildet werden, z.B.  $^{14}\text{C}$  mit einer Halbwertszeit von 5730 Jahre.
3. Radionuklide, die durch menschliche Aktivitäten und Unfälle in die Umwelt gelangen, z.B.  $^{137}\text{Cs}$  mit einer Halbwertszeit von 30 Jahren durch die Auswirkungen des Kernwaffen-Fallouts und des Tschernobyl-Unfalls, oder  $^{131}\text{I}$  mit einer Halbwertszeit von 8 Tagen durch die Anwendung in der medizinischen Praxis.

Zur Strahlenexposition des Menschen trägt vor allem die Strahlung der natürlich vorkommenden Radionuklide der Gruppe 1 bei. Dazu gehören z.B.  $^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{222}\text{Rn}$  und  $^{40}\text{K}$ . Sie sind in unterschiedlichen Konzentrationen in Gesteinen und Böden der Erdkruste enthalten.

Einen signifikanten Beitrag zur Strahlenexposition können natürlich in Erzen, Böden, Gesteinen, Wasser oder anderen natürlichen Materialien vorkommende Radionuklide liefern, die durch menschliche Aktivitäten konzentriert, umverteilt und in die Umwelt eingebracht werden. Die international übliche Kurzbezeichnung für solche Materialien ist NORM (Naturally Occurring Radioactive Materials) oder TENORM (Technologically Enhanced Naturally Occurring Radioactive Materials). Sie entstehen beispielsweise bei der Gewinnung, Verhüttung und Aufarbeitung von Erzen und Mineralen, bei der Erdöl- und Erdgasverarbeitung, bei der Herstellung und Raffination von Metallen und in Wasseraufbereitungsanlagen. In Deutschland stammen NORM u.a. aus dem über mehr als 40 Jahre intensiv betriebenen, umfangreichen Uranbergbau der SDAG WISMUT in Thüringen und Sachsen (Nebengestein, Schlämme der Wasseraufbereitung, Tailings), aus der Verhüttung des Kupferschiefers im Mansfelder Land (Theisenschlamm, Schlacke) sowie aus der Verbrennung von Stein- und Braunkohlen (Flugasche).

Nun kommen diese radioaktiven Stoffe nicht nur gleichmäßig verteilt in der Umwelt vor, zum Beispiel als Gase oder Flüssigkeiten, sondern häufig als inhomogene diskrete Partikel verschiedener Größe, Zusammensetzung und Struktur (TÖRÖK et al. 2003). Diese Partikel haben, verglichen mit der des gesamten Probenmaterials, eine hohe spezifische Aktivität. Man bezeichnet sie als **‘Heiße Teilchen’**, im englischen Sprachgebrauch als **‘Hot Particles’**.

Der Begriff Heiße Teilchen oder Hot Particles wird im allgemeinen für künstlich geschaffene Spaltprodukte von Uran verwendet, die unfallbedingt aus militärischen Einrichtungen und zivilen kerntechnischen Anlagen, bei Satelliten- und Flugzeugabstürzen und durch Kernwaffenversuche freigesetzt wurden (LUX et al. 1996). Eine klare Definition Heißer Teilchen bezüglich der Partikelgröße und Aktivität gibt es nicht, da der Begriff auf die Eigenschaften der umgebenden Probenmatrix bezogen wird. Er wird von verschiedenen Autoren auch unterschiedlich angewandt. So sind Heiße Teilchen für TÖRÖK et al. (2003) eine örtliche begrenzte Ansammlung radioaktiver Atome mit einer Größe von mehr als  $0,5 \mu\text{m}$ , die zu einer inhomogenen Verteilung von Radionukliden führt, die sich deutlich von der gesamten Probenmatrix unterscheidet. RAJEWSKI (1959) beschreibt Heiße Teilchen als feinste Staubpartikel, die eine relativ hohe Radioaktivität besitzen und GROOS (1959) definiert Heiße Teilchen als Partikel mit einer Aktivität größer als  $3,7 \text{ Bq}$ . In Bulgarien werden nur solche Partikel mit einer Aktivität über  $100 \text{ Bq}$  als Heiße Teilchen betrachtet, während auf dem 5. Radiometrischen Seminar Theuern über Heiße Teilchen des Tschernobyl-Fallout Partikel mit einer Aktivität von  $\geq 10 \text{ Bq}$  als Heiße Teilchen angesehen werden (STEINHÄUSLER 1987). Von LUX et al. (1996) wird eine Definition angestrebt, die den Anforderungen der Umweltüberwachung genügt und Heiße Teilchen in Zusammenhang mit den Messverfahren bzw. der Matrix sieht. Danach ist "ein Heißes Teilchen ein in einer Probe enthaltenes einzelnes Teilchen, dessen Aktivität so groß ist, dass sie die Angabe einer gleichzeitig wahren und repräsentativen spezifischen Aktivität der Probe vereitelt".

Über das Auftreten von Heißen Teilchen wurde erstmals in den 50er Jahren des letzten Jahrhunderts als Folge von oberflächennahen Kernwaffentests in den USA und der UdSSR berichtet. Ein Anstieg der Kernwaffentests führte zu einem weltweiten Anstieg des radioaktivem Niederschlags und damit des Auftretens Heißer Teilchen zu Beginn der 60er Jahre, bevor 1963 der Vertrag über das Atomteststopabkommen unterzeichnet wurde. Heiße Teilchen wurden außerdem freigesetzt beim Absturz reaktorbetriebener Satelliten (Cosmos 954, 1978) und Flugzeugen mit Nuklearwaffen (Grönland 1968), von Wiederaufbereitungsanlagen (Sellafield, Großbritannien) und bei einem Feuer im Kernkraftwerk Windscale (Großbritannien, 1975) (LUX et al. 1996; SALBU 2001). Die bisher folgenschwerste Kontamination mit Heißen Teilchen erfolgte beim Reaktorunfall des Kernkraftwerkes Tschernobyl im Jahre 1986. Dabei wurden nach Schätzungen  $6000\text{-}8000 \text{ kg}$  Heiße Teilchen emittiert (SANDALLS et al. 1993). Ungefähr  $70 \%$  der gesamten Radioaktivität lagen in der Zentralzone in Form von Heißen Teilchen vor.

Eine der grundlegenden frühen Publikationen über Heiße Teilchen in Mitteleuropa ist der Bericht des Kolloquiums über radioaktive Partikel aus dem Jahre 1959 (AUTORENKOLLEKTIV 1959). Aber erst die Katastrophe von Tschernobyl rückte das Thema Heiße Teilchen wieder in den Blickpunkt öffentlichen und auch wissenschaftlichen Interesses. Seither hat sich eine zunehmende Zahl von Wissenschaftlern mit Fragen zur Morphologie, Zusammensetzung, Struktur, Ausbreitung und Mikroanalytik von Heißen Teilchen befasst. Dabei geht es immer um die Charakterisierung von Heißen Teilchen, die künstlich bei der Kernspaltung von  $^{235}\text{U}$  und  $^{239}\text{Pu}$  geschaffen wurden.

Nun zeigte sich aber bei der Untersuchung industrieller Reststoffe der Erzaufbereitung und -verhüttung (Theisenschlamm des Mansfelder Landes, Tailings der Uranerzaufbereitung von Dänkritz), dass diese diskrete Aktivitätsanreicherungen mit deutlich erhöhter Alphaaktivität in Form von Heißen Teilchen enthalten. Diese inhomogenen Zumischungen von Radionukliden weichen in ihrer Zusammensetzung und Art der Strahlung deutlich von den oben beschriebenen Heißen Teilchen ab. Im Gegensatz zu den künstlich geschaffenen Heißen Teilchen, die überwiegend aus beta- und gammaaktiven Spaltprodukten wie  $^{103}\text{Ru}$ ,  $^{141}\text{Ce}$ ,  $^{95}\text{Zr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  beste-

hen, handelt es sich bei den Heißen Teilchen der industriellen Reststoffe auch um alphaaktive, natürliche Radionuklide, z.B. von Uran. Sie lassen sich offenbar nicht auf künstliche Spaltprozesse zurückführen, sondern sind geogenen Ursprungs. Sie werden im Folgenden als natürliche Heiße Teilchen bezeichnet.

Kenntnisse über die Existenz von Heißen Teilchen in einer zu untersuchenden Probe sind aus dosimetrischen wie biologischen Gründen bedeutsam. Sind Heiße Teilchen in einer Probe vorhanden, führt dies zu einer inhomogenen Verteilung der Radioaktivität. Heiße Teilchen haben eine relativ hohe spezifische Aktivität, die sich deutlich von der umgebenden Probenmatrix unterscheidet. Die Messungen von Radionuklidkonzentrationen in Proben erfolgen generell unter der Annahme einer homogenen Kontamination der Probe. Bei Anwesenheit von Heißen Teilchen ist diese Annahme jedoch falsch. Aus der Nichtbeachtung des Vorhandenseins von Heißen Teilchen in einer Probe resultiert demzufolge eine Fehlinterpretation der Aktivitätskonzentration der Gesamtprobe, die zu einer Über- oder Unterschätzung der Messergebnisse führen kann (TSCHIERSCHE et al. 2000). Dies ist beispielsweise bei der Bewertung von Rückständen mit erhöhter natürlicher Radioaktivität aus Industrie und Bergbau (TENORM) unter Strahlenschutzaspekten bedeutsam.

Eine Kontamination mit Heißen Teilchen sollte auch aus gesundheitlichen Gründen keinesfalls ignoriert werden. Heiße Teilchen können inhaliert oder ingestiert werden, für lange Zeiträume in Tieren oder Menschen verbleiben und hohe lokale Strahlendosen bewirken. Dabei tragen vor allem geladene Teilchen mit kurzen Reichweiten (Alpha- und Betaeteilchen) zur inneren Strahlenbelastung bei, wobei die biologische Wirkung von Alphastrahlung bei gleicher Energiedosis etwa 20-mal größer ist als die der Betastrahlung.

Die potentielle Gefahr, die von radioaktiven Teilchen ausgeht, wird wesentlich von der Korngröße der Partikel bestimmt. Für den Menschen sind vor allem Feinstäube, Partikel einer Korngröße  $<10\ \mu\text{m}$ , bedeutsam. Je kleiner die Teilchen sind, desto größer ist die Wahrscheinlichkeit, dass diese in der besonders sensiblen alveolaren Region des Atemtraktes deponiert werden. Partikel über  $10\ \mu\text{m}$  Teilchengröße kommen kaum über den Kehlkopf hinaus,  $3\text{--}10\ \mu\text{m}$  große Partikel können die Bronchien erreichen, während  $<3\ \mu\text{m}$  große Partikel in die Lungenbläschen eindringen können. Durch die Inhalation von Teilchen mit hoher spezifischer Aktivität werden hohe Dosen in ein begrenztes Volumen absorbiert. Dadurch wird das Gewebe innerhalb der Reichweite von Strahlern, insbesondere Alphastrahlern, ernsthaft beeinträchtigt.

Mit Radionukliden belastete Feinstäube stammen beispielsweise von feinstkörnigen industriellen Reststoffen der Erzaufbereitung (Theisenschlamm des Mansfelder Landes, Tailings der Uranerzaufbereitung), von Kraft- und Fernheizwerken durch die Verbrennung radionuklidhaltiger Kohlen und sie entstehen auch bei der Verwitterung und Gewinnung von Gesteinen, die Radionuklide enthalten.

Ionisierende Strahlung kann biologisches Gewebe und die Makromoleküle der Erbsubstanz schädigen (SIEHL 1996). Für eine Beurteilung des Einflusses von (natürlichen) Heißen Teilchen auf das Ökosystem ist es deshalb wichtig, natürliche Heiße Teilchen in der Umwelt zu erfassen, zu charakterisieren und Informationen über ihr Umweltverhalten zu erlangen.

Bisher besteht ein deutliches Wissensdefizit hinsichtlich der Kontamination von Proben mit natürlichen Heißen Teilchen und es fehlen Informationen bezüglich ihrer Verbreitung, Entstehung, Zusammensetzung, Verhaltensweise in der Umwelt und einer möglichen Gefährdung der menschlichen Gesundheit. Die vorliegende Arbeit trägt diesem Umstand Rechnung. Ziel der Untersuchungen war die Charakterisierung natürlicher Heißer Teilchen. Als natürliches Heißes Teilchen wird dabei ein einzelnes, punktförmiges Teilchen einer Größe im Mikrome-

terbereich definiert, das eine sehr hohe spezifische Alphaaktivität auf sich konzentriert und dessen Existenz nicht auf künstliche Spaltprozesse zurückgeführt werden kann. Dabei wurden nachstehende Fragestellungen verfolgt:

1. **Vorkommen** von natürlichen Heißen Teilchen in der Umwelt. Sind die Vorkommen natürlicher Heißen Teilchen in den untersuchten Reststoffen (Theisenschlamm, Urantailings) eine Ausnahmerecheinung, oder kommen natürliche Heiße Teilchen auch in anderen Reststoffen und Materialien vor?
2. **Herkunft/Entstehung** von natürlichen Heißen Teilchen. Existieren diese Heißen Teilchen seit Urbeginn, gibt es natürliche Phänomene, die deren Bildung nach sich ziehen oder führt erst eine technogene Bearbeitung radionuklidhaltiger Rohstoffe zu ihrer Entstehung? Sind Heiße Teilchen natürlich oder anthropogen bedingt?  
Prüfung, ob sich der Gehalt von natürlichen Heißen Teilchen einer Probe durch Lösungs- und Kristallisationsprozesse beeinflussen lässt.
3. Beschreibung der **Art, Größe** und mineralogischen **Zusammensetzung** der natürlichen Heißen Teilchen.
4. Wie **verhalten** sich diese natürlichen Heißen Teilchen in der Umwelt (mobil, immobil)?
5. Beurteilung der **radioökologischen Relevanz** und Gefährlichkeit der natürlichen Heißen Teilchen.

Zur Klärung dieser Fragen wurde ein breites Spektrum an Proben untersucht, die natürlich vorkommende Radionuklide enthalten oder mit solchen kontaminiert sind. Dazu gehören natürliche Gesteine und Sedimente, Rohstoffe, industrielle Reststoffe sowie Industrieprodukte und Nebenprodukte. Es wurden ausschließlich alphastrahlende Radionuklide betrachtet. Zur exakten Ortsbestimmung der Radionuklide in den Proben wurde unter Nutzung der Technik der Autoradiographie (Festkörperspurdetektoren), eine neue Methode entwickelt. Die stoffliche und strukturelle Charakterisierung der lokalisierten natürlichen Heißen Teilchen erfolgte mit der Methode der Elektronenstrahlmikroskopie.

## 2 Theoretische Grundlagen

### 2.1 Radioaktivität in der Umwelt

#### 2.1.1 Der radioaktive Zerfall

Radioaktivität ist die spontane Umwandlung von Atomkernen (Nukliden) unter Aussendung von Alphateilchen, Betateilchen, Gammastrahlen, Neutronen und Röntgenstrahlung. Dabei wandeln sich chemische Elemente in andere chemische Elemente um, z.B. Uran in Blei. Sie lässt sich im Allgemeinen weder durch Temperatur, Druck oder die Art der chemischen Bindung beeinflussen.

Grund für den Zerfall von Atomkernen ist deren Instabilität aufgrund eines Ungleichgewichts zwischen den Protonen und Neutronen des Kerns oder der Schwere des Kerns. Atomkerne sind nur dann stabil, wenn die Zahl ihrer Bausteine (Protonen und Neutronen) nicht zu groß wird und wenn das Verhältnis von Protonen- zu Neutronenzahl bei den leichten Atomkernen etwa 1:1 und bei den schweren etwa 1:1,5 beträgt (LÖSTER 1991). Sind diese Bedingungen nicht erfüllt, ist der Atomkern instabil und bestrebt, sich in eine günstigere Konfiguration umzuwandeln. Diese Umwandlung führt zur Emission von Teilchen und Energie. Bei Elementen mit Ordnungszahlen  $>83$  gibt es keine stabilen Atomkerne mehr, sie sind radioaktiv (Abb. 1).

Der radioaktive Zerfall trägt statistischen Charakter, der Zerfall eines radioaktiven Kerns erfolgt unabhängig vom Zerfall anderer (AUTORENKOLLEKTIV 1982). Dieser Sachverhalt wird durch das Zerfallsgesetz mit der Halbwertszeit  $T_{1/2}$  als charakteristische Größe beschrieben. Die Halbwertszeiten der Radionuklide variieren in einem Bereich von  $10^{-10}$  s bis  $10^{16}$  a. Die wichtigsten natürlichen Radionuklide sind die Uranisotope  $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$  und  $^{232}\text{Th}$ .

	I		II												III	IV	V	VI	VII	VIII
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16	17	18		
1	1 H																		2 He	
2	3 Li	4 Be											5 B	6 C	7 N	8 O	9 F	10 Ne		
3	11 Na	12 Mg											13 Al	14 Si	15 P	16 S	17 Cl	18 Ar		
4	19 K	20 Ca	21 Sc	22 Ti	23 V	24 Cr	25 Mn	26 Fe	27 Co	28 Ni	29 Cu	30 Zn	31 Ga	32 Ge	33 As	34 Se	35 Br	36 Kr		
5	37 Rb	38 Sr	39 Y	40 Zr	41 Nb	42 Mo	43 Tc	44 Ru	45 Rh	46 Pd	47 Ag	48 Cd	49 In	50 Sn	51 Sb	52 Te	53 I	54 Xe		
6	55 Cs	56 Ba	*	72 Hf	73 Ta	74 W	75 Re	76 Os	77 Ir	78 Pt	79 Au	80 Hg	81 Tl	82 Pb	83 Bi	84 Po	85 At	86 Rn		
7	87 Fr	88 Ra	**	104 Rf	105 Db	106 Sg	107 Bh	108 Hs	109 Mt	110 Ds	111 Rg	112 Uub	113 Uut	114 Uuq	115 Uup	116 Uuh	117 Uus	118 Uuo		

Lanthanoide	*	57 La	58 Ce	59 Pr	60 Nd	61 Pm	62 Sm	63 Eu	64 Gd	65 Tb	66 Dy	67 Ho	68 Er	69 Tm	70 Yb	71 Lu
Actinoide	**	89 Ac	90 Th	91 Pa	92 U	93 Np	94 Pu	95 Am	96 Cm	97 Bk	98 Cf	99 Es	100 Fm	101 Md	102 No	103 Lr

**Abb. 1** Periodensystem der Elemente. Natürliche Radioaktivität findet sich hauptsächlich bei Elementen mit hoher Kernladungszahl (=Ordnungszahl). Das Verhältnis von Protonen zu Neutronen ist für die leichten Atomkerne gleich und steigt zum Ende des Periodensystems allmählich an. Dabei wird ein Stadium erreicht, wo die Atomkerne nicht länger stabil sind. Das schwerste stabile Nuklid ist  $^{209}_{83}\text{Bi}$ . Ab Polonium sind alle Atomsorten instabil.

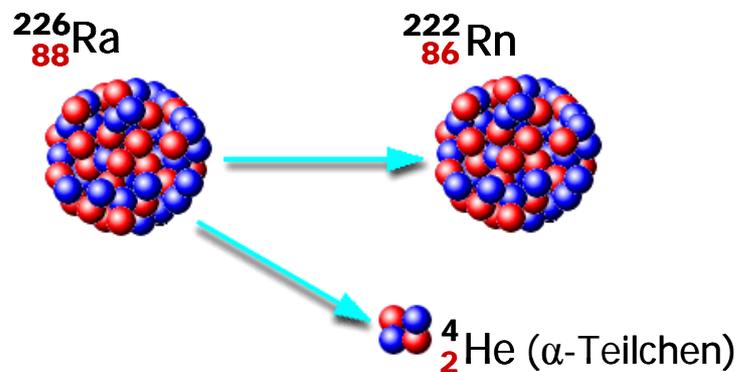
Die blau gekennzeichneten Elemente sind mit Ausnahme von Plutonium künstliche Elemente. Plutonium wird überwiegend künstlich in Brutreaktoren hergestellt, kommt aber in winzigen Mengen auch in der Natur vor.

### 2.1.2 Strahlungsarten

Beim radioaktiven Zerfall können u.a. Alpha-, Beta- und Gammastrahlung auftreten. Sie entstehen durch unterschiedliche Zerfallsarten des Atomkerns. Für diese Arbeit interessiert vor allem die Alphastrahlung, da mit der hier angewandten Methode nur die alphastrahlenden Radionuklide erfasst werden können. Sie wird deshalb etwas ausführlicher behandelt.

Die Aussendung ionisierender Strahlung ist die charakteristischste Eigenschaft radioaktiver Stoffe. Bei ihrem Weg durch die Materie verändert die Strahlung Atome, so dass aus elektrisch neutralen Atomen geladene Ionen werden. Ionisierende Strahlung verliert dabei Energie, bis sie schließlich absorbiert ist. Das Abbremsen der Strahlung ist eine Folge der Energieübertragung von der Strahlung auf Materie. Besonders wirksam bei der Ionisierung von Atomen ist die Alphastrahlung, da sie viel Energie überträgt.

**Alphastrahlung** besteht aus schweren, positiv geladenen Teilchen, den Heliumkernen mit 2 Protonen und 2 Neutronen (Abb. 2), die von Atomen schwerer Elemente wie U, Ra, Rn, Pu emittiert werden. Mit einigen Ausnahmen haben natürlich vorkommende Alphastrahler Ordnungszahlen von mindestens 82 (=Element Blei).



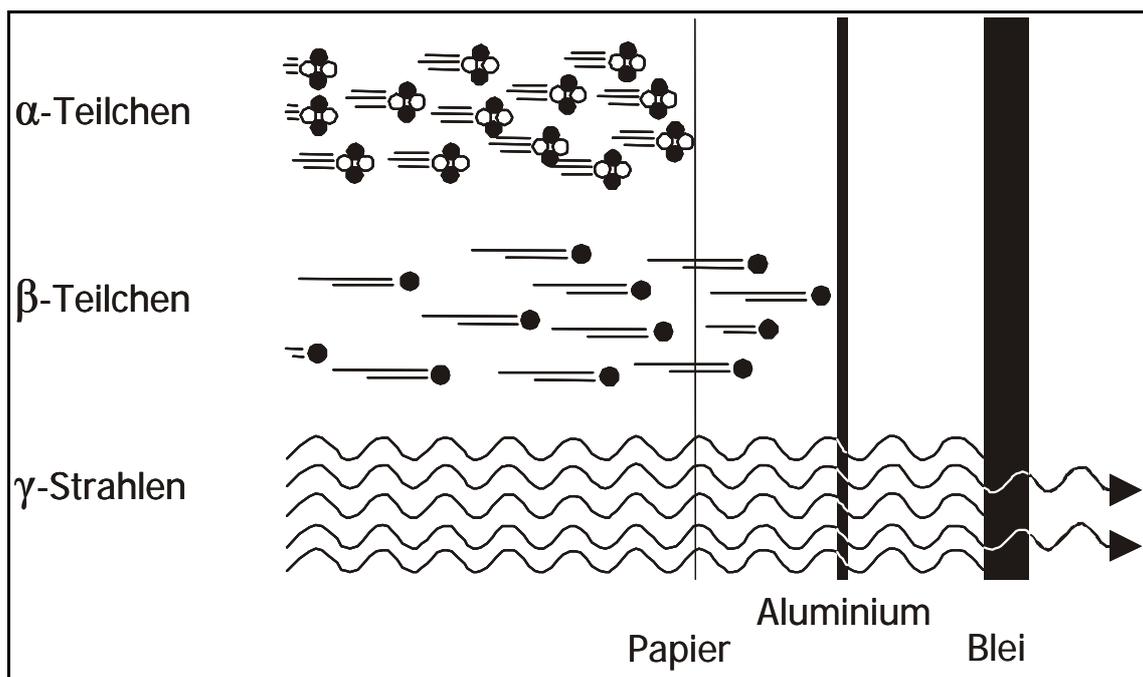
**Abb. 2** Beim Alphazerfall wird ein zweifach positiv geladenes Heliumion (ein Heliumkern) aus dem Atomkern emittiert und dabei die Kernmasse um zwei Protonen und zwei Neutronen verringert.

In der natürlichen Umwelt stammt der größte Teil der Alphateilchen emittierenden Kerne von den Zerfallsreihen von  $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$  und  $^{235}\text{U}$ . Sie sind in unterschiedlichen Anteilen in nahezu allen Gesteinen, Böden und im Wasser enthalten. Vom radiologischen Gesichtspunkt aus sind dabei die Radionuklide  $^{222}\text{Rn}$  und  $^{220}\text{Rn}$  (aus der  $^{238}\text{U}$ - bzw.  $^{232}\text{Th}$ -Zerfallsreihe) am bedeutendsten. Radon - ein Edelgas - kann leicht diffundieren und stellt ein gesundheitliches Risiko dar, wenn es eingeatmet wird (DURRANI & BULL 1987).

Die Masse eines Alphateilchens ist mehr als 7000 Mal größer als die eines Betateilchens. Wegen ihrer großen Masse, wie auch ihrer elektrischen Ladung, bewegen sie sich relativ langsam. In Luft haben sie eine Geschwindigkeit von ca.  $\frac{1}{20}$  Lichtgeschwindigkeit. Von den wichtigsten ionisierenden Strahlungen sind sie die langsamsten. Wegen der Ladung kommt es zu Wechselwirkungen, die zu einem schnellen Energieverlust der Teilchen, besonders in dichten Medien, führen. Alphateilchen ionisieren in Luft auf 1 cm Weglänge ca. 50 000-60 000 Atome, in dichten Medien sind es bedeutend mehr. Die Reichweite von Alphateilchen beträgt in Luft nur wenige Zentimeter. In Wasser oder anderen kompakten Materialien liegt sie nur bei einigen Mikrometern (Tab. 1). Alphateilchen können die meisten Materialien nicht durchdringen. Schon ein Blatt Papier oder die äußere (Horn-)Hautschicht des Körpers sind in der Lage, Alphateilchen zu absorbieren (Abb. 3).

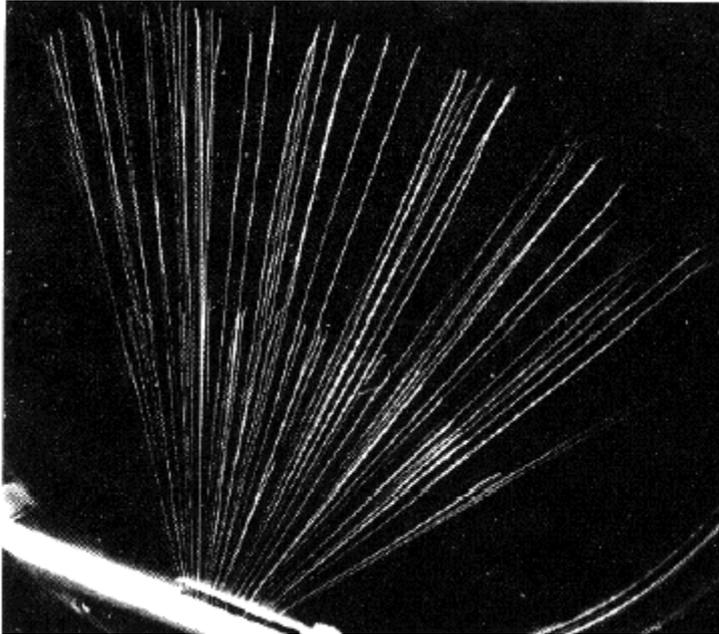
**Tab. 1** Reichweite von Alphateilchen in verschiedenen Materialien. Sie ist abhängig von der Energie der Alphateilchen, die typischerweise zwischen 3 und 8 MeV liegt. Nach VALKOVIĆ (2000) haben beispielsweise die Radionuklide  $^{238}\text{U}$ ,  $^{234}\text{U}$ ,  $^{230}\text{Th}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{222}\text{Rn}$ ,  $^{218}\text{Po}$ ,  $^{214}\text{Po}$  und  $^{210}\text{Po}$  Energien zwischen 4,2 und 7,69 MeV. Die Reichweite von Alphateilchen in Kunststoffen und biologischem Gewebe ist vergleichbar mit der in Wasser.

Alphazerfalls-energie	Reichweite in Luft	Reichweite in Wasser	Reichweite in Aluminium
1 MeV	0,3 cm	4 $\mu\text{m}$	2 $\mu\text{m}$
3 MeV	1,6 cm	16 $\mu\text{m}$	11 $\mu\text{m}$
4 MeV	2,5 cm	31 $\mu\text{m}$	16 $\mu\text{m}$
6 MeV	4,6 cm	56 $\mu\text{m}$	30 $\mu\text{m}$
8 MeV	7,4 cm	91 $\mu\text{m}$	48 $\mu\text{m}$
10 MeV	10,6 cm	130 $\mu\text{m}$	67 $\mu\text{m}$



**Abb. 3** Durchdringungsvermögen ionisierender Strahlung. Alphateilchen können durch Papier, Betateilchen durch ein Metallblech gebremst werden. Gammastrahlen werden durch eine mehrere Zentimeter dicke Bleibarriere oder einen Betonblock absorbiert (VALKOVIĆ 2000).

Alphateilchen einer Quelle sind monoenergetisch, ihre Reichweite und Energie entsprechen einander (Abb. 4).



**Abb. 4** Nebelkammerbild eines Alphastrahlers. Die Alphateilchen haben annähernd die gleiche Reichweite. Die fächerförmig auseinander laufenden Nebelspuren enden ziemlich genau in gleicher Entfernung vom Alphaemitter. Damit ist die Reichweite von Alphateilchen eines bestimmten Alphastrahlers eine charakteristische Konstante.

Die Radiotoxizität ist bei Alphastrahlern sehr hoch, hauptsächlich dann, wenn sie inkorporiert werden. Befindet sich die radioaktive Quelle außerhalb des Körpers, dann lässt sich die  $\alpha$ -Strahlung mit einfachen Mitteln sehr effizient absorbieren. Gelangen Alphateilchen jedoch in den Körper, beispielsweise durch Inhalation radioaktiv belasteter Schwebstaubteilchen, deponieren sie ihre gesamte Energie in den umliegenden Zellen, und bewirken so intern hohe lokale Strahlendosen. Dadurch kann empfindliches Gewebe, das nicht wie die Haut durch eine Epidermis geschützt ist, geschädigt und das Krebsrisiko erhöht werden. Dabei werden im Besonderen inhalierte Alphateilchen als Verursacher von Lungenkrebs angesehen.

Die positive Ladung von Alphateilchen ist für verschiedene Einsatzgebiete nützlich.  $^{210}\text{Po}$  wird zur Verhinderung statischer Aufladungen in Papiermühlen und anderen Industrien genutzt. Wegen ihrer positiven Ladung ziehen Alphateilchen freie Elektronen an und reduzieren so die elektrische Ladung. Rauchmelder nutzen z.T. Alphaemitter (z.B. Americium-241) zur Erzeugung eines elektrischen Stroms. Für die Therapie von Morbus Bechterew, einer entzündlich-rheumatischen Erkrankung verschiedener Gelenke, wird der Alphastrahler  $^{224}\text{Ra}$ -Radiumchlorid genutzt.

**Betastrahlung** besteht aus Elektronen und Neutrinos ( $\beta^-$ -Zerfall) oder Positronen und Antineutrinos ( $\beta^+$ -Zerfall) (AUTORENKOLLEKTIV 1982). Der  $\beta^-$ -Zerfall tritt bei Kernen mit Neutronenüberschuss auf. Hier wandelt sich ein Neutron unter Aussendung eines Elektrons in ein Proton um. Der  $\beta^+$ -Zerfall kommt bei Kernen mit Neutronenmangel vor. Dabei wird ein Proton unter Aussendung eines Positrons in ein Neutron umgewandelt (<http://de.wikipedia.org/wiki/Betazerfall>). Betateilchen sind viel kleiner als Alphateilchen und haben dadurch ein größeres Durchdringungsvermögen. Das Ionisierungsvermögen von  $\beta$ -Teilchen in Luft ist gering. Es beträgt nur 50 Ionenpaare pro cm Weglänge. Dementsprechend größer ist gegenüber der Alphastrahlung die Reichweite in Luft. Betateilchen können durch eine Metallfolie, durch Fensterglas und normale Kleidung gestoppt werden und durchdringen normalerweise nur die oberste Hautschicht (Abb. 3). Allerdings kann es auf nackter Haut zu intensiven

Verbrennungen und daraus resultierenden Spätfolgen wie Hautkrebs kommen. Gelangen Betastrahler in den Körper, sind hohe Strahlenbelastungen in der Umgebung des Strahlers die Folge.

**Gammastrahlung** ist eine kurzwellige elektromagnetische Strahlung aus dem Kern, in deren Folge der Kern aus einem angeregten Zustand in den Grundzustand oder in einen Zustand geringerer Anregung übergeht. Anders als  $\alpha$ - und  $\beta$ -Teilchen sind  $\gamma$ -Quanten elektrisch neutral. Gammastrahlung kann als Folge eines Alpha- oder Betazerfalls sowie nach Anregung durch äußere Elementarteilchen entstehen (AUTORENKOLLEKTIV 1982). Die Reichweite von Gammastrahlung in der Luft ist groß, ebenso ihr Durchdringungsvermögen. Abhängig von ihrer Energie können Gammastrahlen den menschlichen Körper völlig durchdringen. Durch ihre besonders hohe Energie können die Haut oder inneres Gewebe stark geschädigt werden. Wegen ihres guten Durchdringungsvermögens wird die Gammastrahlung aber z.B. auch in der Strahlentherapie (insbesondere bei der Heilung bösartiger Geschwülste) genutzt. Zur Abschirmung der Gammastrahlung werden deutlich dichtere Materialien als bei Alpha- und Betastrahlung benötigt, z. B. Blei oder Zement (Abb. 3).

Die Eigenschaften der oben beschriebenen Strahlungsarten sind in Tab. 2 zusammengefasst. Entscheidend für die biologische Wirksamkeit von ionisierender Strahlung ist neben der Art der Strahlung, der Einwirkungsdauer, der übertragenen Energie, der Art des bestrahlten Körperteils (Gewebe von Lunge und Schilddrüse sind beispielsweise strahlenempfindlicher als Muskelgewebe), ob der Körper von außen (externe Strahlenexposition) oder von innen (interne Strahlenexposition) bestrahlt wird. Bei der externen Strahlenexposition spielt nur die Gammastrahlung wegen ihrer großen Durchdringungsfähigkeit eine Rolle. Bei inkorporierten radioaktiven Stoffen, die mit der Atemluft, der Nahrung oder über Verletzungen in den Körper gelangen, spielen vor allem Alpha- und Betastrahlen eine Rolle. Wegen ihrer geringen Reichweite und des geringen Durchdringungsvermögens können sie nicht - wie die Gammastrahlen - den Körper wieder verlassen. Sie lagern ihre gesamte Energie in der unmittelbaren Umgebung ab, wo sie strahlenempfindliches Gewebe oder Organe schädigen können.

**Tab. 2** Vergleich der Eigenschaften von  $\alpha$ -,  $\beta$ - und  $\gamma$ -Strahlung. Nach ATKINS & DE PAULA (2002), verändert.

Eigenschaft	$\alpha$ -Strahlung	$\beta$ -Strahlung	$\gamma$ -Strahlung
Ladung	$2e$	$\pm e$	0
Teilchen	${}^4\text{He}$ -Kerne $\alpha$ -Teilchen	Elektronen ( $\beta^-$ ) Positronen ( $\beta^+$ )	Photonen
physikalische Eigenschaften	positive Ladung große Masse	positive oder negative Ladung, kleine Masse	keine Ladung keine Masse
Durchdringungsvermögen	klein	mittel	groß
Reichweite in Luft	einige cm	einige m	unendlich
Ausbreitungsgeschwindigkeit	$\sim 0,05c$	bis $0,99c$	$c$
relatives Ionisationsvermögen	$1,8 \cdot 10^4$	$10^2$	1
Spektren	diskret	kontinuierlich	diskret
typische Energie	5 MeV	1 MeV	1 MeV

### 2.1.3 Radionuklide

Als Radionuklide bezeichnet man instabile Atome, die sich unter Aussendung von ionisierender Teilchen- und Wellenstrahlung in stabile Tochternuklide umwandeln können. In der Natur kommen ca. 70 Radionuklide in messbaren Konzentrationen vor, davon gehören 45 zu den Umwandlungsreihen der langlebigen Mutternuklide  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$  (SIEHL 1996). Zur natürlichen Strahlenexposition des Menschen tragen nur wenige Radionuklide bei.

Die langlebigen natürlichen Radionuklide  $^{40}\text{K}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$  und  $^{232}\text{Th}$  mit ihren Zerfallsprodukten existieren seit der Entstehung der Erde vor ca. 4,6 Ga und sind aufgrund ihrer langen Halbwertszeiten bisher nicht vollständig zerfallen. Man bezeichnet sie als **primordiale Radionuklide** (Tab. 3). Daneben gibt es eine Gruppe natürlich vorkommender Radionuklide mit kürzeren Halbwertszeiten, die aber ständig durch die kosmische Strahlung nachgebildet werden (z.B.  $^{14}\text{C}$ ,  $^3\text{H}$ ). Man bezeichnet sie als **kosmogene Radionuklide** (Tab. 3). Für diese Arbeit spielen sie keine besondere Rolle, da es sich vorwiegend um Beta- und Gammastrahler handelt.

**Tab. 3** Die häufigsten primordialen und kosmogenen Radionuklide. Nach SIEHL (1996), verändert. ec=electron capture/Elektroneneinfang.

Radionuklid	Halbwertszeit	Töchter und Zerfallsart	Anteil am Element (%)
<b>Primordiale Radionuklide</b>			
$^{40}\text{K}$	1,28 Ga	$^{40}\text{Ca}$ ( $\beta^-$ ), $^{40}\text{Ar}$ (ec)	0,012
$^{87}\text{Rb}$	48 Ga	$^{87}\text{Sr}$ ( $\beta^-$ )	27,8
$^{138}\text{La}$	106 Ga	$^{138}\text{Ce}$ ( $\beta^-$ ), $^{138}\text{Ba}$ (ec)	0,09
$^{147}\text{Sm}$	106 Ga	$^{143}\text{Nd}$ ( $\alpha$ )	15
$^{176}\text{Lu}$	36 Ga	$^{176}\text{Hf}$ ( $\beta^-$ )	2,6
$^{187}\text{Re}$	46 Ga	$^{187}\text{Os}$ ( $\alpha$ )	62,6
$^{232}\text{Th}$	14,1 Ga	Zerfallsreihe, $^{208}\text{Pb}$ ( $\alpha$ , $\beta^-$ )	100
$^{235}\text{U}$	0,704 Ga	Zerfallsreihe, $^{207}\text{Pb}$ ( $\alpha$ , $\beta^-$ )	0,72
$^{238}\text{U}$	4,47 Ga	Zerfallsreihe, $^{206}\text{Pb}$ ( $\alpha$ , $\beta^-$ )	99,28
<b>Kosmogene Radionuklide</b>			
$^3\text{H}$	12,3 a	$^3\text{He}$ ( $\beta^-$ )	$10^{-14}$
$^7\text{Be}$	53 d	$^7\text{Li}$ ( $\beta^-$ )	
$^{10}\text{Be}$	1,6 Ma	$^{10}\text{B}$ ( $\beta^-$ )	$10^{-7}$
$^{14}\text{C}$	5730 a	$^{14}\text{N}$ ( $\beta^-$ )	$10^{-10}$
$^{22}\text{Na}$	2,6 a	$^{22}\text{Ne}$ (ec)	
$^{26}\text{Al}$	0,72 Ma	$^{26}\text{Mg}$ (ec)	$10^{-10}$
$^{32}\text{Si}$	104 a	$^{32}\text{S}$ ( $\beta^-$ , via $^{32}\text{P}$ )	$10^{-12}$
$^{36}\text{Cl}$	0,30 Ma	$^{36}\text{Ar}$ ( $\beta^-$ )	$10^{-9}$

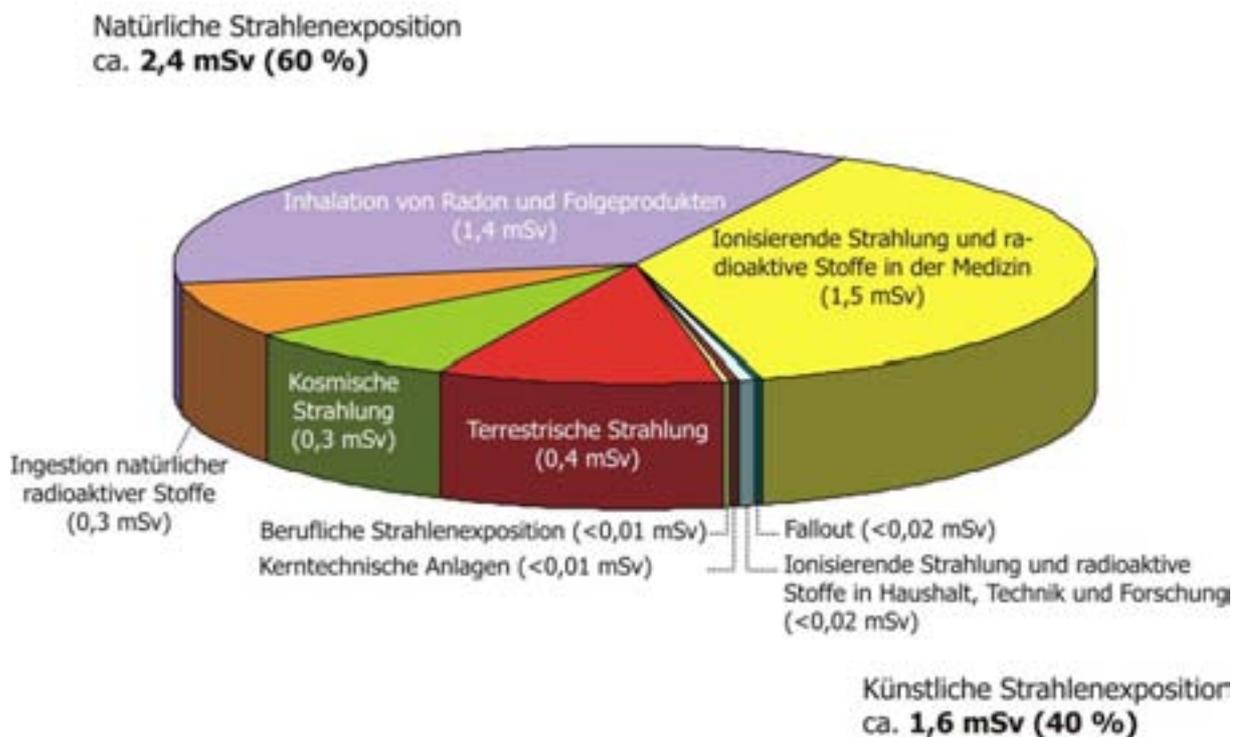
Messgröße für den Gehalt an Radionukliden ist die spezifische Aktivität von Materialien (KEMSKI et al. 1996). Dabei ist die spezifische Aktivität die auf eine Masse oder ein Volumen bezogene Zahl radioaktiver Zerfälle pro Zeiteinheit mit der Einheit Bq/kg bzw. Bq/m<sup>3</sup>.

Zu den natürlichen langlebigen Radionukliden, die im Hinblick auf diese Arbeit von besonderem Interesse sind, gehören die Isotope von Uran und Thorium. Für sie gelten folgende Umrechnungen:

1 ppm U (in natürlicher Isotopenzusammensetzung)	≈25,4 Bq/kg
1 ppm $^{238}\text{U}$	≈12,4 Bq/kg
1 ppm $^{232}\text{Th}$	≈4,1 Bq/kg

### 2.1.4 Strahlenexposition

Die Einwirkung ionisierender Strahlung auf den menschlichen Körper wird als Strahlenexposition oder Strahlenbelastung bezeichnet.



**Abb. 5** Zusammensetzung der jährlichen Strahlenbelastung (natürliche und künstliche Strahlenquellen) der Bevölkerung in Deutschland. Sie beträgt insgesamt ca. 4 mSv/a. Nach [www.kernenergie-wissen.de](http://www.kernenergie-wissen.de), verändert.

Zur Quantifizierung der Strahlenwirkung wird der Begriff Dosis verwendet. Als **Energiedosis D** bezeichnet man die Energiemenge, die von einer bestimmten Materiemenge durch Absorption der Strahlung aufgenommen wird. Sie hat die Maßeinheit Gray (Gy).

Da verschiedene Strahlungsarten bei gleicher Energiemenge im Körpergewebe unterschiedliche biologische Wirkungen haben, reicht die Angabe der Energiedosis nicht aus, um die Wirkung der Strahlung auf den menschlichen Körper zu beschreiben (<http://de.wikipedia.org>). Diese biologischen Wirksamkeiten werden durch Wichtungsfaktoren berücksichtigt. Das Produkt aus Energiedosis D und Wichtungsfaktor ( $\omega_r$ ) heißt **Äquivalentdosis H** ( $H = \omega_r \cdot D$ ). Sie hat die Einheit *Sievert (Sv)*, nach dem schwedischen Physiker und Mediziner Rolf Sievert. Die Angabe erfolgt üblicherweise in mSv.

Wegen der unterschiedlichen Strahlenempfindlichkeit der Organe und Gewebe, z.B. der geringeren Empfindlichkeit der Haut gegenüber inneren Organen wie der Lunge, wurde der Begriff **effektive Dosis** eingeführt (Einheit: Sievert). Die effektive Dosis wichtet die Äquivalentdosis anhand der Strahlenempfindlichkeit des Gewebes.

Je nach Strahlenquelle wird zwischen natürlicher und künstlicher (zivilisatorischer) Strahlenexposition unterschieden. Die natürliche Strahlenexposition wird durch die kosmische und terrestrische Strahlung sowie durch die Einwirkung des überall vorkommenden radioaktiven Edelgases Radon, die zivilisatorische durch medizinische Anwendungen (Röntgenstrahlen, Nuklearmedizin) sowie durch Forschung oder industrielle Anwendungen (z.B. Kernkraftwerke) bedingt (Abb. 5).

Die durchschnittliche jährliche Strahlenbelastung des Menschen aus natürlichen Quellen beträgt in Deutschland ca. 2,4 mSv (SIEHL 1996). Sie besteht zu ca. 70% aus interner und zu ca. 30% aus externer Exposition. Zur externen Strahlenexposition liefert die Höhenstrahlung fast die Hälfte.  $^{40}\text{K}$  trägt ca. 12 % zur natürlichen Strahlenbelastung des Menschen bei. Es ist beispielsweise in Milch enthalten und wird in das menschliche Gewebe, insbesondere die Muskulatur, eingelagert. Daneben stammt die innere natürliche Strahlenexposition im Wesentlichen von inhalierten Radontöchtern und inkorporiertem  $^{226}\text{Ra}$  (PHILIPSBORN & GEIPEL 2003).

Die Strahlenexposition unterliegt starken regionalen Schwankungen. Die Intensität der Umgebungs- oder Hintergrundstrahlung hängt von der Höhenlage, der Zusammensetzung des Untergrundes und des Baumaterials, der Jahreszeit, dem Breitengrad und auch von Wetterbedingungen wie Regen, Schnee, Hochdruck, Niederdruck und Windrichtung ab. Sie kann sich durch die geologischen Gegebenheiten des Untergrundes um ein vielfaches erhöhen, beispielsweise in einigen Gebieten an der Atlantikküste Brasiliens, wo radioaktive monazithaltige Strandsande vorkommen. Hier liegt die Strahlenbelastung durch den geologischen Untergrund (terrestrische Strahlung) durchschnittlich bei ca. 8 mSv/a, kann aber auf 200 mSv/a ansteigen. Im Vergleich dazu, beträgt sie in Deutschland durchschnittlich 0,4 mSv/a.

## 2.2 Uran und Thorium in der Natur

### 2.2.1 Uran

Uran ist das schwerste, in wägbaren Mengen natürlich vorkommende Element und das schwerste in der Natur vorkommende Metall. Es ist trotz der hohen Ordnungszahl ( $Z = 92$ ) kein seltenes Element und ähnlich wie Thorium in der Lithosphäre weit verbreitet (MEINRATH et al. 2003). Seine Häufigkeit übertrifft die von Gold und Silber, es ist etwas häufiger als Arsen, Molybdän, Wolfram oder Zinn, jedoch viel weniger häufig als Blei, Zink, Kupfer oder Nickel. Uran ist ein silberweißes, duktiles und schwach paramagnetisches Metall. Fein gemahlen ist es selbstentzündlich und reagiert mit Wasser. Es ist etwas weicher als Stahl. Metallisches Uran ist sehr instabil. An Luft oxidiert es sehr leicht und wird von einer Oxidschicht überzogen. In den meisten Böden, Sedimenten und aquatischen Systemen oxidiert es sehr schnell zu U(VI) (MEINRATH et al. 2003). Deshalb kommt Uran in der Natur hauptsächlich in oxidiert Form vor.

Der durchschnittliche Urangehalt in der Erdkruste liegt bei 2,7 mg/kg, wobei man die höchsten Urankonzentrationen in kontinentalen Gesteinstypen findet. Uran kommt in zahlreichen Mineralen vor. Allerdings haben von den ca. 200 bekannten Uranmineralen nur 10 eine wirtschaftliche Bedeutung. In Erzen kommt es als Uraninit ( $\text{UO}_2$ ), Pechblende ( $\text{UO}_2 - \text{U}_3\text{O}_8$ ) oder als Sekundärmineral (Uranoxid, Uransilikat, Uranphosphat, Uranvanadat) vor. Sulfidische Mineralphasen sind von Uran nicht bekannt. Wichtige Uranminerale sind Uraninit ( $\text{UO}_2 - \text{UO}_3$ ) mit der Varietät Pechblende (meist  $\text{U}_3\text{O}_8$ ), Coffinit (ein Silikat:  $\text{USiO}_4$ ), Autunit (ein Phosphat, auch als Uranglimmer bezeichnet:  $(\text{Ca} [\text{UO}_2]_2[\text{PO}_4]_2 \cdot 10\text{H}_2\text{O}))$ ), Carnotit (ein Vanadat:  $(\text{K}_2[\text{UO}_2]_2[\text{VO}_4]_2 \cdot 3\text{H}_2\text{O}))$ ). Lokal können hohe Urankonzentrationen erreicht werden, z.B. in Lignit (Braun- und Steinkohlen), Phosphatgesteinen und phosphatischen Düngemitteln.

Uran tritt in der Natur vorwiegend in vier- und sechswertiger Form auf. Alle primären Uranminerale enthalten vierwertiges Uran, welches unter normalen pH-/Eh-Bedingungen sehr schwer löslich ist (MERKEL & HELING 1999). Zu den primären Uranmineralen gehören beispielsweise Uraninit ( $\text{UO}_2$ ), Coffinit ( $\text{USiO}_4$ ) und Brannerit ( $\text{UTi}_2\text{O}_6$ ). Der wesentliche Schritt der Verwitterung dieser primären Uranerze und der Mobilisierung des Urans ist die Oxidation. Das dabei gebildete, leicht lösliche sechswertige Uran liegt als  $\text{UO}_2^{2+}$ -Ion (Uranyl-Ion) vor. Es hat eine ausgeprägte Tendenz, mit anderen Ionen in wässrigen Lösungen Komplexe zu bilden. Infolgedessen ist Uran ein ubiquitäres (Spuren-)Element in der Hydrosphäre. Je nach geochemischem Milieu dominieren unterschiedliche Komplexe, z. B. Phosphat- oder Carbonatkomplexe. Da das Uranyl-Ion hantelförmig gebaut ist, passt es in kein anderes Kristallgitter. Deswegen bilden sich eigene Uranylminerale, von denen ca. 100 Stück bekannt sind. Sie zeichnen sich oft durch grelle, meist gelbe Farben aus. Bei Anwesenheit von Phosphat, Vanadat, Arsenat oder Silikat werden sehr stabile Orthophosphat-, Orthovanadat-, Orthoarsenat- oder Silikatverbindungen von hexavalentem Uran gebildet. Am häufigsten sind die so genannten Uranglimmer - eigentlich Phosphate - z.B. Autunit und Torbernit. Das häufigste hexavalente Uranmineral ist nach HOSTETLER & GARRELS (1962) Uranophan ( $\text{Ca} (\text{UO}_2)_2(\text{SiO}_3\text{OH})_2 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$ ).

Uran ist ähnlich wie Thorium wegen seines großen Ionenradius ein geochemisch inkompatibles Element. In den wichtigsten gesteinsbildenden Mineralen ist es deshalb nur in geringen Konzentrationen (wenige ppm) enthalten. Während der Magmendifferentiation reichert sich Uran in der fluiden Phase an und wird bevorzugt in Minerale der spätmagmatischen und pegmatitischen Kristallisation eingebaut. In solchen akzessorischen Mineralen wie Apatit, Zirkon oder Monazit können die Gehalte mehr als 1000 ppm betragen (KEMSKI et al. 1996). Während

Uran im Gitter dieser Akzessorien sitzt, sind die Uran-Gehalte in den gesteinsbildenden Mineralen nicht auf einen isomorphen Ersatz im Kristallgitter zurückzuführen. Uran ist hier meist entlang von Rissen und Korngrenzen konzentriert. Die Löslichkeit aus dem Gesteinsverband hängt von der Bindungsform und Mineralisation des Urans ab. Aus löslichen Mineralen oder aus den äußersten Mineralkornlagen kann es leicht entfernt werden, während es in verwitterungsresistenten Mineralen wie z.B. Zirkon verbleibt. Einmal in wässrige Lösung gelangt, wird Uran hauptsächlich in Form von Uranylkomplexen transportiert, die eine bedeutende Rolle bei der Verfrachtung des Urans während der Verwitterung spielen. Urananreicherungen sind meist auf chemisch bedingte Ausfällung aus wässrigen Lösungen durch Wechsel von oxidierendem (gut lösliches  $U^{6+}$ ) zu reduzierendem (schwer lösliches  $U^{4+}$ ) Milieu, Änderung des pH-Wertes oder der Temperatur zurückzuführen. Durch ihre Größe und hohe Ladung wird die Adsorption von  $U^{4+}$ - und  $U^{6+}$ -Ionen begünstigt. Hohe Adsorptionskapazitäten haben organische Stoffe (Kohlenwasserstoffverbindungen, inkohltes Pflanzenmaterial), Eisen-, Mangan- und Aluminium-Hydroxidgel, Kieselsäuregele, Tonminerale und Phosphate (BOYLE 1982; KLINGEL et al. 1995). Sie sind die Ursache für die Radioaktivität beispielsweise in Düngemitteln mit Rohphosphaten (PHILIPSBORN & GEIPEL 2003).

Uran wird in natürliche aquatische Systeme durch die Verwitterung der Gesteine und durch phosphatische Düngemittel eingetragen. Wegen der starken Tendenz von Uran, mobil zu sein, z.B. durch die Bildung von Karbonat- und Phosphatkomplexen, kann der Urangehalt in aquatischen Systemen stark schwanken. Wegen seiner Anwesenheit in Böden, Gesteinen und Grundwasser sowie Pflanzen, Luft und Tieren kommt Uran in Spuren auch in zahlreichen Speisen und Trinkwasser vor.

In Sachsen und Thüringen hat die über 40 Jahre andauernde Gewinnung und Verarbeitung von Uranerzen durch die SDAG Wismut zu erheblichen Umweltbelastungen durch die Emissionen von natürlichen Radionukliden und anderen Kontaminanten geführt (OHLENDORF 2000). Die untertägig gewonnenen Uranerze unterlagen verschiedenen Aufbereitungsprozessen. Der dominierende Prozess war die Laugung der Uranerze in den Aufbereitungsbetrieben. Hierbei erfolgt eine chemische Behandlung des zerkleinerten Erzes. Abfallprodukt ist das gelaugte vermahlene Gestein. Diese Laugungsrückstände, auch als Tailings bezeichnet, enthalten über ein Dutzend Radionuklide, die alle sehr gefährlich für lebende Materie sind. Die bedeutendsten sind  $^{230}\text{Th}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{222}\text{Rn}$  (Radongas) und die Radontöchter einschließlich  $^{210}\text{Po}$ . Bleiben solche Tailings unverwahrt an der Oberfläche liegen, können sie durch Wind ausgeblasen oder durch fließendes Wasser ausgewaschen werden und so zu einer Kontamination nicht nur in der Umgebung, sondern auch weit weg vom Tailingsstandort führen. Dabei ist der Expositionspfad Wasser wie für alle Altlasten des Bergbaus auch bei den Altlasten des Uranbergbaus von besonderer Bedeutung (MERKEL & HELING 1999).

### 2.2.2 Uranisotope

Die natürlich vorkommenden Isotope von Uran haben die Massen 238, 235 und 234. Sie sind alle radioaktiv. Uran kommt in der Natur als Isotopengemisch von 99,275 %  $^{238}\text{U}$ , 0,720 %  $^{235}\text{U}$  und 0,005 %  $^{234}\text{U}$  vor.  $^{235}\text{U}$  und  $^{238}\text{U}$  sind primordiale Nuklide,  $^{234}\text{U}$  ist ein Zerfallsprodukt von  $^{238}\text{U}$ .

Das häufigste natürlich vorkommende Uranisotop  $^{238}\text{U}$  hat die größte Halbwertszeit und demzufolge auch die niedrigste spezifische Aktivität. Wegen seiner höheren spezifischen Aktivität trägt  $^{234}\text{U}$  mehr als  $^{238}\text{U}$  zur Radioaktivität natürlichen Urans bei, obwohl der Masseanteil an diesem Isotop extrem klein ist.

Alle natürlichen Uranisotope emittieren Alphapartikel. In der Natur ist Uran im Gleichgewicht mit den Töchtern der Zerfallskette. Deshalb liefert natürliches Uran zusammen mit seinen Töchtern 4-5 Mal mehr Zerfälle pro Sekunde als reines Uran. Wenn Uran vom Erz separiert wird, wird die Zerfallskette unterbrochen und nur  $^{234}\text{Th}$  und  $^{234}\text{Pa}$  erreichen innerhalb eines Jahres ein Gleichgewicht mit  $^{238}\text{U}$ . Sie sind die größten Radioaktivitätsemitter bei reinem Uran. Die verbleibenden Mitglieder der Zerfallskette, die  $^{234}\text{U}$  folgen, brauchen tausende von Jahren um ihr Gleichgewicht zu erreichen und können vernachlässigt werden (MEINRATH et al. 2003).

$^{238}\text{U}$  wie auch  $^{232}\text{Th}$  sind die Mutternuklide für zwei natürlich vorkommende radioaktive Zerfallsketten, welche durch eine Serie radioaktiver Zerfälle die Bildung einer Anzahl von Radionukliden (Töchtern) zulassen. Die stabilen Endglieder dieser Zerfallsreihe sind  $^{206}\text{Pb}$  bzw.  $^{208}\text{Pb}$ . Von besonderem Interesse sind die Gase Radon ( $^{222}\text{Rn}$ ) und Thoron ( $^{220}\text{Rn}$ ), die als Töchter von Uran und Thorium in Gesteinen und Böden gebildet werden. Sie gelangen aus dem Boden in die Atmosphäre, wo sie zerfallen und Isotope von Polonium, Wismut und Blei als Töchter bilden. Diese verbleiben entweder in der Luft bis sie zerfallen, oder aber sie werden durch Niederschlag oder Diffusion wieder im Boden abgelagert (VALKOVIĆ 2000).  $^{222}\text{Rn}$  und seine Töchter liefern den größten Einzelbeitrag zur menschlichen Strahlenexposition aller natürlichen und künstlichen radioaktiven Quellen (UNSCEAR 1977).

Die  $^{238}\text{U}$  (Uran-Radium-) -Zerfallsreihe (Tab. 4) umfasst 11 eigenständige Zerfallsschritte bis zum stabilen Blei. Während des Zerfalls emittiert jedes Nuklid eine charakteristische Strahlung. Der Zerfall resultiert in der Aussendung von Alphateilchen, Betateilchen und Gammastrahlen. Die Strahlung kann eine Energie oder aber eine Mischung verschiedener Energien umfassen. Die Mehrzahl der Nuklide dieser Zerfallsreihe haben kurze Halbwertszeiten. Nur 5 Nuklide haben Halbwertszeiten über einem Jahr:  $^{238}\text{U}$ ,  $^{234}\text{U}$ ,  $^{230}\text{Th}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ ; sie sind in Tab. 4 rot gekennzeichnet. Von den übrigen Nukliden haben nur 3 eine Halbwertszeit größer als 30 Minuten:  $^{222}\text{Rn}$ ,  $^{210}\text{Bi}$ ,  $^{210}\text{Po}$ . Es gibt 8 Nuklide die hauptsächlich durch Alphaemission zerfallen:  $^{238}\text{U}$ ,  $^{234}\text{U}$ ,  $^{230}\text{Th}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{222}\text{Rn}$ ,  $^{218}\text{Po}$ ,  $^{214}\text{Po}$ ,  $^{210}\text{Po}$ . Diese Emissionen sind entweder reine Alphaemissionen oder werden von nur unbedeutenden Mengen an Gammastrahlung begleitet (VALKOVIĆ 2000). Jedes Nuklid emittiert Alphateilchen einer einzigen, ganz bestimmten Energie. Im Hinblick auf ihre potentielle radiologische Gefährlichkeit werden oben genannte Alphaemitter in 5 langlebige Alphaemitter ( $^{238}\text{U}$ ,  $^{234}\text{U}$ ,  $^{230}\text{Th}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{210}\text{Po}$ ) und Radon und seine beiden kurzlebigen Töchter ( $^{222}\text{Rn}$ ,  $^{218}\text{Po}$ ,  $^{214}\text{Po}$ ) eingeteilt. Der Beitrag der anderen Alphaemitter der  $^{238}\text{U}$ -Zerfallsreihe ist winzig und bezüglich der Gefährlichkeitsabschätzung nicht signifikant (VALKOVIĆ 2000).

### 2.2.3 Thorium

Thorium ist ein radioaktives, silberweißes und relativ weiches Schwermetall. Das zweite Element aus der Reihe der Actinoide ist ein relativ unedles Metall, das an der Luft sofort anläuft. In fein gemahlenem Zustand ist Thorium spontan entzündlich. Das Metall steht in der Elementhäufigkeit an 40. Stelle. Der durchschnittliche Thoriumgehalt der Erdkruste liegt bei 8,5 ppm. Thorium ist damit ca. 3-mal häufiger als Uran. Es kommt häufig in Blei- oder Uranmineralen vor. Wichtigstes Thoriumerz ist Monazit, ein Phosphat der Seltenen Erden mit der chemischen Formel  $\text{CePO}_4$ . Es ist auch das wichtigste Erz zur Gewinnung der Metalle der Seltenen Erden (Cer, Lanthan, Neodym, Praseodym und Spuren anderer Seltener Erden). Monazit kann bis zu 20 Gew.-% radioaktives Thoriumoxid ( $\text{ThO}_2$ ) und bis zu 1 Gew.-% Uranoxid ( $\text{UO}_2$ ) enthalten, ebenso deren Zerfallsprodukte Blei (Pb) und Helium (He). Als Monazitsand bildet es Lagerstätten in Fluss- und Küstensanden (so genannte Seifen-Lagerstätten), beispielsweise in Brasilien die Monazitsande an der Atlantik-Küste. Hier wur-

den 3 Küstenstädte auf Monazitsand gebaut. Aufgrund der Monazitanreicherungen kommt es in diesen Gebieten zu außergewöhnlich hohen Ortsdosisleistungen (vgl. auch Kap. 2.1.4 Strahlenexposition).

Thorium ist ein geochemisch immobiles Element mit lithophilem Charakter. Der große Ionenradius und die Valenz (Oxidationsstufen +2 bis +4, geochemisch ist aber nur +4 von Bedeutung) haben zur Folge, dass Thorium in den Hauptmineralen nur in Spurengehalten von einigen wenigen ppm vorkommt (KEMSKI et al. 1996). Da Thorium und Uran ähnliche Ionenradien haben, wird der wechselseitige Ersatz dieser beiden Elemente in den Kristallgittern der Wirtsminerale begünstigt. Thorium kann auch Zirkonium und Cer ersetzen, weshalb in Mineralen wie Monazit mehrere Prozent Thorium enthalten sein können. Im magmatischen Zyklus reichert sich Thorium im Laufe der Differentiation an, da es aufgrund seiner Größe in kein Kristallgitter passt. Es wird vor allem in Mineralen der Spätkristallisation eingebaut. In natürlichen Wässern ist Thorium sehr schwer löslich und dadurch nur wenig mobil. Eine Verlagerung von Thorium findet durch den Transport in Suspension durch feinkörnigen Gesteinsdetritus statt. Hohe Thorium-Gehalte in Bauxiten, Bentoniten und pelagischen Tönen erklären sich aus der guten Adsorptionsfähigkeit von Thorium an Tonmineralen, Oxiden und Hydroxiden sowie organischen Materialien.

In der Thorium-Zerfallsreihe (Tab. 5) zerfällt  $^{232}\text{Th}$  über 9 radioaktive Töchter zu stabilem  $^{208}\text{Pb}$ . Die Halbwertszeiten dieser Töchter liegen alle unter sieben Jahre.  $^{228}\text{Th}$  und  $^{228}\text{Ra}$  haben Halbwertszeiten, die bei 1,9 bzw. 6 Jahren liegen. Die Halbwertszeiten der anderen Töchternuclide liegen dagegen im Bereich von Nanosekunden bis 10 Stunden. Sieben der Radionuklide zerfallen hauptsächlich durch die Aussendung von Alphateilchen. Die bedeutendsten langlebigen Alphaemitter sind  $^{232}\text{Th}$  und  $^{228}\text{Th}$ .

Der Zerfall des Gases  $^{220}\text{Rn}$  (Thoron) erzeugt eine Anzahl kurzlebiger Alphaemitter von radiologischer Bedeutung:  $^{216}\text{Po}$ ,  $^{212}\text{Bi}$  und  $^{212}\text{Po}$ .

Die meisten der Alphaemitter der  $^{232}\text{Th}$ -Zerfallsreihe sind reine Alphaemitter oder senden nur einen geringen Anteil von Gammastrahlen aus (VALKOVIĆ 2000).

**Tab. 4** Die Uran-Radium-Zerfallsreihe. Nach WAHL (2004), verändert.

Halbwertszeit $T_{1/2}$	Isotop Zerfall Zweig, %	$\alpha$ -Zerfall Energie, MeV (Intensität, %)**	$\beta$ -Zerfall Energie, MeV (Intensität, %)**	$\gamma$ -Emission Energie, keV (Intensität, %)*
4.470*10 <sup>9</sup> a	<sup>238</sup> <sub>92</sub> U 100 ↓ $\alpha$	$\alpha$ : 4.198 (79.0) $\alpha$ : 4.151 (20.9)		$\gamma$ : 49.55 (0.063) $\gamma$ : 113.5 (0.0102)
24.10 d	<sup>234</sup> <sub>90</sub> Th 100 ↓ $\beta$		$\beta$ : 0.199 (70.3) $\beta$ : 0.104 (19.2) $\beta$ : 0.103 ( 7.6)	$\gamma$ : 63.28 ( 4.1) $\gamma$ : 92.37 ( 2.42) $\gamma$ : 92.79 ( 2.39)
1.17 min	<sup>234m</sup> <sub>91</sub> Pa 0.16 99.84 IT ↙ ↘ $\beta$		IT: $\beta$ : 2.290 (98.2) $\beta$ : 1.228 (1.007)	$\gamma$ : 1001.03 ( 0.837) $\gamma$ : 766.38 ( 0.294)
6.70 h 2.455*10 <sup>5</sup> a	<sup>234</sup> <sub>91</sub> Pa $\beta^-$ <sup>234</sup> <sub>92</sub> U 100 ↙ $\alpha$	$\alpha$ : 4.7746 (71.38) $\alpha$ : 4.7224 (28.42)	$\beta$ : 0.472 (31)	$\gamma$ : 945.91 ( 0.034) $\gamma$ : 53.20 ( 0.123)
7.538*10 <sup>4</sup> a	<sup>230</sup> <sub>90</sub> Th 100 ↓ $\alpha$	$\alpha$ : 4.6870 (76.3) $\alpha$ : 4.6205 (23.4)		$\gamma$ : 67.67 ( 0.373)
1600 a	<sup>226</sup> <sub>88</sub> Ra 100 ↓ $\alpha$	$\alpha$ : 4.7843 (94.45) $\alpha$ : 4.6017 ( 5.55)		$\gamma$ : 186.21 ( 3.59)
3.8235 d	<sup>222</sup> <sub>86</sub> Rn 100 ↓ $\alpha$	$\alpha$ : 5.4895 (99.92) $\alpha$ : 4.986 ( 0.078)		$\gamma$ : 511 ( 0.076)
3.10 min	<sup>218</sup> <sub>84</sub> Po 0.020 99.980 $\beta$ ↙ ↘ $\alpha$	$\alpha$ : 6.0024 (100)	$\beta$ : keine Daten	keine $\gamma$ -Strahlung
1.6 s 26.8 min	<sup>218</sup> <sub>85</sub> At <sup>214</sup> <sub>82</sub> Pb 99.9 100 $\alpha$ ↙ ↘ $\beta$	$\alpha$ : 6.694 (90)	$\beta$ : 0.728 (42.2) $\beta$ : 0.670 (48.9) $\beta$ : 1.030 ( 6.3)	$\gamma$ : 351.93 (35.1/37.6) $\gamma$ : 295.22 (18.2/19.3) $\gamma$ : 242.00 ( 7.12/7.43)
19.9 min	<sup>214</sup> <sub>83</sub> Bi 0.021 99.979 $\alpha$ ↙ ↘ $\beta$	$\alpha$ : 5.452 (53.9) $\alpha$ : 5.516 (39.2)	$\beta$ : 3.275 (18.2) $\beta$ : 1.542 (17.8) $\beta$ : 1.508 (17.02) $\beta$ : 1.425 ( 8.18) $\beta$ : 1.894 ( 7.43)	$\gamma$ : 609.31 (44.6/46.1) $\gamma$ : 1764.49 (15.1/15.4) $\gamma$ : 1120.29 (14.7/15.1) $\gamma$ : 1238.11 (5.78/5.79) $\gamma$ : 2204.21 (4.98/5.08)
1.3 min 164.3 $\mu$ s	<sup>210</sup> <sub>81</sub> Tl <sup>214</sup> <sub>84</sub> Po 100 100 $\beta$ ↙ ↘ $\alpha$	$\alpha$ : 7.6868 (99.99)	$\beta$ : 4.209 (30) $\beta$ : 1.863 (24)	$\gamma$ : 799.7 ( 0.0104) $\gamma$ : 799.7 ( 0.021)
22.3 a	<sup>210</sup> <sub>82</sub> Pb 100 ↓ $\beta$		$\beta$ : 0.017 (80) $\beta$ : 0.063 (20)	$\gamma$ : 46.54 ( 4.25)
5.013 d	<sup>210</sup> <sub>83</sub> Bi 100 ↓ $\beta$		$\beta$ : 1.162 (99)	keine $\gamma$ -Strahlung
138.376 d	<sup>210</sup> <sub>84</sub> Po 100 ↓ $\alpha$	$\alpha$ : 5.3043 (99.99)		$\gamma$ : 803.10 (1.22*10 <sup>-3</sup> )
stabil	<sup>206</sup> <sub>82</sub> Pb			

**Tab. 5** Die Thorium-Zerfallsreihe. Nach WAHL (2004), verändert.

Halbwertszeit $T_{1/2}$	Isotop Zerfall Zweig, %	$\alpha$ -Zerfall Energie, MeV (Intensität, %)**	$\beta$ -Zerfall Energie, MeV (Intensität, %)**	$\gamma$ -Emission Energie, keV (Intensität, %)*
1.405*10 <sup>10</sup> a	<sup>232</sup> <sub>90</sub> Th 100 ↓ $\alpha$	$\alpha$ : 4.012 (77.9) $\alpha$ : 3.954 (22.1)		$\gamma$ : 63.81 (0.27)
5.75 a	<sup>228</sup> <sub>88</sub> Ra 100 ↓ $\beta$		$\beta$ : 0.039 (60) $\beta$ : 0.015 (40)	
6.15 h	<sup>228</sup> <sub>89</sub> Ac 100 ↓ $\beta$		$\beta$ : 2.18 (10) $\beta$ : 1.70 (11.6) $\beta$ : 1.11 (31.0)	$\gamma$ : 338.32 (11.3) $\gamma$ : 968.97 (16.2) $\gamma$ : 911.21 (26.6)
1.9131 a	<sup>228</sup> <sub>90</sub> Th 100 ↓ $\alpha$	$\alpha$ : 5.423 (71.1) $\alpha$ : 5.340 (28.2) $\alpha$ : 5.221 (0.44)		$\gamma$ : 84.37 (1.22) $\gamma$ : 215.99 (0.28)
3.664 d	<sup>224</sup> <sub>88</sub> Ra 100 ↓ $\alpha$	$\alpha$ : 5.685 (94.9) $\alpha$ : 5.449 (5.1)		$\gamma$ : 240.99 (4.1)
55.6 s	<sup>220</sup> <sub>86</sub> Rn 100 ↓ $\alpha$	$\alpha$ : 6.288 (99.9) $\alpha$ : 5.747 (0.11)		$\gamma$ : 549.73 (0.11)
0.145 s	<sup>216</sup> <sub>84</sub> Po 100 ↓ $\alpha$	$\alpha$ : 4.986 (0.078)		
10.64 h	<sup>212</sup> <sub>82</sub> Pb 100 ↓ $\beta$		$\beta$ : 0.569 (12) $\beta$ : 0.331 (83) $\beta$ : 0.159 (5)	$\gamma$ : 300.09 (3.25) $\gamma$ : 238.63 (43.5)
60.55 min	<sup>212</sup> <sub>83</sub> Bi 35.94 $\alpha$ ↙    ↘ $\beta$ 64.06	$\alpha$ : 6.089 (27.1) $\alpha$ : 6.050 (69.9)	$\beta$ : 2.248 (86.6) $\beta$ : 1.521 (6.8)	$\gamma$ : 1620.74 (1.5) $\gamma$ : 727.33 (6.7)
3.053 min 0.298 $\mu$ s	<sup>208</sup> <sub>81</sub> Tl <sup>212</sup> <sub>84</sub> Po $\beta$ ↘    ↙ $\alpha$	$\alpha$ : 8.785 (100)	$\beta$ : 1.80 (51) $\beta$ : 1.52 (21.7) $\beta$ : 1.29 (22.8) $\beta$ : 1.52 (3.1)	$\gamma$ : 583.19 (30.6) $\gamma$ : 860.56 (4.5) $\gamma$ : 510.77 (8.2) $\gamma$ : 2614.53 (35.8)
stabil	<sup>208</sup> <sub>82</sub> Pb			

\* $\gamma$ -Emission: Intensität pro 100 Zerfälle im Gleichgewicht/absolut\*\* $\alpha$ -,  $\beta$ -Zerfall: absolute Intensität  $\Sigma \approx 100\%$ ; für die Intensität pro 100 Zerfälle multipliziert mit dem Zweig

rot: langlebige Isotope

grün: Isotope im Gleichgewicht

blau: Interferenz-Gammalinie

m: metastabiler Kernzustand; IT: Isomeric Transition (Isomerer Übergang)

## 2.3 Heiße Teilchen

### 2.3.1 Definitionen

Heiße Teilchen sind diskrete,  $\mu\text{m}$ -große, meist atmosphärisch getragene Teilchen mit einer hohen spezifischen Aktivität. Eine eindeutige Definition des Begriffes Heiße Teilchen existiert nicht (vgl. Kap. 1). Er wird im allgemeinen aber für örtlich begrenzte Aggregationen radioaktiver Atome verwendet, die zu einer inhomogenen Verteilung von Radionukliden in einer Probe führen (TÖRÖK et al. 2003). Heiße Teilchen im eigentlichen Sinne werden künstlich bei der Kernspaltung von Uran-235 und Plutonium-239 geschaffen und durch oberirdische Kernwaffenversuche und unfallbedingte Abgaben aus militärischen und zivilen Anlagen in die Atmosphäre freigesetzt.

Künstlich geschaffene Heiße Teilchen lassen sich nach ihrem Radionuklidgehalt in 3 Gruppen einteilen (DABROWSKA et al. 1987; RAUNEMAA et al. 1987; IWATSCHENKO et al. 1998):

1. Die Heißen Teilchen enthalten hauptsächlich  $^{103}\text{Ru}$  (Beta- und Gammastrahler) und  $^{106}\text{Ru}$  (Betastrahler). Sie werden im englischen Sprachgebrauch auch als ‘monoelemental’, ‘ruthenial’, ‘exotic’ oder ‘a-type’ Partikel bezeichnet. Man nimmt an, dass sich die Nuklide der Gruppe 1 in einem Kondensationsprozess aus Rutheniumdampf bildeten.
2. Die Heißen Teilchen sind neben Ru reich an vielen anderen Nukliden, die im Spektrum der Spaltprodukte präsent sind. Dazu gehören  $^{141}\text{Ce}$ ,  $^{144}\text{Ce}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{95}\text{Zr}$  und  $^{95}\text{Nb}$  (alles Beta- und Gammastrahler). Die Nuklide dieser Gruppe werden als Bruchstücke des Kernbrennstoffes bzw. Reaktorkerns angesehen, die in die Umgebung abgegeben wurden. Sie werden im englischen Sprachgebrauch auch als ‘fuel type’, ‘fuel fragment’, ‘standard’, ‘b-type’ Partikel bezeichnet.
3. Die Heißen Teilchen gleichen denen der Gruppe 2, enthalten aber sehr viel mehr Ruthenium. Sie entstehen durch Koagulation von Aerosolen der ersten beiden Gruppen oder durch Kondensation von rutheniumreichem Dampf an Partikeln der Gruppe 2 als Kristallisationskeimen.

Für die vorliegende Arbeit spielen diese künstlich erzeugten, überwiegend beta- und gammastrahlenden Heißen Teilchen **keine** Rolle. Es werden zwar inhomogene Zumischungen von Radionukliden mit hoher spezifischer Aktivität untersucht. Jedoch lässt sich ihre Existenz nicht auf künstliche Spaltprozesse zurückführen. Hinzu kommt, dass für die Arbeit ausschließlich alphastrahlende Radionuklide betrachtet wurden. Zur Abgrenzung gegenüber den künstlich erzeugten Heißen Teilchen werden die in der Arbeit untersuchten als **natürliche Heiße Teilchen** bezeichnet.

Ein natürliches Heißes Teilchen wird als ein einzelnes, punktförmiges Teilchen mit einer Größe im Mikrometerbereich definiert, dass im Vergleich zur umgebenden Probenmatrix eine sehr hohe spezifische Alphaaktivität auf sich konzentriert und nicht durch künstliche Spaltprozesse erzeugt wurde.

### 2.3.2 Gefährdungspotential von Heißen Teilchen

Eine Beobachtung Heißer Teilchen im Ökosystem sowie Informationen zu ihren chemisch-physikalischen Parametern sind vor allem aufgrund ihrer schädigenden Wirkung auf die Gesundheit von Bedeutung. Heiße Teilchen, künstliche wie natürliche, sind Punktquellen von radiologischer Bedeutung und besonders dann gefährlich, wenn sie in den Körper aufgenommen werden.

Nach AUTORENKOLLEKTIV (2004) zeigen epidemiologische Studien deutlich, dass für mittlere und hohe Expositionsgrade zu intern korporierten Radionukliden ein erhöhtes Gesundheitsrisiko dort besteht, wo diese exponiert sind. Und auch eine gering dosierte Einnahme von Radionukliden bewirkt einen Anstieg des Risikos an nachteiligen Gesundheitseffekten im Ergebnis interner Bestrahlung auf Organe und Gewebe, z.B. die Induktion von bösartigen Tumoren.

Zur inneren Strahlenbelastung tragen vor allem geladene Teilchen mit kurzen Reichweiten, wie Alpha- und Betateilchen, bei (AUTORENKOLLEKTIV 2004). Die mögliche Heterogenität der Energieablagerung im Gewebe, die von diesen internen Emitttern herrührt, steht im Gegensatz zur relativ gleichförmigen Bestrahlung des Gewebes durch die meisten externen Quellen. Wegen ihrer dichteren Energiedeposition verursacht die Alphastrahlung eine um 20-mal höhere biologische Wirkung bei gleicher Energiedosis, als Beta- oder auch Gammastrahlung. Bei einer äußerlichen Bestrahlung spielt nur die Gammastrahlung mit ihrer großen Durchdringungsfähigkeit eine Rolle. Alpha- und Betastrahlen werden dagegen vollständig von den äußeren Hautschichten absorbiert.

Kontrovers diskutiert wird unter Wissenschaftlern die Frage, ob bei gleicher absorbierter Strahlenenergie in einem bestimmten Gewebe, z.B. der Lunge, eine stark inhomogene Dosisverteilung biologisch wirksamer ist, als eine homogene Dosisverteilung. Es scheint nach epidemiologischen-, Tier- oder in vitro-Studien keine überzeugenden Beweise dafür zu geben, dass Heiße Teilchen, künstliche oder natürliche, die hohe Dosen abgeben gefährlicher sind als mehr uniforme Bestrahlungen (AUTORENKOLLEKTIV 2004). Der gleichen Meinung sind die Mitglieder der Strahlenschutzkommission (STRAHLENSCHUTZKOMMISSION 1976). Basierend auf den Empfehlungen der Internationalen Strahlenschutzkommission (ICRP) wird angenommen, dass die Inhomogenität der Aktivitäts- oder Dosisverteilung in einem Organ zu keiner Erhöhung des Schadensrisikos führt. Danach hängt das Strahlenschadenrisiko in einem bestrahlten Organ nur von der mittleren Strahlendosis in diesem Organ und der Strahlenart ab.

Eine interne Strahlenbelastung entsteht durch die Aufnahme von Radionukliden in den Körper infolge Inhalation, Ingestion oder Absorption in den Blutkreislauf über Verletzungen. Besonders inhalierte Alphaemitter werden dabei als Verursacher von Lungenkrebs angesehen. Bei einer Aufnahme in den Atemtrakt nimmt die Eindringtiefe mit der Feinheit der Partikel zu. Hier spielen vor allem die Feinstäube, die so genannten PM (engl.: particulate matter) eine Rolle, Gemische von kleinsten Staubteilchen mit aerodynamischen Durchmessern  $<10 \mu\text{m}$ . Negative Auswirkungen partikulärer Immissionen auf das Atemwegssystem des Menschen sind durch eine Vielzahl von epidemiologischen Untersuchungen belegt (NEINAVAIE et al. 2000). Die chemische Zusammensetzung der Partikel bestimmt ihre Schädlichkeit. Partikel können Träger von Giften, Schadstoffen oder eben Radionukliden sein. Über die Partikel werden diese in die Lungen transportiert und können vom Blut oder Gewebe aufgenommen werden oder durch ihre energiereiche Strahlung das empfindliche Gewebe schädigen. Quellen partikulärer Belastung in der Atmosphäre sind sowohl natürliche als auch anthropogene Stäube. Natürliche, mit radioaktiven Partikeln belastete Stäube entstehen beispielsweise infolge der Verwitterung und Erosion von radionuklidhaltigen Gesteinen, Mineralen und Böden. Anthropogene, mit radioaktiven Partikeln belastete Feinstäube können z.B. in Form von Flugaschepartikeln bei Verbrennungsprozessen (Kohlekraftwerke, Verbrennung radionuklidhaltiger Kohlen) und metallurgischen Prozessen entstehen. Beispiele für mit Radionukliden kontaminierte, feinstkörnige Materialien, die aus der Erzaufbereitung und Metallurgie stammen, sind u.a. die Theisenschlämme des Mansfelder Landes und die Tailings der Uranerzaufbereitung von Dänkriz. Die auf dem Luft- und Wasserpfad sehr mobilen Feinstkornanteile stellen dabei hinsichtlich der Umweltgefährdung ein nicht zu unterschätzendes Problem dar. Weitere

mit Radionukliden belastete Feinstäube entstehen u.a. beim Abbau von Braunkohlen oder auch Granit. Nach Informationen des Bundesamtes für Strahlenschutz fallen in einzelnen Granitabbauen jährlich bis über 10 000 t Granitstaub einer Feinfraktion  $\leq 0,9$  mm an (GELLERMANN et al. 2003).

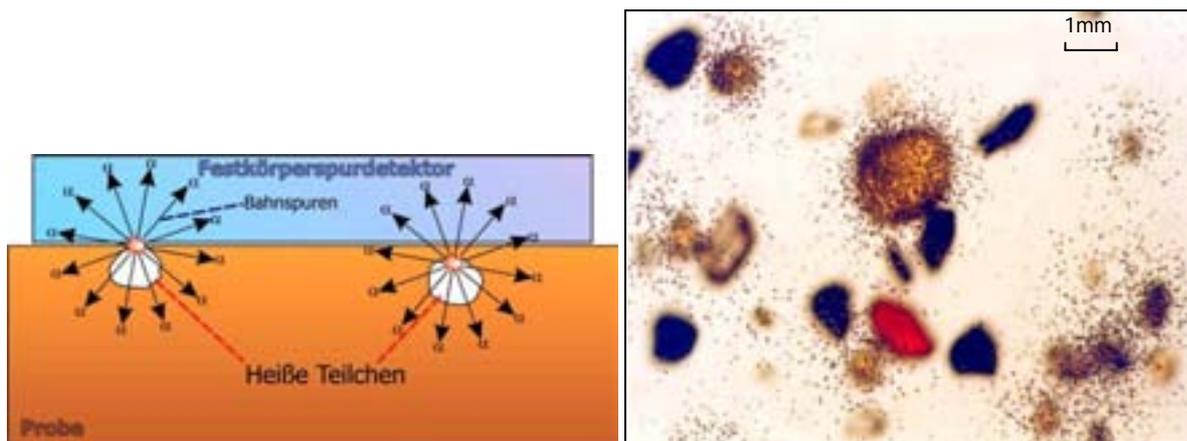
Entscheidend für die Beurteilung einer Umweltbelastung durch (natürliche) Heiße Teilchen sind Informationen über Vorkommen und Verbreitung Heißer Teilchen, mögliche Ausbreitungspfade im Ökosystem und Kenntnisse zur Teilchencharakteristik (Korngröße, Bindungsform, chemische Zusammensetzung). Die vorliegende Arbeit soll dazu einen Beitrag leisten.

### 3 Material und Methoden

#### 3.1 Autoradiographie

Unter Autoradiographie versteht man die Selbstabbildung von an der Oberfläche einer Probe befindlichen Radionukliden durch ihre Strahlung (PHILIPSBORN & GEIPEL 2003). Die Autoradiographie ist, wie z.B. auch die Durchleuchtung mit Röntgenstrahlung, ein direkt bildgebendes Verfahren der Radiometrie. Mit dieser Methode ist es möglich, den genauen Ort von radioaktiven Partikeln auf der Schnitt- oder Oberfläche einer Probe anzugeben und gleichzeitig deren Anzahl und Verteilung zu bestimmen. Die erhaltenen Verteilungsbilder bezeichnet man als Autoradiogramme (Abb. 6).

Die Autoradiographie ist ein hervorragendes Instrument, um auch geringste Mengen radioaktiver Substanzen nachzuweisen. Diese Methode birgt die Möglichkeit, lokale Anreicherungen von Alphaemittern in einer Probe zu finden. Die Autoradiographie bietet sich darüber hinaus als alternative Untersuchungsmethode an, wenn die Alphaemissionsraten einer Probe zu gering sind, um mit konventionellen Meßmethoden detektiert zu werden. Zudem sind Alphastrahler wegen der sehr kurzen Reichweite ihrer Strahlung meist schwierig zu bestimmen. Als Detektoren für die Autoradiographie dienen spezielle fotografische Emulsionen und Festkörperspurdetektoren. Für diese Arbeit wurden Festkörperspurdetektoren genutzt (Abb. 6).



**Abb. 6** Linkes Bild: Prinzip der Probenanordnung und Spurentstehung bei der Autoradiographie mit Festkörperspurdetektoren. Von Heißen Teilchen ausgesendete, schwere ionisierende Teilchen (Alphaeilchen), hinterlassen in Detektormaterial entlang ihres Weges Spuren. Diese Bahnschpuren können durch geeignete Ätzmittel verstärkt und dadurch sichtbar gemacht werden.

**Rechtes Bild:** Aufsicht auf eine Probenanordnung, wie sie im linken Bild dargestellt ist. Lichtmikroskopische Aufnahme. Auf dem durchsichtigen Festkörperspurdetektor sind die sichtbar gemachten Bahnschpuren (Ätzcspuren) der Alphaeilchen erkennbar. Man bezeichnet dieses Verteilungsbild der Ätzcspuren als Autoradiogramm. Unter dem Festkörperspurdetektor befindet sich die untersuchte Probe, ein Strandsand (litorale Seife) mit u.a. Magnetitkörnchen (schwarz), Quarzkörnchen (hell), Rubin (rot) sowie Monazitkörnchen (bernsteinfarben). Anhand der Ätzcspuren auf dem Detektor kann der genaue Ort der Alphaemitter in der Probe bestimmt werden und Aussagen zu deren Anzahl und Verteilung getroffen werden. Hier werden die Alphapartikel von den bernsteinfarbenen Sedimentkörnchen emittiert. Es handelt sich dabei um thoriumhaltige Monazite.

Mit der Autoradiographie gelingt nicht nur der einfache Nachweis der Heißen Teilchen, sie hat auch historische Bedeutung. Im Jahre 1896 führte sie zur Entdeckung der Radioaktivität durch Henri Becquerel. Becquerel ließ damals ein Uranmineral auf einer unbelichteten Fotoplatte liegen und stellte nach Tagen fest, dass sich diese ohne Lichteinfluss geschwärzt hatte und die Umrisse des uranhaltigen Minerals zeigte. Ihm war schnell klar, dass von diesem Uranmineral Energie in Form einer bis dahin noch unbekanntem Strahlung abgegeben worden sein musste – die Entdeckung der Radioaktivität.

## 3.2 Festkörperspurdetektoren

### 3.2.1 Arten und Anwendung von Festkörperspurdetektoren

Es gibt verschiedene anorganische und organische Festkörperspurdetektoren, z.B. Gläser, Minerale (Glimmer) und Kunststoffe. Sie finden Anwendung in zahlreichen Gebieten wie geologische Altersdatierung, Umweltwissenschaften (Radon), Biowissenschaften (Radiobiologie, Dosimetrie) ebenso wie in der Atom- und Astrophysik (FROMM et al. 2000). Festkörperspurdetektoren eignen sich besonders zum Nachweis von Alphastrahlern. Ihre Anwendung ist eine effektive und einfache Methode der Autoradiographie. Festkörperspurdetektoren haben eine hohe Nachweisempfindlichkeit für geladene Partikel und eine laterale Auflösung im Bereich von 1-3  $\mu\text{m}$ .

Derzeit sind weit mehr als 100 Festkörperspurdetektor-Materialien bekannt (GUHR 1991). Unter diesen kommt den Detektormaterialien aus geeigneten Kunststoffen eine herausragende Bedeutung zu. Zu den bekanntesten organischen, zum Nachweis von Teilchenstrahlung geeigneten, Detektormaterialien zählen verschiedene Polycarbonate (z.B. CR-39, Makrofol) bzw. Cellulosenitrate (z.B. Kodak-LR 115). Das derzeit empfindlichste bekannte Detektormaterial ist Poly-diethylenglycol-bis (Allylcarbonat) mit der handelsüblichen Bezeichnung CR-39. Dieser Detektor, der auch für diese Arbeit verwendet wurde, kann Alphapartikel sehr niedriger bis sehr hoher Energie registrieren (Tab. 6).

**Tab. 6** Aufnahmeenergien verschiedener Kunststoffdetektoren im Vergleich. CR-39 nimmt Alphapartikel einer Energie von mehreren 10er MeV auf, nach CARTWRIGHT et al. (1978). Die Alphaenergien der natürlichen Radionuklide liegen typischerweise in einem Energiebereich zwischen 3 und 8 MeV. Mit dem Festkörperspurdetektor CR-39 können sie alle erfasst werden.

Art des Detektors	$E_{min}$ (MeV)	$E_{max}$ (MeV)
Lexan und Makrofol (Polycarbonate)	~0.2	~3
Cellulosenitrat (CA80-15; CN 85; LR 115; Daicel)	~0.1	~4-6
CR-39 (Polyallyl Diglycol Carbonate)	~0.1	>20

### 3.2.2 Der Festkörperspurdetektor CR-39

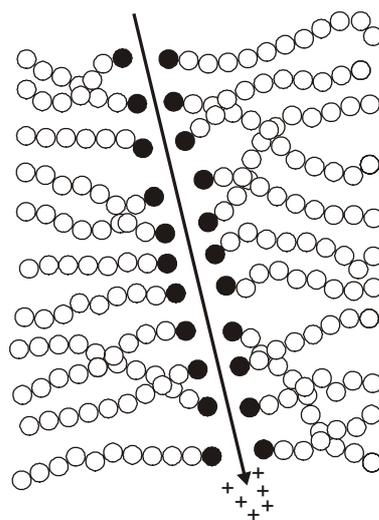
Auf der Suche nach einem Kunststoff als Ersatz für Fensterglas bzw. natürliche Rohstoffe, wurde während des 2. Weltkrieges in den USA ein Forschungsprogramm durchgeführt. Damals begann die Columbia Southern Chemical Company, heute die chemische Abteilung der PPG (Pittsburg Plate Glass) Industries, mit Forschungsarbeiten für einen nicht thermoplastischen Kunststoff und führte eine Serie von knapp 200 Experimenten mit Polymeren durch (WHITNEY 1975). Das Projekt hatte den Namen Columbia Resins, wobei Resin (Harz) das Rohmaterial für die Kunststoffe bezeichnet. Die 39. Substanz der von Columbia untersuchten Polymere kristallisierte sich aufgrund einzigartiger Materialeigenschaften als die bedeutendste heraus. Sie wurde später zur Herstellung von Kunststoffgläsern genutzt und ist heute die Basis für nahezu alle Kunststofflinsen. Wegen ihrer einzigartigen Eigenschaften und der umfassenden Nützlichkeit ist sie heute das Objekt von industrieller und akademischer Forschung. Der Projektname und die Zahl 39 prägten den Namen des Monomers (CR-39 - Columbia Resin-39) ([www.zeiss.de](http://www.zeiss.de)). Als Detektormaterial zur Registrierung schwerer geladener Teilchen ist dieses Material seit 1978 bekannt (CARTWRIGHT et al. 1978).

Die chemische Formel dieses Monomers ist  $C_{12}H_{18}O_7$ . CR-39 ist ein wärmehärtender, durchsichtiger, glasklarer, farbloser und stabiler Kunststoff, der durch seine Härte, hohe Empfindlichkeit gegenüber Alpha- und Protonenstrahlung und hohe Energieauflösung charakterisiert ist. Dieser Detektor ist unempfindlich gegenüber Gammastrahlung, Röntgen- und Betastrahlung, Feuchte, Temperaturwechsel und Licht. Verglichen mit anderen transparenten Kunststoffen haben Polymere aus CR-39 eine größere Resistenz gegenüber Abrasion, Chemikalien, Hitze und Strahlung. Der Festkörperspurdetektor CR-39 hat ein geringes Gewicht, ist unkompliziert in der Handhabung, zu variablen Größen zuschneidbar und auch bei extremen Umweltbedingungen (niedriger Druck, hohe Temperatur, hohe Luftfeuchtigkeit) gut einsetzbar. Er zeichnet sich durch ein geringes Fadingverhalten (zu engl.: *to fade*: verblassen, nachlassen, verschwinden; Alterungsprozess) über lange Zeiträume aus und gewährleistet darüber hinaus eine permanente Dokumentation von geladenen Teilchen. Mit dem Festkörperspurdetektor CR-39 lassen sich Aktivitäten unter einigen Becquerel pro Gramm messen. Er wird heute für die Radondetektion, Neutronendosimeter, Alphapartikel-Autoradiographie, Fusionsuntersuchungen, Uranexploration, Studien zur Weltraumstrahlung und als Lehrmaterial zur Unterrichtung von Radioaktivität in Schulen genutzt.

### 3.2.3 Spurbildungsmechanismen in Festkörperspurdetektoren

#### 3.2.3.1 Latente Spuren

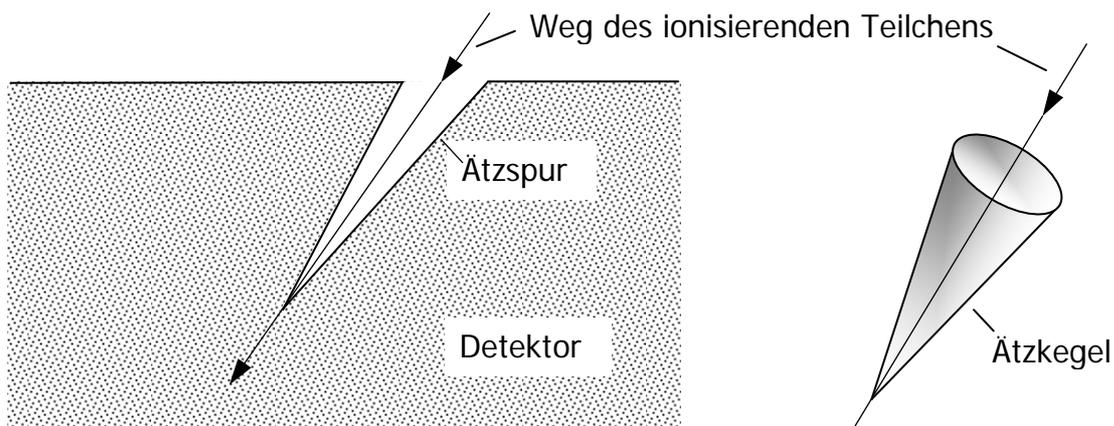
Alle geladenen (stark ionisierenden) Teilchen lagern entlang ihres Weges Energie ab, wenn sie sich durch Materie bewegen. In organischen Kunststoffmaterialien erzeugt dieser Energieverlust submikroskopisch kleine, zylindrische Zonen strahlengeschädigten Materials (ENGE 1980). Der Radius dieser Zone, die als 'latente Spur' bezeichnet wird, liegt zwischen 5 und 10 nm. Die Länge dieser Spuren wird durch die Masse und Energie der Partikel definiert. Organische Kunststoffmaterialien, wie der Festkörperspurdetektor CR-39, sind durch eine makromolekulare Struktur charakterisiert. Die nach dem Durchgang eines geladenen Teilchens latent existierende Zone geschädigten Materials (Abb. 7) besteht aus einer Anhäufung von mehr oder weniger großen Fragmenten der ursprünglichen Makromoleküle: freien Radikalen, freien Reaktionsvolumina und eingeschlossenen Gasen (GUHR 1991).



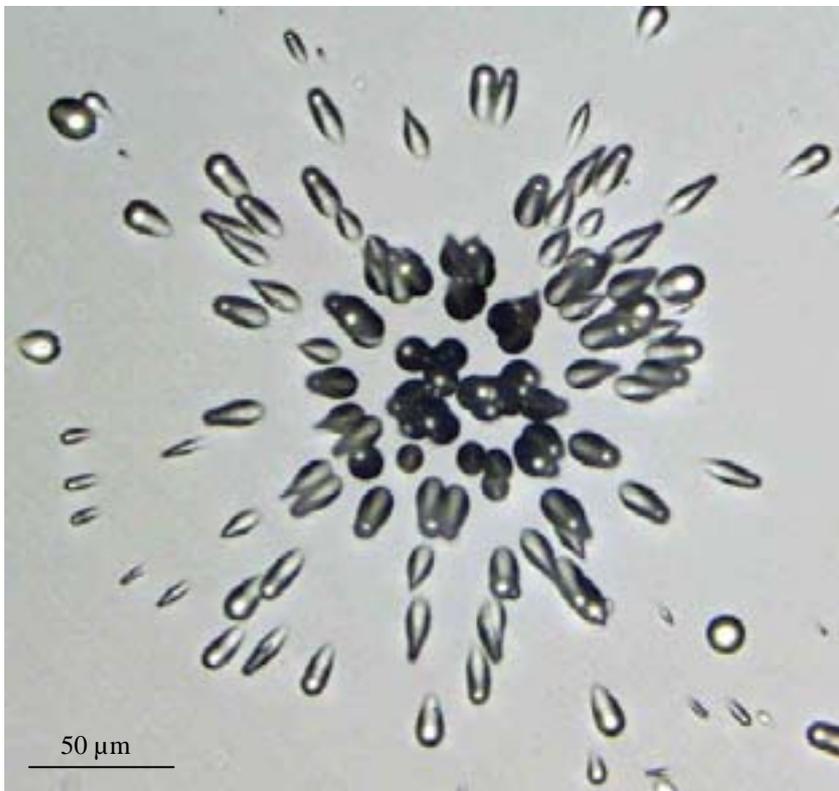
**Abb. 7** Schematische Darstellung der Kettenspaltung in Polymeren, hervorgerufen durch den Durchgang schwerer geladener Partikel. Eine Erwärmung entlang der Bewegungsbahn geladener Partikel bewirkt örtliches Schmelzen; dies hat, zusammen mit der Anregung durch Ionisation, zur Folge, dass die Polymerketten aufbrechen und sich neue Kettenenden bilden. Es entstehen chemisch reaktive Stellen im Bereich der Aufbrüche, die durch geeignete Ätzlösungen erweitert werden können (DURRANI & BULL 1987).

### 3.2.3.2 Ätzprozess

Die latenten Spuren sind unter dem lichtoptischen Mikroskop nicht sichtbar. Wird das organische Kunststoffmaterial jedoch einer chemischen Ätzlösung (z.B. NaOH) ausgesetzt, werden die Spuren erweitert, so dass sie unter dem Lichtmikroskop oder sogar mit dem bloßen Auge zu erkennen sind. Diese Ätzspuren von Kernteilchen sind zylindrische oder kegelförmige Löcher von 1-30  $\mu\text{m}$  Länge und einem Durchmesser zwischen 8 und 20  $\mu\text{m}$  (Abb. 8; Abb. 9). Beim Ätzvorgang werden nicht nur die latenten Spuren erweitert, sondern auch das übrige Detektormaterial weggeätzt. Dabei werden die Spuren durch das Ätzmittel selektiv stärker angegriffen als das nicht strahlengeschädigte Material (STOLZ 1996).



**Abb. 8** Seitenansicht und räumliche Ansicht der Ätzspur eines ionisierenden Teilchens. Die Flugrichtung des Teilchens wird durch den Pfeil angezeigt. Nach ENGE (1980), geändert.

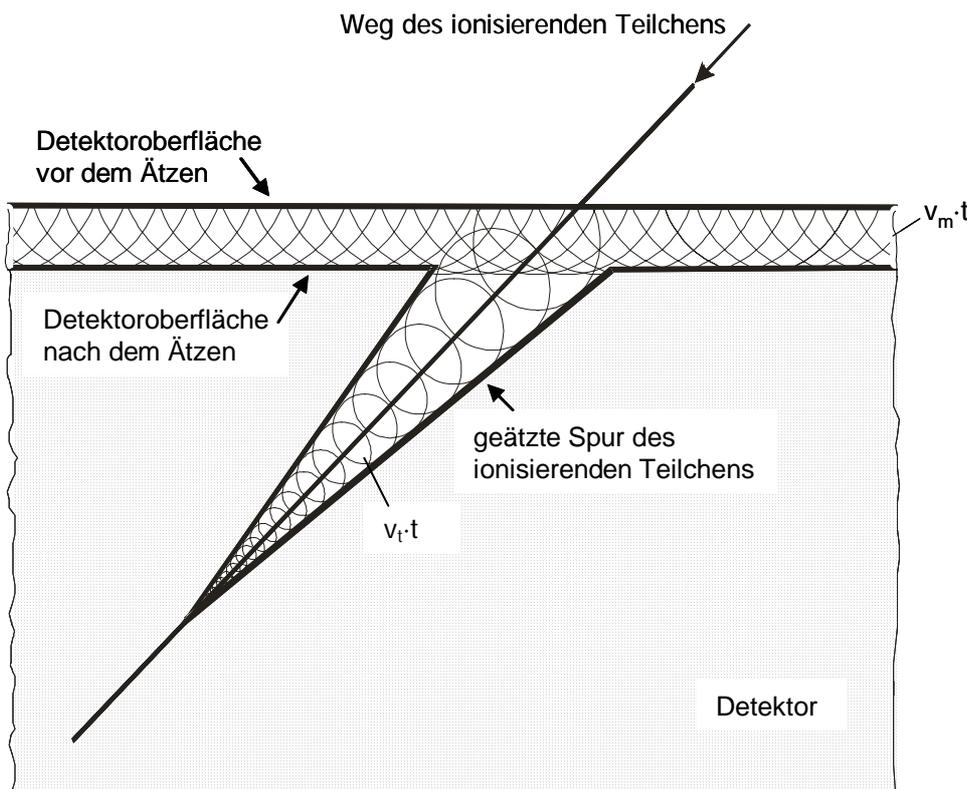


**Abb. 9** Charakteristische Ätzspuren (Ätzkegel) von Alphateilchen in einem CR-39 Festkörperspurdetektor. Je nach Raumlage lassen sich unterschiedliche Anschnitte der Ätzkegel beobachten. Die sternförmige Anordnung der Spuren mit einer gut entwickelten zentralen Region wird typischerweise von punktförmigen Alphaemittern, den Heißen Teilchen, erzeugt. Lichtmikroskopische Aufnahme.

Die Geschwindigkeit, mit der gelöstes Kunststoffmaterial von der verbleibenden Kunststoffplatte abgelöst wird (Abb. 10), ist die Ätzrate (ENGE 1980). Man kann zwei Ätzraten unterscheiden:

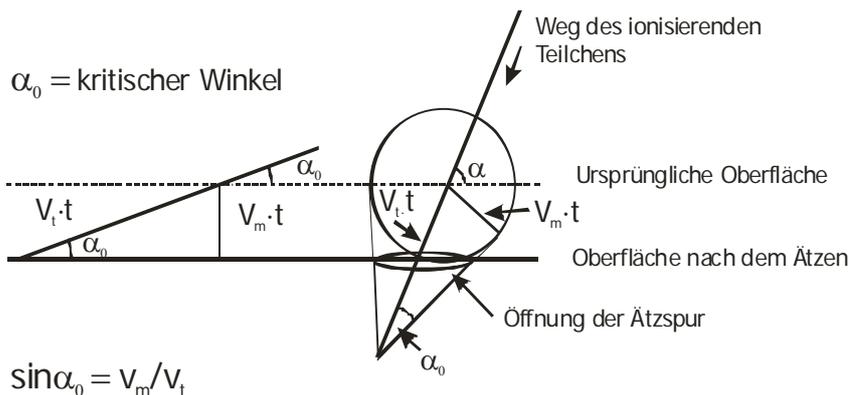
1. die **Gesamt- oder Materialätzrate**  $v_m$  für das unbeschädigte Material; sie wird unter vorgegebenen Ätzbedingungen als konstant angesehen und ist nur abhängig vom benutzten Kunststoffdetektor sowie den Ätzbedingungen (Art der Ätzlösung, Alkoholmischung, Temperatur), und
2. die **Spurätzrate**  $v_t$ , mit der die Ätzlösung entlang der latenten Spur voranschreitet; sie hängt stark von der Art des einfallenden Teilchens ab (Ladung, Masse und Grad des Energieverlustes). Das Verhältnis  $v_t/v_m$  ist als Detektorempfindlichkeit bzw. Ansprechverhalten des Detektors bekannt (DURRANI & BULL 1987).

Die Bildung eines Ätzkegels rund um den Weg eines Ions erfolgt nach dem Huygensschen Prinzip (= modellhafte Beschreibung der Wellenausbreitung; Annahme: Ätzfront breitet sich von jedem Punkt der Detektoroberfläche wie eine Kugelwelle aus, die Einhüllende dieser Wellen ergibt die Ätzfigur). Es wird angenommen, dass die Materialätzrate  $v_m$  an jedem Punkt der Detektoroberfläche gleich in alle Richtungen wirkt. Nach einer Ätzzeit  $t$  wurde die Oberfläche um eine Menge  $v_m \cdot t$  abgelöst, d.h. die Umhüllende aller elementaren Ätzbereiche mit dem Radius  $v_m \cdot t$  repräsentiert die neue Kunststoffoberfläche (Abb. 10). Dieses Prinzip gilt auch für den Weg des Ions.



**Abb. 10** Schematische Seitenansicht eines geätzten Detektors. Die Bildung des Ätzkegels wird durch die Wirkung von zwei gleichzeitig ablaufenden Ätzprozessen hervorgerufen: einmal die chemische Ablösung von Detektormaterial entlang der latenten Spur mit einer linearen Geschwindigkeit  $v_t$  und die chemische Ätzung des gesamten Detektormaterials mit einer Geschwindigkeit  $v_m$ . Die Oberfläche des Detektors wird in der gleichen Zeit  $t$  abgetragen, wie auch die Spurbildung erfolgt. Die Ausbildung eines Ätzkegels erfolgt wegen der bevorzugten Ätzung des strahlengeschädigten Materials in der latenten Spur ( $v_t > v_m$ ). Je kleiner  $v_t$  ist, desto geringer sind Durchmesser und Länge des Ätzkegels (nach FLEISCHER et al. (1975), ENGE (1980), verändert).

Die Form der Spur ändert sich mit fortschreitender Ätzung drastisch und durchläuft verschiedene Phasen (kegelförmig, Übergangsphase, kugelförmig). Die endgültige Geometrie der Ätzspur hängt deshalb davon ab, wann der chemische Ätzprozess gestoppt wird. Die kegelförmige Phase endet, wenn der Ätzprozess das Ende des durch Ionen beschädigten Weges erreicht hat. In den nächsten Phasen werden Boden und Oberfläche der Spur gerundet. Schlecht gewählte Ätzparameter können zu einem vollständigen Verlust der Spuren führen. Wegen des so genannten kritischen Winkels ist nicht jede Spur ätzbar. Das heißt, wenn ein Teilchen in einem zu flachen Winkel in das Detektormaterial eintritt, dann liegt seine Spur komplett innerhalb des Oberflächenabtrages bei der Ätzung (Abb. 11).



$$\sin \alpha_0 = v_m / v_t$$

**Abb. 11** Phänomen des kritischen Winkels  $\alpha_0$  beim Ätzen. Wenn ein bestrahlter Detektor mit einer Ätzlösung behandelt wird, dann ist die Ätzgeschwindigkeit entlang der latenten Spur größer als die Ätzgeschwindigkeit des gesamten Materials. Die Ätzflüssigkeit wandert um eine Strecke  $v_m \cdot t$  von der Detektoroberfläche vertikal in das Detektormaterial. Der Neigungswinkel zwischen der Bahn des ionisierenden Teilchens und der Detektoroberfläche ist  $\alpha$ . Tritt ein ionisierendes Teilchen nun mit einem Winkel  $\alpha_0$  in den Detektor ein, dann reicht der Oberflächenabtrag bei der Ätzung gerade bis in die Eindringtiefe dieses Teilchens in den Detektor. Das bedeutet, dass sich für alle mit Winkeln von  $\alpha > \alpha_0$  einfallende Teilchen eine geätzte Spur ergibt. Dagegen hinterlassen mit Winkeln  $\alpha \leq \alpha_0$  einfallende Teilchen keine beobachtbaren Spuren, da diese weggeätzt werden. Der kritische Winkel  $\alpha_0$  ist definiert durch  $\sin \alpha_0 = v_m / v_t$ . (nach ENGE (1980), DURRANI (1997), verändert)

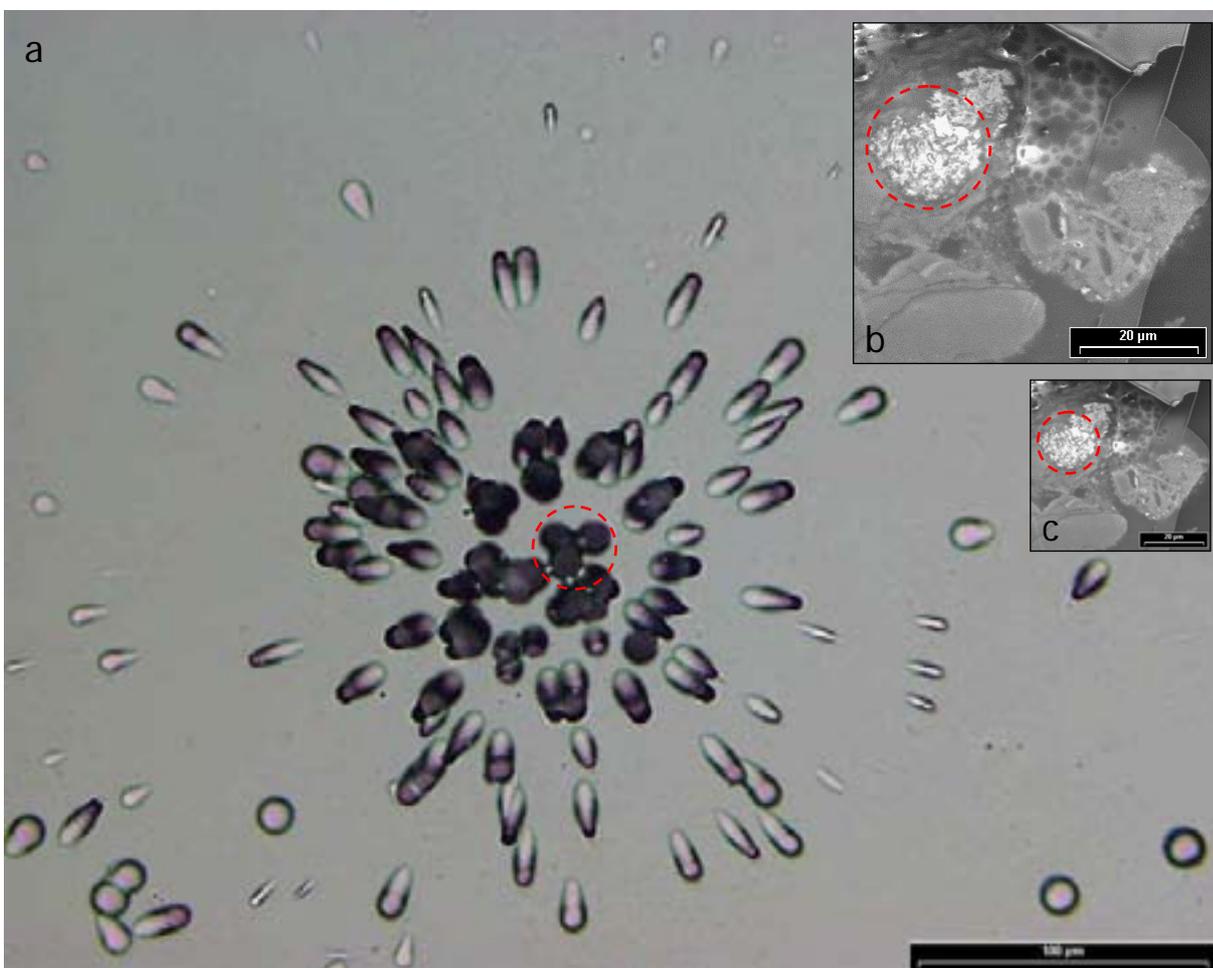
### 3.2.3.3 Registrierschwelle

Nicht jedes Teilchen, das den Detektor durchdringt, kann auch nachgewiesen werden. Wegen der energetischen Registrierschwelle ( $\frac{dE}{dx}$ )<sub>min</sub> (wobei gilt: E=Energie des eindringenden Teilchens und x=Wegstrecke des Ions im Detektor), die für jedes Detektormaterial spezifisch ist, erzeugt nicht jedes Teilchen eine latente Spur. Teilchen, deren Energieverlust kleiner ist als diese Schwelle, können keine lokalen Strukturveränderungen im Detektormaterial verursachen. Sie sind deshalb nicht nachweisbar (FLEISCHER et al. 1975; ENGE 1980). Andererseits rufen auch Teilchen, deren Energieverlust sehr groß ist, keine ätzbare Schädigung im Detektor hervor. Ihre Verweilzeit im Detektor ist zu kurz, um mit den Molekülen im Detektor zu interagieren bzw. ihre Energie- und Pulsübertragung ist so groß, dass die entstehenden Sekundärelektronen den unmittelbaren Bereich der latenten Spur verlassen und ihre Energie weit außerhalb des Spurkanals deponieren (BENTON 1968). Daraus ergeben sich Konsequenzen für die Nachweiseigenschaften eines Festkörperspurdetektors. Ist ein zu detektierendes Teilchen zu weit von der Detektoroberfläche entfernt, ist seine verbleibende Energie aufgrund der Reichweite zu gering, um im Detektor eine nachweisbare Schädigung hervorzurufen. Befindet sich das Teilchen jedoch zu dicht an der Detektoroberfläche, wird wegen der hohen Teilchenenergie ebenfalls keine ätzbare Schädigung im Detektor entstehen.

### 3.3 Spurmuster (Autoradiogramme) von Alphateilchen auf dem Festkörperspurdetektor CR-39

#### 3.3.1 Spurmuster Heißer Teilchen

Autoradiogramme Heißer Teilchen haben die Form von Sternspurmustern (Abb. 12). Sie setzen sich aus mehreren, radial verlaufenden Einzelspuren (registrierten Alphateilchen) zusammen, die von einem Punkt emittiert wurden. Diese Sternspurmuster werden im Folgenden auch als Heiße Teilchen-Spuren bzw. Sternspuren bezeichnet. Typischerweise haben solche Sternspuren einen sich deutlich abzeichnenden Zentralbereich, in dem die einzelnen Spuren der Alphateilchen rund sind, da sie hier im rechten Winkel auf den Festkörperspurdetektor treffen. Wird der Winkel, mit dem die Alphateilchen auf den Festkörperspurdetektor treffen kleiner, nehmen die Spuren eine elliptische bis zigarrenförmige Form an (Abb. 12).

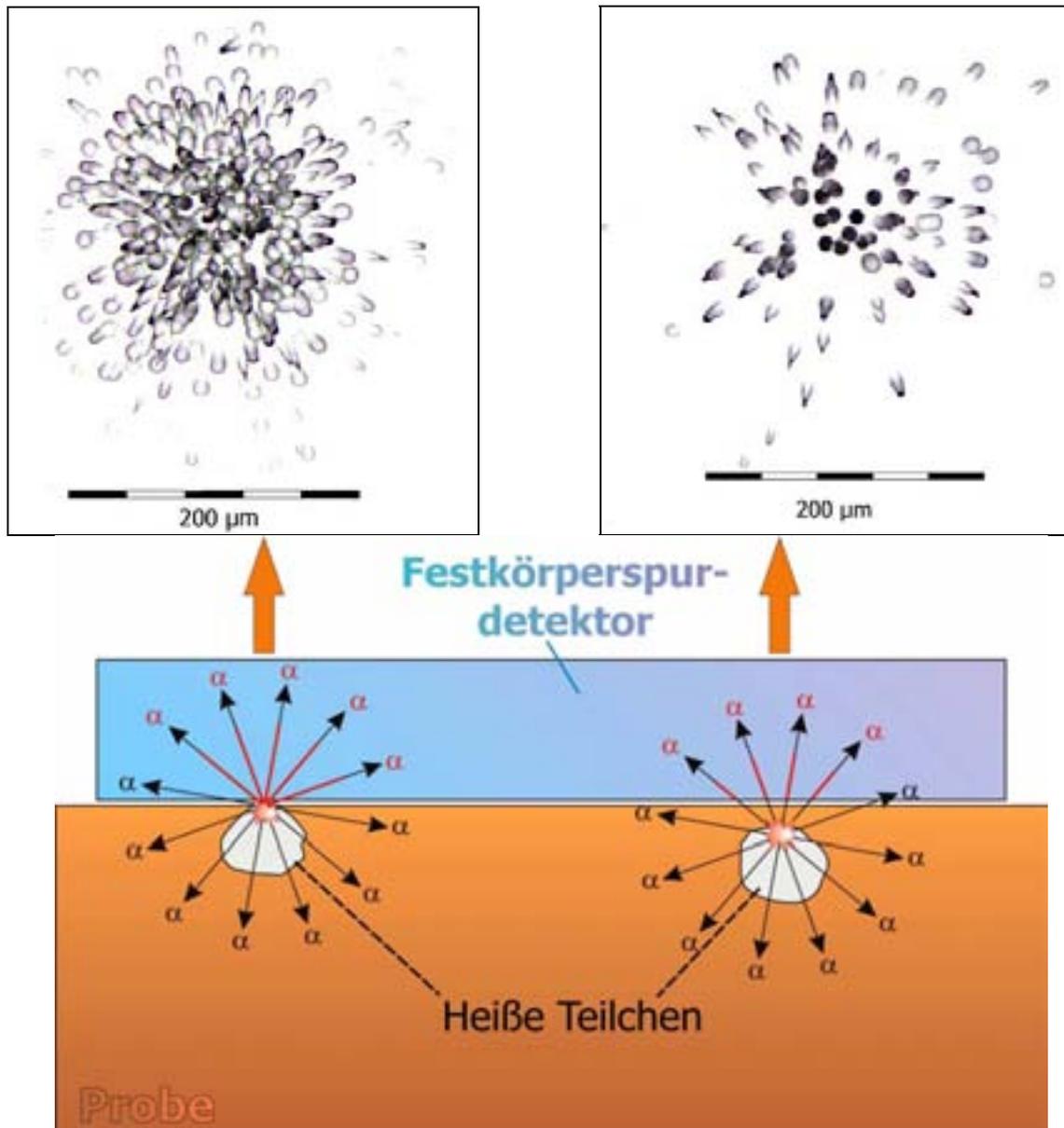


**Abb. 12** (a) Autoradiogramm (Festkörperspurdetektor CR-39) und (b) REM-Aufnahme eines radioaktiven Partikels. (c) ist identisch mit (b), zeigt jedoch die REM-Aufnahme im gleichen Maßstab wie (a). Anhand der Größe des Zentralbereichs der Sternspur ((a); roter Kreis) lässt sich der Durchmesser des radioaktiven Teilchens ((b+c); roter Kreis) abschätzen. Danach beträgt der Partikeldurchmesser ca. 20 µm.

Dabei sind runde Spuren solche Spuren, bei denen das Verhältnis zwischen maximaler und minimaler Spurgröße 1,1 nicht übersteigt. Der Durchmesser der Heißen Teilchen kann nach den Grenzen eben dieser Region ungefähr bestimmt werden. Erfahrungsgemäß kann diese Größenermittlung aber nur einer groben Einschätzung der tatsächlichen Partikelgröße dienen, da die Bestimmung des Partikeldurchmessers u.a. von der Genauigkeit der Wahl der Grenzregion, d.h. der Grenze, wo die Spuren noch rund sind, abhängt. Voraussetzung bei dieser Grö-

Benabschätzung ist zudem, dass es sich bei dem alphaemittierenden Partikel nur um ein Einzelteilchen handelt, nicht um mehrere agglomerierte Partikel oder ein größeres Korn mit nicht homogen verteilter Radioaktivität. Die Abschätzung der Partikelgröße wird umso ungenauer und schwieriger, je kleiner die alphaemittierenden Teilchen sind.

Abhängig von der räumlichen Lage der Strahlungsträger in der Probe sowie deren spezifischer Aktivität und Größe ergeben sich – bei identischer Expositionszeit des Festkörperspurdetektors – unterschiedliche Formen von Sternspurmustern (Abb. 13 bis 16).



**Abb. 13** Festkörperspurdetektor-Autoradiogramme (oben) und schematische Seitenansicht einer Probenanordnung bei der Autoradiographie mit Festkörperspurdetektoren (unten). An bzw. nahe der Oberfläche einer Probe befindliche Heiße Teilchen emittieren von einem Punkt Alphateilchen, die beim Eindringen in den Festkörperspurdetektor latente Spuren erzeugen können. In der Abbildung hinterlassen nur die rot gekennzeichneten Alphateilchen beobachtbare Spuren. Die anderen sind nicht nachweisbar, da entweder ihre Energie unterhalb der Registrierschwelle liegt oder ihr Einfallswinkel in den Detektor kleiner als der kritische Winkel ist (vgl. Kap. 3.2.3). Aus der Form der Sternspurmuster lassen sich Aussagen zur räumlichen Lage der Alphaemitter treffen. An der Oberfläche der Probe befindliche Alphaemitter werden Spurmuster erzeugen, in denen die Einzelspuren sehr eng beieinander liegen (linkes Autoradiogramm). Liegen die Alphaemitter dagegen nur nahe der Oberfläche, vergrößern sich die Abstände der Einzelspuren zueinander (rechtes Autoradiogramm). Dies hängt mit dem Abstand zwischen Alphaquelle und Festkörperspurdetektor zusammen. Die Bahnen der Alphateilchen laufen von einem Zentrum fächerförmig auseinander. Je größer der Abstand zu diesem Zentrum ist, desto größer ist auch der Abstand der Bahnsuren der Alphateilchen zueinander.

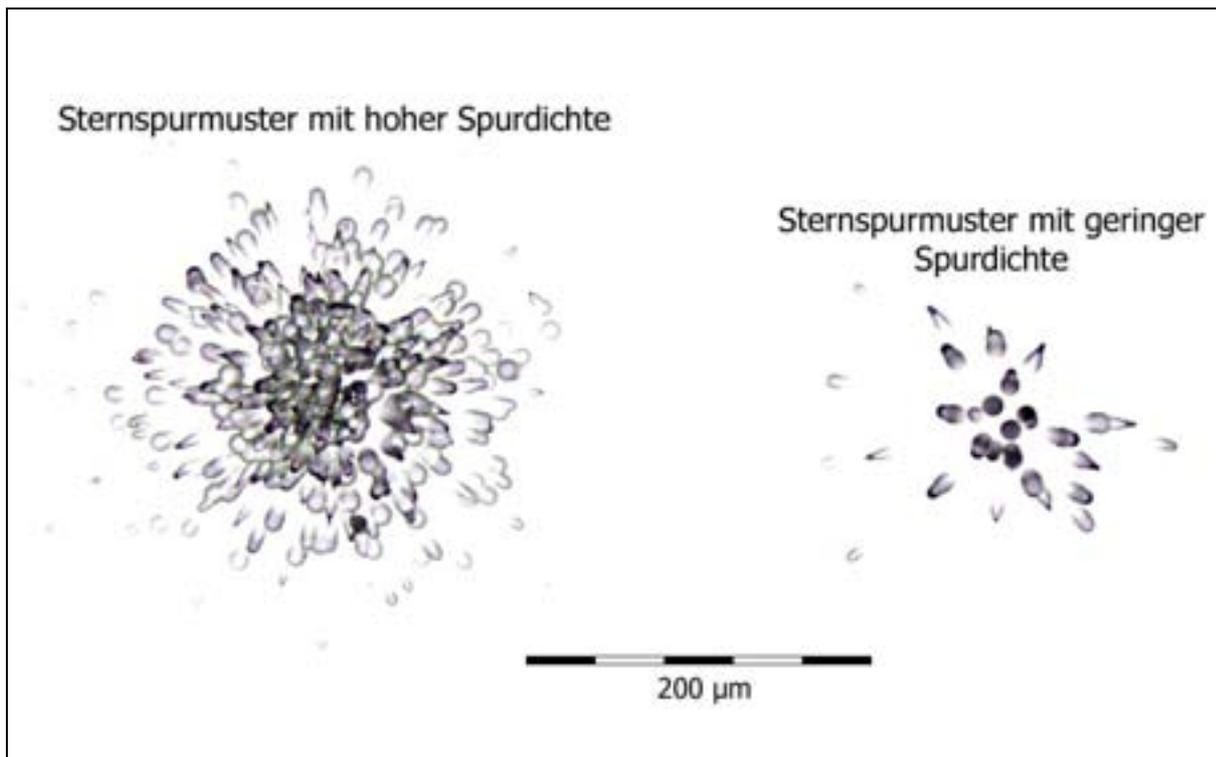


Abb. 14 Abbildungsunterschrift auf folgender Seite

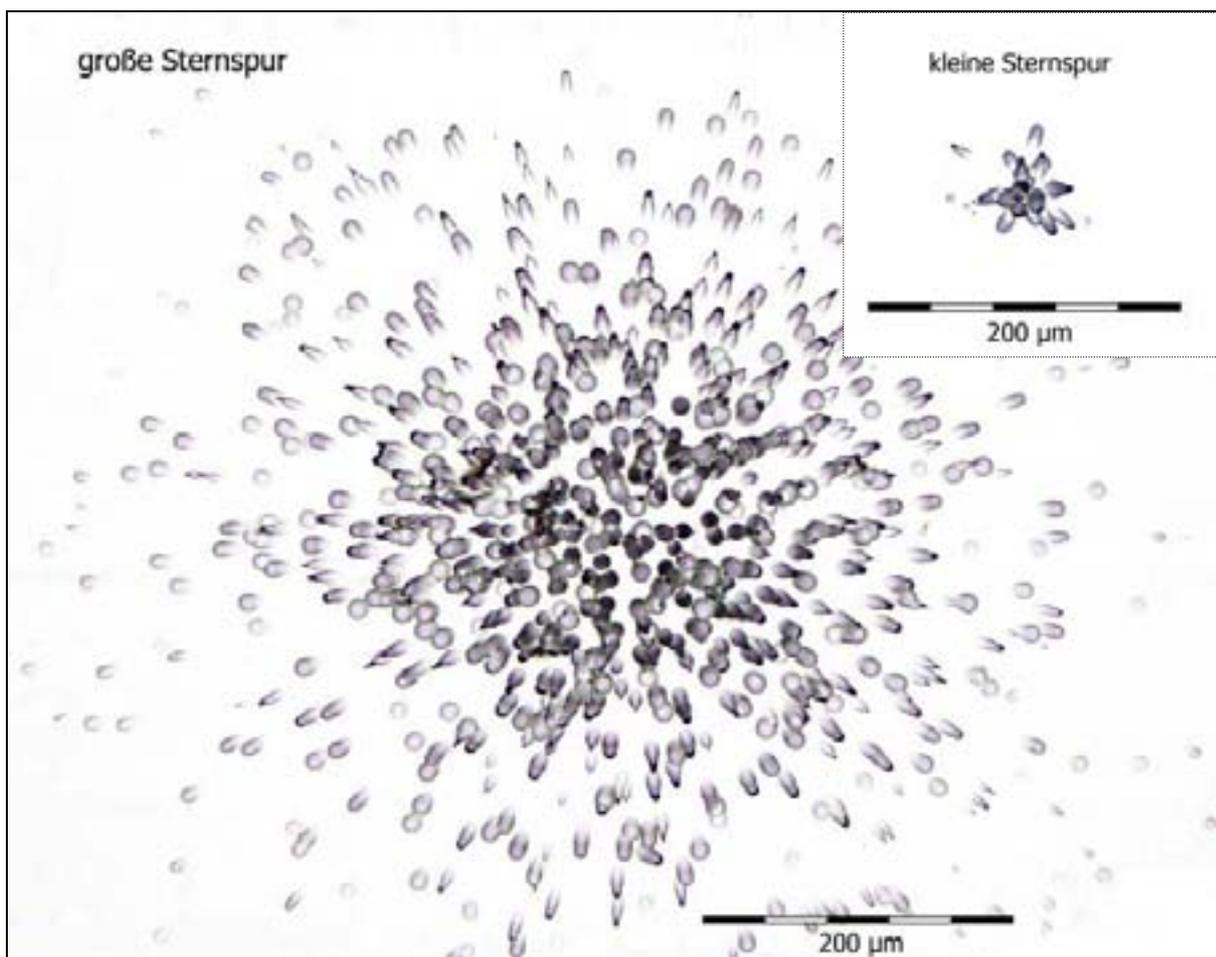
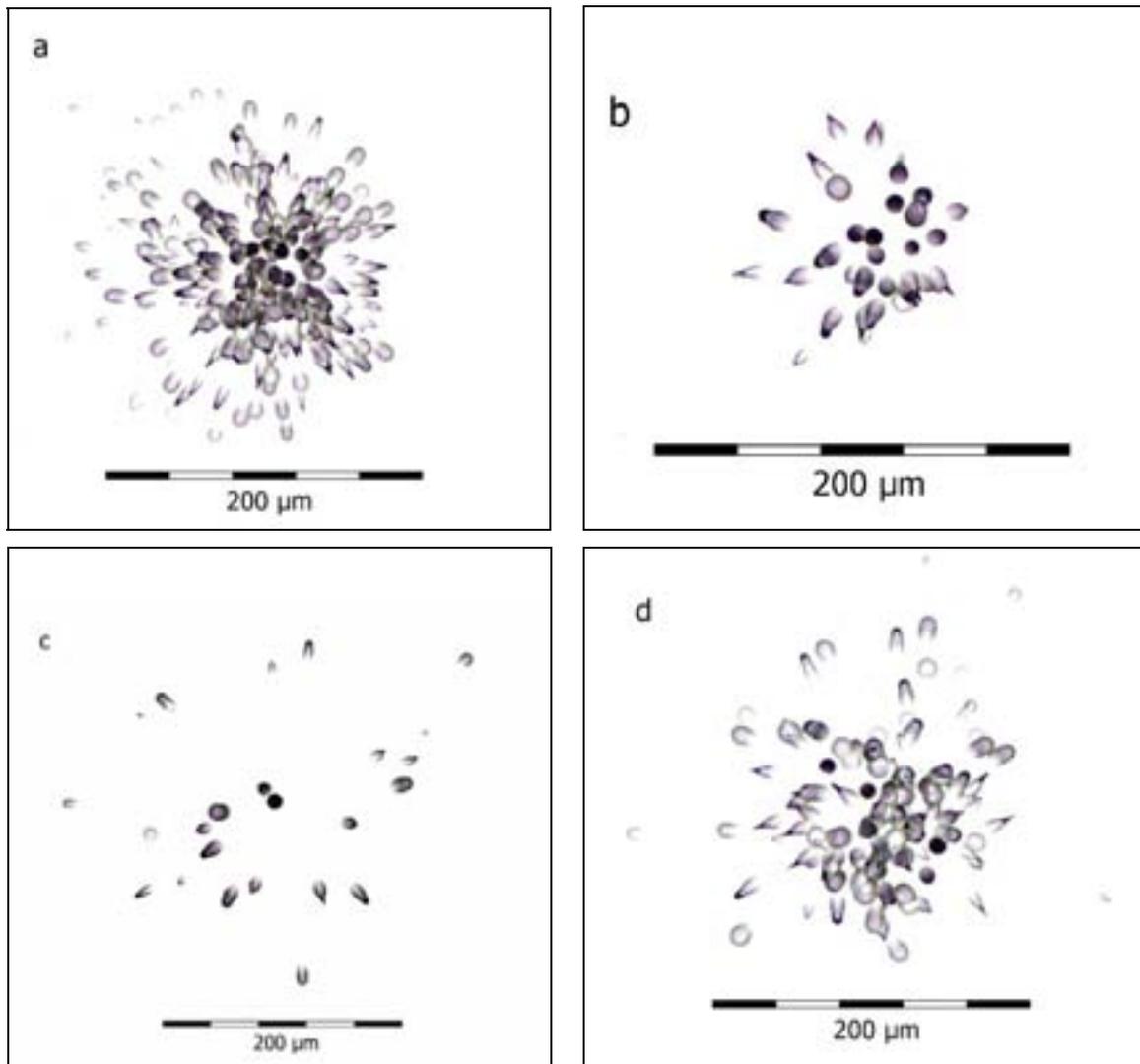


Abb. 15 Abbildungsunterschrift auf folgender Seite

**Abb. 14 und 15** Formen von Sternspurmustern (Sternspuren, Heiße Teilchen-Spuren). Die Spurdichte eines Sternspurmusters ist einerseits abhängig von der spezifischen Aktivität des Alphaemitters (je größer die spezifische Aktivität desto höher die Spurdichte), andererseits von seiner Lage in der Probe. Wegen ihrer geringen Reichweite gelangen nur von oder nahe der Oberfläche emittierte Alphateilchen bis zum Detektor und können Strahlenschäden hervorrufen. Je größer der Abstand zwischen Detektor und Quelle der Alphateilchen ist, desto geringer ist die Zahl der in den Detektor eintretenden Alphateilchen und daraus resultierend die Anzahl der Spuren auf dem Detektor.

Der Durchmesser des Sternspurmusters wird von verschiedenen Faktoren beeinflusst. Dazu gehören:

1. die **Größe** des Alphaemitters (Heißen Teilchens); je größer das Heiße Teilchen ist, desto größer ist auch der Durchmesser des Sternspurmusters,
2. die **Lage** des Alphaemitters (Heißen Teilchens) in der Probe; wegen des fächerförmigen Auseinanderlaufens der Alphabahnspuren von einem Quellpunkt aus würde bei zwei identischen Heißen Teilchen dasjenige eine im Durchmesser größere Spur erzeugen, dessen Abstand zum Detektor größer ist (vgl. Abb. 13), und
3. **Energie** der Alphateilchen, da sie die Reichweite der Alphateilchen bestimmt.

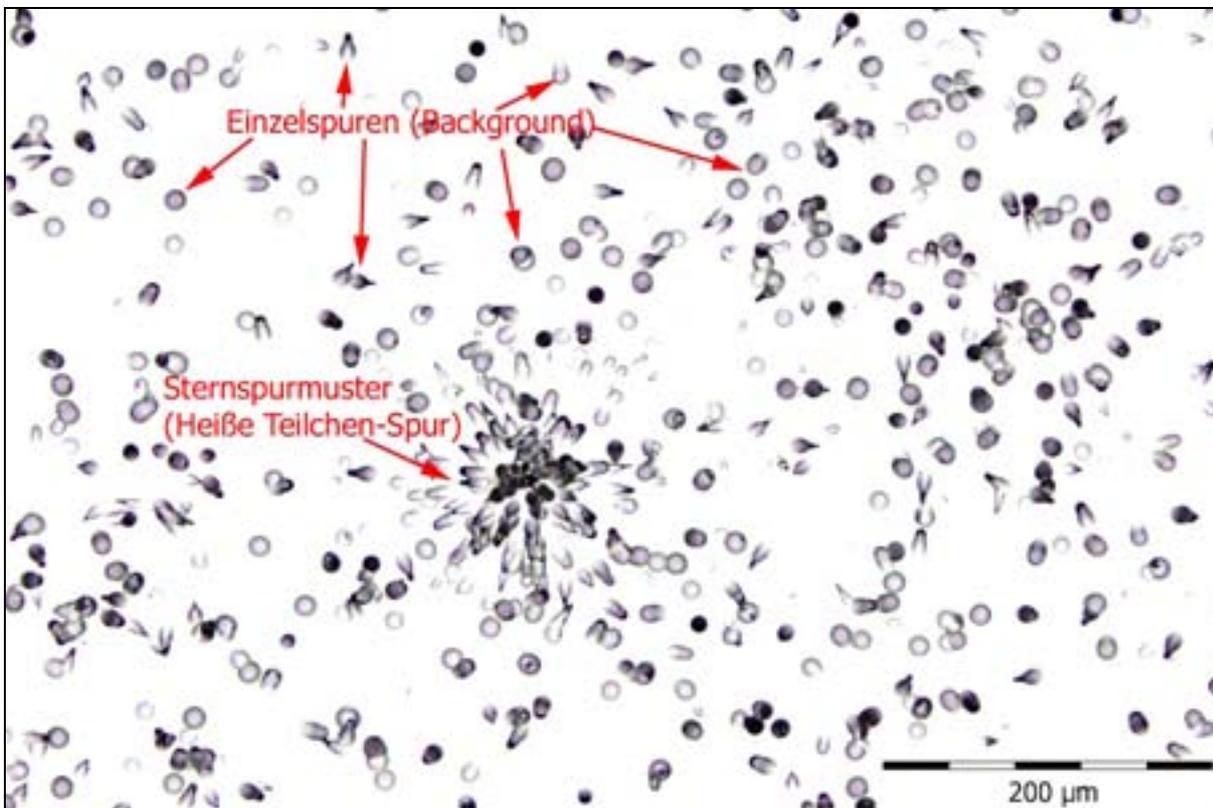


**Abb. 16** Symmetrische (a) und asymmetrische (b-d) Sternspurmuster (Heiße Teilchen-Spuren).

Symmetrische Spuren wie in Bild a können entstehen, wenn alle registrierbaren Alphateilchen einer Quelle ungehindert in den Detektor eindringen können. Wird dagegen ein Teil der Alphateilchen auf dem Weg zum Detektor absorbiert, beispielsweise durch ein zwischen Alphaquelle und Detektor liegendes Sedimentkörnchen, dann werden asymmetrische Spuren wie bei Bild b und c erzeugt. Das Sternspurmuster bei Bild d weist zwar die von einem Zentrum radial verlaufenden Einzelspuren auf, jedoch ist die für Heiße Teilchen-Spuren charakteristische Zentralregion nicht deutlich ausgebildet. Solche Spuren ergeben sich vermutlich dann, wenn die Alphaquelle nicht diskret ist oder wenn sich die Alphabahnspuren diskreter, aber eng benachbarter Alphaquellen überlagern.

### 3.3.2 Spurmuster der homogen verteilten Alphaemitter (Background)

Neben den natürlichen Heißen Teilchen, also den Teilchen, die bei einer sehr geringen Größe eine sehr hohe spezifische Alphaaktivität auf sich konzentrieren, enthalten die in der vorliegenden Arbeit untersuchten Proben auch Radionuklide, die mehr oder weniger homogen in der Probe verteilt sind. Ihre spezifische Aktivität ist verglichen mit den natürlichen Heißen Teilchen deutlich geringer. Auf den Autoradiogrammen von Proben mit homogen verteilten Radionukliden finden sich die gleichen charakteristischen Ätzspuren von Alphateilchen, wie sie auch in den von Heißen Teilchen erzeugten Sternspurmustern beobachtet werden können. Sie werden im Folgenden als Background-Spuren bezeichnet. Im Unterschied zu den Sternspurmustern fügen sich die Background-Spuren nicht zu radial verlaufenden Mustern mit deutlichem Zentrum zusammen. Background-Spuren sind zufällig auf dem Festkörperspurdetektor verstreute und überwiegend homogen verteilte Einzelspuren (Abb. 17). Je nach Raumlage lassen sich auch hier unterschiedliche Anschnitte der Spuren (Ätzkegel der Alphateilchen) beobachten.



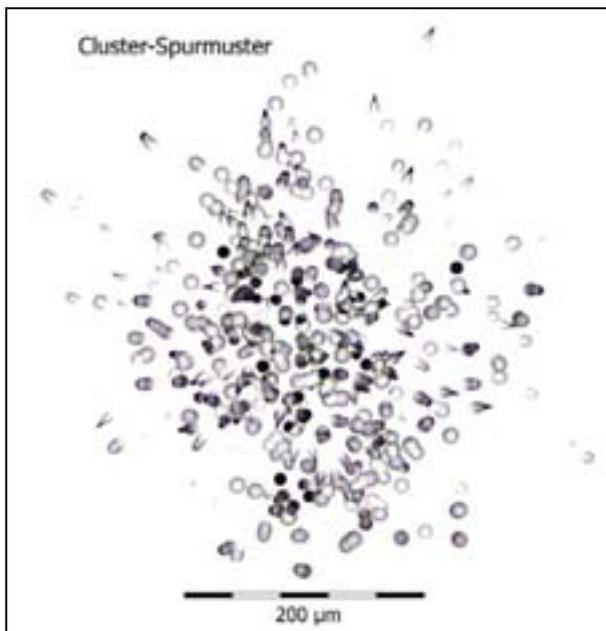
**Abb. 17** Autoradiogramm mit Ätzspuren von Alphateilchen mit sternförmiger Anordnung (Heiße Teilchen-Spur) und chaotischer Anordnung (Background-Spurmuster).

Die Spurdichte von Background-Spuren auf dem Festkörperspurdetektor CR-39 wird durch die Flächenaktivität der Probe und die Expositionszeit bestimmt. Je höher Flächenaktivität und Expositionszeit sind, desto höher ist auch die Spurdichte. Für die Arbeit wird zwischen unterschiedlichen Spurdichten unterschieden (Tab. 7). Inhomogene Verteilungen der Background-Spuren auf dem Autoradiogramm stehen in Zusammenhang mit der Art der Probe. Dabei handelt es sich meist um Anschliffe von Festgesteinsproben, deren Radioaktivität auf ganz bestimmte, eng begrenzte Gesteinsbereiche wie Risse oder Intergranularräume beschränkt ist. Nur von diesen eng begrenzten Bereichen werden Alphateilchen emittiert, der überwiegende Teil des Gesteinsanschliffes sendet keine Alphateilchen aus. Daraus resultierend sind auch die Bereiche mit Spuren auf dem Festkörperspurdetektor (Autoradiogramm) eng begrenzt und demzufolge inhomogen verteilt. Bei einer wolkigen Verteilung konzentrie-

ren sich alle Background-Spuren auf dem Autoradiogramm in wolkenartigen Flecken. Sie ist auf die Probenaufbereitung zurückzuführen und tritt vorwiegend bei sehr feinkörnigem Lockermaterial auf. Zur Fixierung muss dieses eingebettet werden. Dies geschieht mit einem Harz (vgl. Kap. 3.4.1). Bei feinkörnigem Material kommt es häufig vor, dass die einzelnen Sedimentkörnchen nur unvollständig benetzt werden und untereinander zu größeren Partikel agglomerieren. Im Ergebnis dessen erhält man eine Probenoberfläche, die nicht völlig mit Probenmaterial bedeckt ist. Es wechseln sich Bereiche mit agglomerierten Partikeln und Bereiche, die nur aus Harz bestehen, ab. Dadurch entstehen wolkige Verteilungsbilder.

**Tab. 7** Nomenklatur der Spurdichte in Abhängigkeit von der Anzahl der Spuren.

Spurdichte $\delta_{\text{Spur}}$	Anzahl der Spuren pro $\text{cm}^2$
sehr hoch	> 40 000
hoch	20 000 – 40 000
mittel	2000 – 20 000
gering	< 2000



**Abb. 18** Cluster-Spurmuster

Als Cluster-Spurmuster werden Spuranhäufungen bezeichnet. Solche Spuranhäufungen sind Bereiche, die im Vergleich zur Background-Umgebung eine viel höhere Dichte von Spuren aufweisen (Abb. 18). Sie ähneln manchmal den Sternspurmustern, jedoch fehlt ihnen die radiale Ausrichtung der Spuren von einem Punkt aus. Die Cluster-Spurmuster haben überwiegend Durchmesser zwischen 200 und 600  $\mu\text{m}$ .

### 3.4 Techniken und Methoden zur Lokalisierung und Identifizierung natürlicher Heißer Teilchen in festen Proben

#### 3.4.1 Probenpräparation

Voraussetzung für eine Lokalisierung und nachfolgend das Wiederfinden von sehr kleinen Bereichen in einer Probe ist die dauerhafte Fixierung der Probe. Die Fixierung muss derart erfolgen, dass eine anschließende Untersuchung der Probe unter dem Rasterelektronenmikroskop bzw. der Elektronenstrahlmikrosonde möglich ist. Das heißt, das zur Fixierung benutzte Material muss sowohl im Vakuum als auch unter hohen Temperaturen stabil bleiben. Diese Eigenschaften erfüllt Epoxydharz, das zudem eine qualitativ hochwertige Politur der Probenoberfläche gewährleistet. Eine ebene und gut polierte Probenoberfläche ist einerseits unabdingbar für die Untersuchungen mit der Elektronenstrahlmikrosonde, andererseits garantiert sie einen engen und direkten Kontakt zwischen Probenoberfläche und Festkörperspurdetektor, was wegen der geringen Reichweite der zu detektierenden Alphapartikel bedeutsam ist (vgl. Kap. 3.4.2).



**Abb. 19** Sedimentprobe (Flusssand), eingebettet in einen Kunststoff (Epoxydharz) und poliert. Der Durchmesser der Rundprobe beträgt 25 mm. Die drei Bohrungen auf der Probenoberfläche dienen der reproduzierbaren Fixierung des Festkörperspurdetektors.

In die Einspannvorrichtung des Probentisches der Elektronenstrahlmikrosonde passen Proben mit einem Durchmesser von 25 mm und einer Höhe von maximal 17 mm (Abb. 19). Zum Einbetten werden die Proben in ein entsprechend großes Probengefäß mit Epoxydharz als Einbettmittel gegeben. Das Einbettmittel besteht dabei aus 25 g Harz und 3 g Härter (beide kalthärtend). Die Zugabe eines Füllstoffes (Härter) dient der Variation der Härte. Ziel ist es, ähnliche bzw. gleiche Härten von Probe und Einbettmittel zu erreichen, um Reliefunterschiede zwischen beiden gering zu halten oder gar zu vermeiden. Die solchermassen im Probengefäß angerührte Probe kommt anschließend für eine Stunde in den Exsikkator, damit die in den Hohlräumen vorhandene Luft entweichen kann und mit Harz ausgefüllt wird. Anschließend wird das Gefäß mit Harz aufgefüllt, um die Form zum Einspannen in die Mikrosonde zu erreichen (frdl. mündl. Mitt. G. Feldmann, Universität Leipzig). Das Harz braucht 24 Stunden zum Aushärten. Danach wird die Probe in mehreren Schleifschritten, je nach Anforderung, mit einem Anschliffgerät (ARAMIN, Firma Struers) geschliffen. Üblicherweise wird mit den Körnungen 30  $\mu\text{m}$ , 18  $\mu\text{m}$  und 10  $\mu\text{m}$  gearbeitet. Dabei werden die Gefügezerstörungen der

groben Schleifstufe durch die nachfolgend kleinere ausgeglichen. Nach diesen Schleifschritten hat die Probe eine Rauigkeitstiefe von 10  $\mu\text{m}$ . Durch Variation von Körnung, Druck und Geschwindigkeit (Umdrehungszahl) ist eine Anpassung an das Probenmaterial möglich. Letzter Schritt dieser Probenpräparation ist das Polieren der Probe mit Diamantpaste, üblicherweise in 2 Polierstufen (5  $\mu\text{m}$ , 1-0,5  $\mu\text{m}$ ). Am Ende dieses Prozesses hat die Probe eine Rauigkeitstiefe von 1-0,5  $\mu\text{m}$ . Bei sehr kleinen Probenmengen und Einzelkristallen wird nicht geschliffen, sondern nur poliert, um das Material nicht wegzuschleifen.

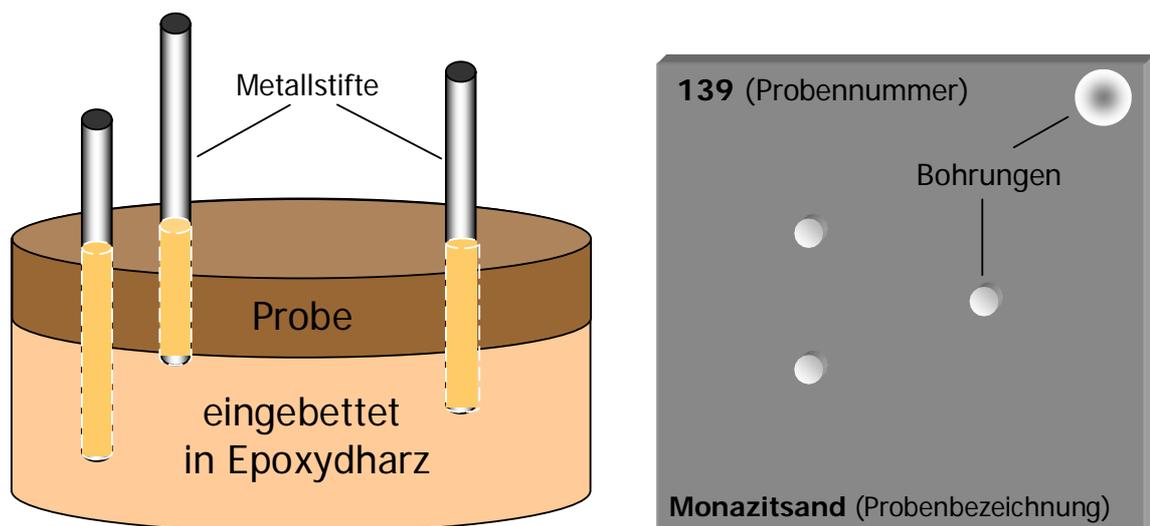
Die Einbettung sehr feinkörniger Probenmaterialien ist bisweilen nicht problemlos. Das Einbettmedium kann in feinporige Proben schwerer eindringen als in grobporige. In der Folge führt eine fehlende Benetzung der Partikel dann zu Ausbrüchen von Material und einer rauen Probenoberfläche.

In Epoxydharz eingebettete, sehr feinkörnige Probenmaterialien weisen häufig eine inhomogene Verteilung von Probenmaterial an der Probenoberfläche auf. Die feinen Partikel neigen offensichtlich dazu, im Einbettmedium zu größeren Aggregaten zu agglomerieren.

### 3.4.2 Ortsbestimmung natürlicher Heißer Teilchen in festen Proben mit Festkörperspurdetektoren

#### 3.4.2.1 Vorbereitung von Probe und Festkörperspurdetektor für die Exposition

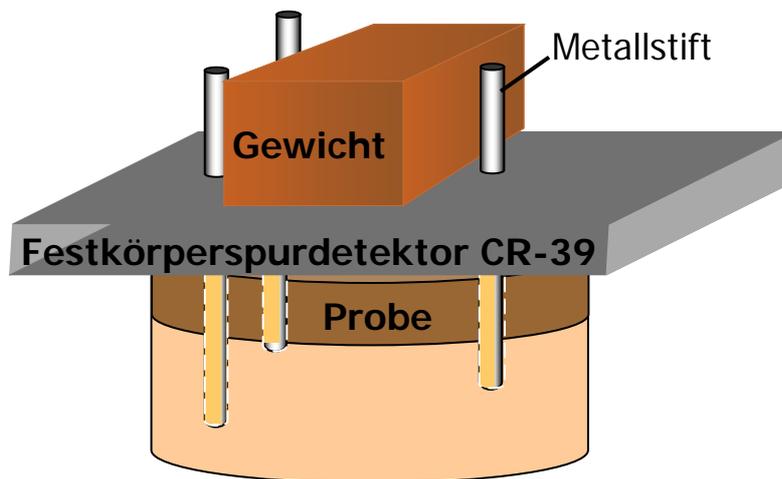
Im Ergebnis der Arbeit wurde eine Detektionstechnik entwickelt, mit der es mit Hilfe von Festkörperspurdetektoren möglich ist, in festen Proben den Ort von alphaemittierenden Teilchen zu ermitteln (BÖHNKE et al. 2005). Aus der Probenpräparation mit Epoxydharz resultiert eine zylinderförmige Probe mit einem Durchmesser von 25 mm, einer Oberfläche von 4,9  $\text{cm}^2$  und einer Dicke zwischen 10 und maximal 17 mm (Abb. 19, 20), wobei die Größe dieser in Epoxydharz eingebetteten Probe durch das Volumen der Probenkammer der Mikrosonde limitiert wird. Auf der Oberfläche dieser Probe wird der Festkörperspurdetektor exponiert (vom lat.: *expositio*: Aussetzung).



**Abb. 20** Für die Exposition präparierte Probe und Festkörperspurdetektor, schematische Darstellung. Erläuterungen im Text.

Die in dieser Arbeit verwendeten Festkörperspurdetektoren CR-39 der Firma ALTRAC (Dr. A. Guhr) haben eine Dicke von 1100  $\mu\text{m}$  und einer Größe von 50×50 mm bzw. 30×30 mm für sehr kleine Probenmengen und Einzelkristalle. Um zu gewährleisten, dass der Festkörperspurdetektor eine unverrückbare Position auf der Probenoberfläche einnimmt, und diese auch

nach dem Entfernen des Detektors wieder hergestellt werden kann, erhalten die in Epoxdharz eingebettete Probe als auch der Festkörperspurdetektor je 3 kleine, äquidistante Bohrungen (Abb. 20). Mit Hilfe von drei kleinen Metallstiften erhält der Festkörperspurdetektor eine exakte und wieder zuordenbare Position auf der Probe (Abb. 20, 21). Der Durchmesser von Bohrungen und Metallstiften muss so gewählt werden, dass die Stifte sehr fest in der Bohrung sitzen und keinen Bewegungsspielraum haben. Um Seitenverwechslungen bei der Wiederherstellung der Detektor-Probe-Anordnung zu vermeiden, zeichnen die Bohrpunkte die Form eines gleichschenkligen Dreiecks nach. Der Festkörperspurdetektor wird mit einem geeigneten Werkzeug (z.B. Glasschreiber) entsprechend den Anforderungen (Expositionsnummer, Art der exponierten Probe) beschriftet (Abb. 20). Die Markierung ist so zu wählen, dass sie einer Behandlung mit einer Ätzflüssigkeit standhält, z.B. indem sie eingeritzt wird. Um den Nulleffekt des Detektors bestimmen zu können, wird ein marginaler, schmaler Streifen des Detektors mit einem Klebeband (z.B. PVC-Isolierband) abgedeckt, bevor der Detektor CR-39 auf der Probe exponiert wird. Das Klebeband wird auf der zu exponierenden Detektorseite angebracht. Nach Abschluss dieser vorbereitenden Arbeiten kann der Detektor auf der Probenoberfläche exponiert werden. Um den engen Kontakt zwischen Probe und Detektor zu gewährleisten, wird der Festkörperspurdetektor mit einem Gewicht (z.B. Bleiklotz) beschwert (Abb. 21).



**Abb. 21** Schematische Experimentanordnung von Probe und Detektor bei der Exposition.

Die Expositionsdauer wird durch die spezifische Aktivität des Probenmaterials bestimmt und liegt zwischen 3 Stunden (z.B. Pechblendegranit) und 3 Monaten (z.B. Flusssedimente). Sie muss mit Hilfe von Testexpositionen abgeschätzt werden. Dazu genügt es, das nicht eingebettete Probenmaterial zu exponieren. Dies geschieht bei Festgestein, indem eine ebene und glatte Probenoberfläche auf den Detektor gelegt wird. Für die Exposition von Lockermaterial wird ein beschrifteter und mit Klebeband (siehe Beschreibung oben) versehener Detektor vollständig mit Probenmaterial bedeckt und eine Glasscheibe (Glasdia) passender Größe aufgelegt. Diese Sandwich-Probenanordnung wird mit einem Gewicht beschwert. Die Testexpositionen dienen auch zur Prüfung, ob in Proben natürliche Heiße Teilchen vorkommen. Proben, die keine oder nur sehr wenige bzw. schlecht ausgebildete Sternspurmuster auf dem Detektor erzeugt haben, brauchen nicht eingebettet werden, da keine Notwendigkeit für die Untersuchung mit dem Elektronenmikroskop besteht. In Abhängigkeit von der Art der Probe (Gesteinsstücke, Kristalle, Lockermaterial) und ihrer Präparation (eingebettete Rundprobe, nicht eingebettete Probe auf gesamtem Detektor verteilt) werden verschieden große Probenoberflächen exponiert. Während der Dauer der Exposition wird das Detektor-Probe-Arrangement in einer geschlossenen Aluminium- oder Kunststoffbox aufbewahrt, um Einflüsse von Außen auszuschließen. Die Versuchsanordnung darf während der gesamten Expositionsdauer keinesfalls bewegt werden.

### 3.4.2.2 Ätztechnik für die Festkörperspurdetektoren

Ist das Ende der Expositionszeit erreicht, wird der Festkörperspurdetektor CR-39 von der Probe genommen und das Klebeband entfernt. Außerdem wird in eine Ecke des Detektors eine kleine Öffnung gebohrt (Abb. 20). Diese dient der Aufhängung im Ätzbad. Die wesentlichen Grundlagen zu Versuchsausrüstung, Versuchsaufbau und Ätztechnik bei Experimenten mit Festkörperspurdetektoren sind bei (ENGE 1980) zusammenfassend dargestellt. Die nachfolgend beschriebene chemische Behandlung des Detektors folgt im Wesentlichen dem dort beschriebenen Verfahren. Die zu ätzenden Festkörperspurdetektoren werden mit Hilfe der Eckbohrung auf eine Kunststoffstange gefädelt. Damit sie sich nicht gegenseitig berühren und dadurch der Ätzprozess behindert wird, wird jeweils ein Distanzstück (Perle) zwischen je zwei Detektoren gefädelt. Die Stange wird auf das Ätzgestell gelegt (Abb. 22) und dieses in der Ätzflüssigkeit positioniert. Auf diese Weise können bis zu 10 Detektoren gleichzeitig mit gutem Ergebnis geätzt werden. Als Ätzflüssigkeit dient eine 7,25 M Natronlauge (NaOH), die in ein temperaturstabiles Wasserbad eingebracht wird. Die Ätzzeit beträgt 6 Stunden bei konstant 70°C.

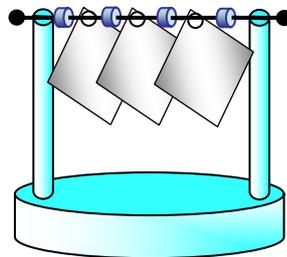


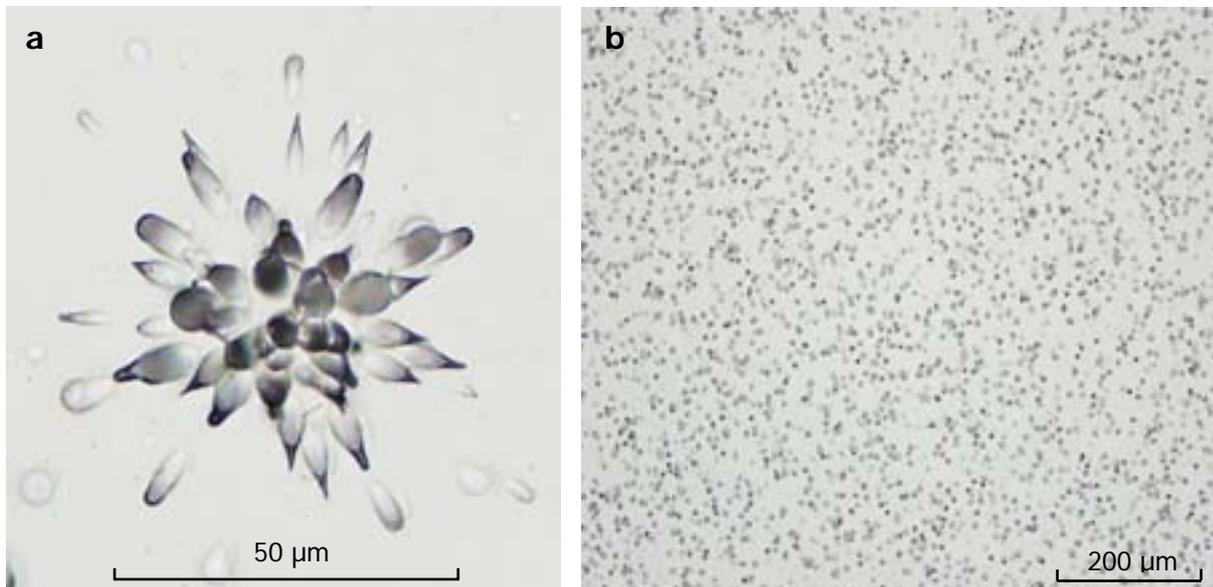
Abb. 22 Schematische Darstellung des Ätzgestells mit drei aufgefädelten Festkörperspurdetektoren.

Nach dem Ende der Ätzzeit werden die Detektoren ca. 30 Minuten unter fließendem Wasser gespült. Es hat sich als günstig erwiesen, zu Beginn des Reinigungsvorgangs heißes Wasser zu verwenden. Anschließend werden die geätzten Detektoren noch 15 Minuten in einem Ultraschallbad gereinigt und dann getrocknet. Sie können nun mit dem Lichtmikroskop untersucht werden.

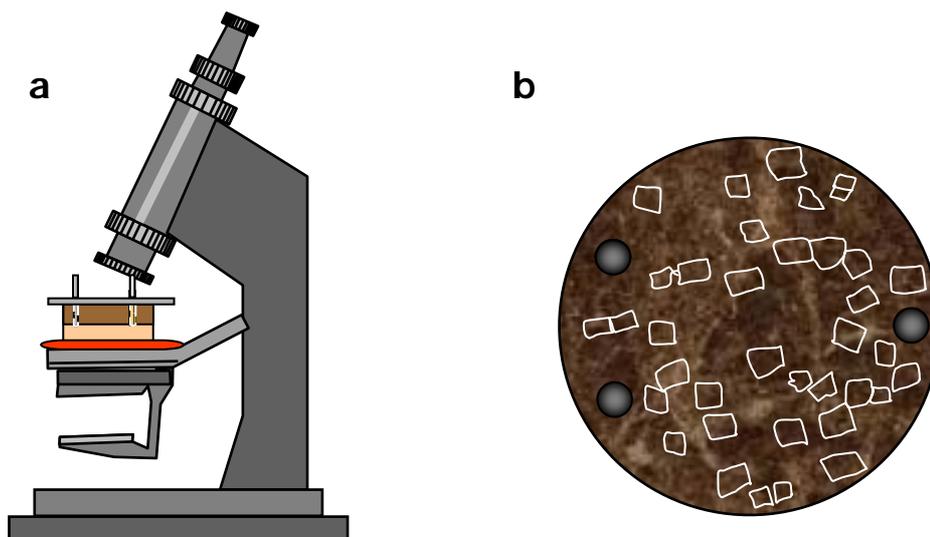
### 3.4.2.3 Lichtmikroskopische Untersuchungen

Erster Schritt bei den mikroskopischen Untersuchungen ist es, den Festkörperspurdetektor auf Vorhandensein, Anzahl, Verteilung und Ausbildung von Alphaspuren zu prüfen, und damit Beweise für die Existenz von natürlichen Heißen Teilchen und deren Verteilung in der untersuchten Probe zu finden. Während eine homogene Kontamination der Probe mit Alphaemittern eine halb zufällige (chaotische) Verteilung der Alphaspuren auf dem Festkörperspurdetektor bewirkt, verursachen Heiße Teilchen ein charakteristisches Sternspur-Muster der Alphaspuren (Abb. 23). Kann anhand der Ätzspuren-Muster auf dem Detektor auf die Existenz von natürlichen Heißen Teilchen in der Probe geschlossen werden, müssen diese auf der Probenoberfläche lokalisiert und gekennzeichnet werden. Dazu wird als erstes die polierte Probe waagrecht auf dem Mikroskoptisch befestigt (Abb. 24a), günstigerweise mit einem Material, das formbar, dauerhaft plastisch und haftend, aber trotzdem wieder ablösbar ist. Idealerweise sollte es nicht schrumpfen, austrocknen, aushärten und nicht giftig sein. Im Handel findet man verschiedene, für diesen Zweck geeignete Materialien, z.B. Blu Tack® (synthetisches Polymer), Kautschuk-Kitt oder Silikon-Kautschuk. Bei der vorliegenden Arbeit wurde ein chemoplastischer Kitt auf Silikon-Kautschuk-Basis verwendet. Anschließend wird der zugehörige Detektor mit Hilfe der Bohrungen und Stifte (Abb. 20) wieder auf der so fixierten Probe posi-

tioniert und zwar in der Weise, dass die Anordnung dem Versuchsaufbau bei der Exposition entspricht (Abb. 21). Eine exakte Positionierung im Bereich von 1-10  $\mu\text{m}$  kann nicht erreicht werden, da die Bohrungen so groß gewählt werden müssen, dass die Metallstifte gerade noch von der Probe und vom Detektor entfernt werden können. Daraus kann sich eine geringe Verschiebung des Detektors auf der Probe ergeben.

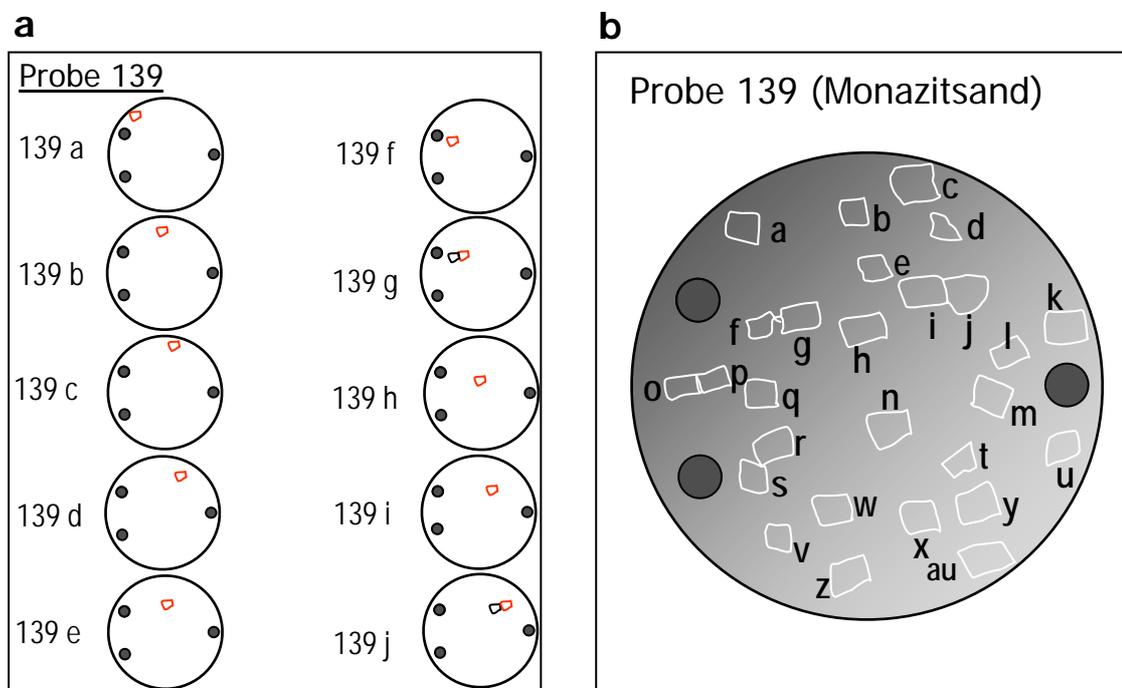


**Abb. 23** Ätzspuren von Alphateilchen auf einem Festkörperspurdetektor CR-39. In Bild **a** haben die Spuren das charakteristische, von Heißen Teilchen erzeugte, sternförmige Muster. Typisch ist die gut ausgebildete Zentralregion solcher Spuren, unter der der punktförmige Alphaemitter in der Probe vermutet werden muss. Probe: uranhaltiges Blind River-Konglomerat (Ontario, Kanada). In Bild **b** sind die Alphaspuren chaotisch angeordnet, was auf eine uniforme Kontamination der Probe mit Alphaemittern ohne die Existenz von Emittlern mit hoher spezifischer Aktivität hinweist. Probe: Uranblech.



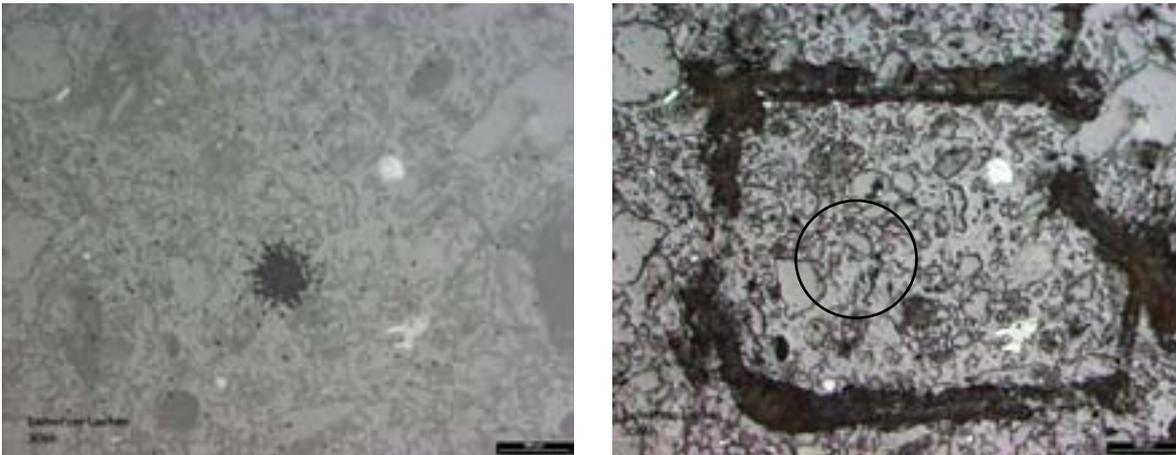
**Abb. 24 a:** Fixierung der Probe mit dem zugehörigen Detektor auf dem Mikroskopiertisch mit einem ablösbaren Haftmittel (rot). **b:** Markierte Probenoberfläche.

Der Arbeitsabstand zwischen Objektiven und Mikroskopisch muss ausreichend groß sein, um die mikroskopischen Untersuchungen an diesem im Mittel 17 mm dicken Probenarrangement gewährleisten zu können. Das Mikroskop sollte ein Sucherokular mit Formatmasken und Doppelfadenkreuz besitzen. Die auf dem Detektor gefundene sternenförmige Heiße Teilchen-Spur wird mit ihrem Mittelpunkt exakt in das Zentrum dieses Fadenkreuzes gestellt. Dann wird - ohne dass der Mikroskopisch in horizontaler Richtung bewegt wird - der Detektor von der Probe entfernt und das Okular auf die Probe fokussiert. Mit Hilfe eines geeigneten Werkzeugs (z.B. Nadel) wird nun um das Zentrum des Fadenkreuzes eine Markierung auf die Probenoberfläche geritzt (Abb. 24b). Dabei kann man einer der Formatmasken des Sucherokulars folgen. Der markierte Bereich sollte so klein wie möglich gehalten werden, um die sich anschließende Suche nach natürlichen Heißen Teilchen mit dem Elektronenmikroskop zu erleichtern. Sind weitere Sternspurmuster auf dem Detektor vorhanden, wird das beschriebene Verfahren so lange wiederholt, bis die Bereiche mit Heißen Teilchen auf der Probenoberfläche markiert sind. Dabei ist es nicht immer möglich oder sinnvoll, die Position aller auf dem Detektor vorhandener Sternspurmuster auf der Probenoberfläche zu kennzeichnen, z.B. wenn die Zahl der Sternspurmuster sehr hoch ist oder die Ausbildung der Sternspurmuster (klein, geringe Spurdichte, großes Zentrum) vermuten lässt, dass eine Suche nach den entsprechenden Alphaemittern nicht Erfolg versprechend ist. Es muss eine sinnvolle Auswahl getroffen werden. Um der Spur später die unter dem Elektronenmikroskop ermittelten Daten zuzuordnen zu können und gleichzeitig das Wiederfinden der markierten Bereiche unter dem Elektronenmikroskop zu vereinfachen, werden die Spuren mit Buchstaben oder Zahlen gekennzeichnet und ihre Position auf der Probe auf einem Blatt Papier festgehalten (Abb. 25). Von Heißer Teilchen-Spur (Sternspur) und zugehöriger Markierung werden mit einer Digitalkamera jeweils Fotografien angefertigt (Abb. 26). Sind alle Bereiche markiert, wird abschließend die Probe gescannt oder fotokopiert, um einen Überblick über die Position der Markierungen auf der Probenoberfläche zu erhalten (Abb. 25).



**Abb. 25** Während der mikroskopischen Untersuchungen wird die mit Buchstaben gekennzeichnete Position der Markierungen einer Probe auf einem Papier dokumentiert (a). Sind alle Markierungen auf die Probe geritzt, wird diese abschließend gescannt oder fotokopiert, um eine Oberfläche der Probe mit der Lage der Markierungen zu erhalten. Die Abbildung wird dabei stark vergrößert und die Markierungen nachfolgend mit den entsprechenden Buchstaben gekennzeichnet (b). Dieses Verfahren erleichtert die Lokalisierung der zu untersuchenden Probenbereiche bei der Analyse mit dem Elektronenmikroskop.

Die so präparierte Probe kann anschließend den elektronenmikroskopischen Untersuchungen zugeführt werden, um in den markierten Bereichen nach Heißen Teilchen zu suchen.



**Abb. 26** Linkes Bild: Aufsicht auf ein Detektor-Probe-Arrangement unter dem Lichtmikroskop. In der Bildmitte ist auf dem Detektor ein von einem natürlichen Heißen Teilchen erzeugtes Sternspurmuster zu erkennen (schwarz). Unter dem durchsichtigen Detektor ist die Probenoberfläche zu sehen.

Rechtes Bild: Gleiches Bild wie in der linken Abbildung, jedoch nach Entfernung des Detektors. Die durch das Sternspurmuster angegebene Lage des natürlichen Heißen Teilchens wurde auf der Probenoberfläche durch eine Ritzung markiert. Die runde Markierung wurde nachträglich mit Hilfe des Bildbearbeitungsprogrammes der Digitalkamera eingefügt, um die mögliche Lage des gesuchten Alphaemitters einzugrenzen.

Beide Bilder wurden mit einer Digitalkamera aufgenommen. Der Maßstabsbalken entspricht 200  $\mu\text{m}$ .

### 3.4.3 Identifizierung natürlicher Heißen Teilchen mittels Elektronenmikroskopie

#### 3.4.3.1 Messbedingungen

Für die Identifizierung und Abbildung der gesuchten Radionuklide ist die Mikrobereichsanalyse unverzichtbar. Zur qualitativen sowie halbquantitativen chemischen Analyse dieser submikroskopisch kleinen Partikel wurden sowohl ein **Rasterelektronenmikroskop** als auch eine **Elektronenstrahl-Mikrosonde** genutzt. Die Analysen mit dem Rasterelektronenmikroskop wurden im mpa-Labor für Materialprüfung und -analyse GmbH (Leipzig) mit einem Rasterelektronenmikroskop JEOL-JSM 5400 mit EDX-NORAN Sigma 2 (energie-dispersive Analyse) durchgeführt. Die Untersuchungen an der Elektronenstrahl-Mikrosonde erfolgten im Institut für Mineralogie, Kristallographie und Materialwissenschaft der Universität Leipzig mit einer CAMECA SX 100 (wellenlängendispersive Analyse).

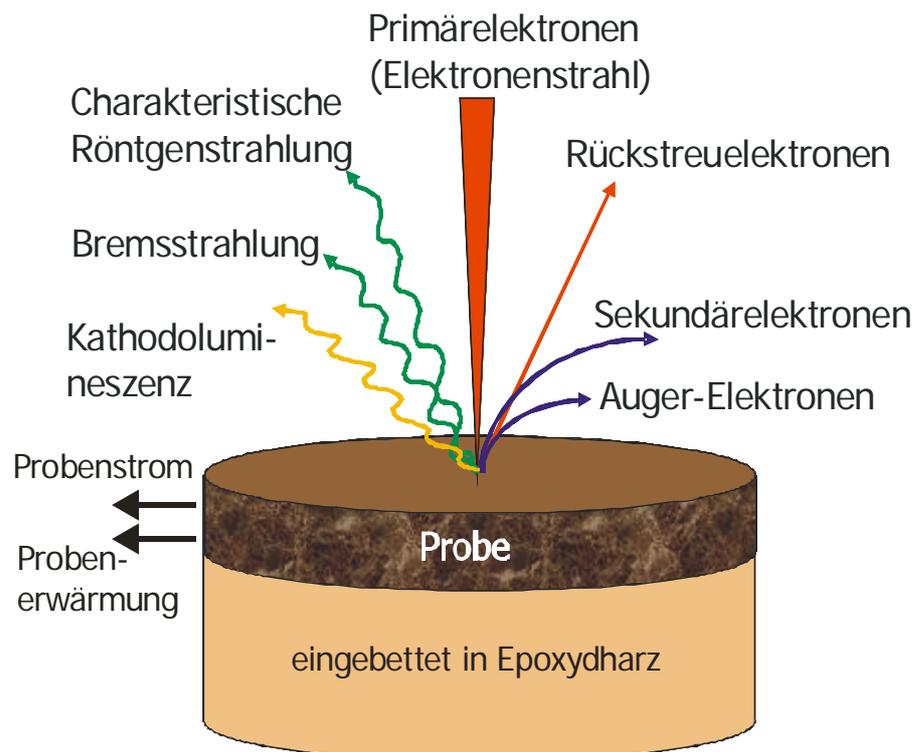
Die Nutzung zweier verschiedener Elektronenmikroskope mit unterschiedlicher Technik für die Analytik der in der vorliegenden Arbeit untersuchten Proben resultierte aus den zur Verfügung stehenden finanziellen, zeitlichen und fachlichen Kapazitäten.

Die Analytik an beiden Elektronenmikroskopen fand unter folgenden Messbedingungen statt:

- Beschleunigungsspannung: 20 keV
- Strahlstromstärke: 20-100nA
- Durchmesser des Elektronenstrahls: 1-30  $\mu\text{m}$
- Zählzeiten: mindestens 3 Minuten; je nach Anforderung längere Messzeiten für detaillierte Messungen (bis 10 Minuten pro Messung)

### 3.4.3.2 Physikalischer Hintergrund

Physikalischer Hintergrund beider elektronenmikroskopischer Methoden ist die Ausnutzung der Wechselwirkungen von energiereichen Elektronen mit den Atomen aus den oberflächennahen Schichten der zu untersuchenden Probe. Mit einem fein fokussierten Elektronenstrahl, mit einem Durchmesser von minimal  $1\ \mu\text{m}$ , wird die zu untersuchende Probe abgetastet. Die dabei auftretenden Wechselwirkungssignale (z.B. Röntgenstrahlung) zwischen den Primärelektronen und einem frei wählbaren Probenausschnitt (Abb. 27) erlauben qualitative und quantitative analytische Aussagen. Die charakteristische Röntgenstrahlung ist für jedes in der Probe vorkommende Element spezifisch.

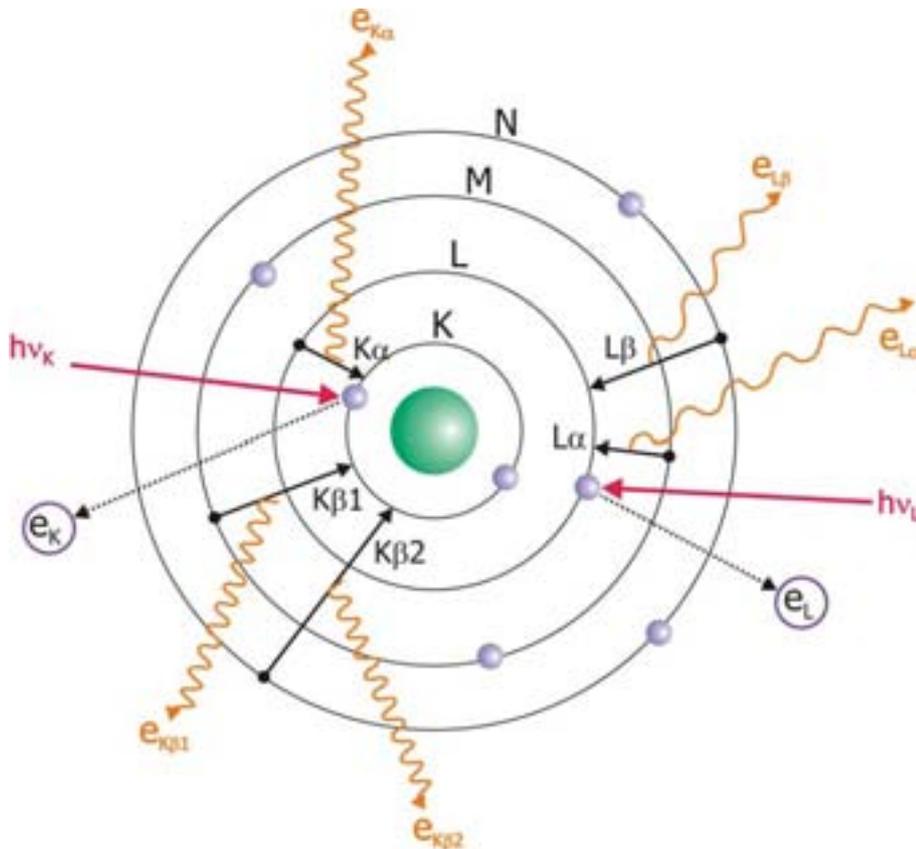


**Abb. 27** Die Oberfläche einer polierten Rundprobe wird von einem beschleunigten und fokussierten Elektronenstrahl beaufschlagt. Infolge dessen kommt es zu einer Vielzahl von Wechselwirkungen zwischen den Primärelektronen und dem bombardierten Probenausschnitt, wobei u. a. Sekundärelektronen, Rückstreuelektronen und die charakteristischen Röntgenstrahlen entstehen. Mit Hilfe letzterer ist eine Bestimmung der chemischen Oberflächenzusammensetzung ortsabhängig möglich.

Grundlage der Röntgenspektrometrie ist die Reflexion der Röntgenstrahlen an Kristallen. Die charakteristische Röntgenstrahlung entsteht infolge des Herausschlagens von Elektronen aus den inneren Elektronenschalen der Festkörperatome und der Wiederbesetzung der Leerplätze durch Elektronen aus weiter außen liegenden Schalen. Zur Darstellung dieses Prozesses wird eine modellmäßig angenommene Atomhülle (*Bohrsches Schalenmodell*) verwendet (SCHWEDT 1995). Danach besteht das Atom aus einem positiv geladenen Kern und Elektronen, die den Kern auf diskreten konzentrischen Bahnen umkreisen (Abb. 28).

Ein Elektron einer inneren Elektronenbahn kann durch erheblichen Energieaufwand aus der Atomhülle entfernt werden. Bei der Elektronenmikroskopie wird dies durch den Beschuss mit hochenergetischen Elektronen herbeigeführt. Je nachdem das herausgestossene Elektron von der innersten, zweitinnersten, drittinnersten Bahn stammt, spricht man von K-, L-, M-Erregung. Entsprechend heißen die Elektronengruppen in den Atomen K-, L-, M-Gruppe (GRAEWE 1988). Die so entstandene Lücke wird durch Elektronen höherer Schalen wieder

ausgefüllt. Bei diesem Quantensprung wird ein Photon mit einer Energie der Größenordnung 1 keV emittiert – die Röntgenstrahlung. Endigen die Quantensprünge in der K-Gruppe, so bildet ihre Gesamtheit die K-Serie. Entsprechend entstehen die L-, M- und N-Serie. Der EDX-Detektor des Rasterelektronenmikroskops erfasst die Röntgenstrahlung und misst die Energie jedes eintreffenden Röntgenphotons. Diese Photonen sind auf dem Spektrum als scharfe Peaks zu erkennen. Die Röntgenspektren bestehen aus dem kontinuierlichen Bremsstrahlungsuntergrund und den für jede Atomsorte spezifischen charakteristischen Linien (K-, L-, M-Serie..).



**Abb. 28** Modellmäßig angenommene Atomhülle mit den Elektronenschalen K, L, M, und N zur Darstellung des Prinzips der Anregung bei der Röntgenspektrometrie. Nach SCHWEDT (1995), verändert. Dabei ist:  $h\nu$ =anregende Strahlung/Energie ( $E=h\cdot\nu$ ) mit  $h$ =Plancksches Wirkungsquantum und  $\nu$ =Frequenz;  $e_{K/L}$ =herausgeschlagenes Elektron von K- bzw. L-Schale;  $e_{K\alpha/\beta}$ =charakteristische Röntgenstrahlung.

Die Röntgenemissionslinien werden mit Buchstaben bezeichnet ( $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\gamma$ ,  $\eta$ ), wobei jeweils bei einer Serie diejenige Linie mit dem Index  $\alpha$  die langwelligste ist. Fehlt beispielsweise ein Elektron der K-Schale, so ist sein Ersatz durch ein Elektron der benachbarten L-Schale am wahrscheinlichsten. Der mit diesem Quantensprung frei gewordene Energiebetrag wird im K-Spektrum durch die stärkste Linie, die  $K_\alpha$ -Linie (Abb. 29), charakterisiert. Wird das Elektron nicht durch ein Elektron der L-Schale, sondern der M-Schale aufgefüllt, so entspricht dem zugehörigen Quantensprung die Aussendung der nächsten Linie des K-Spektrum, der  $K_\beta$ -Linie (Abb. 29). Für die K-, L-, M-, N-Anregung des Atoms sind ganz bestimmte Energiebeträge notwendig. Diese sind für ein Elektron einer äußeren Schale erheblich geringer als bei einem Elektron einer inneren Schale. Diesen Energiebeträgen entsprechen die Anregungsspannungen, die beständig abnehmen, wenn man von einer inneren zu einer äußeren Gruppe übergeht. Ist die Anregungsenergie einer bestimmten Gruppe nicht erreicht, so erscheint die

betreffende Serie nicht im Spektrogramm (GRAEWE 1988). Beispielsweise liegt die Anregungsenergie für Uran für die K-Gruppe bei über 100 keV und damit deutlich über dem hier benutzten Anregungspotential (Beschleunigungsspannung) von 20 keV. Deshalb findet man beispielsweise für Uran keine Linien der K-Serie im Röntgenemissionsspektrum.

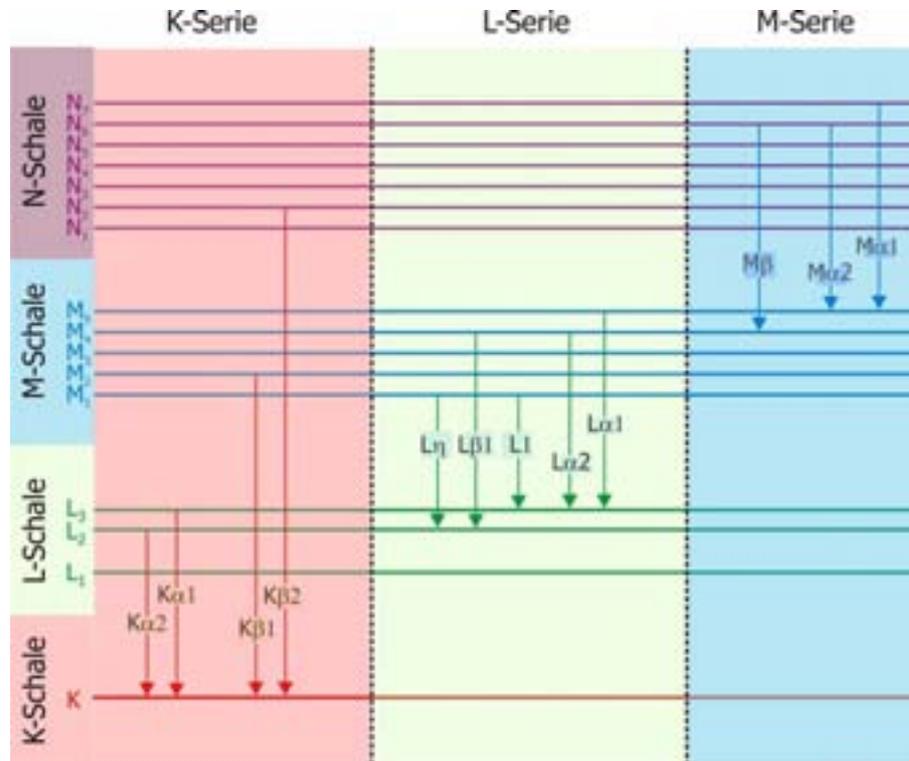


Abb. 29 Termschema zur Bezeichnung der Röntgenemissionslinien der K-, L- und M-Serien (Auswahl). Nach SCHWEDT (1995), verändert.

### 3.4.3.3 Energiedispersive und wellenlängendispersive Analyse

Mit der qualitativen Analyse der Elektronenmikroskopie ist es möglich, die gleichzeitig ausgesandten Röntgenstrahlungen eines Probenausschnittes zu trennen und die Röntgensignale zu messen. Zur Auftrennung werden zwei Techniken angewandt:

- die *energiedispersive* Analyse (EDX),
- die *wellenlängendispersive* Analyse (WDX).

Mit der EDX wird die gesamte Röntgenstrahlung in elektrische Impulse umgesetzt und die Energie der Quanten gemessen. Die Auflösung dieses Verfahrens liegt bei etwa 150 eV und Gehalten von mehr als 1%. Linienüberlappungen im Röntgenemissionsspektrum lassen sich oft schlecht trennen, jedoch erhält man mit der EDX ein Bildspektrum für alle Elemente gleichzeitig. Leichte Elemente wie O, N, B sind bei der EDX meist schwer nachzuweisen, besonders in Anwesenheit von schweren Elementen (REED 1993).

Die wellenlängendispersive Analyse (WDX) beruht auf der Messung der Wellenlänge der Röntgenstrahlen. Sie macht sich das Prinzip der Braggreflexion an Kristallen oder Schichtstrukturen zu Nutze, setzt also verschiedene Frequenzen oder Wellenlängen in unterschiedliche Winkel  $\alpha$  um. Die Reflexion erfolgt an geeigneten Monochromatorkristallen. Die Auflö-

sung eines solchen Spektrometers ist erheblich höher und beträgt ca. 10 eV. Für die meisten chemischen Elemente werden hier Nachweisgrenzen von einigen 100 ppm erreicht. Dies ist aber auch abhängig von der Zusammensetzung der Probe (GOLDSTEIN et al. 1992). Es können alle Elemente mit Ordnungszahlen  $>4$  (=Beryllium) gemessen werden.

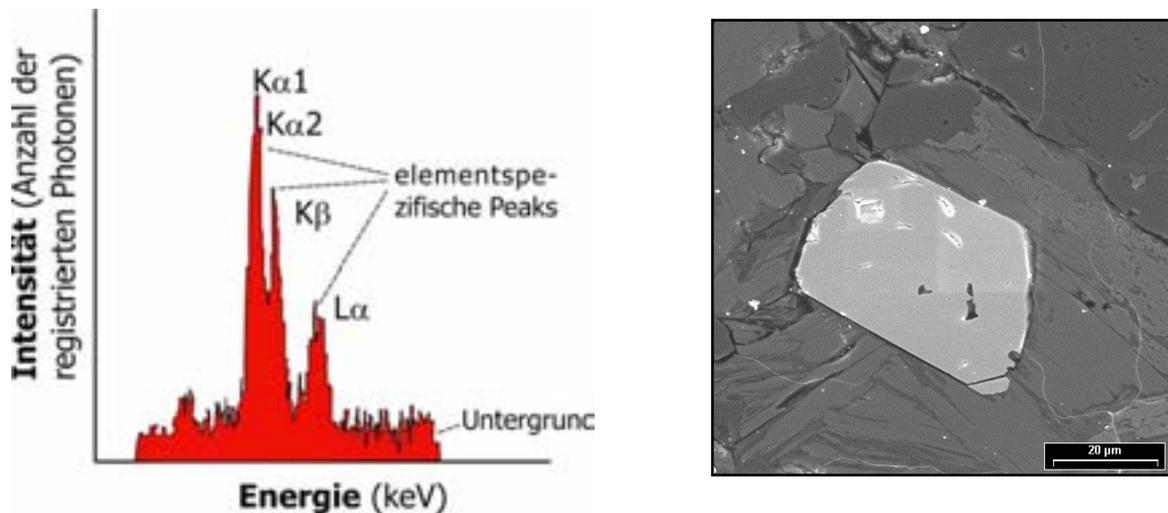
Das WDX-System ist historisch gesehen das erste Röntgenmikroanalyse-System, das in Kombination mit der Anregung von Proben durch Elektronen verwendet wurde. Es hat eigentlich die gleichen Einsatzbereiche wie das EDX-System, weist aber diesem gegenüber einige Vorteile auf. So ist das spektrale Auflösungsvermögen bei einem WDX um mehr als eine Größenordnung besser als bei den diesbezüglich besten EDX-Systemen. Elemente mit sehr eng benachbarten Linien können infolge des physikalisch begrenzten spektralen Auflösungsvermögens von EDX-Systemen nicht sicher getrennt werden. Bei WDX-Systemen entfällt diese Beschränkung. Daraus resultiert ein besseres Linien/Untergrundverhältnis und damit eine entsprechend bessere Nachweisempfindlichkeit sowie kleinere zufällige Meßfehler bei WDX-Systemen. Erkauft werden diese Vorteile mit einer längeren Analysenzeit und einer höheren Probenbelastung. Das WDX-System wird deshalb heute nur bei sehr anspruchsvollen analytischen Fragestellungen verwendet.

Die bildliche Dokumentation der Proben erfolgt bei beiden Verfahren mit Hilfe von Sekundär- oder Rückstreuielektronenbildern. Im Vergleich mit einem Lichtmikroskop ist die Vergrößerung bei einem Elektronenmikroskop um bis zu 1000fach größer. Neben Punktanalysen liefert die Methode der Elementverteilungsbilder ("Chemical Mapping") weitere analytische Ergebnisse. Sie wird genutzt, um die Verteilung chemischer Elemente in der Fläche zu dokumentieren.

Die Anforderungen an die Probenpräparation sind bei den beiden Analyseverfahren (EDX, WDX) verschieden. Grundsätzlich lassen sich alle Festkörper analysieren und mit hoher Auflösung morphologisch darstellen. Sie müssen vakuumstabil sein. Elektrisch nicht leitende Proben müssen mit einer dünnen, leitfähigen Oberflächenbeschichtung versehen werden. Für den Normalfall hat sich hier eine Bedampfung mit Kohlenstoff bewährt. Wenn die Gewinnung von Elektronenbildern gegenüber der quantitativen Analyse im Vordergrund steht, kann die Probe auch mit Gold besputtert werden. Sedimente oder Pulver sollten in Kunstharz eingebettet werden. Bei der WDX ist zur genauen chemischen Analyse einer Probe eine plane Oberfläche und eine hochwertige Politur unabdingbar (LYMAN 1990). Üblicherweise werden hierfür in einen Kunststoff eingegossene, polierte Rundproben mit einem Durchmesser von ca. 25 mm hergestellt (Abb. 19).

### 3.4.3.4 Darstellung der Ergebnisse der elektronenmikroskopischen Untersuchungen

Die bildliche Dokumentation der bei den elektronenmikroskopischen Untersuchungen gewonnenen Daten erfolgt im Ergebnisteil dieser Arbeit in Form eines Röntgenemissionsspektrums (EDX-Spektrum) sowie durch Sekundärelektronenbilder des untersuchten Mikrobereiches (Abb. 30). Diese Spektren und Bilder wurden ausschließlich mit dem Rasterelektronenmikroskop in Kombination mit einem EDX-Detektor erzeugt.



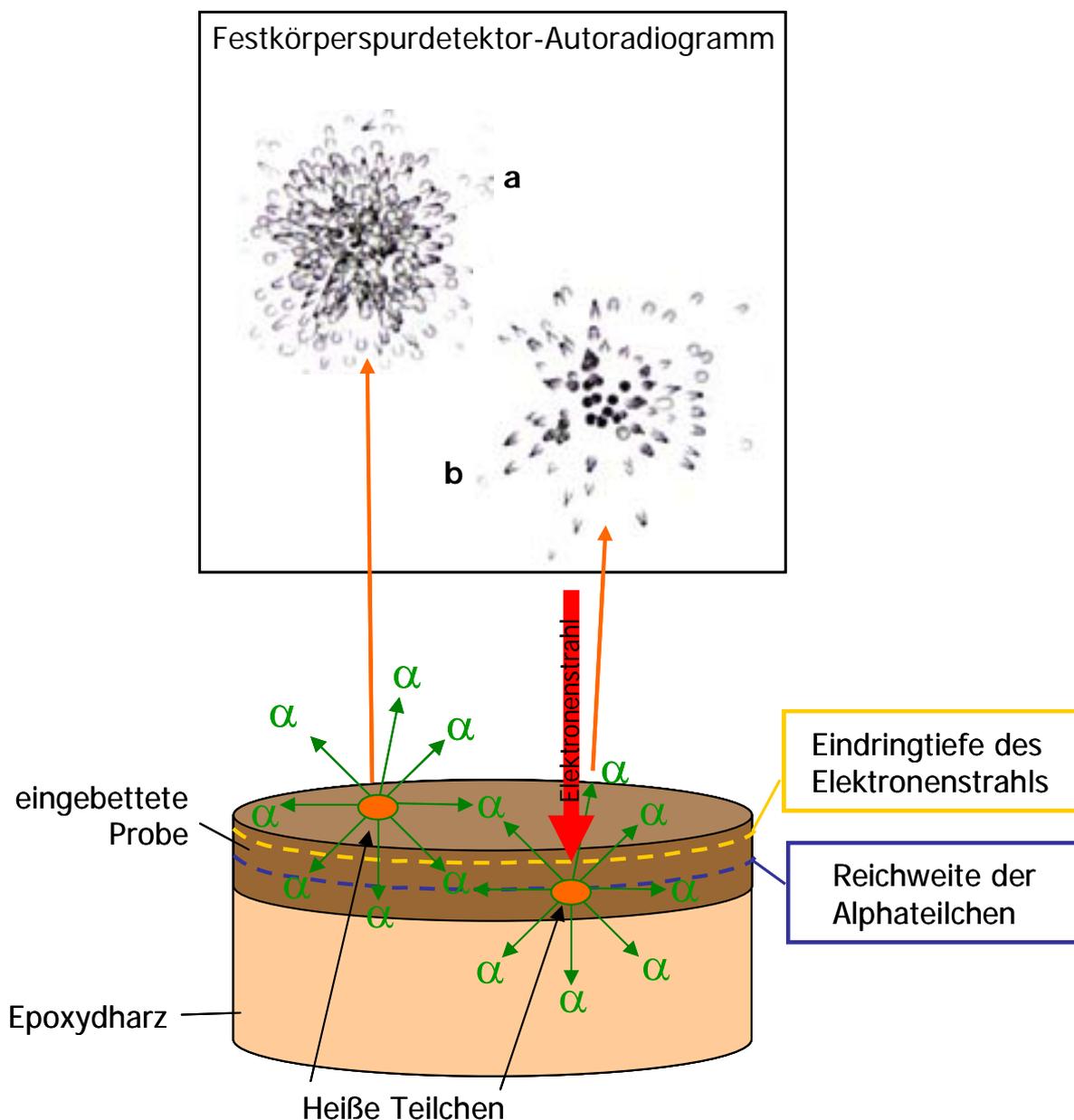
**Abb. 30** Linkes Bild: Charakteristisches Röntgenemissionsspektrum (EDX-Spektrum), das für jedes Material spezifisch ist und von Element zu Element variiert. Es besteht aus dem Bremsstrahlungsuntergrund und den charakteristischen Röntgenemissionslinien der K-, L-, M-Serien. Rechtes Bild: Sekundärelektronenbild eines detektierten Probenbereiches. Es handelt sich hier in der Bildmitte um ein Monazitkörnchen. Der helle Bereich im rechten oberen Teil des Körnchens zeigt den Bereich, der bei der elektronenmikroskopischen Untersuchung durch den Elektronenstrahl beaufschlagt wurde.

### 3.4.3 Grenzen der beschriebenen Methode zur Lokalisierung und Identifizierung natürlicher Heiße Teilchen in festen Proben

Wegen des Unterschiedes zwischen der maximalen Eindringtiefe des Elektronenstrahls in die Probenoberfläche und der Reichweite der Alphateilchen im Probenmaterial, können schon aus rein methodischen Gründen nicht alle Heißen Teilchen einer Probe, die durch Autoradiogramme dokumentiert wurden, mit den Mitteln der Elektronenmikroskopie gefunden werden.

Nimmt man an, eine zu untersuchende Probe enthält zwei natürliche Heiße Teilchen, eines liegt an der Probenoberfläche, das andere nahe der Probenoberfläche und zwar mit einem Abstand größer als die Eindringtiefe des Elektronenstrahls und kleiner/gleich der Reichweite der Alphateilchen (Abb. 31). Anhand des Festkörperspur-Autoradiogramms wurde ihre Existenz bewiesen und ihre Lage auf der Probenoberfläche bestimmt und markiert (vgl. Kap. 3.4.2). Bei einer Untersuchung dieser markierten Bereiche mit dem Elektronenmikroskop würde man unter optimalen Analysenbedingungen nur das an der Probenoberfläche befindliche Heiße Teilchen (in Abb. 31 links) nachweisen können, nicht jedoch das andere, nahe der Oberfläche befindliche Heiße Teilchen (in Abb. 31 rechts). Wegen der geringen Eindringtiefe des Elektronenstrahls von maximal 5  $\mu\text{m}$  können nur Objekte detektiert werden, die sich an der Probenoberfläche befinden. Jedes Objekt mit einem Abstand  $>5 \mu\text{m}$  von der Probenoberfläche, wird nicht vom Elektronenstrahl erreicht. Demgegenüber liegt die Reichweite der hier betrachteten Alphateilchen im Probenmaterial, mit Alphazerfalls-Energien zwischen 4 und 8 MeV, zwischen 30 und 90  $\mu\text{m}$  (vgl. Tab. 1, Tab. 4 und Tab. 5).

Das bedeutet, dass Alphateilchen, die beispielsweise von einer 50  $\mu\text{m}$  unter der Probenoberfläche befindlichen Quelle emittiert werden, auf einem auf der Probenoberfläche befindlichen Festkörperspurdetektor beobachtbare Spuren erzeugen können. Jedoch kann diese Quelle (das natürliche Heiße Teilchen) mit den Mitteln der Elektronenmikroskopie nicht gefunden werden. Diese methodische Einschränkung ist ein wichtiger Grund für die Differenz zwischen der anhand von Festkörperspurdetektoren ermittelten Anzahl von alphaemittierenden Heißen Teilchen einer Probe (Oberfläche) und der tatsächlich mit dem Elektronenmikroskop nachgewiesenen Alphaemitter. Diese Differenz tritt bei allen untersuchten Proben auf und ist überwiegend sehr deutlich. Sie ist aus der tabellarischen Ergebnisdarstellung der Elektronenmikroskop-Untersuchungen ablesbar (Anhang A 2 bis S 2). Dort finden sich die mit  $n_M$  und  $n_\alpha$  bezeichneten Spalten. Dabei ist  $n_M$  die Anzahl der auf der Probenoberfläche markierten Bereiche, in denen mit Hilfe von Festkörperspurdetektoren Alphaemitter nachgewiesen wurden,  $n_\alpha$  gibt die Anzahl der markierten Bereiche an, in denen mit Hilfe der Elektronenmikroskopie tatsächlich Alphaemitter gefunden werden konnten.



**Abb. 31** Prinzipdarstellung zur Erklärung methodischer Grenzen der Elektronenmikroskopie im Zusammenhang mit dieser Arbeit.

## 3.5 Spektrometrie

### 3.5.1 Gammaskpektrometrie

Die gammaskpektrometrischen Messungen erfolgten im Labor der Abteilung Umweltradioaktivität des Departments Analytik des UFZ in Leipzig, das über mehrere Low-Level Messplätze zum hochempfindlichen, nuklidspezifischen Nachweis von Radioaktivität in verschiedensten Proben verfügt. Wegen der meist eindeutig möglichen Zuordnung bestimmter Energien zu bestimmten Radionukliden ist die Analyse von Radionuklidgemischen in den unterschiedlichsten Messproben in der Regel ohne aufwendige Probenaufbereitung, vor allem ohne chemische Trennung möglich.

Für die gammaskpektrometrischen Messungen wurden HPGe Coaxial Low-Energy Detektoren, n-type mit einem aktiven Volumen von 39 cm<sup>3</sup> und einem Berylliumfenster mit 0,5 mm Dicke eingesetzt. Die Energieauflösung beträgt bei 122 keV (<sup>57</sup>Co) ca. 570 eV. An beiden Detektoren wird die Spektrenauswertung durch die spezielle Software GAMMAW unterstützt (mdl. Mitt. Dr. Treutler, UFZ Leipzig). Die Kalibrierung der Detektoren erfolgte mit einem zertifizierten Referenzmaterial der Internationalen Atomenergiebehörde (IAEA).

Die Gammaskpektrometrie wurde für die Arbeit genutzt, um aufgrund der Gesamtaktivität eine Vorauswahl unter manchen Proben zu treffen, insbesondere dann, wenn es aufgrund der Probenmenge nicht möglich war, alle Proben einer autoradiografischen Untersuchung zu unterziehen. Dies betraf vor allem Sedimentproben. Vereinzelt wurde die Gammaskpektrometrie angewendet, um  $\alpha$ - und  $\gamma$ -Aktivitäten in Proben zu vergleichen.

### 3.5.2 Alphaspektrometrie

Zur eindeutigen Identifizierung von alphastrahlenden Radionukliden in den Proben, wäre eine Low-level-Alphaspektrometrie sehr sinnvoll gewesen. Sie ist gegenüber der Gammaskpektrometrie empfindlicher und zudem für solche kleinen Probenmengen, wie sie für die Arbeit häufig nur zur Verfügung standen, besser geeignet. Außerdem werden bei der Gammaskpektrometrie diejenigen Alphastrahler nicht erfasst, die keine auswertbare Gammalinie erzeugen (z.B. Polonium).

Ein Alphaspektrometer stand in der Abteilung Umweltradioaktivität des Departments Analytik des UFZ in Leipzig auch zur Verfügung. Wegen der geringen Reichweite selbst hochenergetischer Alphateilchen, die in Luft nur einige cm und in Festkörpern einige 10  $\mu$ m beträgt, kommt es jedoch zur Selbstabsorption der Alphateilchen in der Probenmatrix. Diese Selbstabsorption verlangt eine langwierige chemische Probenvorbereitung, bei der der Alphastrahler chemisch abgetrennt und auf Probentellern oder Präparatträgern sehr dünn aufgetragen wird. Da diese chemische Abtrennung der Alphastrahler ein sehr empfindlicher Prozess ist, muss er kontrolliert werden, indem der Probe in definierter Menge Radionuklide, so genannte Spikelösungen, zugegeben werden. Damit kann die Effektivität der chemischen Abtrennung kontrolliert werden. Die spezifische Aktivität der meisten dieser Spikelösungen liegt oberhalb der Freigrenzen für den Umgang mit offenen radioaktiven Stoffen. Die Arbeitsgruppe Umweltradioaktivität bzw. das UFZ haben keine Umgangsgenehmigung für diese Stoffe. Zudem wird für die chemische Aufbereitung von Gesteins- und Sedimentproben stark giftige Flusssäure benötigt, für die ebenfalls keine Umgangsgenehmigung am UFZ vorliegt. Aus diesen Gründen war eine Analyse der Proben mittels Alphaspektrometrie am UFZ nicht möglich. Analysen außerhalb des UFZ waren aus finanziellen Gründen nicht durchführbar.

## 4 Ergebnisse

### 4.1 Ergebnisse der Lokalisierung und Charakterisierung natürlicher Heißer Teilchen in festen Proben

Zur Bearbeitung der in der Einleitung formulierten Fragestellungen wurde ein breites Spektrum an Proben unterschiedlicher Zusammensetzung, Petrologie, Entstehung und geographischer Herkunft untersucht. Ausgehend von Untersuchungen an den industriellen Reststoffen Theisenschlamm und Urantailings Dänkritz, deren Gehalt an natürlichen Heißen Teilchen belegt ist (SELCHAU-HANSEN et al. 1999), wurden weitere industrielle Reststoffe sowie Industrieprodukte und Nebenprodukte bearbeitet. Weitere Experimente dienten der Untersuchung natürlicher, nicht industriell bearbeiteter Proben (Gesteine, Sedimente und Minerale). Dabei wurden gezielt solche Proben untersucht, in denen Radioaktivitätsgehalte bekannt waren oder vermutet wurden.

Alle in diesem Kapitel aufgeführten Proben unterlagen einer standardisierten Experimentdurchführung. Diese bestand darin, unter Nutzung von Festkörperspurdetektoren (CR-39) die natürlichen Heißen Teilchen in den Proben zu lokalisieren und anschließend unter dem Elektronenmikroskop zu charakterisieren (vgl. Kap. 3.4). Die Ergebnisse dieser Experimente sind für jede Probengruppe in zwei Tabellen zusammengefasst, die im Anhang (A-T) zu finden sind. In der ersten Tabelle (z.B. Anhang A 1) sind die Resultate der lichtmikroskopischen Auswertung der auf den Proben exponierten Festkörperspurdetektoren dokumentiert. Sie enthält Angaben zur Expositionsdauer  $t$  (Zeit, die der Detektor auf der Probe gelegen hat), zur Anzahl der gefundenen Heiße Teilchen-Spuren  $n_{HT}$  (Sternspurmuster) auf dem Festkörperspurdetektor, zur Spurdichte von Alphapartikel auf dem Detektor  $\delta_{Spur}$  (Kap. 3.3) sowie eine Information darüber, welche mikroskopischen oder spektrometrischen Verfahren zur Untersuchung der Probe eingesetzt wurden. In Spalte 2 dieser Tabelle finden sich Angaben zur Art der Probe (Gesteinsstück, Dünnschliff, aufgemahlene Probe) und zur Probenpräparation (eingebettet, nicht eingebettet). Aus kapazitiven Gründen konnten nicht alle Proben eingebettet werden. Die zweite Tabelle (z.B. Anhang A 2) enthält die Ergebnisse der elektronenmikroskopischen Untersuchungen mit einer Beschreibung der detektierten Alphaemitter (natürlichen Heißen Teilchen). Darüber hinaus wurden in dieser Tabelle Angaben zur Zahl der (markierten) Stellen auf der Probenoberfläche gemacht, in denen Heiße Teilchen gesucht ( $n_M$ ) und in denen natürliche Heiße Teilchen tatsächlich nachgewiesen ( $n_\alpha$ ) wurden. Da die elektronenmikroskopischen Untersuchungen sehr zeit- und kostenintensiv waren, konnten nicht alle Proben mit diesem Analyseverfahren detektiert werden.

#### 4.1.1 Industrielle Reststoffe, Industrieprodukte und Nebenprodukte

Einen Überblick über die Art und Herkunft der untersuchten Proben gibt Tab. 8.

**Tab. 8** Übersicht der untersuchten anthropogenen Proben.  $n_{Exposition}$ =Anzahl der Probenexpositionen; IAA=Industrielle Absetzanlage.

Probenart	Probenzustand	Herkunft	$n_{Exposition}$
Theisenschlamm	Bohrkern, getrocknet sehr feinkörniges Lockermaterial (Staub)	Mansfelder Land Deutschland, Sachsen-Anhalt	8
Kupferschlacke	Festgestein (Schlacke), geschnitten und geschliffen	Mansfelder Land Deutschland, Sachsen-Anhalt	5

Probenart	Probenzustand	Herkunft	n <sub>Exposition</sub>
Urantailings Dänkritz	Lockermaterial, getrocknet	IAA Dänkritz bei Zwickau Deutschland, Erzgebirge	5
Haldenmaterial Uranerz- bergbau	Lockermaterial, getrocknet und gesiebt	ehemaliger Aufbereitungsbetrieb Lengenfeld Deutschland, Vogtland	5
Fällungsrückstände Grubenwasser-Reinigung (Uranerzbergbau)	Lockermaterial, getrocknet	Wasserbehandlungsanlage Schlema-Alberoda Deutschland, Erzgebirge	5
Kraftwerksaschen	Lockermaterial (Asche)	Kraftwerke Deuben, Mumsdorf und Alt-Lippendorf; Deutschland	6
Versuchsbausteine und Zement	Bausteine, einseitig ange- schliffen	Brasilien	6
Phosphorgips	Lockermaterial, hygroskopisches Pulver	Brasilien	11
Phosphatgesteine (Phosphatkonzentrate)	Lockermaterial, getrocknet	Brasilien	21
Phosphatdünger	Lockermaterial Granulat	handelsüblich erworben in Deutschland	7
Stickstoffdünger	Lockermaterial Granulat	handelsüblich erworben in Deutschland	1
Uranblech	15 mm dicke Platte	?	6

#### 4.1.1.1 Theisenschlamm

Der Theisenschlamm ist ein Nebenprodukt der Verhüttung des Mansfelder Kupferschiefers im ehemaligen Kupferschieferbergbaurevier von Sachsen-Anhalt (Mansfelder Land).

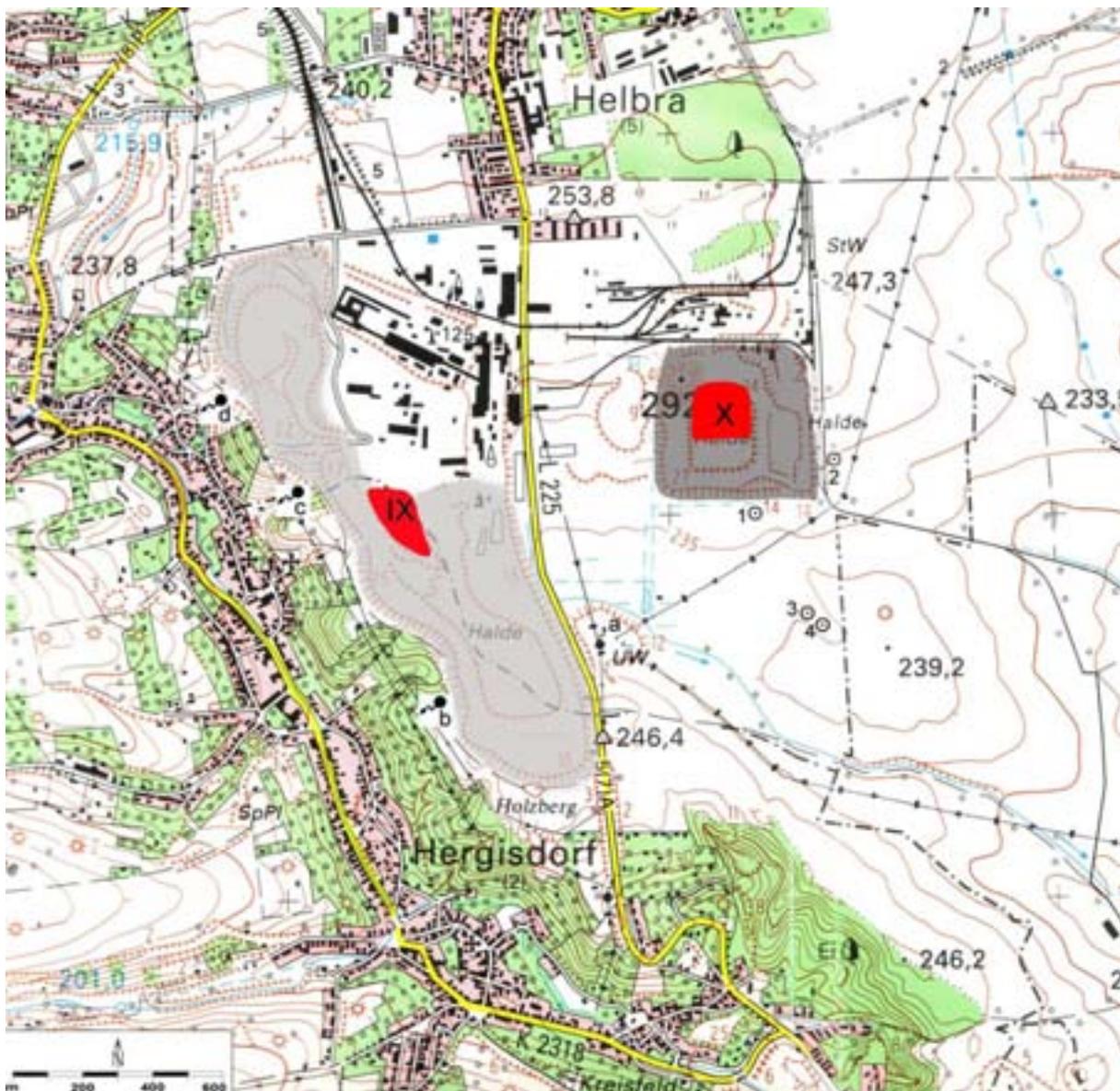


**Abb. 32** Die Schlackehalde der ehemaligen Kupferhütte Helbra (Stand 1995) mit ca. 30 Mio. t Schlacke. Im ehemaligen Teich 9 (linker Kreis), angelegt auf der Halde, wurden einige 10 000 t Flugstaub (Theisenschlamm) deponiert. Durch Winderosion wurde der Flugstaub auch in die Umgebung (rechter Kreis, Quelle des Flüsschens Glume) verfrachtet. Foto aus SCHMIDT (2004), verändert.

Bei der Verhüttung wurde der Kupferschiefer mit Kohle im Hochofen bei Temperaturen von 1300°C verarbeitet. Beim so genannten reduzierenden Schmelzen des Kupferschiefererzes fiel auf den Kupferhütten Eisleben und Helbra im ehemaligen Kupferschieferrevier Mansfeld neben Schlacke, Eisensau und Gichtgas auch ein sulfidischer, Blei-Zinkhaltiger Flugstaub an. Der Primärflugstaub wurde in Horizontalklassierern abgeschieden, während der feindisperse Sekundärflugstaub erst seit der Einführung einer nassen Gichtgasreinigung nach dem System von Theisen seit 1904 bzw. 1912 abgetrennt werden konnte (REIB & GOCK 2000). Der bei dieser

Reinigung anfallende Schlamm erhielt seinen Namen vom Erfinder des Reinigungssystems –

Theisenschlamm. Der Theisenschlamm ist ein Waschstaub, entstanden durch das Einsprühen von Wasser in den heißen Gasstrom. Er bildete in der Bleihütte Hettstedt über viele Jahrzehnte hinweg das Ausgangsprodukt für die Gewinnung von Blei- und Zinkoxid, sowie weiterer Metalle. Als die Bleihütte im Jahr 1978 stillgelegt wurde, musste der weiterhin anfallende Theisenschlamm entsorgt werden. Dies erfolgte anfangs in 8 kurzfristig angelegten Notteichen, ab 1980 in Teich 9 auf der Kupferschlackehalde der Rohhütte Helbra (Abb. 32). Da diese Teiche keine Basisabdichtung besitzen, infiltrierte der Theisenschlamm teilweise in die klüftigen Halden. Mit der im Jahre 1990 eingestellten Verhüttung des Kupferschiefers begannen Sicherungsmaßnahmen, im Zuge derer die reinen Theisenschlamm-Ablagerungen in eine Monodeponie (Teich 10, Abb. 33) auf der Bergehalde des Walter-Schneider-Schachtes umgelagert wurden (REIB & GOCK 2000). Bei der Umlagerung aus verschiedenen Becken und Teichen in diese Deponie sind auch Mischmaterialien erfasst worden, so dass es sich bei dem Inhalt (ca. 230 000 t) von Teich 10 um keinen reinen Theisenschlamm mehr handelt. Teich 10 ist heute abgedeckt.



**Abb. 33** Topografische Karte von Helbra und Hergisdorf (Mansfelder Land) mit Lage der Schlackehalde (hell hinterlegt) und Bergehalde (dunkel hinterlegt) auf dem Betriebsgelände der ehemaligen Kupferhütte Helbra. Die auf den Halden angelegten Teiche für die Deponierung von Nebenprodukten der Kupferschieferverhüttung sind rot markiert (IX = ehemaliger Teich 9, X = Teich 10). Aus SCHMIDT (2004), verändert.

Die in dieser Arbeit untersuchten Proben stammen von einer 9 m langen Bohrung, die im Zentrum von Teich 10 abgeteuft wurde. Die Bohrung hat einen Durchmesser von 15 cm, durchteufte den gesamten Theisenschlammkörper und erreichte die kiesige Basis des Teiches (SCHUBERT et al. 2001). Der Theisenschlamm ist extrem feinkörnig. Er besteht aus Partikeln mit Median-Durchmessern von 1,25 µm, die aber nur Agglomerate viel kleinerer Körner von submikroskopischer Größe sind (MORENCY et al. 1998). Besondere Materialeigenschaften des Theisenschlammes sind der z.T. hohen Wassergehalt, die klebrige Konsistenz, seine polymetallische Zusammensetzung, der Gehalt an toxischen organischen Verbindungen sowie der Kohlenstoffgehalt. Die dominierenden Elemente im Theisenschlamm sind Pb, Zn und S (Tab. 9), die vorherrschenden Mineralphasen ZnS (Sphalerit/Wurzit) und PbS (Galenit), untergeordnet PbSO<sub>4</sub> (Anglesit). Erwähnenswert ist sein Gehalt an hochtoxischen Elementen wie As, Sb und Hg, ebenso wie sein Gehalt an wertvollen Elementen wie Ag, Re, Ge. Eine detaillierte chemische und physikalische Charakterisierung des Theisenschlammes findet sich bei WENNRICH et al. (2001) sowie bei WEISS et al. (1997).

**Tab. 9** Elementgehalte für Theisenschlamm (in mg/kg) und zum Vergleich von Kupferschiefer als Rohstoff für die Erzgewinnung und Kupferschlacke als Verhüttungsrückstand, aus SCHRECK et al. (2005).

Element	Theisenschlamm (frisch) <sup>b</sup>	Theisenschlamm (verwittert) <sup>a</sup>	Kupferschiefer <sup>a</sup>	Kupferschlacke <sup>a</sup>
Fe	12 700	14 722	9337	13 708
Mn	930	938	1461	2340
Cr	130	201	<4	233
Cu	<b>13 200</b>	<b>10 117</b>	4763	1636
Pb	<b>143 000</b>	<b>95 772</b>	4713	172
Zn	<b>193 000</b>	<b>83 182</b>	10 151	2788
Cd	435	451	52	1
As	3800	6674	27	3
Sb	1470	2050	16	10
Bi	165	212	1	<1
Sn	11 600	7672	54	68
Tl	n.b.	137	3	<2,5

n.b. nicht bestimmt

<sup>a</sup> Daten von JAHN et al. (1997) (RFA)

<sup>b</sup> Daten von WENNRICH et al. (2001) (RFA, ICP-AES)

Der Theisenschlamm verursacht nicht nur wegen seines Gehaltes an Schwermetallen und toxischen Organika Umweltprobleme, sondern auch wegen seines Radionuklidgehaltes. Ursache für die Radioaktivität im Theisenschlamm ist der Anteil an Uran im Kupferschiefer. Entsprechend der Verarbeitungsstufe sind in den Produkten der Kupferschieferverhüttung unterschiedliche Nuklidgehalte und Aktivitäten zu finden. Bei der Verhüttung des Kupferschiefers kam es zu einer deutlichen Verschiebung des radioaktiven Gleichgewichtes zwischen <sup>238</sup>U und seinen Folgeprodukten <sup>226</sup>Ra und <sup>210</sup>Pb (FREYER et al. 2002; SCHRECK 2002). Im Kupferschiefer selbst befinden sich <sup>238</sup>U, <sup>226</sup>Ra und <sup>210</sup>Pb im radioaktiven Gleichgewicht. Dagegen hat sich <sup>210</sup>Pb stark in den Flugstäuben (Theisenschlämmen) und haben sich <sup>238</sup>U und <sup>226</sup>Ra in der Schlacke angereichert. Die durchschnittlichen spezifischen Aktivitäten und die charakteristischen Radionuklidverteilungsmuster (<sup>238</sup>U/<sup>226</sup>Ra/<sup>210</sup>Pb in Bq/kg) liegen im Kupferschiefer bei 451 Bq/kg (150/167/134), in der Kupferschlacke bei 1621 Bq/kg (651/770/200) und im Theisenschlamm bei 8593 Bq/kg (bis 23 kBq/kg) (192/196/8205) (SCHRECK et al. 2005). Der Urangehalt des Theisenschlammes beträgt ca. 22 ± 7 µg/g (WENNRICH et al. 2001). Die Radioaktivität im Theisenschlamm wird hauptsächlich seinem Gehalt an <sup>210</sup>Pb und <sup>210</sup>Po zuge-

schrieben. Alphaspektrometrische Messungen ergaben eine  $^{210}\text{Po}$ -Aktivität von  $16,6 \pm 0,4$  kBq/kg bzw. Messungen mit einem hochauflösenden Gammaskontrometer einen Wert von  $22,1 \pm 0,9$  kBq/kg für  $^{210}\text{Pb}$  (MORENCY et al. 1998). Zumindest ein Teil der Radioaktivität liegt im Theisenschlamm in Form natürlicher Heiße Teilchen vor (SELCHAU-HANSEN et al. 1999). Der Theisenschlamm stellt aufgrund seiner chemischen und physikalischen Eigenschaften ein gesundheitliches Risiko dar. Er kann als NORM-Rückstand definiert werden (vgl. Kap. 1). Durch die Verwehung der extrem flugfähigen, feinstkörnigen Stäube, die Abspülung der Schlämme und die Lösung oxidiertes Haldeninhaltsstoffe kam es zur Ausbreitung von Schadstoffen (Schwermetallen, toxischen Nichtmetallen, Salzen, Radioaktivitätsträgern und organischen Kohlenwasserstoffen) in das Umland und das Gewässernetz im Umfeld der Halden- und Hüttenstandorte, die bis zum Süßen See und zur Saale transportiert wurden.

### ***Ergebnisse der lichtmikroskopischen Untersuchungen***

Einen Überblick über die Ergebnisse der lichtmikroskopischen Untersuchungen und Expositionsbedingungen gibt die Tabelle im Anhang A 1.

Alle untersuchten Theisenschlamm-Proben enthalten natürliche Heiße Teilchen, durchschnittlich 4 pro  $\text{cm}^2$ . Die Spurdichte (Background) von Alphateilchen auf dem Detektor ist überwiegend sehr hoch. Die Expositionszeit lag zwischen 4 und 8 Wochen. Es treten zahlreiche Cluster-Spurmuster auf. Die Spuren sind nicht homogen über den Detektor verteilt, sondern häufen sich in wolkenartigen Flecken. Dies wird als Folge der Einbettung der Proben angesehen (vgl. Kap. 3.4.1).

### ***Ergebnisse der elektronenmikroskopischen Untersuchungen***

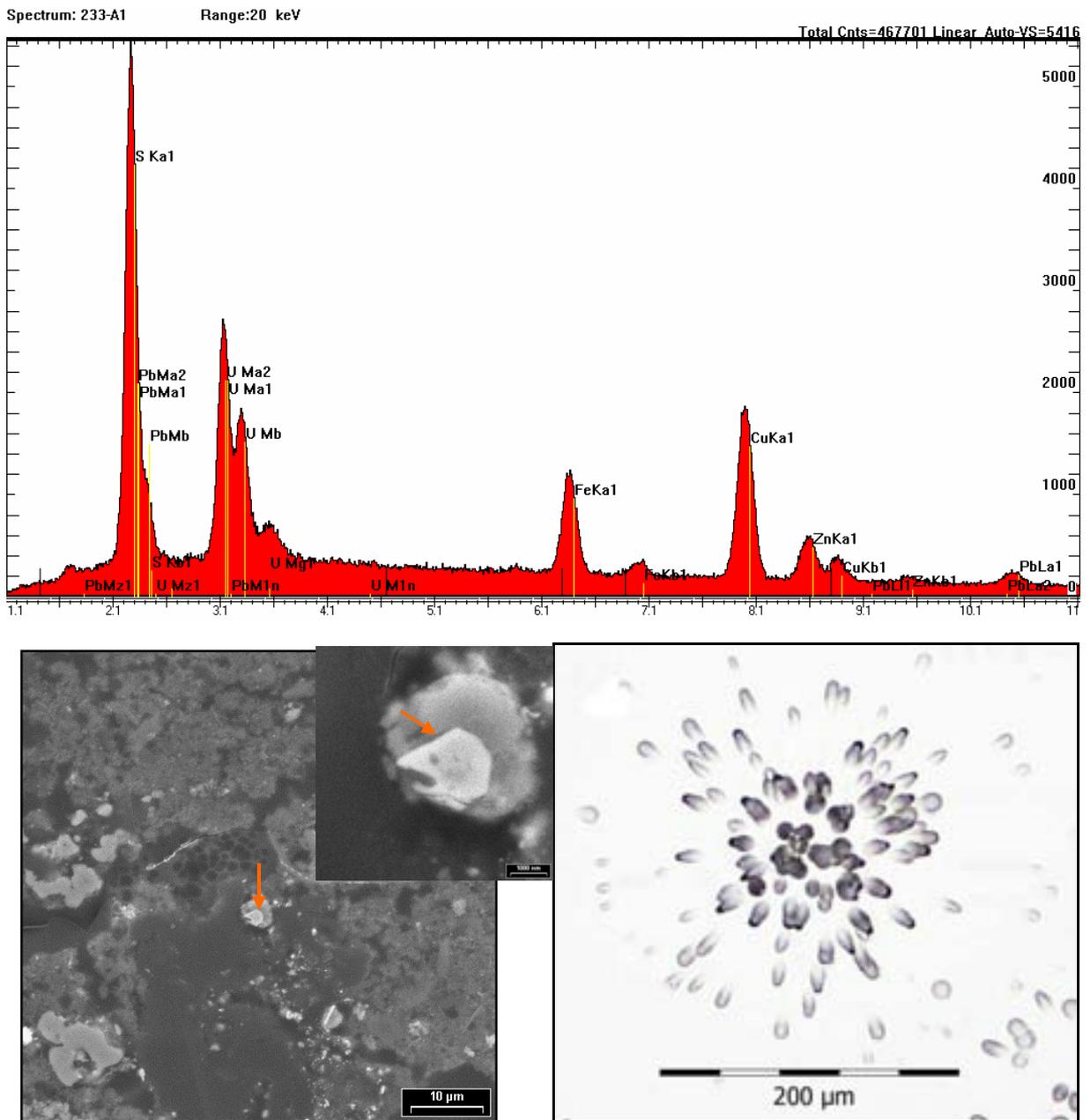
Es wurden fünf der acht exponierten Theisenschlamm-Proben unter dem Elektronenmikroskop untersucht. Die Ergebnisse dieser Untersuchungen sind tabellarisch im Anhang A 2 dargestellt.

In 31 von 80 markierten Bereichen der Theisenschlamm-Proben wurden Alphaemitter (natürliche Heiße Teilchen) gefunden. Entgegen den Erwartungen handelt es sich dabei ausschließlich um Uran (Uraninit, Brannerit, Uransilikate, Uran in Kohlenstoffmatrix). Polonium konnte nicht nachgewiesen werden. Das alphastrahlende  $^{210}\text{Po}$  ist ein Tochternuklid des Betastrahlers  $^{210}\text{Pb}$ , beide stehen im Gleichgewicht.  $^{210}\text{Po}$  kann über den Gehalt an  $^{210}\text{Pb}$  bestimmt werden. Blei ist eines der dominierenden Elemente im Theisenschlamm und in allen Proben omnipräsent. Allerdings ist eine Unterscheidung von radioaktiven Bleiisotopen und nicht radioaktiven Bleiisotopen mit dem Elektronenmikroskop nicht möglich.

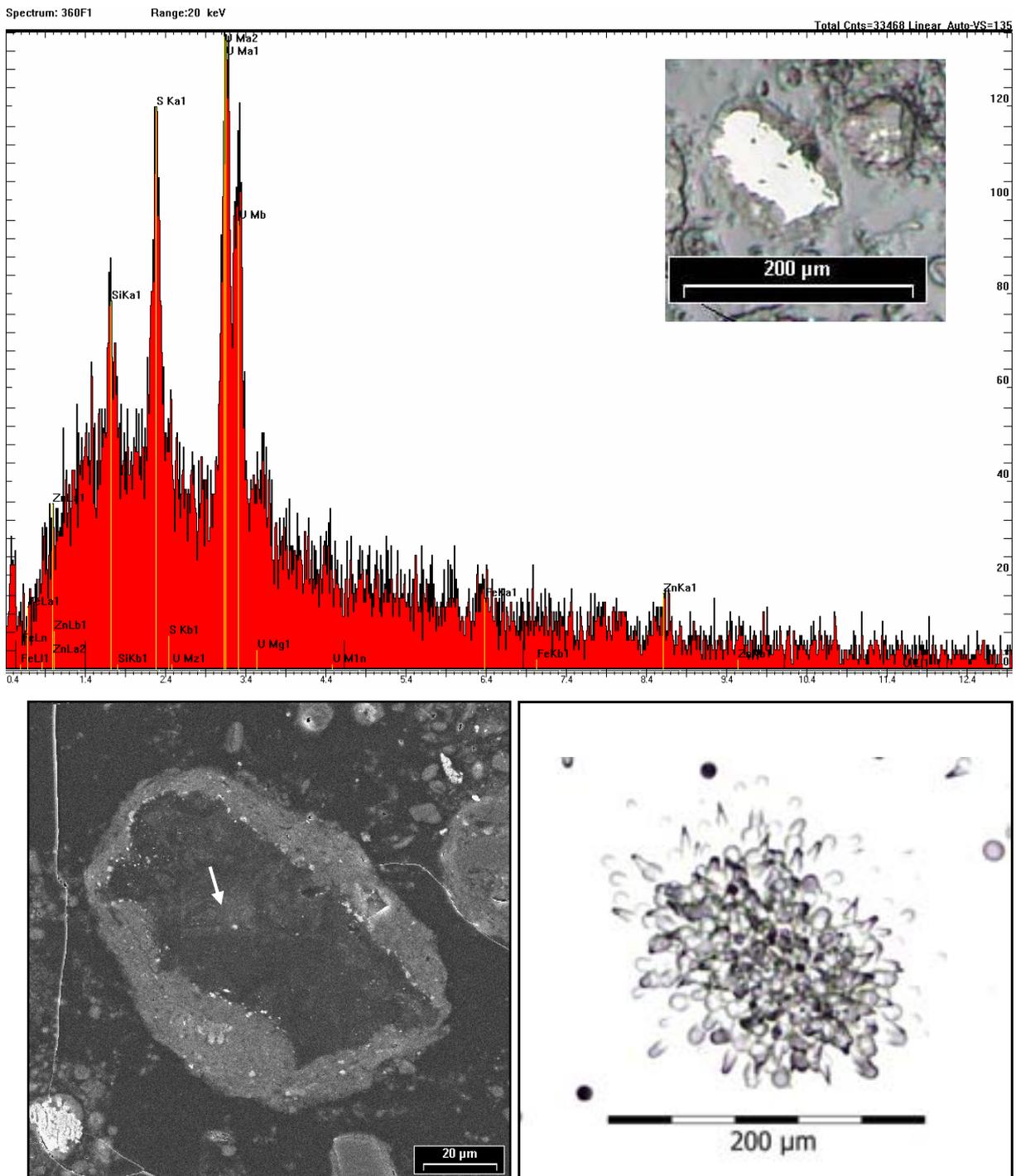
Die natürlichen Heißen Teilchen der Theisenschlamm-Proben kommen als Säume um größere Körner, als einzelne, winzig kleine Körner, als Verwachsungen mit größeren Körnern (die meist aus Quarz oder einem Mineralgemisch aus Pb-Zn-Si bestehen) sowie feinverteilt und optisch kaum sichtbar in einer Kohlenstoffmatrix vor (Tafeln 1-26, Abb. 34). Kohlenstoff ist wegen der Bedampfung der Proben mit Kohlenstoff im Elektronenmikroskop nicht detektierbar, allerdings gut zu erkennen an einer Erhöhung des Kohlenstoffpeaks im EDX-Spektrum sowie am Aussehen (sehr hell im Lichtmikroskop, schwarz im Elektronenmikroskop, Abb. 35). Die Bindung des Urans an Kohlenstoff steht vermutlich in Zusammenhang mit der technologischen Aufbereitung des Kupferschiefers (Verhüttung des Kupferschiefers mit Kohle). Dabei kam es zur Adsorption von Uran an Kohlenstoff.

Die EDX-Spektren der Heißen Teilchen enthalten neben Uran oft eine ganze Reihe anderer Elemente wie Zn, Pb, Si, Al, S. Wegen der geringen Größe der Heißen Teilchen wird immer

auch Material aus der Umgebung der untersuchten Teilchen analysiert, aufgrund ihrer Dominanz im Theisenschlamm sind das vorwiegend Pb, Zn und S (Abb. 34).

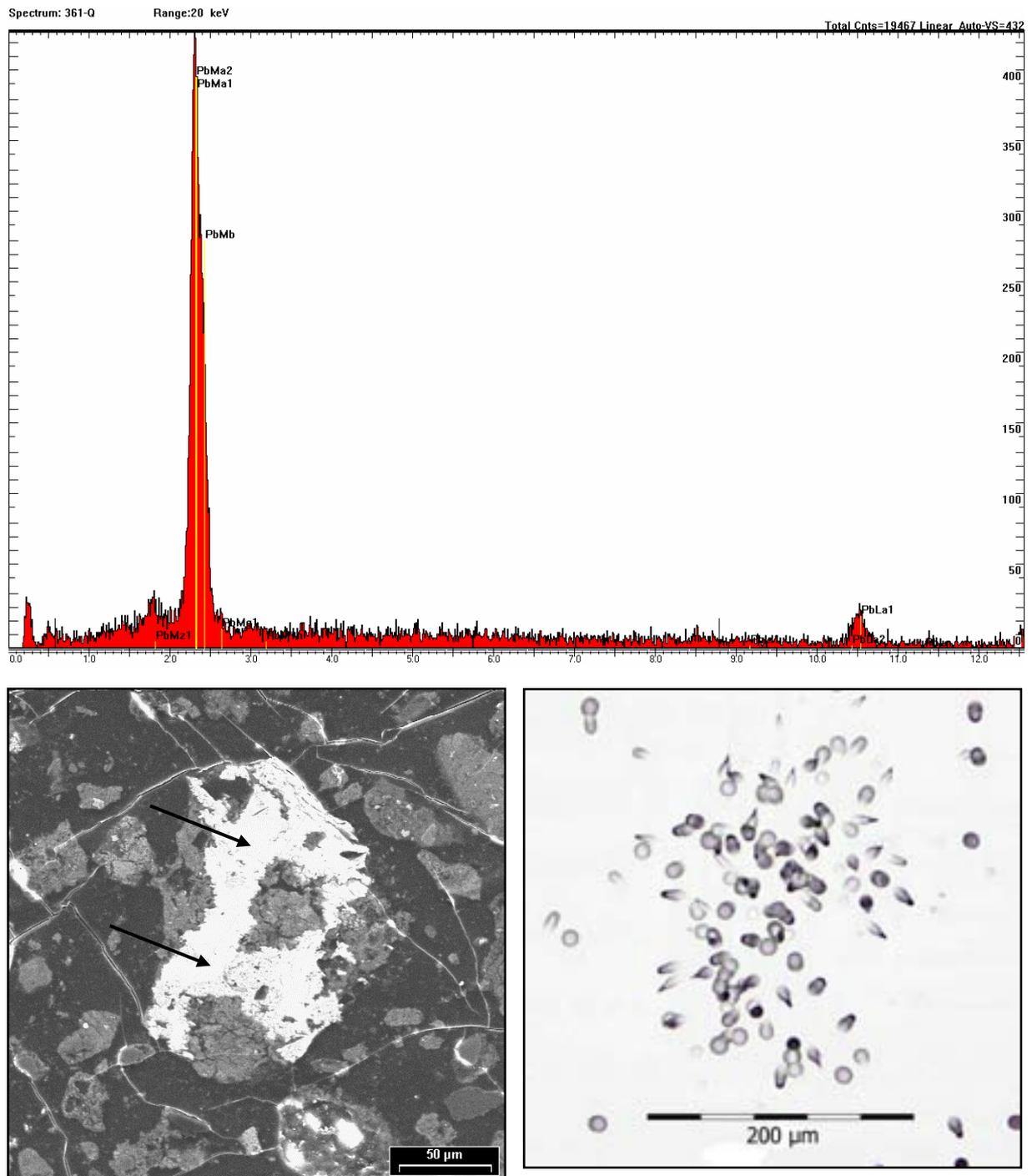


**Abb. 34** EDX-Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines natürlichen Heißen Teilchens der Theisenschlamm-Probe 233 (Markierung a). Der Maßstab des kleinen REM-Bildes ist 1 μm. Ein ca. 2 μm großes Uraninit ( $\text{UO}_2$ )-Körnchen (weiß, Pfeil) sitzt auf einem Körnchen aus Pb, S, Cu, Zn und Fe (hellgrau), welches wiederum auf einem Pb-Korn (dunkelgrau) sitzt.



**Abb. 35** EDX-Spektrum, lichtmikroskopische Aufnahme (kleines Bild im EDX-Spektrum), REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Theisenschlamm-Probe 360 (Markierung f). Es handelt sich um einen Kohlenstoffpartikel mit Uran (Bildmitte, weißer Pfeil). Typisch für solche kohlige Partikel sind der erhöhte Untergrund im Spektrum in den vorderen Energiebereichen sowie das unterschiedliche Erscheinungsbild des Partikels bei REM (schwarz) und Lichtmikroskop (strahlend weiß). Das Sternspurmuster zeichnet die Form des Kohlenstoff-Partikels nach. Uran ist vermutlich dispers in dem Kohlenstoff-Partikel verteilt.

Es wurden 12 zu Cluster-Spurmustern gehörende Partikel untersucht. Dabei handelt es sich um größere, stänglige oder tafelige Partikel einer Ausdehnung von mindestens 150  $\mu\text{m}$ , deren Form von den Spurmustern auf dem Festkörperspurdetektor nachgezeichnet wird (Abb. 36, Tafeln 27 und 28). Unter allen Clustern wurde gediegen Blei gefunden. Das ist insofern auffällig, da die größeren Partikel in den Theisenschlamm-Proben sonst überwiegend aus Pb-Zn-Sulfidkörnchen mit Beimengungen anderer Elemente wie Cu und Fe bestehen. Das unter den Cluster-Spurmustern gefundene Blei muss zumindest zum Teil radioaktive Bleiisotope ( $^{210}\text{Pb}$ ) enthalten, da andere Elemente als Strahlenquellen nicht gefunden werden konnten. Die Spuren wurden vom alphastrahlenden  $^{210}\text{Po}$  als Tochternuklid von  $^{210}\text{Pb}$  verursacht.



**Abb. 36** EDX-Spektrum, REM-Aufnahme und Cluster-Spurbild eines Partikels aus gediegen Blei (im REM-Bild weiß, Pfeil). Das Blei ist mit ZnS (mittelgrau) verwachsen. Probe: Theisenschlamm, Nr. 361 (Markierung q).

#### 4.1.1.2 Mansfelder Kupferschlacke

Wie der Theisenschlamm (Kap. 4.1.1.1) ist auch die Kupferschlacke ein Nebenprodukt der Verhüttung des Mansfelder Kupferschiefers im ehemaligen Kupferschieferbergbaurevier von Sachsen-Anhalt (Mansfelder Land). Die Halden des Kupferschieferbergbaus im Mansfelder Land werden mengenmäßig von Kupferschlacken (80% des Haldeninhaltes) dominiert (SCHRECK 1997). Die Schlacken sind silikatische Schmelzprodukte, die bei der thermischen Verarbeitung des Kupferschiefers erzeugt wurden. Grund für den hohen Anfall an Mansfelder Kupferschieferschlacke ist die Nichtaufbereitbarkeit des Kupferschiefers. Dies hängt mit dem Vererzungscharakter (Größe der Erzminerale liegt bei bis zu 5  $\mu\text{m}$ ) des Kupferschiefers zusammen, der eine mechanisch-physikalische Trennung von Gesteinsanteil und Metall nicht gestattet. Deshalb musste der rohe Schiefer verhüttet werden und es entstanden riesige Schlackehalden (Abb. 32). Die Kupferschlacke besteht aus: 43-48 %  $\text{SiO}_2$ , 15-17 %  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , 16-20 %  $\text{CaO}$ , 4-5 %  $\text{MgO}$  und 2-3 %  $\text{FeO}$ , Nebenkomponenten sind Ti-, Zn-, Ba-, Mn- und Cu-Oxide (EISENÄCHER & JÄGER 1997).

Die Kupferschlacke ist radioaktiv (vgl. auch Kap. 4.1.1.1). Sie ist ein NORM-Material. Die Radioaktivität der Kupferschlacke ist auf deren geringen Gehalt an Uran (durchschnittlich 50 ppm) und speziell das Zerfallsprodukt  $^{226}\text{Ra}$  zurückzuführen. Die spezifische Aktivität der Schlacke liegt für  $^{226}\text{Ra}$  im Mittel bei 700 Bq/kg und kann vereinzelt bis auf 2500 Bq/kg ansteigen (GELLERMANN et al. 2003). Sie wurde seit Jahrhunderten für Straßen- und Wasserbau, Wege- und Landschaftsbau und z.T. auch im Wohnungsbau verwendet. Seit den 80er Jahren ist die Verwendung der Kupferschlacke genehmigungspflichtig und an Auflagen gebunden. Die Strahlenschutzkommission empfiehlt, auf die Verwendung von Schlackesteinen beim Neubau von Häusern zu verzichten. Eine Untersuchung der Kupferschlacke erfolgte wegen ihres Radioaktivitätsgehaltes und zu Vergleichszwecken mit dem Theisenschlamm.

Es wurden 5 Kupferschlacke-Proben von der Schlackenhalde der ehemaligen Kupferhütte Helbra bearbeitet (Abb. 32). Die Schlacke ist schwarz, glasig und enthält teilweise kristalline Schlieren. Um eine ebene Auflagefläche für die Exposition zu erhalten, wurden die Probenstücke zersägt und wenn nötig geschliffen.

#### *Ergebnisse der lichtmikroskopischen Untersuchungen*

Einen Überblick über die Ergebnisse der lichtmikroskopischen Untersuchungen und Expositionsbedingungen gibt die Tabelle im Anhang B.

Keine der untersuchten 5 Kupferschlacke-Proben enthält natürliche Heiße Teilchen. Die Spurdichte (Background) von Alphateilchen auf dem Detektor ist mäßig. Die Expositionszeit betrug 3 Wochen. Die Backgroundspuren sind relativ homogen verteilt. Cluster treten nicht auf. Eine elektronenmikroskopische Bearbeitung der Kupferschlacke-Proben erfolgte nicht.

#### 4.1.1.3 Urantailings Dänkriz

Die über 40 Jahre andauernde Gewinnung und Verarbeitung von Uranerzen durch die SDAG Wismut in Sachsen und Thüringen hat zu erheblichen Umweltbelastungen durch die von den Hinterlassenschaften dieses Uranbergbaus ausgehenden Emissionen natürlicher Radionuklide und anderer Kontaminanten geführt (OHLENDORF 2000). Zu diesen Hinterlassenschaften zählen u.a. Aufbereitungsbetriebe und Industrielle Absetzanlagen (IAA). Die Gesamtmenge des abgebauten Materials (Erz und Abraum) in der früheren DDR, die bis zur Einstellung der Produktion 1991 drittgrößter Uranproduzent war, beträgt 1200 Mio. t (AUTORENKOLLEKTIV 1999; MEINRATH et al. 2003). Davon wurden 200 Mio. t zu den Aufbereitungsbetrieben

transportiert, die restlichen 1000 Mio. t in der Landschaft aufgehaldet. Insgesamt wurden 231 000 t Uran produziert, davon stammen 126 000 t aus Sachsen.

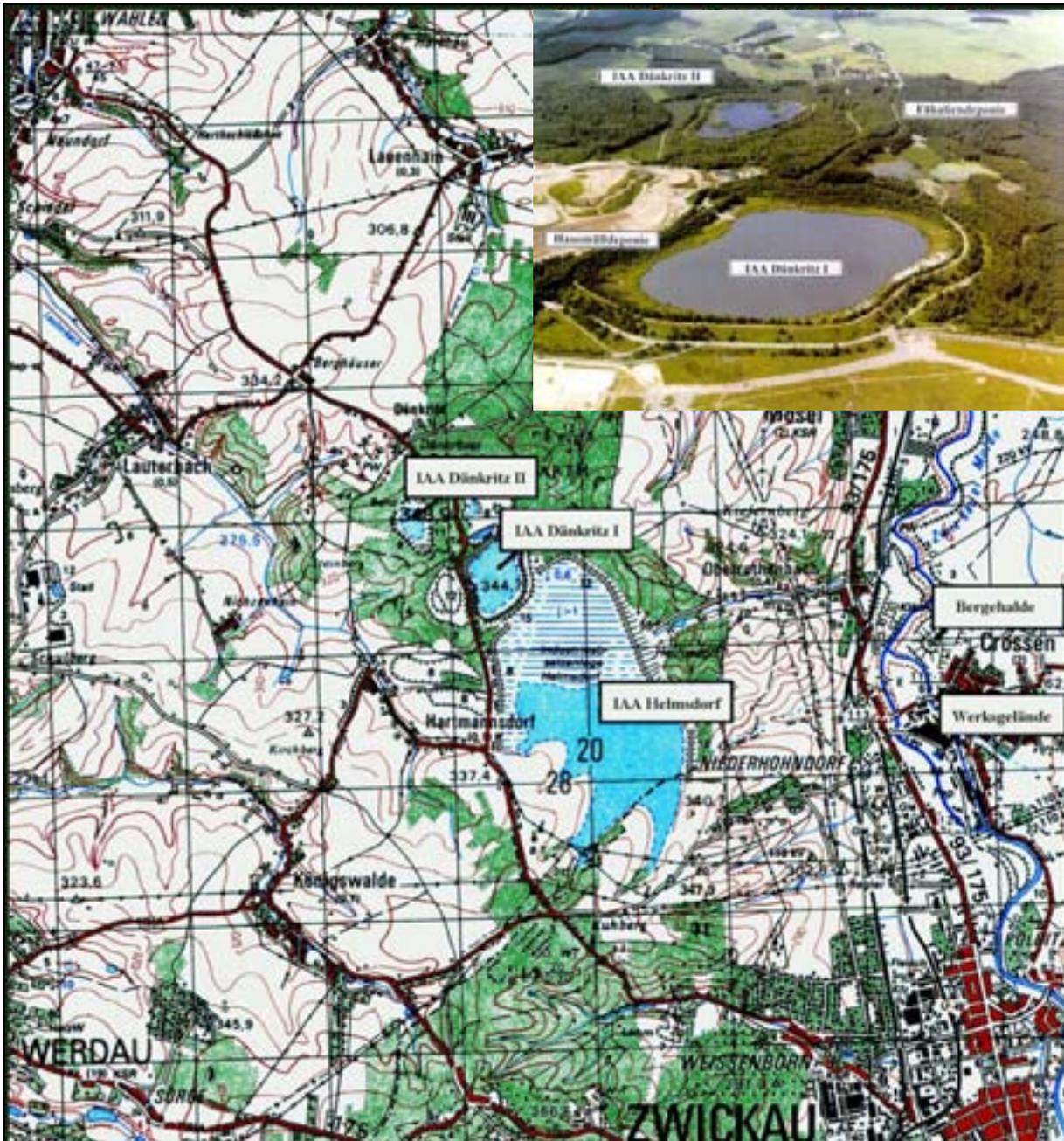
Die Vererzungen liegen in den sächsischen Lagerstätten im wesentlichen als Uraninit (Pechblende,  $UO_2$ ) vor (LANGE et al. 1991; VIEWEG 1995). Daneben sind Uranglimmer (Uranphosphate und -arsenate) sowie Uranophan und Coffinit anzutreffen. Je nach Typ der Lagerstätte kann Uran mit Wismut, Kobalt, Nickel, Wolfram, Zinn, Kupfer, Silber, Blei und Zink in unterschiedlicher Bindungsform (Sulfide, Arsenide) vergesellschaftet sein. Die bergmännische Gewinnung der Uranerze erfolgte in Sachsen ausschließlich untertage. Für die Erzaufbereitung kamen mehrere Prozesse zum Einsatz (mechanische, gravimetrische, radiometrische, chemische Aufschlüsse). Der dominierende Prozess war die saure oder alkalische Laugung der Uranerze in den Aufbereitungsbetrieben (OHLENDORF 2000). Dabei wird das im Erz als U(IV) vorliegende Uran zu U(VI) oxidiert und von der Lösung abgetrennt. Der verbleibende Erzschlamm (Tailings) wurde in einer wässrigen Suspension in Absetzbecken (IAA) eingeleitet. Von diesen IAA geht eine erhebliche Langzeitgefährdung aus, da einerseits bei der Aufarbeitung nicht alles Uran aus den Rückständen entfernt wird (Restbestände primärer Uranminerale und neue, sekundäre Uranminerale) und andererseits die radioaktiven Tochternuklide ab  $^{230}Th$  einschließlich  $^{226}Ra$  in den Tailingschlämmen verbleiben können. Nach MERKEL & HELING (1999) kann der in Tailings abgelagerte Rückstand bis zu 70 % des radioaktiven Inventars einer Uranlagerstätte enthalten (MERKEL & HELING 2000). Kontaminationen der Umgebung von Absetzanlagen erfolgen durch Winderosion der Feinphase nach dem Trockenfallen der Tailings, durch unkontrollierte Verwendung der sandigen Phase und durch Austrag über Sickerwässer (OHLENDORF 2000).



**Abb. 37** Lage der Aufbereitungsbetriebe Crossen und Langenfeld im Südwestzipfel von Sachsen. Die Position des dargestellten Gebietes in Deutschland ist auf dem kleinen Bild durch das grüne Rechteck gekennzeichnet.

In der vorliegenden Arbeit wurde Tailingsmaterial der IAA Dänkriz II (Westerzgebirge) untersucht. Die IAA Dänkriz II gehörte zusammen mit der IAA Dänkriz I und der IAA Helmsdorf zu den industriellen Absetzanlagen des Aufbereitungsbetriebes Crossen ca. 2 km nördlich von Zwickau (Abb. 37). Die Absetzanlagen Helmsdorf und Dänkriz liegen ca. 4 km vom Aufbereitungsbetrieb Crossen entfernt, unweit der Gemeinden Oberrothenbach, Niederhohndorf, Hartmannsdorf und Dänkriz (Abb. 38). Hauptvorfluter sind die Zwickauer Mulde

und die Pleiße. In die beiden Absetzanlagen Dänkritz I und II wurden zwischen 1952 und 1958 Aufbereitungsrückstände eingespült. Wegen ihrer ungenügenden Aufnahmekapazitäten wurde die IAA Helmsdorf im Bereich der Ortslage Helmsdorf, die dem Bauvorhaben vollständig zum Opfer fiel, errichtet. Sie wurde ab 1958 bis zur Einstellung des Aufbereitungsbetriebes im Jahre 1989 beschickt.



**Abb. 38** Geographische Lage des Aufbereitungsbetriebes Crossen und seiner Absetzanlagen Dänkritz I und II und Helmsdorf; Abb. aus: AUTORENKOLLEKTIV (1999). Kleines Bild: Luftbildaufnahme der beiden Absetzbecken Dänkritz I und II (Bildnachweis: www.smul.de).

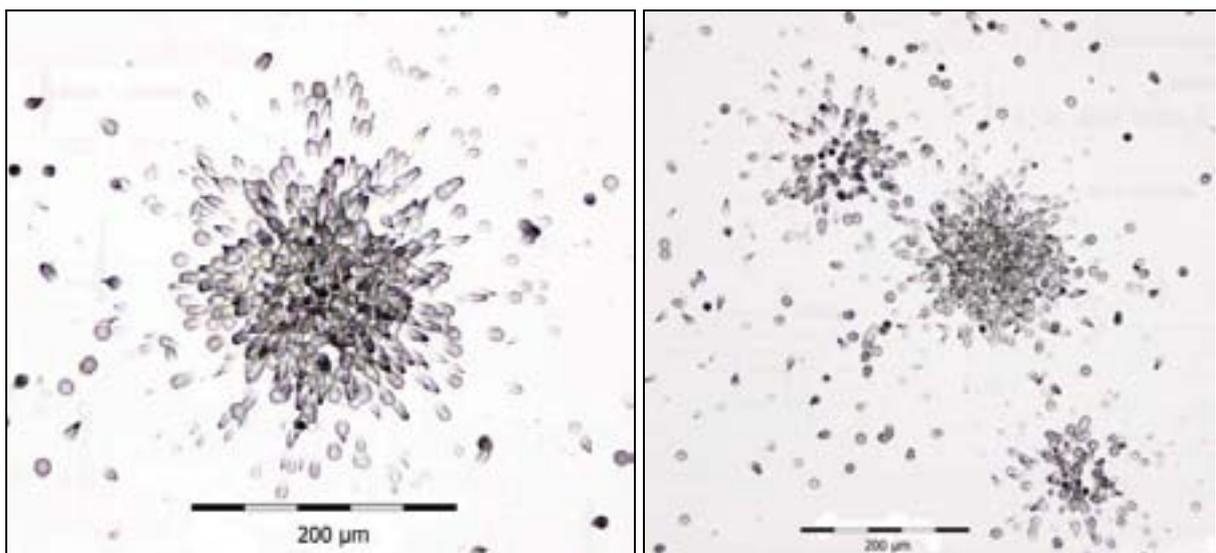
Die Absetzanlagen Dänkritz I und II liegen in alten Kiesgruben. In die IAA Dänkritz II wurden ca. 1,2 Mio. t Tailingsmaterial eingelagert. Sie bedeckt eine Oberfläche von 6,2 ha (AUTORENKOLLEKTIV 1999). Die mittlere Mächtigkeit des Tailingskörpers beträgt 10 m. Die Absetzanlage, die in einem intensiv zur Naherholung genutzten Gebiet liegt, ist nicht verwahrt. Kontaminierte Außendammbereiche sowie kontaminierte Flächen der ehemaligen IAA sind frei zugänglich.

Insgesamt wurden im Aufbereitungsbetrieb Crossen 77.000 t Uran in Form von Konzentrat der mechanischen und chemischen Aufbereitung produziert. Verarbeitet wurden u.a. uranführende Schwarzschiefer und Gangerze aus Thüringen und dem Erzgebirge. Das Erz wurde gemahlen und mit einer  $\text{Na}_2\text{CO}_3$ - (Soda-)Lauge chemisch behandelt, um das Uran zu extrahieren. Die sodaalkalischen Reststoffe dieser chemischen Behandlung wurden in die Absetzbecken gespült. Sie enthalten Soda, Ammonium, Pyrit,  $\text{BaSO}_4$  und erhöhte Konzentrationen von  $^{226}\text{Ra}$  und  $^{210}\text{Pb}$ . Die Abtrennung des Radiums von Uran erfolgte durch die Zugabe von  $\text{BaCl}_2$  bei der Laugung. Dadurch erreichte man eine Ausfällung von Radium mit  $\text{BaSO}_4$  durch Ionensubstitution von Barium durch Radium (Entstehung von radiumhaltigem  $\text{BaSO}_4$ ). Nach PRUD'HOMME et al. (1999) sind nur die feinerkörnigen Bariumpartikel Träger von Radium. Die Elementgehalte im Absetzschlamm von Dänkritz II liegen nach KNAPPIK et al. (1993) bei: 200-1000  $\mu\text{g/g}$  Blei, 40-200  $\mu\text{g/g}$  Zink, 200-400  $\mu\text{g/g}$  Kupfer, 150-300  $\mu\text{g/g}$  Nickel, 60-500  $\mu\text{g/g}$  Arsen, 12-19  $\mu\text{g/g}$  Thorium, 23-92  $\mu\text{g/g}$  Uran und 2-9,8 Bq/g  $^{226}\text{Ra}$ . Das in vorliegender Arbeit untersuchte Tailingsmaterial wurde 1995 durch Kollegen des Departments Analytik des UFZ an drei verschiedenen Stellen der Tailingsdeponie Dänkritz II aus verschiedenen Teufen entnommen (0-3 cm, 10-30 cm).

### *Ergebnisse der lichtmikroskopischen Untersuchungen*

Einen Überblick über die Ergebnisse der lichtmikroskopischen Untersuchungen und Expositionsbedingungen gibt die Tabelle im Anhang C 1.

Alle exponierten Dänkritz-Proben enthalten natürliche Heiße Teilchen. Trotz einer vergleichsweise geringen Expositionszeit von 2 Wochen ist die Zahl der Heiße Teilchen-Spuren (Sternspurmuster) pro  $\text{cm}^2$  auf dem Detektor sehr hoch. Sie liegt zwischen 43 und 85 bei einer gleichzeitig hohen Spurdichte von Alphateilchen (Background) auf dem Detektor. Es treten zahlreiche Cluster-Spurmuster auf. Die Spuren des Backgrounds sind bei den Proben 301-303 inhomogen verteilt, wahrscheinlich infolge der Einbettung der Proben. Die Sternspurmuster sind überwiegend groß und meist sehr symmetrisch (Abb. 39).



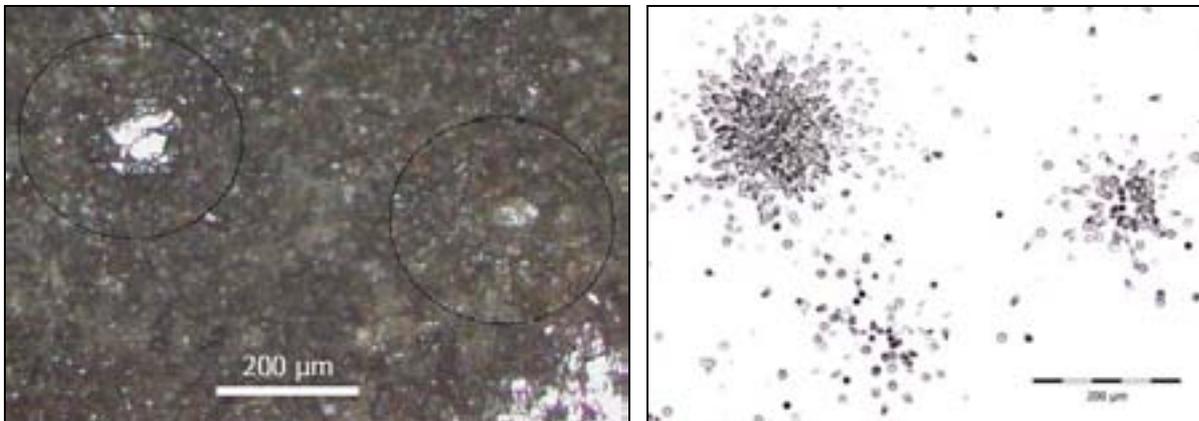
**Abb. 39** Charakteristische Spurbilder natürlicher Heiße Teilchen der Dänkritz-Proben (Probe 303).

### Ergebnisse der elektronenmikroskopischen Untersuchungen

Es wurden drei Tailingsproben (Proben-Nr. 301, 302, 303) von Dänkriz unter dem Elektronenmikroskop untersucht. Die Ergebnisse dieser Untersuchungen sind tabellarisch im Anhang C 2 dargestellt.

Insgesamt wurden auf den 3 Probenoberflächen 75 Markierungen geritzt, über denen auf dem Detektor Sternspurmuster gefunden wurden. Trotz intensiver Suche konnte jedoch nur in einer Markierung (Probe 303) ein Alphaemitter (Heißes Teilchen) gefunden werden, bei dem es sich um ein kleines, 20 µm großes Monazitkörnchen handelt.

Sehr häufig liegen Barytkörnchen unter den Sternspurmustern (Abb. 40). Bei der Analyse mit dem Elektronenmikroskop liegen auf diesen Barytkörnchen Aufhellungen bei Po, U, Th, aber selbst bei einer Punktanalyse mit einem 10 µm-Elektronenstrahl und bei hoher Energie gelang es nicht, diese Elemente im Spektrum nachzuweisen. Entsprechend der Aufbereitung der Uranerze ist zu erwarten, dass Baryt Radium enthält, aber auch dieses konnte nicht detektiert werden.



**Abb. 40** Polierte Oberfläche einer eingebetteten Dänkriz-Probe (Probe 301, linkes Bild). Anhand der Sternspurmuster (rechtes Bild) auf dem mit der Probe korrelierten Detektor, konnte das Vorkommen Heißer Teilchen auf der Probenoberfläche lokalisiert werden (schwarze Kreise). Die Sternspurmuster haben sich hier über Barytpartikeln gebildet, die sowohl im Lichtmikroskop als auch im Elektronenmikroskop sehr hell erscheinen. Trotz der gut ausgebildeten Sternspurmuster konnte in diesen Barytkörnchen nicht in einem einzigen Fall ein Alphaemitter nachgewiesen werden. Lichtmikroskopische Aufnahmen.

Zur Klärung der Frage, ob die erfolglose Suche nach Heißer Teilchen mit der geringen Konzentration von alphaemittierenden Radionukliden in den Proben in Zusammenhang stehen könnte, wurden mittels Gammaskopmetrie und ICP-AES Aktivitätskonzentrationen und Gehalte verschiedener Radionuklide (Tab. 10) bzw. Elemente in den Dänkriz-Proben bestimmt.

**Tab. 10** Ergebnisse der Gammaskopmetrie der elektronenmikroskopisch untersuchten Dänkriz-Proben.

Probe	Aktivitätskonzentration [Bq/kg]					Gehalt [µg/g]	
	<sup>238</sup> U	<sup>226</sup> Ra	<sup>210</sup> Pb	<sup>232</sup> Th	<sup>212</sup> Pb	Uran	Thorium
Dänkriz A	1875±71	9211±138	7184±86	63±14	47±3	152±6	16±4
Dänkriz B	2228±89	9901±119	8481±153	68±14	57±3	180±8	17±4
Dänkriz C	3163±28	11363±170	11472±195	60±18	59±4	256±3	15±5

Die Aktivitätskonzentrationen der Radionuklide aus der  $^{238}\text{U}$ -Zerfallsreihe sind sehr hoch, wobei das radioaktive Gleichgewicht erwartungsgemäß gestört ist. Infolge der oben beschriebenen chemischen Aufbereitungsmethoden des Uranerzes ist  $^{238}\text{U}$  gegenüber  $^{226}\text{Ra}$  und  $^{210}\text{Pb}$  angereichert. Der aus der Aktivitätskonzentration abgeleitete Urangehalt der Dänkritz-Proben beträgt zwischen 152 und 256  $\mu\text{g/g}$ , eine deutliche Anreicherung gegenüber dem natürlichen Urangehalt der Erdkruste von ca. 3  $\mu\text{g/g}$ . Die Gehalte an Radium und Blei liegen sogar noch darüber. Die Radionuklide der  $^{232}\text{Th}$ -Zerfallsreihe zeigen keine Besonderheiten.

Messungen mit der ICP-AES ergaben folgende Werte (frdl. mdl. Mitt. Dr. Wennrich, UFZ): 210-260  $\mu\text{g/g}$  für Uran, 12-14  $\mu\text{g/g}$  Thorium, bis 300  $\mu\text{g/g}$  für Pb. Sie bestätigen im Wesentlichen die mit dem Gammaskpektrometer ermittelten Messwerte. Es konnte nicht abschließend geklärt werden, warum so deutliche Radionuklidgehalte (z.B. von Uran und Radium), die sich im Übrigen auch in der hohen Spurdichte der Background-Spuren widerspiegeln, mit der Mikrosonde nicht detektiert werden konnten. Nach Mitteilung von Dr. Th. Doering (Universität Leipzig) ist der Nachweis von Elementen jedoch nicht nur von deren Konzentration abhängig, sondern auch davon, wie sie mineralogisch gebunden sind. Möglicherweise ist gerade der Nachweis von Radium in Verbindung mit Barium problematisch. Auch bei anderen Proben lagen unter gut ausgebildeten, großen Sternspurmustern Barytkörnchen. In keinem Fall konnte in diesen Barytkörnchen ein Alphaemitter gefunden werden.

#### 4.1.1.4 Haldenmaterial (Uranerzbergbau) von Lengsfeld

Lengsfeld war eine Aufbereitungsanlage für Uranerz im Vogtland (Abb. 37), die zwischen 1947 und 1961 in Betrieb war. Es wurden erzgebirgische, vogtländische und später sächsische und thüringische Erze aufbereitet (AUTORENKOLLEKTIV 1999). Entsprechend der Art der angelieferten Erze wurden zwei Aufbereitungstechnologien angewandt: in den Jahren 1947-1958 eine radiometrische und nasschemische Aufbereitung, bis 1961 parallel dazu eine hydrometallurgische Aufbereitung mit sodaalkalischen und sauren Prozessen. Die Rückstände der radiometrischen und nasschemischen Aufbereitung wurden im Plohnbachtal abgelagert, die Laugungsrückstände der Hydrometallurgie wurden in einer Absetzanlage deponiert (AUTORENKOLLEKTIV 1999). Nach der Einstellung des Betriebes im Jahre 1961 wurden Teile der Aufbereitungsanlagen durch den VEB Fluß- und Schwerspat Lengsfeld und weitere Betriebsflächen durch Baustofffirmen genutzt.

Die Absetzanlage Lengsfeld nimmt eine Fläche von ca. 1,2 ha ein. Sie befindet sich heute in kommunaler Hand. Sie enthält ungefähr 100 000  $\text{m}^3$  Tailings mit einer mittleren Mächtigkeit von 5 m. Die Elementgehalte des Tailingsmaterials liegen bei: 35  $\mu\text{g/g}$  Pb, 165  $\mu\text{g/g}$  Zn, 560  $\mu\text{g/g}$  Cu, 104  $\mu\text{g/g}$  Co, 441  $\mu\text{g/g}$  As, 185  $\mu\text{g/g}$  U, 5 Bq/g Ra (KNAPPIK et al. 1996). In den Jahren 1968-1989 wurden darüber die Rückstände der Fluß- und Schwerspataufbereitung in einer Mächtigkeit von 1-8 m abgelagert.

Das in der vorliegenden Arbeit untersuchte Material wurde im Jahre 2000 von einer kleinen Halde auf dem ehemaligen Gelände der Aufbereitungsanlage Lengsfeld entnommen. Das Probenmaterial wurde gesiebt und die Proben der einzelnen Korngrößenklassen anschließend exponiert.

#### *Ergebnisse der lichtmikroskopischen Untersuchungen*

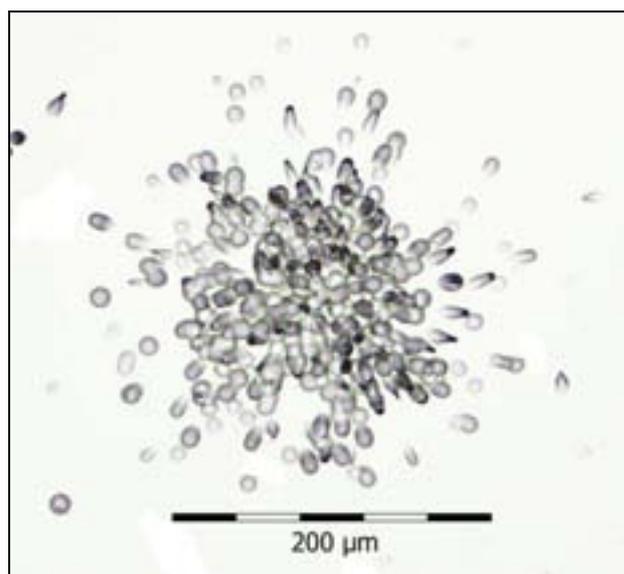
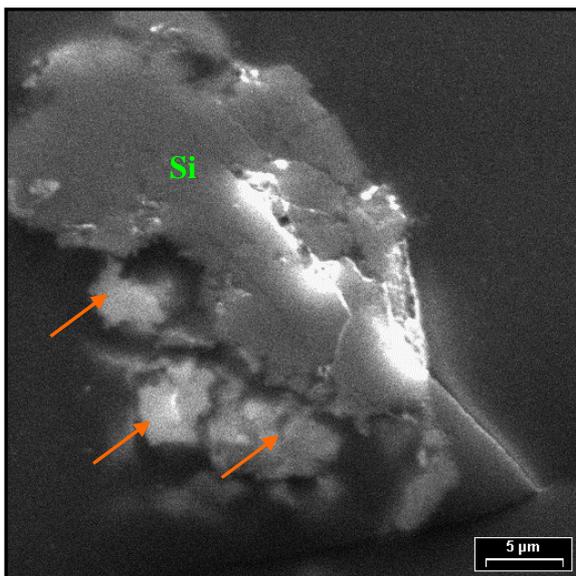
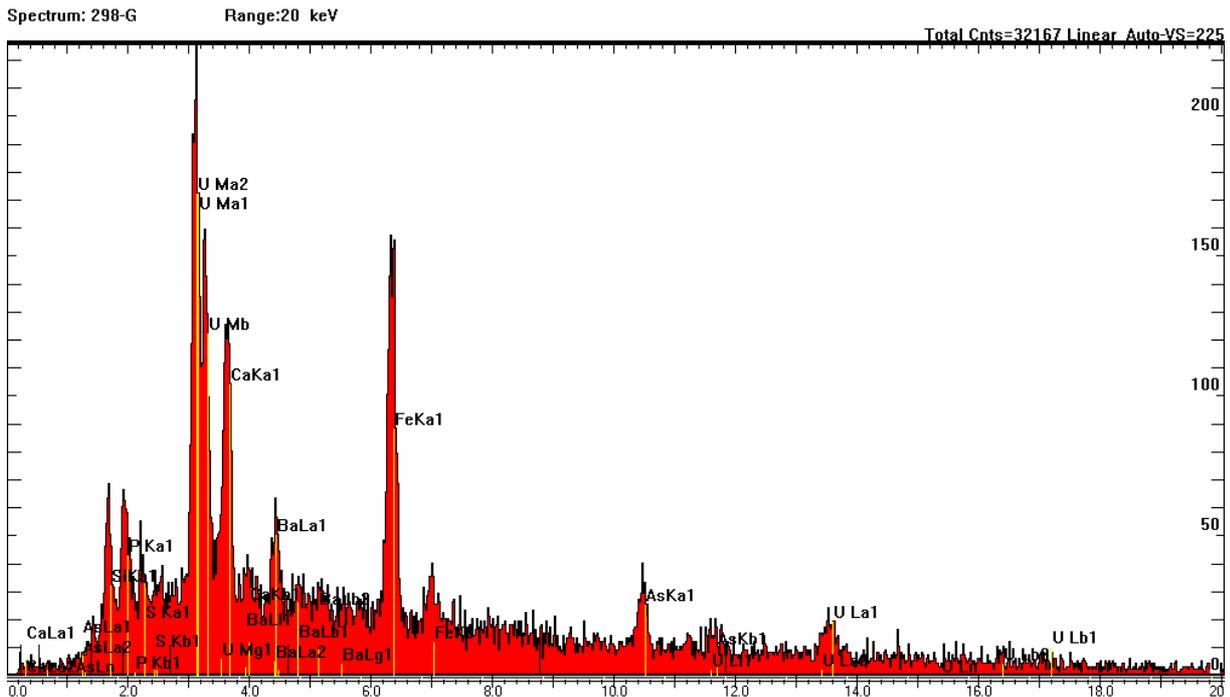
Einen Überblick über die Ergebnisse der lichtmikroskopischen Untersuchungen und Expositionsbedingungen gibt die Tabelle im Anhang D 1.

In allen Korngrößenklassen der Lengsfeld-Proben finden sich natürliche Heiße Teilchen. Die Zahl der Heiße Teilchen-Spuren (Sternspurmuster) pro  $\text{cm}^2$  auf dem Detektor ist bei einer gleichzeitig relativ kurzen Expositionszeit von 2 Wochen sehr hoch. Sie liegt zwischen 5 und

90 Heißen Teilchen pro  $\text{cm}^2$ , mit einer deutlichen Zunahme der Anzahl von Heißen Teilchen zu den kleinen Korngrößen hin (Abb. 97 im Kap. 4.2 Methodische Ergebnisse). So ist die Anzahl von Heiße Teilchen-Spuren pro  $\text{cm}^2$  bei Probe 300 mit einer Korngröße  $<63 \mu\text{m}$  mit 90 um das 18fache höher als bei Probe 296 (Korngröße  $>2 \text{mm}$ ). Die Spurdichte von Alpha-spuren (Background) auf dem Detektor ist ebenfalls hoch.

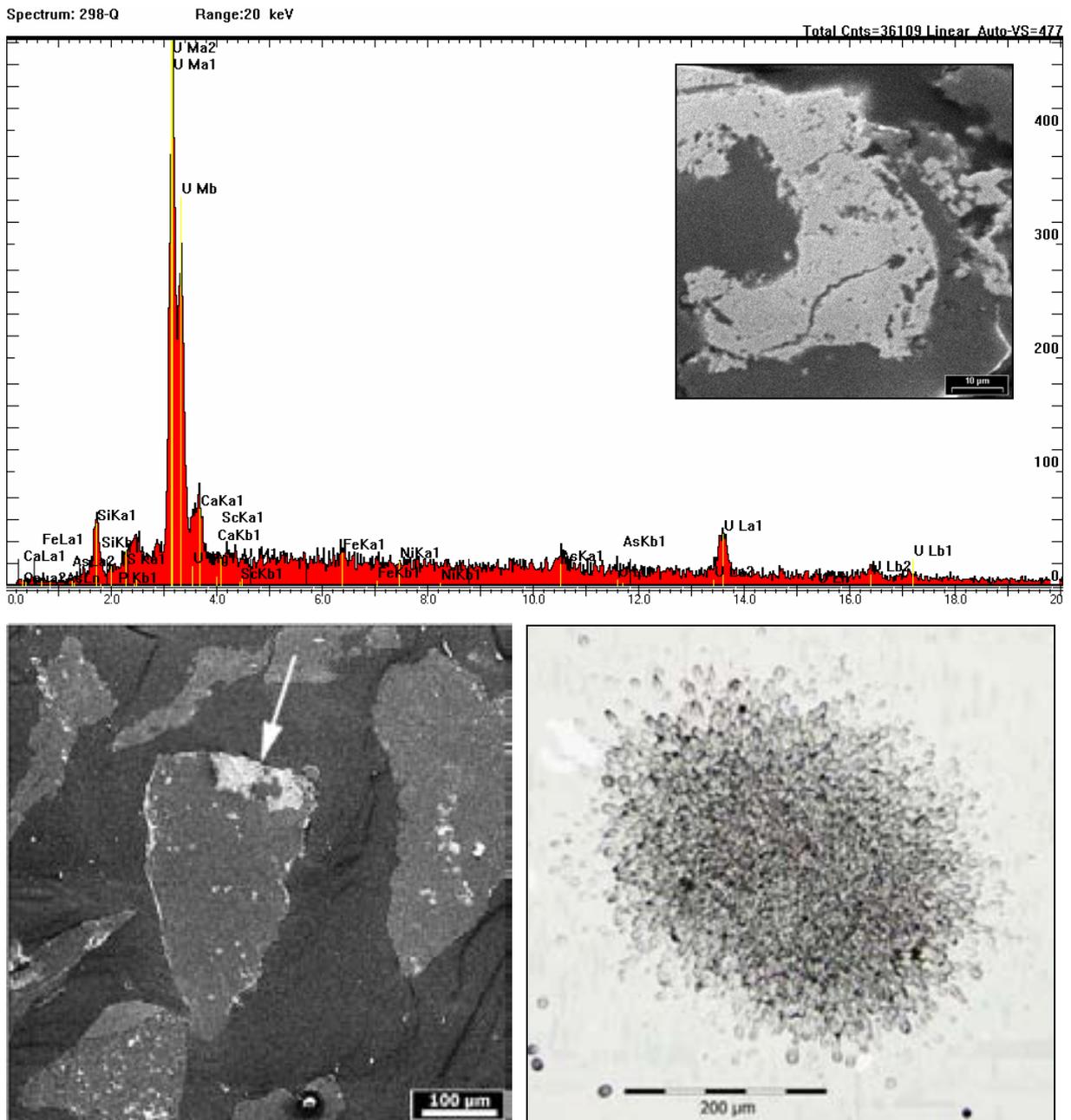
### Ergebnisse der elektronenmikroskopischen Untersuchungen

Es wurden vier Proben von Lengenfeld unter dem Elektronenmikroskop untersucht. Die Ergebnisse dieser Untersuchungen sind tabellarisch im Anhang D 2 dargestellt.

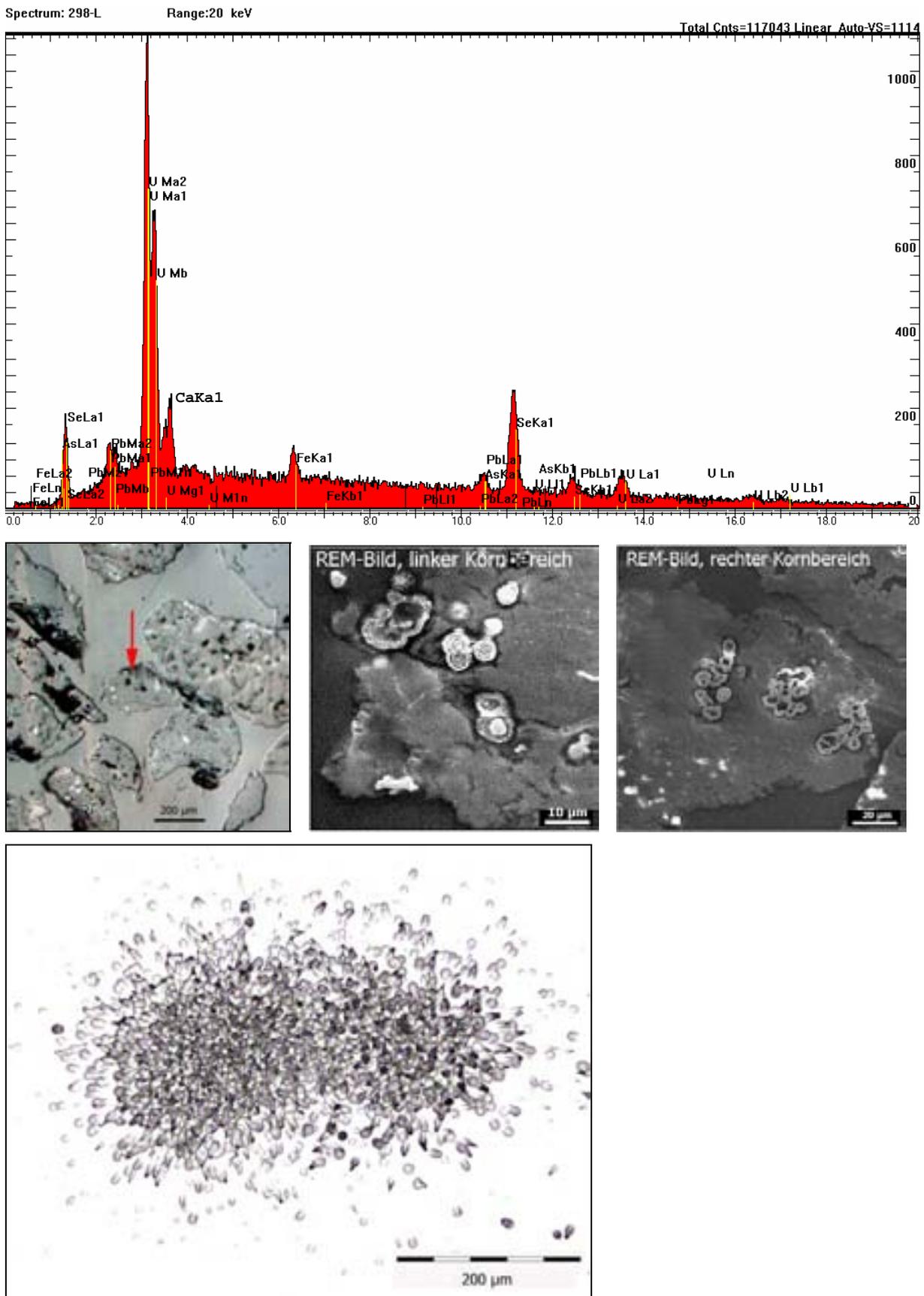


**Abb. 41** EDX-Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines natürlichen Heißen Teilchens aus dem Tailingsmaterial Lengenfeld (298 g). Es handelt sich um einen schmalen, unter  $10 \mu\text{m}$  langen Saum mit Uran ( $\text{UO}_2$ ; helle Bereiche an den roten Pfeilen im REM-Bild) an einem größeren Korn (Silikat). Der Uranpeak im Spektrum ist deutlich ausgeprägt, die anderen Elemente (Ca, P, Si, Ba, As, Fe) kommen aus der Umgebung des detektierten Partikels.

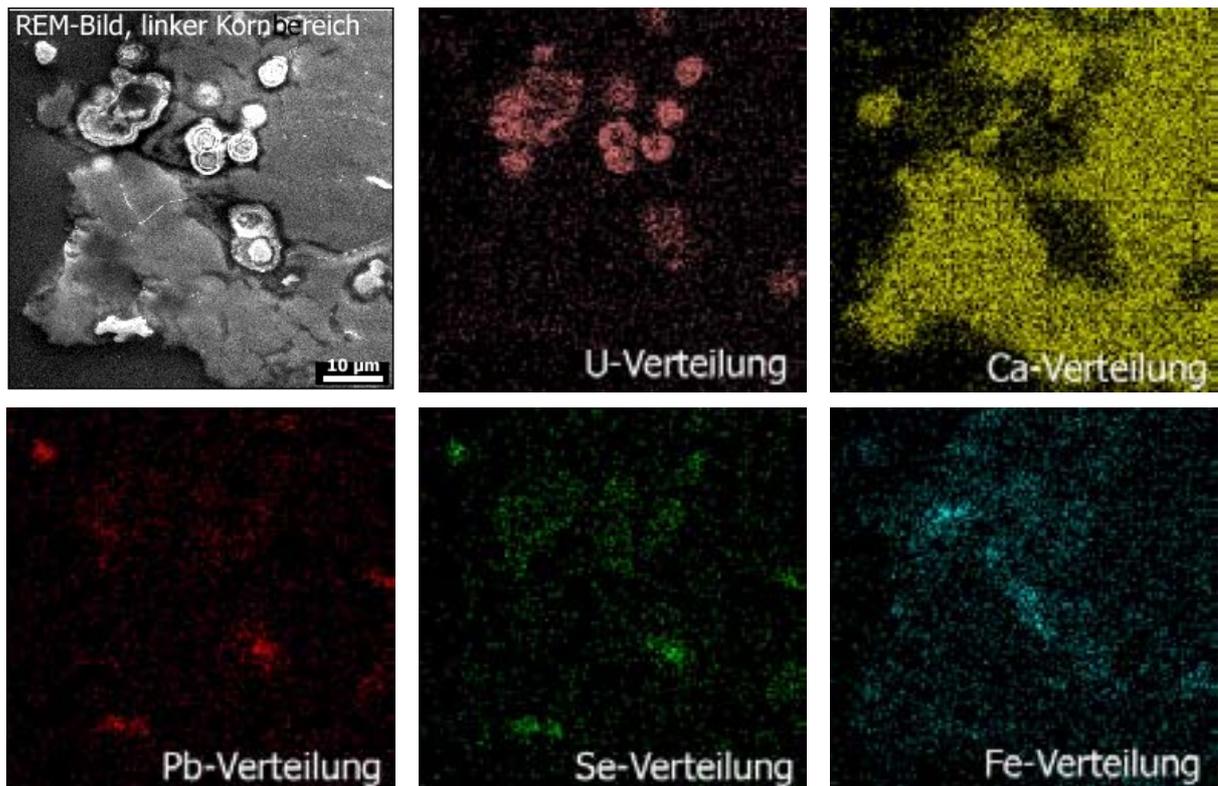
In 38 von 73 untersuchten Markierungen konnten Heiße Teilchen detektiert werden. Dabei handelt es sich überwiegend um Uranminerale als Uraninit (Uranpechblende), Uranglimmer (Uran-Phosphate, -Arsenate) sowie Brannerit  $[U, Ca (Ti, Fe)_2 O_6]$ . Daneben kommen Monazit  $Ce(Th)PO_4$ , Zirkon  $Zr(U)SiO_4$  und Xenotim  $Y(U, Th)PO_4$  vor. Als Einzelkörnchen vorkommende Heiße Teilchen sind die Ausnahme, meist ist Uran fein eingesprengt im Nebengestein, das aus Quarz- oder Silikatpartikeln besteht und auch andere Erze wie As, Ni, Bi, Fe, K, Al, Pb, Ti enthält. Diese Einsprengungen (Schlieren, Flecken, Tröpfchen) von Uran sind überwiegend sehr klein. Ihre Größe liegt meist zwischen 1 und 5  $\mu m$  (Abb. 41 bis 44 und Tafeln 29 bis 42).



**Abb. 42** EDX-Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines natürlichen Heißen Teilchens aus dem Tailingsmaterial Lengenfeld (298 q). Es handelt sich hier um einen ca.  $60 \times 140 \mu m$  großen hellen Bereich (REM-Bild: an zuckertütenförmigem Korn in Bildmitte, weißer Pfeil; Detailbild im Spektrum) aus Uraninit ( $UO_2$ ) in einem größeren Silikat Korn. Der hier relativ hohe Urangehalt spiegelt sich sowohl in dem deutlichen Uranpeak im Spektrum als auch in dem großen Sternspurmuster mit hoher Spurdichte wider.



**Abb. 43** EDX-Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild von Heißen Teilchen aus dem Tailingsmaterial Lengdenfeld (298 l). Es handelt sich hier um ein Calcitkörnchen (= roter Pfeil; mittlere Bildreihe links, lichtmikroskopische Aufnahme der Probenoberfläche) mit Uranpechblende (traubig-nierige, kugelige, helle Bereiche auf REM-Aufnahmen). Die Bereiche mit der Pechblende sind in der lichtmikroskopischen Aufnahme als helle Pünktchen im linken und rechten Teil des Kornes erkennbar. Die Heiße Teilchen-Spur zeichnet diese Bereiche nach.



**Abb. 44** Elementverteilungsbilder der Lengenfeld-Probe 298 I, linker Kornbereich (vgl. auch Abb. 43). Die auf der REM-Aufnahme als helle, traubige Bereiche zu erkennende Uranpechblende wird deutlich durch das Element Uran nachgezeichnet. Die Pechblende kommt in einem Karbonatkörnchen (Ca-Verteilung) vor. Pb und Se haben dasselbe Verteilungsmuster, es handelt sich hier wahrscheinlich um Clausthalit (PbSe), der zusammen mit Pechblende vorkommen kann.

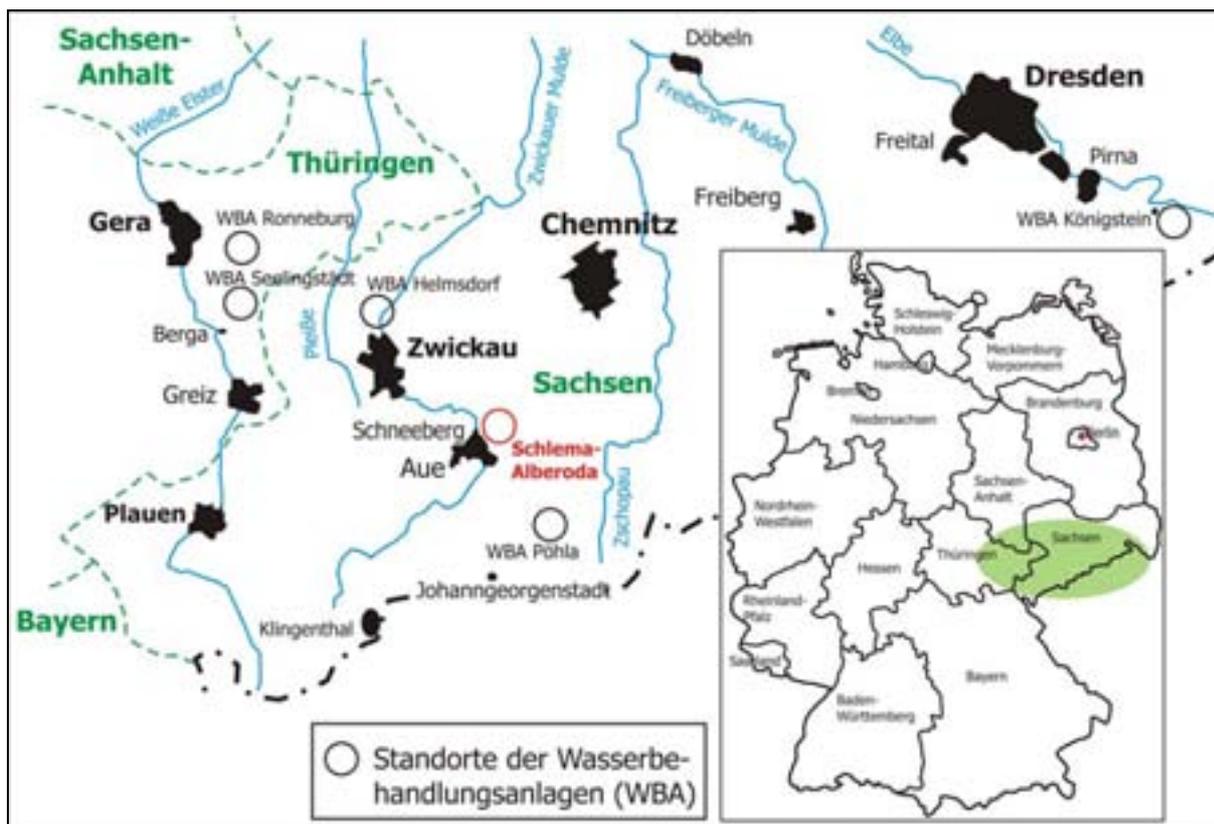
Wie auch bei den Dänkritz-Proben liegen häufig große und symmetrische Sternspurmuster über Barytkörnchen. Beim Scannen dieser Baryte mit dem Elektronenmikroskop zeigten sich auch hier Aufhellungen bei Po, U und Th. Aber trotz Punktanalysen mit erhöhter Beschleunigungsspannung und bei längerer Messzeit konnten keine alphaemittierenden Elemente in den Barytkörnchen nachgewiesen werden (vgl. Problematik bei den Dänkritz-Proben, Kap. 4.1.1.3).

Gammaspektrometrische Messungen einer Mischprobe von Lengenfeld ergaben eine Aktivitätskonzentration von  $^{226}\text{Ra}$  von  $15,7 \pm 0,2$  kBq/kg (mdl. Mitt. Dr. H.C. Treutler). Generell sind die Aktivitätskonzentrationen der Radionuklide der  $^{238}\text{U}$ -Zerfallsreihe sehr hoch, wobei das radioaktive Gleichgewicht gestört ist.  $^{238}\text{U}$  und  $^{210}\text{Pb}$  sind gegenüber  $^{226}\text{Ra}$  abgereichert. Die bei der chemischen Aufbereitung der Uranerze erfolgte Abtrennung des alphastrahlenden Radiums von Uran durch  $\text{BaCl}_2$  führte zur Entstehung von radiumhaltigem Baryt. Mit der Mikrosonde bzw. dem Rasterelektronenmikroskop konnte jedoch kein Radium in den Baryten gefunden werden.

#### 4.1.1.5 Fällungsrückstände aus der Wasserbehandlungsanlage Schlema-Alberoda

Die mehr als 40jährige intensive Gewinnung und Verarbeitung von Uranerzen in Thüringen und Sachsen, die Ende 1990 abrupt eingestellt wurde, hinterließ 1400 km offene Grubenbaue, 311 Mio. m<sup>3</sup> Haldenmaterial und 160 Mio. m<sup>3</sup> radioaktive Schlämme in dicht besiedelten Gebieten ([www.wismut.de/sanierung](http://www.wismut.de/sanierung)). Die Sanierung dieser Hinterlassenschaften des Uranerzbergbaus ist Aufgabe der bundeseigenen Wismut GmbH. Eine der Hauptaufgaben ist die Wasserbehandlung der bei der Sanierung anfallenden, mit Schadstoffen kontaminierten Wässer (Flutungswasser, Frei- und Porenwasser der Absetzanlagen, Haldensickerwasser). Zum Schutz des Grund- und Oberflächenwassers müssen diese Wässer gefasst und in den Wasserbehandlungsanlagen (WBA) gereinigt werden. Typische Schadstoffe im zu behandelnden Wasser sind Uran, Radium, Arsen, Eisen und Mangan. Die Abtrennung dieser Schadstoffe erfolgt meist durch Fällungsverfahren. Durch Zugabe spezieller Chemikalien werden die Schadstoffe aus dem Wasser als schwerlösliche Verbindungen ausgefällt. Die anfallenden Rückstände der Wasserbehandlung werden dann in den am Standort der Wasserbehandlungsanlage offenen bergbaulichen Anlagen wie z. B. Grubenhohlräume, Halden und freigefallene Beckenbereiche zugriffssicher verwahrt ([www.wismut.de/sanierung](http://www.wismut.de/sanierung)).

Die Wismut GmbH betreibt 6 Wasserbehandlungsanlagen in Sachsen und Thüringen (Abb. 45), darunter die WBA Schlema-Alberoda bei Aue im Südwesten Sachsens, von der auch die hier untersuchte Probe (Fällungsrückstand) stammt.



**Abb. 45** Standorte der Wasserbehandlungsanlagen in Sachsen und Thüringen. Der Standort Schlema-Alberoda, von dem die bearbeitete Probe stammt, ist rot gekennzeichnet. Die Lage des Gebietes in Deutschland wird durch das grüne Oval markiert (kleines Bild).

Am Standort Schlema-Alberoda wurden zwischen 1946 und 1991 ca. 80 000 t Uran gewonnen. Der zu sanierende Grubenhohlraum beträgt 40 Mio. m<sup>3</sup> und umfasst über 60 Sohlen, deren tiefste bei -1800 m liegt. Seit 2004 ist im Grubenfeld Schlema-Alberoda bereits der überwiegende Teil der Hohlräume geflutet. Die Wasserbehandlungsanlage Schlema-Alberoda wurde 1999 (Teilanlage 1) bzw. 2001 (Teilanlage 2) in Betrieb genommen ([www.wismut.de/sanierung](http://www.wismut.de/sanierung)). Es werden die aufsteigenden Flutungswässer der Grube Schlema-Alberoda behandelt. Die durch chemische Fällung abgetrennten Hauptschadstoffe sind Uran, Radium, Arsen, Eisen und Mangan. Auch andere Inhaltsstoffe wie Magnesium und Calcium stellen zusammen mit Sulfaten, Chloriden und Karbonaten Grenzwerte dar, da sie eine extreme Wasserhärte verursachen. Die anfallende Wassermenge der Grube Schlema-Alberoda liegt bei 1000 m<sup>3</sup>/h, die maximale Behandlungskapazität der Anlage bei 1150 m<sup>3</sup>/h. Die behandelten Wässer werden in die Zwickauer Mulde eingeleitet. Die Betriebszeit der Anlage soll 25 Jahre betragen, bis die Schadstoffkonzentration der Wässer soweit gesunken ist, dass das Wasser direkt in den Vorfluter geleitet werden kann ([www.wismut.de/sanierung](http://www.wismut.de/sanierung)). Die bei der Grubenwasserreinigung bei der Behandlung von Wässern des Uranbergbaus anfallenden Schlämme sind NORM-Rückstände, die zu einer zusätzlichen beruflichen Strahlenexposition führen. In der WBA Schlema-Alberoda entstehen jährlich ca. 3200 t solcher Rückstände mit einer spezifischen Aktivität für <sup>238</sup>U von 500 Bq/g bzw. für <sup>226</sup>Ra von 20 Bq/g (GELLERMANN et al. 2003).

Bei dem untersuchten Fällungsrückstand handelt es sich um ein ockerfarbened, sehr feinkörniges Pulver. Die Rückstandsprobe wurde im März 2001 bei einer Exkursion in die Wasserbehandlungsanlage Schlema-Alberoda aus dem laufenden Prozess entnommen und anschließend im Labor getrocknet. Für zwei Expositionen wurde das Pulver nach den Korngrößen < 200 µm und < 63 µm gesiebt. Für die anderen Expositionen wurde die gesamte Fraktion verwendet. Durch gammaspektrometrische Messungen wurde in den untersuchten Rückstandsproben für <sup>238</sup>U (<sup>234</sup>Th) eine Aktivitätskonzentration von 152±6 Bq/g ermittelt (Analyse: Dr. H.C. Treutler, UFZ). Unter Voraussetzung des radioaktiven Gleichgewichtes zwischen <sup>238</sup>U und <sup>234</sup>Th ergibt sich ein Urangehalt von 12,3±0,5 mg/kg.

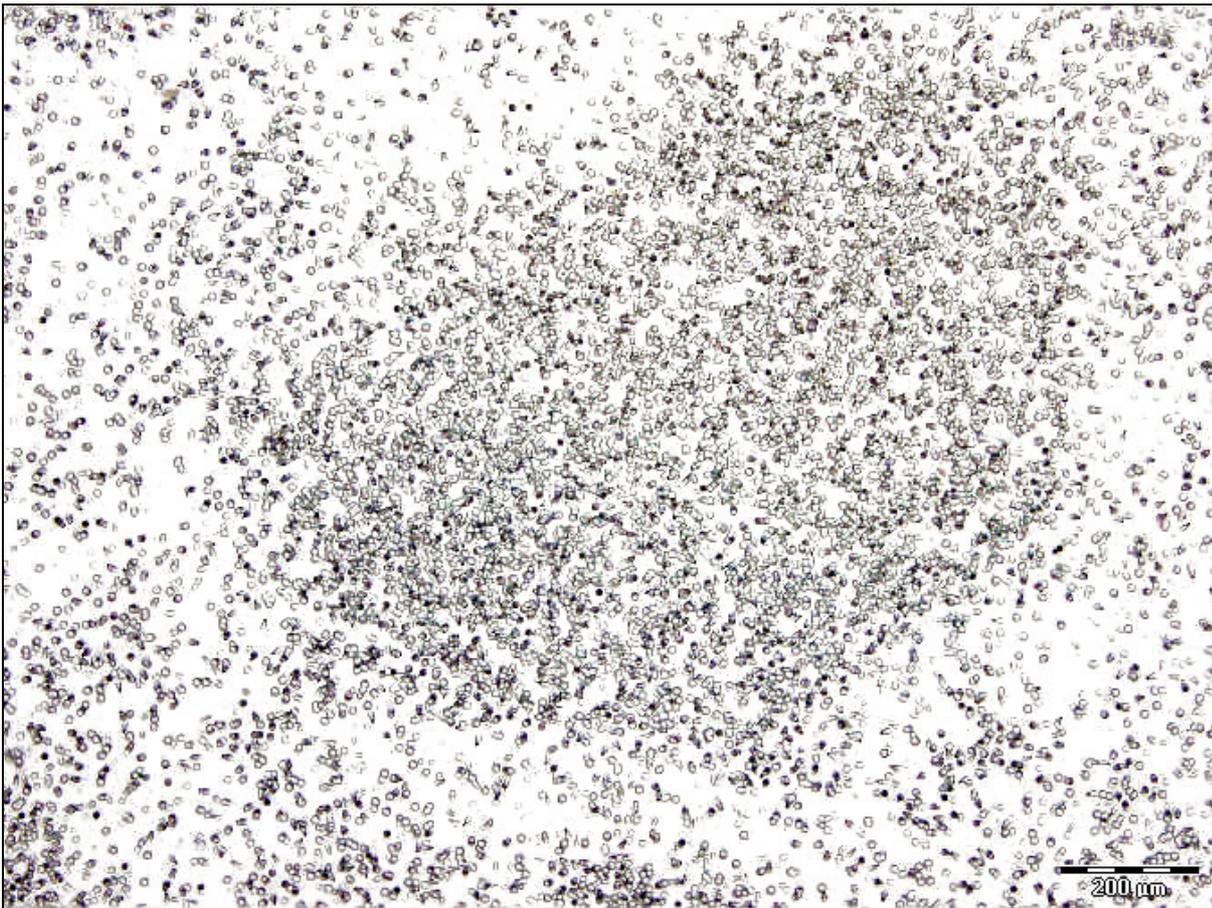
### ***Ergebnisse der lichtmikroskopischen Untersuchungen***

Einen Überblick über die Ergebnisse der lichtmikroskopischen Untersuchungen und Expositionsbedingungen gibt die Tabelle im Anhang E.

Keine der zwischen 3 Stunden und 14 Tagen exponierten Rückstands-Proben enthält natürliche Heiße Teilchen. Hohe Aktivitätskonzentrationen der Proben führen jedoch dazu, dass der Detektor – selbst bei einer Expositionszeit von 3 Stunden – eine hohe bis sehr hohe Spurdichte (Background) von Alphapartikeln aufweist (Abb. 46). Die Spurdichte ist teilweise so hoch, dass die Spuren sich überlagern. Die Spuren sind überwiegend homogen über den Detektor verteilt, teilweise treten wolkenartige Spürhäufungen auf (Abb. 46).

Durch den Fällungsprozess der in den Grubenwässern homogen verteilten (gelösten) Schadstoffe (Radionuklide) kommt es offensichtlich zu keiner Aufkonzentration der Radioaktivität in Form natürlicher Heiße Teilchen. Die Radioaktivität liegt in den Rückständen dieses Fällungsprozesses homogen verteilt vor.

Die Rückstandsproben der WBA Schlema-Alberoda wurden nicht unter dem Elektronenmikroskop untersucht.



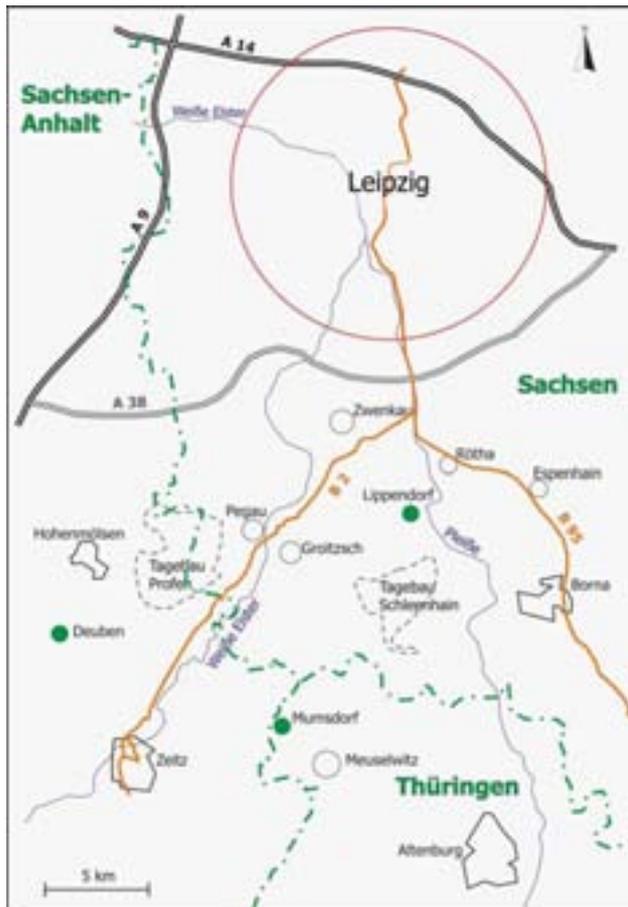
**Abb. 46** Autoradiogramm einer Rückstandsprobe von Schlema-Alberoda (Probe 404). Es zeigt eine hohe Spurdichte von Alphaspuren, die wolkig konzentriert sind. Die Probe wurde 2 Wochen exponiert. Heiße Teilchen-Spuren (Sternspurmuster) kommen nicht vor.

#### 4.1.1.6 Kraftwerksaschen

Braunkohle wird in Deutschland im Tagebaubetrieb gefördert und in nahe gelegenen Wärmekraftwerken zur Stromerzeugung verbrannt. Die mit fossilen Brennstoffen betriebenen Kraftwerke (Kohlekraftwerke) gelten als bedeutende Luftverschmutzer. Die bei der Verbrennung entstehenden Rauchgase enthalten zahlreiche Schadstoffe, wie Staub, Schwefeldioxid, Stickoxide und Kohlendioxid. Sie müssen einer aufwendigen Abgasreinigung unterzogen werden (Rauchgasentstaubungs- und Rauchgasentschwefelungsanlagen). Kraftwerksasche kann radioaktiv belastet sein, da die Kohle in geringen Mengen radioaktive Substanzen (Uran, Thorium, Kalium) enthält. Durch die Verbrennung erfolgt eine Konzentration der Radioaktivität in der Asche bis auf das 10-fache (GELLERMANN et al. 2003). Je nach Anlage können 0,4-8 % der Asche als Flugasche freigesetzt werden und so in die Umwelt gelangen. Dadurch kann es zu einer Exposition durch Inhalation, Ingestion und externe Bestrahlung kommen. Kraftwerke zählen zu den größten technologischen Quellen partikulärer Emissionen in die Außenluft, wobei die durchschnittliche Größe der Flugaschepartikel aus Kohlekraftwerken bei ca. 4 µm (Feinstaubproblematik!) liegt (NEINAVAIE et al. 2000). Die Rückstände aus der Verbrennung von Braunkohlen (Asche) sind NORM-Materialien.

Für die Untersuchung standen Aschen der ostdeutschen Braunkohlenkraftwerke Deuben, Mumsdorf und Alt-Lippendorf zur Verfügung (Abb. 47). Die Rohkohlen enthalten Radionuklide der Uran-Radium-Reihe, wobei in der ostdeutschen Braunkohle 1-13 Bq <sup>226</sup>Ra (Leitnuklid) pro kg Trockenmasse bestimmt wurden (GELLERMANN et al. 2003). Die Kohlekraftwerke

Deuben (Sachsen-Anhalt) und Mumsdorf (bei Meuselwitz in Thüringen) werden von der Mitteldeutschen Braunkohlengesellschaft mbH (MIBRAG) betrieben. Die verarbeitete Rohbraunkohle kommt aus dem Tagebau Profen, der ebenfalls zur MIBRAG gehört. Das 1969 in Betrieb genommene alte Kohlekraftwerk Lippendorf, ca. 15 km südlich von Leipzig in Sachsen, wurde 2000 vom neuen Kohlekraftwerk Lippendorf abgelöst. Im alten Kraftwerk wurde Braunkohle aus dem Tagebau Schleenhain verstromt. Die Braunkohle für das neue Kraftwerk kommt aus dem zur MIBRAG gehörenden Tagebaubetrieb „Vereinigtes Schleenhain“. Die in der vorliegenden Arbeit untersuchte Ascheprobe stammt noch vom alten Kraftwerk Lippendorf aus dem Jahre 1997. Zusammen mit dem Kraftwerk Deuben ist das Kraftwerk Lippendorf heute der größte Energielieferant in Mitteldeutschland.



**Abb. 47** Das Dreiländereck Sachsen-Anhalt, Thüringen, Sachsen mit Lage der Kohlekraftwerke Lippendorf, Deuben und Mumsdorf. Die Position des Gebietes ist auf der Deutschlandkarte (kleine Abbildung) durch das grüne Rechteck gekennzeichnet.

### *Ergebnisse der lichtmikroskopischen Untersuchungen*

Einen Überblick über die Ergebnisse der lichtmikroskopischen Untersuchungen und Expositionsbedingungen gibt die Tabelle im Anhang F.

Alle exponierten Asche-Proben enthalten Heiße Teilchen. Jedoch ist die Zahl der Heiße Teilchen-Spuren (Sternspurmuster) auf dem gesamten Detektor (nicht eingebettet = 22 cm<sup>2</sup>, eingebettet = 4,9 cm<sup>2</sup>) sehr gering. Sie liegt überwiegend zwischen 1 und 3, max. bei 7. Das entspricht zwischen 0,05 und 1,4 Sternspurmustern pro cm<sup>2</sup>. Trotz einer längeren Expositionszeit von 7 Wochen sind die Sternspurmuster sehr klein und die Spurdichte von Alphapartikeln (Background) auf dem Detektor ist gering. Dies weist auf eine niedrige spezifische Aktivität der Probe hin und lässt erwarten, dass die alphaemittierenden Partikel sehr klein sind. Die Proben wurden nicht elektronenmikroskopisch untersucht.

#### 4.1.1.7 Phosphatgesteine, Phosphorgips und Versuchsbausteine von Brasilien

Im Rahmen eines internationalen Projektes, mit dem Umweltforschungszentrum als ein Partner, wurde vom Centro de Desenvolvimento da Tecnologia Nuclear (CDTN) in Belo Horizonte (Minas Gerais, Brasilien) die Eignung von Phosphorgips als Baumaterial für zivile Bauwerke in tropischen Ländern geprüft. Dabei ging es um den Ersatz des natürlichen Gipses durch Phosphorgips im Bauwesen Brasiliens. Es wurden verschiedene Mischungen aus Phosphorgips, Sand, Zement und Wasser getestet, um zu prüfen in welcher Zusammensetzung das Material die besten mechanischen und physikalischen Eigenschaften aufweist. Phosphorgips entsteht in großen Mengen als Nebenprodukt bei der Herstellung von Phosphorsäure. Die großen Phosphatindustrien Brasiliens erzeugen jährlich ca. 5,4 Mio. t Phosphorgips (Vanusa Jacomino, pers. Mitteilung.). Er enthält eine Anzahl von natürlich vorkommenden Radionuklid (Ra, U, Th, Po, Pb) sowie toxische Elemente (As, Cd, Cr, Pb, Hg, Se), die aus dem Phosphatgestein (Ausgangsgestein) stammen und bei der Aufbereitung im Phosphorgips konzentriert werden. Nutzungsmöglichkeiten für Phosphorgips sind wegen seines großen Aufkommens und der geringen Kosten aus ökonomischer und sozialer Sicht sehr bedeutend.

Zur Charakterisierung des Radionuklidgehaltes mittels hochauflösender Gammaskopie wurden dem UFZ zahlreiche relevante Proben zur Verfügung gestellt und konnten auch in der vorliegenden Arbeit untersucht werden. Die Probenvielfalt reicht dabei von den originalen Phosphatgesteinen, über verschiedene Behandlungsstufen der Gesteine bis hin zu Phosphorgips und Mischungen von Phosphorgips mit anderen Materialien (Sand, Zement, natürlicher Gips).

Die Phosphatgesteine stammen von mineralisierten Intrusiva in den brasilianischen Bundesländern Minas Gerais (Araxá, Tapira) und Goiás (Catalão) (Abb. 48). Bei diesen vulkanischen Intrusiva handelt es sich um Karbonatite – magmatische Gesteine mit mehr als 50 % Karbonatmineralen – die wirtschaftlich bedeutende Anreicherungen von Niob, Phosphaten, Seltenenmetallen und Tantal enthalten. Sie sind reich an Apatit, Magnetit, Phlogopit, Olivin und Baryt und weisen darüber hinaus einen beträchtlichen Uran- und Thoriumgehalt auf. Der extrem hohe Anteil von Niob und Tantal in den brasilianischen Ablagerungen ist ein Ergebnis der intensiven Verwitterung der Karbonatite (lateritische Verwitterung) und der damit verbundenen relativen Anreicherung wertvoller Rohstoffe. Die starke Verwitterung resultiert in einem sehr feinkörnigen Verwitterungsmaterial, das leicht durch Wind ausgeblasen und in der Umwelt verteilt werden kann. Wegen des Radionuklidinventars der Ablagerungen ergibt sich daraus ein beträchtliches Gesundheitsrisiko.

Der Barreiro-Karbonatit-Komplex liegt etwa 6 km südlich der Stadt Araxá im Südwesten des Bundesstaates Minas Gerais (Abb. 48). Er ist annähernd kreisförmig mit einem Oberflächendurchmesser von ca. 4,5 km. Der Karbonatit intrudierte vor ungefähr 89 Mio. a (Oberkreide) in die Quarzite und Schiefer der proterozoischen Araxá-Gruppe (ISSA FILHO et al. 1984). Er besteht hauptsächlich aus Dolomitkarbonatit, untergeordnet aus Calcitkarbonatit und Glimmerit und enthält u.a. Betafit, Apatit, Phlogopit, Magnetit, Ilmenit, Baryt und Monazit und das weltgrößte Vorkommen von Pyrochlor. Hier befindet sich auch die weltgrößte Niob-Reserve mit dem höchsten Niob-Gehalt (2,5 %  $\text{Nb}_2\text{O}_5$ ). Pyrochlor ( $(\text{Ca}, \text{Na})_2 \text{Nb}_2\text{O}_6(\text{OH}, \text{F})$ ) ist das Primärerz zur Gewinnung von Niob. Die Araxá-Mine produziert Niob und Phosphor. Wichtiges Erz zur Phosphorgewinnung und Düngemittelherstellung ist Apatit  $\text{Ca}_5 [(\text{F}, \text{Cl}, \text{OH})(\text{PO}_4)_3]$ . Zahlreiche Minerale des Barreiro-Karbonatit-Komplexes sind radioaktiv. Neben Apatit, der Spuren von Uran enthalten kann, ist das vor allem Betafit, ein Mineral der Pyrochlorgruppe mit der chemische Formel  $(\text{Ca}, \text{Na}, \text{Th}, \text{U})_2 (\text{Ti}, \text{Nb Ta})_2\text{O}_6(\text{OH}, \text{F})$  mit einem hohen Gehalt an Thorium und Spuren von Uran. Pyrochlor enthält praktisch immer akzessorische Uran-/Thorium-Minerale und ist als NORM-Material zu klassifizieren. Typische Konzentrationen von  $\text{ThO}_2$  und  $\text{U}_3\text{O}_8$  im Betafit der Araxá-Mine liegen bei 0,13 % bzw. 0,008 % (PASCHOA & GODOY 2002). Die Werte der externen Gammastrahlung sind in Araxá typi-

schersweise zwischen 6 und 10 mal höher als die nicht erhöhten, natürlichen Hintergrundwerte der Gammastrahlung und können an einigen Stellen sogar den 25fachen Wert erreichen.



**Abb. 48** Brasilien mit Lage der beschriebenen Karbonatit-Komplexe in den Bundesstaaten Goiás und Minas Gerais (Pfeilanfang).

Nur wenige Kilometer südlich der Araxá-Mine befindet sich der Tapira-Karbonatit-Komplex (Abb. 48) mit der Tapira-Mine, die Phosphat und Titan produziert und Ressourcen an Niob und Seltenerdenmetallen hat (ORRIS & GRAUCH 2002). Der Karbonatit-Komplex hat einen Durchmesser von ca. 6 km und ein ungefähres Alter von 70 Mio. a (Oberkreide). Er besteht aus verwitterten Karbonatiten, Pyroxeniten, Syeniten und Trachyten die an Apatit (radioaktiv), Mineralen der Pyrochlorgruppe (radioaktiv), Mineralen der Crandallitgruppe (mit Seltenerdenmetallen) und Titanit angereichert sind. Die Werte der externen Gammastrahlung sind gegenüber der normalen Hintergrundstrahlung zwischen 3 und 5, maximal 15-mal höher.

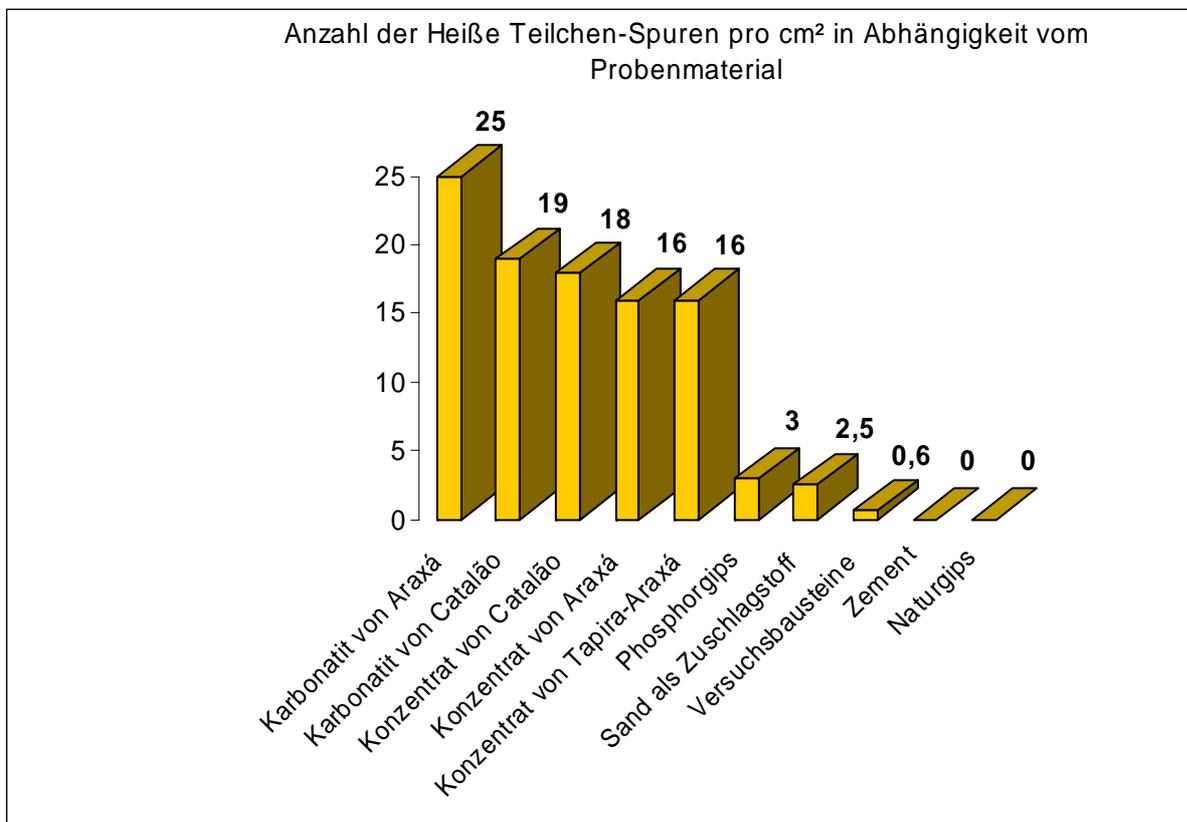
Der Catalão-Karbonatit-Komplex liegt im Südosten des Bundesstaates Goiás, 15 km entfernt von der Stadt Catalão. Seine Platznahme in den Metasedimentiten der proterozoischen Araxá-Gruppe erfolgte ebenfalls in der Oberkreide (ca. 85 Mio. a). Die im Durchmesser ca. 6 km große Intrusion besteht aus Karbonatiten, Pyroxeniten, serpentinisierten Peridotiten und Glimmeriten (WOOLLEY 1987). Der Karbonatit-Komplex ist u.a. angereichert an Seltenerdenmineralen wie Pyrochlor, Betafit, Monazit, sowie an Apatit, Anatas, Titanit. Nach Araxá ist die Mine in Catalão Brasiliens zweitgrößter Niob-Produzent. Außerdem werden Phosphat und als Nebenprodukt Seltenerdenmetalle erzeugt. Die Lagerstätte gilt als Titanressource.

Die in den Minen dieser Karbonat-Komplexe gewonnenen phosphatreichen Apatite werden aufbereitet und zu Düngemitteln, Phosphor und Phosphorsäure weiterverarbeitet. Die Apatite von Araxá haben einen durchschnittlichen Urangehalt von 150 µg/g, die von Tapira einen geschätzten Urangehalt von 15 µg/g (PASCHOA et al. 1984). Bei der Aufbereitung des Apatits wird das gemahlene Gestein einer Flotation unterworfen, um die P<sub>2</sub>O<sub>5</sub>-Konzentration zu erhöhen. Das Material nach diesem Behandlungsschritt wird als Konzentrat bezeichnet. Bei die-

sem Aufbereitungsschritt werden Phosphorsäure und Gips erzeugt. Die Phosphatkonzentrate von Araxá haben 10-mal höhere Urankonzentrationen als die der Tapira-Mine. Die Mittelwerte der Urankonzentration liegen bei den Araxá-Konzentraten bei 212  $\mu\text{g/g}$ , die der Tapira-Konzentrate bei 21  $\mu\text{g/g}$  (PASCHOA et al. 1984). In einigen Phosphatkonzentraten von Tapira finden sich dagegen hohe Thoriumkonzentrationen. Die aus den Konzentraten hergestellten phosphatischen Düngemittel haben Urankonzentrationen zwischen 88 und 100  $\mu\text{g/g}$  (Araxá) und 24 und 35  $\mu\text{g/g}$  (Tapira).

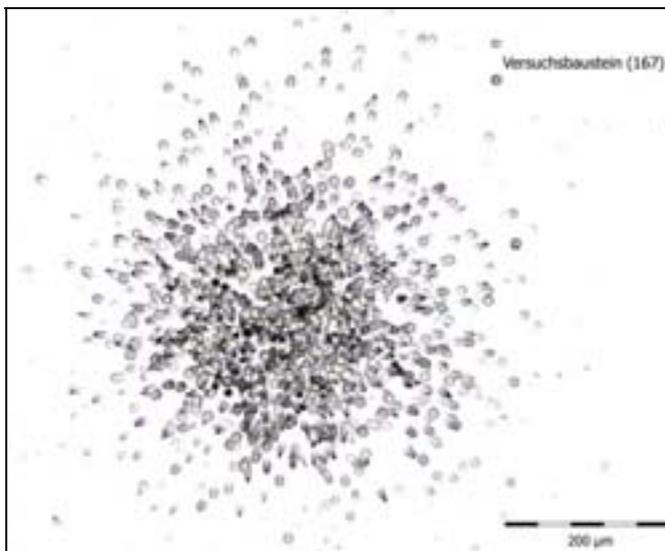
### *Ergebnisse der lichtmikroskopischen Untersuchungen*

Einen Überblick über die Ergebnisse der lichtmikroskopischen Untersuchungen und Expositionsbedingungen gibt die Tabelle im Anhang G 1. Die Originalbezeichnungen der Proben wurden weitestgehend übernommen. Gleich bezeichnete Proben stammen jeweils aus dem gleichen Probengefäß. Da sie unter verschiedenen Bedingungen exponiert wurden (unterschiedliche Expositionszeiten, Fraktionierung nach Korngrößen, Art der Probenfixierung (eingebettet, nicht eingebettet), sind sie in der Tabelle (Anhang G 1) mehrfach aufgeführt. Die Probenamen Fosfogesso und Phosphogypsum bezeichnen die gleichen Materialien (Phosphorgips). Haben die Phosphatgesteine die Bezeichnungen Fosfato bzw. Concentrate im Namen (z.B. Fosfato de Araxá oder Concentrate of rock Araxá) handelt es sich um das aufbereitete, konzentrierte Phosphatgestein. Rocha fosfaticá und phosphate rock bezeichnen die Originalgesteine (Karbonatite). Wegen ihrer Zusammengehörigkeit werden die natürlichen Gesteine Karbonatit (Originalgestein), Naturgips und Sand (Zuschlagstoffe für die Versuchsbau- steine) in diesem Kapitel mit beschrieben.

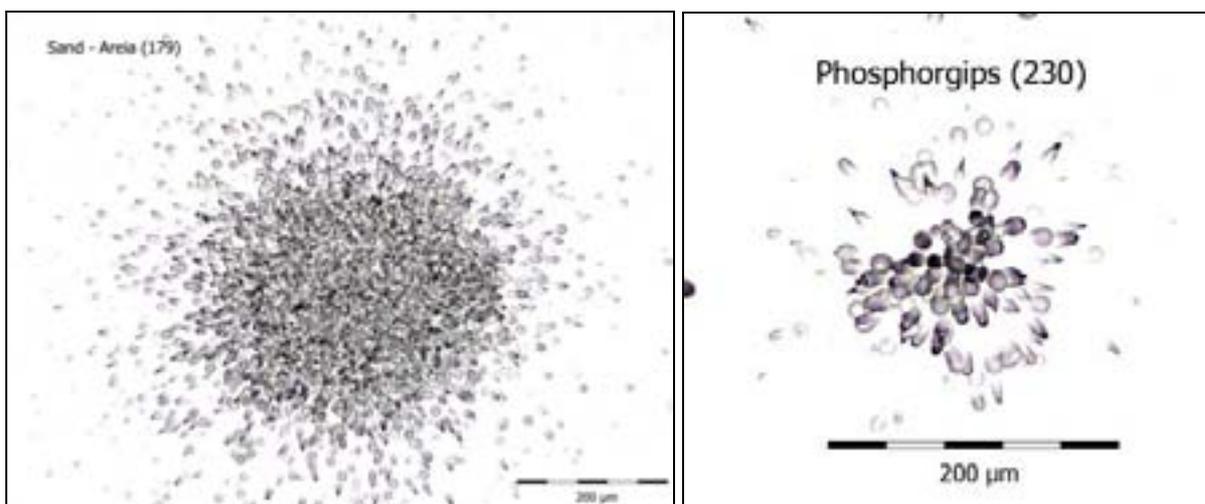


**Abb. 49** Die untersuchten brasilianischen Phosphatgesteine und -produkte sowie Zuschlagstoffe mit der bei ihnen detektierten Anzahl von Heiße Teilchen-Spuren (Sternspurmuster) pro  $\text{cm}^2$  (Mittelwert). Die Expositionszeit lag zwischen 5 und 8 Wochen.

Alle untersuchten Phosphatgesteine der Lokaltäten Araxá, Catalão und Tapira enthalten Heiße Teilchen, ebenso der Phosphorgips, der als Zuschlagstoff zu den Versuchsbausteinen benutzte Sand und die Versuchsbausteine unterschiedlicher Zusammensetzung. Lediglich in den Zement- und Naturgips-Proben konnten keine Heißen Teilchen nachgewiesen werden (Abb. 49). Die Zahl der Heiße Teilchen-Spuren (Sternspurmuster) pro  $\text{cm}^2$  liegt bei Expositionszeiten zwischen 5 und 8 Wochen in den Karbonatiten zwischen 18 und 25. Die meisten Sternspurmuster (25 pro  $\text{cm}^2$ ) wurden in der Probe phosphate rock Araxá (Nr. 275) detektiert. In den Phosphatkonzentraten finden sich zwischen 10 und 21 Sternspurmuster pro  $\text{cm}^2$ . Deutlich geringer ist die Zahl der Sternspurmuster pro  $\text{cm}^2$  in den anderen Proben, sie liegt in den Versuchsbausteinen im Mittel unter 1, bei 3 in den Phosphorgipsen und bei 2,5 in den Sanden (Abb. 49). Die Sternspurmuster in den Versuchsbausteinen, z.T. auch in den Sanden, sind verglichen mit denen in den restlichen Proben auffallend groß (Abb. 50, 51).



**Abb. 50** Charakteristisches Sternspurmuster (Heiße Teilchen-Spur) in den Versuchsbausteinen. Probe 167 (=Expositionsnummer), Versuchsbaustein aus 33,3 Teilen Zement, 300 Teilen Phosphorgips, 1000 Teilen Sand und 350 Teilen Wasser.

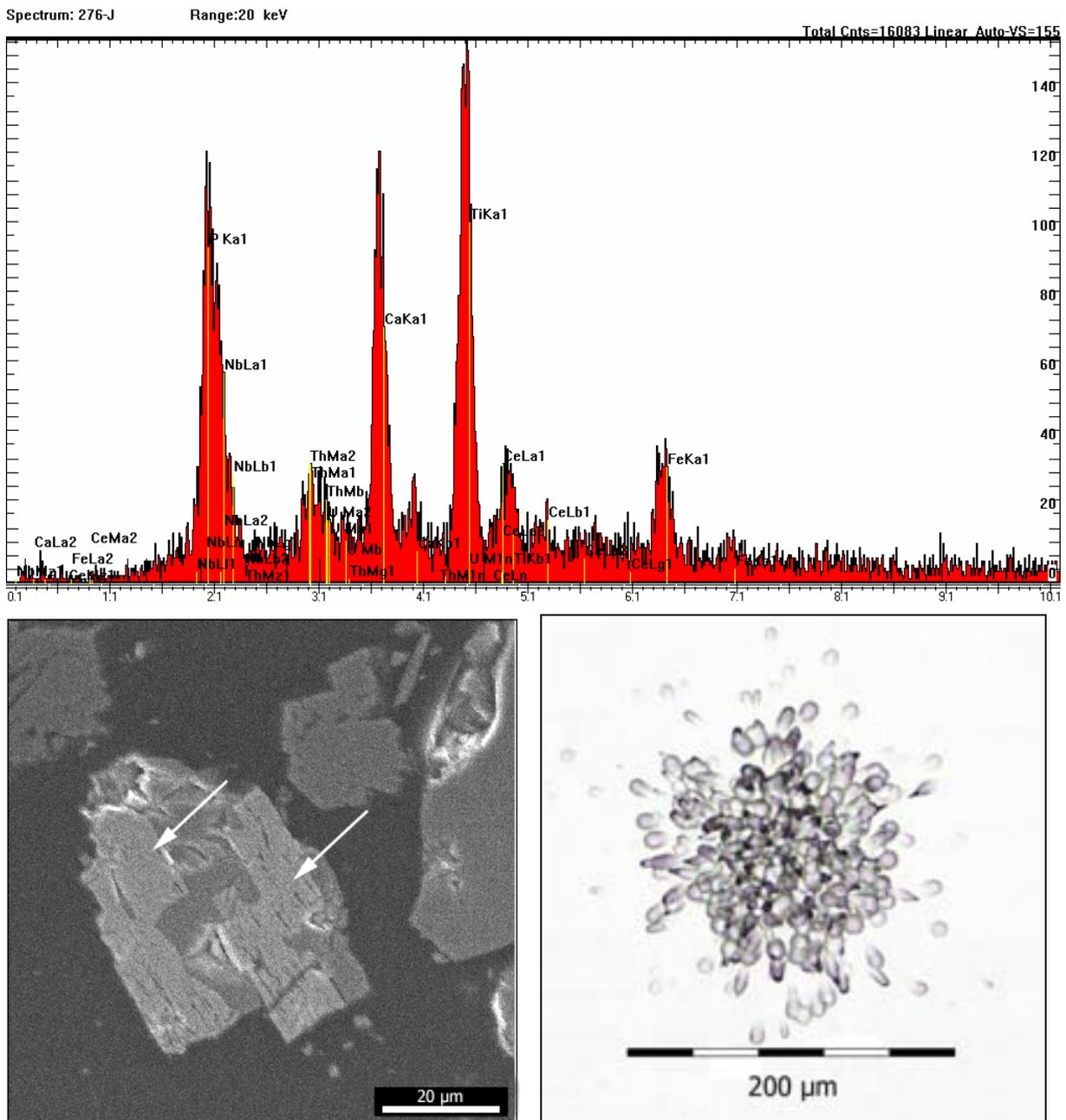


**Abb. 51** Charakteristische Sternspurmuster in Sand und Phosphorgips. Beide Materialien wurden als Zuschlagstoffe für die Versuchsbausteine genutzt. Interessanterweise ähneln die Spuren der Heißen Teilchen aus den Versuchsbausteinen mehr denen des Sandes als denen des Phosphorgipses. Die Sternspurmuster in den Versuchsbausteinen und in den Sanden sind überwiegend groß, sehr symmetrisch und haben eine hohe Spurdichte. Die Sternspurmuster des Phosphorgipses sind im Vergleich dazu bedeutend kleiner. Es stellt sich die Frage, ob die von den Heißen Teilchen herrührende Radioaktivität in den Versuchsbausteinen überhaupt vom enthaltenen Phosphorgips stammt oder auf die Heißen Teilchen des zugegebenen Sandes zurückgeführt werden kann.

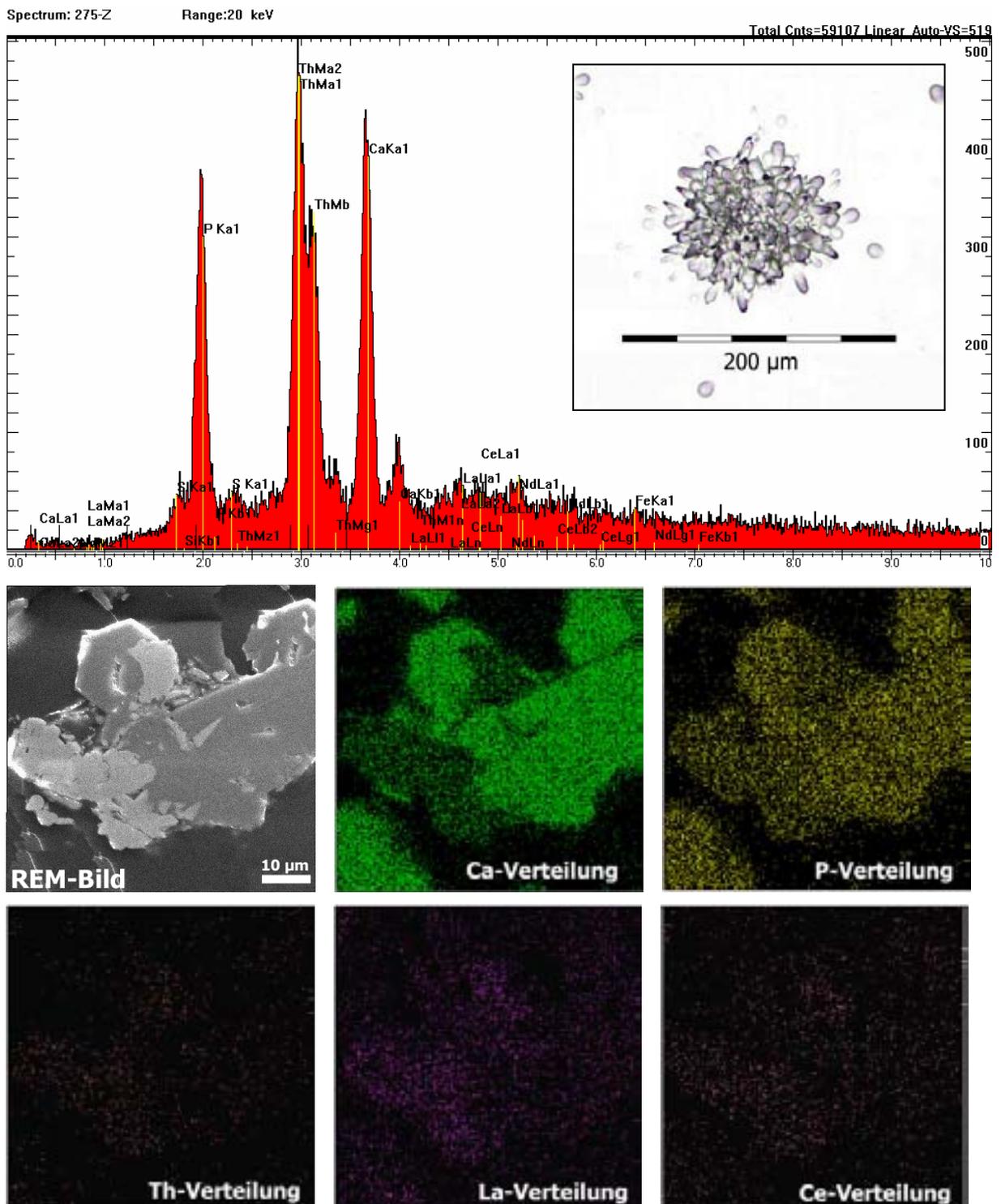
Eine bereits bei anderen Proben festgestellte Bindung der natürlichen Heißen Teilchen an die feinsten Kornfraktionen (<63 µm) konnte auch bei den hier untersuchten Phosphatgesteinen festgestellt werden (Abb. 99, Kap. 4.2 Methodische Ergebnisse). Die Heißen Teilchen sind in den Korngrößen <63 µm angereichert und am schwächsten in den großen Korngrößenbereichen > 200 µm vertreten.

### Ergebnisse der elektronenmikroskopischen Untersuchungen

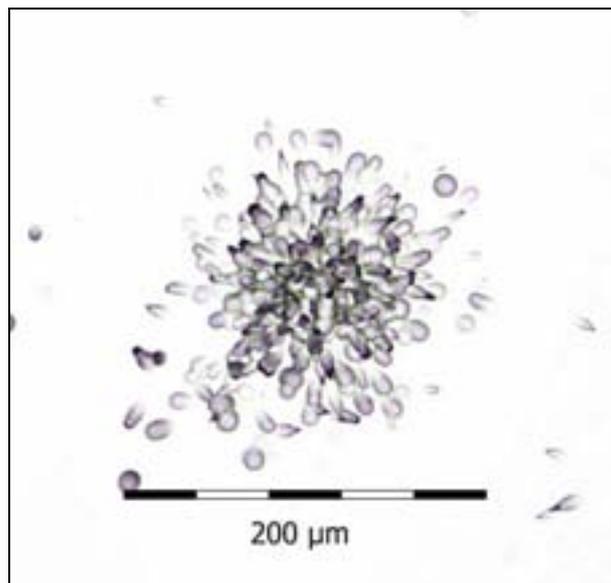
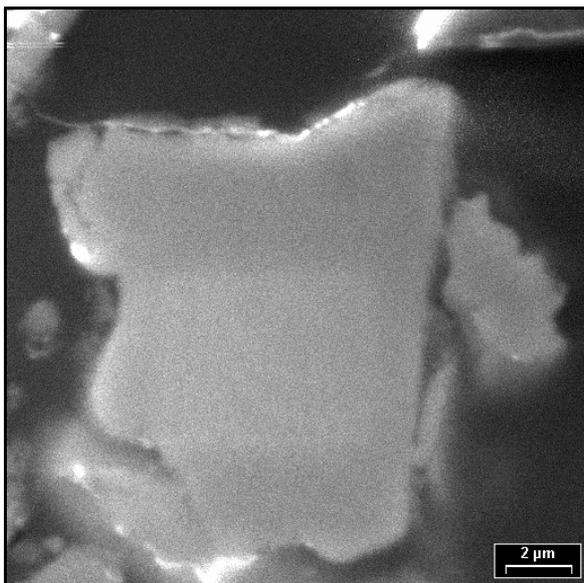
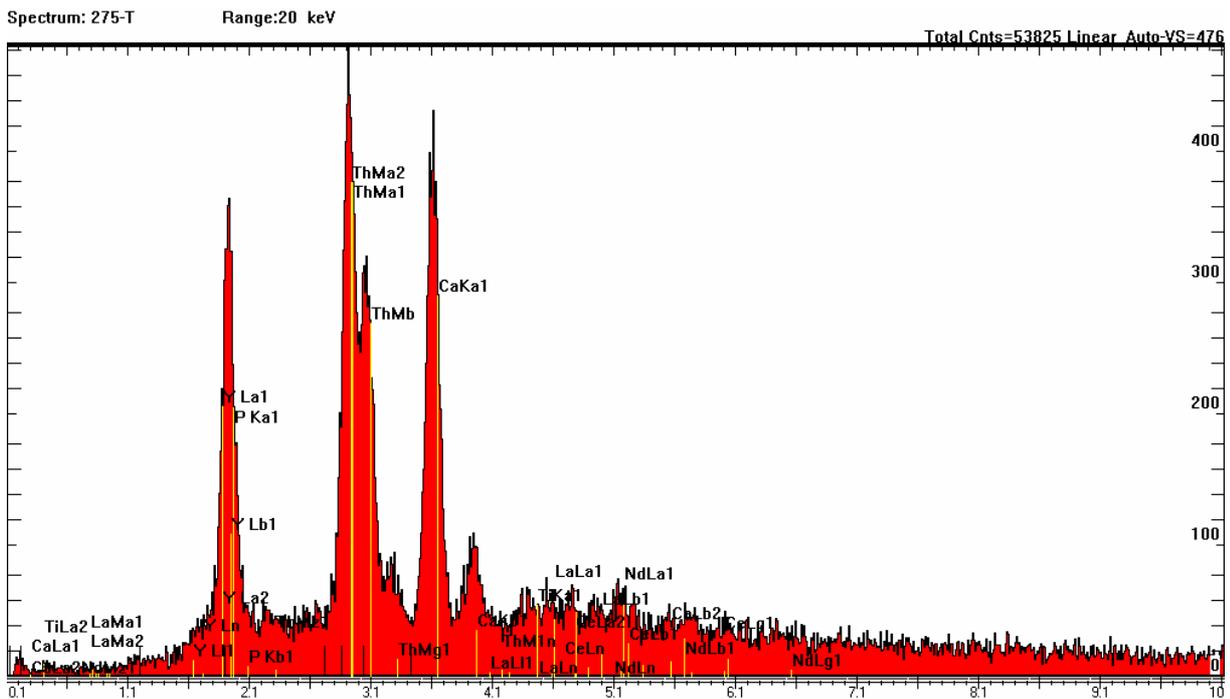
Es wurden fünf Proben - Karbonatite von Araxá und Catalão, Konzentrate von Araxá, Catalão und Tapira-Araxá - unter dem Elektronenmikroskop untersucht. Die Ergebnisse dieser Untersuchungen sind tabellarisch im Anhang G 2 dargestellt.



**Abb. 52** EDX-Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines natürlichen Heißen Teilchens der Probe Concentrate of rock Tapira-Araxá (276 j). Es handelt sich hier um ein ca. 40×60 µm großes Apatitkörnchen (Bildmitte) das mit Betafit (hellere Bereiche, weiße Pfeile) verwachsen ist. Betafit [chemische Formel:  $(Ca, Na, Th, U)_2(Ti, Nb Ta)_2O_6(OH, F)$ ]; im Spektrum finden sich deutliche Peaks bei Nb, Ti sowie Th und Ca] konnte in den untersuchten Phosphatgesteinen häufig als natürliches Heißen Teilchen detektiert werden.



**Abb. 53** EDX-Spektrum, Spur und REM-Aufnahme eines natürlichen Heißen Teilchens der Probe Phosphate rock Araxá (275 z). Vermutlich handelt es sich hier um einen Monazit (hellgraue Bereiche im REM-Bild, chemische Formel  $Ce(La, Nd, \dots Th, Ca \dots)PO_4$ ), der mit einem Apatit (dunkelgrau, chemische Formel  $Ca_5(PO_4)_3$ ) verwachsen ist. Die Elementverteilungsbilder stützen diese Annahme. Sie zeigen, dass Ca vorwiegend den dunkelgrauen Kornbereich (=Apatit) nachzeichnet, P über das gesamte Korn verteilt ist (beide Minerale – Monazit und - Apatit enthalten nennenswerte Gehalte dieses Elementes), und dass Th, La und Ce im Bereich des hellgrauen Kornbereiches (=Monazit) konzentriert sind. In den Phosphatgesteinen von Brasilien wurden häufig Heiße Teilchen (Betafit, Monazit) in Verwachsung mit anderen Mineralen wie z. B. Apatit gefunden.



**Abb. 54** EDX-Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens aus der Probe Phosphate rock Araxá (275 t). Das nur ca.  $10 \times 14 \mu\text{m}$  große Heiße Teilchen ist nach den ermittelten Elementgehalten (Y, Th, Seltene Erden) wahrscheinlich ein Xenotim (chemische Formel:  $YPO_4$ , enthält *Seltene Erden*, Th, U in unterschiedlichen Mengen). Es handelt sich hier um ein Einzelkörnchen.

In 69 von 116 Markierungen auf den Probenoberflächen der untersuchten Phosphatgesteine wurden alphaemittierende Partikel gefunden. Allerdings wurden bei Probe 278 aus Zeitgründen nicht alle Markierungen untersucht, und bei Probe 279 war eine Detektion einiger Markierungen wegen Aufladungseffekten an der Schliffoberfläche nicht möglich. Der überwiegende Teil der detektierten alphaemittierenden Partikel (Heißen Teilchen) besteht aus Betafit und Monazit mit ihren Gehalten an Thorium oder Uran (Abb. 52, 53). Daneben finden sich in den Proben Xenotim (Abb. 54) und Titanit/Ilmenit mit Uran/Thorium (Tafeln 43-91). Die Größe der Heißen Teilchen liegt überwiegend zwischen 10 und  $70 \mu\text{m}$ , selten unter  $10 \mu\text{m}$ . Sie sind häufig mit größeren Körnchen ( $<100 \mu\text{m}$  groß), meist aus Apatit, verwachsen. Die in den Phosphatgesteinen detektierten Minerale entsprechen dem aus den Literaturangaben zu erwartenden Mineralspektrum.

#### 4.1.1.8 Phosphatdünger, Stickstoffdünger

Bei der Verwendung von Düngemitteln in der Landwirtschaft, insbesondere der Anwendung von Phosphaten als Düngemittel, können in ihnen enthaltene Radionuklide eine Aufnahme durch Pflanzen erfahren und so zu einer Strahlenbelastung der Bevölkerung beitragen (LEHMANN 1996). Ebenso können die Handhabung, die Lagerung und der Umgang mit mineralischen Phosphatdüngemitteln zu einer erhöhten Strahlenexposition führen. Von besonderer Bedeutung sind dabei die Radionuklide aus den radioaktiven Zerfallsreihen von  $^{238}\text{U}$  und  $^{232}\text{Th}$  sowie  $^{40}\text{K}$ , welches jedoch als Betastrahler in der vorliegenden Arbeit keine Rolle spielt. Die in Deutschland eingeführten Rohphosphate kommen vorwiegend aus den USA, Nordafrika und Israel. Sie weisen gegenüber Vergleichswerten der mittleren spezifischen Aktivität der Böden einen bis zu fünfzigfach erhöhten Gehalt an  $^{238}\text{U}$  und  $^{226}\text{Ra}$  auf (GELLERMANN et al. 2003). Die spezifischen Aktivitäten der daraus hergestellten mineralischen Phosphatdünger betragen für  $^{238}\text{U}$  280-920 Bq/kg (Triplesuperphosphat max. 3000 Bq/kg) und für  $^{226}\text{Ra}$  160-520 Bq/kg (Triplesuperphosphat max. 1150 Bq/kg).

In letzter Zeit gab es in der Öffentlichkeit zahlreiche, z.T. emotionale Diskussionen über den möglichen Gehalt an Radionukliden in Düngemitteln und dessen Folge für die Konsumenten. Drei Beispiele dazu sind im Folgenden abgedruckt.

*Pressemitteilung der Bundesforschungsanstalt für Landwirtschaft in Braunschweig vom 15.02.2005 (www.fal.de):*

**„Manchmal ist mehr drin als drauf steht - Phosphatdünger können große Mengen an Uran enthalten**

„festgestellt, dass P-Düngemittel auch das toxische Radionuklid Uran (U) enthalten. Aus eigenen Analysen und umfangreichen Literaturrecherchen fanden sie, dass sich wegen der hohen Affinität von Uran zu Phosphor der ursprünglich im Rohphosphat enthaltene Uran-Gehalt von 13-75 mg/kg bei der Aufarbeitung zu Super- oder Triplesuperphosphat auf 85-191 mg/kg erhöht. ...In den letzten 50 Jahren haben die Mengen an Uran, die durch menschliche Aktivitäten in die Umwelt gelangen, zugenommen und damit auch die Gefahr erhöhter Belastungen der Nahrungskette. Verantwortlich für Uran-Einträge in landwirtschaftliche Böden ist insbesondere die mineralische Phosphor-Düngung. Folge steigender Uran-Mengen im Boden ist aber auch eine zunehmende Aufnahme von Uran über Pflanzen in die Nahrungskette und damit eine Verschlechterung der Nahrungsqualität.....“

*www.news-report.de:*

**„Uran in Kartoffeln**

... Der Kernbrennstoff Uran gelangt zunehmend mit Mineraldünger auf die Felder und dort in Wurzelfrüchte wie beispielsweise Kartoffeln.....Niemand weiß genau, wie sich der Anteil von Uran im Mineraldünger in den vergangenen Jahren erhöht hat, da in der Vergangenheit nur Stichproben gezogen wurden - Uran wird in der Düngemittelverordnung nicht berücksichtigt.... Das Schwermetall gelange vorwiegend in Wurzelfrüchte.....“

*Vorabmeldung aus Strahlenschutz PRAXIS Heft 2/2005*

*(http://osiris2.pi-consult.de/view.php3?show=56020251):*

**„Müssen wir uns wieder mal vor der Radioaktivität fürchten? Natürliches Uran in Düngemitteln**

In letzter Zeit häuften sich Pressemeldungen über die Anreicherung von Uran in landwirtschaftlichen Böden durch Phosphatdüngung, meist mit dem Tenor „Strahlenbelastung durch Lebensmittel, - igitt!“. Das plötzliche Interesse der Presse an Dünger geht auf eine Veröffentlichung der Bundesforschungsanstalt für Landwirtschaft (FAL) in Braunschweig zurück, die Ende Februar von den Medien aufgegriffen wurde. Danach war das Thema in aller Munde.

Beispielsweise brachte der "Focus" 8/05 vom 21.02.05 eine Meldung "Düngung reichert Böden mit Uran an", wo berichtet wird, dass "...bei den .... ausgebrachten Düngemengen bis zu 22 g U pro Jahr und Hektar gefunden werden. Das ist sehr viel.....“

Wissenschaftlichen Studien zufolge (MÖNKE et al. 1980; PFEITER & PAULY 1980; BOLIVAR et al. 1995) kann allerdings damit gerechnet werden, dass durch die Anwendung von Phosphatdünger dem Boden jährlich weniger als 1 % seines normalen  $^{238}\text{U}$ -Gehaltes zugefügt werden und dass die radioaktive Belastung durch die Nutzung von Phosphatdüngemitteln vernachlässigbar ist.

Vor dem Hintergrund dieser Diskussionen schien es interessant, Düngemittelproben auf ihren Gehalt an Heißen Teilchen hin zu untersuchen.

Es wurden zwei handelsübliche Düngemittel analysiert – ein Phosphatdünger und ein Stickstoffdünger.

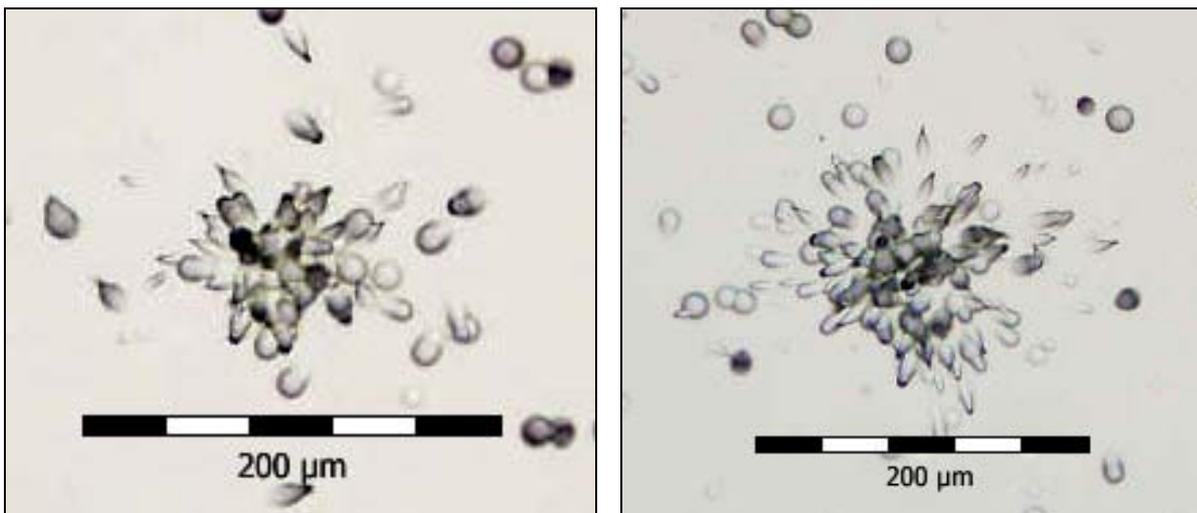
### *Ergebnisse der lichtmikroskopischen Untersuchungen*

Einen Überblick über die Ergebnisse der lichtmikroskopischen Untersuchungen und Expositionsbedingungen gibt die Tabelle im Anhang H 1.

Der exponierte Stickstoff-Dünger zeigt keine Radioaktivität. Auf dem Detektor fanden sich keine Spuren von Alphateilchen, weder als Sternspurmuster (Heiße Teilchen-Spuren) noch als Background-Spurmuster.

Dagegen enthalten mit Ausnahme der Probe 255 alle Proben des Phosphatdüngers Heiße Teilchen. Die Anzahl der Sternspurmuster pro  $\text{cm}^2$  auf dem Detektor liegt zwischen 0,5 und 1,5, wobei ihre Anzahl von großen zu kleinen Korngrößen auf das Dreifache steigt (Proben 336-339). Das die Phosphatdünger-Probe Nr. 255 keine Sternspurmuster zeigt, liegt an der Art der Probenvorbereitung. Der Phosphatdünger liegt im Originalzustand als Granulat mit Körnchen zwischen 1 und 4 mm vor. Für die Exposition wurde das Material gemahlen. Nur bei Probe 255 wurde das Granulat im Originalzustand belassen und testweise auf Klebeband fixiert. Im Ergebnis der Exposition wird jedes dieser Düngerkügelchen durch eine Spurwolke auf dem Detektor gekennzeichnet, die exakt die Form des darunter liegenden Düngerkörnchens nachzeichnet. Wegen der geringen Auflagefläche der Kügelchen auf dem Detektor fehlt der enge, notwendige Kontakt zwischen Probe und Detektor. Daraus resultiert ein diffuses Spurbild bei dieser Probe.

Die Sternspurmuster sind überwiegend sehr klein, es kommen nur wenige große symmetrische Sternspurmuster vor (Abb. 55). Alle exponierten Phosphatdünger-Proben zeigen unabhängig von der Expositionszeit, die zwischen 4 und 7 Wochen lag, eine hohe Spurdichte von Alphaspuren (Background).

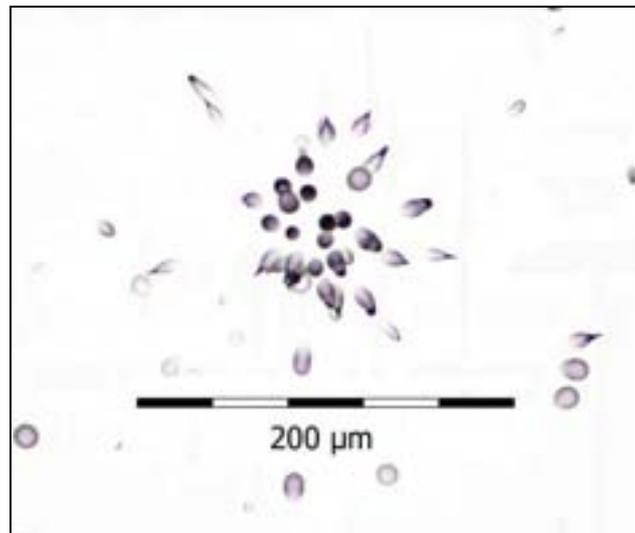
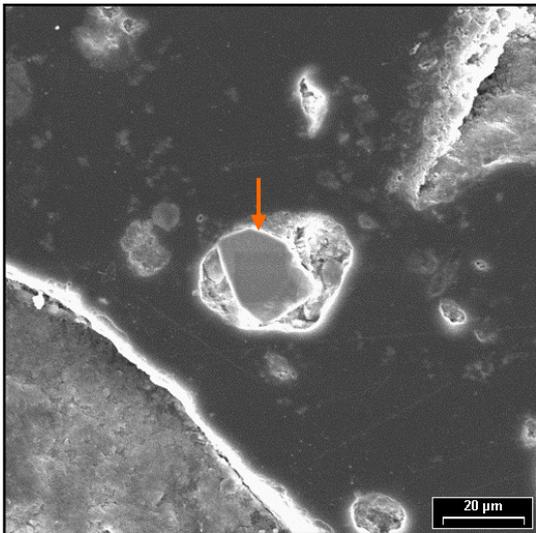
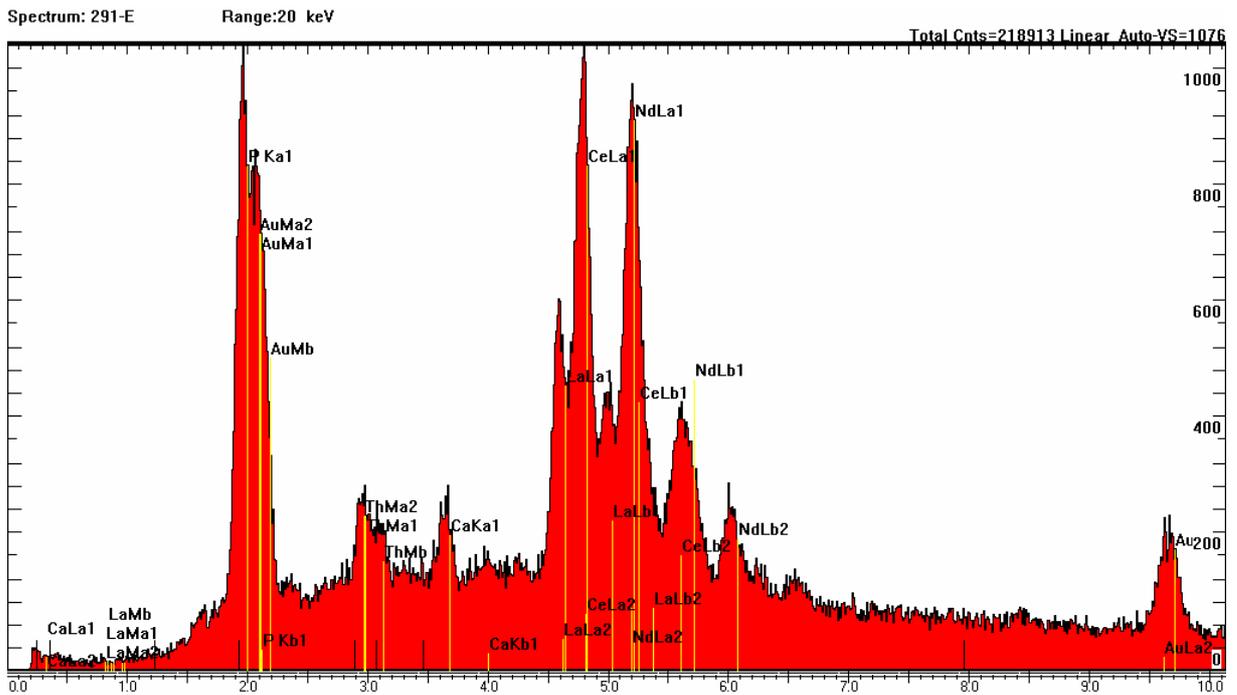


**Abb. 55** Beispiele für typische Sternspurmuster in den Phosphatdünger-Proben. Links: Probe 248, rechts: Probe 339.

### Ergebnisse der elektronenmikroskopischen Untersuchungen

Es wurde eine Phosphatdünger-Probe unter dem Elektronenmikroskop untersucht. Die Ergebnisse dieser Untersuchungen sind tabellarisch im Anhang H 2 dargestellt.

In 2 von 5 markierten Bereichen der Phosphatdünger-Probe konnten natürliche Heiße Teilchen detektiert werden. Bei Probe 291 c handelt es sich um einen nur 2  $\mu\text{m}$  großen Rand mit Uran an einem größeren Korn (Tafel 92). Bei Probe 291 e (Abb. 56) wurde ein Monazit gefunden.



**Abb. 56** EDX-Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Phosphatdüngerprobe (291 e). Es handelt sich um ein ca. 20  $\mu\text{m}$  großes Monazitkörnchen (REM-Foto, roter Pfeil), das im Spektrum typischerweise durch die Selten-Erden-Elemente Ce, La, Nd, sowie Th, P und Ca charakterisiert wird. Der Goldpeak im Spektrum ist auf die Besputterung der Probe mit Gold zurückzuführen. Materialbedingt war die Schliffoberfläche (Probe) sehr rau, mit zahlreichen Ausbrüchen und Löchern. Dies ist auch auf der REM-Aufnahme zu erkennen, z.B. um das Monazitkörnchen herum in der Bildmitte. In diesen Löchern kommt es zu Aufladungseffekten, die in der REM-Aufnahme als weiße Schatten erkennbar sind. Durch die Goldbeschichtung sollten diese Aufladungseffekte reduziert und die Qualität der Bilder und Analyse erhöht werden.

#### 4.1.1.9 Uranblech

Es wurde ein ca. 6×6 cm großes und ca. 1,5 mm dickes Uranblech untersucht. Eine Analyse der Probe mit der RFA (Analyse: Dr. P. Morgenstern, UFZ) ergab, dass es sich dabei um gediegen Uran handelt. Innerhalb der Nachweisgrenzen wurden keine anderen Substanzen gefunden.

Die Herkunft des Materials ist ungeklärt. Möglicherweise handelt es sich um in der DDR gefördertes Uranerz, welches in der Sowjetunion weiterverarbeitet wurde. Es stammt aus den Beständen der ehemaligen Akademie der Wissenschaften der DDR. Vermutlich gelangte es durch Arbeitsbeziehungen aus der ehemaligen Sowjetunion an die damalige Akademie.

Die Untersuchung des Uranbleches sollte klären, ob die Radioaktivität in der Probe homogen verteilt ist oder eine diskrete Komponente (natürliche Heiße Teilchen) aufweist.

#### *Ergebnisse der elektronenmikroskopischen Untersuchungen*

Es wurde dieselbe Uranblech-Probe unterschiedlich lange exponiert. Die Ergebnisse der Expositionen und lichtmikroskopischen Auswertung sind in Tab. 11 dargestellt.

**Tab. 11** Überblick über die exponierte Uranblech-Probe und Ergebnisse der lichtmikroskopischen Auswertung des Alphaspuren-Inventars auf den Festkörperspurdetektoren unter Angabe der Expositions-Nummer (Nr.), Expositionszeit (t), Anzahl ( $n_{HT}$ ) der Heiße Teilchen-Spuren (Sternspurmuster) pro  $cm^2$ , der Spurdichte ( $\delta_{Spur}$ ) von Alphapartikeln.

Nr.	Probe	t	$n_{HT}$	$\delta_{Spur}$
442	Uranblech	1 Stunde	keine	hoch, homogen
443	Uranblech	15 Stunden	keine	hoch, homogen
444	Uranblech	1,5 Stunden	keine	hoch, homogen
445	Uranblech	2 Stunden	keine	hoch, homogen
446	Uranblech	2,5 Stunden	keine	hoch, homogen
447	Uranblech	3 Stunden	keine	hoch, homogen

Auf keinem der exponierten Detektoren sind Sternspurmuster (Heiße Teilchen-Spuren) enthalten. Dagegen ist die Spurdichte von Alphapartikeln (Background) trotz der kurzen Expositionszeiten zwischen 1 und max. 15 Stunden hoch, wobei die Spuren homogen über den Detektor verteilt sind.

Im Hinblick auf die Art der Probe, war dieses Ergebnis zu erwarten. Es handelt sich um ein nahezu reines Uranblech, das aus einer Schmelze gewonnen wird. Durch den Schmelzprozess werden die Radionuklide gleichmäßig in dem Material verteilt, was sich in der homogenen Verteilung von Alphapartikel-Spuren auf dem Detektor widerspiegelt.

#### 4.1.2 Natürliche Vorkommen (Gesteine, Sedimente, Minerale)

Einen Überblick über die Art und Herkunft der untersuchten Proben gibt Tab. 13.

**Tab. 12** Übersicht der untersuchten Proben natürlicher Vorkommen.  $n_{\text{Exposition}}$ =Anzahl der Probenexpositionen  
\*Dickschliffe=Gesteinsschliffe einer Stärke zwischen 30 und 120  $\mu\text{m}$ .

Probenart	Probenzustand	Herkunft	$n_{\text{Exposition}}$
Kupferschiefer	Gesteinsstücke z.T. aufgemahlen z.T. Dickschliffe*	Mansfelder Land Deutschland, Sachsen-Anhalt	9
Fluss-/Bachsedimente	Sedimente, getrocknet z.T. gesiebt	Gewässersystem des Mansfelder Landes; Deutschland, Sachsen-Anhalt	54
Sedimente aus dem Schlüsselstollen	Sedimente, getrocknet	Entwässerungsstollen im Mansfelder Land; Deutschland, Sachsen-Anhalt	2
Seesedimente Süßer See	Sedimente, getrocknet	Mansfelder Land Deutschland, Sachsen-Anhalt	32
Überflutungssedimente	Sedimente, getrocknet	Flüsse Elbe und Mulde Deutschland	14
Sedimente aus der Lupe	Sedimente, getrocknet teilweise mit $\text{H}_2\text{O}_2$ behan- delt und gesiebt	Fluss-Altarm Deutschland, Sachsen-Anhalt	35
Seesedimente aus Süd- amerika	Sedimente, getrocknet	Lago Laja und Caviahue Chile, Argentinien	21
Monazitsande	Sand; z.T. aufgemahlen	Brasilien	17
Karbonatit	feinkörniges Lockermaterial	Brasilien	11
Areia (Sand)	Sand	Brasilien	3
Gesso comum (Naturgips)	Pulver	Brasilien	1
Zirkone	Einzelkristalle	Dänemark, Bornholm	1
Autunit	Kristalle	Deutschland Erzgebirge und Vogtland	14
uranhaltiges Konglomerat	Gesteinsstücke, z.T. ange- schliffen oder aufgemahlen	Blind River-Formation Canada, Ontario	6
uranhaltiger Granit	Gesteinsstücke z.T. aufgemahlen	Menzenschwand Deutschland, Schwarzwald	4
Pechblende	Gesteinsstücke	Schlema Deutschland, Erzgebirge	5
Pechblendegranit Turmalingranit Oberschlemaer Granit	Gesteinsstücke	Deutschland Erzgebirge	4
Aplit Gottesberg	Gesteinsstück	Deutschland Vogtland/Erzgebirge	1
Hornstein	Gesteinsstück	Deutschland Vogtland/Erzgebirge	1
Kieselschiefer mit Phosphoritlage	Gesteinsstück	Deutschland Erzgebirge	1
Phonolith	Gesteinsstück	Deutschland Zittauer Gebirge	1

Probenart	Probenzustand	Herkunft	n <sub>Exposition</sub>
Quarzporphyr	Gesteinsstück	Deutschland Vogtland/Erzgebirge	1
Tentakulitenschiefer	Gesteinsstück	Deutschland Vogtland/Erzgebirge	1
Phosphoritknolle	Gesteinsstück	Deutschland Vogtland/Erzgebirge	1
Steinkohle	Gesteinsstück	Deutschland, Freital-Gittersee bei Dresden	1

Die Proben Karbonatit, Areia (Sand) und Gesso comum (Naturgips) aus Brasilien wurden wegen der Zusammengehörigkeit und zum besseren Verständnis bei den industriellen Reststoffen im Kapitel 4.1.1.7 (Phosphatgesteine von Brasilien) mit behandelt. Sie werden hier nicht noch einmal aufgeführt.

#### 4.1.2.1 Kupferschiefer

Der Kupferschiefer an der Basis des mitteleuropäischen marinen Oberperms (Zechstein) hat eine Ausdehnung von mehr als 6 000 000 km<sup>2</sup>. Nur an einigen Stellen ist es zu abbauwürdigen Metallkonzentrationen im Kupferschiefer gekommen. Dazu gehört das südöstliche Harzvorland mit dem Gebiet von Mansfeld-Eisleben-Sangerhausen (JANKOWSKI 1995). Es wird von den Ausläufern des Harzes, der Halle-Hettstedter Gebirgsbrücke, dem Hornburger Sattel, dem Kyffhäuser und den Höhenzügen von Schmücke und Hohe Schrecke begrenzt (Abb. 57).

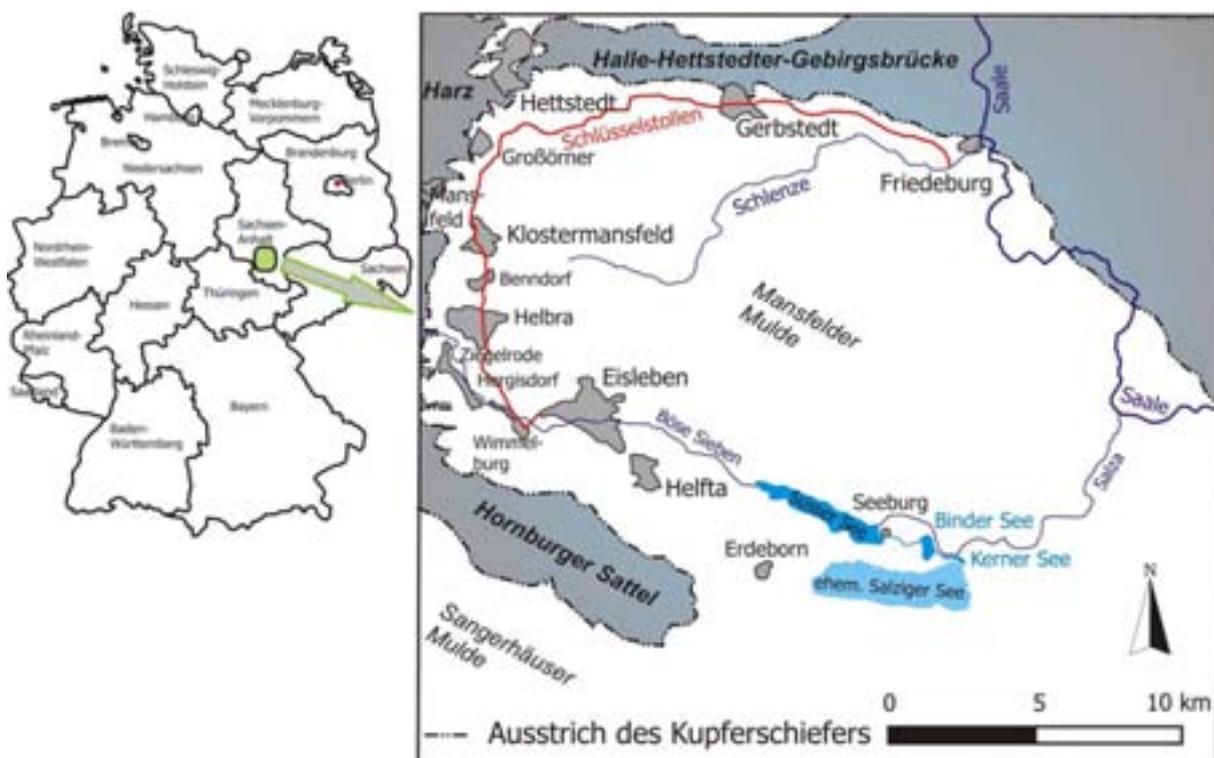


Abb. 57 Überblick über die Mansfelder Mulde. Nach JANKOWSKI (1995), verändert.

Der Kupferschiefer ist ein 25-60 cm mächtiger, feinkörniger, feinschichtiger, kohlige Bestandteile führender Mergelschiefer. Er besteht zu etwa 50-55 % aus Quarz und Serizit, 25-30 % Calcit und Dolomit und zu je 10 % aus Sulfiden und organischer Substanz (TONNDORF 1994). Vom Liegenden zum Hangenden nimmt der Gehalt an organischer Substanz innerhalb des Kupferschieferflözes allmählich ab, gleichzeitig steigt der Karbonatgehalt. Bedingt durch geringfügige Schwankungen in der stofflichen und granulometrischen Zusammensetzung weist der Kupferschiefer eine charakteristische Feinschichtung auf. Auf deren Grundlage gliedert man das Kupferschieferflöz im Lagerstättegebiet Sangerhausen-Mansfeld vom Liegenden zum Hangenden in die cm-mächtigen Flözlagen Feine Lette, Grobe Lette, Kammschale, Schieferkopf und Schwarze Berge. Der Kupferschiefer enthält eine Vielzahl von Metallen. Die größten Metallgehalte treten im unteren Teil des Flözhorizontes auf. Die wichtigsten Metalle sind Kupfer, Blei und Zink. Daneben kommen Edelmetalle wie Ag, Au, Pt sowie Cd, Re, Ge, Tl und Se vor (Tab. 13). Gold, Selen und Uran sind adsorptiv und metallorganisch an die stark inkohlten organischen Substanzen des Kupferschiefers gebunden. Uran ist feindispers im Kupferschiefer verteilt. Es ist ein enges Begleitmineral von Kupfer an den Basislagen des Flözes und kommt zusammen mit Co, Ni, V, Mo, Ag, As und dem Maximum an organischem Kohlenstoff vor. Im Vergleich zu Kupfer, Blei und Zink ist es ein verhältnismäßig gering angereichertes Begleitelement. Die Gehalte an Uran liegen nach HAMMER et al. (1990) zwischen 6,8 und 670 µg/g bzw. nach TONNDORF (1994) durchschnittlich bei 26,5 g/t. Allerdings gibt es im Kupferschiefer lokal begrenzte Zonen mit erhöhten Urangehalten, mit 500 - max. 2000 g/t Uran in Einzellagen des Kupferschieferflözes.

Wegen seines Reichtums an Buntmetallen war der Kupferschiefer in der DDR einer der bestuntersuchten und wirtschaftlich wichtigsten Schwarzschieferhorizonte.

**Tab. 13** Durchschnittsgehalte der wichtigsten Haupt- und Spurenmetalle im Kupferschiefer, nach JANKOWSKI (1995).

Flözlagen	Hauptmetalle (%) Spurenmetalle (µg/g)																		
	Cu	Pb	Zn	Ag	Co	Ni	V	Mo	Ti	Se	Cd	Tl	Ge	Re	Te	As	Sb	Hg	Bi
Schwarze Berge	0,23	0,4	0,5	14	28	61	141	73	3580	8	8	6	8	21	3	74	10	3	3
Schieferkopf	0,69	0,57	1,25	36	46	78	315	119	3280	20	20	7	8	21	3	877	11	3	2
Kammschale	1,79	0,76	1,67	107	86	111	715	253	3660	34	29	15	8	22	3	146	12	3	2
Grobe Lette	2,90	0,86	1,85	191	144	140	914	308	3500	48	34	13	9	21	3	327	20	3	3
Feine Lette	2,57	0,61	0,96	183	159	147	877	251	4320	48	18	20	9	21	3	855	44	3	2

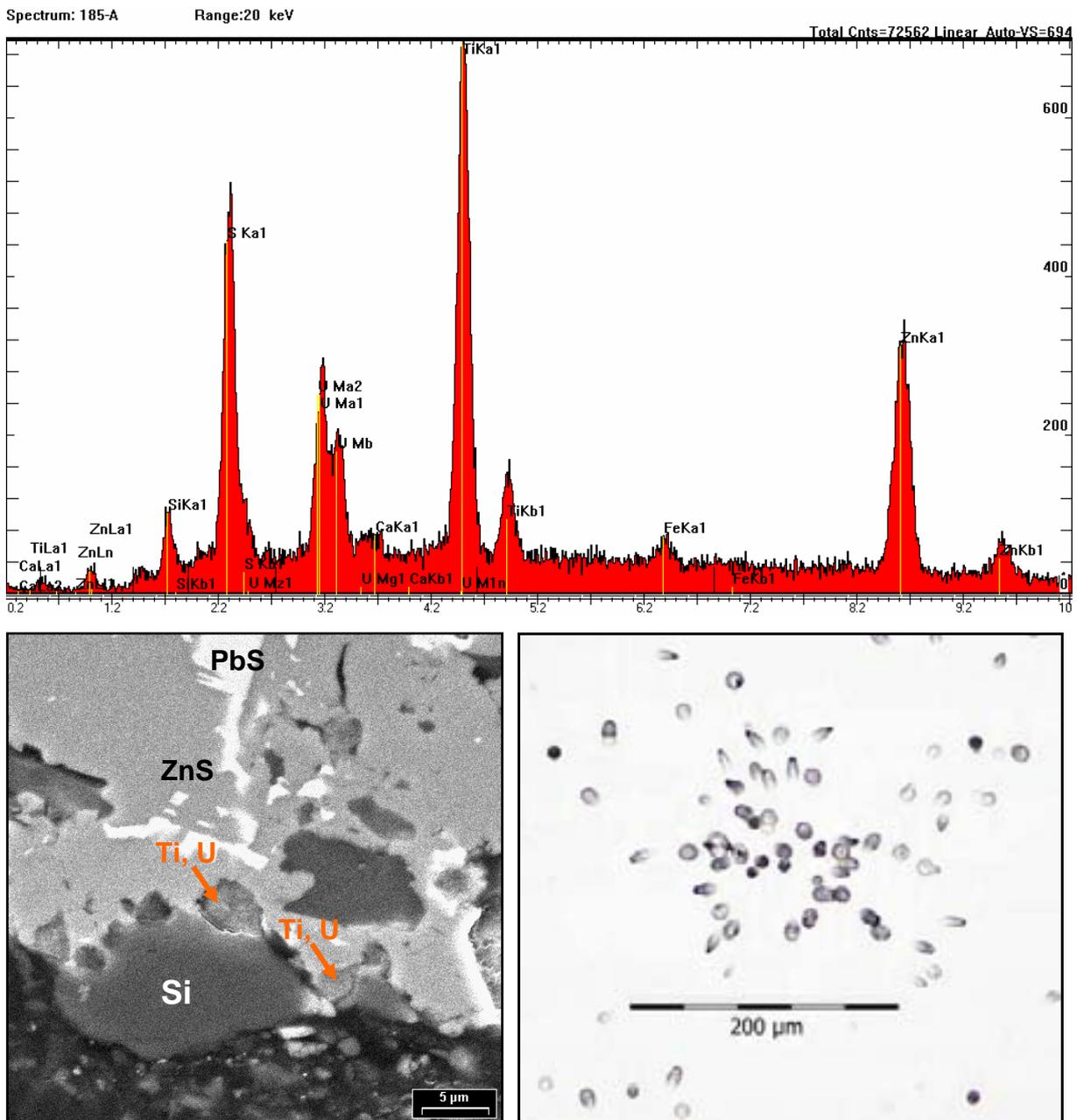
Der Kupferschiefer war jahrhundertlang Rohstoff für die Erzgewinnung im südöstlichen Harzvorland (Mansfelder Land). Bei seiner Verarbeitung entstanden verschiedenartige Rückstände und Nebenprodukte. Dazu zählen der im Kapitel 4.1.1.1 beschriebene, mit natürlichen Heißen Teilchen kontaminierte Theisenschlamm und die in Kapitel 4.1.1.2 beschriebene Kupferschlacke, die keine Heißen Teilchen enthält. Mit der Untersuchung des Kupferschiefers sollte geprüft werden, ob natürliche Heiße Teilchen vorhanden sind und ob diese sich mit denen des Theisenschlammes vergleichen lassen (Frage der Herkunft und Entstehung natürlicher Heißer Teilchen).

### Ergebnisse der lichtmikroskopischen Untersuchungen

Einen Überblick über die Ergebnisse der lichtmikroskopischen Untersuchungen und Expositionsbedingungen gibt die Tabelle im Anhang I 1.

Alle untersuchten Kupferschiefer-Proben enthalten natürliche Heiße Teilchen, im Maximum finden sich 11 Sternspurmuster pro  $\text{cm}^2$  (Probe Nr. 185) auf dem Detektor. Die Spurdichte von Alphaspuren (Background) auf dem Detektor ist, abhängig von der Expositionsdauer, mittel bis hoch.

### Ergebnisse der elektronenmikroskopischen Untersuchungen



**Abb. 58** EDX-Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild von natürlichen Heißen Teilchen der Kupferschiefer-Probe 185 (Markierung a). Es handelt sich hier um eine Verwachsung von ZnS (Sphalerit) und PbS (Galenit) mit  $\text{SiO}_2$  (Quarz), in den Hohlräumen dieses Kornes wurden Titan, Uran und Calcium (Brannerit?) detektiert. Die Größe dieser Heißen Teilchen liegt jeweils unter  $5 \mu\text{m}$ . Da es sich hier um zwei benachbarte, separate alphaemittierende Quellen handelt, zeigt das Sternspurmuster eine asymmetrische Ausbildung ohne deutliches Zentrum.

Es wurden zwei Kupferschiefer-Proben unter dem Elektronenmikroskop untersucht. Die Ergebnisse dieser Untersuchungen sind tabellarisch im Anhang I 2 dargestellt.

In 8 von 25 markierten Bereichen auf den Oberflächen der untersuchten Kupferschiefer-Proben konnten alphaemittierende Partikel (natürliche Heiße Teilchen) nachgewiesen werden. Die Aufmahlung der Probe 184 zu einem sehr feinkörnigen, gut vermischtem Material hat sich für die Detektion mit dem Elektronenmikroskop als sehr ungünstig erwiesen. Im Rasterbild waren extrem viele Partikel sichtbar, die potentiell als gesuchte Heiße Teilchen in Frage kamen und dann unter sehr hohem Zeitaufwand analysiert werden mussten.

Alle 8 detektierten Heißen Teilchen haben ungefähr die gleiche Zusammensetzung. Sie bestehen im Wesentlichen aus Uran, Titan und Calcium (Abb. 58, Tafeln 93-95). Beimengungen anderer Elemente stammen wohl eher aus der Umgebung der detektierten Teilchen. Bei dem Uran-Titan-Mineral handelt es sich mit großer Wahrscheinlichkeit um Brannerit, welcher überwiegend in Form von 1-5 µm kleinen Partikeln bzw. Säumen vorkommt. Die Säume hängen in Hohlräumen oder an Rändern größerer Sulfidkörnchen (meist Zinkblende ZnS mit Bleiglanz PbS). Innerhalb der Markierung 184 a wurde ein ca. 100 µm großes Branneritkorn gefunden. Brannerit ist ein primäres Uranmineral mit der chemischen Formel  $(U, Ca, Th, Y)(Ti, Fe)_2O_6$ . Es bildet keine guten Kristalle aus und kommt meist in Form von Körnchen oder massiv vor (RAMDOHR 1979). Brannerit bildet sich magmatisch oder hochhydrothermal unter reduzierenden Bedingungen und kommt normalerweise in Pegmatiten und hydrothermalen Gängen vor. Aus dem Kupferschiefer wurde Brannerit bisher nicht beschrieben. Es wird allgemein angenommen, dass sich der Urananteil des Kupferschiefers aus dem Stoffbestand der älteren Gesteinsunterlage bezieht, z.B. aus silurischen Schwarzschiefern oder ordovizischem Ockerkalk. Uran wurde nur aus umliegenden Vorkommen umverteilt und dem Kupferschieferflöz durch oxidierende exogene Untergrundwässer über das Zechsteinkonglomerat zugeführt. Brannerit wurde auch im Theisenschlamm gefunden.

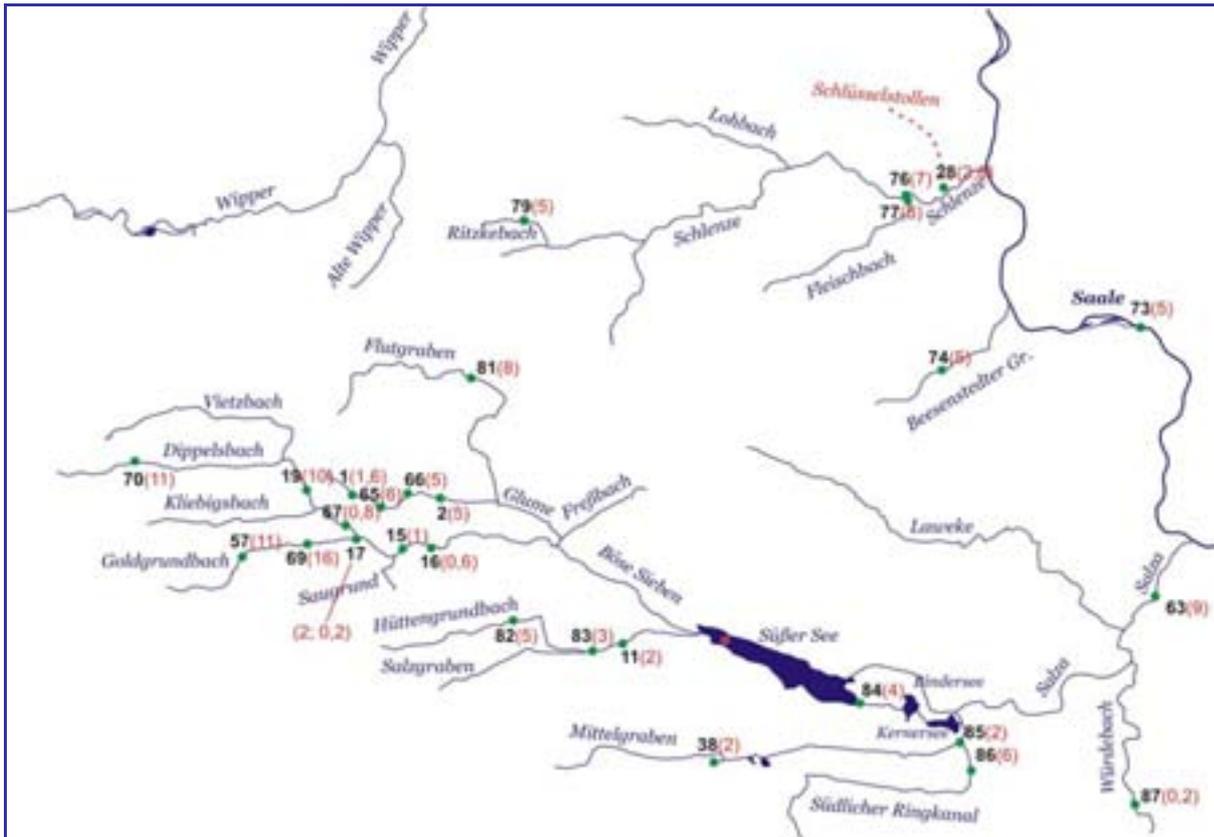
#### 4.1.2.2 Fluss- und Bachsedimente des Mansfelder Landes

Das Mansfelder Land (Abb. 57) im südöstlichen Harzvorland ist einer der ältesten Bergbaubezirke der Welt. Der Bergbau auf Kupferschiefer in diesem Gebiet lässt sich fast 800 Jahre zurückverfolgen. Von der langen Geschichte dieses Bergbaus zeugen heute weit über 2000 Halden verschiedenster Art (SCHRECK 1997). Dazu zählen Abraum-, Armerz-, und Schlackehalden, Zwischenprodukte der Verhüttung (Flugstäube, Theisenschlamm und Fällschlämme) sowie Zuschlagstoffe für den Hochofenprozess. Durch die Verwehung feinstkörniger Stäube, die Abspülung von Verhüttungsschlämmen und die chemische Lösung oxidierter Haldeninhaltsstoffe kommt es zur Ausbreitung von Schadstoffen (Schwermetallen, toxischen Nichtmetallen, Salzen, Radioaktivitätsträgern und organischen Kohlenwasserstoffen) in das Umland und das Gewässernetz im Umfeld der Halden- und Hüttenstandorte, die bis zum Süßen See und zur Saale transportiert werden. Die Bachsedimente des Mansfelder Landes sind mit Schadstoffen (hauptsächlich Schwermetallen) belastet. Insbesondere in Gewässerabschnitten nahe den Bergbau- und Verhüttungshalden sind deutliche Anreicherungen von Schwermetallen im Bachsediment festzustellen, was auf die witterungsbedingte Einschwemmung von Bergbaurückständen in die Bäche zurückgeführt werden kann (SCHRECK 2002). Eine besondere Rolle hinsichtlich des Eintrages von Schadstoffen sollen wegen ihrer großen reaktiven Oberfläche, ihres hohen Metallgehaltes, ihrer Radioaktivität und ihres organischen Schadstoffinventars metallurgische Flugstäube wie der Theisenschlamm spielen, die ungesichert in Deponien und Halden gelagert wurden.

Der überwiegende Teil der untersuchten Bachsedimente des Mansfelder Landes wurde mir freundlicherweise von Herrn Dr. P. Schreck zur Verfügung gestellt. Die Lage der Probenahmeplätze ist aus Abb. 59 ersichtlich. Bei den Untersuchungen dieser Bachsedimente ging

es darum zu prüfen, ob sich die in Kupferschiefer und Theisenschlamm detektierten natürlichen Heißen Teilchen auch in den Bachsedimenten nachweisen lassen und daraus möglicherweise Aussagen zu Transportmechanismen und Umweltverhalten von natürlichen Heißen Teilchen abgeleitet werden können.

Die Sedimentproben wurden gesiebt. Es wurde überwiegend die Fraktion  $<63 \mu\text{m}$  exponiert, da das Vorkommen von natürlichen Heißen Teilchen in den kleinen Korngrößen am größten ist. Ungefähr die Hälfte der Sedimentproben – vorwiegend solche aus Gewässerabschnitten nahe der Haldenstandorte um Helbra und Eisleben – wurde eingebettet. Dabei wurden meist Doppel- bzw. Dreifach-Proben hergestellt, um eine größere Probenoberfläche auswerten zu können.



**Abb. 59** Überblick über das Gewässersystem der Mansfelder Mulde mit Lage der Probennahmepunkte und Anzahl der bei den jeweiligen Proben detektierten Sternspurmuster (Heiße Teilchen-Spuren) pro  $\text{cm}^2$  (in Klammern). Der rote Punkt kennzeichnet den Probennahmepunkte im Süßler See (vgl. Kap. 4.1.2.4). Nach GRUNWALD (2000), verändert.

### **Ergebnisse der lichtmikroskopischen Untersuchungen**

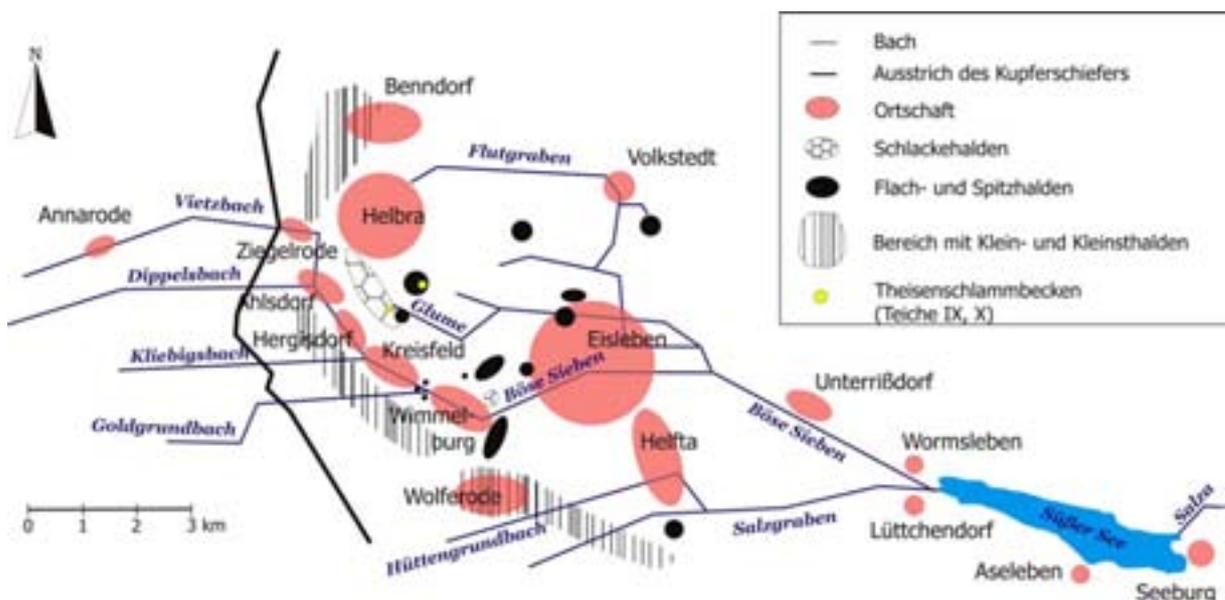
Einen Überblick über die Ergebnisse der lichtmikroskopischen Untersuchungen und Expositionsbedingungen gibt die Tabelle im Anhang J 1.

Alle untersuchten Bachsediment-Proben enthalten natürliche Heiße Teilchen, minimal wurden  $0,2$  Sternspurmuster pro  $\text{cm}^2$  gefunden. Das entspricht bei eingebetteten Proben mit einer Probenoberfläche von  $4,9 \text{ cm}^2$  einem Sternspurmuster auf dem gesamten Festkörperspurdetektor bzw. bei nicht eingebetteten Proben mit einer Probenoberfläche von ca.  $22 \text{ cm}^2$  vier Sternspurmustern auf dem gesamten Detektor. Maximal wurden 16 Sternspurmuster pro  $\text{cm}^2$  gefunden (Probe 194, Goldgrundbach). Durchschnittlich enthalten die Bachsedimente fünf natürliche Heiße Teilchen (Sternspurmuster) pro  $\text{cm}^2$ . Die Expositionsdauer lag zwischen 6 und 10 Wochen. Die Spurdichte von Alphaspuren (Background) auf dem Detektor ist gering

bis mittel. Es treten zahlreiche Cluster-Spurmuster auf, häufig sind die Spuren allein in diesen Clustern konzentriert.

Die Anzahl von natürlichen Heißen Teilchen in einer Probe lässt keine Rückschlüsse über den Ort der Probennahme zu. So unterscheidet sich die Anzahl von natürlichen Heißen Teilchen beispielsweise in den Sedimenten von Glume und Böser Sieben, die ein Areal mit ausgedehnten Halden durchfließen bzw. deren Quellgebiet (Glume) unmittelbar an ein mit Theisenschlamm kontaminiertes Gelände grenzt (Abb. 60) nicht wesentlich von der in anderen untersuchten Sedimentproben, die nicht so stark von Haldenstandorten beeinflusst waren. Allerdings muss man mit diesen Interpretationen sehr vorsichtig sein, da nur ein extrem kleiner Anteil der Bachsedimente exponiert und untersucht werden konnte.

Die durchschnittliche Anzahl von natürlichen Heißen Teilchen pro  $\text{cm}^2$  in den Bachsedimenten (5) ist vergleichbar mit der von Kupferschiefer (6) und Theisenschlamm (4).



**Abb. 60** Schematische Darstellung der westlichen Mansfelder Mulde mit Gewässernetz und Lage der Halden mit Abraum- und Verarbeitungsrückständen der Erzverhüttung. Nach BECKER (2000), verändert.

### *Ergebnisse der elektronenmikroskopischen Untersuchungen*

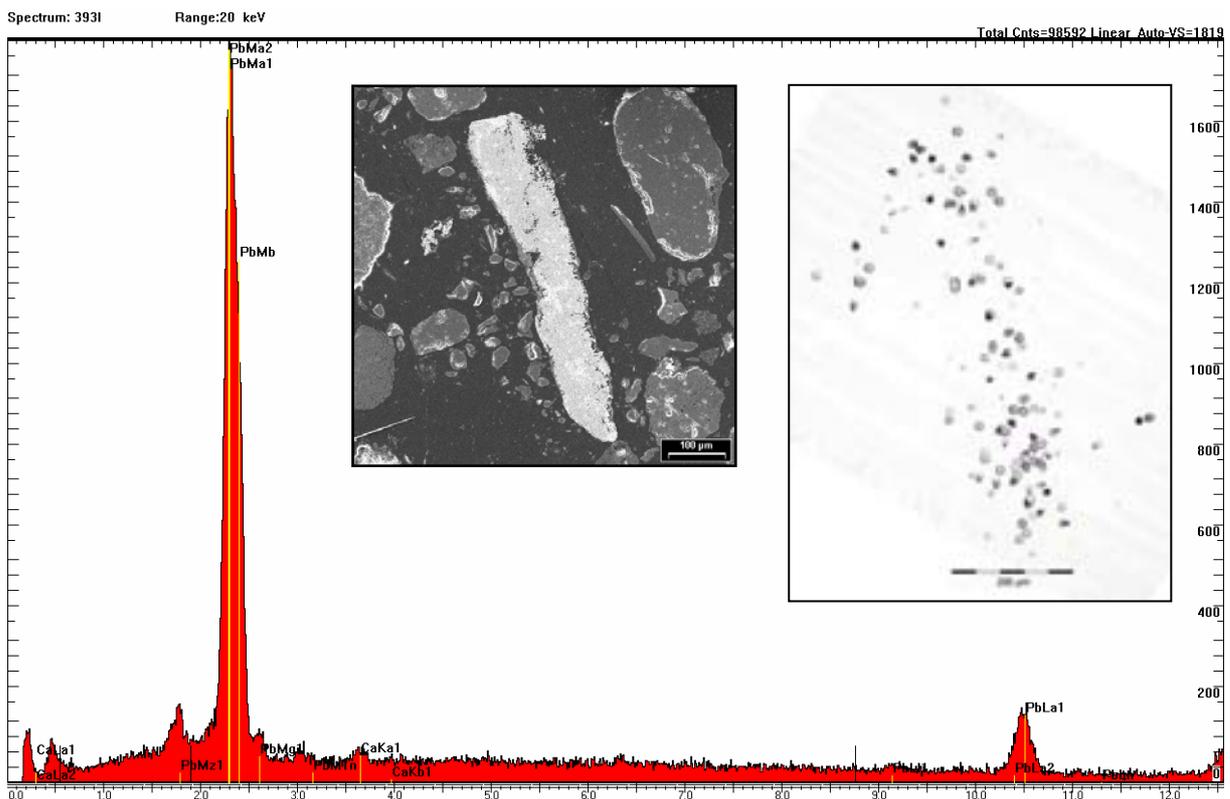
Es wurden neun Bachsediment-Proben unter dem Elektronenmikroskop untersucht. Die Ergebnisse dieser Untersuchungen sind tabellarisch im Anhang J 2 dargestellt.

In 97 von 168 markierten Bereichen der Bachsediment-Proben wurden Alphaemitter (natürliche Heiße Teilchen) gefunden. Dabei handelt es sich überwiegend um Monazitkörnchen (Abb. 61, Tafeln 96-152), die in 87 markierten Bereichen detektiert werden konnten. Daneben finden sich Zirkon- und Xenotimkörnchen. Die alphaemittierenden Sedimentkörnchen haben – auch abhängig von der detektierten Korngrößenfraktion einer Probe – Korngrößen zwischen 5 und 70  $\mu\text{m}$ , maximal 100  $\mu\text{m}$ . Ihre durchschnittliche Größe liegt zwischen 20 und 50  $\mu\text{m}$ . Es handelt sich überwiegend um abgerundete, kompakte Einzelkörnchen. Monazit  $\text{Ce}(\text{PO}_4)$ , Xenotim  $\text{Y}(\text{PO}_4)$  und Zirkon  $\text{Zr}(\text{SiO}_4)$  können Urankonzentrationen von mehr als 1000 ppm enthalten, daneben nennenswerte Gehalte an Thorium, die bei Monazit bis zu 20 Gewichtsprozent betragen können. Sie haben eine weite Verbreitung als akzessorische Gemengteile in sauren Gesteinen. Außerdem sind sie häufig sekundär in Fluss- und Strandseifen angereichert. Ihr Auftreten in den Bachsedimenten ist auf die Erosion der anstehenden und von den Gewässern durchflossenen Gesteinsformationen zurückzuführen. Diese bestehen aus Rotliegend-Sedimenten (Abtragungsschutt des variszischen Gebirges) und den sedimentären Abfolgen des Buntsandsteins (Abb. 62).



Die Unterlage des Kupferschiefers wird neben Konglomeraten von Sandsteinen und Schluffsteinen gebildet. Die Sande werden als Schelfsande angesehen (JANKOWSKI 1995). In allen diesen sedimentären Ablagerungen sind Schwermineralseifen vorstellbar.

Es wurden keine der in Theisenschlamm und Kupferschiefer nachgewiesenen Alphaemitter (Uraninit, Brannerit) gefunden. Allerdings kommen in den Proben häufig stänglige oder plattige Partikel einer Längserstreckung von mindestens 200  $\mu\text{m}$  vor, die wie im Theisenschlamm aus gediegenem Pb bestehen (Abb. 63, Tafel 141). Über diesen Partikeln wurden auf dem Festkörperspurdetektor Cluster-Spurmuster gefunden. Sie ähneln auch dem Aussehen nach denen, die im Theisenschlamm detektiert wurden. Vermutlich enthalten sie radioaktives  $^{210}\text{Pb}$ , welches über das mit ihm im Gleichgewicht stehende, alphaemittierende Radionuklid  $^{210}\text{Po}$  detektiert werden kann.



**Abb. 63** EDX-Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild (Cluster) eines stängligen Partikels. Probe 393 (i). Das Partikel besteht fast ausschließlich aus Blei und enthält vermutlich  $^{210}\text{Pb}$ . Maßstab REM-Bild: 100  $\mu\text{m}$ .

Alle in den Proben analysierten Alphaemitter sind natürliche Minerale aus dem geologischen Untergrund der Mansfelder Mulde bzw. deren Umrandung (Abb. 62), die Uran oder Thorium enthalten. Das entspricht einerseits den Ergebnissen von SCHRECK (2002), der feststellte, dass 1. der Einfluss der metallurgischen Flugstäube (Theisenschlamm) auf den Metallgehalt der Bachsedimente gering und nur auf wenige Gewässerabschnitte beschränkt ist, und 2. Metalleinträge aus dem anstehenden Kupferschiefer nicht nachgewiesen werden können. Andererseits muss man auch davon ausgehen, dass das Uran aus dem Theisenschlamm mobilisiert wird indem es oxidiert und dann in Form von Uranylkomplexen transportiert wird. Uran verhält sich in einem oxidierenden Medium als lösliches sechswertiges Komplex-Ion ebenso hochbeweglich wie die Elemente Na, Ca, Mg, F und Zn (TONNDORF 1994). Für das Verhalten von Uran während der Verwitterung spielt seine Lokalisierung im Kornverband eine wichtige Rolle (KEMSKI et al. 1996). Danach hängt die Löslichkeit aus dem Gesteinsverband von seiner Bindungsform und Mineralisation ab. Aus löslichen Mineralen wie dem Uraninit ( $\text{UO}_2$ ), aus instabilen Phasen im Intergranularraum und aus äußeren Mineralkornlagen kann es leicht entfernt werden, während es in verwitterungsresistenten Mineralen wie Zirkon und Monazit, wo Uran im Gitter sitzt, verbleibt. Einmal in die wässrige Lösung des Poren-

raumes gelangt, wird Uran in Form verschiedener Uranylkomplexe transportiert. Je nach geochemischem Milieu sind das z.B. Hydroxid-, Sulfat-, Phosphat- oder Carbonatkomplexe. Die Uran-Gehalte im Theisenschlamm finden sich überwiegend an Korngrenzen und in Kornzwischenräumen. Sie können dementsprechend leicht mobilisiert und transportiert werden. Diese Annahme wird gestützt durch Analysen von Wasserproben aus Gewässern des Mansfelder Landes (u.a. Böse Sieben), die relative hohe Urangelhalte von 8 bis 37  $\mu\text{g/l}$  aufweisen (frdl. mdl. Mitt. Dr. R. Wennrich). Die durchschnittlichen Urankonzentrationen in Flüssen liegen zwischen 0,2 und 0,6  $\mu\text{g/l}$  (MEINRATH et al. 2003).

Insgesamt muss man feststellen, dass eine Kontamination der Sedimente aus dem Mansfelder Land durch natürliche Heiße Teilchen aus dem Theisenschlamm oder Kupferschiefer mit den Methoden dieser Arbeit nicht nachgewiesen werden konnte.

#### 4.1.2.3 Sedimente aus dem Schlüsselstollen

Der 31,1 km lange Schlüsselstollen (Abb. 57) diente im Mansfelder Kupferschieferbergbau von 1879 bis 1970 als Wasserhaltungssystem (AURADA 1979). Der von 1809 bis 1879 gebaute Stollen beginnt bei 76,05 m NN am Helm-Schacht westlich von Eisleben. Sein Mundloch (Abb. 64) liegt bei 71,60 m NN westlich von Friedeburg (WAGENBRETH 1978). Bis zur Einstellung der Wasserhaltung wurde das gesamte Grubengebäude des Kupferschieferbergbaus zwischen 73,8 m NN und  $-787,7$  m NN entwässert.



**Abb. 64** Mundloch des Schlüsselstollens. Auffällig sind hier die gelben bis braunen Ockerbildungen auf den Bachsedimenten. Dabei handelt es sich um Mineralkrusten aus Eisenhydroxiden ("Sinter"), die sich bei Sauerstoffzutritt aus dem Stollenwasser als feinkristalline Überzüge abscheiden. Diese Eisenhydroxide enthalten nach SCHRECK (2002) große Mengen Schwermetalle (besonders Pb) sowie Arsen und Phosphat.

Heute dient der Schlüsselstollen als zentraler Entwässerungstollen der Mansfelder Mulde, über den etwa 20 m<sup>3</sup> Wasser pro Minute abfließen. Das Wasser gelangt über die untere Schlenze bei Friedeburg in die Saale. Es hat einen extrem salinaren Charakter (Salinität=21,8 g/l) und enthält darüber hinaus überdurchschnittliche Gehalte an Schwermetallen wie

Zn, Cu, Pb, Cd, As (SCHRECK 2002). Die aktuellen Frachtraten des Schlüsselstollens belaufen sich auf etwa 210 000 t NaCl und ca. 200 t Zn pro Jahr. Der Schlüsselstollen gilt als Hauptlieferant für Salz und Metalle für die Flüsse Saale und Wipper.

Eine Untersuchung dieser Sedimente sollte zeigen, ob sie natürliche Heiße Teilchen enthalten und ob sich diese mit denen von Kupferschiefer und Theisenschlamm vergleichen lassen. Wenn Metalle und Salze im ehemaligen Bergbaurevier der Mansfelder Mulde durch die Wasser ausgetragen werden können, müsste dies auch für die Heißen Teilchen möglich sein.

### *Ergebnisse der lichtmikroskopischen Untersuchungen*

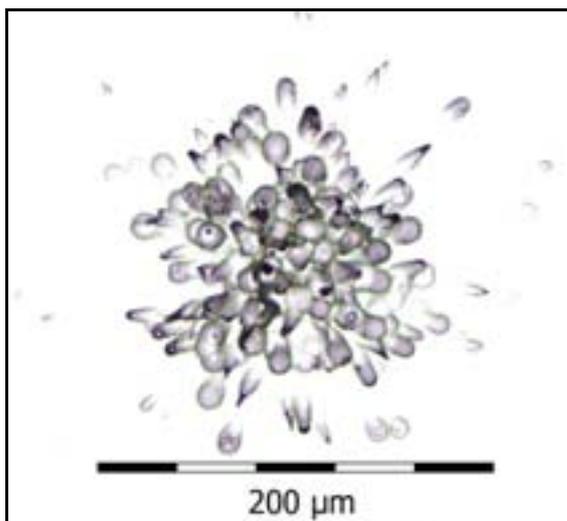
Einen Überblick über die Ergebnisse der lichtmikroskopischen Untersuchungen und Expositionsbedingungen gibt Tab. 14.

**Tab. 14** Überblick über die exponierten Sedimentproben des Schlüsselstollens und Ergebnisse der lichtmikroskopischen Auswertung des Alphaspuren-Inventars auf den Festkörperspurdetektoren unter Angabe der Expositions-Nummer (Nr.), Expositionsdauer (t), Anzahl ( $n_{HT}$ ) der Heiße Teilchen-Spuren (Sternspurmuster) pro  $cm^2$  und der Spurdichte ( $\delta_{Spur}$ ) von Alphapartikeln (Background).

Nr.	Probe	t	$n_{HT}$	$\delta_{Spur}$
211	Sediment Mundloch Schlüsselstollen, eingebettet	4 Wochen	5	gering
252	Sediment Mundloch Schlüsselstollen, nicht eingebettet, 250-63 $\mu m$	5 Wochen	keine	kaum Spuren vorhanden

Bei Probe Nr. 211 konnten 5 Sternspurmuster pro  $cm^2$  (Abb. 65) gefunden werden bei einer gleichzeitig geringen Spurdichte von Alphapartikeln (Background). Cluster treten nicht auf. Die Expositionszeit lag bei 4 Wochen.

Die Probe Nr. 252 enthält keine natürlichen Heißen Teilchen und zeigt auch nur sehr wenige Einzelspuren auf dem Detektor.



**Abb. 65** Charakteristisches Sternspurmuster in der Sedimentprobe 211 (Schlüsselstollen).

Die Probe 211 wurde nur testweise unter der Elektronenstrahlmikrosonde untersucht. Dabei wurden 3 Monazitkörnchen, ähnlich denen der Bachsedimente des Mansfelder Landes, gefunden.

#### 4.1.2.4 Seesedimente vom Süßen See

Der Süße See ist mit ca. 2,5 km<sup>2</sup> das größte Gewässer im Mansfelder Land (Abb. 57). Er ist maximal 0,8 km breit und 4,8 km lang. Die größte Tiefe beträgt ca. 8 m. Der See wird hauptsächlich durch die Böse Sieben gespeist. Bevor die Böse Sieben in den Süßen See mündet, durchfließen sie und ihre Nebenflüsse Goldgrundbach, Kliebigsbach, Dippelsbach, Vietzbach und Glume ein Gebiet, das von Kupferschieferbergbau und -verarbeitung geprägt ist und wo beträchtliche Mengen an Abraum und Verarbeitungsrückständen (vgl. auch Kap. 4.1.1.1, 4.1.1.2 und 4.1.2.1 bis 4.1.2.3) in zahllosen Halden lagern (Abb. 60). Die meisten dieser Halden sind der chemischen und physikalischen Verwitterung ausgesetzt und werden so zur Schwermetallquelle für die umliegenden Bäche (BECKER et al. 2001). Der Süße See ist eine natürliche Falle für die in den Bächen reichlich vorhandenen Schwermetalle, die in den Sedimenten akkumuliert werden. Der größte Eintrag an Schwermetallen erfolgt wegen der Einmündung der Bösen Sieben am westlichen Ende des Sees. Hier finden sich nach BECKER et al. (2001) erhöhte Werte von Pb, U, Zn, Cu, As, S, C, wobei die oberen 60 cm der Seesedimente deutlich von Theisenschlamm beeinflusst sein sollen.

Die in vorliegender Arbeit untersuchten Proben stammen aus einem ungestörten Bereich des Seebodens im westlichen Bereich des Süßen Sees im Einflussbereich der Bösen Sieben (Abb. 59, roter Punkt). Es sollte ein Einfluss von Theisenschlamm oder Kupferschiefer (Kontamination der Seesedimente mit in diesen Proben vorkommenden natürlichen Heißen Teilchen) auf die Seesedimente mit den Methoden dieser Arbeit nachgewiesen werden. Die Probennahme erfolgte im Juli 1999 in Zusammenarbeit mit der Forschungstauchergruppe der Universität Kiel im Rahmen eines UFZ-Verbundprojektes. Es handelt sich um einen aus 5 Sedimentkernen zusammengesetzten Kern einer Kernlänge von 49,8 cm in getrockneten 1 cm Teufensegmenten mit einem Durchmesser von 74 mm. Es wurden nicht Proben des gesamten Kern exponiert, sondern nur die Proben ausgewählt, die nach gammaspektrometrischen Untersuchungen die höchsten Konzentrationen an Uran bzw. Thorium aufwiesen. Das getrocknete und vermahlene Probenmaterial wurde zu Tabletten (Wachspresslinge) mit einem Durchmesser von 3,1 cm verpresst. Es wurde jeweils die Ober- und die Unterseite eines solchen Wachspresslings untersucht, um eine größere Expositionsfläche zu erhalten.

#### *Ergebnisse der lichtmikroskopischen Untersuchungen*

Einen Überblick über die Ergebnisse der lichtmikroskopischen Untersuchungen und Expositionsbedingungen gibt die Tabelle im Anhang K.

Die Anzahl von Heißen Teilchen (Sternspurmustern) in den Sedimenten des Süßen Sees ist generell sehr niedrig bei einer gleichzeitig mittleren Spurdichte von Alphapartikeln auf dem Detektor (Background). Cluster treten nicht auf. Bei einigen Proben kommen gar keine Sternspurmuster vor. In den Teufenbereichen zwischen 16 und 45 cm liegt die Zahl der Sternspurmuster (Heißen Teilchen-Spuren) pro cm<sup>2</sup> zwischen 0 und 0,4, überwiegend jedoch bei 0,1 pro cm<sup>2</sup>. In den Teufen von 1 bis 16 cm ist die Zahl der Sternspurmuster pro cm<sup>2</sup> mit Werten zwischen 0,1 und 1,5 etwas höher. Die Expositionszeit lag bei 8 Wochen. Die meisten Sternspurmuster sind sehr klein und häufig asymmetrisch.

Das lässt auf eine geringe Korngröße der Radioaktivitätsträger (Alphaemitter) schließen. Die von BECKER et al. (2001) in den Seesedimenten gefundenen erhöhten Urankonzentrationen spiegeln sich nicht in einer erhöhten Spurdichte von Background-Spuren oder großen Zahl von Sternspurmustern wider.

Die Sedimente vom Süßen See wurden keiner elektronenmikroskopischen Untersuchung unterzogen.

#### 4.1.2.5. Überflutungssedimente von Elbe und Mulde



**Abb. 66** Gewässernetz von Elbe und Mulde. Das kleine Bild zeigt die Lage der dargestellten Flusssysteme in Deutschland.

Im August 2002 war Sachsen von einer Hochwasserkatastrophe betroffen. Schwerpunkte waren neben der Elbe und Mulde die Zuflüsse der Elbe im Osterzgebirge. Die Hochwasserkatastrophe wurde von extremen und lang anhaltenden Niederschlägen der ersten Augushälfte 2002 in weiten Teilen Mitteleuropas verursacht, die die Wasserstände in den Flüssen Sachsens in kürzester Zeit auf extreme Höhen ansteigen ließ. Die Niederschlagsmengen lagen verbreitet bei mehr als 200 %, teilweise sogar über 350 %, jeweils bezogen auf die Niederschlagssumme der August-Mittelwerte 1961 bis 1990 (ANONYMUS 2002). Stellenweise ist also in drei Tagen das Vierfache des sonst in einem Monat zu erwartenden Niederschlages gefallen.

Durch das Hochwasser wurden Schadstoffe aus verschiedenen Belastungsquellen, z.B. aus Halden des Erzbergbaus, aus Tailings des Uranbergbaus der Nachkriegszeit (Wismut), aus industriellen Altlasten, aus überschwemmten Wohngebieten, Kläranlagen und Industriebetrieben, freigesetzt und transportiert (GELLER et al. 2004). Zur Ermittlung der Schadstoffbelastung im Einzugsgebiet von Elbe und Mulde wurde im August unter Koordination des UFZ-Umweltforschungszentrums ein Ad-hoc-Projekt ins Leben gerufen. Im Rahmen dieses Projektes erfolgte eine Beprobung (Schlamm- und Wasserproben) an mehr als 45 Punkten an der Freiberger und Zwickauer Mulde, am Unterlauf der Mulde sowie der Elbe zwischen Pirna und Magdeburg (Abb. 66). Ein Teil der Schlammproben aus den Überschwemmungsgebieten von Elbe und Mulde wurde der Abteilung Umweltradioaktivität des UFZ zur Bestimmung der natürlichen Radioaktivität übergeben. Sie konnten für die Untersuchungen im Rahmen der vorliegenden Arbeit genutzt werden. Es sollte geprüft werden, ob sich Schadstoffe in Form alphaemittierender Radionuklide in diesen Proben identifizieren lassen, wie aufgrund der Belastungsquellen angenommen werden konnte. Je nach Schadstoffinventar kann von den Sedimenten, die sich in den überfluteten Siedlungsgebieten und Landwirtschaftsflächen abgelagert haben, ein Gesundheitsrisiko, z.B. durch Radionuklide, ausgehen.

### Ergebnisse der lichtmikroskopischen Untersuchungen

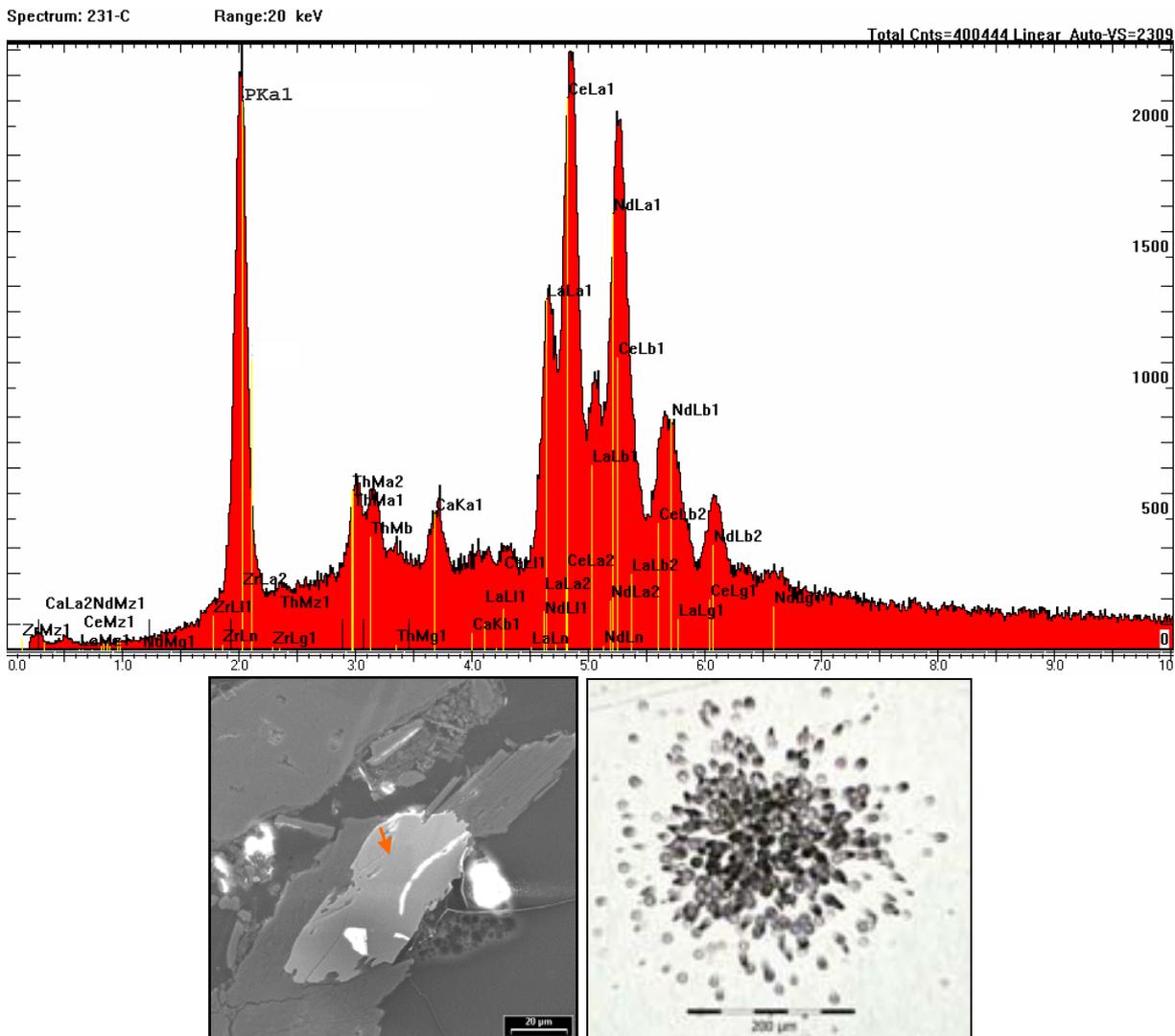
Einen Überblick über die Ergebnisse der lichtmikroskopischen Untersuchungen und Expositionsbedingungen gibt die Tabelle im Anhang L.

Alle untersuchten Sediment-Proben von Elbe und Mulde enthalten natürliche Heiße Teilchen. Die Zahl der Sternspurmuster (Heiße Teilchen-Spuren) pro  $\text{cm}^2$  schwankt zwischen 1 und 12, im Durchschnitt findet man 4 Sternspurmuster pro  $\text{cm}^2$  auf dem Detektor. Die Spurdichte von Alphateilchen auf dem Detektor (Background) ist mittel, wobei die Spuren häufig wolkg konzentriert sind. Die Expositionszeit lag bei 6 bzw. 8 Wochen.

### Ergebnisse der elektronenmikroskopischen Untersuchungen

Es wurde eine Probe der Überflutungssedimente unter dem Elektronenmikroskop untersucht. Die Ergebnisse dieser Untersuchungen sind tabellarisch im Anhang L 2 dargestellt.

Diese Probe wurde für die elektronenmikroskopische Untersuchung ausgewählt und eingebettet, da bei Testexpositionen der nicht eingebetteten Proben hier die meisten Sternspurmuster pro  $\text{cm}^2$  enthalten waren, und die Sternspurmuster zudem symmetrisch und groß waren.



**Abb. 67** EDX-Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines natürlichen Heißen Teilchens aus den Überflutungssedimenten der Mulde (Probe 231, Markierung c). Es handelt sich um ein ca.  $80 \times 30 \mu\text{m}$  großes Monazitkörnchen (roter Pfeil), das mit einem größeren Korn verwachsen ist. Maßstab der REM-Aufnahme:  $20 \mu\text{m}$ . Das EDX-Spektrum zeigt das typische Elementenspektrum des Monazits: Seltene Erden (Ce, La, Nd), P, Ca und Th.

In 7 von 11 markierten Bereichen der untersuchten Sediment-Probe von der Mulde (Grimma) wurden Alphaemitter gefunden. Dabei handelt es sich um Thorium- bzw. Uran-haltige Monazite (5) und Zirkone (2). Die Zirkonkörnchen haben Korngrößen von maximal 4  $\mu\text{m}$ . Bei den Monaziten liegen die Korngrößen zwischen 11 und 80  $\mu\text{m}$  (Abb. 67, Tafeln 153-158). Allerdings sind sie häufig mit größeren Körnern aus Quarz oder Feldspat verwachsen. Monazit und Zirkon sind natürliche Minerale. Sie kommen in Böden vor und haben eine weite Verbreitung als akzessorische Gemengteile in sauren Gesteinen. Ihr Auftreten in den Überflutungssedimenten ist vermutlich auf die Umlagerung von Böden oder auch die Erosion der anstehenden und von den Gewässern durchflossenen Gesteinsformationen des Erzgebirges zurückzuführen. Die Zwickauer Mulde und die Freiburger Mulde, die sich einige Kilometer südlich von Grimma zur Mulde vereinigen, entspringen in den Kammregionen des Erzgebirges und durchfließen dieses in nördliche Richtung (Abb. 66). Das Erzgebirge wird hauptsächlich von Gneisen, Graniten, Porphyren, Phylliten und Glimmerschiefern aufgebaut, die als Akzessorien Monazit und Zirkon enthalten können.

#### 4.1.2.6 Sedimente aus der Luppe

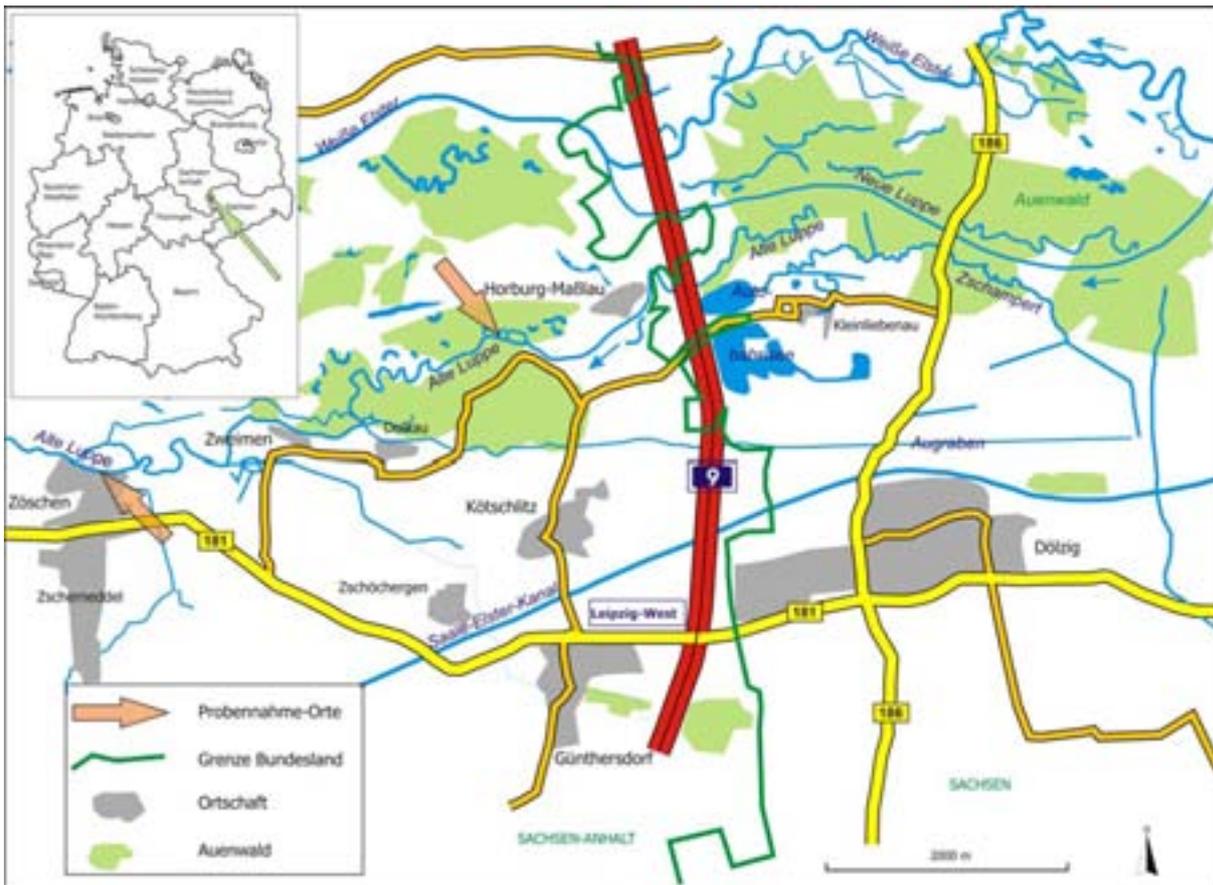
Das Flässchen Luppe war ursprünglich ein Nebenarm der Weißen Elster, die sich innerhalb von Leipzig in zwei Arme – einen nördlichen (Weiße Elster) und einen südlichen (Luppe) – teilte. Zu Beginn des vorigen Jahrhunderts wurde aus Gründen des Hochwasserschutzes massiv in die Gewässerlandschaft im heutigen Gebiet der Stadt Leipzig und deren Umfeld eingegriffen. Dabei kam es zu Gewässerverlegungen, Schaffung neuer Gewässer und Verfüllung von Altarmen. Im Zuge dieser Maßnahmen wurde auch die ursprüngliche Luppe von der Weißen Elster getrennt und es entstand mit der Neuen Luppe ein neuer Flussarm. Die alte Luppe, heute als Luppe-Wildbett oder Alte Luppe bezeichnet, hat seit 1938 keine natürliche Verbindung mehr zur Weißen Elster und wird nur durch



**Abb. 68** Alte Luppe bei Horburg.

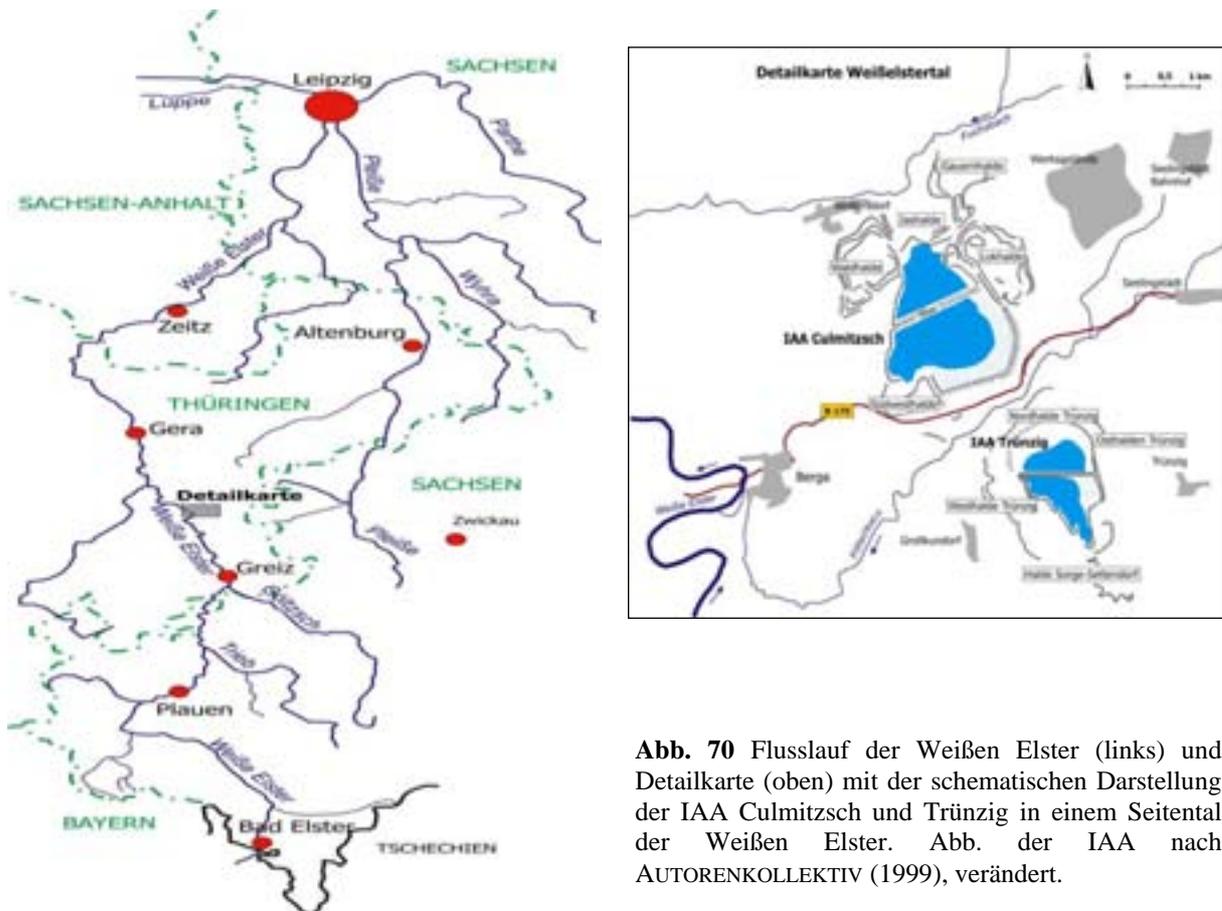
Grundwasser gespeist. Sie stellt heute einen Altarm mit seichtem, fast stehendem Wasser und einer z.T. sumpfigen Aue dar (Abb. 68). Ihr Ursprung liegt heute ca. 1 km nördlich der Ortschaft Kleinliebenau (bei Schkeuditz), westlich der Autobahn A9 zwischen den Autobahnabfahrten Leipzig-West und Großkugel (Abb. 69). Bis Ende der 80er Jahre wurde die Alte Luppe über ein Wehr bei Kleinliebenau mit Wasser aus der Weißen Elster gespeist (frdl. mdl. Mitteilung Herr Nestler, Flussmeisterei Leipzig). Grund für die Beprobung der Luppe ist deren Verbindung zur Weißen Elster.

Grundwasser gespeist. Sie stellt heute einen Altarm mit seichtem, fast stehendem Wasser und einer z.T. sumpfigen Aue dar (Abb. 68). Ihr Ursprung liegt heute ca. 1 km nördlich der Ortschaft Kleinliebenau (bei Schkeuditz), westlich der Autobahn A9 zwischen den Autobahnabfahrten Leipzig-West und Großkugel (Abb. 69). Bis Ende der 80er Jahre wurde die Alte Luppe über ein Wehr bei Kleinliebenau mit Wasser aus der Weißen Elster gespeist (frdl. mdl. Mitteilung Herr Nestler, Flussmeisterei Leipzig). Grund für die Beprobung der Luppe ist deren Verbindung zur Weißen Elster.



**Abb. 69** Gewässerlandschaft westlich von Leipzig an der Grenze von Sachsen zu Sachsen-Anhalt mit Weißer Elster und Luppe. Kleines Bild: Lage des Gebietes in Deutschlandkarte (grüner Pfeil).

Die Weiße Elster entspringt im Elstergebirge (Tschechische Republik) und durchfließt bis zu ihrer Einmündung in die Saale südlich von Halle das Vogtland, das thüringische Schiefergebirge und die Leipziger Tieflandsbucht (Abb. 70). Dabei berührt sie in Ostthüringen (Weißelstertal) ein Gebiet, wo in den 50er und 60er Jahren des vorigen Jahrhunderts durch die SDAG Wismut die einzige abbauwürdige Uranlagerstätte des Zechsteins sehr nachteilig für Mensch und Umwelt in Tagebauen abgebaut wurde (TONNDORF 1994). In dieser Lagerstätte wurden ca. 15 300 t Uran abgebaut. 1959 wurden der Tagebau Trünzig und ab 1963 der Tagebau Culmitzsch in Industrielle Absetzanlagen (IAA) für die feinkörnigen Rückstände (Tailings) der Uranerzaufbereitung des Aufbereitungsbetriebes Seelingstädt umgewandelt (Abb. 70). Wegen der Anlegung einer Schutzzone um die IAA Culmitzsch wurde die Ortschaft Culmitzsch in den Jahren 1964-1970 vollständig abgerissen. Heute befinden sich die industriellen Absetzanlagen in der Sanierungsverantwortung der Wismut GmbH. Jedoch konnten vor Beginn der Sanierung im Jahre 1991 Uran- und Radiumhaltige Schlämme der IAA in die Weiße Elster und damit auch in deren Nebenarme abfließen. Da seit Ende der 80er Jahre keine Oberflächenzuflüsse mehr in die Alte Luppe gelangen, wurden eventuell über die Weiße Elster bis zu diesem Zeitpunkt eingetragene radioaktive Sedimente nachträglich nicht mehr beeinflusst. Flusssedimente in Gebieten mit Ableitungen, vor allem des Bergbaus, können Anreicherungen von natürlichen Radionukliden wie  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{228}\text{Ra}$  und Uran sowie  $^{210}\text{Pb}$  aufweisen. Bei Baggergut, Aushubmaterial von Gewässerbetten, könnten kontaminierte Sedimente anfallen. Im Fall der Alten Luppe wird beispielsweise darüber nachgedacht, zum Zwecke der Wasserableitung wieder eine Verbindung zur Weißen Elster zu schaffen. In diesem Zusammenhang könnte auch das Flussbett der Alten Luppe ausgebaggert werden, um Wasserwegsamkeiten zu schaffen.



**Abb. 70** Flusslauf der Weißen Elster (links) und Detailkarte (oben) mit der schematischen Darstellung der IAA Culmitzsch und Trünzigt in einem Seitental der Weißen Elster. Abb. der IAA nach AUTORENKOLLEKTIV (1999), verändert.

Die Probennahme an der Luppe erfolgte im Oktober 2002 im Bereich der Ortschaften Horburg (westlich von Horburg, an der Brücke, Abb. 68) und Zöschen (Abb. 69). Die Orte liegen wenige Kilometer westlich der A9 (Abfahrt Leipzig West) in Sachsen-Anhalt. Vor der Exposition auf dem Detektor wurden die Schlammproben getrocknet und wegen des hohen organischen Anteils teilweise mit  $H_2O_2$  behandelt. Außerdem erfolgte eine Abtrennung nach Korngrößen, um in den einzelnen Korngrößenbereichen den Gehalt an Heißen Teilchen prüfen zu können.

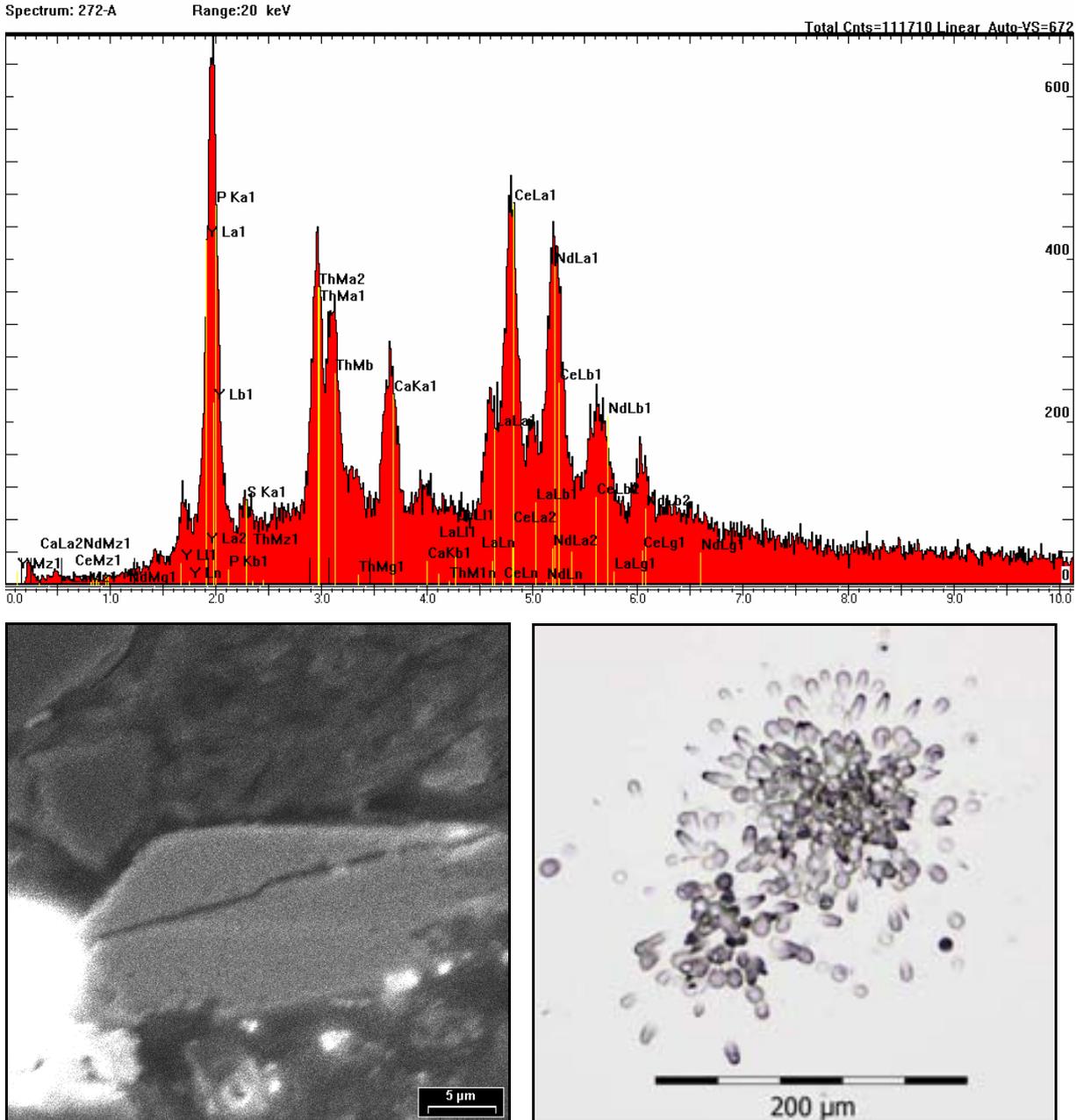
### *Ergebnisse der lichtmikroskopischen Untersuchungen*

Einen Überblick über die Ergebnisse der lichtmikroskopischen Untersuchungen und Expositionsbedingungen gibt die Tabelle im Anhang M 1.

Alle untersuchten Sediment-Proben enthalten natürliche Heiße Teilchen. Die Anzahl der Heiße Teilchen-Spuren (Sternspurmuster) pro  $cm^2$  liegt durchschnittlich zwischen 1 und 2, minimal bei 0,2 (das entspricht 4 Heiße Teilchen-Spuren auf dem gesamten Detektor) und maximal bei 6 bzw. 11,5 (das entspricht 97 bzw. 247 Heiße Teilchen-Spuren auf dem gesamten Detektor). Die Spurdichte von Alphapartikeln (Background) auf dem Detektor ist gering bis hoch, wobei die Spuren häufig wolzig konzentriert sind. Die Expositionszeit lag überwiegend bei 8 Wochen, z.T. bei 4 und 6 Wochen. Die Anzahl der Background-Spurmuster und Sternspurmuster ist abhängig von der Korngröße des detektierten Materials (vgl. Kap. 4.2). Je kleiner die Korngröße des untersuchten Materials desto höher ist die Zahl von Spuren und der Gehalt an natürlichen Heißen Teilchen. Die höchsten Konzentrationen an natürlichen Heißen Teilchen finden sich in den Proben mit Korngrößen  $<63 \mu m$  (Proben Nr. 342, 350 und 354).

### Ergebnisse der elektronenmikroskopischen Untersuchungen

Die Ergebnisse dieser Untersuchungen sind tabellarisch im Anhang M 2 dargestellt. Es wurden 5 Sedimentproben der Alten Luppe unter dem Elektronenmikroskop untersucht.

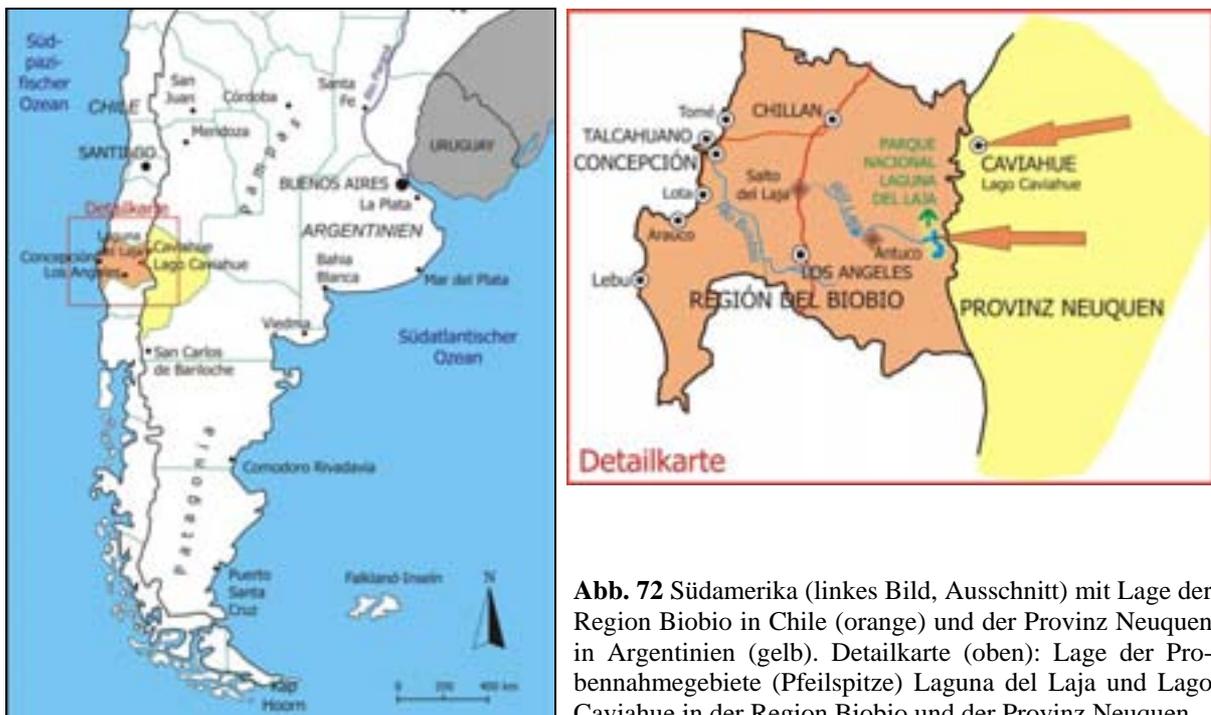


**Abb. 71** EDX-Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines natürlichen Heißen Teilchens der Probe Zöschchen (Nr. 272 a). Maßstab der REM-Aufnahme: 5 μm. Als Heißes Teilchen konnte ein ca. 35×15 μm großes Monazitkörnchen detektiert werden. Die durch die Mikrountersuchungen gefundenen Elemente sind typisch für das Mineral Monazit, im EDX-Spektrum liegen deutliche Peaks bei den Seltene Erden (Ce, La, Nd), P, Ca und bei Thorium. Das Autoradiogramm zeigt zwei nebeneinander liegende Sternspurmuster. Das obere wurde vom detektierten Monazit (Thorium) erzeugt. Es ist symmetrisch und hat eine hohe Spurdichte. Das untere Spurmuster, unter dem kein Alphaemitter gefunden werden konnte, hat dagegen eine asymmetrische Ausbildung.

In 7 von 27 markierten Bereichen auf den Oberflächen der untersuchten Sediment-Proben der Alten Luppe wurden Alphaemitter gefunden. Dabei handelt es sich ausschließlich um Monazite (Abb. 71, Tafeln 159-161), die Korngrößen zwischen 9 und 50 μm haben. Es sind meist abgerundete, tafelige oder dicktafelige Einzelkörner. Monazit ist ein natürliches Mineral mit

einer weiten Verbreitung als akzessorisches Gemengteil in sauren Gesteinen, in Seifenablagerungen (Bezeichnung für eine örtliche Anreicherung von spezifisch schweren und widerstandsfähigen Mineralen während der Verwitterung oder des Sedimenttransports) und Böden. Es ist auf den geogenen Background zurückzuführen. Hinweise auf eine Kontamination der Sedimente durch radioaktive Schlämme aus der Uranerzaufbereitung konnten nicht gefunden werden.

#### 4.1.2.7 Seesedimente aus Südamerika



**Abb. 72** Südamerika (linkes Bild, Ausschnitt) mit Lage der Region Biobio in Chile (orange) und der Provinz Neuquen in Argentinien (gelb). Detailkarte (oben): Lage der Probenahmegebiete (Pfeilspitze) Laguna del Laja und Lago Caviahue in der Region Biobio und der Provinz Neuquen.

Im Rahmen eines am UFZ (Gewässerforschung Magdeburg) bearbeiteten Projekts zu anthropogenen Verunreinigungen in entlegenen Gebieten Südamerikas (Projektname: anthropogenic pollution in remote areas) wurden in verschiedenen Seen in Chile und Argentinien Sedimentkerne gewonnen. Dabei sollte geklärt werden, ob Kontaminationen der ungestörten Seesedimente in entlegenen Regionen geochemischen Ursprungs sind oder von Luftmassen aus anderen Regionen herangetragen wurden. Ein Teil dieser Seesedimente wurde dem Department Analytik, Abteilung Umweltradioaktivität zur Altersbestimmung mittels radioanalytischer Methoden ( $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ ) zur Verfügung gestellt und konnte in dieser Arbeit untersucht werden. Dabei handelt es sich um Proben eines Sedimentkernes aus Zentralchile aus dem Laja River Basin (Región del Biobio, Laguna del Laja, Abb. 72) und um Proben eines Sedimentkernes aus Argentinien (Patagonien, Provinz Neuquen, Lago Caviahue, Abb. 72). Für die Arbeit war in diesem Zusammenhang von Interesse zu untersuchen, ob und in welchem Umfang auch natürliche Heiße Teilchen in den Seesedimenten gefunden werden können und ob aus dem Auftreten und der Analyse dieser Heißen Teilchen möglicherweise Aussagen zur Herkunft der anderen Kontaminanten gewonnen werden können.

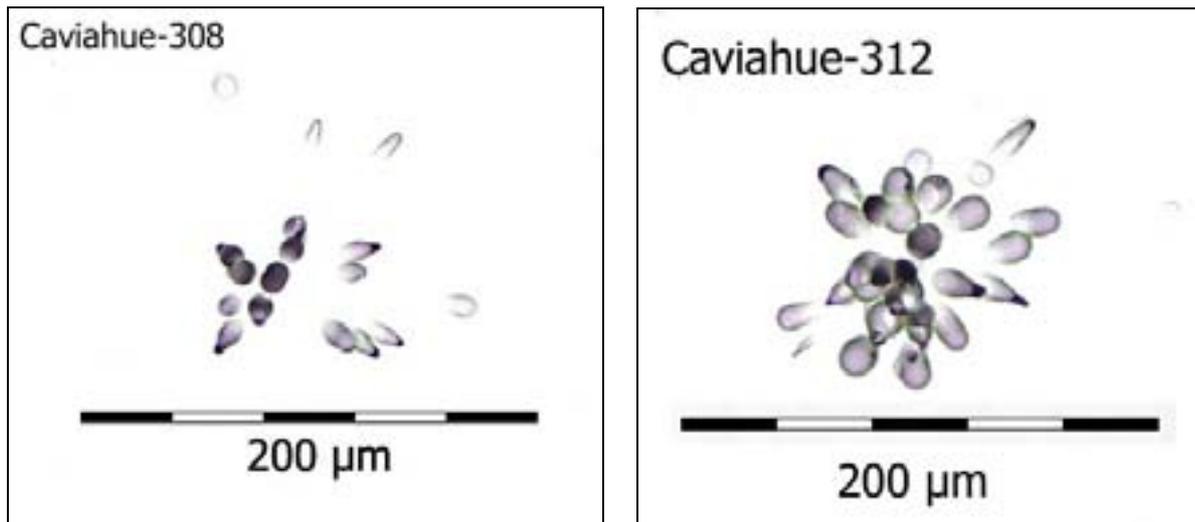
#### *Ergebnisse der lichtmikroskopischen Untersuchungen*

Einen Überblick über die Ergebnisse der lichtmikroskopischen Untersuchungen und Expositionsbedingungen gibt die Tabelle im Anhang N.

Der Gehalt an natürlichen Heißen Teilchen in den Seesedimenten aus Südamerika ist sehr gering. Die Zahl von Sternspurmustern (Heiße Teilchen-Spuren) auf dem Detektor pro  $\text{cm}^2$

liegt generell deutlich unter 1, wobei häufig nur ein Sternspurmuster (= 0,04 Sternspurmuster pro  $\text{cm}^2$ ) auf dem gesamten Detektor gefunden wurde. Der höchste Gehalt an natürlichen Heißen Teilchen (12 Sternspurmuster) wurde bei Probe 312 (Caviahue, 315-316 cm) gefunden. In 8 der 21 exponierten Proben konnten gar keine natürlichen Heißen Teilchen nachgewiesen werden. Die Expositionszeit lag bei einheitlich 8 Wochen. Die Sternspurmuster der Seesedimente sind im Allgemeinen klein, haben geringe Spurdichten und sind häufig asymmetrisch (Abb. 73). Die Spurdichte von Alphapartikeln auf dem Detektor (Background) ist gering. Cluster treten nicht auf.

Wegen der geringen Anzahl und Größe von Sternspurmustern bei den untersuchten Seesedimenten von Südamerika wurden die Proben nicht mit dem Elektronenmikroskop untersucht.



**Abb. 73** Charakteristische Sternspurmuster der Sedimentproben von Caviahue 1 (Expositionsnummern 308 und 312). Trotz einer langen Expositionszeit von 8 Wochen weisen die Sternspurmuster geringe Spurdichten auf. Das Sternspurmuster im linken Bild ist asymmetrisch ausgebildet. Größere Sternspurmuster als die hier dargestellten, kommen in den untersuchten Proben nicht vor.

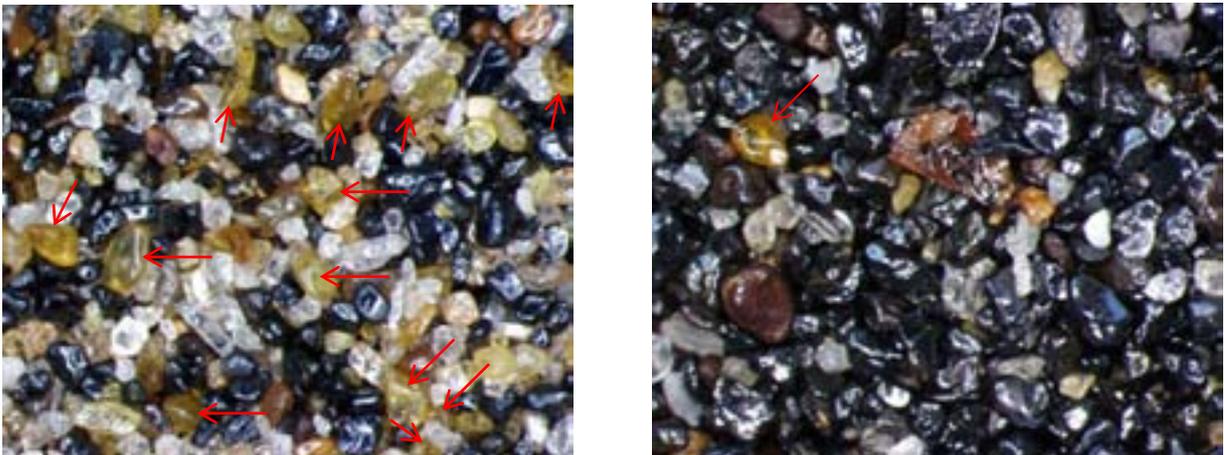
#### 4.1.2.8 Monazitsande von Brasilien

Es gibt weltweit eine Anzahl von Gebieten mit hoher natürlicher Radioaktivität. Dazu zählt auch ein mehr als 500 km langer Küstenstreifen in Brasilien (Bundesstaaten Espírito Santo und Rio de Janeiro) mit monazithaltigen Strandseifen (COELHO et al. 2005). Monazit ( $\text{CePO}_4$ ) ist ein akzessorischer Bestandteil vieler Granite, Syenite und Gneise. Er enthält bis zu 70 % Seltene Erden wie Ce, Gd, La, Nd, Pr und Sm. Ursache für die Radioaktivität des Monazits sind seine nennenswerten Thoriumgehalte (bis 12 %). In geringen Mengen kann er auch Uran führen. Neben dem radioaktiven Monazit finden sich in den Strandseifen Brasiliens vor allem Hämatit, Magnetit, Ilmenit, Rutil, Zirkon und Korund. Die Minerale stammen von präkambrischen kristallinen Gesteinen eines küstenparallelen Gebirgszuges. Der Verwitterungsschutt dieses Gebirges wurde durch Meeresströmungen und Brandung aufgearbeitet und die detritalen, d.h. schweren, chemisch und mechanisch stabilen und verwitterungsbeständigen Minerale wurden in den Strandsanden angereichert. Eine weite Verbreitung haben solche monazithaltigen Strandsande im Gebiet von Guarapari (Abb. 74). Guarapari liegt südlich von Vitória, der Hauptstadt des Bundeslandes Espírito Santo und ist das größte Touristenzentrum des Bundeslandes. Wegen des Monazitgehaltes der Strandsande ist die externe Strahlung in Guarapari bis zu 10 Mal höher als die natürliche Untergrundstrahlung in Rio de Janeiro, in manchen Bereichen erreichen die Werte das 20-30fache der normalen Untergrundstrahlung (PASCHOA &

GODOY 2002). Wegen der angeblich gesundheitsfördernden Wirkung lassen sich Strandbesucher gern in die radioaktiven Sande eingraben.



**Abb. 74** Brasilien mit Bundesstaaten. Fundort der monazithaltigen Strandsande ist der Küstenabschnitt bei Guarapari im Bundesstaat Espírito Santo.

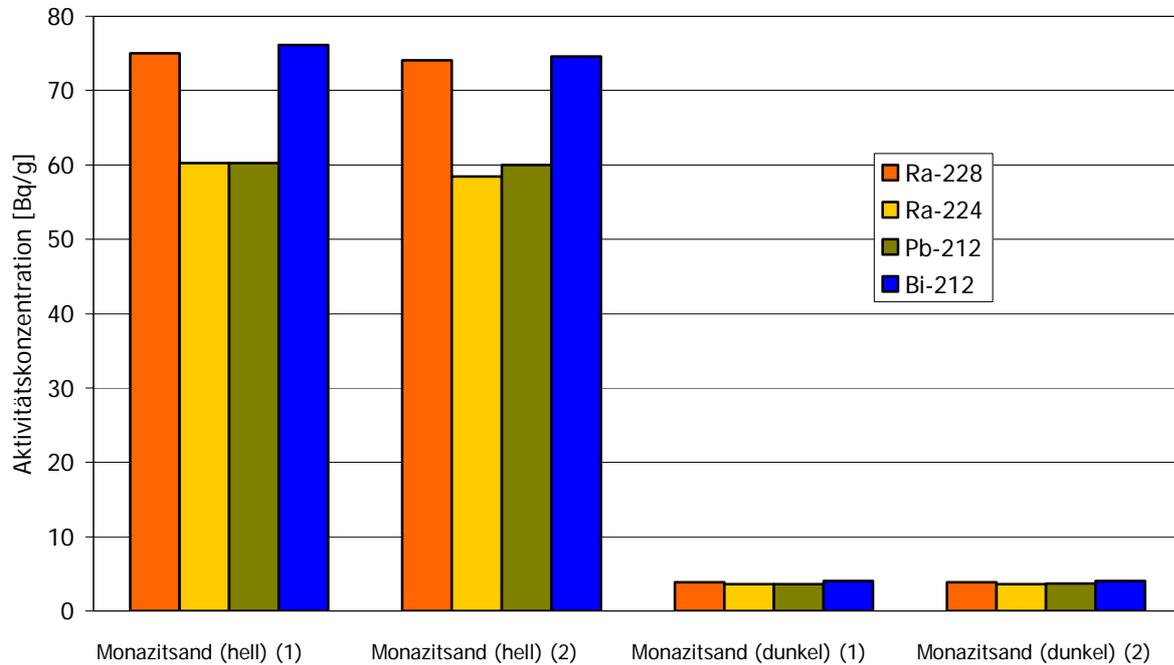


**Abb. 75** Heller (linkes Bild) und dunkler (rechtes Bild) Monazitsand. Der helle Monazitsand enthält deutlich mehr Monazitkörner (rote Pfeile) als der dunkle, mehr Quarz (weiße Kristalle) und weniger Eisenoxide (schwarz, Metallglanz). Lichtmikroskop-Aufnahme, Auflicht. Bildbreite je 4 mm.

Die in der vorliegenden Arbeit untersuchten Proben stammen von Stränden um Guarapari. Es handelt sich dabei um 2 verschiedene Strandseifen, im Folgenden als heller und dunkler Monazitsand bezeichnet. Der helle Monazitsand enthält neben abgerollten, gelblich-braunen Monazitkörnern hauptsächlich Quarz, Zirkone und Silikate (Abb. 75, linkes Bild). Der dunkle Monazitsand hingegen ist reich an Eisenoxiden (Hämatit- $\text{Fe}_2\text{O}_3$ , Magnetit- $\text{Fe}_3\text{O}_4$ ), Ilmenit- $\text{FeTiO}_3$  und Rutil- $\text{TiO}_2$  (Abb. 75, rechtes Bild). Er ist stark magnetisch und enthält weniger

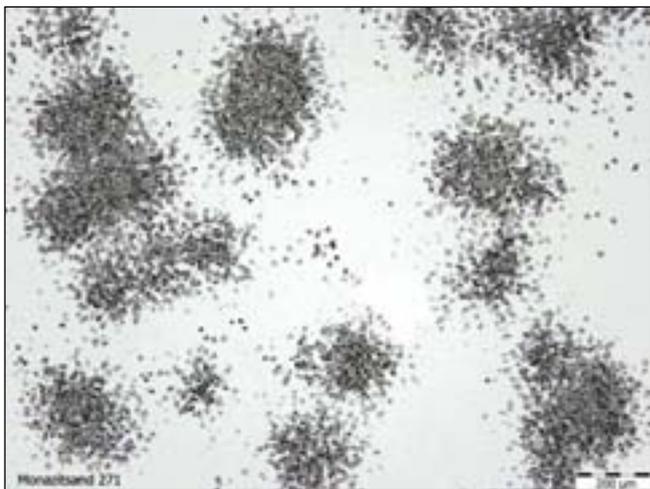
Monazit als der helle Monazitsand. Dies kommt auch in den Werten der gamma-spektrometrischen Analyse zum Ausdruck (Abb. 76).

Mit der Untersuchung der Monazite sollte die Verteilung der Radioaktivität (homogen oder diskret in Form natürlicher Heißer Teilchen) geprüft werden.



**Abb. 76** Aktivitätskonzentrationen (Thoriumreihe) der untersuchten Monazitsande (es wurden je zwei Proben analysiert). Wegen seines höheren Gehaltes an Monazitkörnchen enthält der helle Monazitsand deutlich mehr Thorium als der dunkle Monazitsand. Analytik: Dr. H.C. Treutler, UFZ, Department Analytik.

### *Ergebnisse der lichtmikroskopischen Untersuchungen*



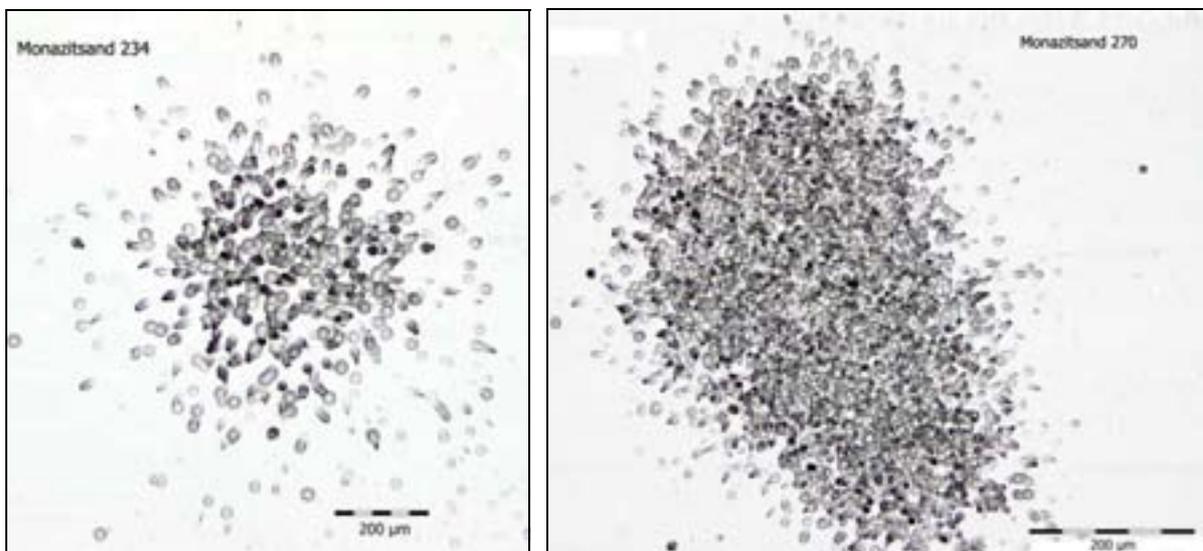
**Abb. 77** Autoradiogramm eines hellen Monazitsandes. Die Alphaspuren sind in Clustern konzentriert. Jedes dieser Cluster zeichnet Form und Größe eines Monazitkörnchens nach.

Einen Überblick über die Ergebnisse der lichtmikroskopischen Untersuchungen und Expositionsbedingungen gibt die Tabelle im Anhang O. Auf keinem der auf den Monazitsand-Proben exponierten Detektoren finden sich Sternspurmuster (Heiße Teilchen-Spuren). Jedoch ist die Spurdichte von Alphapartikeln sehr hoch (Abb. 77). Die Spuren sind ausschließlich in Clustern konzentriert, die z.T. Sternspurmustern ähneln, ohne jedoch deren charakteristische sternförmige Ausbildung mit einer gut entwickelten Zentralregion zu zeigen (Abb. 78). Jedes dieser Clusterspurmuster liegt über einem Monazitkörnchen und zeichnet dessen Größe und Form nach (Abb. 79). Bei den hellen Monazitsanden erzeugt der hohe Gehalt an

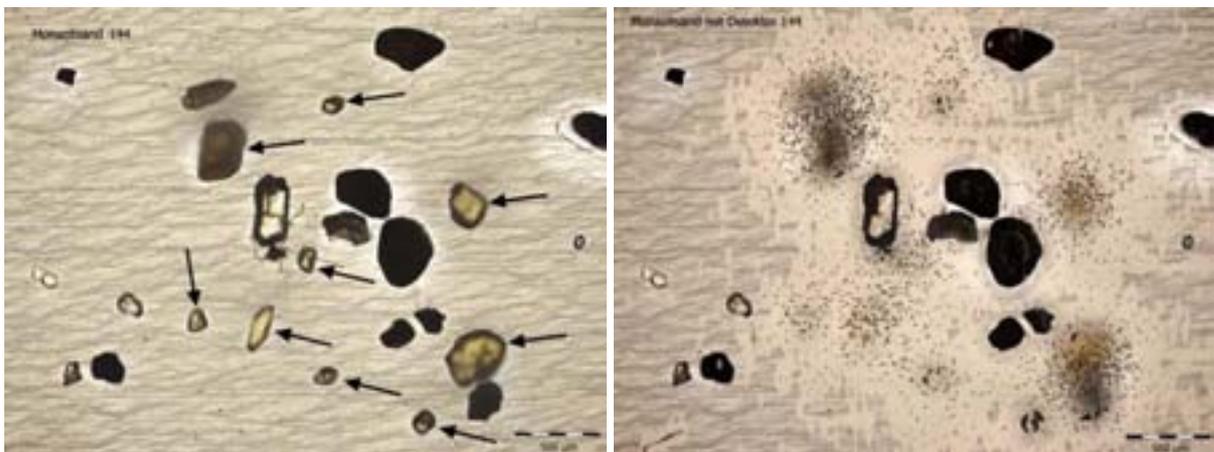
Monazitkörnchen in sehr kurzen Expositionszeiten (2-3 Tage) auf dem Detektor eine Fülle an Clusterspurmustern (Abb. 77). Da der dunkle Monazitsand weniger Monazitkörnchen enthält,

ist die Anzahl von Clusterspurmustern auf dem Detektor deutlich geringer. Die Expositionszeiten lagen zwischen 2 und 10 Tagen.

In vielen der für diese Arbeit untersuchten Proben (vgl. Kap. 4.1.1.7, 4.1.2.2, 4.1.2.5, 4.1.2.6) wurde Monazit als natürliches Heißes Teilchen und Verursacher der Sternspurmuster identifiziert. Daher war es einigermaßen überraschend, dass die Monazitsande von Brasilien – trotz der bekanntermaßen hohen Radioaktivität - keine diskrete Komponente aufwiesen, sondern die Radioaktivität in den Monazitkörnchen offensichtlich homogen verteilt ist. Möglicherweise lässt sich dies mit der Herkunft der Monazite und dem vorherrschenden Thoriumangebot bei ihrer Bildung erklären. Offensichtlich bewirkten hohen Thoriumkonzentrationen, dass Thorium im gesamten Monazitkristall homogen verteilt wurde. Es stand ausreichend Thorium zur Verfügung, um alle möglichen Gitterplätze des Kristalls besetzen zu können. Bei geringerem Thoriumangebot wird Thorium dementsprechend nur in ganz bestimmte Gitterplätze eingebaut, von denen allein die Alphapartikel emittiert werden und Sternspurmuster (Heiße Teilchen-Spuren) erzeugen.



**Abb. 78** Beispiele für typische Clusterspurmuster auf den Autoradiogrammen der Monazitsand-Proben. Das Clusterspurmuster im linken Bild ähnelt stark einer Heißen Teilchen-Spur, jedoch fehlen - wie auch bei dem Spurmuster im rechten Bild - die gut entwickelte Zentralregion und die radiale Ausrichtung der Spuren von einem Zentrum aus. Die Spurmuster zeichnen jeweils ein Monazitkörnchen nach.

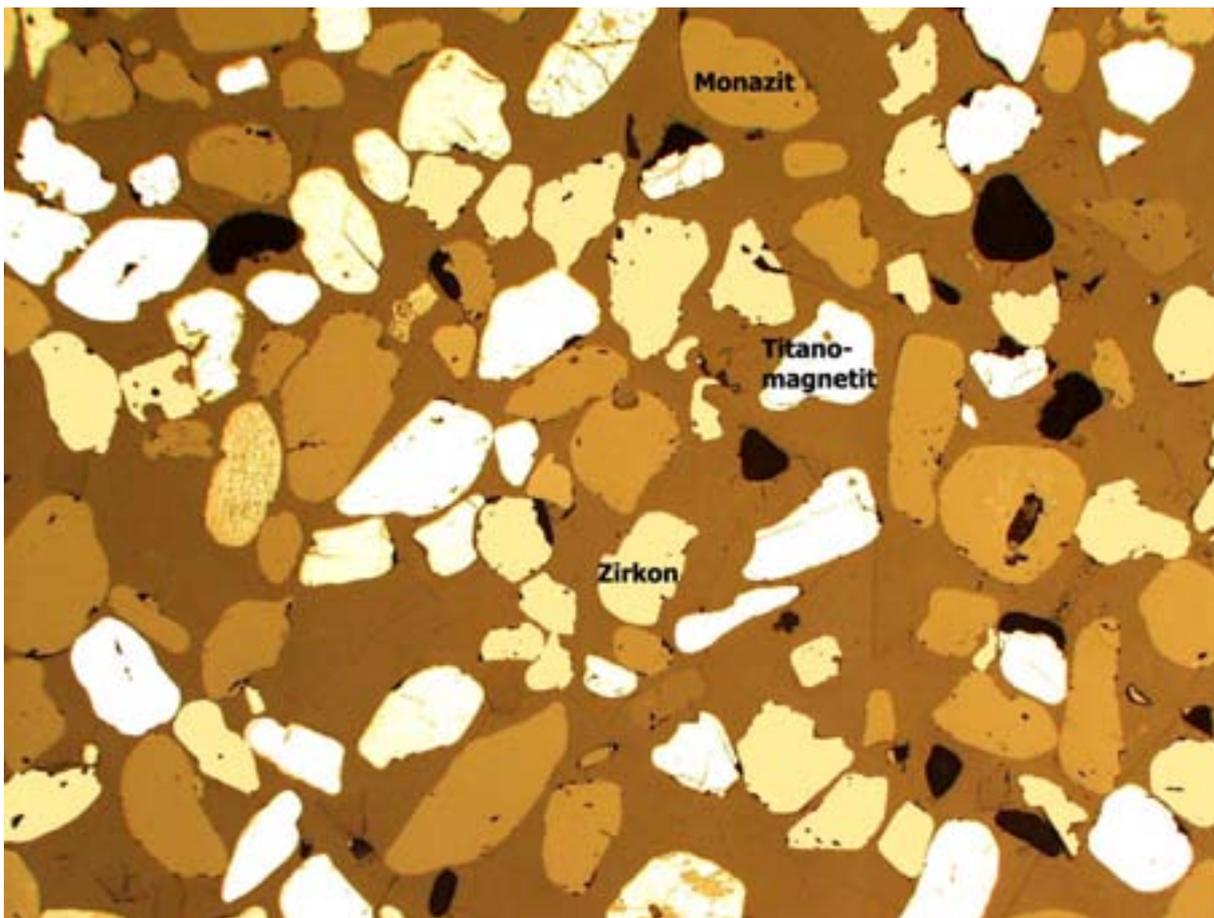


**Abb. 79** Auf Klebeband fixierte Sedimentkörner (Probe 144) des hellen Monazitsandes (linkes Bild; gelbliche Körner=Monazit, schwarze Pfeile; schwarze Körner=Ilmenit/Titanomagnetit; helles Korn Bildmitte=Zirkon; kleine helle Körnchen=Quarz). Im rechten Bild wurde der exponierte und geätzte Festkörperspurdetektor auf der Probe korreliert. Bei den auf dem (durchsichtigen) Detektor erkennbaren Punktwolken handelt es sich um Spuren von Alphapartikeln (Clusterspurmuster), die sich nur über den Monazitkörnchen gebildet haben, während über den anderen Körnchen keinerlei Spuren zu finden sind. Lichtmikroskopische Aufnahme.

Um auszuschließen, dass die beobachtete homogene Verteilung der Radioaktivität in den Monazitkörnern, die sich in den Clusterspurmustern auf dem Detektor widerspiegelt, nur eine Frage der Überlagerung von Alphaspuren ist, wurde ein Teil des Probenmaterials gemahlen und erneut detektiert (Proben 470-473, Tabelle Anhang O). Die Vermutung war, dass durch die Zerkleinerung der Monazitkörner die im Kristall existierenden, diskreten Alphaemissionsquellen separiert und dadurch natürliche Heiße Teilchen "produziert" werden können. Die Autoradiogramme zeigen jedoch die gleichen Clusterspurmuster (Abb. 77, 78) wie die unvermahlenden Proben. Es konnten keine Sternspurmuster und somit keine Hinweise für die Existenz einer diskreten Radioaktivitätsverteilung in den Monazitkörnern beobachtet werden.

### *Ergebnisse der elektronenmikroskopischen Untersuchungen*

Es wurde eine Probe (Nr. 234, heller Monazitsand) unter der Elektronenstrahlmikrosonde untersucht. Erwartungsgemäß sind die Monazitkörner aufgrund ihres hohen Thoriumgehaltes die starken Alphastrahler in den Proben. Sie bestehen neben Th aus den Seltene Erden-Elementen Ce, La, Nd, Y sowie Ca, P. Außer Monazit wurden Zirkon (Zr, Si, Hf) und Ilmenit bzw. Titanomagnetit (Fe, Ti, Mg) detektiert, die allerdings keine Radionuklide enthalten (Abb. 80).



**Abb. 80** Lichtmikroskopische Aufnahme der mit der Elektronenstrahlmikrosonde untersuchten Probenoberfläche (Monazitsand hell, Probe 234, eingebettet) mit Angabe der analysierten Minerale. Bildbreite ca. 2,5 mm. Die bräunlichen Farben sind auf einen Farbfilter im Mikroskop zurückzuführen. Die gleichmäßig braune Farbe im Hintergrund ist das Einbettungsmittel (Epoxydharz).

#### 4.1.2.9 Zirkone von Bornholm

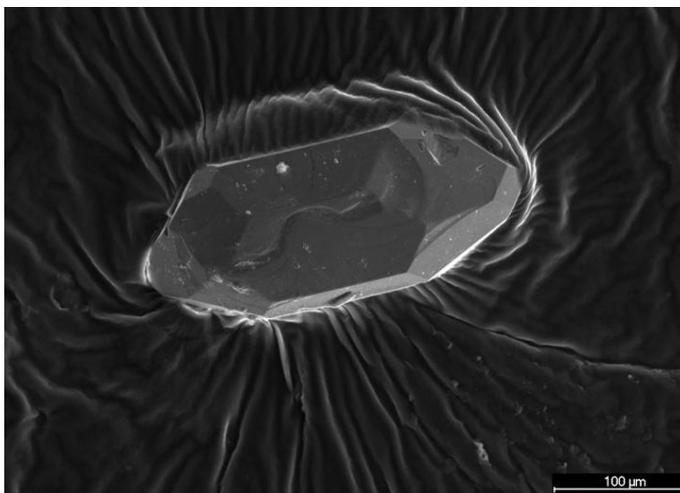
Die untersuchten Zirkone stammen aus einem fein- bis mittelsandigen Aschetuff, der in



**Abb. 81** Die Ostseeinsel Bornholm mit Angaben zum Fundpunkt der Proben. Nach BÖHNKE & KATZUNG (2001), verändert.

Strandgeröllen an der Südostküste der dänischen Insel Bornholm vorkommt (Abb. 81). Die Tuffgerölle stammen von einem submarinen Aufschluss mit silurischen Gesteinen direkt vor der Küste zwischen Stenodde und Sommerodde

(BÖHNKE & Katzung 2001). Wegen ihres Uran- und/oder Thoriumgehaltes sind Zirkone ( $ZrSiO_4$ ) radioaktiv. Sie sind die Hauptträger natürlicher Radioaktivität in Gesteinen. Durch die Untersuchungen im Rahmen dieser Arbeit sollte geprüft werden, wie die Radioaktivität in den Zirkonkristallen verteilt ist (homogen oder diskret). Es wurden 6 Zirkonkristalle (Abb. 82) aus den Aschetuffen separiert, auf einem Klebeband fixiert und exponiert.



**Abb. 82** Typischer euhedrales Zirkonkristall aus den silurischen Aschetuffen von Bornholm. Rasterelektronenmikroskop-Aufnahme.

#### *Ergebnisse der lichtmikroskopischen Untersuchungen*

Einen Überblick über die Ergebnisse der lichtmikroskopischen Untersuchungen und Expositionsbedingungen gibt die Tabelle im Anhang P. Über 3 Zirkonen fanden sich auf dem Detektor Sternspurmuster (Heiße Teilchen-Spuren). Bei drei Zirkonkristallen wurden keine Spuren gefunden. Das kann damit zusammenhängen, dass diese Zirkone kein Thorium oder Uran enthalten oder diese sehr fest im Gitter eingeschlossen sind, so dass die Alphapartikel nicht entweichen können. Zirkon enthält ein breites Spektrum an Begleitelementen wie Hf, Y, Ce, P, Nb, Th, Al, U, Ca und Fe, die jedoch in unterschiedlicher Menge und meist nicht alle gleichzeitig vertreten sind. Eine Elektronenmikroskop-Untersuchung fand nicht statt.

#### 4.1.2.10 Autunit (Uranphosphatglimmer)

Autunit gehört zu den sekundären Uranmineralen. Er hat die chemische Formel  $\text{Ca}(\text{UO}_2)_2(\text{PO}_4)_2 \cdot 10\text{-}12\text{H}_2\text{O}$ . Ursprungsmineral ist häufig Uraninit. Korrodiert dieses, werden gelbe Uranyl(VI)verbindungen gebildet. Bei Anwesenheit von Phosphat werden dann z.B. sehr unlösliche Orthophosphatverbindungen von hexavalentem Uran wie der Autunit gebildet. Er wird auch als Uranglimmer bezeichnet. Der schwefelgelbe bis zeisiggrüne Autunit (Abb. 83) hat einen dünnblättrigen Habitus und ist häufig in dünnen Belägen auf Klüften zu finden. Er ist ein verbreitetes Uranmineral in Graniten, z.B. im Sächsischen Vogtland und Erzgebirge.



**Abb. 83** Autunitkristalle aus dem Steinbruch Bergen bei Falkenstein im Vogtland (Deutschland). Bildbreite: 8 cm (großes Foto); 1cm (kleines Fotos, Aufnahme mit dem Lichtmikroskop).

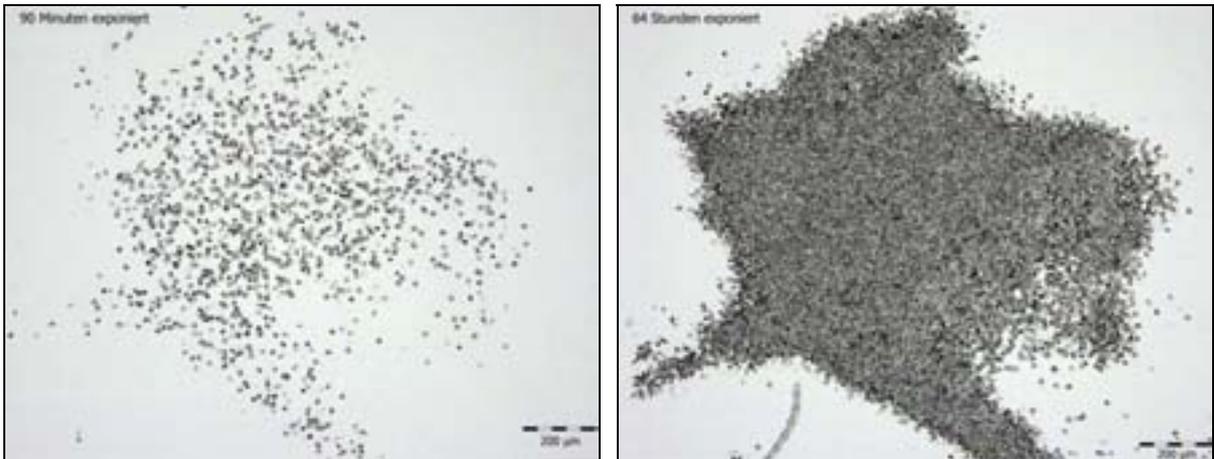
Die untersuchten Autunitkristalle stammen von Kluftbelägen aus dem Erzgebirge und aus dem Vogtland (Steinbruch Bergen). Dabei repräsentieren die Proben mit den Expositionsnummern 259-264 und 406-413 nicht verschiedene Proben, sondern die Autunitkristalle beider Herkunftsgebiete wurden jeweils unterschiedlich lange exponiert. Mit der Untersuchung der Autunite sollte die Verteilung der Radioaktivität im Kristall (homogen oder diskret) geprüft werden.

#### *Ergebnisse der lichtmikroskopischen Untersuchungen*

Einen Überblick über die Ergebnisse der lichtmikroskopischen Untersuchungen und Expositionsbedingungen gibt die Tabelle im Anhang Q.

Bei keiner der Proben konnten auf dem Detektor natürliche Heiße Teilchen (Sternspurmuster) gefunden werden. Die Spuren von Alphapartikeln sind homogen über die exponierte Detektorfläche verteilt. Trotz der kurzen Expositionszeiten (5 Minuten bis max. 4 Tage) ist die Spurdichte von Alphapartikeln auf dem Detektor hoch bis sehr hoch. Bei den länger exponier-

ten Proben (16 Stunden bis 4 Tage) ist die Spurdichte so hoch, dass sich die Spuren der Alpha-partikel überlagern und Einzelspuren kaum mehr erkennbar sind (Abb. 84).

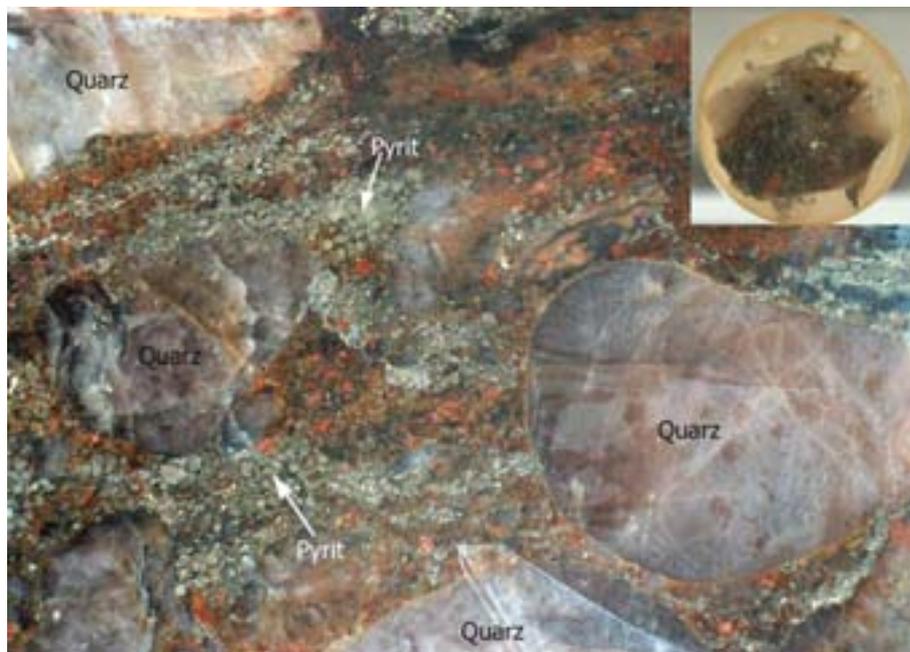


**Abb. 84** Autoradiogramme eines Autunitkristalls aus dem Steinbruch Bergen nach einer Expositionszeit von 90 Minuten (linkes Bild) und nach 64 Stunden (rechtes Bild). Sternspurmuster treten nicht auf, die Spuren sind homogen verteilt. Das Spurmuster zeichnet die Form des exponierten Autunitkristalls nach. Die Spurdichte von Alphapartikeln (Background) ist bei der länger exponierten Probe deutlich höher.

Die Proben wurden nicht mit dem Elektronenmikroskop untersucht. Versuche mit aufgelösten und wieder auskristallisierten Autunitkristallen sind in Kap. 4.2 beschrieben.

#### 4.1.2.11 Uranhaltiges Konglomerat der Blind River-Formation, Canada

Bei dieser Probe handelt es sich um frühproterozoische, ca. 2,4 Mrd. Jahre alte, Quarzgeröll-Konglomerate mit Pyrit und Uranmineralen (Abb. 85).



**Abb. 85** Anschliff eines Blind River-Konglomerates (großes Bild, Bildbreite 9 cm). Deutlich erkennbar sind die großen Quarzgerölle. Das Bindemittel des Konglomerates ist reich an Pyrit (grünlich-graue Körnchen). Die Uranminerale sind häufig mit den Pyriten assoziiert. Das kleine Bild zeigt eine in Epoxydharz eingebettete und polierte Rundprobe des Blind River-Konglomerates, wie sie für die Expositionen und nachfolgende elektronenmikroskopische Untersuchungen verwendet wurde.

Häufige Uranminerale in den Konglomeraten sind Uraninit ( $\text{UO}_2$ ), Uranothorit  $[(\text{Th}, \text{U})\text{SiO}_4]$  und Brannerit ( $\text{UTi}_2\text{O}_6$ ). Das Vorkommen der Blind River-Konglomerate liegt im Lake Elliot-Gebiet am Nordufer des Lake Huron in Ontario, Canada (Abb. 86). Das Uran wurde hier abgebaut und verarbeitet.

Mit der Untersuchung der radioaktiven Konglomerate sollte die Verteilung der Radioaktivität (Vorkommen von natürlichen Heißen Teilchen) geprüft werden.



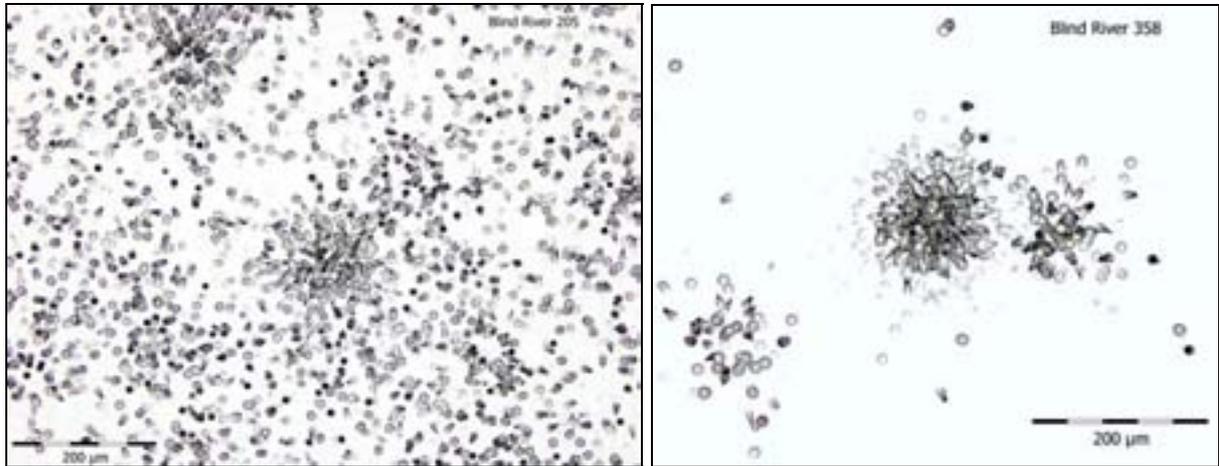
Abb. 86 Canada mit Lage des Lake Elliot Districts am Nordufer des Huronsees.

### *Ergebnisse der lichtmikroskopischen Untersuchungen*

Einen Überblick über die Ergebnisse der lichtmikroskopischen Untersuchungen und Expositionsbedingungen gibt die Tabelle im Anhang R 1.

Die exponierten Konglomerat-Proben sind reich an natürlichen Heißen Teilchen. Bei Expositionszeiten zwischen 3 und 30 Tagen fanden sich auf den Festkörperspurdetektoren zwischen 67 und 138 Sternspurmuster pro  $\text{cm}^2$ . Auch die Spurdichte von Alphapartikeln (Background) auf dem Detektor ist überwiegend hoch bis sehr hoch (Abb. 87). In allen Proben kommen zahlreiche Clusterspurmuster vor. In den gemahlene Proben (Nr. 170, 205, 232) sind die Spurmuster relativ homogen über den Detektor verteilt. Dies ist bei Probe 358, wo ein Gesteinsstück exponiert wurde (Abb. 85, kleines Bild), nicht der Fall. Die inhomogene Verteilung

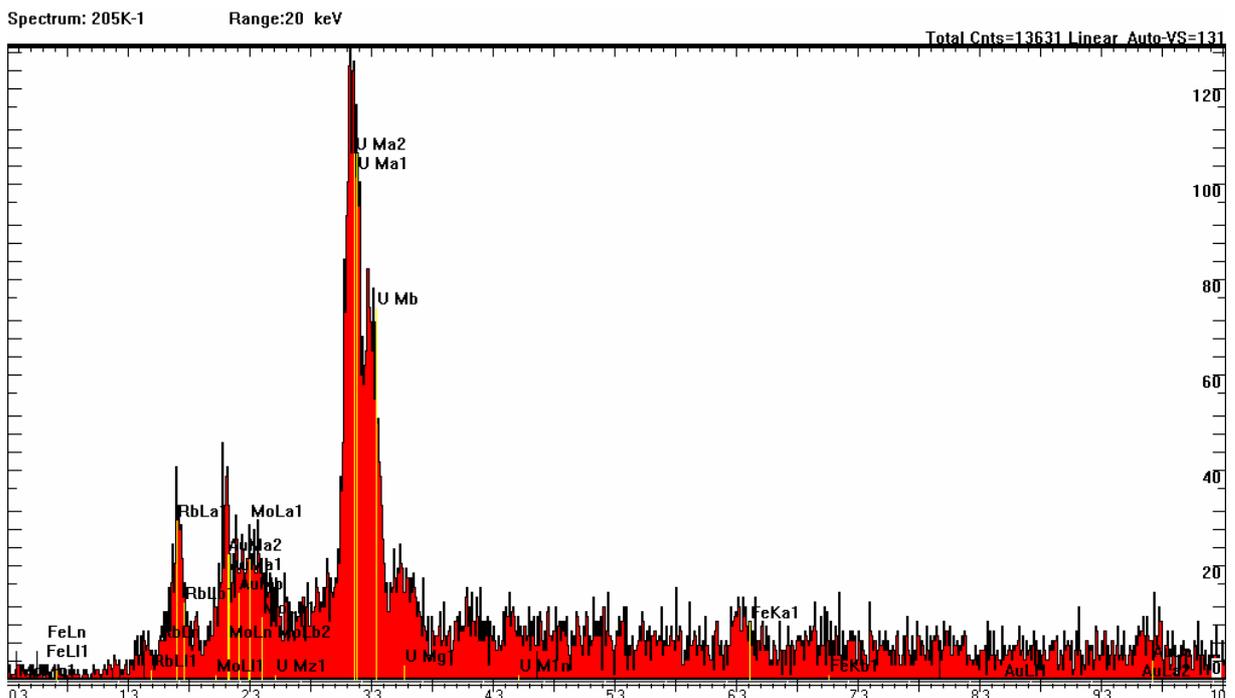
lung der Spurmuster ist hier offensichtlich an die Gesteinsstruktur gebunden und steht mit Urananreicherungen in den pyritreichen Intergranularräumen der Gesteinsprobe in Zusammenhang. Durch die Aufmahlung der Konglomerate werden die Radioaktivitätsträger gleichmäßig in der Probe verteilt. Die Sternspurmuster der Blind River-Konglomerate sind meist sehr symmetrisch und weisen hohe Spurdichten auf (Abb. 87).



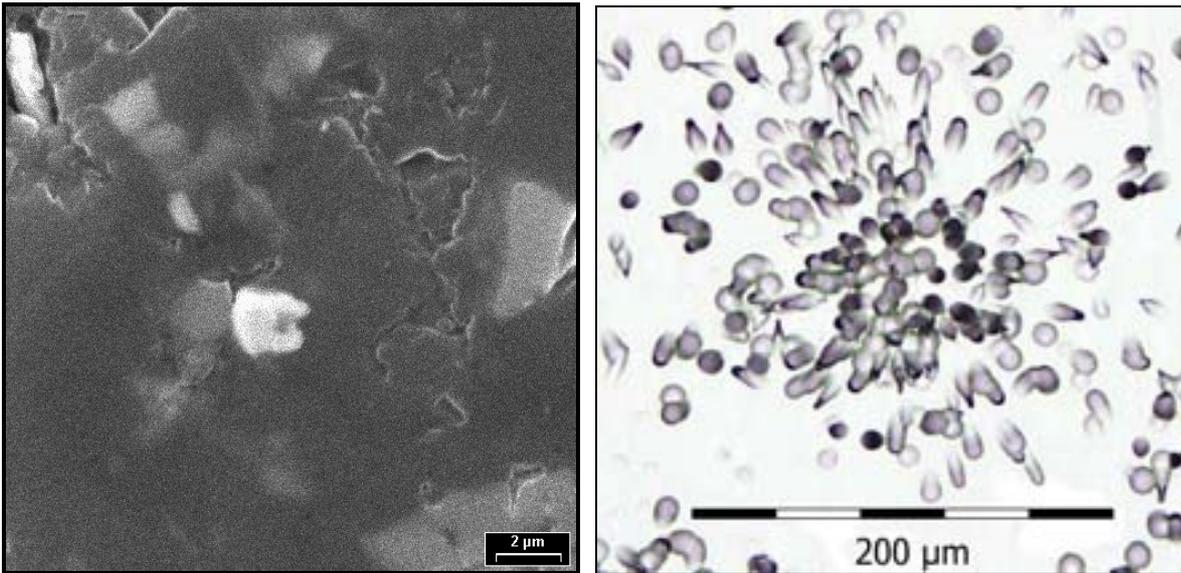
**Abb. 87** Autoradiogramme der Blind River-Proben 205 und 358 mit charakteristischen Sternspurmustern, Clusterspurmustern und Backgroundspurmustern. Bei Probe 205 (linkes Bild) ist die Spurdichte von Alphateilchen (Backgroundspurmuster) sehr hoch. Hier finden sich mehr als 60 000 Spuren von Alphateilchen pro  $\text{cm}^2$ . Auf dem Autoradiogramm der Probe 358 (rechtes Bild) konzentrieren sich die Spuren entsprechend dem Vorkommen der Radioaktivitätsträger im unvermahlenden Gestein auf bestimmte Bereiche. In der Bildmitte sind hier zwei Sternspurmuster zu erkennen. Am linken unteren Bildrand findet sich ein Clusterspurmuster.

### *Ergebnisse der elektronenmikroskopischen Untersuchungen*

Die Ergebnisse dieser Untersuchungen sind tabellarisch im Anhang R 2 dargestellt. Es wurde eine Konglomerat-Probe (Nr. 205) unter dem Elektronenmikroskop untersucht.



**Abb. 88a** EDX-Spektrum eines natürlichen Heißen Teilchens der Blind River-Konglomeratprobe 205 k mit einem deutlichen Uranpeak. Mo, Au, Rb und Fe kommen aus der Umgebung des Partikels.



**Abb. 88b** REM-Aufnahme (weißes Korn, Bildmitte) und Spurmuster des natürlichen Heißen Teilchens aus der Blind River-Konglomeratprobe 205 k. Es handelt sich um ein ca. 2 µm großes Uraninitkörnchen. Das zugehörige Spurmuster zeigt eine hohe Spurdichte.

In allen markierten Bereichen (17) auf der Oberfläche der Konglomerat-Probe wurden alpha-emittierende Partikel (natürliche Heiße Teilchen) gefunden. Dabei handelt es sich immer um Einzelkörner mit Korngrößen zwischen 2 und 9 µm, selten >10 µm, die aus Uran (Uraninit, Brannerit) mit verschiedenen Beimengungen, meist Blei, bestehen (Abb. 88, Tafeln 162-177). Wegen der geringen Korngröße der Alphaemitter ist anzunehmen, dass ein Teil dieser Beimengungen aus der Umgebung des detektierten Körnchens stammt und bei der Analyse vom Elektronenstrahl mit erfasst wurde.

#### 4.1.2.12 Uranhaltiger Granit von Menzenschwand

Die bedeutendste und größte Uranlagerstätte im Westen Deutschlands liegt bei Menzenschwand im Südschwarzwald (Krunkelbachtal bei St. Blasien, Abb. 89). Der hier anstehende variszische Granit (Bärhaldegranit) enthält Gänge mit Uranerzen (u.a. Pechblende). Die uranhaltigen Gänge können bis 1 m mächtig werden. Es handelt sich um eine hydrothermale Lagerstätte, die 1957 entdeckt wurde. Die Erze haben einen hohen Urangehalt von 0,7 % bis 1 %. Wegen zahlreicher Schwierigkeiten (Verfall der Uranpreise in den achtziger Jahren, außerordentlich hohe Radonwerte in der Grube, Kontamination umliegender Gewässer durch Grubenwässer, Versiegen von Trinkwasserquellen durch den Bergbau, Bürgerinitiativen und Klagen gegen den geplanten Abbau) wurde das Uranerz nie kommerziell abgebaut (DIEHL 1991). Es blieb beim Versuchsabbau. Das letzte Erz wurde 1991 aus der Grube geholt.



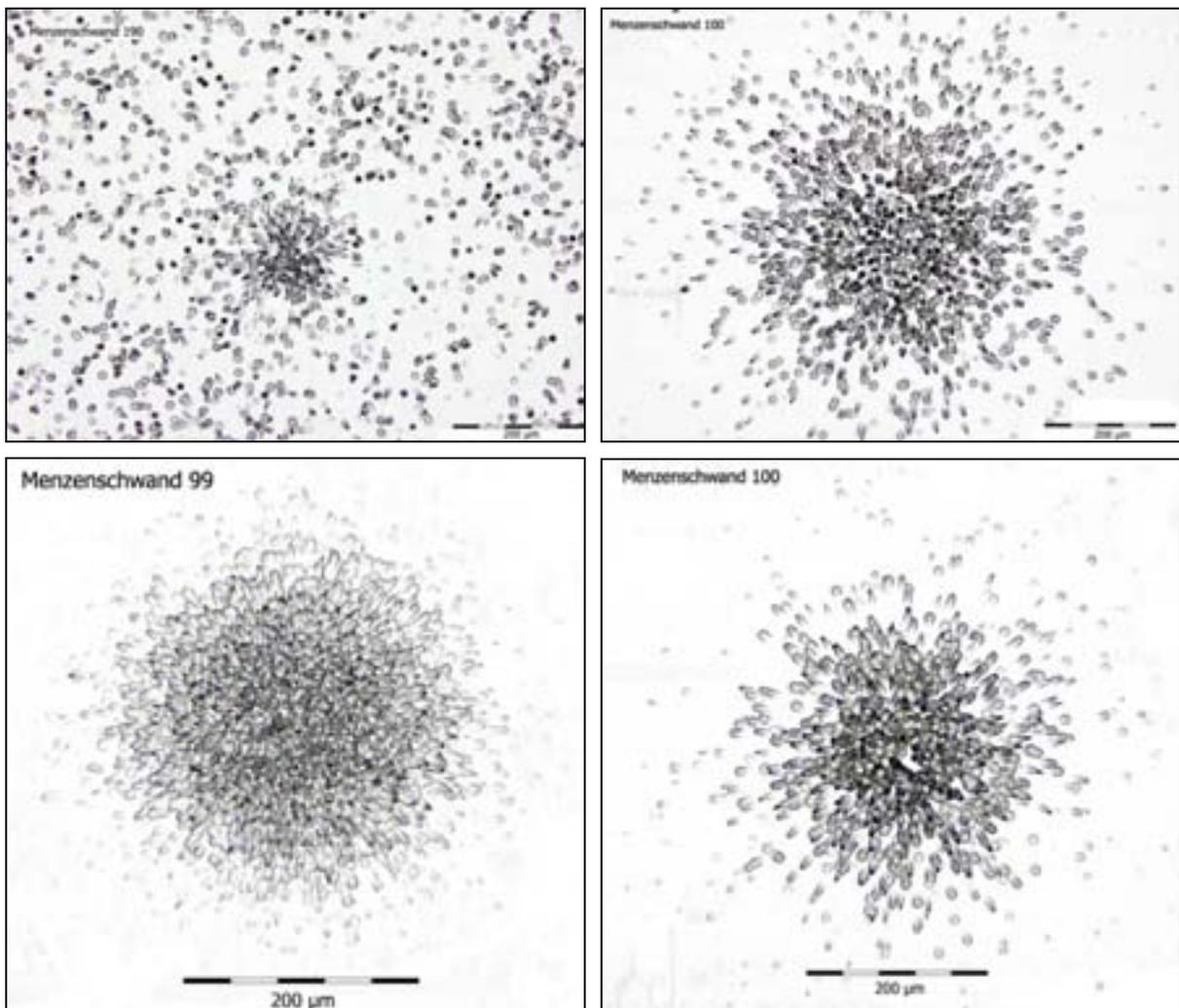
**Abb. 89** Deutschland mit Lage des Schwarzwaldes und der Ortschaft Menzenschwand.

Die Untersuchung der uranhaltigen Granite sollte zeigen, ob eine gleichmäßige Radioaktivitätskonzentration vorliegt oder diskrete Radioaktivitätsanreicherungen gefunden werden können (Vorkommen von natürlichen Heißen Teilchen).

### *Ergebnisse der lichtmikroskopischen Untersuchungen*

Einen Überblick über die Ergebnisse der lichtmikroskopischen Untersuchungen und Expositionsbedingungen gibt die Tabelle im Anhang S 1.

Alle exponierten Granitproben enthalten Heiße Teilchen. Die Spurdichte von Alphapartikeln (Background) ist mittel bis sehr hoch (Abb. 90). Die Spuren sind inhomogen über den Detektor verteilt, Spürhäufungen wechseln sich mit spurfreien Bereichen ab. Wegen der kleineren detektierten Oberfläche sind diese Inhomogenitäten bei den eingebetteten Proben weniger augenfällig. Bei den eingebetteten Proben kommen Clusterspurmuster vor, eventuell durch Agglomeration radioaktiver Partikel infolge der Einbettung. Die Zahl der Sternspurmuster (Heiße Teilchen-Spuren, Abb. 90) pro  $\text{cm}^2$  liegt bei Expositionszeiten von 6 und 7 Tagen zwischen 5 und 14. Bei einer Expositionszeit von 30 Tagen steigt die Zahl der Sternspurmuster pro  $\text{cm}^2$  auf 40.



**Abb. 90** Autoradiogramme typischer Sternspurmuster (Heiße Teilchen-Spuren) der Granitproben von Menzschwand. Die Sternspurmuster sind überwiegend sehr symmetrisch ausgebildet und haben trotz kurzer Expositionszeiten (6 Tage bei den Proben 99 und 100, 30 Tage bei Probe 190) eine hohe Spurdichte. Die Spurdichte des Backgroundspurmusters bei Probe 190 ist sehr hoch ( $> 50\,000$  Spuren pro  $\text{cm}^2$ ).

### ***Ergebnisse der elektronenmikroskopischen Untersuchungen***

Die Ergebnisse dieser Untersuchungen sind tabellarisch im Anhang S 2 dargestellt. Es wurde eine Granit-Probe von Menzenschwand (Nr. 190) unter dem Elektronenmikroskop untersucht. In 12 von 13 markierten Bereichen der Granit-Probe konnten alphaemittierende Radionuklide identifiziert werden, in den Markierungen b und l fanden sich je zwei Alphaemitter. Die untersuchte Probe enthält vorwiegend sekundär gebildete Uranverbindungen wie Bassetit, Uranocircit, Uramphit sowie die primären Uranminerale Coffinit und Uraninit. Bassetit, Uranocircit und Uramphit sind Uranylphosphate, auch als Uranglimmer bezeichnet. Sie gehören zur gleichen Gruppe wie Torbernit (Kupferuranglimmer) und Autunit (Kalkuranglimmer). Uranglimmer sind meist kleine dünn tafelige Kristalle oder Schuppen die als sekundäre Bildungen in den Oxidationszonen komplexer Uranlagerstätten vorkommen (RÖSLER 1984). Coffinit ist ein Uransilikat und kommt ebenfalls auf Uranlagerstätten vor. Uraninit (Uranpechblende) nimmt bei der Verwitterung viele Fremdelemente auf und bildet zahlreiche sekundäre Uranverbindungen (Hydroxide, Phosphate, Silikate). Die Probenergebnisse wurden nicht in Form von EDX-Spektren und REM-Bildern dokumentiert.

#### **4.1.2.13 Gesteinsproben verschiedener Regionen Sachsens**

Es wurden verschiedene Gesteinsproben aus dem sächsischen Raum auf ihren Gehalt an natürlichen Heißen Teilchen hin überprüft. Dabei wurden Gesteine ausgewählt, bei denen ein Gehalt an Radionukliden bekannt war oder typisch ist. Dazu gehören granitische Gesteine, Schiefer, Pechblende, phosphoritische Ablagerungen und uranhaltige Steinkohle.



**Abb. 91** Deutschland mit den Fundpunkten der untersuchten Gesteinsproben im Bundesland Sachsen.

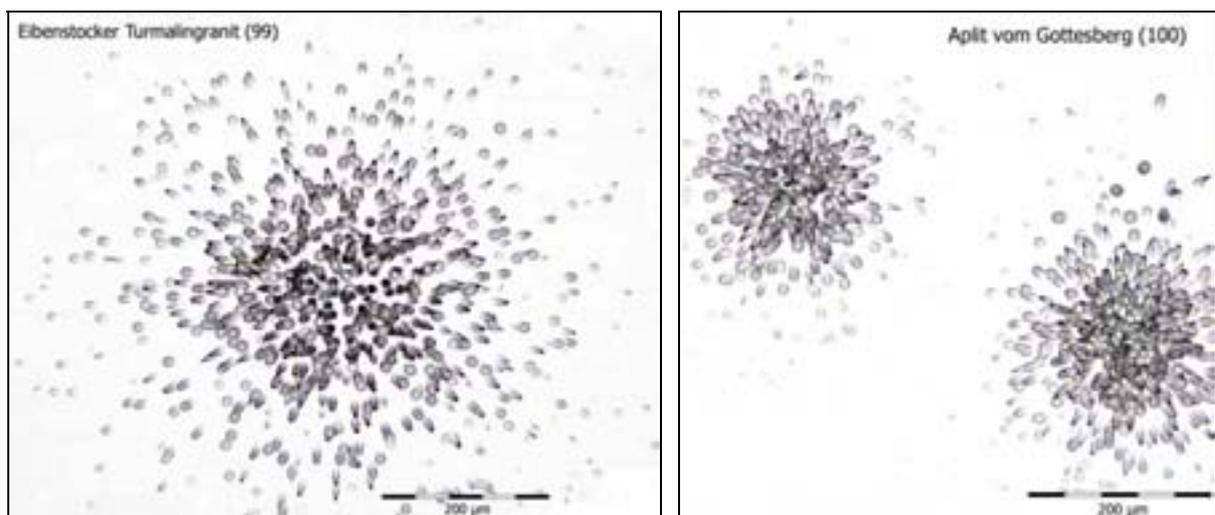
Die genaue Bezeichnung und Herkunft jeder Probe kann der Tabelle 12 am Beginn des Kapitels 4.1.2. oder der Tabelle im Anhang T entnommen werden.

### *Ergebnisse der lichtmikroskopischen Untersuchungen*

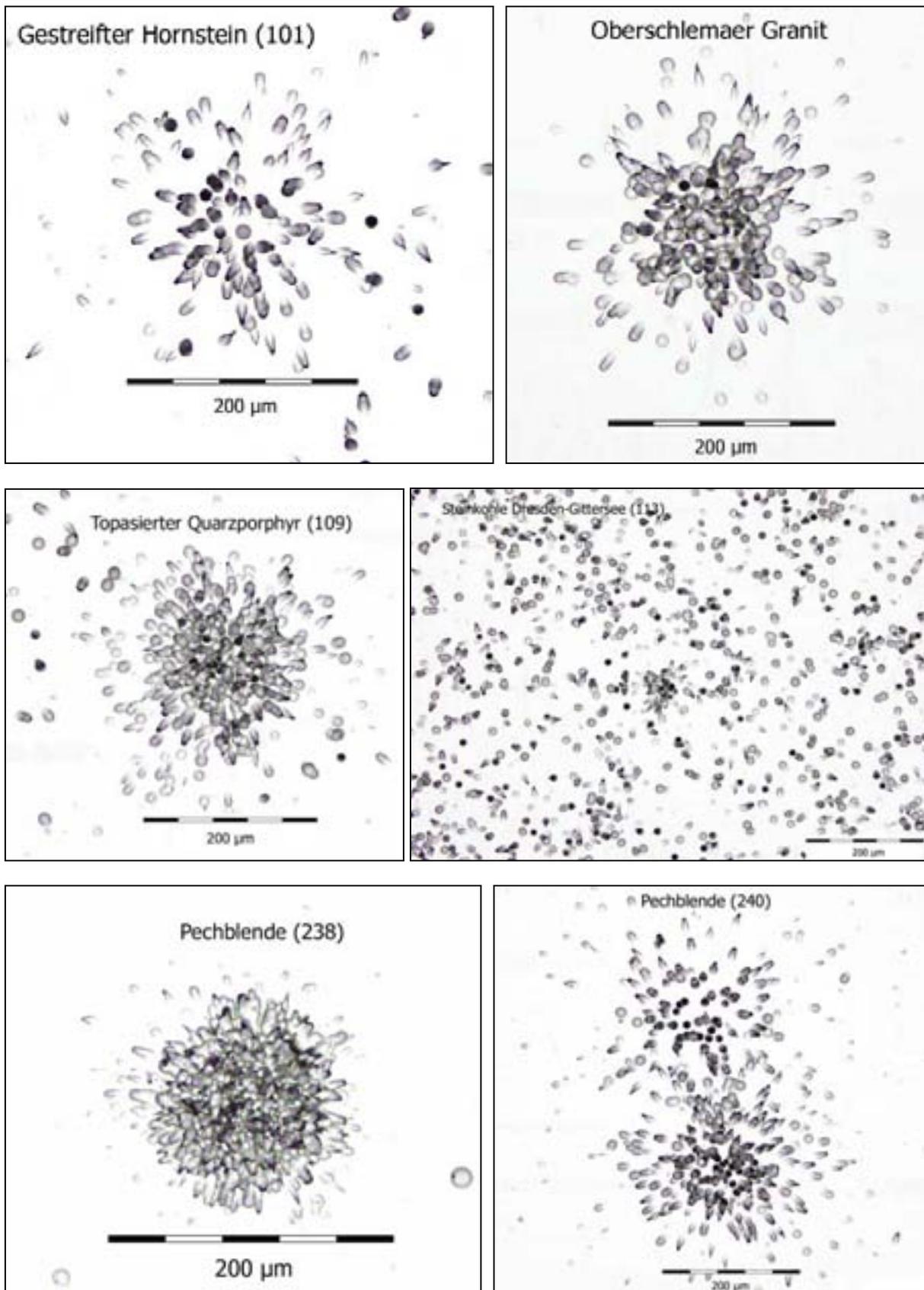
Einen Überblick über die Ergebnisse der lichtmikroskopischen Untersuchungen und Expositionsbedingungen gibt die Tabelle im Anhang T.

Mit Ausnahme des Pechblendegranites (Pr. 228 und 229) enthalten alle untersuchten Gesteinsproben diskrete Radioaktivitätsanreicherungen in Form natürlicher Heißer Teilchen, die auf den Detektoren Sternspurmuster (Abb. 92, Abb. 93) erzeugt haben. Möglicherweise sind natürliche Heiße Teilchen auch im Pechblendegranit enthalten, aber nicht zu visualisieren, da der Detektor aufgrund des hohen Urangehaltes der Probe schon nach einer Stunde so dicht mit Spuren bedeckt ist, dass sich die Einzelspuren der Alphapartikel überlagern und Sternspurmuster nicht mehr erkannt werden können. Die höchsten Gehalte an natürlichen Heißen Teilchen und demzufolge auch an Sternspurmustern finden sich, bei gleichzeitig sehr kurzen Expositionszeiten (bis 5 Minuten), in den Pechblenden (Proben 236-240). Hier wurden bis 23 Sternspurmuster pro  $\text{cm}^2$  beobachtet. Auch der Aplite vom Gottesberg im Vogtland (Probe 100) enthält zahlreiche natürliche Heiße Teilchen, auf dem Detektor fanden sich 18 Sternspurmuster pro  $\text{cm}^2$ . Die Expositionszeit lag wie auch bei den meisten anderen Gesteinsproben bei 6 Wochen. Deutlich kürzer wurden nur die Pechblende- bzw. der Pechblendegranit exponiert. Die Spurdichte von Alphateilchen auf den Detektoren ist gering bis hoch, wobei bei gleichen Expositionszeiten je nach Probe geringe bis sehr hohe Spurdichten vorkommen. Die inhomogene Verteilung sowohl der Sternspurmuster als auch der Backgroundspurmuster bei einigen Proben ist Hinweis darauf, dass die Verteilung der Radioaktivitätsträger an bestimmte Gesteinsstrukturen oder -lagen (Klüfte, Intergranularräume, Phosphoritlage) gebunden ist.

Die Proben wurden nicht unter dem Elektronenmikroskop untersucht.



**Abb. 92** Autoradiogramme mit charakteristischen Sternspurmustern (Heiße Teilchen-Spuren) von Gesteinsproben aus der Region Sachsen.



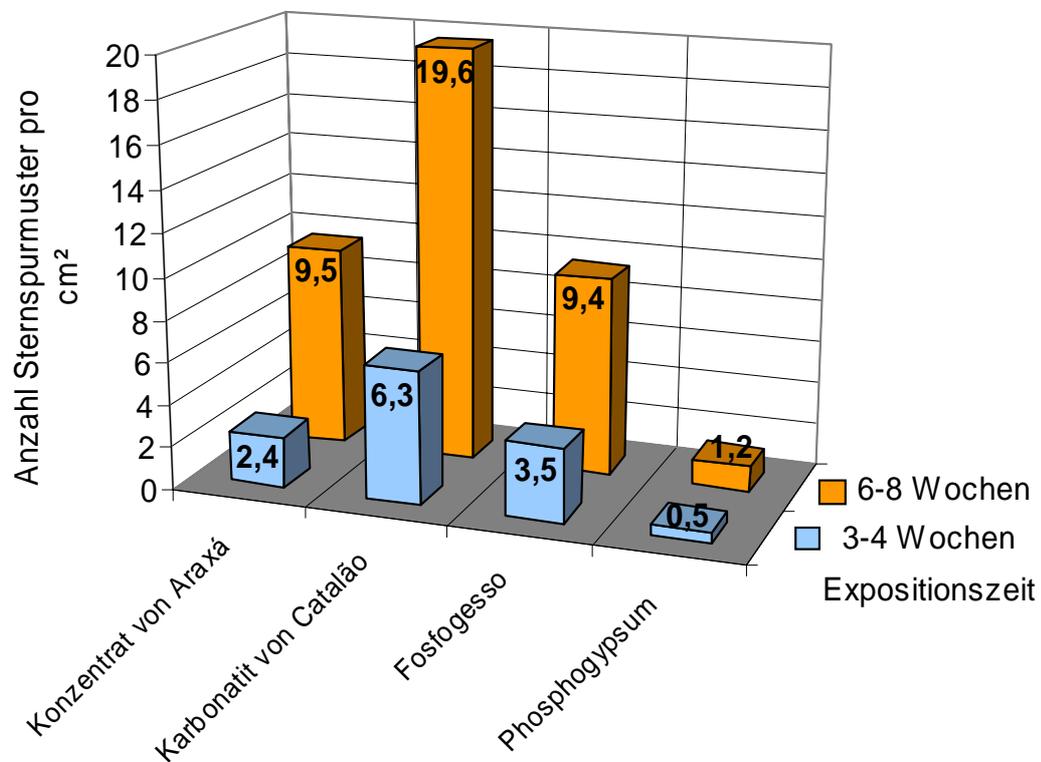
**Abb. 93** Typische Autoradiogramme mit Sternspurmustern und Backgroundspurmustern (Steinkohle Freital-Gittersee) von Gesteinsproben aus der Region Sachsen.

## 4.2 Methodische Ergebnisse

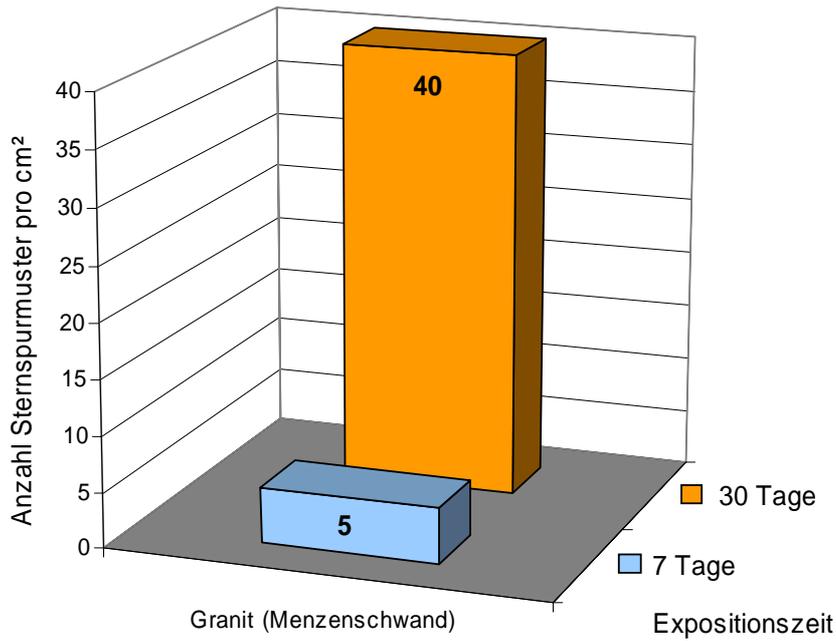
### 4.2.1 Abhängigkeit der Anzahl von Sternspurmustern von der Expositionszeit

Die Auswertung der Festkörperspurdetektoren der im Kap. 4.1 beschriebenen, exponierten Proben zeigt, dass die Zahl von Sternspurmustern (Heiße Teilchen-Spuren) nicht nur vom detektierten Material, d.h. von der spezifischen Aktivität der Probe, abhängig ist, sondern auch von der Dauer der Exposition. Die Zahl der Sternspurmuster auf dem Detektor steigt mit der Dauer der Exposition (Abb. 94, Abb. 95). Bei Überschreiten einer definierten, materialabhängigen Expositionszeit ändert sich die Zahl der Sternspurmuster nicht mehr entscheidend (Abb. 96). Bis zu diesem Zeitpunkt haben alle registrierbaren natürlichen Heißen Teilchen auf dem Festkörperspurdetektor Sternspurmuster erzeugt.

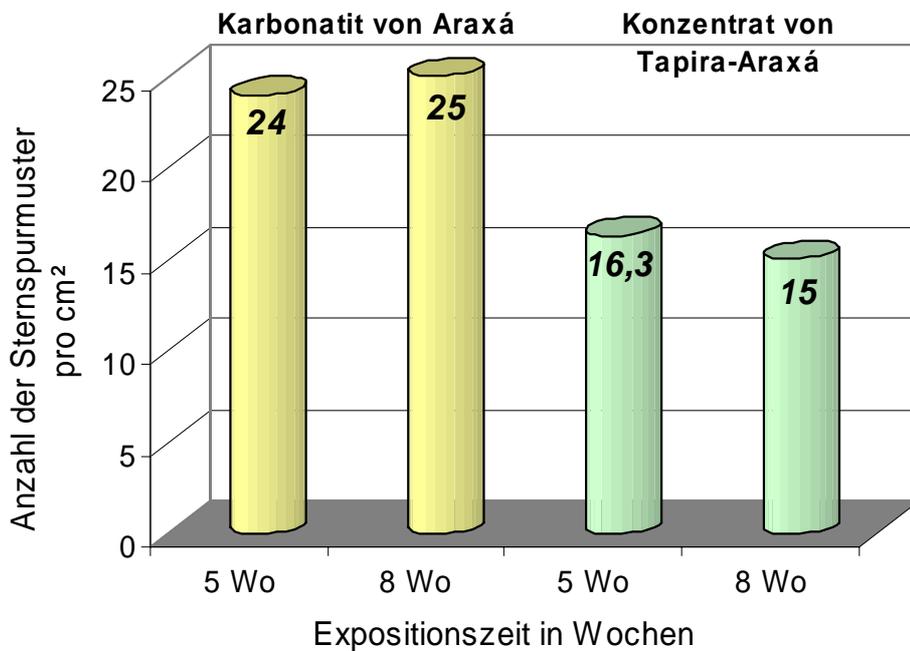
Die hier dargestellten Ergebnisse zeigen deutlich, welchen Einfluss die gewählte Expositionszeit auf die Anzahl von Sternspurmustern auf dem Detektor hat. Je nach Fragestellung (dient die Untersuchung nur der Feststellung, ob natürliche Heiße Teilchen in der Probe vorhanden sind oder geht es um die Abschätzung der spezifischen Radioaktivität der Probe oder einen Vergleich von Proben hinsichtlich des Gehaltes an natürlichen Heißen Teilchen) muss für jede Probe eine sinnvolle Expositionszeit durch Testexpositionen ermittelt werden. Es ist jedoch nicht immer möglich, eine ausreichend lange Expositionszeit zu wählen, damit alle registrierbaren natürlichen Heißen Teilchen einer Probe durch Sternspurmuster auf dem Detektor erfasst werden können. Die hohe spezifische Radioaktivität einiger Proben (z.B. Pechblende) führt zu einer hohen Spurdichte auf dem Detektor. Durch die daraus resultierenden Überlagerungen von Spuren sind Einzelspuren von Alphateilchen oder Sternspurmuster natürlicher Heißen Teilchen nicht mehr differenzierbar.



**Abb. 94** Die Anzahl von Sternspurmustern (pro cm<sup>2</sup>) in Abhängigkeit von der Expositionszeit bei Phosphatgesteinen und Phosphorgipsen von Brasilien (Kap. 4.1.1.7). Eine Verdoppelung der Expositionszeit resultiert hier in einem Anstieg der Zahl von Sternspurmustern um das 2,5- bis 4,5-fache.



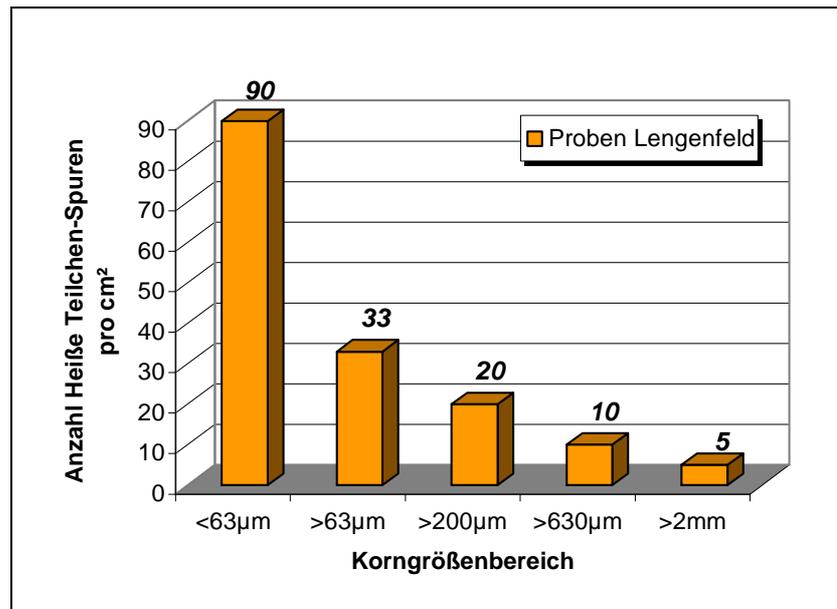
**Abb. 95** Die Anzahl von Sternspurmustern (pro cm<sup>2</sup>) in Abhängigkeit von der Expositionszeit bei einer Probe des uranhaltigen Granits von Menzschwand (Kap. 4.1.2.12). Unter den Expositionsnummern 190 und 206 wurde die gleiche Probe einmal 7 und einmal 30 Tage exponiert (Tab. Anhang S 1). Gegenüber der kürzer exponierten Probe ist die Zahl der Sternspurmuster um das Achtfache höher.



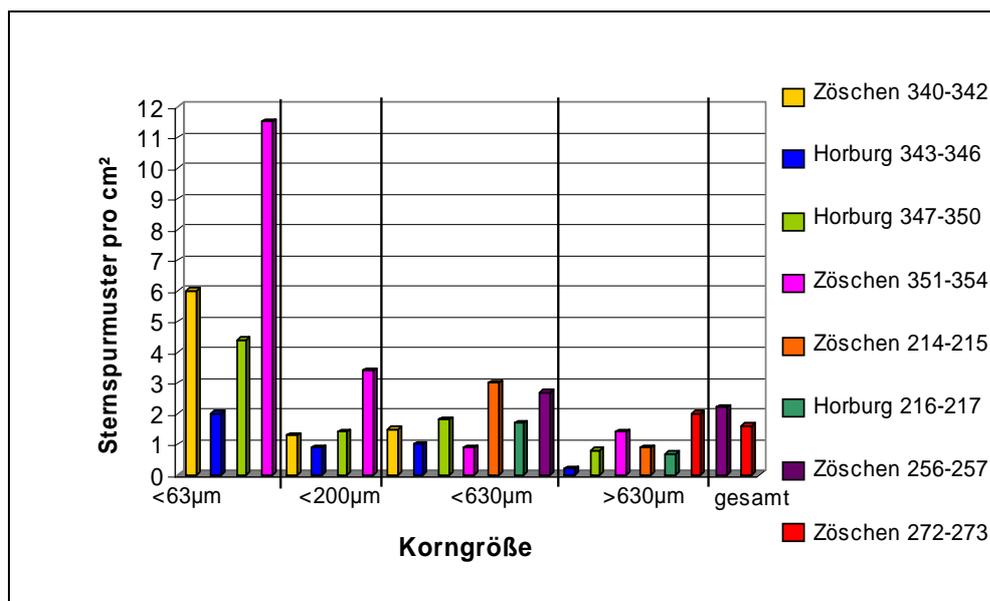
**Abb. 96** Anzahl von Sternspurmustern pro cm<sup>2</sup> bei jeweils 5 und 8 Wochen exponierten Proben aus der Proben-Gruppe der brasilianischen Phosphatgesteine (Kap. 4.1.1.7). Bei diesen Proben ist eine Expositionszeit von 5 Wochen ausreichend, da in dieser Zeitspanne alle registrierbaren natürlichen Heißen Teilchen Sternspurmuster auf dem Detektor erzeugt haben. Eine Verlängerung der Expositionszeit führt zu keiner entscheidenden Änderung der Zahl von Sternspurmustern mehr.

#### 4.2.2 Abhängigkeit der Anzahl von Sternspurmustern bzw. der Anzahl natürlicher Heiße Teilchen von der Korngröße des exponierten Materials

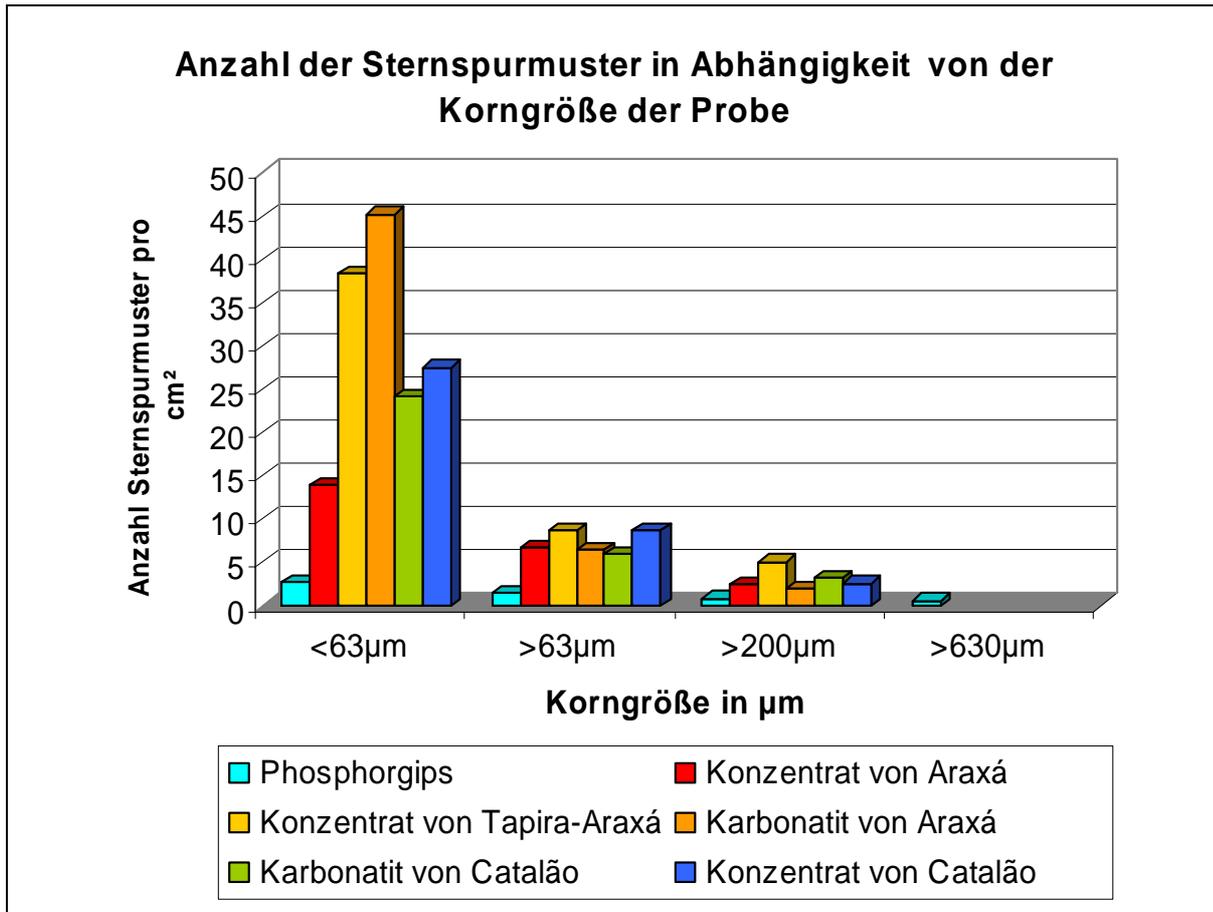
Viele der untersuchten Proben wurden gesiebt, um zu prüfen, ob das Vorkommen von natürlichen Heißen Teilchen an bestimmte Korngrößen gebunden ist. Es zeigte sich bei allen Proben, dass natürliche Heiße Teilchen (Sternspurmuster) zwar überwiegend in der gesamten Kornfraktion vertreten sind, aber immer deutlich in der kleinsten Kornfraktion  $<63\ \mu\text{m}$  angereichert sind (Abb. 97, Abb. 98, Abb. 99). Die geringsten Gehalte an natürlichen Heißen Teilchen kommen jeweils in den Kornfraktionen  $>630\ \mu\text{m}$  vor.



**Abb. 97** Die Anzahl von Heiße Teilchen-Spuren (Sternspurmustern) in Abhängigkeit von der Korngröße. Probe: Haldenmaterial (Uranerzbergbau) von Lengenfeld (Kap. 4.1.1.4, Tab. Anhang D 1). Die Expositionszeit lag bei 2 Wochen. Die Zahl von Sternspurmustern (natürlichen Heißen Teilchen) in der Fraktion  $<63\ \mu\text{m}$  ist das 18-fache höher als in der Fraktion  $>2\ \mu\text{m}$ .



**Abb. 98** Die Anzahl von Heiße Teilchen-Spuren (Sternspurmustern) in Abhängigkeit von der Korngröße bei den Sedimenten aus der Luppe (Kap. 4.1.2.6). Die Expositionszeit lag bei 8 (gelb, blau, hellgrün, pink, rot), 6 (orange, dunkelgrün) und 4 (lila) Wochen. Die natürlichen Heißen Teilchen sind jeweils in den kleinsten Kornfraktionen angereichert. Die Zahlen hinter den Sedimentproben in der Legende sind die Expositionsnummern (vgl. Tab im Anhang M 1).



**Abb. 99** Korngrößenabhängige Zahl von Sternspurmustern in Proben der brasilianischen Phosphatgesteine und Phosphorgipse (Kap. 4.1.1.7, Tab. im Anhang G 1). Die natürlichen Heißen Teilchen aller Probengruppen sind deutlich in den kleinsten Korngrößen angereichert. Die Expositionszeit lag bei 6 bzw. 7 Wochen.

#### 4.2.3 Vergleich von durch Gammaskpektrometrie und Autoradiographie ermittelten Radioaktivitätsgehalten

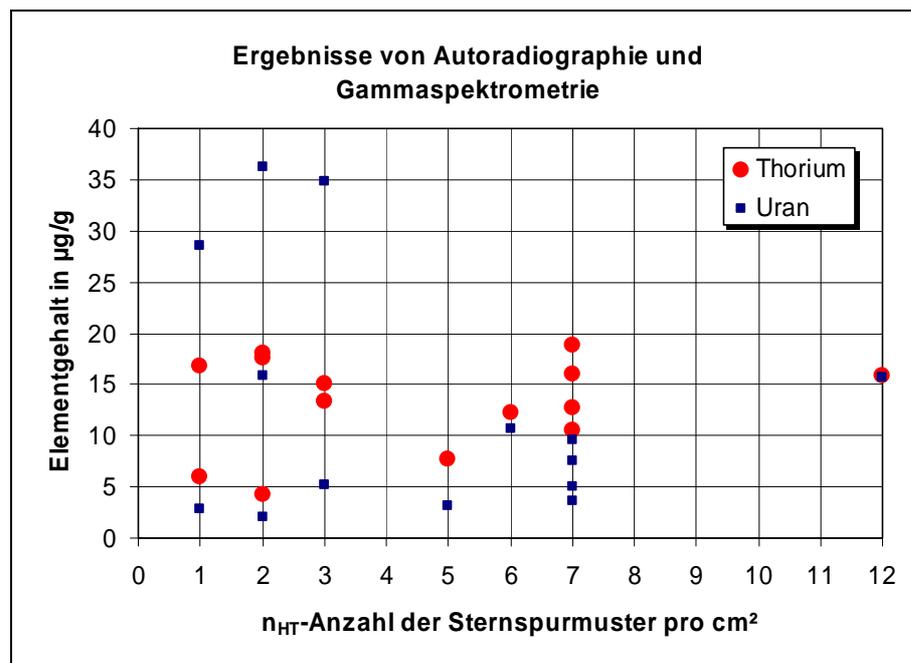
Die Überflutungssedimente von Elbe und Mulde (Kap. 4.1.2.5; Tab. Anhang L 1) wurden einer gammaspektrometrischen Messung zur Bestimmung der natürlichen Radioaktivität unterzogen. Die aus den Aktivitätskonzentrationen abgeleiteten Elementgehalte von Uran und Thorium wurden der Anzahl von Sternspurmustern der entsprechenden Probe gegenübergestellt um zu prüfen, ob sich hohe oder niedrige Uran- und Thoriumgehalte in einer entsprechend hohen oder niedrigen Zahl von Sternspurmustern widerspiegeln (Tab. 15).

Die Sedimentproben der Elbe zeigen für  $^{238}\text{U}$  normale bis leicht erhöhte Aktivitätskonzentrationen im Bereich von 25 bis 63 Bq/kg (TREUTLER 2002). Die Radionuklide der  $^{238}\text{U}$ -Zerfallsreihe befinden sich praktisch im radioaktiven Gleichgewicht. Die Radionuklide der  $^{232}\text{Th}$ -Zerfallsreihe zeigen keine Besonderheiten. Dagegen weisen die Proben aus dem Einzugsbereich der Mulde deutlich höhere Radioaktivitätskonzentrationen auf, die bei den Proben der Zwickauer Mulde sogar an die in der Haldenverordnung festgelegten Grenzwerte heranreichen. Bei diesen Proben fällt auch ein deutlicher  $^{238}\text{U}$ -Überschuss bis zu 450 Bq/kg auf, das entspricht einem Urangehalt von 36 µg/g. Die Aktivitätskonzentrationen der Tochternuklide des  $^{232}\text{Th}$  entsprechen denen des Elbeeinzugsgebietes.

**Tab. 15** Tabellarische Gegenüberstellung der Ergebnisse von Autoradiographie und Gammaskpektrometrie. Nr. = Expositionsnummer,  $n_{HT}$  = Anzahl der Heißen Teilchen pro  $cm^2$ .

Nr.	Probe	$n_{HT}$	Elementgehalte ( $\mu g/g$ )	
			Uran	Thorium
152	Torgau/ Elbe	3	$5,1 \pm 1,0$	$13,4 \pm 1,1$
153	Riesa/ Elbe	7	$5,0 \pm 0,7$	$12,7 \pm 1,6$
154	Wittenberg/ Elbe	2	$2,0 \pm 0,4$	$4,3 \pm 0,5$
155	Wörlitz/ Elbe	1	$2,9 \pm 0,7$	$6,0 \pm 0,8$
156	Pirna/ Elbe	7	$3,6 \pm 0,5$	$10,5 \pm 0,9$
157	Kaditz/ Elbe	5	$3,2 \pm 0,7$	$7,7 \pm 0,8$
158	Heidenau/ Elbe	7	$9,5 \pm 1,7$	$18,8 \pm 1,3$
159	Eilenburg/ Mulde	2	$15,8 \pm 1,2$	$18,0 \pm 1,0$
160	NSG Dehntitzer Lachen (Wurzen)/ Mulde	6	$10,7 \pm 1,3$	$12,2 \pm 1,0$
161	Grimma (Kloster Nimbschen)/ Mulde	12	$15,7 \pm 1,5$	$15,8 \pm 1,1$
162	Autobahnbrücke Siebenlehn/ Freiberger Mulde	7	$7,5 \pm 0,8$	$16,0 \pm 1,4$
163	Sportplatz Wolkenburg/ Zwickauer Mulde	3	$34,8 \pm 5,2$	$15,1 \pm 1,7$
164	Fußgängerbrücke Glauchau/ Zwickauer Mulde	2	$36,2 \pm 3,8$	$17,5 \pm 1,0$
165	Schlagwitz/ Zwickauer Mulde	1	$28,6 \pm 2,7$	$16,8 \pm 1,3$

Analytik Gammaskpektrometrie: Dr. H.C. Treutler, UFZ



**Abb. 100** Synoptische Gegenüberstellung von Anzahl der Sternspurmuster und entsprechenden Elementgehalten (Thorium und Uran) der untersuchten Sedimentproben von Elbe und Mulde. Eine Korrelation zwischen Elementgehalten und Anzahl der Spurmuster kann nicht festgestellt werden.

Bei den untersuchten Sedimentproben von Elbe und Mulde besteht keine Korrelation zwischen den gammaspektrometrisch ermittelten Uran-/Thoriumgehalten und ihrem Gehalt an natürlichen Heißen Teilchen bzw. der Anzahl von Sternspurmustern. Daraus schlussfolgernd muss man feststellen, dass vom – mit Hilfe der Gammaskpektrometrie bestimmten – Totalgehalt an Radionukliden in einer Probe nicht unbedingt auf deren Anzahl an natürlichen Heißen Teilchen und daraus abgeleitet auf die Anzahl von Sternspurmustern auf dem Detektor geschlossen werden kann. Das bedeutet, die Gammaskpektrometrie ist nicht geeignet, um anhand der mit ihr ermittelten Radionuklidgehalte eine Probenauswahl für die Autoradiographie zu treffen. Für belastbare Aussagen im Zusammenhang mit den hier diskutierten Ergebnissen sind allerdings umfassendere Probenauswertungen nötig, da nur einzelne Proben gemessen wurden.

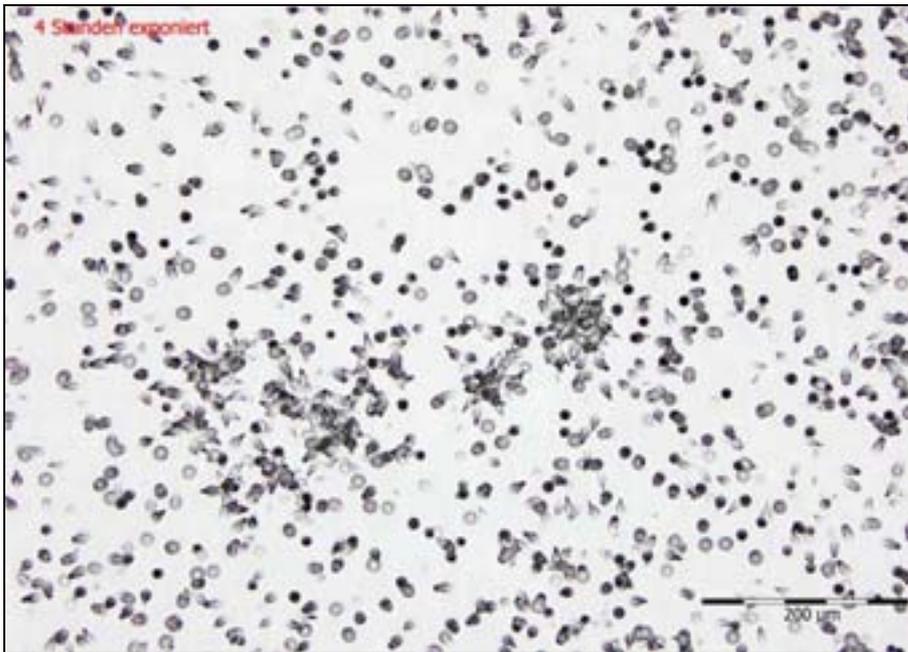
#### **4.2.4 Einfluss von Lösungs- und Kristallisationsprozessen auf den Gehalt an natürlichen Heißen Teilchen**

Um zu prüfen, ob und wie sich der Gehalt von Heißen Teilchen in einer Probe durch Auflösung bzw. Schmelzen und erneute Kristallisation der Probe beeinflussen lässt bzw. ob man durch diese Behandlungen in Proben mit homogen verteilter Radioaktivität natürliche Heiße Teilchen “erzeugen” kann, wurden zwei verschiedene Probenmaterialien (Autunitkristalle aus dem Erzgebirge, Kap. 4.1.2.10 und uranhaltiges Konglomerat aus Canada, Kap. 4.1.2.11) aufgelöst, auskristallisiert und mittels Autoradiographie untersucht. Die exponierten Autunitkristalle zeigten keine Sternspurmuster (Tab. Anhang Q), die Radioaktivität ist homogen in den Proben verteilt. Die Konglomeratproben hingegen enthalten zahlreiche natürliche Heiße Teilchen (Tab. Anhang R 1), was sich in einer großen Zahl von Sternspurmustern auf den Detektoren widerspiegelt.

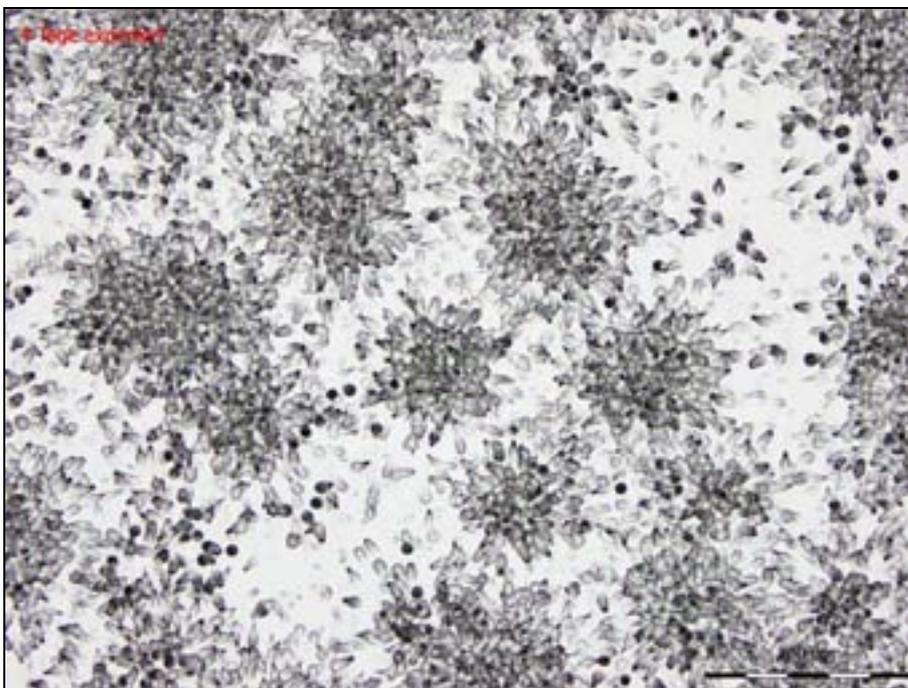
##### **4.2.4.1 Auflösung einer Autunitprobe**

Es wurden 0,0009 g Autunit mit 50 µl H<sub>2</sub>O und 50 µl HNO<sub>3</sub> (65%) versetzt und mit Hilfe einer Ultraschallsonde aufgelöst. Die Lösung wurde auf eine Glasplatte aufgebracht und konnte dort bei Raumtemperatur auskristallisieren. Das Kristallat wurde anschließend exponiert (Tabelle im Anhang U). Es bedeckt eine kreisrunde Fläche mit einem Durchmesser von 8 mm, wobei sich der Hauptanteil des Materials an den Rändern angesammelt hat und dort einen Saum bildet. Im Gegensatz zu den unbehandelten Autunitproben enthält das Autunit-Kristallisationsprodukt offenbar natürliche Heiße Teilchen, allerdings zeigen sich erst bei Expositionszeiten ab 4 Stunden Sternspurmuster auf den Detektoren (Abb. 101). Der nur 30 Minuten auf dem Kristallat exponierte Detektor zeigt keine Sternspurmuster. Der 4 Tage auf dem Kristallat exponierte Detektor enthält so viele Sternspurmuster, dass diese sich überlagern (Abb. 102). Wegen der hohen Dichte der Sternspurmuster und deren Überlagerung sind sie nicht zählbar. Ob die Entstehung natürlicher Heißer Teilchen durch die Lösung und anschließende Auskristallisation der Autunitkriställchen hervorgerufen wurde, kann nicht endgültig geklärt werden. Möglicherweise wurden Sternspurmuster bei den unbehandelten Autunitkriställchen nicht erkannt, da die Probe maximal 30 Minuten exponiert wurde. Bei der 30 Minuten exponierten Kristallatprobe zeigen sich nach dieser Expositionszeit auch noch keine Sternspurmuster. Die kurze Expositionszeit wurde gewählt, weil der unbehandelte Autunit auf dem Detektor in sehr kurzer Zeit sehr viele, sich überlagernde Spuren (Backgroundspurmuster) erzeugt hat. Nach der Exposition wurden die Autunitkristalle vollständig aufgelöst, so dass keine weiteren Untersuchungen mit einer längeren Expositionszeit vorgenommen werden konnten. Jedoch konnte eine andere Autunitprobe aus dem Vogtland exponiert werden. Diese Probe wurde in Epoxydharz eingebettet, um eine glatte und plane Probenoberfläche für die

Exposition zu erhalten. Diese Probe zeigt auch bei Expositionszeiten bis 64 Stunden keine heißen Teilchen.



**Abb. 101** Autoradiogramm einer aufgelösten und wieder auskristallisierten Autunitprobe (Nr. 267). Trotz der kurzen Expositionszeit von 4 Stunden weist der Detektor eine hohe Dichte von Alphaspuren (Backgroundspurmuster) auf. Es haben sich erste Sternspurmuster (Bildmitte) gebildet.

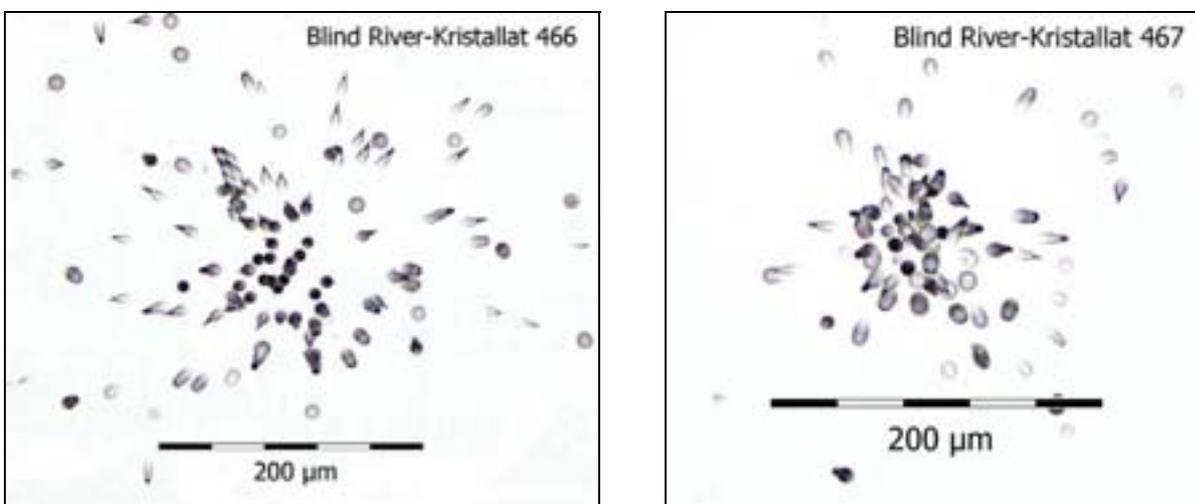


**Abb. 102** Autoradiogramm einer aufgelösten und wieder auskristallisierten Autunitprobe (Nr. 266). Es handelt sich um dieselbe Probe wie bei Abb. 101, allerdings wurde die Probe bei diesem Versuch 4 Tage exponiert. Im Gegensatz zu der kürzer exponierten Probe treten die Alphaspuren hier überwiegend in Form von Sternspurmustern auf, die häufig so dicht nebeneinander liegen, dass sie sich überlagern (z.B. linke Bildmitte). Backgroundspurmuster sind kaum noch zu beobachten. Maßstab: 200 µm.

#### 4.2.4.2 Chemische Behandlung einer uranhaltigen Konglomeratprobe (Canada)

Es wurden von 0,5 g und 1,0 g Probe des Konglomerates je zwei Schmelzaufschlüsse hergestellt. Die Proben wurden dafür mit jeweils 7 g Schmelzmittel (Lithiumtetraborat) vermischt und anschließend bei 1000°C in der Flamme geschmolzen. Nach Exposition dieser Schmelztabletten wurden sie jeweils mit HCl unter Erhitzen gelöst. Eine Lösung konnte anschließend auskristallisieren. Die andere Lösung wurde geteilt und einem Teil eine Spatelspitze pulverisierter Kohlenstoff dem anderen Teil eine Spatelspitze pulverisierter Kohlenstoff und Schwefel zugesetzt. Danach konnte auch diese Lösung auskristallisieren. Es wurde angenommen, dass die diskreten Radioaktivitätsanreicherungen in den Konglomeraten durch das Schmelzen der Proben homogenisiert werden. Es stellte sich die Frage, ob es beim Auskristallisieren wieder zur Ausbildung einer diskreten Radioaktivitätsverteilung kommt oder die Radionuklide gleichmäßig in der Probe verteilt bleiben. Schwefel und Kohlenstoff wurden als eine Art Kristallisationskeime zugegeben. Kohlenstoff besitzt eine hohe Adsorptionskapazität für Uran. Möglicherweise kommt es an Kohlenstoff- oder Schwefelpartikeln zu einer Urananreicherung.

Das vollständig auskristallisierte Material wurde mit dem Mörser homogenisiert und jeweils exponiert. Dabei war die Probenmenge der Substanz ohne Zusätze ausreichend für 3 Festkörperspurdetektoren, die der beiden Substanzen mit Kohlenstoff/Schwefel reichte für jeweils 2 Detektoren. Die Exposition der auskristallisierten Substanzen erfolgte derart, dass auf die gesamte Fläche eines Festkörperspurdetektors die Probe aufgebracht wurde und anschließend in einer Art Sandwichanordnung auf die Probe ein weiterer Festkörperspurdetektor gedrückt wurde. Dadurch ließ sich eine große Probenoberfläche untersuchen. Die Ergebnisse der Autoradiographie und lichtmikroskopischen Auswertung sind tabellarisch im Anhang V dargestellt.



**Abb. 103** Autoradiogramme der nach Schmelze und Auflösung auskristallisierten Konglomeratproben, denen Kohlenstoff und Schwefel zugesetzt wurde. Die Bilder zeigen 2 größere Sternspurmuster, im Allgemeinen sind sie in den Kristallatproben kleiner.

Die als Ausgangsmaterial für die Schmelzaufschlüsse genutzten Proben (448, 449; Anhang V) enthalten eine große Anzahl an natürlichen Heißen Teilchen. Auf den Detektoren fanden sich bei einer Expositionszeit von 4 Tagen bis 279 Sternspurmuster pro  $\text{cm}^2$  bei einer gleichzeitig sehr hohen Spurdichte der Alphaspuren (Background). Nach dem Schmelzen der Proben sind keine natürlichen Heißen Teilchen mehr nachweisbar. Die Proben der Schmelztabletten (452 a, b und 453 a, b) zeigen keine Sternspurmuster, jedoch eine hohe Spurdichte von Alphaspuren (Background). Bei den nach Lösung dieser Schmelztabletten gewonnenen auskris-

tallisierten Substanzen enthalten die Proben natürliche Heiße Teilchen, denen Kohlenstoff bzw. Kohlenstoff und Schwefel zugesetzt wurde. Die beobachteten Sternspurmuster (Abb. 103) sind überwiegend klein, mit geringen Spurdichten. Die Spurdichte der Alphaspuren (Background) ist mäßig. Die Expositionszeit lag bei 9 Tagen.

Bei der Probe, die ohne Zusätze auskristallisierte (Expositionen 456-461), konnten keine Sternspurmuster nachgewiesen werden. In dieser Probe haben sich keine natürlichen Heißen Teilchen ausgebildet.

Die Ergebnisse dieser Untersuchungen zeigen, dass durch Schmelz- und Lösungsprozesse die natürlichen Heißen Teilchen einer Probe zum Verschwinden gebracht werden können, die aber bei Vorhandensein entsprechender Katalysatoren wie beispielsweise Kohlenstoff auch wieder generiert werden können. Für belastbare Aussagen diesbezüglich sind aber weitere und ausführlichere Untersuchungen notwendig.

#### 4.2.4.3 Uranylacetat Dihydrat ( $\text{CH}_3\text{COO}_2\text{UO}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ )

Bei der Substanz Uranylacetat Dihydrat handelt es sich um fluoreszierende, geruchlose Kristalle von gelb-grünlicher Färbung. Das Uranylacetat wird z.B. durch Auflösen von Urantrioxid in Essigsäure hergestellt. Es stammt aus den Chemikalienbeständen des Departments Analytik des UFZ. Eine Untersuchung dieser Substanz war insofern von Interesse, da es sich bei dem Uranylacetat um eine aus einer Lösung gewonnene Substanz handelt. Es sollte geprüft werden, ob in solchen Proben natürliche Heiße Teilchen zu finden sind.

Für die Exposition wurde eine Uranylacetat-Probe geteilt und unterschiedlich lange exponiert. Einen Überblick über die Ergebnisse der lichtmikroskopischen Untersuchungen und Expositionsbedingungen gibt die Tabelle im Anhang W.

Bei keiner Probe konnten Sternspurmuster gefunden werden. Die Spurdichte von Alphaspuren auf dem Detektor (Background) dagegen ist trotz der kurzen Expositionszeiten von max. 48 Stunden sehr hoch. Möglicherweise ist diese Zeit zu kurz, um Sternspurmuster registrieren zu können. Aber eine längere Expositionszeit hätte zu einer hohen Spurdichte und Überlagerung der Background-Spuren geführt, so dass Einzelspuren nicht mehr zu erkennen gewesen wären. Bei Vorhandensein von natürlichen Heißen Teilchen in dieser stark uranhaltigen Probe ist allerdings zu vermuten, dass sie sich innerhalb von 48 Stunden auf dem Detektor zumindest andeuten. Das war nicht der Fall. Das Uranylacetat enthält keine natürlichen Heißen Teilchen. Die Radioaktivität ist homogen in den Proben verteilt.

#### 4.2.4.4 Präzipitat aus einer $^{210}\text{Pb}$ -Lösung

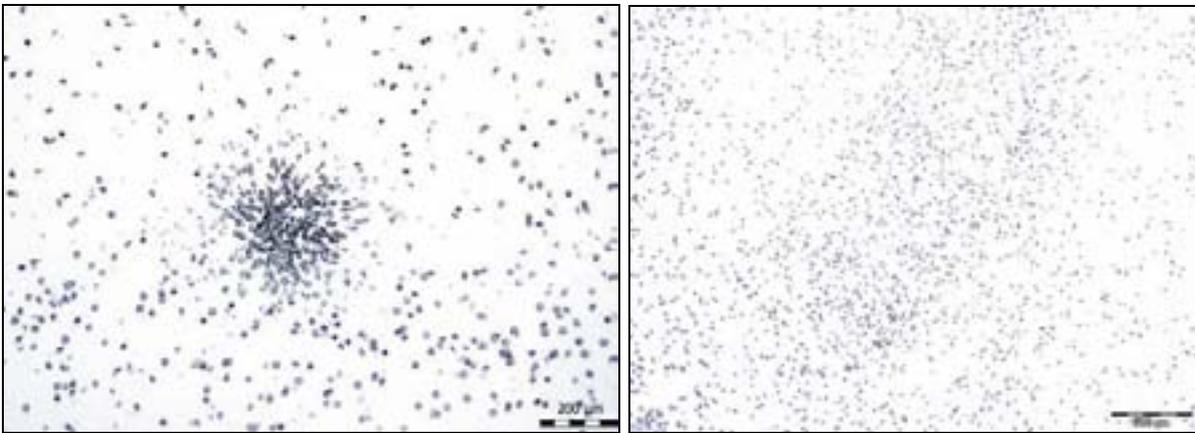
Das  $^{210}\text{Pb}$ -Präzipitat wurde hergestellt, indem 5 ml einer  $^{210}\text{Pb}$ -Lösung auf eine Folie aufgebracht wurden. Anschließend kristallisierte diese Lösung bei Raumtemperatur aus und es bildete sich auf der Folie ein relativ gleichmäßiger Film aus winzigen Kristallen. Die Folie mit dem Kristallfilm wurde anschließend exponiert.

Wie bei der Uranylacetat-Probe sollte mit der Untersuchung dieser Probe geprüft werden, ob in radioaktiven Substanzen, die aus Lösungen abgeschieden wurden, natürliche Heiße Teilchen vorkommen.  $^{210}\text{Pb}$  ist zwar ein Betastrahler, befindet sich aber im Gleichgewicht mit seinem Tochternuklid  $^{210}\text{Po}$ .  $^{210}\text{Po}$  ist ein reiner Alphastrahler und kann autoradiographisch erfasst werden.

Die Folie mit dem Präzipitatfilm wurde jeweils unterschiedlich lange exponiert. Einen Überblick über die Ergebnisse der lichtmikroskopischen Untersuchungen und Expositionsbedingungen gibt die Tabelle im Anhang W.

Bei den 24 Stunden und drei Tage exponierten Präzipitaten zeigen sich keine Sternspurmuster auf den Detektoren. Die Spurdichte der Alphaspuren (Background) ist gering. Bei der sieben Tage exponierten Probe konnte auf dem Detektor jedoch ein großes, sehr symmetrisch ausgebildetes Sternspurmuster (Abb. 104) beobachtet werden. Die Spurdichte der Alphaspuren auf diesem Detektor ist hoch, wobei die Spuren wolkenartig konzentriert sind (Abb. 104). Dies kann aber eine Folge der Abscheidung sein, da die auf die Folie gebrachte  $^{210}\text{Pb}$ -Lösung die Oberfläche wahrscheinlich nicht vollkommen gleichmäßig benetzt hat. Infolge dessen ist die auskristallisierte Schicht lokal unterschiedlich dick, was sich in der Spurdichte auf dem Detektor widerspiegelt.

Wegen der Beschaffenheit der Probe (fehlende Einbettung und Stabilität) war eine Elektronenmikroskop-Untersuchung nicht möglich, so dass keine Aussagen zur Art des detektierten Alphaemitters gemacht werden können.



**Abb. 104** Autoradiogramme der 7 Tage exponierten Probe des  $^{210}\text{Pb}$ -Präzipitats (Probe 441) mit einem Sternspurmuster (linkes Bild) und den wolkenig konzentrierten Alphaspuren des Backgroundspurmusters (rechtes Bild).

## 5 Diskussion und Schlussfolgerungen

Die im Rahmen dieser Arbeit entwickelte Detektionstechnik erlaubt mit Hilfe von Festkörperspurdetektoren die Ortsbestimmung alphastrahlender Radionuklide, insbesondere die Lokalisierung von Radioaktivitätskonzentrationen (natürlichen Heißen Teilchen) an der Oberfläche jeder festen Probe. Mit Hilfe elektronenmikroskopischer Untersuchungen können diese lokalisierten natürlichen Heißen Teilchen hinsichtlich ihrer chemischen Zusammensetzung, Größe und strukturellen Bindung charakterisiert werden.

Zur Klärung der in Kapitel 1 formulierten Fragestellungen wurden 12 anthropogene Materialien (Tabelle 8) sowie 27 natürliche Materialien (Tabelle 12) untersucht. In 8 der 12 anthropogenen Materialien konnten punktförmige Radioaktivitätskonzentrationen in Form natürlicher Heißen Teilchen beobachtet werden. In 3 Proben war die Radioaktivität homogen verteilt und 1 Probe enthielt keine Radionuklide (Tab. 16).

**Tab. 16** Übersicht über die Verteilung der Radioaktivitätskonzentration in den untersuchten anthropogenen Materialien. WBA=Wasserbehandlungsanlage.

<b>Proben mit natürlichen Heißen Teilchen (punktförmige Radioaktivitätskonzentration)</b>	<b>Proben mit homogen verteilter Radioaktivitätskonzentration</b>	<b>Proben, die keine Radionuklide enthalten</b>
Theisenschlamm	Kupferschlacke	Stickstoffdünger
Urantailings Dänkritz	Fällungsrückstände (WBA)	
Haldenmaterial Uranerzbergbau	Uranblech	
Kraftwerksaschen		
Versuchsbausteine		
Phosphorgips		
Phosphatgesteine (-konzentrate)		
Phosphatdünger		

Bei den natürlichen Materialien konnten in 23 der 27 Probenarten punktförmige Radioaktivitätskonzentrationen in Form natürlicher Heißen Teilchen gefunden werden. In 3 Probenarten war die Radioaktivität homogen verteilt, eine Probenart enthielt keine Radionuklide (Tab. 17).

**Tab. 17** Übersicht über die Verteilung der Radioaktivitätskonzentration in den untersuchten natürlichen Materialien.

<b>Proben mit natürlichen Heißen Teilchen (punktförmige Radioaktivitätskonzentration)</b>	<b>Proben mit homogen verteilter Radioaktivitätskonzentration</b>	<b>Proben, die keine Radionuklide enthalten</b>
Kupferschiefer	Monazitsand	Gesso comum (Naturgips)
Fluss-/Bachsedimente aus dem Mansfelder Land	Autunitkristalle	
Sedimente Schlüsselstollen	Pechblendegranit	
Sedimente Süßer See		
Überflutungssedimente Elbe/Mulde		
Sedimente Luppe		
Seesedimente Südamerika		
Karbonatit Brasilien		
Areia (Sand) Brasilien		
Zirkone von Bornholm		

Proben mit natürlichen Heißen Teilchen (punktförmige Radioaktivitätskonzentration)	Proben mit homogen verteilter Radioaktivitätskonzentration	Proben, die keine Radionuklide enthalten
Konglomerat aus Canada (Blind River)		
Granit von Menzenschwand		
Pechblende		
Turmalingranit		
Oberschlemaer Granit		
Aplit Gottesberg		
Hornstein		
Kieselschiefer mit Phosphoritlage		
Phonolith		
Quarzporphyr		
Tentakulitenschiefer		
Phosphoritknolle		
Steinkohle Freital-Gittersee		

Die höchsten Gehalte an natürlichen Heißen Teilchen finden sich bei Expositionszeiten unter 4 Wochen auf den Oberflächen der Proben Konglomerat aus Canada (Blind River) ( $138/\text{cm}^2$ ), Urantailings Dänkritz ( $85 \text{ pro cm}^2$ ) und Granit von Menzenschwand ( $40/\text{cm}^2$ ).

Die Untersuchungen haben gezeigt, dass in über 80 % der untersuchten radionuklidhaltigen Probenarten – anthropogenen und natürlichen - die Radioaktivitätskonzentrationen eine diskrete Komponente in Form von natürlichen Heißen Teilchen aufweisen. Die geographische Herkunft des Probenmaterials spielt dabei ebenso wenig eine Rolle wie das Alter der Probe. Das lässt die Schlussfolgerung zu, dass natürliche Heiße Teilchen eine ubiquitär vorkommende Erscheinungsform von Radioaktivität sind.

Ein Teil der natürlichen Heißen Teilchen konnte elektronenmikroskopisch identifiziert werden. Sie bestehen aus natürlichen Mineralen, die als wesentlichen Bestandteil Uran oder Thorium führen. Dazu gehören:

#### *Oxide*

Uraninit  $\text{UO}_2$

#### *Phosphate-Arsenate*

Monazit  $(\text{Ce, Y, La, Th}) \text{PO}_4$

Xenotim  $(\text{Y, Ce, U, Th}) \text{PO}_4$

Uramphit  $\text{NH}_4(\text{UO}_2)(\text{PO}_4) \cdot 3\text{H}_2\text{O}$

Uranocircit  $\text{Ba}(\text{UO}_2)_2(\text{PO}_4)_2 \cdot 8-10\text{H}_2\text{O}$

Bassetit  $\text{Fe}(\text{UO}_2)_2(\text{PO}_4)_2 \cdot 8\text{H}_2\text{O}$

Autunit  $\text{Ca}(\text{UO}_2)_2(\text{PO}_4)_2 \cdot 10-12\text{H}_2\text{O}$

Apatit  $\text{Ca}_5[\text{F}/(\text{PO}_4)_3]$  (Uran-Apatit enthält nach RÖSLER (1984) bis zu 3,7 %  $\text{UO}_2$ )

#### *Silikate*

Zirkon  $\text{Zr, Hf, Y, Ce, U, Th}) \text{SiO}_4$

Coffinit  $\text{U}(\text{SiO}_4)$

#### *Niobate-Tantalate-Titanate*

Betafit  $(\text{U, Ca, Ce})(\text{Nb, Ta, Ti})_2\text{O}_9 \cdot n\text{H}_2\text{O}$

Brannerit  $\text{UTi}_2\text{O}_6$

Am häufigsten konnten in den Proben Uraninit und Monazit gefunden werden (Tab. 18).

**Tab. 18** Überblick über die in den einzelnen Proben gefundenen natürlichen Heißen Teilchen und deren Charakteristika. NHT=natürliches Heißes Teilchen.

<b>Probe</b>	<b>Art der natürlichen Heißen Teilchens</b>	<b>Größe/Ausbildung der natürlichen Heißen Teilchens</b>
Theisenschlamm	Brannerit, Uraninit, Uranglimmer	überwiegend Uraninit in Kohlenstoffmatrix (dispers), als Säume und Verwachsungen, diskrete Partikel <5 µm
Urantailings Dänkritz	Monazit (in 3 Proben mit 75 lokalisierten NHT wurde nur an einer Stelle ein NHT gefunden)	Einzelkorn, 20 µm
Haldenmaterial Uranerzbergbau	Uraninit, Brannerit, Monazit, Zirkon, Xenotim, Autunit	überwiegend Verwachsungen oder Einsprengungen oder Säume in/an Silikatpartikeln, unter 10 µm groß; Einzelkörner selten (< 10 µm)
<i>Kraftwerksaschen</i>	<i>nicht untersucht</i>	
<i>Versuchsbausteine</i>	<i>nicht untersucht</i>	
<i>Phosphorgips</i>	<i>nicht untersucht</i>	
Phosphatgesteine (-konzentrate)	Betafit, Monazit, Apatit	überwiegend Verwachsungen von Apatit mit Betafit, Monazit als Einzelkörnern; überwiegend 10-30 µm große Körnchen, max. bis 80 µm, min. bis 7 µm groß
Phosphatdünger	Uraninit, Monazit	Uraninit als <2µm Saum, Monazit als Einzelkörnern von ca. 20µm
Kupferschiefer	Brannerit	Einzelkörner (5µm, 100µm) Säume um Blei-Zink-Körner (<5µm)
Fluss-/Bachsedimente aus dem Mansfelder Land	Monazit, Zirkon, Xenotim	Einzelkörnern, zwischen 5 und 70µm groß, max. bis 100µm
<i>Sedimente Schlüsselstollen</i>	<i>nicht untersucht</i>	
<i>Sedimente Süßer See</i>	<i>nicht untersucht</i>	
Überflutungssedimente Elbe/Mulde	Monazit, Zirkon	Einzelkörnern, z.T. Verwachsen mit Quarz, zwischen 10 und 30 µm groß, min. 4µm, max. 80µm
Sedimente Luppe	Monazit	Einzelkörnern, um 20µm
<i>Seesedimente Südamerika</i>	<i>nicht untersucht</i>	
Karbonatit	Betafit, Monazit, Apatit, Xenotim	Verwachsungen und Einzelkörnern, überwiegend 10-30 µm große Körnchen, max. bis 80 µm, min. bis 5 µm groß
<i>Areia (Sand) Brasilien</i>	<i>nicht untersucht</i>	
<i>Zirkone von Bornholm</i>	<i>nicht untersucht (Zirkon)</i>	
Konglomerat aus Canada (Blind River) gemahlen	Uraninit, Brannerit	ca. 2µm große Einzelkörnern
Granit von Menzenschwand	Bassetit, Uranocircit, Coffinit, Uraninit, Uramphit	
<i>Pechblende</i>	<i>nicht untersucht (Uranpechblende)</i>	
<i>Turmalingranit</i>	<i>nicht untersucht</i>	

<b>Probe</b>	<b>Art der natürlichen Heißen Teilchens</b>	<b>Größe/Ausbildung der natürlichen Heißen Teilchens</b>
<i>Oberschlemaer Granit</i>	<i>nicht untersucht</i>	
<i>Aplit Gottesberg</i>	<i>nicht untersucht</i>	
<i>Hornstein</i>	<i>nicht untersucht</i>	
<i>Kieselschiefer mit Phosphoritlage</i>	<i>nicht untersucht</i>	
<i>Phonolith</i>	<i>nicht untersucht</i>	
<i>Quarzporphyr</i>	<i>nicht untersucht</i>	
<i>Tentakulitenschiefer</i>	<i>nicht untersucht</i>	
<i>Phosphoritknolle</i>	<i>nicht untersucht</i>	
<i>Steinkohle Freital-Gittersee</i>	<i>nicht untersucht</i>	

Die natürlichen Heißen Teilchen kommen als diskrete Partikel einer Größe zwischen 1 und 80  $\mu\text{m}$ , als unter 10  $\mu\text{m}$  große Säume in Hohlräumen oder um Partikel, als 1-5  $\mu\text{m}$  große Aggregate in größere Partikel eingesprengt, dispers verteilt in einer Kohlenstoffmatrix sowie verwachsen mit anderen Mineralen vor (Tab. 18). Die Größe der natürlichen Heißen Teilchen spiegelt sich auch in den Gehalten an natürlichen Heißen Teilchen in den Korngrößenfraktionen gesiebter Proben wider. Sie sind am höchsten in den Korngrößen  $<63 \mu\text{m}$  und am geringsten in den Korngrößen  $>630 \mu\text{m}$ .

Eine Erzeugung natürlicher Heißer Teilchen durch eine technogene Bearbeitung radionuklidhaltiger Proben, die vorher keine punktförmigen Radioaktivitätskonzentrationen enthielten, konnte nicht festgestellt werden. Die in den anthropogenen Proben vorkommenden natürlichen Heißen Teilchen lassen sich immer auf natürliche Heißen Teilchen der Originalproben zurückführen. Diese Aussage kann nicht als abschließende Bewertung aufgefasst werden, da nicht bei allen anthropogenen Materialien die Originalproben zur Verfügung standen. Häufig werden die gleichen Heißen Teilchen im Originalgestein und im anthropogenen Produkt gefunden. Beispiele dafür sind der Brannerit, der im Originalgestein Kupferschiefer und im Verhüttungsprodukt Theisenschlamm identifiziert werden konnte, sowie Betafit, Monazit und Apatit, die sowohl im Originalgestein Karbonatit (Brasilien) als auch in deren Aufbereitungsprodukten (Phosphatkonzentrate) gefunden wurden. Allerdings kann die technogene Bearbeitung zu einer Umverteilung der natürlichen Heißen Teilchen führen, verbunden mit einer Änderung der chemischen Bindung der Radioaktivitätsträger. Als Beispiel kann hier der Kupferschiefer und der bei seiner Verhüttung angefallene Theisenschlamm genannt werden. Der Kupferschiefer enthält ausschließlich das primär gebildete Uranmineral Brannerit ( $\text{UTi}_2\text{O}_6$ ) als natürliche Heiße Teilchen. Im Theisenschlamm finden sich neben Brannerit als Träger der punktförmigen Radioaktivitätskonzentration außerdem sehr häufig Uran (Uraninit) in einer Kohlenstoffmatrix und als Saum an oder Aggregat in Silikatpartikeln. Die Verarbeitung des Kupferschiefererzes erfolgte im Hochofen mit Kohle durch Schmelzen bei  $1300^\circ\text{C}$ . Dabei wurde Brannerit, zumindest zum Teil, zerstört und Uran konnte andere Bindungen eingehen. Wegen seiner hohen Adsorptionsfähigkeit für Uran erfolgte diese Bindung offensichtlich vorwiegend an Kohlenstoff.

Möglicherweise spielen Adsorbentien (z.B. Kohlenstoff, Fe-, Mn-Hydroxidgele, Tonminerale, Phosphate) bei der Ausbildung punktförmiger Radioaktivitätskonzentrationen durch die Bindung von Radionukliden wie Uran oder Thorium eine bedeutende Rolle. Darauf weisen auch im Rahmen dieser Arbeit durchgeführte Laborversuche hin. Dabei wurden Schmelztabletten von Proben (uranhaltiges Konglomerat der Blind River-Formation aus Canada, siehe unten), deren punktförmige Radioaktivitätskonzentrationen durch das Schmelzen zum Verschwinden gebracht wurden, wieder aufgelöst und auskristallisiert. Einem Teil der Proben wurde vor dem Auskristallisationsprozess Kohlenstoff bzw. Kohlenstoff und Schwefel zuge-

setzt. In den auskristallisierten Substanzen dieser Proben wurden punktförmige Radioaktivitätskonzentrationen gefunden. In den Proben, denen keine Stoffe zugesetzt wurden, fand sich dagegen eine homogene Verteilung der Radioaktivitätskonzentration. Bei weiteren Versuchen wurden Autunitkristalle aufgelöst und wieder auskristallisiert sowie ein Präzipitat einer  $^{210}\text{Pb}$ -Lösung hergestellt. Auch in diesen auskristallisierten Proben zeigte sich eine punktförmige Radioaktivitätskonzentration, obwohl den Proben keine Substanzen zugesetzt wurden. Es bedarf weiterführender Untersuchungen bezüglich der Verteilung der Radioaktivitätskonzentration bei Lösungs- und Kristallisationsprozessen, um Gesetzmäßigkeiten ableiten zu können.

Punktförmige Radioaktivitätskonzentrationen (natürliche Heiße Teilchen) einer Probe können durch deren chemische Behandlung verschwinden bzw. homogenisiert werden. Beispiele dafür sind die aus Schmelzen entstandenen anthropogenen Materialien Uranblech und Kupferschlacke sowie die aus einer Lösung ausgefallenen Rückstände der Wasserbehandlungsanlage Schlemma-Alberoda. Der Gehalt an natürlichen Heißen Teilchen in den Originalgesteinen dieser Materialien ist bewiesen (Kupferschiefer→Kupferschlacke) bzw. bekannt (Uranerze des Erzgebirges→Uranblech, Fällungsrückstände). Das gleiche Ergebnis zeigen Labortests, bei denen Proben mit punktförmiger Radioaktivitätskonzentration (uranhaltiges Konglomerat aus Canada) nach dem Schmelzen eine homogene Radioaktivitätsverteilung zeigen. Auch die Untersuchung einer uranhaltigen Substanz (Uranylacetat), die industriell durch Lösung in einer Säure hergestellt wird, erbrachte keine Hinweise auf eine punktförmige Konzentration der Radioaktivität. Es konnten nur homogene Radioaktivitätsverteilungen beobachtet werden.

Das Verhalten der gefundenen natürlichen heißen Teilchen in der Umwelt wird durch die Teilchencharakteristik, und hier besonders durch die chemische Zusammensetzung und Korngröße der Minerale, bestimmt. Bei den häufig als Einzelkörnern vorkommenden Mineralen Monazit, Zirkon und Xenotim handelt es sich um Schwerminerale, d.h. um widerstandsfähige Verwitterungsreste. In den Sedimenten der Flüsse und Bäche des Mansfelder Landes, der Elbe und Mulde sowie der Luppe bestehen die natürlichen Heißen Teilchen ausschließlich aus solchen Schwermineralen (Tab. 18). Sie haben außerdem eine weite Verbreitung als akzessorische Gemengteile, vor allem in Gesteinen der Granit-, Syenit- und Alkali-Syenitfamilie. Als solche wurden sie in den Proben von Lengenfeld wie auch in den Phosphatgesteinen von Brasilien als natürliche Heiße Teilchen identifiziert. Die von primären Uranmineralen wie Uraninit, Coffinit und Brannerit gebildeten natürlichen Heißen Teilchen wurden in den Gesteinen Kupferschiefer, Konglomerat der Blind River-Formation (Canada) und Granit von Menezschwand sowie in den industriellen Reststoffen Theisenschlamm und Haldenmaterial von Lengenfeld nachgewiesen (Tab. 18). In keinem einzigen Fall wurden primäre Uranminerale in Verwitterungsprodukten, d.h. den Fluss- und Seesedimenten, als natürliche Heiße Teilchen nachgewiesen. Dies liegt u.a. darin begründet, dass sich bei der Verwitterung der primären Uranerze das leicht lösliche sechswertige Uran bildet, das eine ausgeprägte Tendenz hat, mobil zu sein (vgl. auch Kap.2.2). Autunit, Uramphit, Uranocircit und Bassetit sind sekundär gebildete Uranylphosphate (Uranglimmer), die sich in den Oxidationszonen von komplexen Uranlagerstätten bilden. Sie wurden als natürliche Heiße Teilchen in den Graniten von Menezschwand und vereinzelt im aus dem erzgebirgischen Uranerzbergbau stammenden Haldenmaterial von Lengenfeld identifiziert. Uranglimmer gelten als stabile Orthophosphatverbindungen von hexavalentem Uran.

Die in dieser Arbeit durchgeführten Untersuchungen weisen darauf hin, dass natürliche Heiße Teilchen, d.h. die punktförmige Konzentration der Radioaktivität, ein natürliches, vermutlich seit Urzeiten existierendes Phänomen darstellen. Sie können bereits in den frühproterozoisch entstandenen, ca. 2,4 Mrd. Jahre alten Quarzgeröll-Konglomeraten der Blind River-Formation (Canada) nachgewiesen werden. Natürliche Heiße Teilchen sind eine überall vorkommende

Erscheinungsform von Radioaktivität und damit unvermeidlich. Sie können, als Partikel mit einer hohen spezifischen Aktivität, ein gesundheitliches Risiko darstellen, wenn sie in den menschlichen Körper und vor allem den Atemtrakt des Menschen gelangen. Eine besondere Rolle spielen dabei die Partikel mit Korngrößen  $<10\ \mu\text{m}$  bzw.  $<3\ \mu\text{m}$ , da diese sehr tief in den Atemtrakt eindringen können und naturgemäß eine große Flugfähigkeit besitzen. Wie die Untersuchungsergebnisse zeigen, liegt die Größe der elektronenmikroskopisch untersuchten natürlichen Heißen Teilchen zwar häufig deutlich unter  $10\ \mu\text{m}$ , jedoch handelt es sich dabei nicht immer um singuläre Heiße Teilchen. Der überwiegende Teil dieser kleinsten natürlichen Heißen Teilchen bildet Säume um größere Partikel, ist mit solchen verwachsen oder als Aggregate in größere Partikel eingesprengt. Zum Gesundheitsrisiko können solche natürlichen Heißen Teilchen dann werden, wenn die sie enthaltenden anthropogenen oder natürlichen Ablagerungen durch menschliche Eingriffe oder auch durch natürliche Prozesse (Verwitterung) zerkleinert werden, so dass die Partikel oder Bereiche mit punktförmiger Radioaktivitätskonzentration separiert werden und dabei gleichzeitig flugfähige Stäube produziert werden. Bei der Probe Konglomerat der Blind River-Formation wurde beispielsweise die elektronenmikroskopisch untersuchte Gesteinsprobe gemahlen. Dadurch wurden die vorher in den Intergranularräumen gebundenen natürlichen Heißen Teilchen separiert und lagen in der Probe als  $2\text{-}9\ \mu\text{m}$  große Einzelkörnchen vor. Bei deutlich mehr als 50 natürlichen Heißen Teilchen, die pro  $\text{cm}^2$  in diesen Proben beobachtet werden konnten, würden solche zerkleinerten Materialien ein enormes Risikopotential bergen. Als sehr problematisch in dieser Hinsicht muss beispielsweise auch der Theisenschlamm angesehen werden.

Aufgrund des Wissensdefizits bezüglich der Verbreitung und Existenz natürlicher Heißer Teilchen in natürlichen und anthropogenen Ablagerungen spielen sie im Rahmen der Überwachung der Umweltradioaktivität bisher keine Rolle und werden auch bei Aktivitätsmessungen nicht berücksichtigt bzw. erkannt. Möglicherweise werden Ergebnisse von Aktivitätsmessungen bei Anwesenheit natürlicher Heißer Teilchen fehlinterpretiert.

Eine Erfassung natürlicher Heißen Teilchen wird als sinnvoll erachtet, wenn mit einer Freisetzung dieser Teilchen (belastete Feinstäube) gerechnet und durch Inhalation oder Ingestion der natürlichen heißen Teilchen eine Gefährdung des Menschen befürchtet werden muss.

## 6 Ausblick

Die in dieser Arbeit durchgeführten Untersuchungen haben gezeigt, dass natürliche Heiße Teilchen eine in der Umwelt weit verbreitete, natürliche Erscheinungsform der Radioaktivität sind. Mit dem entwickelten Analyseverfahren können diese Heißen Teilchen in festen Proben lokalisiert, markiert und elektronenmikroskopisch charakterisiert werden.

Da das Analyseverfahren, und hier insbesondere die elektronenmikroskopischen Untersuchungen, mit einem hohen Zeit- und Kostenaufwand verbunden ist, konnten nicht alle Proben mit einem Gehalt an natürlichen Heißen Teilchen einer elektronenmikroskopischen Bearbeitung unterzogen werden. Für diese Proben konnten daher keine Angaben zur Art der natürlichen Heißen Teilchen gemacht werden. Eine diesbezügliche Untersuchung würde den in der Arbeit dokumentierten Kenntnisstand zu den Heißen Teilchen ergänzen. Durch eine Untersuchung weiterer radionuklidhaltiger Proben unterschiedlicher Genese und geographischer Herkunft könnte die weite Verbreitung der natürlichen Heißen Teilchen manifestiert werden.

Erste vergleichende Untersuchungen natürlicher Ablagerungen und durch Bearbeitung aus ihnen hervorgegangener anthropogener Stoffe (Reststoffe, Nebenprodukte) zeigen, dass sich in anthropogenen Proben enthaltene natürliche Heiße Teilchen auf die Originalgesteine zurückführen lassen. Je nach Behandlung der Originalgesteine finden sich dieselben natürlichen Heißen Teilchen im Originalgestein und bearbeiteten Material oder es kommt zu Änderungen der Größe und Bindung und chemischen Zusammensetzung der Heißen Teilchen in den anthropogenen Stoffen. Es bedarf diesbezüglich noch weiterer vergleichender Untersuchungen, um entscheidende Aussagen ableiten zu können.

Gammaspektrometrische Messungen, die Gehalten an natürlichen Heißen Teilchen gegenübergestellt wurden, belegen, dass eine hohe Gammaaktivität der Probe nicht gleichbedeutend mit einer großen Zahl von natürlichen Heißen Teilchen in der Probe ist. Eine Rolle mag hier spielen, dass es sich bei den untersuchten Heißen Teilchen um Alphastrahler handelt und nicht alle Alphastrahler auswertbare Gammalinien haben. Interessant in diesem Zusammenhang könnten alphaspektrometrische Messungen sein. Vergleiche von Alpha-, Gammaspektrometrie und Anzahl und Art von natürlichen Heißen Teilchen in einer Probe könnten hier Inhalt weitergehender Forschungen sein.

Experimente mit Schmelzen und Auflösen von Proben, die natürliche Heiße Teilchen enthalten, haben gezeigt, dass durch diese Prozesse die diskreten Radioaktivitätsverteilungen homogenisiert werden können. Gleichzeitig können bei einer Auskristallisation von in Lösung gebrachten radionuklidhaltigen Proben auch natürliche Heiße Teilchen, d.h. diskrete Radioaktivitätskonzentrationen, entstehen. Ob dazu bestimmte, in der Lösung vorhandene Adsorbentien (z.B. Kohlenstoff) notwendig sind, konnte nicht abschließend geklärt werden. Hierzu sind weitere Untersuchungen notwendig.

## 7 Literaturverzeichnis

- ANONYMUS (2002): Vorläufiger Kurzbericht über die meteorologisch-hydrologische Situation beim Hochwasser im August 2002. Sächsisches Landesamt für Umwelt und Geologie. Version 5 vom 2.12.2002.
- ATKINS, P. W. & DE PAULA, J. (2002): Atkins' Physical Chemistry. - 1184 S.; Oxford University Press.
- AURADA, K. (1979): Zur Vollendung des Schlüssel-Stollens in der Mansfelder Mulde vor 100 Jahren. - Geographische Berichte, **24** (4): 271-279.
- AUTORENKOLLEKTIV (1959): Radioaktive Partikel. Kolloquium des "Sonderausschuß Radioaktivität" am 5. und 6. März 1959 in Bad Schwalbach. - Strahlenschutz, **12**: 204 Seiten. Herausgegeben vom Bundesminister für Atomkernenergie und Wasserwirtschaft.
- AUTORENKOLLEKTIV (1982): Radioaktivität. - 344 Seiten; VEB Bibliographisches Institut Leipzig.
- AUTORENKOLLEKTIV (1999): Chronik der Wismut. CD-ROM, herausgegeben von der Wismut GmbH (Öffentlichkeitsarbeit)
- AUTORENKOLLEKTIV (2004): Report of the Committee Examining Radiation Risks of Internal Emitters (CERRIE); London.
- BECKER, A. (2000): Schadstoffsенke Süßer See. - unveröffentl. Zwischenbericht zum UFZ-Verbundprojekt 1.3 (Feinkörnige Bergbaureststoffe und ihre Wirkung auf die Umwelt), Universität Halle-Wittenberg, Fachgruppe Mineralogie und Geochemie: 26 Seiten.
- BECKER, A., KLÖCK, W., FRIESE, K., SCHRECK, P., TREUTLER, H. C., SPETTEL, B. & DUFF, M. C. (2001): Lake Süssee as a natural sink for heavy metals from copper mining. - Journal of Geochemical Exploration, **74**: 205-217.
- BENTON, E. V. (1968): A study of charged particle track in cellulose nitrate. - U.S. Naval Radiological Defense Laboratory, **68** (14).
- BÖHNKE, A. & KATZUNG, G. (2001): The Middle Silurian from Bornholm (Denmark). - Neues Jahrbuch für Geologie und Paläontologie, Abhandlungen, **222**: 161-191.
- BÖHNKE, A., TREUTLER, H. C., FREYER, K., SCHUBERT, M. & WEISS, H. (2005): Localisation and identification of radioactive particles in solid samples by means of a nuclear track technique. - Radiation Measurements, **40** (2005): 650-653.
- BOLIVAR, J. P., GARCIA-TENORIO, R. & GARCIA-LEON, M. (1995): Fluxes and Distribution of Natural Radionuclides in the Production and Use of Fertilizers. - Appl. Radiat. Isot., **46** (6/7): 717-718.
- BOYLE, R. W. (1982): Geochemical prospecting for thorium and uranium deposits. - Developments in Economic Geology, **16**: p. 498.

- CARTWRIGHT, B. G., SHIRK, E. K. & PRICE, P. B. (1978): A nuclear-track-recording polymer of unique sensitivity and resolution. - *Nuclear Instruments and Methods*, **153**: 457-460.
- COELHO, F. S., COUCEIRO, P. R. C., LOPES, A. L. & FABRIS, J. D. (2005): Iron oxides and monazite from sands of two beaches in Espirito Santo, Brazil. - *Quím. Nova*, **28** (2): 233-237.
- DABROWSKA, M., JARACZ, P., JASTRZEBSKI, J., KACZANOWSKI, J., MIROWSKI, S., OSUCH, S., PIASECKI, E., PIENKOWSKI, L., SZEFLINSKA, G., SZEFLINSKI, Z., TROPITO, J. & WILHELMI, Z. (1987): Isotopic Composition of Hot Particles collected in North-East-Poland. - In: PHILIPSBORN, H. v. & STEINHÄUSLER, F. (Hrsg.): *Hot Particles From The Chernobyl Fall-out*. - Proceedings of the 5th Radiometric Seminar Theuern: 63-76. Schriftenreihe des Bergbau- und Industriemuseums Ostbayern Theuern; Theuern.
- DIEHL, P. (1991): Uranabbau in Europa. - In: Tagungsband der Bürgerinitiative gegen Uranabbau im Südschwarzwald. - Tagung der Bürgerinitiativen gegen Uranabbau in Europa, Zwickau (Sachsen) 1.-3.8.1991: 108 Seiten.
- DURRANI, S. A. & BULL, R. K. (1987): *Solid State Nuclear Track Detection: Principle, Methods and Applications*, Vol. 111, 1<sup>st</sup> edition. - 304 p.; Pergamon Press (Oxford).
- DURRANI, S. A. & ILIC, R. (1997): *Radon Measurements by Etched Track Detectors. Applications in Radiation Protection, Earth Sciences and the Environment*. - 387 p.; World Scientific Publishing Co. Pte. Ltd. (Singapore).
- EISENÄCHER, W. & JÄGER, D. (1997): Die Verhüttung des Mansfelder Kupferschiefers unter besonderer Berücksichtigung der Verarbeitung von Rohhüttenschlacke. - In: SCHRECK, P. & GLÄBER, W. (Hrsg.): *Reststoffe der Kupferschieferverhüttung. Teil 1: Mansfelder Kupferschlacken*: 3-7; UFZ-Umweltforschungszentrum Leipzig-Halle GmbH, Sektion Hydrogeologie.
- ENGE, W. (1980): Introduction to Plastic Nuclear Track Detectors. - *Nucl. Tracks*, **4** (4): 283-308.
- FLEISCHER, R. L., PRICE, P. B. & WALKER, R. M. (1975): *Nuclear Tracks in Solids. Principles and Applications*. - 605 p.; University of California Press (Berkeley).
- FREYER, K., SCHRECK, P., TREUTLER, H. C. & WEISS, H. (2002): Tracing environmental contamination in a mining district by radioactive disequilibrium studies. - In: STRAND, P., BØRRETZEN, P. & JØLLE, T. (Hrsg.): *International IUR Conference on Radioactivity in the Environment*: 229-232. International Union of Radioecology; Monaco.
- FROMM, M., VAGINAY, F., PUSSET, D., MEESEN, G., CHAMBAUDET, A. & POFFIJN, A. (2000): 3-D Confocal Microscopy of Etched Nuclear Tracks in CR-39. - 1<sup>st</sup> International Workshop on Space Radiation Research and 11<sup>th</sup> Annual NASA Space Radiation Health Investigators' Workshop: 144-146.
- FULDA, E. (1929): *Abgedeckte geologische Übersichtskarte der Mansfelder Mulde. Erläuterungen zur Geologischen Karte von Preußen, Blatt Eisleben. Maßstab 1:100 000*. Preußische Geologische Landesanstalt Berlin.

- GELLER, W., OCKENFELD, K., BÖHME, M. & KNÖCHEL, A. H. (2004): Schadstoffbelastung nach dem Elbe-Hochwasser 2002. - Ad-hoc-Projekt Schadstoffuntersuchungen Elbe-Hochwasser August 2002. - 462 Seiten; UFZ - Umweltforschungszentrum Leipzig-Halle GmbH, Department Fließgewässerökologie (Magdeburg).
- GELLERMANN, R., SCHULZ, H., KÜPPERS, C., BECKER, B., MOHR, S. & SCHELLENBERGER, A. (2003): Mengenaufkommen an NORM-Rückständen für das deutsche Entsorgungskonzept. - Abschlußbericht zum Vorhaben SR 2416 des Bundesamtes für Strahlenschutz: 225 S.
- GOLDSTEIN, J. I., NEWBURY, D. E., ECHLIN, P., JOY, D. C., FIORI, C. & LIFSHIN, E. (1992): Scanning electron microscopy and x-ray microanalysis. - 820 pages; Plenum Press (New York).
- GRAEWE, H. (1988): Atom- und Kernphysik. Grundlagen-Elementarteilchen-Atomhülle-Atomkern. - 606 Seiten; R. Oldenbourg Verlag (München; Wien).
- GROOS, E. (1959): Entstehung, Zusammensetzung und Struktur von heißen Teilchen. - In: AUTORENKOLLEKTIV (Hrsg.): Radioaktive Partikel. Kolloquium des "Sonderausschuß Radioaktivität" am 5. und 6. März 1959 in Bad Schwalbach. Herausgegeben vom Bundesminister für Atomkernenergie und Wasserwirtschaft: 9-22; Braunschweig.
- GRUNWALD, E. (2000): Herkunft und Verbreitung von Schwermetallen in Bachsedimenten des Mansfelder Landes. - unveröffentl. Diplomarbeit: 67 S.; Institut für Geophysik und Geologie der Universität Leipzig, Studiengang Geologie und Paläontologie.
- GUHR, A. (1991): Entwicklung eines verbesserten CR-39-Detektormaterials und dessen Anwendungsmöglichkeiten in passiven Messsystemen zur Bestimmung von Radon und Radon-Zerfallsprodukten in der Luft. - Dissertation: 70 Seiten; Fakultät für Angewandte Physik, TU Bergakademie Freiberg.
- HAMMER, J., JUNGE, F., RÖSLER, H. J., NIESE, S., GLEISBERG, B. & STIEHL, G. (1990): Element and isotope geochemical investigations of the Kupferschiefer in the vicinity of "Rote Fäule", indicating copper mineralization (Sangerhausen basin, G.D.R.). - *Chemical Geology*, **85**: 345-360.
- HOSTETLER, P. B. & GARRELS, R. M. (1962): Transportation and precipitation of uranium and vanadium at low temperatures with special reference to sandstone-type uranium. - *Econ. Geol.*, **57**: 137-167.
- ISSA FILHO, A., LIMA, P. R. A. & SOUZA, O. M. (1984): Aspects of Geology of the Barreiro Carbonatitic Complex, Araxá, MG, Brazil. - *Carbonatitic Complexes of Brazil* (São Paulo, Brazil: CBMM).
- IWATSCHENKO, M., LUX, D., STEINKOPFF, T., WERSHOFEN, H. & WINKLER, R. (1998): "Heiße Teilchen": kleine Ursache - große Wirkung? - *StrahlenschutzPRAXIS*, **4** (2): 35-39.
- JAHN, S., MATHEIS, G. & SCHRECK, P. (1997): Schwermetallmobilisierung in typischen Haldenkomponenten am Standort Helbra, Mansfelder Kupferschieferrevier. - In: SCHRECK, P. & GLÄBER, W. (Hrsg.): *Reststoffe der Kupferschieferverhüttung*: 17-23; UFZ-Bericht.

- JANKOWSKI, G. B. (1995): Zur Geschichte des Mansfelder Kupferschieferbergbaus. - 370 Seiten; Gesellschaft für Bergbau, Metallurgie, Rohstoff- und Umwelttechnik e.V. (Clausthal-Zellerfeld).
- KEMSKI, J., KLINGEL, R. & SIEHL, A. (1996): Die terrestrische Strahlung durch natürliche radioaktive Elemente in Gesteinen und Böden. - In: SIEHL, A. (Hrsg.): Umweltradioaktivität: 69-96; Ernst & Sohn (VCH).
- KLINGEL, R., KLINGER, C. & THEIN, J. (1995): Zur Mobilität von Uran und Radium. - In: MERKEL, B., HURST, S., LÖHNERT, E. P. & STRUCKMEIER, W. (Hrsg.): Uranium mining and hydrogeology: 315-324; GeoCongress.
- KNAPPIK, R., HEYNE, W. & MOCKER, D. (1993): Untersuchungen an Tailings zur Schadstoff-Substrat-Wechselwirkung an der Übergangszone Absetzschlamm-Basismaterial.- Förderprojekt des SMU.
- KNAPPIK, R., MOCKER, D. & FRIEDRICH, M. (1996): Migrationsverhalten von Radionukliden in Tailings unter besonderer Berücksichtigung des Oxidationspotentials in alten Tailingsablagerungen. Verein für Kern- und Verfahrenstechnik und Analytik e.V. Rossendorf. Manuskript.
- LANGE, G., MÜHLSTEDT, P., FREYHOF, G. & SCHRÖDER, B. (1991): Der Uranerzbergbau in Thüringen und Sachsen. Ein geologisch-bergmännischer Überblick. - Erzmetall, **44** (3): 162-171.
- LEHMANN, R. (1996): Strahlenbelastung durch natürliche Radionuklide in Baumaterialien, fossilen Brennstoffen und Düngemitteln. - In: SIEHL, A. (Hrsg.): Umweltradioaktivität: 135-156; Ernst & Sohn (VCH Verlagsgruppe).
- LÖSTER, W. (1991): Strahlung im Alltag. - Mensch und Umwelt. Ein Magazin des GSF-Forschungszentrums für Umwelt und Gesundheit, **7**: S.7.
- LUX, D., IWATSCHENKO-BOHRO, M., STEINKOPFF, T., WERSHOFEN, H. & WINKLER, R. (1996): Einfluß von "Heißen Teilchen" auf Meßverfahren zur Überwachung der Umweltradioaktivität. Empfehlungen zur Überwachung der Umweltradioaktivität. - Loseblattsammlung des Fachverbandes für Strahlenschutz, **Publikation FS-78-15-AKU**: 10 Seiten.
- LYMAN, C. E. (1990): Scanning electron microscopy, X-ray microanalysis and analytical electron microscopy. A laboratory workbook. - 407 pages; Plenum (New York).
- MEINRATH, A., SCHNEIDER, P. & MEINRATH, G. (2003): Uranium ores and depleted uranium in the environment, with a reference to uranium in the biosphere from the Erzgebirge/Sachsen, Germany. - J. Environ. Radioactivity, **64**: 175-193.
- MERKEL, B. & HELLING, C. (1999): Allgemeine und spezielle hydrogeologische Fragestellungen - Expositionspfad Wasser. In: Sächsisches Staatsministerium für Umwelt und Landwirtschaft (Hrsg.): Leitfaden Uranbergbausanierung. - Wegweiser für den Umgang mit radioaktiv kontaminierten Materialien, Flächen, Bergehalden und Absetzanlagen aus dem Altbergbau. Materialien zu Strahlenschutz/Umweltradioaktivität. - Anlage 5.

- MÖNKE, R., KUNERT, J. & OBRİKAT, D. (1980): Auswirkung der Ra-Gehalte in den Phosphatdüngemitteln auf die Strahlenbelastung der Bevölkerung der DDR. - Report SAAS-280, **2**.
- MORENCY, M., WEISS, H., FREYER, K., BOURNE, J., FONTAINE, D., MINEAU, R., MÖDER, M., MORGENSTERN, P., POPP, P., PREDA, M., TREUTLER, H. C. & WENNRICH, R. (1998): Oxidation treatment of a sulphide-bearing scrubber dust from Mansfield Region, Germany: Organic and inorganic phase changes and multi-element partition coefficients between liquid and solid phases. - *The Science of Total Environment*, **223**: 87-97.
- NEINAVAIE, H., PIRKL, H. & TRIMBACHER, C. (2000): Herkunft und Charakteristik von Stäuben. - Umweltbundesamt Wien, BE-171.
- OHLENDORF, F. (2000): Entstehung der radiologischen Altlasten des Bergbaus. - In: Sächsisches Staatsministerium für Umwelt und Landwirtschaft (Hrsg.): Leitfaden Uranbergbau-sanierung. - Wegweiser für den Umgang mit radioaktiv kontaminierten Materialien, Flächen, Bergehalden und Absetzanlagen aus dem Altbergbau. Materialien zu Strahlenschutz/Umweltradioaktivität. - Anlage 2, 26 S.
- ORRIS, G. J. & GRAUCH, R. I. (2002): Rare Earth Element Mines, Deposits, and Occurrences. - USGS Open-File Report 02-189.
- PASCHOA, A. S. & GODOY, J. M. (2002): The areas of high natural radioactivity and TENORM wastes. - *International Congress Series*, **1225**: 3-8.
- PASCHOA, A. S., MAFRA, O. Y., CARDOSO, D. O. & ROCHA, A. C. S. (1984): Application of SSNTD to the Brazilian phosphate fertilizer industry to determine uranium concentrations. - *Nuclear Tracks and Radiation Measurements*, **8** (1-4): 469-472.
- PFEITER, H. & PAULY, H. (1980): External radiation exposure due to natural radionuclides in phosphate fertilizers in the Federal Republic of Germany. - Seminar on the Radiological Burden of Man from Natural Radioactivity in the Countries of the European Communities-CEC, V 12408/80.
- PHILIPSBORN, H. V. & GEIPEL, R. (2003): Radioaktivität und Strahlungsmessung. - 244 S., 7. neu bearbeitete und erweiterte Auflage; Bayerisches Staatsministerium für Umwelt, Gesundheit und Verbraucherschutz (München).
- PRUD'HOMME, F., MORENCY, M., FREYER, K., WEISS, H., BOURNE, J., DAUS, B., FONTAINE, D., MATTUSCH, J., MINEAU, R., PREDA, M., TREUTLER, H. C. & WENNRICH, R. (1999): Surfactant separation as a technique for physical and chemical characterization of ore processing residues. - *The Science of Total Environment*, **243/244**: 9-20.
- RAJEWSKI, B. (1959): Radioaktive Partikel. Kolloquium des "Sonderausschuß Radioaktivität" am 5. und 6. März 1959 in Bad Schwalbach. Herausgegeben vom Bundesminister für Atomkernenergie und Wasserwirtschaft. - *Strahlenschutz*, **12**: 5.
- RAMDOHR, P. (1979): Daten und Bilder von Mineralien des U<sup>4+</sup> verschiedenen Alters und verschiedener Herkunft. - *Zeitschrift der Deutschen Geologischen Gesellschaft*, **130**: 439-458.

- RAUNEMAA, R., SAARI, H., LUOKKANEN, S. & LEHTINEN, S. (1987): Hot Particles in the Fall-out of Chernobyl in Finland. - In: PHILIPSBORN, H. v. & STEINHÄUSLER, F. (Hrsg.): Hot Particles From The Chernobyl Fallout. Proceedings of the 5th Radiometric Seminar Theuern: 77-84. Schriftenreihe des Bergbau- und Industriemuseums Ostbayern Theuern; Theuern.
- REED, S. J. B. (1993): Electron microprobe analysis and scanning electron microscopy in geology. - 201 pages; Cambridge University Press.
- REIß, M. & GOCK, E. (2000): Verwertung von Theisenschlämmen als Alternative zur Depositionierung. - Schriftenreihe des Mansfeld-Museums (Neue Folge), **5**: 25-38.
- RÖSLER, H. J. (1984): Lehrbuch der Mineralogie. - 834 Seiten; VEB Deutscher Verlag für Grundstoffindustrie (Leipzig).
- SALBU, B. (2001): Hot Particles - a challenge within radioecology. - Journal of Environmental Radioactivity, **53**: 267-268.
- SANDALLS, F. J., SEGAL, M. G. & VICTOROVA, N. (1993): Hot particles from Chernobyl: A review. - Journal of Environmental Radioactivity, **18**: 5-22.
- SCHMIDT, A. (2004): Einfluss des Niederschlagswassers auf die Schwermetallmobilisierung aus feinstkörnigen Bergbaureststoffen am Beispiel des Mansfelder Landes. - unveröffentl. Diplomarbeit: 96 S.; Universität Leipzig.
- SCHRECK, P. (1997): Schadstoffausträge aus den Halden der Kupferschieferverschüttung. - In: SCHRECK, P. & GLÄBER, W. (Hrsg.): Reststoffe der Kupferschieferverschüttung. Teil 1: Mansfelder Kupferschlacken.: 9-16; UFZ-Umweltforschungszentrum Leipzig-Halle GmbH, Sektion Hydrogeologie.
- SCHRECK, P. (2002): Zur Verbreitung von Metallen aus Bergbaurückständen auf dem Wasserpfad: Elementspezifische Transportmechanismen und Bilanzierung der Metallfrachten im Mansfelder Land (TRANSMET). - Zwischenbericht für das UFZ-Umweltforschungszentrum Leipzig-Halle: 33 S.
- SCHRECK, P., SCHUBERT, M., FREYER, K., TREUTLER, H. C. & WEISS, H. (2005): Multi-metal contaminated stream sediment in the Mansfeld mining district: metal provenance and source detection. - Geochemistry: Exploration, Environment, Analysis, **5**: 51-57.
- SCHUBERT, M., MORGENSTERN, P. & WENNRICH, R. (2001): On the Weathering Behaviour of Theisenschlamm. - In: DAUS, B. & WEIß, H. (Hrsg.): Fine-grained residues from copper smelting and their environmental impacts: 37-47; UFZ-Umweltforschungszentrum Leipzig-Halle GmbH.
- SCHWEDT, G. (1995): Analytische Chemie. Grundlagen, Methoden und Praxis. - 442 S.; Georg Thieme Verlag (Stuttgart).
- SELCHAU-HANSEN, K., GHOSE, R., FREYER, K., TREUTLER, H. C. & ENGE, W. (1999): Hot particles in industrial waste and mining tailings. - Radiation Measurements, **31**: 451-454.
- SIEHL, A. (1996): Umweltradioaktivität. - 411 S.; Ernst & Sohn (VCH Verlagsgruppe).

- STEINHÄUSLER, F. (1987): Hot Particles in the Chernobyl Fallout and Summary. - In: PHILIPSBORN, H. v. & STEINHÄUSLER, F. (Hrsg.): Hot Particles From The Chernobyl Fall-out. Proceedings of the 5th Radiometric Seminar Theuern: 15-22, 143-144. Schriftenreihe des Bergbau- und Industriemuseums Ostbayern Theuern; Theuern.
- STOLZ, W. (1996): Radioaktivität: Grundlagen, Messung, Anwendungen. - 212 S., 3. bearb. Aufl.; Teubner (Stuttgart und Leipzig).
- STRAHLENSCHUTZKOMMISSION (1976): Zur Toxizität inhalierter heißer Partikel, insbesondere von Plutonium. - Veröffentlichungen der Strahlenschutzkommission, Band 1.
- TONNDORF, H. (1994): Metallogenie des Urans im ostdeutschen Zechstein. Ein Beitrag zum Nachweis und zur Charakteristik hypergener stofflicher Umverteilungs- und Anreicherungsprozesse. - Abhandlungen der Sächsischen Akademie der Wissenschaften zu Leipzig. Mathematisch-Naturwissenschaftliche Klasse, **58** (3).
- TÖRÖK, S., OSÁN, J., VINCZE, L., ALFÖLDY, B., KERKÁPOLY, A., VAJDA, N., PÉREZ, C. A. & FALKENBERG, G. (2003): Comparison of nuclear and X-ray techniques for actinide analysis of environmental hot particles. - J. Anal. At. Spectrom., **18** (10): 1202-1209.
- TREUTLER, H.C. (2002): Bestimmung der natürlichen Radioaktivität in Schlammproben aus den Überschwemmungsgebieten von Elbe und Mulde. - interner Bericht, UFZ-Umweltforschungszentrum Halle-Leipzig, Department Analytik: 11 Seiten.
- TSCHIERSCH, J., BUNZL, K., WAGENPFEIL, F. & WINKLER, R. (2000): Lokalisierung von "heißen Teilchen". - Schriftenreihe Reaktorsicherheit und Strahlenschutz, Bericht BMU-2000-548: 1-100.
- UNSCEAR (1977): Sources and Effects of Ionizing Radiation. - Report to the General Assembly (United Nations, New York).
- VALKOVIĆ, V. (2000): Radioactivity in the Environment. - 681 pages, first edition; Elsevier.
- VIEWEG, M. (1995): Regionale Verteilung der Uranerzlagerstätten Sachsens und Thüringens. - Zeitschrift für Geologische Wissenschaften, **23** (5/6): 547-552.
- WAGENBRETH, O. (1978): Zur Vollendung des Rotschönberger Stollens vor hundert Jahren (1877). - Neue Bergbautechnik, **8** (11): 654-660.
- WAHL, W. (2004): Radionuklid-Handbuch-Referenztablelle für den Anwender in der Spektrometrie, im Strahlenschutz und der Medizin, Version: 3.9.1. - 130 S.; ISuS (Institut für Spektrometrie und Strahlenschutz, Schliersee).
- WEISS, H., MORENCY, M., FREYER, K., BOURNE, J., FONTAINE, D., MÖDER, M., MORGENSTERN, P., POPP, P., TREUTLER, H. C. & WENNRICH, R. (1997): Physical and Chemical Characterization of a Complexly Contaminated Scrubber Dust - a by-product of copper smelting in Sachsen-Anhalt, Germany. - Science of the Total Environment, **203**: 65-78.

WENNRICH, R., MORGENSTERN, P., MÖDER, M., POPP, P., PASCHKE, A. & VRANA, B. (2001): Chemical Characterization of Theisenschlamm. - In: DAUS, B. & WEIB, H. (Hrsg.): Fine-grained residues from copper smelting and their environmental impacts: 17-24; UFZ-Umweltforschungszentrum Leipzig-Halle GmbH.

WHITNEY, D. B. (1975): Aolite History and Technical Orientation.

WOOLLEY, A. R. (1987): Alkaline rocks and carbonatites of the world; Part 1, North and South America. - 216 pages; British Museum of Natural History (London).

**Literatur aus dem Internet, Stand Mai 2006:**

<http://de.wikipedia.org>

<http://de.wikipedia.org/wiki/Betazerfall>

<http://www.kernenergie-wissen.de>

<http://www.zeiss.de>

<http://www.smulg.de>

<http://www.wismut.de/sanierung>

<http://www.fal.de>

<http://www.news-report.de>

<http://osiris2.pi-consult.de/view.php3?show=56020251>

## Danksagung

Ich möchte mich bei allen bedanken, die mich während meiner Arbeit als Doktorandin am UFZ-Umweltforschungszentrum in irgendeiner Form unterstützt haben und so zum Gelingen der Arbeit beigetragen haben. Mein besonderer Dank gilt den nachfolgend aufgeführten Personen.

Herrn Dr. H.C. Treutler und Herrn Dr. K. Freyer für die Initiierung der Arbeit, die Unterstützung sowie die fachliche Betreuung und Begutachtung der Arbeit sowie Herrn Dr. H.C. Treutler für die gammaspektrometrischen Analysen.

Herrn Dr. R. Wennrich für die jederzeit gewährte Unterstützung, die ständige Diskussions- und Hilfsbereitschaft und das Interesse an meiner Arbeit.

Herrn Prof. W. Ehrmann, Herrn Dr. G. Jönsson und Herrn Dr. H. Weiß für die kritische Durchsicht des Manuskriptes.

Herrn Dr. P. Schreck für die vielen wertvollen Anregungen, seine Motivation, sein Interesse an der Arbeit, die ständige Diskussionsbereitschaft und die gemeinsamen Geländearbeiten.

Für die Überlassung von Proben danke ich: Herrn Dr. P. Schreck (Sedimentproben aus dem Mansfelder Land, Dickschliffe von Kupferschiefer-Reicherzen aus dem Raum Helbra); Herrn Dr. H. Weiß (Granit von Menzenschwand, Konglomerate der Blind River-Formation aus Canada, Monazitsande aus Brasilien, Autunitkristalle von Bergen); Herrn Prof. em. Schreiter (Kraftwerksasche Lippendorf), Herrn R. Krieg (Düngerproben); Herrn M. Timpe (Autunitkristalle Erzgebirge); Herrn Dr. M. Werner (Ascheproben der Kraftwerke Mumsdorf und Deuben) und Frau Dr. A. Müller (Sedimentproben aus Südamerika).

Frau Christina Petzold für die jederzeit gewährte Unterstützung bei Laborarbeiten, insbesondere bei den Arbeiten am Lichtmikroskop, und für die gute Zusammenarbeit.

Herrn G. Feldmann für die Einbettung und Schliffherstellung der Proben.

Herrn Dr. Th. Doering für die Möglichkeit zu Messungen an der Elektronenstrahl-Mikrosonde, die Diskussionsbereitschaft, Geduld und die wertvollen Hinweise bezüglich der Mineralogie der „Heißen Teilchen“.

Frau B. Werner und Herrn Dr. M. Werner für die Geduld während unzähliger Messungen am Rasterelektronenmikroskop, die freundschaftliche Zusammenarbeit und die zeitweise Aufnahme und Verpflegung in der „mpa-Familie“.

Frau Gudrun Schuhmann für die Hilfe bei der Beschaffung von Kartenmaterial.

Den Mitarbeitern der Abteilungen Umweltradioaktivität und Anorganische Analytik des Departments Analytik für die Unterstützung bei Laboruntersuchungen.

Frau Dr. B. Daus für die gemeinsame Probennahme an der Lupe.

Mein ganz besonders herzlicher Dank gilt meinen Eltern Frank und Christa Niedzwiedz für ihre Unterstützung, ihre Motivation, ihr Vertrauen in mich und ihre unerschütterliche Liebe.

## Anhang

Anhang A 1	Exposition und Lichtmikroskop-Untersuchungen: Theisenschlamm
Anhang A 2	Ergebnisse der Elektronenmikroskop-Untersuchungen: Theisenschlamm
Anhang B	Exposition und Lichtmikroskop-Untersuchungen: Kupferschlacke
Anhang C 1	Exposition und Lichtmikroskop-Untersuchungen: Urantailings Dänkritz
Anhang C 2	Ergebnisse der Elektronenmikroskop-Untersuchungen: Urantailings Dänkritz
Anhang D 1	Exposition und Lichtmikroskop-Untersuchungen: Haldenmaterial Lengelfeld
Anhang D 2	Ergebnisse der Elektronenmikroskop-Untersuchungen: Haldenmaterial Lengelfeld
Anhang E	Exposition und Lichtmikroskop-Untersuchungen: WBA Schlema-Alberoda
Anhang F	Exposition und Lichtmikroskop-Untersuchungen: Kraftwerksaschen
Anhang G 1	Exposition und Lichtmikroskop-Untersuchungen: Phosphatgesteine, Phosphorgips und Versuchsbausteine von Brasilien
Anhang G 2	Ergebnisse der Elektronenmikroskop-Untersuchungen: Phosphatgesteine, Phosphorgips und Versuchsbausteine von Brasilien
Anhang H 1	Exposition und Lichtmikroskop-Untersuchungen: Phosphatdünger und Stickstoffdünger
Anhang H 2	Ergebnisse der Elektronenmikroskop-Untersuchungen: Phosphatdünger
Anhang I 1	Exposition und Lichtmikroskop-Untersuchungen: Kupferschiefer
Anhang I 2	Ergebnisse der Elektronenmikroskop-Untersuchungen: Kupferschiefer
Anhang J 1	Exposition und Lichtmikroskop-Untersuchungen: Fluss- und Bachsedimente des Mansfelder Landes
Anhang J 2	Ergebnisse der Elektronenmikroskop-Untersuchungen: Fluss- und Bachsedimente des Mansfelder Landes
Anhang K	Exposition und Lichtmikroskop-Untersuchungen: Seesedimente vom Süßen See
Anhang L 1	Exposition und Lichtmikroskop-Untersuchungen: Überflutungssedimente von Elbe und Mulde
Anhang L 2	Ergebnisse der Elektronenmikroskop-Untersuchungen: Überflutungssedimente von Elbe und Mulde
Anhang M 1	Exposition und Lichtmikroskop-Untersuchungen: Sedimente aus der Luppe
Anhang M 2	Ergebnisse der Elektronenmikroskop-Untersuchungen: Sedimente aus der Luppe
Anhang N	Exposition und Lichtmikroskop-Untersuchungen: Seesedimente aus Südamerika
Anhang O	Exposition und Lichtmikroskop-Untersuchungen: Monazitsande von Brasilien
Anhang P	Exposition und Lichtmikroskop-Untersuchungen: Zirkone von Bornholm
Anhang Q	Exposition und Lichtmikroskop-Untersuchungen: Autunitkristalle
Anhang R 1	Exposition und Lichtmikroskop-Untersuchungen: Uranhaltiges Konglomerat der Blind River Formation Canada
Anhang R 2	Ergebnisse der Elektronenmikroskop-Untersuchungen: Uranhaltiges Konglomerat der Blind River Formation Canada
Anhang S 1	Exposition und Lichtmikroskop-Untersuchungen: Uranhaltiger Granit von Menzenschwand
Anhang S 2	Ergebnisse der Elektronenmikroskop-Untersuchungen: Uranhaltiger Granit von Menzenschwand
Anhang T	Exposition und Lichtmikroskop-Untersuchungen: Gesteinsproben verschiedener Regionen Sachsens
Anhang U	Exposition und Lichtmikroskop-Untersuchungen: Autunitkristalle
Anhang W	Exposition und Lichtmikroskop-Untersuchungen: Uranylacetat und $^{210}\text{Pb}$ -Präzipitat



## Anhang A 1 Theisenschlamm

Überblick über die exponierten Theisenschlamm-Proben und Ergebnisse der lichtmikroskopischen Auswertung des Alphaspuren-Inventars auf den Festkörperspurdetektoren unter Angabe der Expositions-Nummer (Nr.), Expositionsdauer (t), Anzahl ( $n_{HT}$ ) der Heiße Teilchen-Spuren (Sternspurmuster) pro  $cm^2$ , der Spurdichte ( $\delta_{Spur}$ ) von Alphapartikeln und Hinweis auf eine weitere Bearbeitung der Probe mit einem Elektronenmikroskop. EMS=Elektronenstrahlmikrosonde, REM=Rasterelektronenmikroskop.

<b>Nr.</b>	<b>Probe</b>	<b>t</b>	<b><math>n_{HT}</math></b>	<b><math>\delta_{Spur}</math></b>	<b>Methoden</b>
207	Theisenschlamm eingebettet	4 Wochen	1	hoch	
208	Theisenschlamm eingebettet	4 Wochen	5	sehr hoch	EMS, REM
233	Theisenschlamm eingebettet (75 cm Tiefe)	7 Wochen	3	sehr hoch Cluster	EMS, REM
360	Theisenschlamm eingebettet (5 cm Tiefe)	8 Wochen	4	sehr hoch	EMS, REM
361	Theisenschlamm eingebettet (150 cm Tiefe)	8 Wochen	4	sehr hoch Cluster	EMS, REM
362	Theisenschlamm eingebettet (300 cm Tiefe)	8 Wochen	6	sehr hoch Cluster	
363	Theisenschlamm eingebettet (500 cm Tiefe)	8 Wochen	6	sehr hoch Cluster	
364	Theisenschlamm eingebettet (700 cm Tiefe)	8 Wochen	5	sehr hoch Cluster	REM

## Anhang A 2 Theisenschlamm

Ergebnisse der Elektronenmikroskop-Untersuchungen der Theisenschlamm-Proben.

$n_M$  = Anzahl der auf der Probenoberfläche markierten Bereiche (Bezeichnungen mit Buchstaben des Alphabets), in denen mit Hilfe von Festkörperspur-Detektoren Alphaemitter (Heiße Teilchen) lokalisiert wurden

$n_\alpha$  = Anzahl der markierten Bereiche, in denen Alphaemitter nachgewiesen werden konnten

Charakteristik = Beschreibung der detektierten Alphaemitter (Elementzusammensetzung, Mineral, Korngröße/-form). In Klammern angegebene Elemente sind in geringeren Mengen enthalten, was durch einen schwachen Peak im Spektrum angezeigt wird. Elemente mit einem Ausrufezeichen zeigten im Spektrum einen deutlichen Peak, sie haben einen großen Anteil an der im Probenausschnitt analysierten Elementzusammensetzung.

Spektrum = Hinweis auf Abbildung von EDX-Spektrum und REM-Aufnahme des entsprechenden Alphaemitters (Abb. im Kap. 4; Tafeln in der Anlage)

Nr.	$n_M$	$n_\alpha$	Charakteristik	Spektrum
208	17	5	<u>208 a:</u> U, Fe, Si, Al, (K, Zn, S) = <i>Uranglimmer?</i> <u>208 e:</u> Si, (Al), Y, U, Ca = <i>UO<sub>2</sub> in silikatischer Matrix?; Uran-silikat?</i> <u>208 g:</u> U, C = <i>Uran in Kohlenstoffmatrix?</i> <u>208 h:</u> U, Ti, Ca, S, (Fe) = <i>Brannerit?</i> <u>208 j:</u> <b>U!</b> , (Si, Al) = <i>Uran in Kohlenstoffmatrix?</i> ; ca. 2 $\mu\text{m}$ großes Korn und viele kleinere in dunkler Matrix (Kohlenstoff)	keine Tafel 1  keine keine Tafel 2
233	13	5	<u>233 a:</u> U = <i>UO<sub>2</sub></i> ; Uran auf Korn aus Pb, S, Cu, Zn, Fe <u>233 aa:</u> Ti, U, Ca, (Si) = <i>Brannerit</i> <u>233 i:</u> U, Si, Pb, Fe, Zn, S = <i>Uran in Kohlenstoffmatrix?</i> <u>233 j:</u> U, Zn, (Cu), S, Y, Si = <i>UO<sub>2</sub></i> <u>233 l:</u> U, Ba, Ca, (Pb), Zn, S, K, Fe = <i>Uranocircite?</i>	Abb.: 34 Tafel 3 Tafel 4 Tafel 5 und 6 keine
360	16	6	<u>360 e:</u> U = <i>Uran in Kohlenstoffmatrix</i> <u>360 f:</u> U, S, Si, (Fe, Zn) = <i>Uran in Kohlenstoffmatrix</i> <u>360 g:</u> U, Si (Al, Zn, S) = <i>UO<sub>2</sub> an Silikat Korn</i> <u>360 k:</u> U, Si, Ti (Ca, Pb, Zn, Fe, S) = <i>Brannerit?</i> <u>360 m:</u> U, Si, Pb, S, Fe, Zn, Cu, K = <i>Uran an Silikat Korn</i> <u>360 p:</u> U, S, Si, Fe, Zn, Cu, Pb, Al = <i>Uran an Silikat Korn</i>	Tafel 7 Abb.:35 Tafel 8 Tafel 9 Tafel 10 Tafel 11
361	15	6	<u>361 i:</u> U, Ca, Pb, Si = <i>UO<sub>2</sub></i> <u>361 k:</u> U, S, Si, Pb, Zn, P = <i>UO<sub>2</sub></i> <u>361 l:</u> U, Si, Fe, Pb, P, Cu, Zn, S = <i>UO<sub>2</sub></i> <u>361 m:</u> U, Pb, C (Zn, Fe, Si, Ca) = <i>Uran in Kohlenstoffmatrix</i> <u>361 v:</u> U, Pb, Al, Si, Zn = <i>UO<sub>2</sub></i> ; Silikat Korn mit Uran <u>361 x:</u> U, Pb, Zn, Fe, Si, Cu, (S) = <i>UO<sub>2</sub></i> ; heller Saum an Korn gemischen (Kohlenstoff und Pb-Zn-Si-Korn)	Tafel 12 Tafel 13 Tafel 14 Tafel 15 Tafel 16 Tafel 17
364	19	9	<u>364 b:</u> U = <i>Uran in Kohlenstoffmatrix</i> <u>364 c:</u> U = <i>UO<sub>2</sub>?</i> ; aber sehr schwacher U-Peak <u>364 d:</u> U (Pb, Si); $\rightarrow$ 2 räumlich getrennte Bereiche mit deutlich Uran = <i>Uran in Kohlenstoffmatrix/UO<sub>2</sub></i> <u>364 i:</u> U = <i>Uran in Kohlenstoffmatrix</i> <u>364 l:</u> U, (Si!, Pb, S) = <i>UO<sub>2</sub></i> <u>364 m:</u> U, Pb, Zn, Si = <i>Uran in Kohlenstoffmatrix</i> <u>364 n:</u> U = <i>Uran in Kohlenstoffmatrix?</i> <u>364 o:</u> U, S, Si = <i>Uran in Kohlenstoffmatrix</i> <u>364 q:</u> U = <i>Uran in Kohlenstoffmatrix</i>	Tafel 18 Tafel 19 Tafel 20 und Tafel 21 keine Tafel 22 Tafel 23 Tafel 24 Tafel 25 Tafel 26

**Anhang B Kupferschlacke**

Überblick über die exponierten Kupferschlacke-Proben und Ergebnisse der lichtmikroskopischen Auswertung des Alphaspuren-Inventars auf den Festkörperspurdetektoren unter Angabe der Expositions-Nummer (Nr.), Expositionsdauer (t), Anzahl ( $n_{HT}$ ) der Heiße Teilchen-Spuren (Sternspurmuster) pro  $\text{cm}^2$  und der Spurdichte ( $\delta_{\text{Spur}}$ ) von Alphapartikeln.

<b>Nr.</b>	<b>Probe</b>	<b>t</b>	<b><math>n_{HT}</math></b>	<b><math>\delta_{\text{Spur}}</math></b>
1	Kupferschlacke nicht eingebettet	3 Wochen	keine	mittel
2	Kupferschlacke nicht eingebettet	3 Wochen	keine	mittel
3	Kupferschlacke nicht eingebettet	3 Wochen	keine	mittel
4	Kupferschlacke nicht eingebettet	3 Wochen	keine	mittel
5	Kupferschlacke nicht eingebettet	3 Wochen	keine	mittel

## Anhang C 1 Urantailings Dänkritz

Überblick über die exponierten Proben des Urantailings Dänkritz und Ergebnisse der lichtmikroskopischen Auswertung des Alphaspuren-Inventars auf den Festkörperspurdetektoren unter Angabe der Expositionsnummer (Nr.), Expositionsdauer (t), Anzahl der Heiße Teilchen-Spuren (Sternspurmuster) pro  $\text{cm}^2$  ( $n_{\text{HT}}$ ), der Spurdichte ( $\delta_{\text{Spur}}$ ) von Alphapartikeln und Hinweis auf eine weitere Bearbeitung der Probe mit einem Elektronenmikroskop. EMS=Elektronenstrahlmikrosonde, REM=Rasterelektronenmikroskop.

<b>Nr.</b>	<b>Probe</b>	<b>t</b>	<b><math>n_{\text{HT}}</math></b>	<b><math>\delta_{\text{Spur}}</math></b>	<b>Methoden</b>
119	Tailingsmaterial Dänkritz nicht eingebettet	2 Wochen	72	hoch Cluster	
120	Tailingsmaterial Dänkritz nicht eingebettet	2 ½ Wochen	85	hoch Cluster	
301	Tailingsmaterial Dänkritz - A 0-3 cm Teufe eingebettet	2 Wochen	72	hoch, inhomogen verteilt Cluster	EMS
302	Tailingsmaterial Dänkritz - B 10-30 cm Teufe eingebettet	2 Wochen	43	hoch, inhomogen verteilt Cluster	
303	Tailingsmaterial Dänkritz - C 10-30 cm Teufe eingebettet	2 Wochen	55	hoch, inhomogen verteilt Cluster	EMS

## Anhang C 2 Urantailings Dänkritz

Ergebnisse der Elektronenmikroskop-Untersuchungen für die Urantailings-Proben von Dänkritz.

$n_M$  = Anzahl der auf der Probenoberfläche markierten Bereiche (Bezeichnungen mit Buchstaben des Alphabets), in denen mit Hilfe von Festkörperspur-Detektoren Alphaemitter (Heiße Teilchen) lokalisiert wurden

$n_\alpha$  = Anzahl der markierten Bereiche, in denen Alphaemitter nachgewiesen werden konnten

Charakteristik = Beschreibung der detektierten Alphaemitter (Elementzusammensetzung, Mineral, Korngröße/-form).

Nr.	$n_M$	$n_\alpha$	Charakteristik
301	26		keine Alphaemitter gefunden
302	23		keine Alphaemitter gefunden
303	26	1	<u>303 j</u> : Ce, La, Nd, Ca, P, Th = <i>Monazit</i>

## Anhang D 1 Haldenmaterial Lengenfeld

Überblick über die exponierten Proben von Lengenfeld und Ergebnisse der lichtmikroskopischen Auswertung des Alphaspuren-Inventars auf den Festkörperspurdetektoren unter Angabe der Expositions-Nummer (Nr.), Expositionsdauer (t), Anzahl ( $n_{HT}$ ) der Heiße Teilchen-Spuren (Sternspurmuster) pro  $cm^2$ , der Spurdichte ( $\delta_{Spur}$ ) von Alphapartikeln und Hinweis auf eine weitere Bearbeitung der Probe mit einem Elektronenmikroskop. EMS=Elektronenstrahlmikrosonde, REM=Rasterelektronenmikroskop.

Nr.	Probe	t	$n_{HT}$	$\delta_{Spur}$	Methoden
296	Lengenfeld I >2 mm Haldenmaterial eingebettet	2 Wochen	5	hoch	EMS, REM
297	Lengenfeld II <2 mm >630 $\mu m$ Haldenmaterial eingebettet	2 Wochen	10	hoch	EMS
298	Lengenfeld III <630 $\mu m$ >200 $\mu m$ Haldenmaterial eingebettet	2 Wochen	20	hoch	EMS, REM
299	Lengenfeld IV <200 $\mu m$ >63 $\mu m$ Haldenmaterial eingebettet	2 Wochen	33	hoch	EMS
300	Lengenfeld V <63 $\mu m$ Haldenmaterial eingebettet	2 Wochen	90	hoch	

## Anhang D 2 Haldenmaterial Lengenfeld

Ergebnisse der Elektronenmikroskop-Untersuchungen der Proben von Lengenfeld.

$n_M$  = Anzahl der auf der Probenoberfläche markierten Bereiche (Bezeichnungen mit Buchstaben des Alphabets), in denen mit Hilfe von Festkörperspur-Detektoren Alphaemitter (Heiße Teilchen) lokalisiert wurden

$n_\alpha$  = Anzahl der markierten Bereiche, in denen Alphaemitter nachgewiesen werden konnten

Charakteristik = Beschreibung der detektierten Alphaemitter (Elementzusammensetzung, Mineral, Korngröße/-form). In Klammern angegebene Elemente sind in geringeren Mengen enthalten, was durch einen schwachen Peak im Spektrum angezeigt wird. Elemente mit einem Ausrufezeichen zeigten im Spektrum einen deutlichen Peak, sie haben einen großen Anteil an der im Probenausschnitt analysierten Elementzusammensetzung.

Spektrum = Hinweis auf Abbildung von EDX-Spektrum und REM-Aufnahme des entsprechenden Alphaemitters (Abb. im Kap. 4; Tafeln in der Anlage)

Nr.	$n_M$	$n_\alpha$	Charakteristik	Spektrum
296	13	5	<p><u>296 b</u>: La, Ce, Nd, P, Ca, K, (Th) = <b>Monazit</b>; ca. 31×43 µm großes Körnchen</p> <p><u>296 d</u>: Rb, Fe, U = <b>Uran</b>, <b>UO<sub>2</sub></b>?; 17×43 µm großes Loch in größerem Korn mit Uran</p> <p><u>296 e</u>: P, Rb, Si, K, Ca, Fe, U = <b>Uran</b>, <b>UO<sub>2</sub></b>?; helle, 5×6,5 und 10×19 µm große Partien in größerem Korn</p> <p><u>296 f</u>: Fe, Rb, U, Ba, Y, S = <b>Uran</b>, <b>UO<sub>2</sub></b>?; ca. 52×139 µm großes Loch in größerem Korn mit Uran u.a. Elementen</p> <p><u>296 m</u>: U, Cu, As, Si = <b>Uraninit (UO<sub>2</sub>)</b>; helle, ca. 3,5×22 µm große Schlieren in größerem Korn</p>	<p>Tafel 29</p> <p>Tafel 30</p> <p>Tafel 31</p>
297	19	11	<p><u>297 a</u>: U, Ti, Fe, Si, (As, Fe) = <b>Uran</b>; Quarz- bzw. Silikat Korn mit verschiedenen Elementen, u.a. Uran</p> <p><u>297 b</u>: U, Ti, Ca, Zr, Si = <b>Zirkon</b>; ca. 3 µm groß</p> <p><u>297 bb</u>: U, Ca, Fe, As, P, Si = <b>Uran</b>; Phosphatarsenat mit hellem Korn aus U, Ti</p> <p><u>297 d</u>: U, Ti, Si (Ca, Fe) = <b>Uran</b>; helle Ränder am Korn</p> <p><u>297 f</u>: U, Zr, Ca, Hf, Si = <b>Zirkon</b>, in größerem Korn</p> <p><u>297 g</u>: <b>U!!</b>, (Ti, Ca, Fe, Si, As, Pb) = <b>Uran (UO<sub>2</sub>)</b>; Loch mit sehr hellem Korn aus Uran</p> <p><u>297 j</u>: Fe, Ca, Si, Al, (U, Mn, Mg) = Eisenhydroxid mit <b>Uran</b></p> <p><u>297 k</u>: U, Zr, Ca, Hf, Si = <b>Zirkon</b>, in größerem Korn</p> <p><u>297 o</u>: Y, Fe, P, K, (U, Th) = <b>Xenotim</b>; ca. 1-2 µm großes hufeisenförmiges helles Körnchen in größerem Korn</p> <p><u>297 oo</u>: U, Ti, Ca, Zr, Si = <b>Zirkon</b>; in gleichem Korn wie Xenotim</p> <p><u>297 p</u>: U, (Y, P, Gd, Dy, Eu) = <b>Uraninit (UO<sub>2</sub>)</b>; 2 helle Körnchen (Y, P, Gd, Dy, Eu) mit sehr hellen Pünktchen (weit unter 1 µm) aus <b>UO<sub>2</sub></b></p>	
298	26	15	<p><u>298 a</u>: <b>U!</b>, Si, Pb, S, P, Ca, Fe, (Cu) = <b>Uraninit (UO<sub>2</sub>)</b>, SiO<sub>2</sub>-Korn mit ganz hellen Flecken aus Cu, Fe, S und hellen Pünktchen aus Uran (1-5 µm groß)</p> <p><u>298 c</u>: Si, Al, Ti, Fe, K, Ca, <b>U!!</b> = <b>Brannerit??</b> (viele helle Flecken aus U, Ti, Ca in großem Silikat-Korn)</p> <p><u>298 d</u>: U = <b>Uran</b>, schwacher Peak, aber nur 1 µm großes Körn-</p>	<p>Tafel 32</p> <p>Tafel 33</p>

Nr.	n <sub>M</sub>	n <sub>α</sub>	Charakteristik	Spektrum
			<p>chen innerhalb eines größeren Korns</p> <p><u>298 e</u>: U, Al, Si, Ca, (Fe) = <b>Uran</b>; &lt; 2 µm großes Körnchen in einem großen SiO<sub>2</sub>/Silikat-Korn</p> <p><u>298 f</u>: U, Al, Si, K, (Fe, P) = &lt; 5 µm großer Bereich mit <b>Uran</b> in einem großen SiO<sub>2</sub>/Silikat-Korn</p> <p><u>298 g</u>: U!, Ca, Fe, Ba, Si, P, As, S = <b>Uraninit (UO<sub>2</sub>)</b>; bis 5 µm große Flecken an einem Silikat Korn</p> <p><u>298 i</u>: U!!, Si, Ba, S, (Fe) = <b>Uraninit (UO<sub>2</sub>)</b>; 2 bis 3 µm große Körnchen in einem Silikat Korn</p> <p><u>298 l</u>: U!, Se, Pb, Ca, (Fe, As) = Calcitkorn mit <b>Uranpechblende</b> (gelartig-wulstig, nierig) und Clausthalit (PbSe)</p> <p><u>298 ll</u>: U!, Pb, Ca, Fe = gleiches Korn wie 298 l, andere Stelle des Calcitkorns, mit <b>Uranpechblende</b></p> <p><u>298 m</u>: U!, Y, Ca, Fe, As, Ni, (Si) = Chloanthit?? (Weißnickelkies, (Ni, Co)As<sub>3</sub>) mit hellem Bereich aus <b>Uraninit (UO<sub>2</sub>)</b>, ca. 22×44 µm groß</p> <p><u>298 mm</u>: U!, Y, Ca, Fe, As, (Si) = gleiches Korn wie 298 m; <b>Uraninit (UO<sub>2</sub>)</b>, ca. 25×75 µm groß mit Calcit</p> <p><u>298 p</u>: U, Ti, Ca, Fe, Si, (As) = ca. 150×190 µm großes SiO<sub>2</sub>-Korn mit hellen Punkten aus As, Ca, Fe und mittelhellen Schlieren aus U, Ti (<b>Brannerit?</b>)</p> <p><u>298 q</u>: U!, (Ca, As, Ni, Fe, Si) = ca. 50×130 µm große helle Partie aus <b>Uraninit (UO<sub>2</sub>)</b> an großem Quarzkorn; mit Chloanthit (NiAs<sub>3</sub>)??</p> <p><u>298 t</u>: Si, U, Fe, As = <b>Uraninit (UO<sub>2</sub>)</b>, ca. 2 µm große Pünktchen in Silikat Korn (SiO<sub>2</sub>)</p> <p><u>298 u</u>: Al, Si, U, Ti, K, Ca, Fe = ca. 5 µm großer Bereich aus <b>Brannerit?? (UTi<sub>2</sub>O<sub>6</sub>)</b> in Silikat Korn</p> <p><u>298 v</u>: U!!, Ca, P, (Fe) = Verwachsung von SiO<sub>2</sub> und <b>Autunit? (Kalkuranglimmer)</b></p> <p><u>298 z</u>: Bi, U, Ca, Fe, Pb, Si (S) = Silikat Korn mit Bismuthinit? (Bi<sub>2</sub>S<sub>3</sub>) und <b>Uraninit (UO<sub>2</sub>)</b> (ca. 18 µm großer Bereich)</p>	<p>Tafel 34</p> <p>Tafel 35</p> <p>Abb. 41</p> <p>Abb. 43</p> <p>Abb. 44</p> <p>Tafel 36</p> <p>Tafel 37</p> <p>Tafel 38</p> <p>Abb. 42</p> <p>Tafel 39</p> <p>Tafel 40</p> <p>Tafel 41</p> <p>Tafel 42</p>
299	15	7	<p><u>299 b</u>: U, Ca, As, Fe, Si wenige SE (Y), (P) = <b>Uran</b>; Saum an 150 µm großem Korn aus SiO<sub>2</sub>, Gemenge aus U, As, SE, P, Ca</p> <p><u>299 c</u>: U!! (K, Si, Ba, Al) = <b>Uranaggregate</b> in K-Feldspat</p> <p><u>299 d</u>: U!! (Ca, Mn, Fe, Mg) = kleiner Bereich in großem Korn; wahrscheinlich <b>UO<sub>2</sub></b> in Ca-Mg-Silikat</p> <p><u>299 i</u>: U!! (Pb, Bi, Ca, Fe, K) = großes <b>UO<sub>2</sub></b>-Korn</p> <p><u>299 k</u>: U!! (Zr, Pb, Ca, Si, Ti, As) = &lt; 5 µm großer Bereich mit <b>Uraninit (UO<sub>2</sub>)</b> an größerem Korn</p> <p><u>299 n</u>: U!! (Fe, Ca, Ti, Pb) = sehr kleiner Punkt mit <b>UO<sub>2</sub></b> sowie Ca und Ti</p> <p><u>299 u</u>: U!, Ti!, Ca = großes Korn, <b>Brannerit</b></p>	

## Anhang E                      WBA Schlema-Alberoda

Überblick über die exponierten Proben der WBA Schlema-Alberoda und Ergebnisse der lichtmikroskopischen Auswertung des Alphaspuren-Inventars auf den Festkörperspurdetektoren unter Angabe der Expositionsnummer (Nr.), Expositionsdauer (t), Anzahl ( $n_{HT}$ ) der Heiße Teilchen-Spuren (Sternspurmuster) pro  $cm^2$  und der Spurdichte ( $\delta_{Spur}$ ) von Alpartikeln.

<b>Nr.</b>	<b>Probe</b>	<b>t</b>	<b><math>n_{HT}</math></b>	<b><math>\delta_{Spur}</math></b>
49	Fällungsrückstand < 200 $\mu m$ ; nicht eingebettet	3 Stunden	keine	hoch
50	Fällungsrückstand < 63 $\mu m$ ; nicht eingebettet	3 Stunden	keine	hoch
68	Fällungsrückstand nicht eingebettet	3 Stunden	keine	sehr hoch wolkig
359	Fällungsrückstand eingebettet	7 Tage	keine	sehr hoch wolkig
404	Fällungsrückstand eingebettet	14 Tage	keine	sehr hoch wolkig

## Anhang F Kraftwerksaschen

Überblick über die exponierten Proben der Kraftwerksaschen und Ergebnisse der lichtmikroskopischen Auswertung des Alphaspuren-Inventars auf den Festkörperspurdetektoren unter Angabe der Expositions-Nummer (Nr.), Expositionsdauer (t), Anzahl ( $n_{HT}$ ) der Heiße Teilchen-Spuren (Sternspurmuster) und der Spurdichte ( $\delta_{Spur}$ ) von Alphapartikeln.

Nr.	Probe	t	$n_{HT}$	$\delta_{Spur}$
235	Kraftwerksasche von 1997 Alt-Lippendorf nicht eingebettet	3 Wochen	0,05/cm <sup>2</sup> ; = 1 auf Detektor insgesamt	gering
365	Kraftwerksasche von 2003 Mumsdorf, eingebettet	7 Wochen	1,4/cm <sup>2</sup> ; = 7 auf Detektor insgesamt	gering
366	Kraftwerksasche von 2003 Deuben, eingebettet	7 Wochen	0,2/cm <sup>2</sup> ; = 1 auf Detektor insgesamt	gering
367	Kraftwerksasche von 2003 Mumsdorf, eingebettet	7 Wochen	0,2/cm <sup>2</sup> ; = 1 auf Detektor insgesamt	gering
368	Kraftwerksasche von 2003 Deuben, eingebettet	7 Wochen	0,6/cm <sup>2</sup> ; = 3 auf Detektor insgesamt	gering
369	Kraftwerksasche von 2003 Deuben, eingebettet	7 Wochen	0,4/cm <sup>2</sup> ; = 2 auf Detektor insgesamt	gering

## Anhang G 1 Phosphatgesteine, Phosphorgips und Versuchsbausteine von Brasilien

Überblick über die exponierten Proben von Brasilien und Ergebnisse der lichtmikroskopischen Auswertung des Alphaspuren-Inventars auf den Festkörperspurdetektoren unter Angabe der Expositions-Nummer (Nr.), Expositionsdauer (t), Anzahl ( $n_{HT}$ ) der Heiße Teilchen-Spuren (Sternspurmuster) pro  $cm^2$  bzw. in Klammern insgesamt auf dem Detektor, der Spurdichte ( $\delta_{Spur}$ ) von Alphapartikeln und Hinweis auf eine weitere Bearbeitung der Probe mit einem Elektronenmikroskop.

EMS=Elektronenstrahlmikrosonde, REM=Rasterelektronenmikroskop.

Nr.	Probe	t	$n_{HT}$	$\delta_{Spur}$	Methoden
122	Fosfato de Araxá Lockermaterial, feinsandig; nicht eingebettet	3 Wochen	2,4	hoch	
124	Rocha fosfática Catalão Lockermaterial, feinsandig; nicht eingebettet	3 Wochen	6,3	hoch Cluster	
128	Fosfato de Araxá Lockermaterial, feinsandig; nicht eingebettet	8 Wochen	9,5	sehr hoch Cluster	
129	Rocha fosfática Catalão Lockermaterial, feinsandig; nicht eingebettet	8 Wochen	19,6	sehr hoch Cluster	
166	CPV-1 Versuchsbaustein (128,6 Zement, 300 Phosphorgips, 1266,7 Sand, 385 Wasser) nicht eingebettet	6 Wochen	0,3 (8) groß!	mittel	
167	CPV-2 Versuchsbaustein (33,31 Zement, 300 Phosphorgips, 1000 Sand, 350 Wasser) nicht eingebettet	6 Wochen	0,8 groß!	mittel	
168	Versuchsbaustein Cimento branco (weißer Zement) nicht eingebettet	6 Wochen	0,4 (11) groß!	mittel	
169	Versuchsbaustein CPE 32 1:3 nicht eingebettet	6 Wochen	0,8 (19) groß!	mittel	
171	Fosfogesso natural (Phosphorgips) weißes Pulver nicht eingebettet	6 Wochen	1,8	hoch	

<b>Nr.</b>	<b>Probe</b>	<b>t</b>	<b>n<sub>HT</sub></b>	<b>δ<sub>Spur</sub></b>	<b>Methoden</b>
172	Fosfogesso natural (Phosphorgips), weißes Pulver nicht eingebettet	6 Wochen	2,5	hoch	
173	Fosfogesso seco. Retida (Phosphorgips) weißes Pulver nicht eingebettet	6 Wochen	2	hoch	
174	Material que passou Lockermaterial nicht eingebettet	6 Wochen	2,5	hoch	
175	Fosfogesso (Phosphorgips) weißes Pulver nicht eingebettet	6 Wochen	3,5	hoch	
176	Material passou Lockermaterial nicht eingebettet	6 Wochen	1,6	hoch	
177	Sobra das malhas in natura (Filterrückstand?) Pulver nicht eingebettet	6 Wochen	1,6	hoch	
178	Gesso comum (Naturgips) Pulver nicht eingebettet	6 Wochen	keine	keine	
179	Areia (Sand) IPT nicht eingebettet	6 Wochen	1,4	gering, in Clustern	
180	Areia (Sand) IPT nicht eingebettet	6 Wochen	0,4 (8)	gering, in Clustern	
181	Areia (Sand) IPT nicht eingebettet	6 Wochen	0,7 (15)	gering, in Clustern	
182	Cimento (Zement) CPV nicht eingebettet	6 Wochen	keine	gering	
183	Cimento (Zement) CP II nicht eingebettet	6 Wochen	keine	mittel	
230	Fosfogesso (Phosphorgips) eingebettet	6 Wochen	9,4	hoch	
242	Phosphogypsum, Pulver nicht eingebettet	5 Wochen	0,5 (11)	hoch	
243	Phosphate rock Araxá nicht eingebettet	5 Wochen	24	sehr hoch	

<b>Nr.</b>	<b>Probe</b>	<b>t</b>	<b>n<sub>HT</sub></b>	<b>δ<sub>Spur</sub></b>	<b>Methoden</b>
244	Concentrate of rock Tapira-Araxá nicht eingebettet	5 Wochen	8,2	hoch Cluster	
245	Concentrate of rock Tapira-Araxá, getrocknet nicht eingebettet	5 Wochen	16,3	sehr hoch viele Cluster	
246	Concentrate of rock Catalão nicht eingebettet	5 Wochen	2	sehr hoch viele Cluster	
247	Concentrate of rock Catalão, getrocknet nicht eingebettet	5 Wochen	15	sehr hoch viele Cluster	
274	Phosphogypsum eingebettet	8 Wochen	1,2	mittel	
275	Phosphate rock Araxá eingebettet	8 Wochen	25	hoch Cluster	REM, EMS
276	Concentrate of rock Tapira-Araxá eingebettet	8 Wochen	15	hoch Cluster	REM, EMS
277	Concentrate of rock Catalão eingebettet	8 Wochen	20	hoch Cluster	REM, EMS
278	Fosfato de Araxá eingebettet	8 Wochen	21	hoch homogen	EMS
279	Rocha fosfática Catalão eingebettet	8 Wochen	18	hoch Cluster	REM, EMS
320	Fosfato de Araxá (Conig) >200 µm nicht eingebettet	6 Wochen	2,5	sehr hoch viele Cluster	
321	Fosfato de Araxá (Conig) >63 µm nicht eingebettet	6 Wochen	6,7	sehr hoch viele Cluster	
322	Fosfato de Araxá (Conig) <63 µm nicht eingebettet	6 Wochen	13,9	sehr hoch viele Cluster	
323	Concentrate of rock Tapira-Araxá, getrocknet >200 µm nicht eingebettet	6 Wochen	5,1	hoch inhomogen	

<b>Nr.</b>	<b>Probe</b>	<b>t</b>	<b>n<sub>HT</sub></b>	<b>δ<sub>Spur</sub></b>	<b>Methoden</b>
324	Concentrate of rock Tapira-Araxá, getrocknet >63 µm nicht eingebettet	6 Wochen	8,7	hoch viele Cluster inhomogen	
325	Concentrate of rock Tapira-Araxá, getrocknet <63 µm nicht eingebettet	6 Wochen	38,3	hoch Cluster	
326	Phosphogypsum >200 µm nicht eingebettet	6 Wochen	0,8 (18)	mittel	
327	Phosphogypsum >630 µm nicht eingebettet	6 Wochen	0,6 (12)	mittel	
328	Phosphogypsum >63 µm nicht eingebettet	7 Wochen	1,4	mittel	
329	Phosphogypsum <63 µm nicht eingebettet	7 Wochen	2,7	mittel-hoch	
330	Phosphate rock Araxá >200 µm nicht eingebettet	7 Wochen	2	hoch in Clustern	
331	Phosphate rock Araxá >63 µm nicht eingebettet	7 Wochen	6,4	hoch viele Cluster wolkig	
332	Phosphate rock Araxá <63 µm nicht eingebettet	7 Wochen	45,2	hoch Cluster	
333	Rocha fosfática Catalão >200 µm nicht eingebettet	7 Wochen	3,2	hoch, Cluster wolkig	
334	Rocha fosfática Catalão >63 µm nicht eingebettet	7 Wochen	5,9	hoch, Cluster wolkig	
335	Rocha fosfática Catalão <63 µm nicht eingebettet	7 Wochen	24,2	hoch Cluster	
355	Concentrate rock of Catalão >200 µm nicht eingebettet	7 Wochen	2,6	hoch viele Cluster wolkig	

<b>Nr.</b>	<b>Probe</b>	<b>t</b>	<b>n<sub>HT</sub></b>	<b>δ<sub>Spur</sub></b>	<b>Methoden</b>
356	Concentrate rock of Catalão >63 μm nicht eingebettet	7 Wochen	8,7	hoch viele Cluster wolkig	
357	Concentrate rock of Catalão <63 μm nicht eingebettet	7 Wochen	27,5	hoch viele Cluster	

## Anhang G 2 Phosphatgesteine, Phosphorgips und Versuchsbausteine von Brasilien

Ergebnisse der Elektronenmikroskop-Untersuchungen der Theisenschlamm-Proben.

$n_M$  = Anzahl der auf der Probenoberfläche markierten Bereiche (Bezeichnungen mit Buchstaben des Alphabets), in denen mit Hilfe von Festkörperspur-Detektoren Alphaemitter (Heiße Teilchen) lokalisiert wurden

$n_\alpha$  = Anzahl der markierten Bereiche, in denen Alphaemitter nachgewiesen werden konnten

Charakteristik = Beschreibung der detektierten Alphaemitter (Elementzusammensetzung, Mineral, Korngröße/-form). In Klammern angegebene Elemente sind in geringeren Mengen enthalten, was durch einen schwachen Peak im Spektrum angezeigt wird. Elemente mit einem Ausrufezeichen zeigten im Spektrum einen deutlichen Peak, sie haben einen großen Anteil an der im Probenausschnitt analysierten Elementzusammensetzung.

Spektrum = Hinweis auf Abbildung von EDX-Spektrum und REM-Aufnahme des entsprechenden Alphaemitters (Abb. im Kap. 4; Tafeln in der Anlage)

Nr.	$n_M$	$n_\alpha$	Charakteristik	Spektrum
275	26	17	<u>275b</u> : <b>Th</b> , Ca, P, (Ce, Nd, La, Ba) = <i>Monazit</i> ?; 20×44 µm großes Körnchen	Tafel 43
			<u>275 f</u> : Ti, Zr, Ca, <b>Th</b> , Nb, Fe, Nd, (U) = <i>Betafit</i> ; 48×56 µm großes Korn	Tafel 44
			<u>275 g</u> : P, Ca, Ba, Al, Si, Fe, (U) = <i>Apatit</i> ?; 32×16 µm großes Körnchen	Tafel 45
			<u>275 h</u> : Ba, Fe, P, U = ??; 70×47 µm großes Körnchen	Tafel 46
			<u>275 i</u> : P, Ca, <b>Th</b> (Ti, Nd, Fe) = ?? <i>Apatit</i> ? 20×44 µm großes Körnchen	Tafel 47
			<u>275 j</u> : <b>Th</b> , Ca, P (Y, Ti, La, Ce, Nd, Fe) = <i>Apatit</i> ? 63×19 µm großes Körnchen	Tafel 48
			<u>275 m</u> : Y, <b>Th</b> , Ca, P (Ba, La, Ce, Nd) = <i>Xenotim</i> ? 60×35 µm großes Körnchen	Tafel 49
			<u>275 mm</u> : Y, <b>Th</b> , Ca, P (Ba, La, Ce, Nd) = <i>Xenotim</i> ? 5×11 µm großes Körnchen	Tafel 50
			<u>275 n</u> : Ti, Zr, Ca, <b>Th</b> , Nb, Fe, Ce = <i>Betafit</i> ; 29×13 µm großes Körnchen	Tafel 51
			<u>275 s</u> : Y, <b>Th</b> , Ca, P (Ti, La, Ce, Nd, Fe) = <i>Apatit</i> ? 10×15 µm großes Körnchen	Tafel 52
			<u>275 t</u> : Y, <b>Th</b> , Ca, P (Ti, La, Ce, Nd, Fe) = <i>Xenotim</i> ? 10×14 µm großes Körnchen	Abb. 54
			<u>275 w</u> : Nb, Ti, Ca, <b>Th</b> , (Fe, Ce, Nd, K) = <i>Betafit</i> ; 16×23 µm großes Körnchen	Tafel 53
			<u>275y</u> : Ce, La, Ca, P, Y, ( <b>Th</b> , Fe, K) = <i>Monazit</i> ; 28×47 µm großes Körnchen	
			<u>275 yy</u> : Ti, Nb, Ca, <b>Th</b> , P, Fe, Ce, Nd = <i>Betafit</i> / <i>Columbit</i> ; 18×32 µm großes Körnchen	Tafel 54
			<u>275 z</u> : P, <b>Th</b> , Ca (Ce, La, Nd, Fe) = ?? <i>Apatit mit Monazit</i> ?? 75×32 µm großes Körnchen	Abb. 53
			<u>275 zz</u> : Zr, Nb, Ca, <b>Th</b> , Ce, Ti, Nd, La, Fe, Si = <i>Pyrochlor/Betafit</i> ; 34×54 µm großes Körnchen	Tafel 55
			276	19
<u>276 c</u> : Ca, P, <b>Th</b> , (Ce, Nd, Ti) = Verwachsung von <i>Apatit mit Betafit</i> ?; 48×70 µm großes Körnchen	Tafel 57			
<u>276 e</u> : <b>Th</b> !, Ca, P (Ce, Nd) = <i>Apatit</i> ?; 12×5 µm großes Körnchen	Tafel 58			
<u>276 f</u> : Ca, <b>Th</b> , P, Ti, Ce, Al = Verwachsung von <i>Apatit mit</i>	Tafel 59			

Nr.	n <sub>M</sub>	n <sub>α</sub>	Charakteristik	Spektrum
			<p><b>Betafit?</b>; 60×70 µm großes Körnchen  <u>276 g</u>: Ti, Nb, <b>Th</b>, Ce, Nd, Al, Ca, P = Verwachsung von <b>Apatit mit Betafit</b>; 53×80 µm großer Apatit mit 26×23 µm großem Betafit  <u>276 j</u>: Ti, Nb, <b>Th</b>, U, Ce, Fe, Ca, P = Verwachsung von <b>Apatit mit Betafit</b>; 57×39 µm großer Apatit mit hellen Bereichen aus Betafit  <u>276 m</u>: Ti, Nb!, <b>Th</b>, U, Ce, Fe, Si, Ca, P = Verwachsung von <b>Apatit mit Betafit</b>; 30×50 µm großer Apatit mit hellen Bereichen aus Betafit  <u>276 o</u>: Ti, Nb!, <b>Th</b>, U, Ce, Nd, Fe, Cu, Ca, P = Verwachsung von <b>Apatit mit Betafit</b>; 40×40 µm großer Apatit mit hellen Bereichen aus Betafit (ca. 30×30 µm groß)  <u>276 r</u>: Ti, Nb, <b>Th</b>, Ce, Fe, Nd, Ca, P = Verwachsung von <b>Apatit mit Betafit</b>; 80×93 µm großer Apatit mit hellen Bereichen aus Betafit</p>	<p>Tafel 60  Abb. 52  Tafel 61  Tafel 62  Tafel 63</p>
277	20	17	<p><u>277 a</u>: Nb, Ca, U, Ba, Fe, Cu, P) = <b>Betafit</b> verwachsen mit Apatit; 22×37 µm großes Körnchen  <u>277 b</u>: Ce, La, Ca, P, Y, (<b>Th</b>) = <b>Monazit</b> mit sehr wenig Thorium; 12×18 µm großes Körnchen  <u>277 c</u>: Zr, Fe, Hf, Ca, Ti, (U) = ?? ; 7,5×17,5 µm großes Körnchen  <u>277 d</u>: Ti, Zr, P, Ca, <b>Th</b>, Fe, Nd = ?? <b>Betafit</b> mit Apatit?; 7×29 µm großes Körnchen  <u>277 e</u>: Y, Ce, La, Ca, P, Fe, (<b>Th</b>) = <b>Monazit</b>; 14×21 µm großes Körnchen  <u>277 g, h</u>: Ce, La, Ca, P, Fe, (<b>Th/U</b>) = <b>Monazit</b>; 12,5×15 µm/29×23 µm große Körnchen  <u>277 j</u>: Nb, Ba, S, Si, Ca, Fe, U = <b>Betafit</b> verwachsen mit Baryt ; 31×41 µm großes Körnchen  <u>277 k</u>: Nb, Ba, S, Si, Ca, Fe, Ta, U = <b>Betafit</b> (31×19 µm) verwachsen mit Baryt (38×63 µm)  <u>277 l</u>: Ti, Zr, (U), Ce, Fe, Ca, P = Verwachsung von <b>Apatit mit Betafit</b>; 35×78 µm großer Apatit mit hellen Bereichen aus Betafit (ca. 22×60 µm)  <u>277 m</u>: Nb, Zr, Ti, Ca, <b>Th</b>, Fe, Nd = <b>Betafit</b>; 7×13 µm großes Körnchen  <u>277 n</u>: Ce, La, Ca, P, Fe, Ba, <b>Th</b> = <b>Monazit</b>; 25×25 µm großes Körnchen  <u>277 o, s</u>: Ce, La, Y, Ca, P, (<b>Th</b>) = <b>Monazit</b>; ca. 15×15 µm/ 18×29 µm große Körnchen  <u>277 p</u>: Ti, Ca, (<b>Th</b>, U), P, Fe, Zr, V, Nb, Nd, Ta = <b>Betafit</b>; 33×67 µm großes Körnchen  <u>277 q</u>: Ba, Y, P, Ca, Fe, Al, (U) = ??; 7,5×22,5 µm großes Körnchen  <u>277 t</u>: Nb, Zr, Ba, Ca, Fe, Rb, P, U, (Cu) = <b>Betafit</b>; 7×20 µm großes Körnchen</p>	<p>Tafel 64  Tafel 65  Tafel 66  Tafel 67  Tafel 68  Tafel 69  Tafel 70  Tafel 71  Tafel 72  Tafel 73+74  Tafel 75  Tafel 76  Tafel 77</p>
278	25	10	<p><u>278 b</u>: <b>Th</b>, P, Ce, La, Ca, Y, Sr = <b>Monazit</b>; großes Korn mit hellen Körnchen (Th)  <u>278 c</u>: Zr, Ti, U!, (<b>Th</b>), Ca, Nb, Fe = <b>Betafit?</b>, <b>Titanit/Ilmenit mit Zirkonium??</b></p>	

Nr.	n <sub>M</sub>	n <sub>α</sub>	Charakteristik	Spektrum
			<p><u>278 e:</u> Seltenen Erden mit <b>Th</b> = ??</p> <p><u>278 f:</u> Nb, Ca, <b>Th</b>, Ti, (Fe) = <b>Betafit</b></p> <p><u>278 g:</u> Ba, Th, Ti, Nb = ?? <b>Betafit?</b></p> <p><u>278 k, n:</u> <b>Th</b>, Ca, Ti, Nb, Ba, (Fe, Ta) = <b>Betafit</b></p> <p><u>278 o, q:</u> Ti, Ca, Fe, <b>Th</b>, (Zr), Nb, Ce, Nd und weitere Seltene Erden = <b>Pyrochlor/Betafit</b></p> <p><u>278 u:</u> Ti, <b>Th</b>, Ca, Nb, Ce, (Ba, Fe) = <b>Betafit</b></p>	
279	26	16	<p><u>279 a:</u> Ce, La, Ca, P, (Si), <b>Th</b> = <b>Monazit</b>; 106×67 µm großes Körnchen</p> <p><u>279 d:</u> Zr, Ca, Ti, Fe, (<b>Th</b>) = <b>Betafit??, Titanit/Ilmenit mit Zirkonium</b>; ca. 54×40 µm großer heller Bereich in größerem Korn</p> <p><u>279 e:</u> Zr, U, Ca = ??</p> <p><u>279 f:</u> Zr, P, Ti, Ca, Fe, (<b>Th</b>) = 33×73 µm großes <b>Apatit</b>korn mit hellem 20×60 µm großen Bereich mit Ti, Zr, Th..(<b>Betafit?</b>)</p> <p><u>279 g:</u> Ce, La, Ca, P, (Si), <b>Th</b> = <b>Monazit</b>; 27×47 µm großes Körnchen</p> <p><u>279 h:</u> Ce, La, Ca, P, Nd, Fe, <b>Th</b> = <b>Monazit</b>; 35×43 µm großes Körnchen</p> <p><u>279 i:</u> Ca, P, Zr, Ti, Fe, Ce, <b>Th</b> = 75×87 µm großes <b>Apatit</b>körnchen mit hellem Bereich mit <b>Betafit?</b></p> <p><u>279 k:</u> Ce, La, Ca, P, (Si), <b>Th</b> = <b>Monazit</b>; schwacher Reflex</p> <p><u>279 m:</u> Ti, P, Ca, Al, Fe, Ce, Zr, (<b>Th</b>) = 33×53 µm großes <b>Apatit</b>körnchen mit <b>Betafit?</b></p> <p><u>279 n:</u> Y, P, Si, Ca, S, Ba, <b>Th!</b>, Al, (Nb?) = ca. 100×50 µm großes Korn unterschiedlicher Zusammensetzung (Silikat, Apatit, Baryt, vgl. Abb.) mit 2 hellen Bereichen (9×4 und 17×17 µm) aus Th, Y, P, Ca, (Nb?) = <b>Betafit??, Xenotim??</b></p> <p><u>279 o:</u> Ce, La, Nd, Y, Ca, P, Si, (<b>Th</b>) = <b>Monazit</b>; 40×60 µm großes Körnchen</p> <p><u>279 q:</u> Zr, Ti, Ca, Fe, (U) = Verwachsung von <b>Titanit/Ilmenit</b> mit <b>Zirkonium</b>; 34×53 µm großes Körnchen an größerem Korn (Apatit)</p> <p><u>279 s:</u> Ce, La, Y, Ca, P, (<b>Th</b>) = <b>Monazit</b>; 57×78 µm großes Körnchen</p> <p><u>279 t:</u> Ce, La, Y, Ca, P, (<b>Th</b>) = <b>Monazit</b>; Schlieren (ca. 38×12 µm groß) in größerem Apatitkorn (Ca, P)</p> <p><u>279 u:</u> Ce, La, Y, Ca, P, (<b>Th</b>) = Verwachsung von Apatit (Ca, P), SiO<sub>2</sub> und <b>Monazit</b> (hellste Partien im Korn, ca. 31×6,5 und 25×31 µm große Schlieren)</p> <p><u>279 v:</u> Ca, P, <b>Th</b>, Ba, Ce, Fe, Al = Apatitkorn mit max. 4 µm großen, hellen Bereichen mit <b>Thorium (Monazit??)</b></p>	<p>Tafel 78</p> <p>Tafel 79</p> <p>Tafel 80</p> <p>Tafel 81</p> <p>Tafel 82</p> <p>Tafel 83</p> <p>Tafel 84</p> <p>Tafel 85</p> <p>Tafel 86</p> <p>Tafel 87</p> <p>Tafel 88</p> <p>Tafel 89</p> <p>Tafel 90</p> <p>Tafel 91</p>

## Anhang H 1 Phosphatdünger und Stickstoffdünger

Überblick über die exponierten Proben der Düngemittel und Ergebnisse der lichtmikroskopischen Auswertung des Alphaspuren-Inventars auf den Festkörperspurdetektoren unter Angabe der Expositions-Nummer (Nr.), Expositionsdauer (t), Anzahl ( $n_{HT}$ ) der Heiße Teilchen-Spuren (Sternspurmuster) pro  $cm^2$ , der Spurdichte ( $\delta_{Spur}$ ) von Alphapartikeln und Hinweis auf eine weitere Bearbeitung der Probe mit einem Elektronenmikroskop. EMS=Elektronenstrahlmikrosonde, REM=Rasterelektronenmikroskop.

Nr.	Probe	t	$n_{HT}$	$\delta_{Spur}$	Methoden
248	Phosphatdünger, handelsüblich nicht eingebettet	4 Wochen	0,5	hoch	
249	Stickstoffdünger handelsüblich nicht eingebettet	4 Wochen	keine	keine	
255	Phosphatdünger handelsüblich nicht eingebettet, auf Klebefolie fixiert	4 Wochen	keine	hoch Cluster	
291	Phosphatdünger handelsüblich eingebettet	5 Wochen	1	hoch	REM
336	Phosphatdünger handelsüblich; >630 $\mu m$ nicht eingebettet	7 Wochen	0,5	hoch	
337	Phosphatdünger handelsüblich; >200 $\mu m$ nicht eingebettet	7 Wochen	0,6	hoch	
338	Phosphatdünger handelsüblich; >63 $\mu m$ nicht eingebettet	7 Wochen	1,2	hoch	
339	Phosphatdünger handelsüblich; <63 $\mu m$ nicht eingebettet	7 Wochen	1,5	hoch	

## Anhang H 2 Phosphatdünger

Ergebnisse der Elektronenmikroskop-Untersuchungen der Phosphatdünger-Probe.

$n_M$  = Anzahl der auf der Probenoberfläche markierten Bereiche (Bezeichnungen mit Buchstaben des Alphabets), in denen mit Hilfe von Festkörperspur-Detektoren Alphaemitter (Heiße Teilchen) lokalisiert wurden

$n_\alpha$  = Anzahl der markierten Bereiche, in denen Alphaemitter nachgewiesen werden konnten

Charakteristik = Beschreibung der detektierten Alphaemitter (Elementzusammensetzung, Mineral, Korngröße/-form). In Klammern angegebene Elemente sind in geringeren Mengen enthalten, was durch einen schwachen Peak im Spektrum angezeigt wird. Elemente mit einem Ausrufezeichen zeigten im Spektrum einen deutlichen Peak, sie haben einen großen Anteil an der im Probenausschnitt analysierten Elementzusammensetzung.

Spektrum = Hinweis auf Abbildung von EDX-Spektrum und REM-Aufnahme des entsprechenden Alphaemitters (Abb. im Kap. 4; Tafeln in der Anlage)

Nr.	$n_M$	$n_\alpha$	Charakteristik	Spektrum
291	5	2	<u>291 c</u> : Fe, S, Si, (Ca, U) = ??; nur ca. 2 $\mu\text{m}$ großer Bereich mit wenig <b>Uran</b> an größerem Korn <u>291 e</u> : La, Ce, Nd, Ca, P, <b>Th</b> = <i>Monazit</i> ; 17 $\times$ 17 $\mu\text{m}$ großes Körnchen	Tafel 92  Abb. 56

## Anhang I 1 Kupferschiefer

Überblick über die exponierten Kupferschiefer-Proben und Ergebnisse der lichtmikroskopischen Auswertung des Alphaspuren-Inventars auf den Festkörperspurdetektoren unter Angabe der Expositions-Nummer (Nr.), Expositionsdauer (t), Anzahl ( $n_{HT}$ ) der Heiße Teilchen-Spuren (Sternspurmuster) pro  $cm^2$ , der Spurdichte ( $\delta_{Spur}$ ) von Alphapartikeln und Hinweis auf eine weitere Bearbeitung der Probe mit einem Elektronenmikroskop. EMS=Elektronenstrahlmikrosonde, REM=Rasterelektronenmikroskop.

Nr.	Probe	t	$n_{HT}$	$\delta_{Spur}$	Methoden
184	Kupferschiefer Halde Helbra aufgemahlen, eingebettet	30 Tage	3	hoch	EMS
185	Kupferschiefer Halde Helbra Stück (ca. 1 $cm^2$ ), eingebettet	30 Tage	11	hoch	EMS, REM
196	Dickschliff einer Gesteins- probe*	18 Tage	8,5	hoch	
197	Dickschliff einer Gesteins- probe*	18 Tage	0,4	mittel	
198	Dickschliff einer Gesteins- probe*	18 Tage	1	mittel	
199	Dickschliff einer Gesteins- probe*	18 Tage	6	mittel	
200	Dickschliff einer Gesteins- probe*	18 Tage	7	mittel	
201	Dickschliff einer Gesteins- probe*	18 Tage	10	mittel	
202	Dickschliff einer Gesteins- probe*	18 Tage	6	mittel	

\* Es handelt sich hier um Kupferschiefer-Reicherze der Region Helbra.

## Anhang I 2 Kupferschiefer

Ergebnisse der Elektronenmikroskop-Untersuchungen der Kupferschiefer-Proben.

$n_M$  = Anzahl der auf der Probenoberfläche markierten Bereiche (Bezeichnungen mit Buchstaben des Alphabets), in denen mit Hilfe von Festkörperspur-Detektoren Alphaemitter (Heiße Teilchen) lokalisiert wurden

$n_\alpha$  = Anzahl der markierten Bereiche, in denen Alphaemitter nachgewiesen werden konnten

Charakteristik = Beschreibung der detektierten Alphaemitter (Elementzusammensetzung, Mineral, Korngröße/-form). In Klammern angegebene Elemente sind in geringeren Mengen enthalten, was durch einen schwachen Peak im Spektrum angezeigt wird. Elemente mit einem Ausrufezeichen zeigten im Spektrum einen deutlichen Peak, sie haben einen großen Anteil an der im Probenausschnitt analysierten Elementzusammensetzung.

Spektrum = Hinweis auf Abbildung von EDX-Spektrum und REM-Aufnahme des entsprechenden Alphaemitters (Abb. im Kap. 4; Tafeln in der Anlage)

Nr.	$n_M$	$n_\alpha$	Charakteristik	Spektrum
184	14	3	<u>184 a:</u> ca. 100 $\mu\text{m}$ großes Korn aus U, Ti, (Fe, Zn, Ca, Y) = <b>Brannerit</b> <u>184 c:</u> Ti, U (Ca) = <b>Brannerit</b> <u>184 g:</u> U, Ti, Ca = <b>Brannerit</b>	
185	11	5	<u>185 a:</u> U, Ti, S, Zn, (Fe, Si, Ca) = <b>Brannerit</b> , ZnS-PbS-Si-Korn mit Hohlräumen, die Säume aus Brannerit haben; <5 $\mu\text{m}$ groß <u>185 d:</u> Ti, U, (Ca, S, Pb) = <b>Brannerit</b> , ZnS-PbS- Korn mit Säumen aus Brannerit; um 2 $\mu\text{m}$ groß <u>185 e:</u> U, Ti, Si, Fe, Al = <b>Brannerit</b> <u>185 h:</u> U, Ti, (Fe, Ca, Zr,) = <b>Brannerit</b> , um 5 $\mu\text{m}$ großes Korn <u>185 i:</u> U, Ti, (Ca), Zr, Pb = <b>Brannerit</b> , Saum in Hohlraum	Abb. 58  Tafel 93  Tafel 94  Tafel 95

## Anhang J 1 Fluss- und Bachsedimente des Mansfelder Landes

Überblick über die exponierten Bachsediment-Proben des Mansfelder Landes und Ergebnisse der lichtmikroskopischen Auswertung des Alphaspuren-Inventars auf den Festkörperspurdetektoren unter Angabe der Expositions-Nummer (Nr.), Expositionsdauer (t), Anzahl ( $n_{HT}$ ) der Heiße Teilchen-Spuren (Sternspurmuster) pro  $cm^2$ , der Spurdichte ( $\delta_{Spur}$ ) von Alphapartikeln und Hinweis auf eine weitere Bearbeitung der Probe mit einem Elektronenmikroskop (EMS=Elektronenstrahlmikrosonde, REM=Rasterelektronenmikroskop) sowie Probennahmepunkte (Ort) im Mansfelder Land entsprechend der Abb.59.

Der überwiegende Teil der Proben wurde von Herrn Dr. P. Schreck zur Verfügung gestellt. Die Nummer hinter den Probennamen entspricht seinen Probenbezeichnungen. Sie wurden für Vergleichszwecke mit angegeben. Für die Arbeit spielen sie keine Rolle.

Nr.	Probe	t	$n_{HT}$	$\delta_{Spur}$	Methoden	Ort
130	Böse Sieben bei Hergisdorf <63 $\mu m$ ; nicht eingebettet	6 Wochen	10	gering-mittel, viele Cluster		19
131	Saale (S001001) <63 $\mu m$ ; nicht eingebettet	6 Wochen	5	gering-mittel		73
132	Beesenstedter Gr. (S001002) <63 $\mu m$ ; nicht eingebettet	6 Wochen	5	gering Cluster		74
133	Schlenze Unterlauf (S001003) 63 $\mu m$ ; nicht eingebettet	6 Wochen	8	gering Cluster		28
134	Fleischbach (S001004) <63 $\mu m$ ; nicht eingebettet	6 Wochen	7	gering Cluster		76
135	Fleischbach (S001005) <63 $\mu m$ ; nicht eingebettet	6 Wochen	8	gering Cluster		77
136	Ritzkebach (S001007) <63 $\mu m$ ; nicht eingebettet	6 Wochen	5	gering Cluster		79
137	Flutgraben (S001009) <63 $\mu m$ ; nicht eingebettet	6 Wochen	8	gering Cluster		81
138	Hüttengrundbach (S001010) <63 $\mu m$ ; nicht eingebettet	6 Wochen	5	gering		82
139	Salzgraben an Einmündung Hüttengrundbach (S001011) <63 $\mu m$ ; nicht eingebettet	6 Wochen	3	gering		83
140	Salza am Auslauf Süßer See (S001012) <63 $\mu m$ ; nicht eingebettet	6 Wochen	4	gering		84
141	Mittelgraben (S001013) <63 $\mu m$ ; nicht eingebettet	6 Wochen	2	gering		85
142	Ringkanal (S001014) <63 $\mu m$ ; nicht eingebettet	6 Wochen	6	gering		86

Nr.	Probe	t	n <sub>HT</sub>	δ <sub>Spur</sub>	Methoden	Ort
143	Würdebach (S001015) <63 µm; nicht eingebettet	6 Wochen	0,2	gering		87
192	Goldgrundbach, oberer Mittellauf, am Ausstrich des Kupferschieferflözes (S990802); nicht eingebettet	10 Wochen	11	mittel viele Cluster		57
193	Dippelsbach, Oberlauf (S00608) nicht eingebettet	10 Wochen	11	mittel viele Cluster		70
194	Goldgrundbach, unterer Mittellauf (S00607) nicht eingebettet	10 Wochen	16	mittel viele Cluster		69
195	Salza, Unterlauf (S00601) nicht eingebettet	10 Wochen	9	mittel viele Cluster		63
209	Glume Unterlauf, in Eisle- ben eingebettet	4 Wochen	5	gering Cluster	EMS	2
210	Goldgrundbach an Einmün- dung in Böse Sieben nahe Wimmelburg; eingebettet	4 Wochen	2	mittel	EMS, REM	17
370	Böse Sieben zw. Hergisdorf und Wimmelburg eingebettet	8 Wochen	1,6	gering		67
371			0,4			
372			0,6			
373	Glume Mittellauf, W' Eisle- ben an Lademann- Schachthalde; eingebettet	8 Wochen	5	gering	REM (374)	66
374			6			
375			5			
376	Glume, oberer Mittellauf eingebettet	8 Wochen	5	gering	REM (376, 377, 378)	65
377			8			
378			6			
379	Glume, Oberlauf, nahe Schlackenhalde Helbra eingebettet	8 Wochen	2	gering	REM (380)	1
380			2			
381			1			
382	Böse Sieben, Mittellauf, südwestlich von Wimmel- burg eingebettet	8 Wochen	0,4	gering, Spuren in Clustern konzentriert		16
383			0,6			
384			1			
385	Mittelgraben (S990116) eingebettet	8 Wochen	3	mittel		38
386			2			
387			1			

<b>Nr.</b>	<b>Probe</b>	<b>t</b>	<b>n<sub>HT</sub></b>	<b>δ<sub>Spur</sub></b>	<b>Methoden</b>	<b>Ort</b>
388	Salzgraben (S981111), nach	8 Wochen	4	gering		11
389	Einmündung des Hütten-		2			
390	grundbaches; eingebettet		1			
391	Schlenze Unterlauf	8 Wochen	3	gering, viele		28
392	(S990106), am Mundloch		1			
393	Schlüsselstollen; eingebettet		3			
394	Goldgrundbach, vor Ein-	8 Wochen	0,2	gering, in		17
395	mündung in Böse Sieben 630-200 µm; eingebettet		0,2			
396	Goldgrundbach, vor Ein-	8 Wochen	0,2	mittel, wolki-		17
397	mündung in Böse Sieben 200-63 µm; eingebettet		kei- ne			
398	Böse Sieben bei Wimmel-	8 Wochen	1	mittel, in		15
399	burg 630-200 µm; eingebet- tet		1			
400	Böse Sieben bei Wimmel-	8 Wochen	1	mittel, viele		15
401	burg 200-63 µm; eingebettet		1			
402	Böse Sieben bei Wimmel-	8 Wochen	7	gering	REM (402)	15
403	burg <63 µm; eingebettet		7			

## Anhang J 2 Fluss- und Bachsedimente des Mansfelder Landes

Ergebnisse der Elektronenmikroskop-Untersuchungen der Bachsediment-Proben des Mansfelder Landes.

$n_M$  = Anzahl der auf der Probenoberfläche markierten Bereiche (Bezeichnungen mit Buchstaben des Alphabets), in denen mit Hilfe von Festkörperspur-Detektoren Alphaemitter (Heiße Teilchen) lokalisiert wurden

$n_\alpha$  = Anzahl der markierten Bereiche, in denen Alphaemitter nachgewiesen werden konnten

Charakteristik = Beschreibung der detektierten Alphaemitter (Elementzusammensetzung, Mineral, Korngröße/-form). In Klammern angegebene Elemente sind in geringeren Mengen enthalten, was durch einen schwachen Peak im Spektrum angezeigt wird. Elemente mit einem Ausrufezeichen zeigten im Spektrum einen deutlichen Peak, sie haben einen großen Anteil an der im Probenausschnitt analysierten Elementzusammensetzung.

Spektrum = Hinweis auf Abbildung von EDX-Spektrum und REM-Aufnahme des entsprechenden Alphaemitters (Abb. im Kap. 4; Tafeln in der Anlage)

Nr.	$n_M$	$n_\alpha$	Charakteristik	Spektrum
209	21	13	<u>209 a, b, h, i, j, l, o, p, q, s</u> : La, Ce, Nd, Y, P, <b>Th</b> = <i>Monazit</i> ; 20 – 70 µm große Körnchen <u>209 f</u> : Zr, Si, Y, Ce, Hf, U = <i>Zirkon</i> ; 40×50 µm großes Korn mit Zirkon <u>209 m</u> : U, Y, P, Yb, Er, Dy und weitere schwere SE = <i>Xenotim</i> ; 20 µm großes Körnchen <u>209 n</u> : <b>Th</b> , Y, P, Yb, Er, Dy und weitere schwere SE = <i>Xenotim</i> ; 40 µm großes Körnchen	
210	9	4	<u>210 b, h</u> : U, Zr, Hf, Si = <i>Zirkon</i> <u>210 g, k</u> : <b>Th</b> , Ce, La, Nd, Pr, Y, P, Ca = <i>Monazit</i>	Tafel 96 (210 b) Tafeln 97, 98
374	24	11	<u>374 a, b, c, e, f, g, h, i, m, o, v</u> : La, Ce, P, Ca, <b>Th</b> = <i>Monazit</i> ; überwiegend um 20 µm große Körnchen	Tafeln 99-104 ohne Abb.: c, h, m, o, i
376	14	11	<u>376 a, c, e, f, g, h, i, j, k, l</u> : La, Ce, P, Ca, <b>Th</b> = <i>Monazit</i> ; zwischen 5 und 30 µm große Körnchen <u>376 b</u> : Y, <b>Th</b> , U, P, Ca, Si, Ti, Ce, La und weitere schwere SE = <i>Xenotim</i> ; ca. 10 µm großes Korn	Tafeln 105-108 ohne Abb.: a, c, e, f, h, i Tafel 109
377	26	14	<u>377 b, d, e, f, l, m, n, o, q, r, s, t, w</u> : La, Ce, P, Ca, <b>Th</b> = <i>Monazit</i> ; zwischen 5 und 20 µm große Körnchen <u>377 v</u> : Y, U, Dy, Gd, P = <i>Xenotim</i> ; ca. 10 µm großes Körnchen	Tafeln 110-115, Abb. 61 ohne Abb.: m, n, o, q, s, t, w Tafel 116
378	27	14	<u>378 c, e, h, n, p, q, s, t, u, v, w, x, z, au</u> : La, Ce, P, Ca, <b>Th</b> = <i>Monazit</i> ; zwischen 6 und 70 µm große Körnchen	Tafeln 117-130
380	8	3	<u>380 e, f</u> : La, Ce, P, Ca, <b>Th</b> , Au = <i>Monazit</i> ; 10 und 50 µm große Körnchen <u>380 g</u> : Ti, Si, Y, P, Zr, <b>Th</b> , U, Ce, La, Au = <i>Monazit</i> ? Goldpeaks wegen Bespatterung der Probe mit Gold	Tafeln 131, 132 Tafel 133
393	13	10	<u>393 a, b, c, f, g, k, l, n, q, r</u> : La, Ce, P, Ca, <b>Th</b> = <i>Monazit</i> ; zwischen 10 und 50 µm große Körnchen; z.T. bis 100 µm groß	Tafeln 134-140 ohne Abb.: c, l, r

Nr.	$n_M$	$n_\alpha$	Charakteristik	Spektrum
402	26	17	<p>402 a, b, c, e, g, j, k, l, o, p, q, r, s, t, v, w: La, Ce, P, Ca, Th = <i>Monazit</i>; zwischen 5 und 30 <math>\mu\text{m}</math> große Körnchen</p> <p>402 h: Ti, Ce, P, S, Fe, Th, Ca = <i>Monazit??</i>; ca. 20 <math>\mu\text{m}</math> großes Körnchen</p> <p>402 c: Zr, Si, U, Ca = <i>Zirkon</i></p>	<p>Tafeln 142-151 ohne Abb.: q, s, t, v, w</p> <p>Tafel 152</p> <p>ohne Abb.</p>

## Anhang K Seesedimente vom Süßen See

Überblick über die exponierten Sedimentproben vom Süßen See und Ergebnisse der lichtmikroskopischen Auswertung des Alphaspuren-Inventars auf den Festkörperspurdetectoren unter Angabe der Expositions-Nummer (Nr.), Expositionsdauer (t), Anzahl ( $n_{HT}$ ) der Heiße Teilchen-Spuren (Sternspurmuster) pro  $cm^2$  und der Spurdichte ( $\delta_{Spur}$ ) von Alphapartikeln. Die Angabe oben und unten bei der Probennummer bedeutet, dass einmal die Oberseite und einmal die Unterseite des Wachspresslings exponiert wurde. Die Wachspresslinge haben eine Oberfläche vom  $7,5 cm^2$ .

Nr.	Probe	t	$n_{HT}$	$\delta_{Spur}$
423 <sub>oben</sub> 423 <sub>unten</sub>	Süßer See-Sedimente Wachspress- linge, 1 cm Teufe	8 Wochen	keine 0,1	mittel
424 <sub>oben</sub> 424 <sub>unten</sub>	Süßer See-Sedimente Wachspress- linge, 5 cm Teufe	8 Wochen	0,8 0,8	mittel
425 <sub>oben</sub> 425 <sub>unten</sub>	Süßer See-Sedimente Wachspress- linge, 9 cm Teufe	8 Wochen	1,3 0,9	mittel
426 <sub>oben</sub> 426 <sub>unten</sub>	Süßer See-Sedimente Wachspress- linge, 10 cm Teufe	8 Wochen	1,5 1,7	mittel
427 <sub>oben</sub> 427 <sub>unten</sub>	Süßer See-Sedimente Wachspress- linge, 11 cm Teufe	8 Wochen	0,1 keine	mittel
428 <sub>oben</sub> 428 <sub>unten</sub>	Süßer See-Sedimente Wachspress- linge, 12 cm Teufe	8 Wochen	0,5 0,3	mittel
429 <sub>oben</sub> 429 <sub>unten</sub>	Süßer See-Sedimente Wachspress- linge, 13 cm Teufe	8 Wochen	0,8 0,3	mittel
430 <sub>oben</sub> 430 <sub>unten</sub>	Süßer See-Sedimente Wachspress- linge, 16 cm Teufe	8 Wochen	keine keine	mittel
431 <sub>oben</sub> 431 <sub>unten</sub>	Süßer See-Sedimente Wachspress- linge, 20 cm Teufe	8 Wochen	keine keine	mittel
432 <sub>oben</sub> 432 <sub>unten</sub>	Süßer See-Sedimente Wachspress- linge, 25 cm Teufe	8 Wochen	0,1 0,1	mittel
433 <sub>oben</sub> 433 <sub>unten</sub>	Süßer See-Sedimente Wachspress- linge, 30 cm Teufe	8 Wochen	keine 0,1	mittel
434 <sub>oben</sub> 434 <sub>unten</sub>	Süßer See-Sedimente Wachspress- linge, 36 cm Teufe	8 Wochen	0,3 0,1	mittel
435 <sub>oben</sub> 435 <sub>unten</sub>	Süßer See-Sedimente Wachspress- linge, 37 cm Teufe	8 Wochen	0,1 0,4	mittel
436 <sub>oben</sub> 436 <sub>unten</sub>	Süßer See-Sedimente Wachspress- linge, 38 cm Teufe	8 Wochen	0,1 keine	mittel

<b>Nr.</b>	<b>Probe</b>	<b>t</b>	<b>n<sub>HT</sub></b>	<b>δ<sub>Spur</sub></b>
437 <sub>oben</sub> 437 <sub>unten</sub>	Süßer See-Sedimente Wachspres- linge, 41 cm Teufe	8 Wochen	keine keine	mittel
438 <sub>oben</sub> 438 <sub>unten</sub>	Süßer See-Sedimente Wachspres- linge, 45 cm Teufe	8 Wochen	0,1 keine	mittel

**Anhang L 1 Überflutungssedimente von Elbe und Mulde**

Überblick über die exponierten Sedimentproben von Elbe und Mulde und Ergebnisse der lichtmikroskopischen Auswertung des Alphaspuren-Inventars auf den Festkörperspurdetektoren unter Angabe der Expositionsnummer (Nr.), Expositionsdauer (t), Anzahl ( $n_{HT}$ ) der Heiße Teilchen-Spuren (Sternspurmuster) pro  $cm^2$ , der Spurdichte ( $\delta_{Spur}$ ) von Alphapartikeln und Hinweis auf eine weitere Bearbeitung der Probe mit einem Elektronenmikroskop. EMS=Elektronenstrahlmikrosonde, REM=Rasterelektronenmikroskop.

<b>Nr.</b>	<b>Probe</b>	<b>t</b>	<b><math>n_{HT}</math></b>	<b><math>\delta_{Spur}</math></b>	<b>Methoden</b>
152	Schlammprobe Torgau Einzugsgebiet Elbe nicht eingebettet	6 Wochen	3	mittel wolkig	
153	Schlammprobe Riesa Einzugsgebiet Elbe nicht eingebettet	6 Wochen	7	mittel wolkig	
154	Schlammprobe Wittenberg Einzugsgebiet Elbe nicht eingebettet	6 Wochen	2	gering wolkig	
155	Schlammprobe Wörlitz Einzugsgebiet Elbe nicht eingebettet	6 Wochen	1	gering wolkig	
156	Schlammprobe Pirna Einzugsgebiet Elbe nicht eingebettet	6 Wochen	7	gering	
157	Schlammprobe Kaditz Einzugsgebiet Elbe nicht eingebettet	6 Wochen	5	gering	
158	Schlammprobe Heidenau Einzugsgebiet Elbe nicht eingebettet	6 Wochen	7	mittel wolkig	
159	Schlammprobe Eilenburg Einzugsgebiet Mulde nicht eingebettet	6 Wochen	2	mittel	
160	Schlammprobe NSG Dehnt- zer Lachen (Wurzen) Einzugsgebiet Mulde nicht eingebettet	6 Wochen	6	mittel	

<b>Nr.</b>	<b>Probe</b>	<b>t</b>	<b>n<sub>HT</sub></b>	<b>δ<sub>Spur</sub></b>	<b>Methoden</b>
161	Schlammprobe Grimma (Kloster Nimbschen) Einzugsgebiet Mulde nicht eingebettet	6 Wochen	12	mittel	
162	Schlammprobe Autobahn- brücke Siebenlehn Einzugsgebiet Freiburger Mulde nicht eingebettet	6 Wochen	7	mittel	
163	Schlammprobe Sportplatz Wolkenburg Einzugsgebiet Zwickauer Mulde nicht eingebettet	6 Wochen	3	mittel	
164	Schlammprobe Fußgänger- brücke Glauchau Einzugsgebiet Zwickauer Mulde nicht eingebettet	6 Wochen	2	mittel	
165	Schlammprobe Schlagwitz Einzugsgebiet Zwickauer Mulde nicht eingebettet	6 Wochen	1	mittel	
231	Schlammprobe Grimma (Kloster Nimbschen) Einzugsgebiet Mulde eingebettet	8 Wochen	2	mittel	REM
306	Schlammprobe Naturschutz- gebiet Dehntzer Lachen nahe Wurzen Einzugsgebiet Mulde eingebettet	8 Wochen	6	gering wolkig	

## Anhang L 2 Überflutungssedimente von Elbe und Mulde

Ergebnisse der Elektronenmikroskop-Untersuchungen der Überflutungssedimente von Elbe und Mulde.

$n_M$  = Anzahl der auf der Probenoberfläche markierten Bereiche (Bezeichnungen mit Buchstaben des Alphabets), in denen mit Hilfe von Festkörperspur-Detektoren Alphaemitter (Heiße Teilchen) lokalisiert wurden

$n_\alpha$  = Anzahl der markierten Bereiche, in denen Alphaemitter nachgewiesen werden konnten

Charakteristik = Beschreibung der detektierten Alphaemitter (Elementzusammensetzung, Mineral, Korngröße/-form). In Klammern angegebene Elemente sind in geringeren Mengen enthalten, was durch einen schwachen Peak im Spektrum angezeigt wird. Elemente mit einem Ausrufezeichen zeigten im Spektrum einen deutlichen Peak, sie haben einen großen Anteil an der im Probenausschnitt analysierten Elementzusammensetzung.

Spektrum = Hinweis auf Abbildung von EDX-Spektrum und REM-Aufnahme des entsprechenden Alphaemitters (Abb. im Kap. 4; Tafeln in der Anlage)

Nr.	$n_M$	$n_\alpha$	Charakteristik	Spektrum
231	11	7	<u>231 b</u> : La, Ce, Nd, Ca, P, <b>Th</b> = <i>Monazit</i> ; ca. 11 $\mu\text{m}$ großes Körnchen	Tafel 153
			<u>231 c</u> : La, Ce, Nd, Pr, P, <b>Th</b> = <i>Monazit</i> ; 80 $\times$ 32 $\mu\text{m}$ groß, an größerem Korn	Abb. 67
			<u>231 e</u> : La, Ce, Nd, Ca, P, <b>Th</b> = <i>Monazit</i> ; ca. 25 $\mu\text{m}$ großes Körnchen, verwachsen mit Quarz	Tafel 154
			<u>231 f</u> : Zr, Si, ( <b>U</b> ), Fe = <i>Zirkon</i> ; 4 $\mu\text{m}$ großes Korn	Tafel 155
			<u>231 h</u> : Zr, Si, <b>Th</b> , <b>U</b> , K, Ca, Fe = <i>Zirkon</i> ; Quarz-Feldspat-Korn mit 4 $\mu\text{m}$ großem Zirkon	Tafel 156
			<u>231 j</u> : La, Ce, Nd, Pr, <b>Th</b> , (( <b>U</b> )) P = <i>Monazit</i> ; ca. 48 $\times$ 14 $\mu\text{m}$ großes Körnchen	Tafel 157
			<u>231 k</u> : La, Ce, Nd, Ca, P, <b>Th</b> = <i>Monazit</i> ; ca. 32 $\times$ 6 $\mu\text{m}$ großes Körnchen	Tafel 158

## Anhang M 1 Sedimente aus der Lupe

Überblick über die exponierten Sedimentproben aus der Lupe und Ergebnisse der lichtmikroskopischen Auswertung des Alphasparten-Inventars auf den Festkörperspurdetectoren unter Angabe der Expositions-Nummer (Nr.), Expositionsdauer (t), Anzahl ( $n_{HT}$ ) der Heiße Teilchen-Spuren (Sternspurmuster) pro  $cm^2$ , der Spurdichte ( $\delta_{Spur}$ ) von Alphapartikeln und Hinweis auf eine weitere Bearbeitung der Probe mit einem Elektronenmikroskop. EMS=Elektronenstrahlmikrosonde, REM=Rasterelektronenmikroskop.

Nr.	Probe	t	$n_{HT}$	$\delta_{Spur}$	Methoden
214	Zöschen, > 630 $\mu m$ nicht eingebettet	6 Wochen	0,9	mittel	
215	Zöschen, < 630 $\mu m$ nicht eingebettet	6 Wochen	3	mittel	
216	Horburg, > 630 $\mu m$ nicht eingebettet	6 Wochen	0,7	mittel wolkig	
217	Horburg; < 630 $\mu m$ nicht eingebettet	6 Wochen	1,7	mittel wolkig	
256	Zöschen, < 630 $\mu m$ mit $H_2O_2$ behandelt nicht eingebettet	4 Wochen	2,7	mittel wolkig	
257	Zöschen, gesamt mit $H_2O_2$ behandelt nicht eingebettet	4 Wochen	2,2	mittel wolkig	
272	Zöschen, > 2 mm eingebettet	8 Wochen	1,6	gering wolkig	EMS, REM
273	Zöschen, > 630 $\mu m$ eingebettet	8 Wochen	2	gering wolkig	EMS, REM
292	Horburg, gesamt eingebettet	8 Wochen	0,4	gering wolkig	EMS
293	Horburg, gesamt mit $H_2O_2$ behandelt eingebettet	8 Wochen	1,6	mittel wolkig	
294	Zöschen, < 630 $\mu m$ eingebettet	8 Wochen	0,8	mittel wolkig	EMS
295	Zöschen, gesamt mit $H_2O_2$ behandelt eingebettet	8 Wochen	1,9	mittel wolkig	EMS
340	Zöschen, < 630 $\mu m$ > 200 $\mu m$ nicht eingebettet	8 Wochen	1,5	mittel wolkig	

<b>Nr.</b>	<b>Probe</b>	<b>t</b>	<b>n<sub>HT</sub></b>	<b>δ<sub>Spur</sub></b>	<b>Methoden</b>
341	Zöschen, > 63 µm nicht eingebettet	8 Wochen	1,3	mittel wolkig	
342	Zöschen, < 63 µm nicht eingebettet	8 Wochen	6	hoch wolkig	
343	Horburg, > 630 µm nicht eingebettet	8 Wochen	0,2	gering wolkig	
344	Horburg, > 200 µm nicht eingebettet	8 Wochen	1	gering wolkig	
345	Horburg, > 63 µm nicht eingebettet	8 Wochen	0,9	mittel homogen	
346	Horburg, < 63 µm nicht eingebettet	8 Wochen	2	mittel homogen	
347	Horburg, > 630 µm mit H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> behandelt nicht eingebettet	8 Wochen	0,8	mittel homogen	
348	Horburg, > 200 µm mit H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> behandelt nicht eingebettet	8 Wochen	1,8	mittel wolkig	
349	Horburg, > 63 µm mit H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> behandelt nicht eingebettet	8 Wochen	1,4	mittel wolkig	
350	Horburg, < 63 µm mit H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> behandelt nicht eingebettet	8 Wochen	4,4	hoch homogen	
351	Zöschen, > 630 µm mit H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> behandelt nicht eingebettet	8 Wochen	1,4	mittel homogen	
352	Zöschen, > 200 µm mit H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> behandelt nicht eingebettet	8 Wochen	0,9	mittel homogen	
353	Zöschen, > 63 µm mit H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> behandelt nicht eingebettet	8 Wochen	3,4	mittel homogen	
354	Zöschen, < 63 µm mit H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> behandelt nicht eingebettet	8 Wochen	11,5	mittel homogen	
414	Zöschen, < 63 µm	8 Wochen	3,7	gering	
415	mit H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> behandelt		2,5		
416	eingebettet; Tripel-Probe		2,9		

---

---

<b>Nr.</b>	<b>Probe</b>	<b>t</b>	<b>n<sub>HT</sub></b>	<b>δ<sub>Spur</sub></b>	<b>Methoden</b>
417	Horburg, < 63 μm	8 Wochen	0,4	gering	
418	eingebettet; Tripel-Probe		0,8		
419			0,2		
420	Zöschen, < 63 μm	8 Wochen	3,9	gering	
421	eingebettet; Tripel-Probe		2,2		
422			2,0		

---

---

## Anhang M 2 Sedimente aus der Luppe

Ergebnisse der Elektronenmikroskop-Untersuchungen der Sedimente aus der Luppe.

$n_M$  = Anzahl der auf der Probenoberfläche markierten Bereiche (Bezeichnungen mit Buchstaben des Alphabets), in denen mit Hilfe von Festkörperspur-Detektoren Alphaemitter (Heiße Teilchen) lokalisiert wurden

$n_\alpha$  = Anzahl der markierten Bereiche, in denen Alphaemitter nachgewiesen werden konnten

Charakteristik = Beschreibung der detektierten Alphaemitter (Elementzusammensetzung, Mineral, Korngröße/-form). In Klammern angegebene Elemente sind in geringeren Mengen enthalten, was durch einen schwachen Peak im Spektrum angezeigt wird. Elemente mit einem Ausrufezeichen zeigten im Spektrum einen deutlichen Peak, sie haben einen großen Anteil an der im Probenausschnitt analysierten Elementzusammensetzung.

Spektrum = Hinweis auf Abbildung von EDX-Spektrum und REM-Aufnahme des entsprechenden Alphaemitters (Abb. im Kap. 4; Tafeln in der Anlage)

Nr.	$n_M$	$n_\alpha$	Charakteristik	Spektrum
272	6	2	<u>272 a</u> : La, Ce, Nd, <b>Th</b> , P, Y, S = <i>Monazit</i> ; ca. 35×15 µm großes Körnchen	Abb. 71
			<u>272 b</u> : La, Ce, Nd, Gd, <b>Th</b> , P, Y, Rb = <i>Monazit</i> ; ca. 17×17 µm großes Körnchen	Tafel 159
273	9	2	<u>273 a</u> : La, Ce, Ca, P, <b>Th</b> , Y = <i>Monazit</i> ; ca. 19×9 µm großes Körnchen	Tafel 160
			<u>273 e</u> : La, Ce, Ca, P, <b>Th</b> , Y = <i>Monazit</i> ; ca. 34×9 µm großes Körnchen	Tafel 161
292	2	1	<u>292 a</u> : La, Ce, Ca, P, <b>Th</b> = <i>Monazit</i> ; ca. 25×25 µm großes Körnchen	ohne Spektrum
294	4	1	<u>294 c</u> : La, Ce, Ca, P, <b>Th</b> = <i>Monazit</i>	ohne Spektrum
295	6	1	<u>295 e</u> : La, Ce, Ca, P, <b>Th</b> = <i>Monazit</i> ; ca. 50×25 µm großes Körnchen	ohne Spektrum

**Anhang N Seesedimente aus Südamerika**

Überblick über die exponierten Sedimentproben aus Südamerika und Ergebnisse der lichtmikroskopischen Auswertung des Alphaspuren-Inventars auf den Festkörperspurdetektoren unter Angabe der Expositionsnummer (Nr.), Expositionsdauer (t), Anzahl ( $n_{HT}$ ) der Heiße Teilchen-Spuren (Sternspurmuster) pro  $cm^2$  und der Spurdichte ( $\delta_{Spur}$ ) von Alphapartikeln.

<b>Nr.</b>	<b>Probe</b>	<b>t</b>	<b><math>n_{HT}</math></b>	<b><math>\delta_{Spur}</math></b>
280	Laguna del Laja 2c 0-1 cm	8 Wochen	0,04	mittel homogen
281	Laguna del Laja 2c 4-5 cm	8 Wochen	0,04	mittel homogen
282	Laguna del Laja 2c 5-6 cm	8 Wochen	keine	mittel homogen
283	Laguna del Laja 2c 9-10 cm	8 Wochen	0,04	mittel homogen
284	Laguna del Laja 2c 10-11 cm	8 Wochen	0,04	mittel homogen
285	Laguna del Laja 2c 11-12 cm	8 Wochen	keine	gering homogen
286	Laguna del Laja 2c 12-13 cm	8 Wochen	keine	gering homogen
287	Laguna del Laja 2c 18-19 cm	8 Wochen	keine	gering homogen
307	Caviahue 1; Ton 20-21 cm	8 Wochen	keine	gering
308	Caviahue 1; Ton, Schluff 70-71 cm	8 Wochen	0,04	gering
309	Caviahue 1; Schluff 210-211 cm	8 Wochen	keine	gering
310	Caviahue 1; Schluff 225-226 cm	8 Wochen	keine	gering
311	Caviahue 1; Feinsand 239-240	8 Wochen	0,1	gering
312	Caviahue 1; Schluff 315-316 cm	8 Wochen	0,6	gering

<b>Nr.</b>	<b>Probe</b>	<b>t</b>	<b>n<sub>HT</sub></b>	<b>δ<sub>Spur</sub></b>
313	Caviahue 1; Feinsand 339-340 cm	8 Wochen	0,4	gering
314	Caviahue 1; Schluff 395-396 cm	8 Wochen	0,04	gering
315	Caviahue 1; Mittelsand 470-471 cm	8 Wochen	0,04	gering
316	Caviahue 1; Feinsand 475-476 cm	8 Wochen	0,3	gering
317	Caviahue 1; Schluff 515-516 cm	8 Wochen	0,2	gering
318	Caviahue 1; Schluff 540-541 cm	8 Wochen	0,04	gering
319	Caviahue 1; Mittelsand 598-590 cm	8 Wochen	keine	gering

## Anhang O Monazitsande von Brasilien

Überblick über die exponierten Monazitsande von Brasilien und Ergebnisse der lichtmikroskopischen Auswertung des Alphaspuren-Inventars auf den Festkörperspurdetektoren unter Angabe der Expositions-Nummer (Nr.), Expositionsdauer (t), Anzahl ( $n_{HT}$ ) der Heiße Teilchen-Spuren (Sternspurmuster) pro  $cm^2$ , der Spurdichte ( $\delta_{Spur}$ ) von Alphapartikeln und Hinweis auf eine weitere Bearbeitung der Probe mit einem Elektronenmikroskop. EMS=Elektronenstrahlmikrosonde, REM=Rasterelektronenmikroskop.

Nr.	Probe	t	$n_{HT}$	$\delta_{Spur}$	Methoden
114	Monazitsand dunkel nicht eingebettet	3 Tage	keine	sehr hoch Cluster	
121	Monazitsand hell nicht eingebettet	3 Tage	keine	sehr hoch Cluster	
125	Monazitsand dunkel nicht eingebettet	3 Tage	keine	hoch Cluster	
126	Monazitsand hell nicht eingebettet	3 Tage	keine	sehr hoch Cluster	
127	Monazitsand hell nicht eingebettet	3 Tage	keine	sehr hoch Cluster	
144	Monazitsand hell nicht eingebettet	3 Tage	keine	sehr hoch Cluster	
145	Monazitsand hell nicht eingebettet	3 Tage	keine	sehr hoch Cluster	
146	Monazitsand dunkel nicht eingebettet	3 Tage	keine	hoch Cluster	
147	Monazitsand hell nicht eingebettet	3 Tage	keine	hoch Cluster	
234	Monazitsand hell eingebettet	3 Tage	keine	sehr hoch Cluster	EMS
258	Monazitsand hell eingebettet	3 Tage	keine	sehr hoch Cluster	
270	Monazitsand dunkel eingebettet	10 Tage	keine	mittel Cluster	
271	Monazitsand hell eingebettet	10 Tage	keine	sehr hoch Cluster	
470	Monazitsand hell, gemahlen nicht eingebettet	2 Tage	keine	sehr hoch Cluster	

---

---

<b>Nr.</b>	<b>Probe</b>	<b>t</b>	<b>n<sub>HT</sub></b>	<b><math>\delta_{\text{Spur}}</math></b>	<b>Methoden</b>
471	Monazitsand hell, gemahlen nicht eingebettet	2 Tage	keine	sehr hoch Cluster	
472	Monazitsand hell, gemahlen nicht eingebettet	6 Tage	keine	sehr hoch Cluster	
473	Monazitsand hell, gemahlen nicht eingebettet	6 Tage	keine	sehr hoch Cluster	

---

---

**Anhang P            Zirkone von Bornholm**

Überblick über die exponierte Zirkon-Probe und Ergebnisse der lichtmikroskopischen Auswertung des Alpha-spuren-Inventars auf dem Festkörperspurdetektor unter Angabe der Expositions-Nummer (Nr.), Expositionsdauer (t), Anzahl ( $n_{HT}$ ) der Heiße Teilchen-Spuren (Sternspurmuster) pro  $cm^2$ , der Spurdichte ( $\delta_{Spur}$ ) von Alphapartikeln und Hinweis auf eine weitere Bearbeitung der Probe mit einem Elektronenmikroskop. EMS=Elektronenstrahlmikrosonde, REM=Rasterelektronenmikroskop.

<b>Nr.</b>	<b>Probe</b>	<b>t</b>	<b><math>n_{HT}</math></b>	<b><math>\delta_{Spur}</math></b>	<b>Methoden</b>
241	Zirkone von Bornholm 6 Einzelkristalle	2 Wochen	3	keine	REM

## Anhang Q Autunitkristalle

Überblick über die exponierten Autunitkristall-Proben und Ergebnisse der lichtmikroskopischen Auswertung des Alphaspuren-Inventars auf den Festkörperspurdetektoren unter Angabe der Expositions-Nummer (Nr.), Expositions-dauer (t), Anzahl ( $n_{HT}$ ) der Heiße Teilchen-Spuren (Sternspurmuster) pro  $\text{cm}^2$  und der Spurdichte ( $\delta_{\text{Spur}}$ ) von Alphapartikeln.

Nr.	Probe	t	$n_{HT}$	$\delta_{\text{Spur}}$
259	Autunitkristalle (Erzgebirge) nicht eingebettet	5 Minuten	keine	hoch
260	Autunitkristalle (Erzgebirge) nicht	10 Minuten	keine	hoch
261	Autunitkristalle (Erzgebirge) nicht eingebettet	15 Minuten	keine	hoch
262	Autunitkristalle (Erzgebirge) nicht eingebettet	20 Minuten	keine	hoch
263	Autunitkristalle (Erzgebirge) nicht eingebettet	30 Minuten	keine	hoch
264	Autunitkristalle (Erzgebirge) nicht eingebettet, mit Gewicht be- schwert	20 Minuten	keine	hoch
406	Autunitkristalle (Vogtland) eingebettet	30 Minuten	keine	hoch
407	Autunitkristalle (Vogtland) eingebettet	45 Minuten	keine	hoch
408	Autunitkristalle (Vogtland) eingebettet	60 Minuten	keine	hoch
409	Autunitkristalle (Vogtland) eingebettet	75 Minuten	keine	hoch
410	Autunitkristalle (Vogtland) eingebettet	90 Minuten	keine	hoch
411	Autunitkristalle (Vogtland) eingebettet	64 Stunden	keine	sehr hoch, Spuren überlagern sich
412	Autunitkristalle (Vogtland) eingebettet	6 Stunden	keine	sehr hoch, Spuren überlagern sich
413	Autunitkristalle (Vogtland) eingebettet	16 Stunden	keine	sehr hoch, Spuren überlagern sich

## Anhang R 1 Uranhaltiges Konglomerat der Blind River Formation Canada

Überblick über die exponierten Konglomerat-Proben von Canada und Ergebnisse der lichtmikroskopischen Auswertung des Alphaspuren-Inventars auf den Festkörperspurdetektoren unter Angabe der Expositionsnummer (Nr.), Expositionsdauer (t), Anzahl ( $n_{HT}$ ) der Heiße Teilchen-Spuren (Sternspurmuster) pro  $cm^2$ , der Spurdichte ( $\delta_{Spur}$ ) von Alphapartikeln und Hinweis auf eine weitere Bearbeitung der Probe mit einem Elektronenmikroskop. EMS=Elektronenstrahlmikrosonde, REM=Rasterelektronenmikroskop.

Nr.	Probe	t	$n_{HT}$	$\delta_{Spur}$	Methoden
170	Konglomerat Blind River gemahlen nicht eingebettet	30 Tage	125	hoch viele Cluster	
205	Konglomerat Blind River gemahlen eingebettet	8 Tage	138	sehr hoch viele Cluster	REM, EMS
232	Konglomerat Blind River gemahlen eingebettet	6 Tage	67	sehr hoch viele Cluster	
358	Konglomerat Blind River Stück (2cm × 1cm groß) eingebettet	3 Tage	94	mittel inhomogen	

## Anhang R 2 Uranhaltiges Konglomerat der Blind River Formation Canada

Ergebnisse der Elektronenmikroskop-Untersuchungen der Konglomerat-Probe von Canada.

$n_M$  = Anzahl der auf der Probenoberfläche markierten Bereiche (Bezeichnungen mit Buchstaben des Alphabets), in denen mit Hilfe von Festkörperspur-Detektoren Alphaemitter (Heiße Teilchen) lokalisiert wurden

$n_\alpha$  = Anzahl der markierten Bereiche, in denen Alphaemitter nachgewiesen werden konnten

Charakteristik = Beschreibung der detektierten Alphaemitter (Elementzusammensetzung, Mineral, Korngröße/-form). In Klammern angegebene Elemente sind in geringeren Mengen enthalten, was durch einen schwachen Peak im Spektrum angezeigt wird. Elemente mit einem Ausrufezeichen zeigten im Spektrum einen deutlichen Peak, sie haben einen großen Anteil an der im Probenausschnitt analysierten Elementzusammensetzung.

Spektrum = Hinweis auf Abbildung von EDX-Spektrum und REM-Aufnahme des entsprechenden Alphaemitters (Abb. im Kap. 4; Tafeln in der Anlage)

Nr.	$n_M$	$n_\alpha$	Charakteristik	Spektrum
205	17	17	<u>205 a</u> : U, Ti, Mo, Rb = <b>Brannerit</b> $UTi_2O_6$	Tafel 162
			<u>205 b,c, e, i, u, v, w</u> : U, Pb = <b>Uraninit</b> $UO_2$	Tafeln 163-169
			<u>205 d</u> : U, Pb, Au = <b>Uraninit</b> $UO_2$	Tafel 170
			<u>205 g</u> : U, Si, Mo, Rb, (Au) = <b>Uraninit</b> $UO_2$	Tafel 171
			<u>205 h</u> : U, Pb, (Fe, Cu) = <b>Uraninit</b> $UO_2$	Tafel 172
			<u>205 j</u> : U, Pb, Si, Mo, Hg (Ti, Fe) = <b>Uraninit</b> $UO_2$	Tafel 173
			<u>205 k</u> : U, Mo, Au, Rb = <b>Uraninit</b> $UO_2$	Abb. 88
			<u>205 m, n</u> : U, Pb, (Fe) = <b>Uraninit</b> $UO_2$	Tafel 174, 175
			<u>205 q</u> : U, Y = $UO_2$ in silikatischer Matrix?	Tafel 176
			<u>205 t</u> : U, Pb, Cu = <b>Uraninit</b> $UO_2$	Tafel 177

## Anhang S 1 Uranhaltiger Granit von Menzenschwand

Überblick über die exponierten Granit-Proben von Menzenschwand und Ergebnisse der lichtmikroskopischen Auswertung des Alphaspuren-Inventars auf den Festkörperspurdetektoren unter Angabe der Expositionsnummer (Nr.), Expositionsdauer (t), Anzahl ( $n_{HT}$ ) der Heiße Teilchen-Spuren (Sternspurmuster) pro  $cm^2$ , der Spurdichte ( $\delta_{Spur}$ ) von Alphapartikeln und Hinweis auf eine weitere Bearbeitung der Probe mit einem Elektronenmikroskop. EMS=Elektronenstrahlmikrosonde, REM=Rasterelektronenmikroskop.

<b>Nr.</b>	<b>Probe</b>	<b>t</b>	<b><math>n_{HT}</math></b>	<b><math>\delta_{Spur}</math></b>	<b>Methoden</b>
99	uranhaltiger Granit von Menzenschwand am Stück, nicht eingebettet	6 Tage	5	mittel-hoch inhomogen	
100	uranhaltiger Granit von Menzenschwand gemahlen, nicht eingebettet	6 Tage	14	mittel-hoch inhomogen	
190	uranhaltiger Granit von Menzenschwand gemahlen, eingebettet	30 Tage	40	sehr hoch Cluster	EMS
206	uranhaltiger Granit von Menzenschwand gemahlen, eingebettet	7 Tage	5	sehr hoch Cluster	

## Anhang S 2 Uranhaltiger Granit von Menzenschwand

Ergebnisse der Elektronenmikroskop-Untersuchungen der Granitproben von Menzenschwand.

$n_M$  = Anzahl der auf der Probenoberfläche markierten Bereiche (Bezeichnungen mit Buchstaben des Alphabets), in denen mit Hilfe von Festkörperspur-Detektoren Alphaemitter (Heiße Teilchen) lokalisiert wurden

$n_\alpha$  = Anzahl der markierten Bereiche, in denen Alphaemitter nachgewiesen werden konnten

Charakteristik = Beschreibung der detektierten Alphaemitter (Elementzusammensetzung, Mineral, Korngröße/-form). In Klammern angegebene Elemente sind in geringeren Mengen enthalten, was durch einen schwachen Peak im Spektrum angezeigt wird. Elemente mit einem Ausrufezeichen zeigten im Spektrum einen deutlichen Peak, sie haben einen großen Anteil an der im Probenausschnitt analysierten Elementzusammensetzung.

Bei Doppelbuchstaben, z.B. 190 bb, wurden in einer Markierung (hier: b) zwei Alphaemitter gefunden.

Nr.	$n_M$	$n_\alpha$	Charakteristik
190	13	12	<p><u>190 a</u>: U, Fe, P, (Si) = <i>Uranylphosphat</i>; <i>Bassetit</i>?  <math>\text{Fe}(\text{UO}_2)_2(\text{PO}_4)_2 \cdot 8\text{H}_2\text{O}</math></p> <p><u>190 b</u>: U, P, Ba (Si) = <i>Uranocircit</i>? <math>\text{Ba}(\text{UO}_2)_2(\text{PO}_4)_2 \cdot 8-10\text{H}_2\text{O}</math></p> <p><u>190 bb</u>: U, Si, P, (Ba) = <i>Coffinit</i>? <math>\text{USiO}_4</math></p> <p><u>190 c</u>: U, Fe, P, (Si) = <i>Uranylphosphat</i>; <i>Bassetit</i>?  <math>\text{Fe}(\text{UO}_2)_2(\text{PO}_4)_2 \cdot 8\text{H}_2\text{O}</math></p> <p><u>190 d</u>: U, Si, (Ca) = <i>Coffinit</i>? <math>\text{USiO}_4</math></p> <p><u>190 f</u>: U, P, Ba (Fe) = <i>Uranocircit</i>?</p> <p><u>190 g</u>: U, (Ba, K, P, Pb) = <i>Uraninit</i>? <math>\text{UO}_2</math></p> <p><u>190 h</u>: U, P, Ba (Si, Al, Fe) = <i>Uranocircit</i>?</p> <p><u>190 i</u>: U = <i>Uraninit</i> <math>\text{UO}_2</math> mit dunklem Rand aus U, Si, (Ca, As) = <i>Coffinit</i></p> <p><u>190 j</u>: U, P, Ba = <i>Uranocircit</i>?</p> <p><u>190 k</u>: Ba, U, P = <i>Uranocircit</i>?</p> <p><u>190 l</u>: U, (As, Ba, P) = <i>Uramphit</i>? <math>\text{NH}_4(\text{UO}_2)(\text{PO}_4) \cdot 3\text{H}_2\text{O}</math>, glimmerartiges Mineral</p> <p><u>190 ll</u>: U, (Ca, Si) = <i>Uraninit</i>?</p> <p><u>190 m</u>: U, Si, Ba, P = <i>Coffinit</i>?</p>

## Anhang T      Gesteinsproben verschiedener Regionen Sachsens

Überblick über die exponierten Gesteinsproben von Sachsen und Ergebnisse der lichtmikroskopischen Auswertung des Alphaspuren-Inventars auf den Festkörperspurdetektoren unter Angabe der Expositions-Nummer (Nr.), Expositionsdauer (t), Anzahl ( $n_{HT}$ ) der Heiße Teilchen-Spuren (Sternspurmuster) pro  $cm^2$  und der Spurdichte ( $\delta_{Spur}$ ) von Alphapartikeln.

<b>Nr.</b>	<b>Probe</b>	<b>t</b>	<b><math>n_{HT}</math></b>	<b><math>\delta_{Spur}</math></b>
228	Pechblendegranit Hartenstein (Erzgebirge) eingebettet	1 Stunde	keine	sehr hoch Spurüberlagerungen
229	Pechblendegranit Hartenstein (Erzgebirge) eingebettet	1 Stunde	keine	sehr hoch Spurüberlagerungen
99	Eibenstocker Turmalingranit Breitenbrunn (Erzgebirge)	6 Wochen	6	gering wenige Cluster
100	Aplit Gottesberg (Vogtland/Erzgebirge)	6 Wochen	18	gering, z.T. mittel inhomogen
101	Gestreifter Hornstein, Hoher Brand bei Erlbach, Phycodenserie Vogtland/Erzgebirge	6 Wochen	0,8	gering, z.T. hoch inhomogen
102	Oberschlemaer Granit (Granit-Schiefer-Kontakt) Schneeberg (Erzgebirge)	3 Wochen	2,2	gering wenige Cluster
107	Kieselschiefer mit Phosphoritlage Unterer Graptolithenschiefer Altmannsgrün (Erzgebirge)	5 Wochen	0,05	hoch
108	Phonolith Jonsdorf (Zittauer Gebirge)	5 Wochen	0,1	hoch, z.T. sehr hoch, Cluster
109	Topasierter Quarzporphyr Saubach (Vogtland/Erzgebirge)	5 Wochen	2,7	hoch, homogen, Flecken ohne Spuren
110	Tentakulitenschiefer Dockelsberg bei Schönbrunn (Vogtland/Erzgebirge)	5 Wochen	0,4	gering, homogen, Flecken ohne Spuren
111	Phosphoritknolle $3,8 \times 2$ cm, Oberer Graptolithenschiefer Plauen (Vogtland/Erzgebirge)	3 Wochen	0,1	mittel homogen

<b>Nr.</b>	<b>Probe</b>	<b>t</b>	<b>n<sub>HT</sub></b>	<b>δ<sub>Spur</sub></b>
113	Steinkohle aus dem Rotliegenden Dresden (Freital-Gittersee)	3 Wochen	5	sehr hoch homogen viele Cluster
236	Pechblende 1,4 × 1,3 cm Schlema	1/2 Minuten	23	mittel
237	Pechblende 1,0 × 1,5 cm Schlema	2 Minuten	7	mittel
238	Pechblende 1,1 × 1,4 cm Schlema	3 Minuten	14	mittel
239	Pechblende 1,0 × 1,5 cm Schlema	4 Minuten	0,7	mittel
240	Pechblende 2,8 × 3,0 cm Schlema	5 Minuten	14	mittel

## Anhang U Autunit nach Lösung und Kristallisation

Überblick über die exponierten Proben des Autunits nach Lösung und Kristallisation und Ergebnisse der lichtmikroskopischen Auswertung des Alphaspuren-Inventars auf den Festkörperspurdetektoren unter Angabe der Expositions-Nummer (Nr.), Expositionsdauer (t), Anzahl ( $n_{HT}$ ) der Heiße Teilchen-Spuren (Sternspurmuster) pro  $cm^2$  und der Spurdichte ( $\delta_{Spur}$ ) von Alphapartikeln.

Nr.	Probe	t	$n_{HT}$	$\delta_{Spur}$
265	Kristallisationsprodukt nach Auflö- sung der Autunitproben 259-264 (vgl. Anhang Q); Abscheidung auf Glasplatte	30 Minuten	keine	hoch, beson- ders am Rand
266	Kristallisationsprodukt nach Auflö- sung der Autunitproben 259-264 (vgl. Anhang Q); Abscheidung auf Glasplatte	4 Tage	vorhanden, nicht zähl- bar	nicht erkenn- bar
267	Kristallisationsprodukt nach Auflö- sung der Autunitproben 259-264 (vgl. Anhang Q); Abscheidung auf Glasplatte	4 Tage	5	sehr hoch
269	Kristallisationsprodukt nach Auflö- sung der Autunitproben 259-264 (vgl. Anhang Q); Abscheidung auf Glasplatte	8 Tage	vorhanden, nicht zähl- bar	sehr hoch

## Anhang V      Uranhaltiges Konglomerat von Canada (Blind River-Formation); Schmelzaufschluss, Lösung/Kristallisation

Überblick über die exponierten behandelten Proben des uranhaltigen Konglomerates der Blind River-Formation und Ergebnisse der lichtmikroskopischen Auswertung des Alphaspuren-Inventars auf den Festkörperspurdetectoren unter Angabe der Expositions-Nummer (Nr.), Expositionsdauer (t), Anzahl ( $n_{HT}$ ) der Heiße Teilchen-Spuren (Sternspurmuster) pro  $cm^2$  und der Spurdichte ( $\delta_{Spur}$ ) von Alphapartikeln.

Nr.	Probe	t	$n_{HT}$	$\delta_{Spur}$
448	Konglomerat Blind River gemahlen, nicht eingebettet Ausgangsmaterial für die Schmelzaufschlüsse	15 Stunden	23	hoch
449	Konglomerat Blind River gemahlen, nicht eingebettet Ausgangsmaterial für die Schmelzaufschlüsse	4 Tage	279	sehr hoch
452a	Konglomerat Blind River Schmelztablette ( $\varnothing$ 3,1 cm) (Schmelzaufschluss mit 0,5 g Probe); obere Seite	9 Tage	keine	hoch
452b	Konglomerat Blind River Schmelztablette ( $\varnothing$ 3,1 cm) (Schmelzaufschluss mit 0,5 g Probe); untere Seite	9 Tage	keine	hoch
453a	Konglomerat Blind River Schmelztablette ( $\varnothing$ 3,1 cm) (Schmelzaufschluss mit 1 g Probe); obere Seite	9 Tage	keine	hoch
453b	Konglomerat Blind River Schmelztablette ( $\varnothing$ 3,1 cm) (Schmelzaufschluss mit 1 g Probe); untere Seite	9 Tage	keine	hoch
456	Konglomerat Blind-River	9 Tage	keine	mittel
457	Substrat nach Lösung der Schmelz-			
458	tablette und Kristallisation/ Trock-			
459	nung der Lösung			
460	ohne Zusätze			
461				

<b>Nr.</b>	<b>Probe</b>	<b>t</b>	<b>n<sub>HT</sub></b>	<b>δ<sub>Spur</sub></b>
462	Konglomerat Blind-River	9 Tage	keine	mittel
463	Substrat nach Lösung der Schmelz-		0,09	
464	tablette und Kristallisation/ Trock-		0,1	
465	nung der Lösung mit Zusatz von Kohlenstoff		0,1	
466	Konglomerat Blind-River	9 Tage	0,04	mittel
467	Substrat nach Lösung der Schmelz-		0,1	
468	tablette und Kristallisation/ Trock-		0,04	
469	nung der Lösung mit Zusatz von Kohlenstoff und Schwefel		0,04	

**Anhang W Uranylacetat und  $^{210}\text{Pb}$ -Präzipitat**

Überblick über die exponierten Proben von Uranylacetat und  $^{210}\text{Pb}$ -Präzipitat und Ergebnisse der lichtmikroskopischen Auswertung des Alphaspuren-Inventars auf den Festkörperspurdetektoren unter Angabe der Expositions-Nummer (Nr.), Expositionsdauer (t), Anzahl ( $n_{\text{HT}}$ ) der Heiße Teilchen-Spuren (Sternspurmuster) auf dem gesamten Detektor (=ca.  $21\text{ cm}^2$ ) und der Spurdichte ( $\delta_{\text{Spur}}$ ) von Alphanpartikeln.

<b>Nr.</b>	<b>Probe</b>	<b>t</b>	<b><math>n_{\text{HT}}</math></b>	<b><math>\delta_{\text{Spur}}</math></b>
148	Uranylacetat Dihydrat nicht eingebettet	24 Stunden	keine	hoch homogen
149	Uranylacetat Dihydrat nicht eingebettet	48 Stunden	keine	hoch homogen
150	Uranylacetat Dihydrat nicht eingebettet	5 Stunden	keine	hoch homogen
151	Uranylacetat Dihydrat nicht eingebettet	1,5 Stunden	keine	hoch homogen

<b>Nr.</b>	<b>Probe</b>	<b>t</b>	<b><math>n_{\text{HT}}</math></b>	<b><math>\delta_{\text{Spur}}</math></b>
439	$^{210}\text{Pb}$ -Präzipitat auf Folie	24 Stunden	keine	gering inhomogen
440	$^{210}\text{Pb}$ -Präzipitat auf Folie	3 Tage	keine	gering inhomogen
441	$^{210}\text{Pb}$ -Präzipitat auf Folie	7 Tage	1	hoch, inhomogen- wolkig

## **Dissertationsbezogene bibliographische Angaben**

Böhnke, Antje

### **Natürliche Radionuklide in der Umwelt – Ein Beitrag zur Lokalisierung und Charakterisierung natürlicher Heißer Teilchen in festen Proben**

Universität Leipzig, Dissertation

142 S., 101 Lit., 104 Abb., 18 Tab., 35 Anhänge, 177 Tafeln

#### Referat:

Natürliche Heiße Teilchen sind  $\mu\text{m}$ -große, punktförmige Partikel mit einer im Vergleich zur umgebenden Probenmatrix sehr hohen spezifischen Alphaaktivität. Im Gegensatz zu den beispielsweise beim Reaktorunfall von Tschernobyl entstandenen Heißen Teilchen, die im englischen Sprachgebrauch als Hot Particles bezeichnet werden, kann die Entstehung der natürlichen Heißen Teilchen nicht auf künstliche Spaltprozesse zurückgeführt werden. Kenntnisse über die Existenz von natürlichen Heißen Teilchen in einer zu untersuchenden Probe sind aus verschiedenen Gründen wichtig. Natürliche Heiße Teilchen in einer Probe führen stets zu einer inhomogenen Verteilung der Radioaktivitätskonzentration. Eine Nichtbeachtung des Vorhandenseins natürlicher Heißer Teilchen kann beispielsweise bei Messungen von Radionuklidkonzentrationen, die generell unter Annahme einer homogenen Kontamination der Probe erfolgen, zu Fehlinterpretationen der Aktivitätskonzentration der Gesamtprobe führen. Auch aus gesundheitlichen Aspekten sollte das Auftreten natürlicher Heißer Teilchen nicht ignoriert werden. Von natürlichen Heißen Teilchen geht eine potentielle Gefahr aus, insbesondere dann wenn sie inkorporiert werden, da sie hohe lokale Strahlendosen bewirken. Bedeutsam sind hier vor allem belastete Feinstäube, da diese tief in den Atemtrakt des Menschen eindringen können.

Bisher ist über das Vorkommen, die Verbreitung, die Entstehung und die chemischen und strukturellen Eigenschaften von natürlichen Heißen Teilchen wenig bekannt. Ziel der vorliegenden Arbeit war es deshalb, Untersuchungen durchzuführen, mit deren Hilfe es möglich ist, natürliche Heiße Teilchen in der Umwelt zu erfassen und zu charakterisieren.

Dazu wurde ein breites Spektrum an Proben, natürliche Ablagerungen (Gesteine, Sedimente, Minerale) als auch anthropogene Ablagerungen (industrielle Reststoffe, Industrieprodukte, Nebenprodukte), untersucht.

Eine im Rahmen dieser Arbeit entwickelte Detektionstechnik erlaubt mit Hilfe von Festkörperspurdetektoren die Ortsbestimmung der alphastrahlenden Radionuklide, insbesondere die Lokalisierung von Radioaktivitätskonzentrationen (natürlichen Heißen Teilchen) an der Oberfläche jeder festen Probe. Mit Hilfe elektronenmikroskopischer Untersuchungen können diese lokalisierten natürlichen Heißen Teilchen anschließend charakterisiert werden.

Die Untersuchungsergebnisse zeigen, dass natürliche Heiße Teilchen – die punktförmige Verteilung der Radioaktivitätskonzentration in radionuklidhaltigen Proben – eine natürliche und ubiquitär vorkommende Erscheinungsform von Radioaktivität sind. Radioaktivität hat weit verbreitet eine diskrete Komponente. Die untersuchten natürlichen Heißen Teilchen bestehen aus natürlichen Mineralen, die als wesentlichen Bestandteil Uran oder Thorium führen. Sie sind vorwiegend an die Korngrößen  $<63 \mu\text{m}$  gebunden. Die Größe der natürlichen Heißen Teilchen liegt zwischen 1 und  $100 \mu\text{m}$ . Besonders die Teilchen  $<10 \mu\text{m}$  bergen ein Gefährdungspotential, da sie extrem flugfähig und leicht inkorporierbar sind.

Zusammenfassung der wissenschaftlichen Ergebnisse zur Dissertation

**Natürliche Radionuklide in der Umwelt – Ein Beitrag zur  
Lokalisierung und Charakterisierung natürlicher Heißer  
Teilchen in festen Proben**

der Fakultät für Physik und Geowissenschaften der Universität Leipzig  
eingereicht von

**Diplom-Geologin Antje Böhnke, geb. Niedzwiedz**

angefertigt am  
UFZ-Umweltforschungszentrum Leipzig-Halle GmbH  
Department Analytik, Abt. Umweltradioaktivität

Juni 2006

Radioaktive Stoffe kommen in der Umwelt nicht nur gleichmäßig verteilt vor, zum Beispiel als Gase oder Flüssigkeiten, sondern häufig als inhomogene diskrete Partikel verschiedener Größe, Zusammensetzung und Struktur (TÖRÖK et al. 2003). Diese Partikel haben, verglichen mit der des gesamten Probenmaterials, eine hohe spezifische Aktivität. Man bezeichnet sie als 'Heiße Teilchen', im englischen Sprachgebrauch als 'Hot Particles'. Der Begriff Heiße Teilchen oder Hot Particles wird im allgemeinen für künstlich geschaffene Spaltprodukte von Uran verwendet, die unfallbedingt aus militärischen Einrichtungen und zivilen kerntechnischen Anlagen, bei Satelliten- und Flugzeugabstürzen und durch Kernwaffenversuche freigesetzt wurden (LUX et al. 1996). Eine klare Definition Heißer Teilchen bezüglich der Partikelgröße und Aktivität gibt es nicht, da der Begriff auf die Eigenschaften der umgebenden Probenmatrix bezogen wird. Er wird von verschiedenen Autoren auch unterschiedlich angewandt. Über das Auftreten von Heißen Teilchen wurde erstmals in den 50er Jahren des letzten Jahrhunderts als Folge von oberflächennahen Kernwaffentests in den USA und der UdSSR berichtet. Die bisher folgenschwerste Kontamination mit Heißen Teilchen erfolgte beim Reaktorunfall des Kernkraftwerkes Tschernobyl im Jahre 1986.

Bei der Untersuchung industrieller Reststoffe der Erzaufbereitung und -verhüttung zeigte sich nun, dass diese diskrete Aktivitätsanreicherungen mit deutlich erhöhter Alphaaktivität in Form von Heißen Teilchen enthalten. Diese inhomogenen Zumischungen von Radionukliden weichen in ihrer Zusammensetzung und Art der Strahlung deutlich von den oben beschriebenen Heißen Teilchen ab. Im Gegensatz zu den künstlich geschaffenen Heißen Teilchen, die überwiegend aus beta- und gammaaktiven Spaltprodukten wie  $^{103}\text{Ru}$ ,  $^{141}\text{Ce}$ ,  $^{95}\text{Zr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  bestehen, handelt es sich bei den Heißen Teilchen der industriellen Reststoffe um alphaaktive, natürlich vorkommende Radionuklide, z.B. von Uran. Sie lassen sich nicht auf künstliche Spaltprozesse zurückführen und werden deshalb als natürliche Heiße Teilchen bezeichnet.

Kenntnisse über die Existenz von natürlichen Heißen Teilchen in einer zu untersuchenden Probe sind aus verschiedenen Gründen wichtig. Natürliche Heiße Teilchen in einer Probe führen stets zu einer inhomogenen Verteilung der Radioaktivitätskonzentration. Eine Nichtbeachtung des Vorhandenseins natürlicher Heißer Teilchen kann beispielsweise bei Messungen von Radionuklidkonzentrationen, die generell unter Annahme einer homogenen Kontamination der Probe erfolgen, zu Fehlinterpretationen der Aktivitätskonzentration der Gesamtprobe führen. Auch aus gesundheitlichen Aspekten sollte das Auftreten natürlicher Heißer Teilchen nicht ignoriert werden. Von natürlichen Heißen Teilchen geht eine potentielle Gefahr aus, insbesondere dann wenn sie inkorporiert werden, da sie hohe lokale Strahlendosen bewirken. Bedeutsam sind hier vor allem belastete Feinstäube, da diese tief in den Atemtrakt des Menschen eindringen können.

Bisher besteht ein deutliches Wissensdefizit hinsichtlich der Kontamination von Proben mit natürlichen Heißen Teilchen und es fehlen Informationen bezüglich ihrer Verbreitung, Entstehung, Zusammensetzung, Verhaltensweise in der Umwelt und einer möglichen Gefährdung der menschlichen Gesundheit. Die vorliegende Arbeit trägt diesem Umstand Rechnung. Ziel der Untersuchungen war die Charakterisierung natürlicher Heißer Teilchen. Als natürliches Heißes Teilchen wird dabei ein einzelnes, punktförmiges Teilchen einer Größe im Mikrometerbereich definiert, das eine sehr hohe spezifische Alphaaktivität auf sich konzentriert und dessen Existenz nicht auf künstliche Spaltprozesse zurückgeführt werden kann. Dabei wurden nachstehende Fragestellungen verfolgt:

1. **Vorkommen** von natürlichen Heißen Teilchen in der Umwelt. Sind die Vorkommen natürlicher Heißer Teilchen in den untersuchten Reststoffen (Theisenschlamm, Urantailings) eine Ausnahmeerscheinung, oder kommen natürliche Heiße Teilchen auch in anderen Reststoffen und Materialien vor?

2. **Herkunft/Entstehung** von natürlichen Heißen Teilchen. Existieren diese Heißen Teilchen seit Urbeginn, gibt es natürliche Phänomene, die deren Bildung nach sich ziehen oder führt erst eine technogene Bearbeitung radionuklidhaltiger Rohstoffe zu ihrer Entstehung? Sind Heiße Teilchen natürlich oder anthropogen bedingt?  
Prüfung, ob sich der Gehalt von natürlichen Heißen Teilchen einer Probe durch Lösungs- und Kristallisationsprozesse beeinflussen lässt.
3. Beschreibung der **Art, Größe** und mineralogischen **Zusammensetzung** der natürlichen Heißen Teilchen.
4. Wie **verhalten** sich diese natürlichen Heißen Teilchen in der Umwelt (mobil, immobil)?
5. Beurteilung der **radioökologischen Relevanz** und Gefährlichkeit der natürlichen Heißen Teilchen.

Zur Bearbeitung dieser Aufgabenstellungen wurden zu Beginn der Arbeit zunächst relevante Fragen zu Radioaktivität in der Umwelt und zu Heißen Teilchen theoretisch behandelt. Anschließend wurde detailliert auf die Methode der Autoradiographie und Festkörperspurdetektoren eingegangen. Diese Methode ermöglicht es, den genauen Ort, die Anzahl und Verteilung von radioaktiven Partikeln auf der Schnitt- oder Oberfläche einer Probe anzugeben. Basierend auf diesen methodischen Betrachtungen, wurden durch Laborexperimente ermittelte charakteristische Spurmusterbildungen von Alphaemittern dokumentiert und interpretiert.

Unter Einbeziehung der daraus gewonnenen Erkenntnisse wurde im weiteren Verlauf der Arbeit eine Detektionstechnik entwickelt, mit deren Hilfe es möglich ist, den Ort natürlicher Heißer Teilchen in festen Proben zu bestimmen und zu markieren (BÖHNKE et al. 2005). Die stoffliche und strukturelle Charakterisierung der lokalisierten natürlichen Heißen Teilchen erfolgte durch eine elektronenmikroskopische Analyse.

Unter Nutzung der entwickelten Detektionstechnik sowie der elektronenmikroskopischen Methoden wurde ein breites Spektrum an Proben – anthropogene Ablagerungen (industrielle Reststoffe, Industrieprodukte, Nebenprodukte) und natürliche Ablagerungen (Gesteine, Sedimente, Minerale) – untersucht. Dazu wurde jede Probe hinsichtlich ihrer mineralogischen Zusammensetzung, geographischen Herkunft und Genese beschrieben und jeweils die Ergebnisse der Ortsbestimmung natürlicher Heißer Teilchen (lichtmikroskopische Auswertung) und der Identifizierung der natürlichen Heißen Teilchen (elektronenmikroskopische Auswertung) dokumentiert und interpretiert.

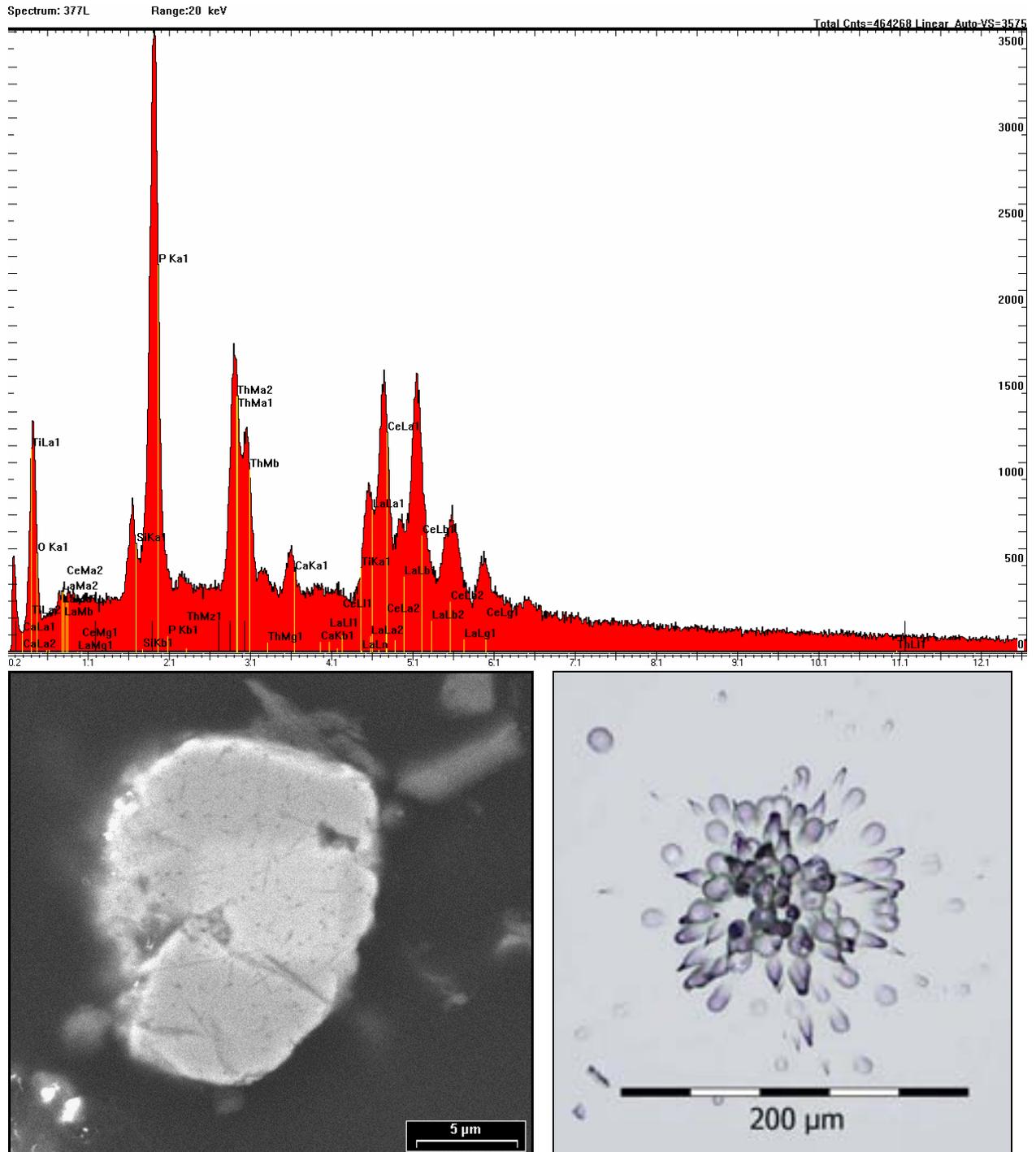
Die Untersuchungsergebnisse zeigen, dass in über 80 % der untersuchten radionuklidhaltigen, anthropogenen und natürlichen Probenarten die Radioaktivitätskonzentrationen eine diskrete Komponente in Form von natürlichen Heißen Teilchen aufweisen. Die geographische Herkunft des Probenmaterials spielt dabei ebenso wenig eine Rolle wie das Alter der Probe.

Ein Teil der natürlichen Heißen Teilchen konnte elektronenmikroskopisch identifiziert werden. Sie bestehen aus natürlichen Mineralen, die als wesentlichen Bestandteil Uran oder Thorium führen. Am häufigsten konnten in den Proben Uraninit und Monazit gefunden werden (Abb. 1).

Die natürlichen Heißen Teilchen kommen als diskrete Partikel einer Größe zwischen 1 und 80  $\mu\text{m}$ , als unter 10  $\mu\text{m}$  große Säume in Hohlräumen oder um Partikel, als 1-5  $\mu\text{m}$  große Aggregate in oder an größeren Partikeln, dispers verteilt in einer Kohlenstoffmatrix sowie verwachsen mit anderen Mineralen vor. Die Größe der natürlichen Heißen Teilchen spiegelt sich auch in den Gehalten an natürlichen Heißen Teilchen in den Korngrößenfraktionen gesiebter Proben wider. Sie sind am höchsten in den Korngrößen  $<63 \mu\text{m}$  und am geringsten in den Korngrößen  $>630 \mu\text{m}$ .

Eine Erzeugung natürlicher Heißer Teilchen durch eine (technogene) Bearbeitung radionuklidhaltiger Proben, die vorher keine punktförmigen Radioaktivitätskonzentrationen enthielten, konnte nicht festgestellt werden. Die in den anthropogenen Proben vorkommenden natürlichen

Heißen Teilchen lassen sich immer auf natürliche Heißen Teilchen der Originalproben zurückführen. Allerdings kann die technologische Bearbeitung zu einer Umverteilung der natürlichen Heißen Teilchen führen, verbunden mit einer Änderung der chemischen Bindung der Radioaktivitätsträger.



**Abb. 1** EDX-Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild (sternförmiges Ätzspurmuster von Alphapartikeln auf dem Festkörperspurdetektor-Autoradiogramm) eines charakteristischen natürlichen Heißen Teilchens in den Bachsedimenten des Mansfelder Landes (Probe 377, Markierung 1). Es handelt sich um ein Monazitkörnchen, mit den typischen Gehalten an Seltenen Erden (Ce, La), P und Ca sowie dem Alphaemitter Thorium.

Es konnte festgestellt werden, dass punktförmige Radioaktivitätskonzentrationen (natürliche Heiße Teilchen) einer Probe durch deren chemische Behandlung verschwinden bzw. homogenisiert werden können. Beispiele dafür sind in der Arbeit untersuchte anthropogene Materialien, die aus Schmelzen (Uranblech, Kupferschlacke) entstanden bzw. aus einer Lösung ausgefällt wurden (Fällrückstand einer Wasserbehandlungsanlage des Uranerzbergbaus). Das gleiche Ergebnis zeigen Labortests, bei denen Proben mit punktförmiger Radioaktivitätskonzentration nach dem Schmelzen eine homogene Radioaktivitätsverteilung zeigen.

Das Verhalten der gefundenen natürlichen heißen Teilchen in der Umwelt wird durch die Teilchencharakteristik, und hier besonders durch die chemische Zusammensetzung und Korngröße der Minerale, bestimmt. Bei den häufig als Einzelkörnern vorkommenden Mineralen Monazit, Zirkon und Xenotim handelt es sich um Schwerminerale, d.h. um widerstandsfähige Verwitterungsreste. In den Sedimenten der Flüsse und Bäche des Mansfelder Landes, der Elbe und Mulde sowie der Luppe bestehen die natürlichen Heißen Teilchen ausschließlich aus solchen Schwermineralen. Sie haben außerdem eine weite Verbreitung als akzessorische Gemengteile, vor allem in Gesteinen der Granit-, Syenit- und Alkali-Syenitfamilie. Als solche wurden sie in den Proben von Lengenfeld wie auch in den Phosphatgesteinen von Brasilien als natürliche Heiße Teilchen identifiziert. Die von primären Uranmineralen wie Uraninit, Coffinit und Brannerit gebildeten natürlichen Heißen Teilchen wurden in den Gesteinen Kupferschiefer, Konglomerat der Blind River-Formation (Canada) und Granit von Menzenschwand sowie in den industriellen Reststoffen Theisenschlamm und Haldenmaterial von Lengenfeld nachgewiesen. In keinem einzigen Fall wurden primäre Uranminerale in Verwitterungsprodukten, d.h. den Fluss- und Seesedimenten, als natürliche Heiße Teilchen nachgewiesen. Dies liegt u.a. darin begründet, dass sich bei der Verwitterung der primären Uranerze das leicht lösliche sechswertige Uran bildet, das eine ausgeprägte Tendenz hat, mobil zu sein.

Zusammenfassend kann festgestellt werden, dass natürliche Heiße Teilchen, d.h. die punktförmige Konzentration der Radioaktivität, eine natürliche und ubiquitär vorkommende Erscheinungsform von Radioaktivität sind, die vermutlich seit Urzeiten existiert. Natürliche Radioaktivität hat weit verbreitet eine diskrete Komponente.

Natürliche Heiße Teilchen können, als Partikel mit einer hohen spezifischen Aktivität, ein gesundheitliches Risiko darstellen, wenn sie in den menschlichen Körper und vor allem den Atemtrakt des Menschen gelangen. Eine besondere Rolle spielen dabei die Partikel mit Korngrößen  $<10\ \mu\text{m}$  bzw.  $<3\ \mu\text{m}$ , da diese sehr tief in den Atemtrakt eindringen können und naturgemäß eine große Flugfähigkeit besitzen. Wie die Untersuchungsergebnisse zeigen, liegt die Größe der elektronenmikroskopisch untersuchten natürlichen Heißen Teilchen zwar häufig deutlich unter  $10\ \mu\text{m}$ , jedoch handelt es sich dabei nicht immer um singuläre Heiße Teilchen. Der überwiegende Teil dieser kleinsten natürlichen Heißen Teilchen bildet Säume um größere Partikel, ist mit solchen verwachsen oder als Aggregate in größere Partikel eingesprengt. Zum Gesundheitsrisiko können solche natürlichen Heißen Teilchen dann werden, wenn die sie enthaltenden anthropogenen oder natürlichen Ablagerungen durch menschliche Eingriffe oder auch durch natürliche Prozesse (Verwitterung) zerkleinert werden, so dass die Partikel oder Bereiche mit punktförmiger Radioaktivitätskonzentration separiert werden und dabei gleichzeitig flugfähige Stäube produziert werden.

Eine Erfassung natürlichen Heißen Teilchen wird als sinnvoll erachtet, wenn mit einer Freisetzung dieser Teilchen (belastete Feinstäube) gerechnet und durch Inhalation oder Ingestion der natürlichen heißen Teilchen eine Gefährdung des Menschen befürchtet werden muss.

Literatur:

- BÖHNKE, A., TREUTLER, H. C., FREYER, K., SCHUBERT, M. & WEISS, H. (2005): Localisation and identification of radioactive particles in solid samples by means of a nuclear track technique. - *Radiation Measurements*, **40** (2005): 650-653.
- LUX, D., IWATSCHENKO-BOHRO, M., STEINKOPFF, T., WERSHOFEN, H. & WINKLER, R. (1996): Einfluß von "Heißen Teilchen" auf Meßverfahren zur Überwachung der Umweltradioaktivität. Empfehlungen zur Überwachung der Umweltradioaktivität. - Loseblattsammlung des Fachverbandes für Strahlenschutz, Publikation FS-78-15-AKU: 10 Seiten.
- TÖRÖK, S., OSÁN, J., VINCZE, L., ALFÖLDY, B., KERKÁPOLY, A., VAJDA, N., PÉREZ, C. A. & FALKENBERG, G. (2003): Comparison of nuclear and X-ray techniques for actinide analysis of environmental hot particles. - *J. Anal. At. Spectrom.*, **18** (10): 1202-1209.

## Wissenschaftlicher Werdegang

---

Name: Antje Böhnke, geb. Niedzwiedz

Geburtsdatum und –ort: 13.09.1970 in Dresden

---

### Promotion

Juni 2002 – August 2005 Doktorandin am UFZ-Umweltforschungszentrum Leipzig-Halle GmbH, Department Analytik

Thema der Doktorarbeit: “Natürliche Radionuklide in der Umwelt – Ein Beitrag zur Lokalisierung und Charakterisierung natürlicher Heier Teilchen in festen Proben”

---

### Berufliche Daten

Mrz 2001 – Mai 2002 Elternzeit

Okt. 1999 – Feb. 2001 Wissenschaftliche Mitarbeiterin am Institut fr Geophysik und Geologie der Universitt Leipzig, Forschungsschwerpunkt: “Eozn in Mitteldeutschland”

Mai 1999 – Aug. 1999 Wissenschaftliche Mitarbeiterin der Balance GmbH & Co. KG Umweltberatung in Greifswald, Arbeitsschwerpunkt: Asbestanalytik am Rasterelektronenmikroskop

Juli 1997 - Juli 1999 Wissenschaftliche Mitarbeiterin am Institut fr Geologische Wissenschaften der Ernst-Moritz-Arndt-Universitt in Greifswald, Forschungsschwerpunkt: “Sptordovizische Diamiktite der Varisziden als Indikatoren der Saharavereisung Peri-Gondwanas”

---

### Studium

seit 10. Juli 1997 Diplom-Geologin

Sept. 1990 – Juli 1997 Studium der Geologie/Palontologie an der Ernst-Moritz-Arndt-Universitt Greifswald, Diplom-Abschluss mit dem Gesamtprdikat “mit Auszeichnung”

Thema der Diplomarbeit: “Die Ausbildung des jngsten Silurs an der Sdkste Bornholms (Dnemark)”

---

### Schule und Praktika

Sept. 1989 – Aug. 1990 geologisches Praktikum am Institut fr mineralogische Rohstoff- und Lagerstttenwirtschaft in Dresden

1987-1989 Besuch der Erweiterten Oberschule “Bertold Brecht” in Dresden, Abschluss: Abitur mit dem Gesamtprdikat “mit Auszeichnung”

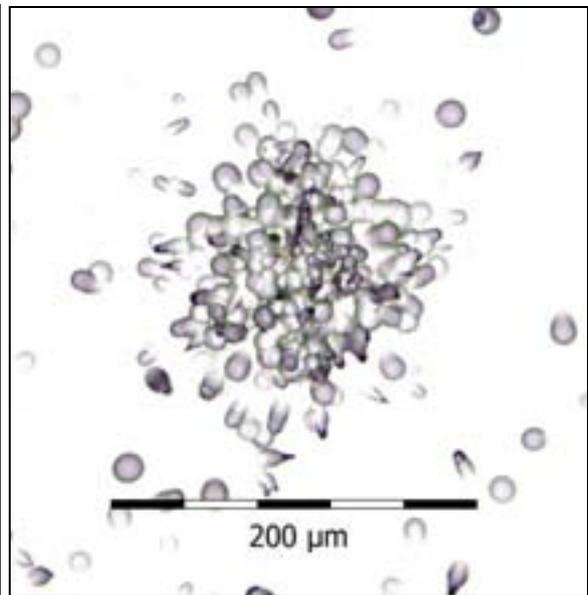
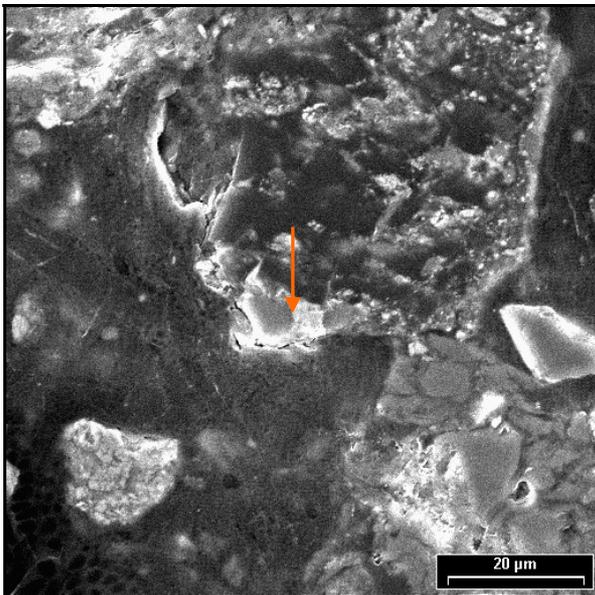
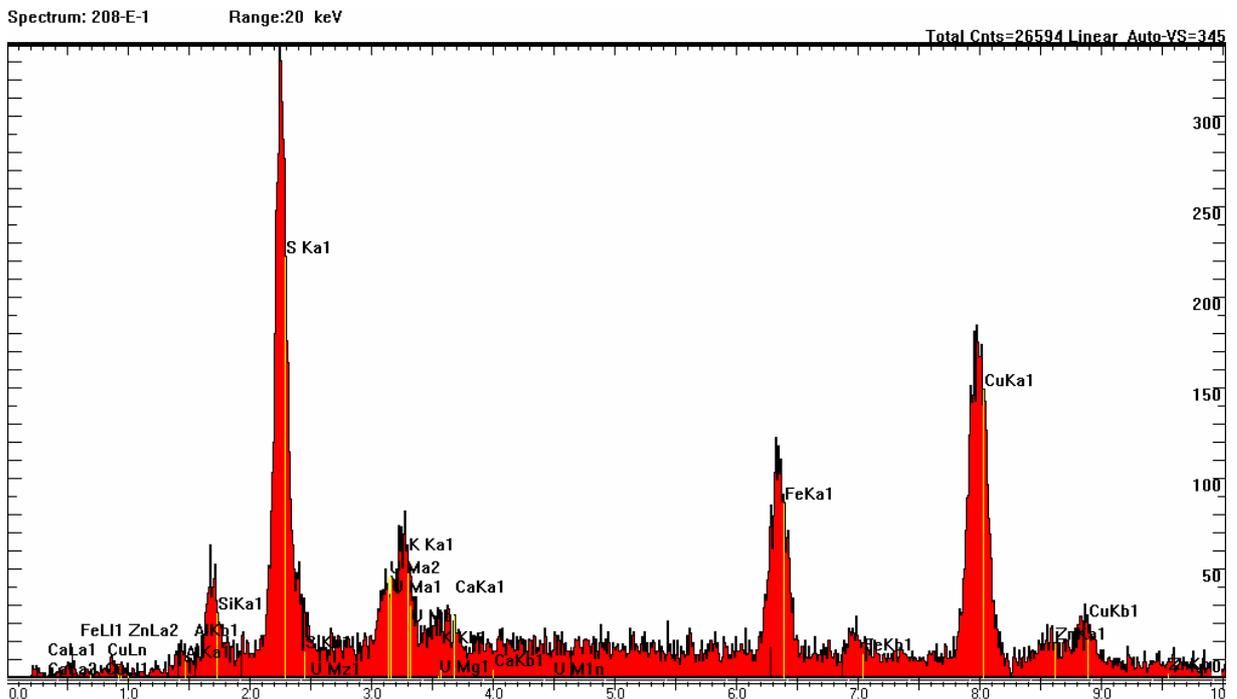
1977-1987 Besuch der Allgemeinbildenden Polytechnischen Oberschule “Max Zimmering” in Dresden

---

# Tafeln

# Tafel 1

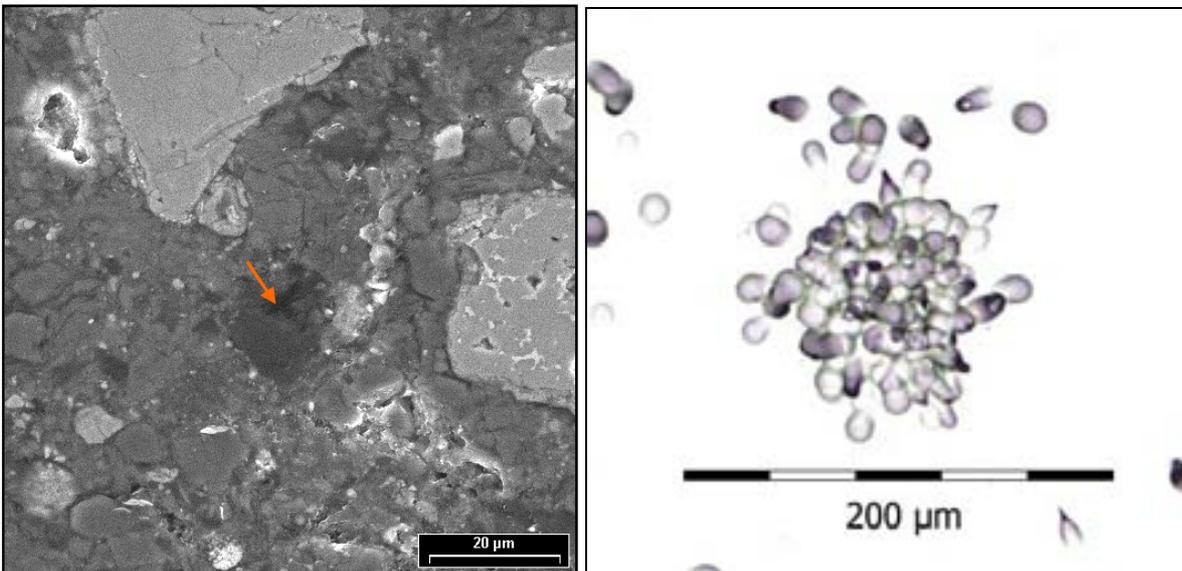
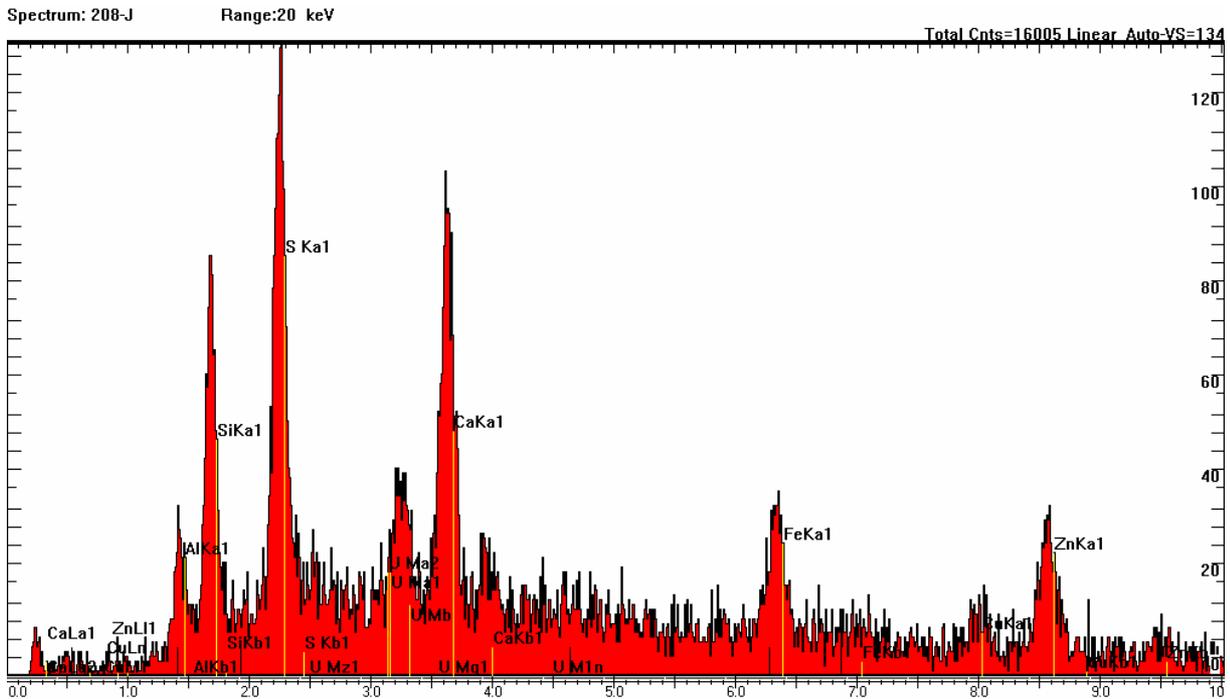
## Theisenschlamm



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Theisenschlamm-Probe 208 (Markierung e). Die Oberfläche der eingebetteten Probe (Schliff) weist hier einige Ausbrüche auf (oberer Bildbereich). Bedingt durch die geringe Korngröße des Materials ist die Einbettung der Probe in Epoxydharz schwierig, da nicht alle Körnchen gleichmäßig von dem Einbettmittel benetzt werden. Infolgedessen kann es zu solchen Materialausbrüchen kommen. Hier wurde in einem solchen Ausbruch ein ca. 5 µm großer Bereich mit Uran gefunden (roter Pfeil), wahrscheinlich handelt es sich um  $\text{UO}_2$  in silikatischer Matrix.

## Tafel 2

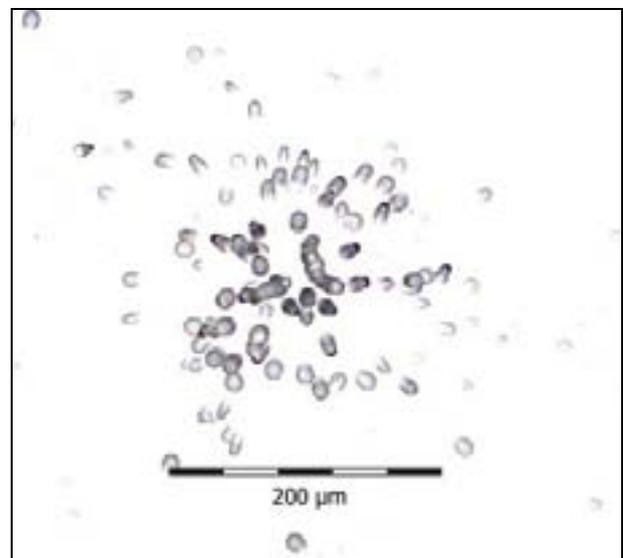
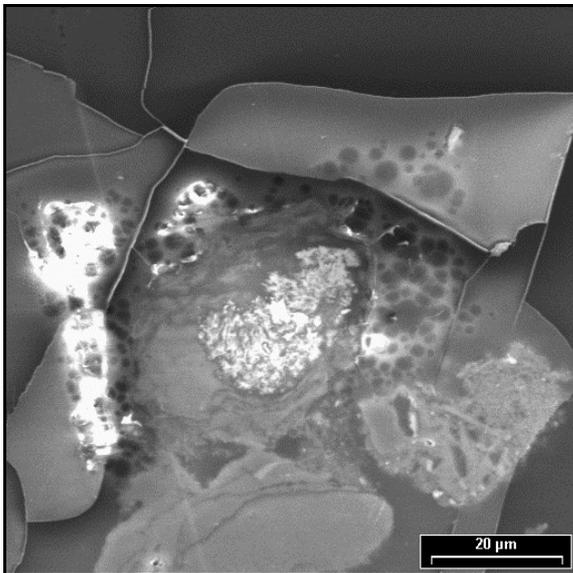
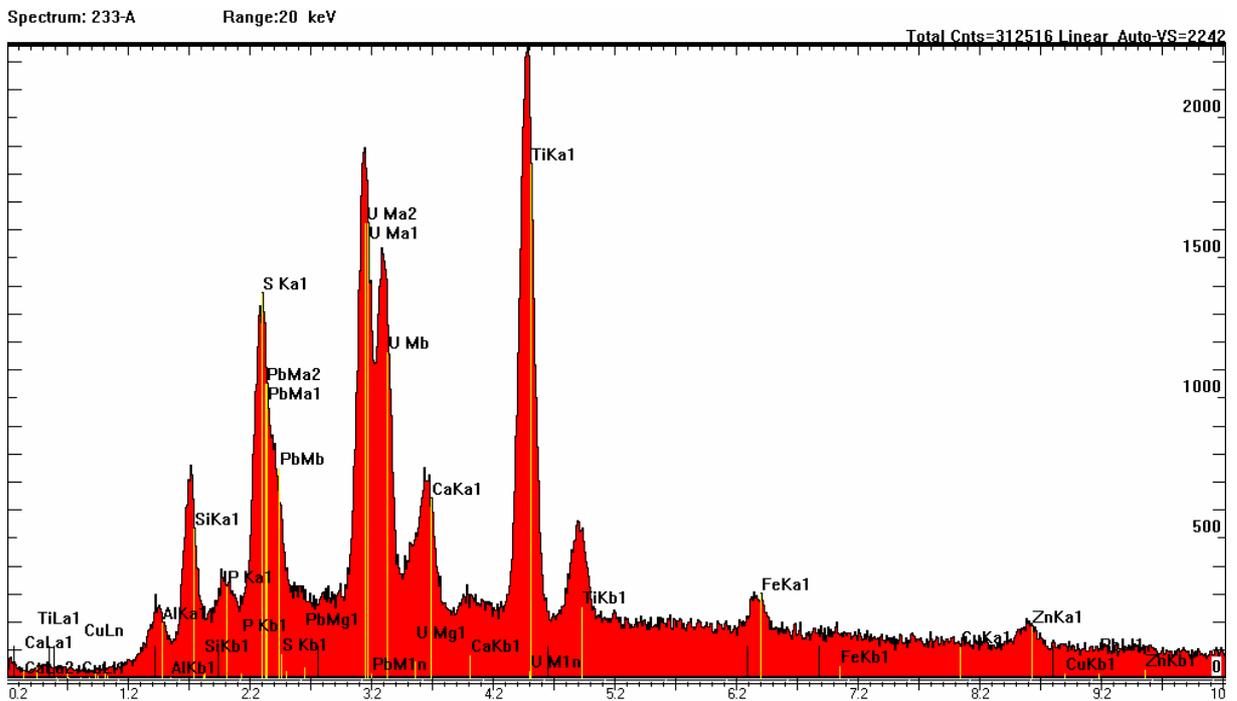
### Theisenschlamm



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Theisenschlamm-Probe 208 (Markierung j). Der rote Pfeil zeigt die Stelle, an der Uran detektiert werden konnte. Dabei handelt es sich um mehrere, z.T. unter 1 μm große, helle Körnchen in einem sehr dunklen Bereich des Bildes, wahrscheinlich Uran in einer Kohlenstoffmatrix. Die im Spektrum durch einen deutlichen Peak nachgewiesenen Elemente Si, S, Ca, Fe, Zn, Al stammen aus der Umgebung des detektierten Partikels.

## Tafel 3

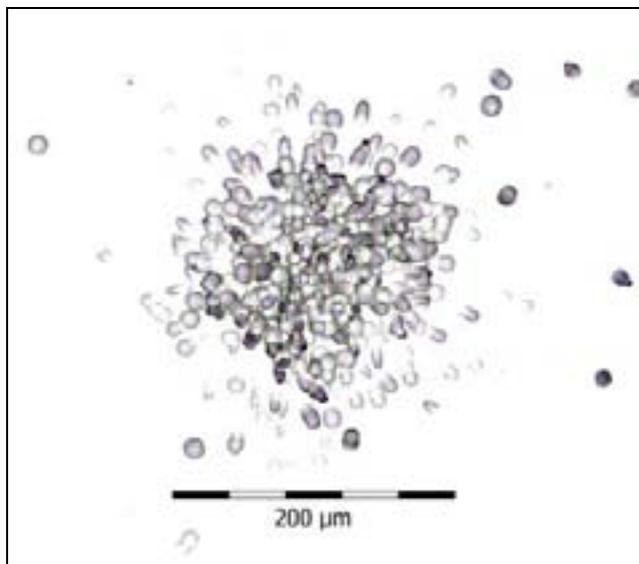
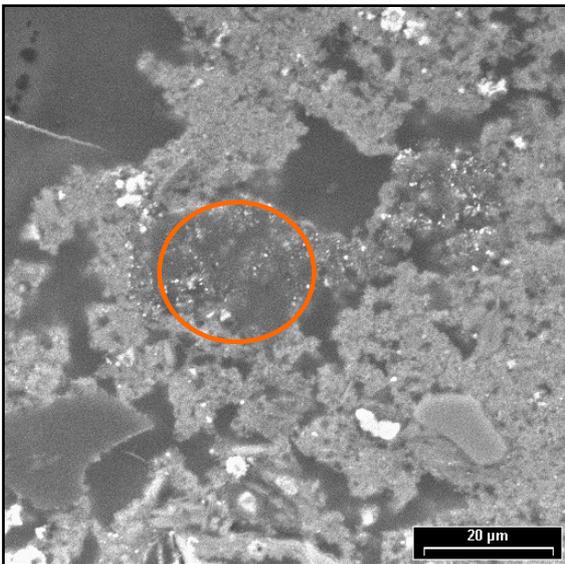
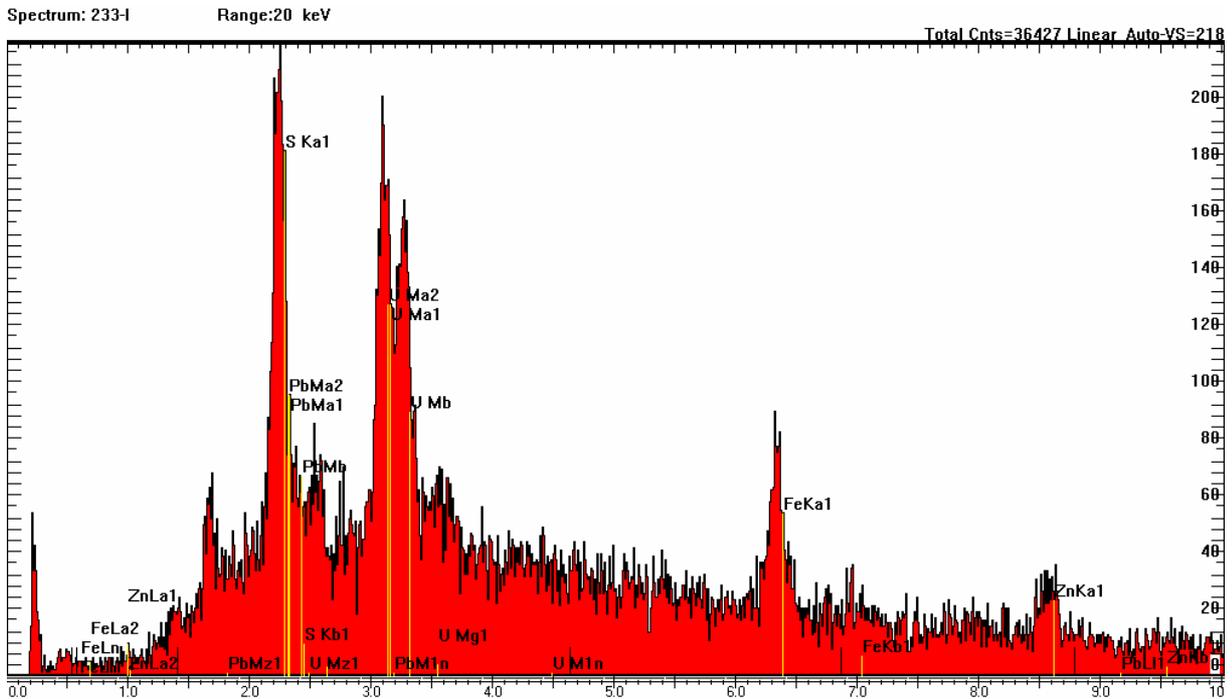
### Theisenschlamm



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines heißen Teilchens der Theisenschlamm-Probe 233 (Markierung aa). Es handelt sich hier um ein ca.  $15 \times 25 \mu\text{m}$  großes Branneritkörnchen. Brannerit  $\text{UTi}_2\text{O}_6$  wird im Spektrum durch deutliche Peaks von Uran und Titan sowie gut erkennbare Peaks von Ca und Fe gekennzeichnet. Zn, Pb und S sind für den Theisenschlamm typische Elemente und stammen aus der Umgebung des Branneritkörnchen bzw. aus der Matrix. Die löchrige Oberfläche der Probe resultiert aus der starken Probenbelastung bei der wellenlängendispersiven Analyse mit der Mikrosonde. Dabei kommt es zu Materialverlusten.

# Tafel 4

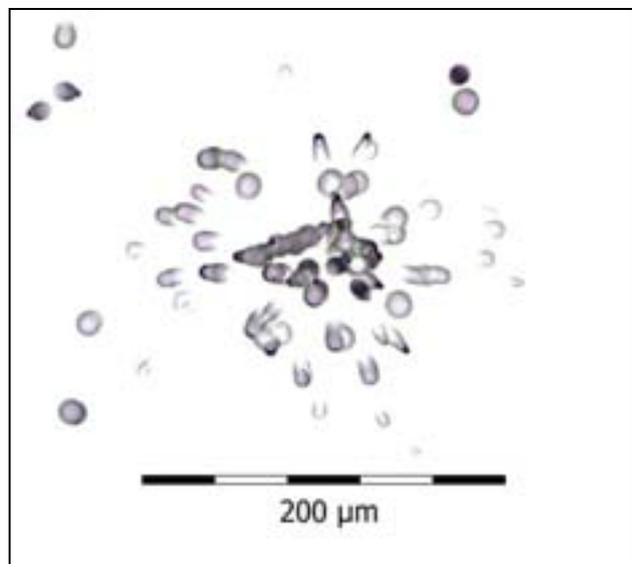
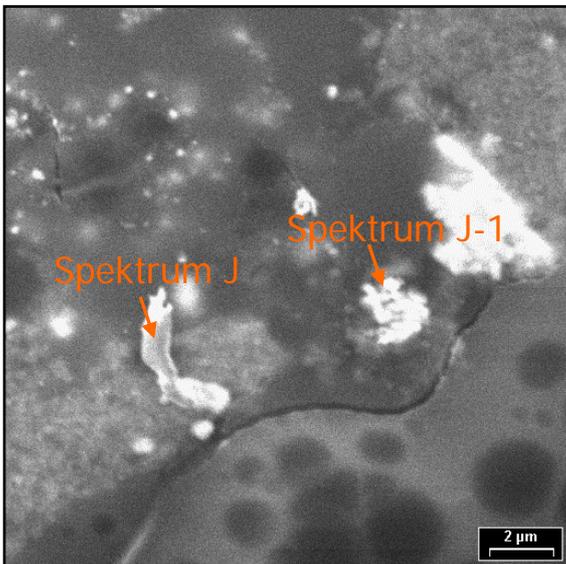
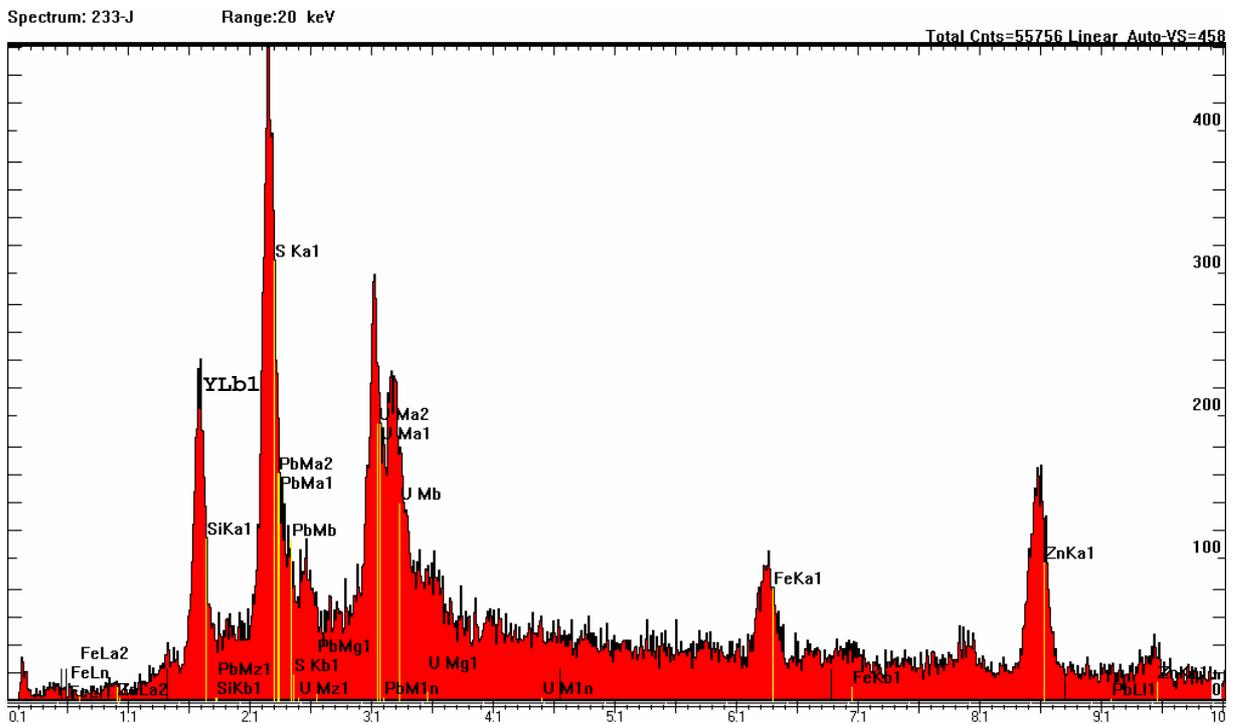
## Theisenschlamm



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Theisenschlamm-Probe 233 (Markierung i). Es handelt sich hier um einen ca. 20 µm großen dunklen Bereich, in dem Uran detektiert werden konnte. Vermutlich ist das Uran in einer kohligen Substanz fein verteilt. Die für den Theisenschlamm typischen Elemente Zn, Pb und S stammen aus der Umgebung und Matrix des detektierten Bereiches.

# Tafel 5

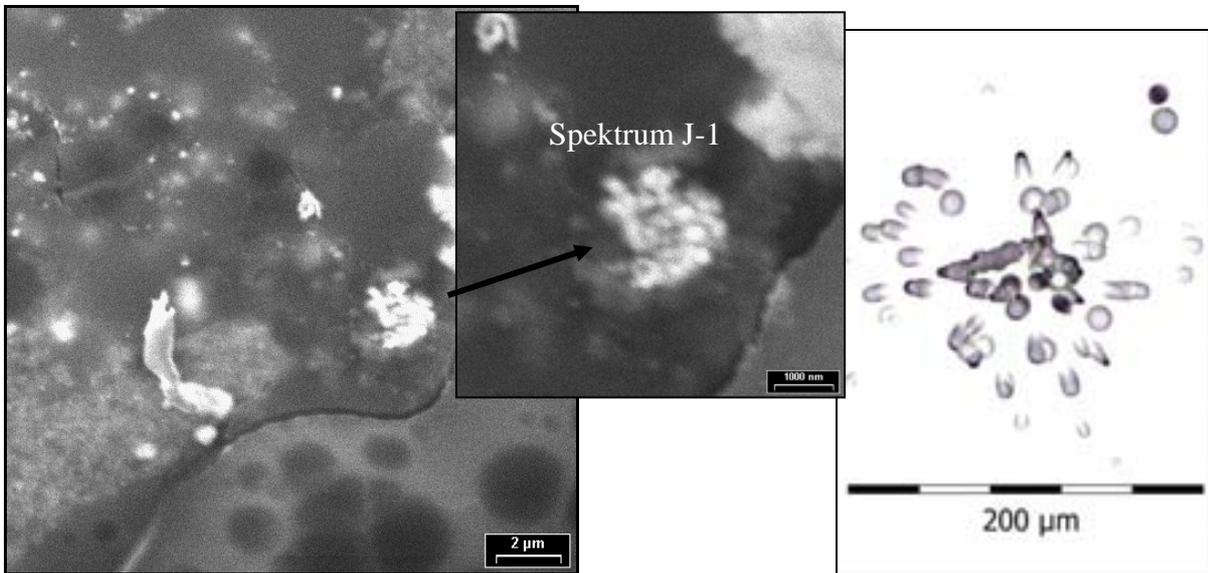
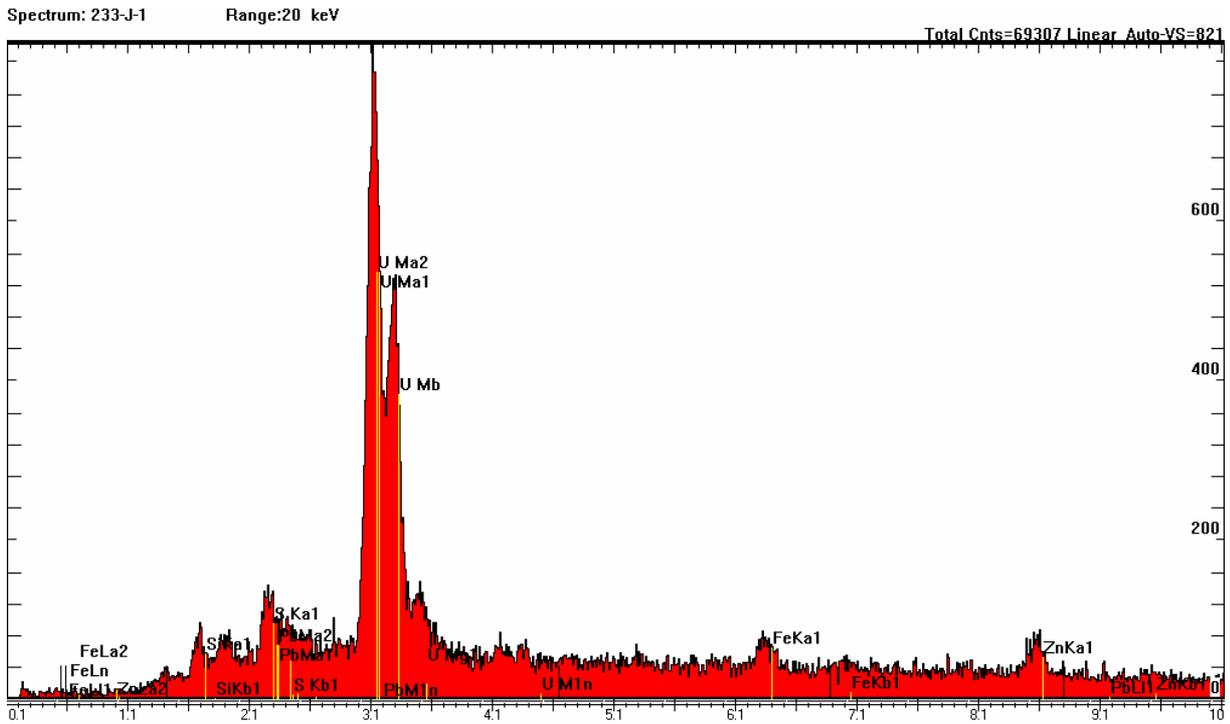
## Theisenschlamm



Spektrum (J), REM-Aufnahme und Spurbild von Heißen Teilchen der Theisenschlamm-Probe 233 (Markierung j). Es handelt sich hier um zwei winzige, zwischen 2 und 4 µm große Körnchen aus Uraninit ( $UO_2$ ) in einer Matrix aus ZnS (Sphalerit) und untergeordnet Fe, Pb, und Y. Für beide Uraninitkörnchen wurde ein Spektrum (J und J-1) erstellt.

# Tafel 6

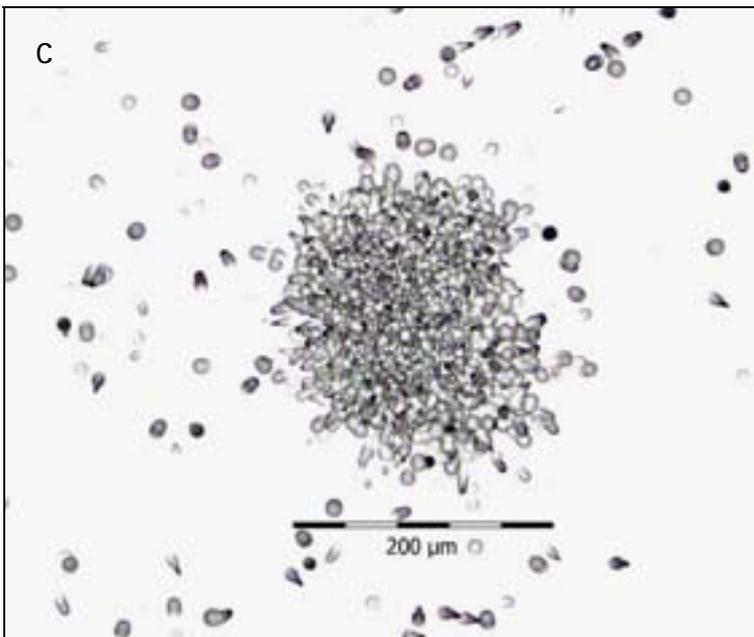
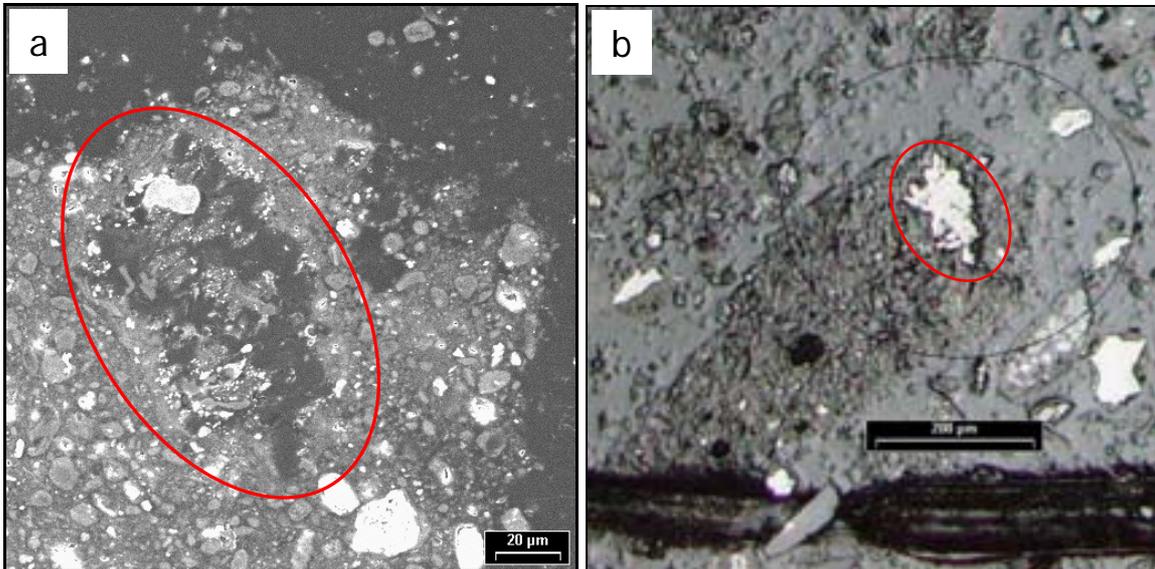
## Theisenschlamm



Spektrum (J-1), REM-Aufnahme und Spurbild von Heißen Teilchen der Theisenschlamm-Probe 233 (Markierung j). Das oben dargestellte Spektrum mit einem deutlichen Uranpeak zeigt die Analyse des rechten, rundlichen Uraninitkörnchens (schwarzer Pfeil). Die löchrige Oberfläche, zu erkennen im rechten unteren Bildbereich des größeren Bildes, zeigt den Materialverlust einer detektierten Fläche infolge der Probenbeanspruchung bei der wellenlängendispersiven Analyse mit der Mikrosonde.

## Tafel 7

### Theisenschlamm

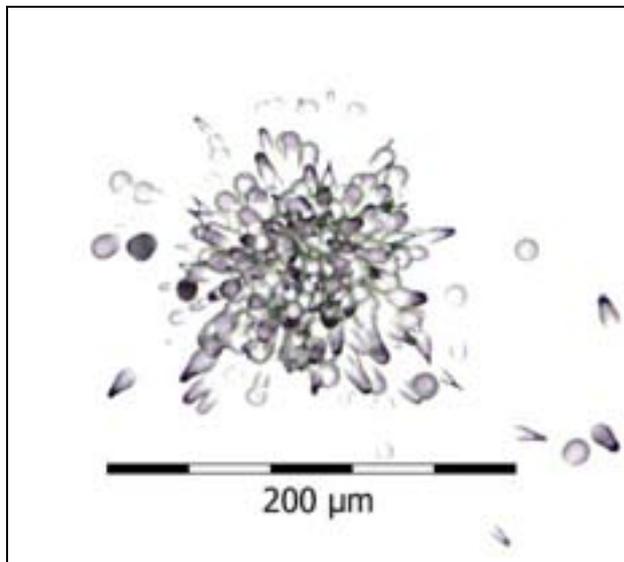
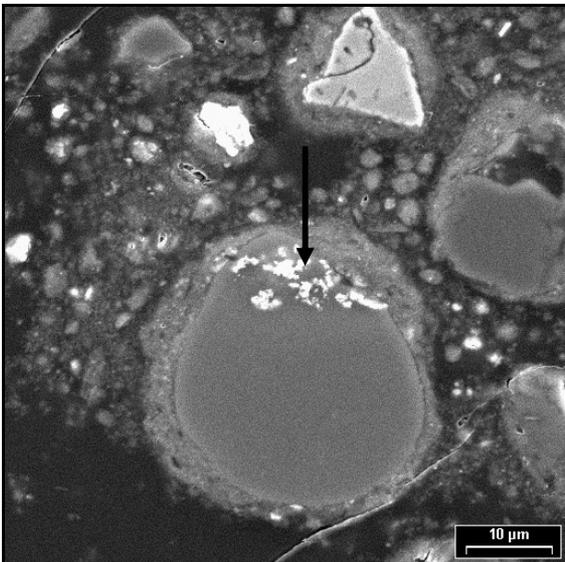
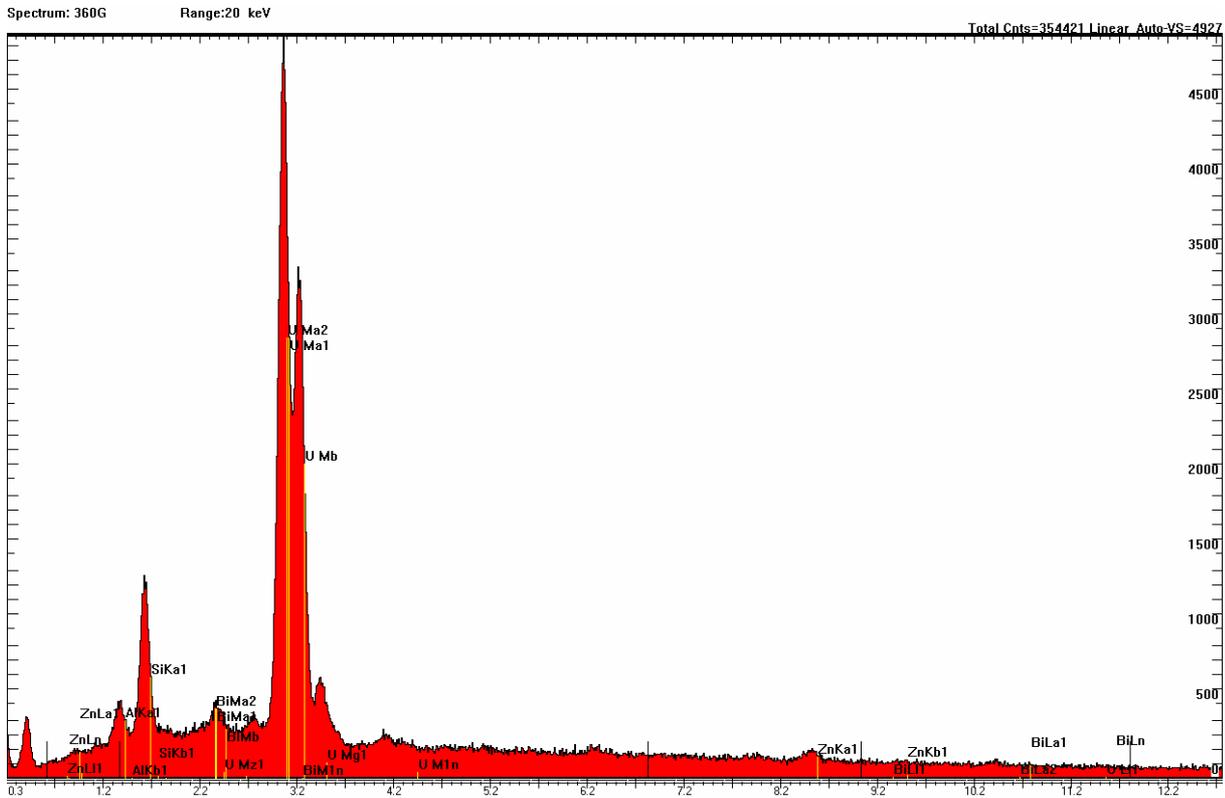


REM-Aufnahme (a), lichtmikroskopische Aufnahme (b) und Spurbild eines Heißen Teilchens der Theisenschlamm-Probe 360 (Markierung e). In der rot markierten Probenoberfläche konnte Uran detektiert werden, das hier in einer kohlig Matrix gebunden ist. Solche kohlig Bereiche mit Uran wurden im Theisenschlamm häufig gefunden. Typischerweise erscheinen sie in der REM-Aufnahme schwarz, täuschen ein Loch oder das Einbettmittel vor. Unter dem Lichtmikroskop jedoch erscheinen sie strahlend weiß. Die Erstellung eines Spektrums war für diesen Probereich wegen Aufladungseffekten nicht möglich.

Der im unteren Bereich von Bild b erkennbare schwarze Strich ist ein Teil der Markierung, die mit einer Nadel auf die Probenoberfläche geritzt wurde, um den Ort von Heißen Teilchen zu definieren. Die Markierung erhält einen Buchstaben (hier e) und wird fotografiert um später eine Zuordnung und das Wiederfinden unter dem Elektronenmikroskop zu erleichtern. Der schwarze Kreis gibt an, an welcher Stelle innerhalb der Markierung das Heiße Teilchen zu erwarten ist. Eine genaue Beschreibung dieser Probenvorbereitung findet sich in Kapitel 4.1.

# Tafel 8

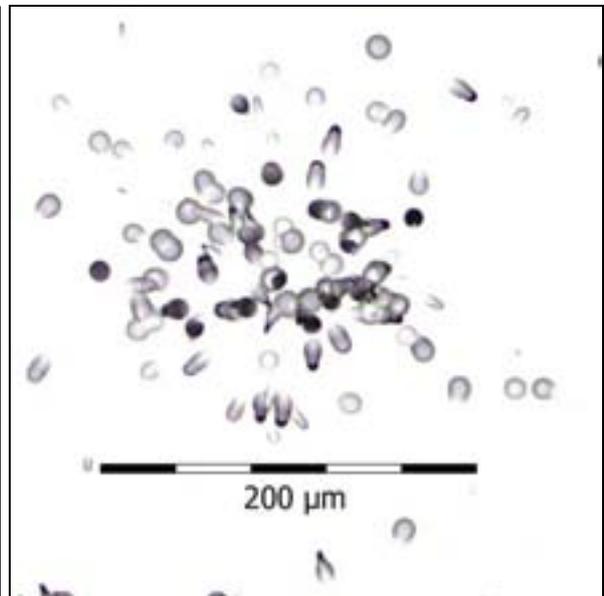
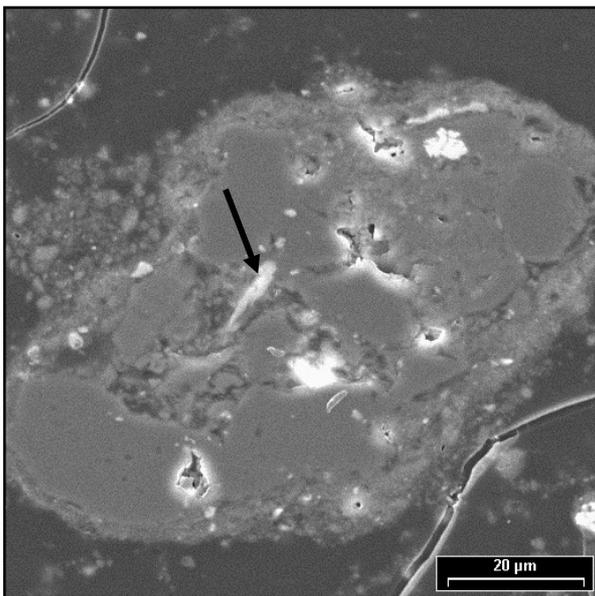
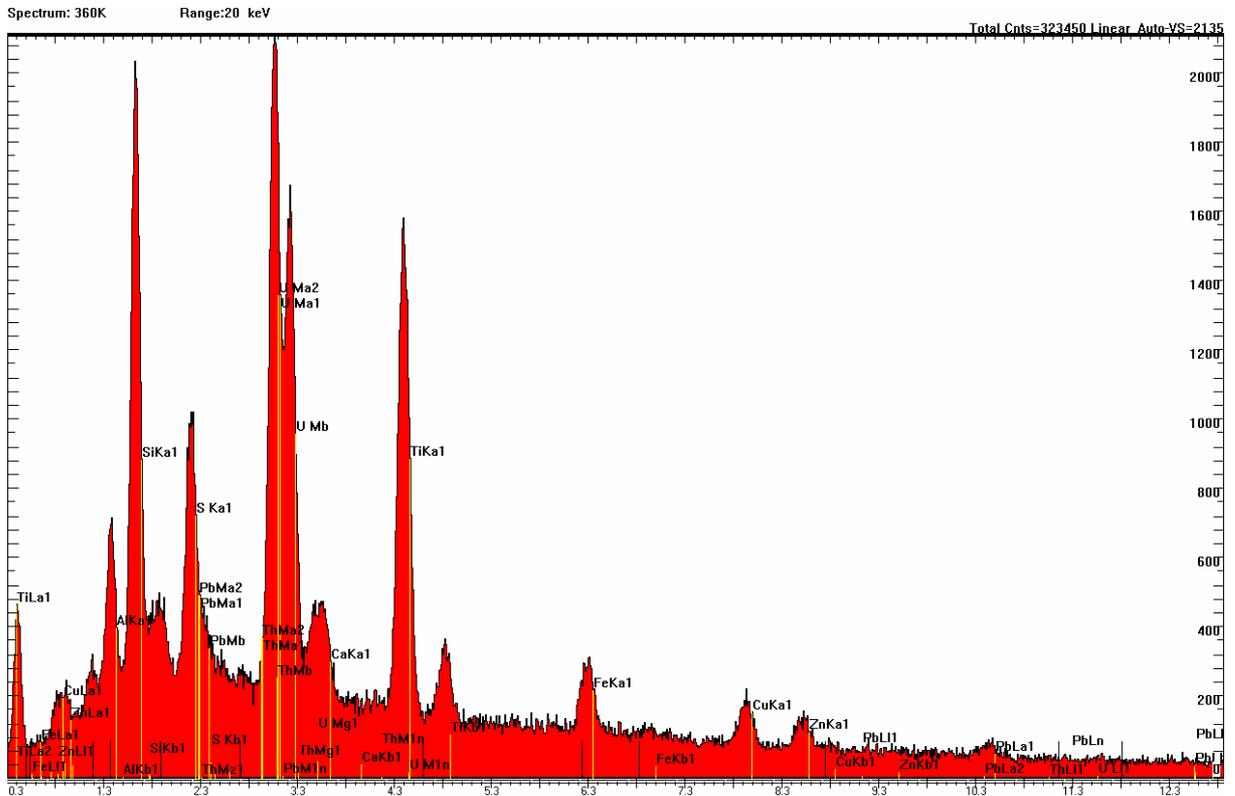
## Theisenschlamm



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Theisenschlamm-Probe 360 (Markierung g). Es handelt sich hier um <math>< 5 \mu\text{m}</math> große  $\text{UO}_2$ -Tröpfchen (schwarzer Pfeil, Bildmitte) an einem größeren Silikat Korn.

# Tafel 9

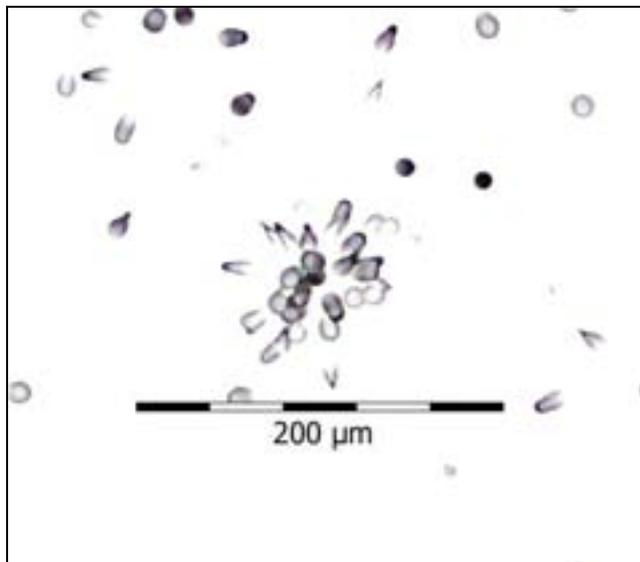
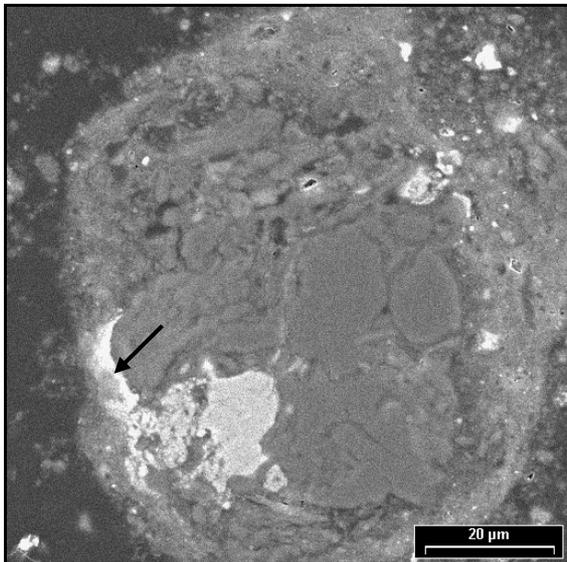
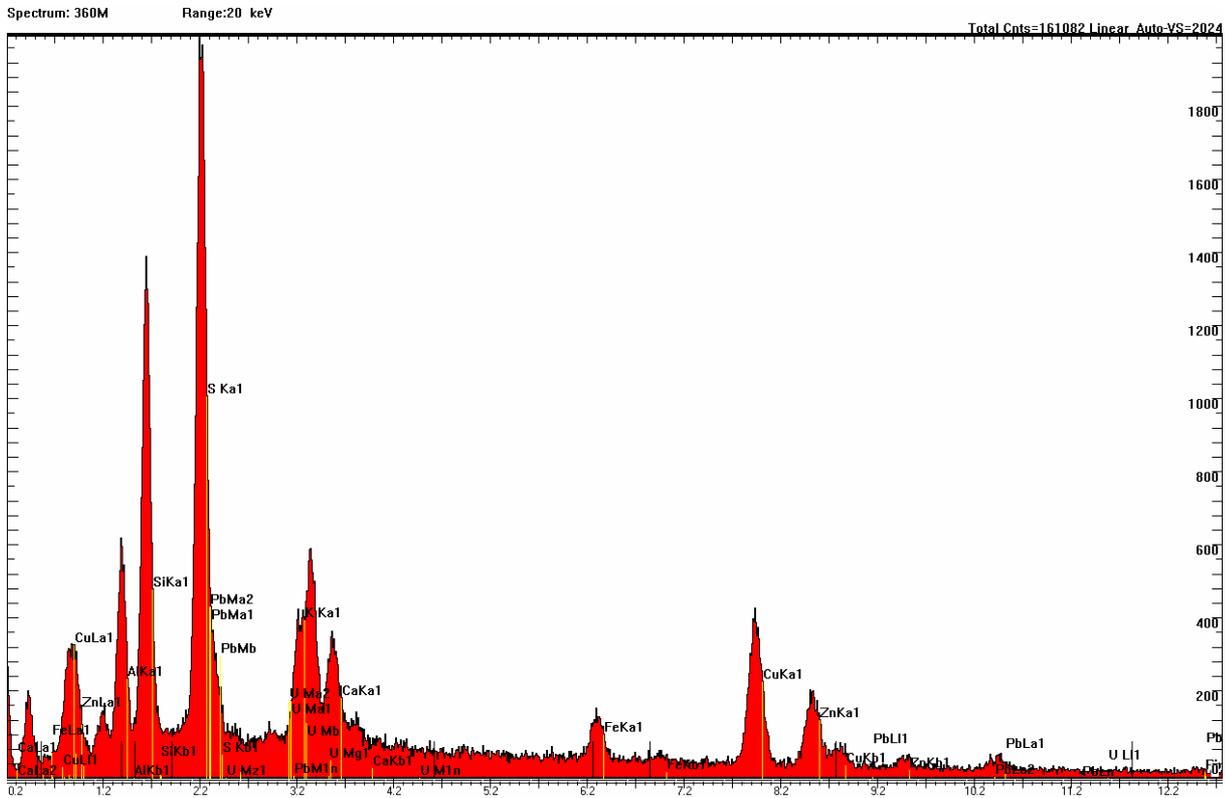
## Theisenschlamm



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Theisenschlamm-Probe 360 (Markierung k). Es handelt sich hier wahrscheinlich um ein  $<5 \mu\text{m}$  großes Branneritkörnchen (Brannerit =  $\text{UTi}_2\text{O}_6$ ) in einem größeren Silikat Korn. Die Spur dieses Heißen Teilchens ist nicht besonders gut ausgebildet, sie ist sehr asymmetrisch. Vermutlich liegt das alphaemittierende Partikel nicht direkt an der Probenoberfläche, so dass die Alphapartikel teilweise absorbiert wurden.

# Tafel 10

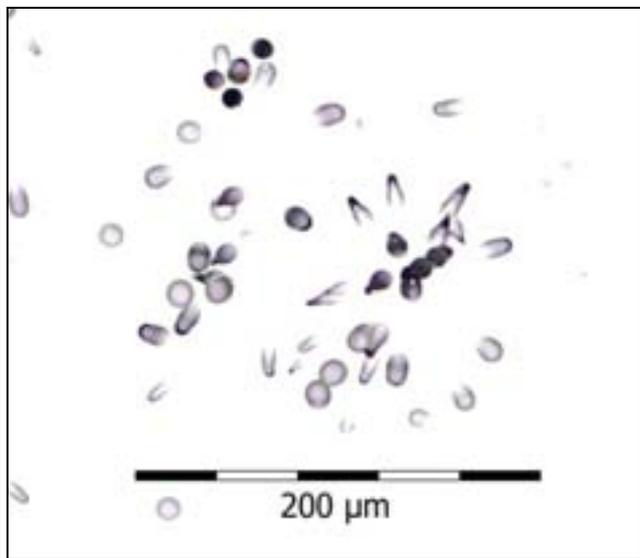
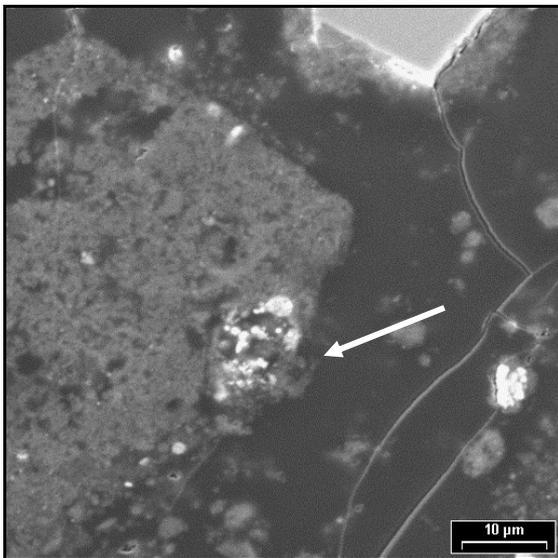
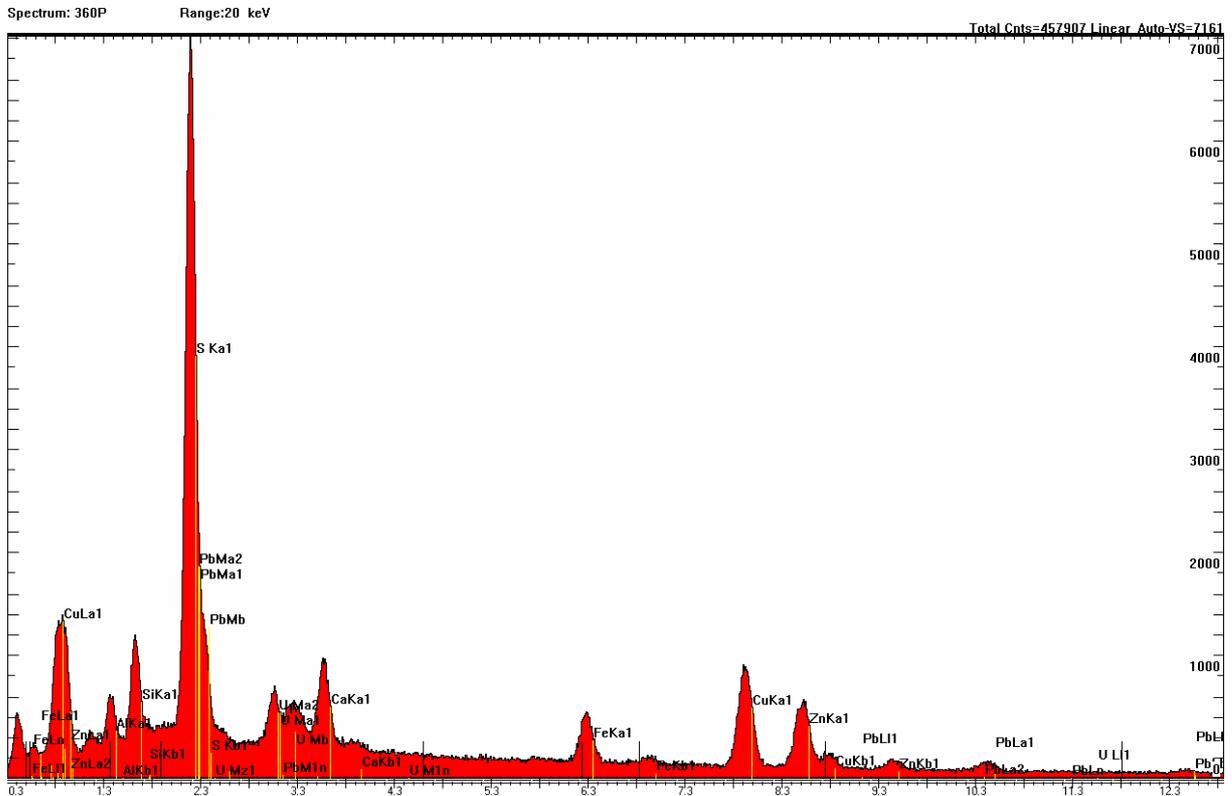
## Theisenschlamm



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Theisenschlamm-Probe 360 (Markierung m). Ein Silikat Korn (grau) enthält hier helle Partien aus PbS (Galenit, weiß-grau) sowie einen ca. 5 µm großen Bereich mit Uran (Pfeilspitze).

# Tafel 11

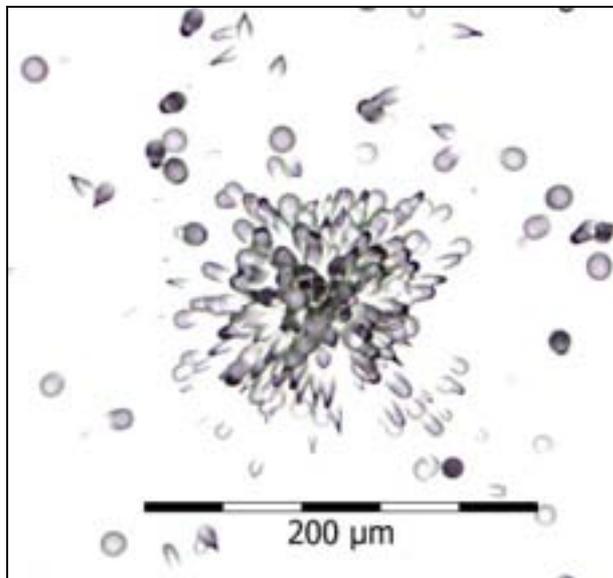
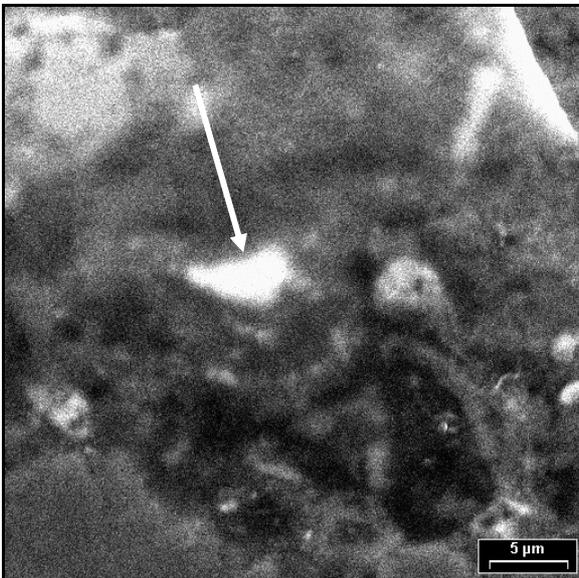
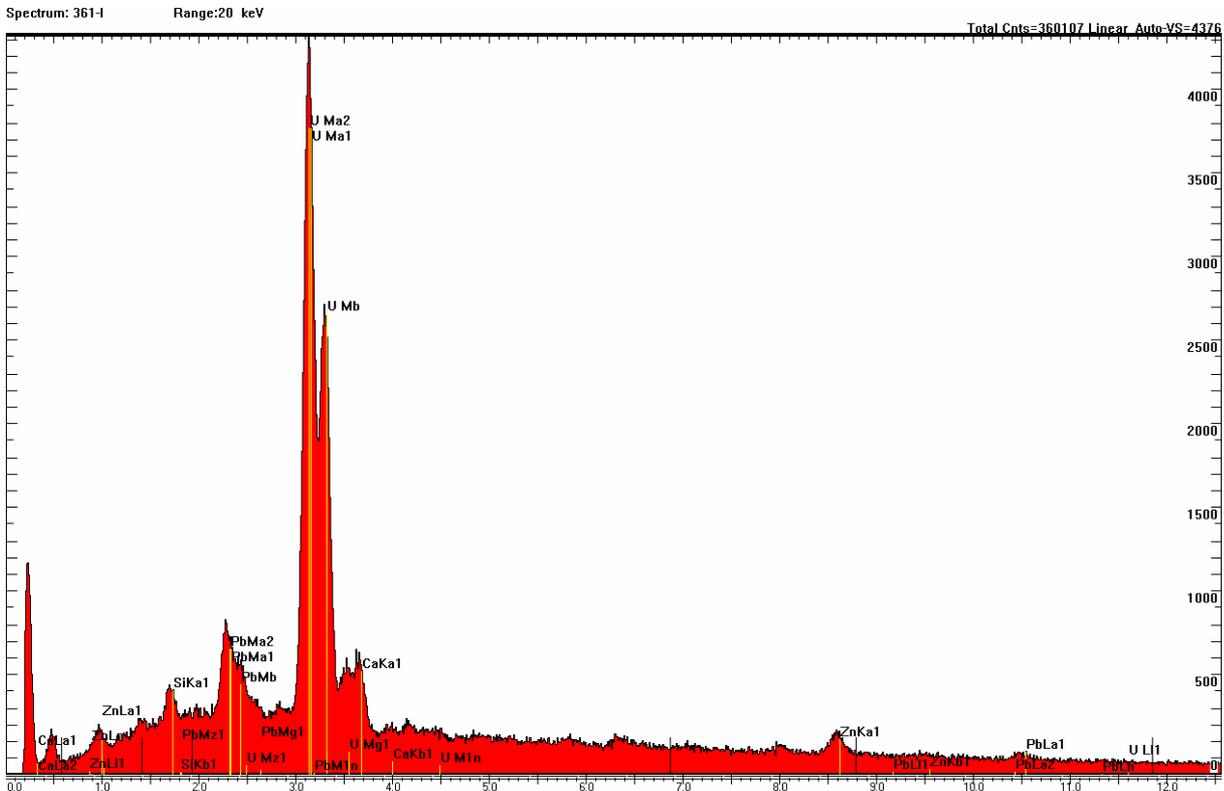
## Theisenschlamm



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Theisenschlamm-Probe 360 (Markierung p). Ein Silikat Korn (grau) enthält hier sehr helle Partien aus PbS (Galenit, weiß) sowie einen ca. 2 µm großes Körnchen mit Uran (Pfeilspitze). Das Heiße Teilchen wird auf dem Autoradiogramm durch das Sternspurmuster repräsentiert (rechte Spur). Die Spuren von Alphateilchen links daneben sind vermutlich auf den Gehalt des Galenits an  $^{210}\text{Pb}$  bzw.  $^{210}\text{Po}$  zurückzuführen.

## Tafel 12

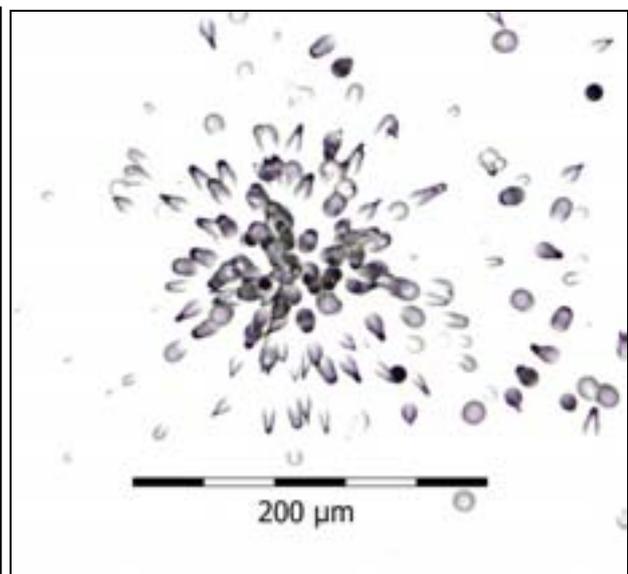
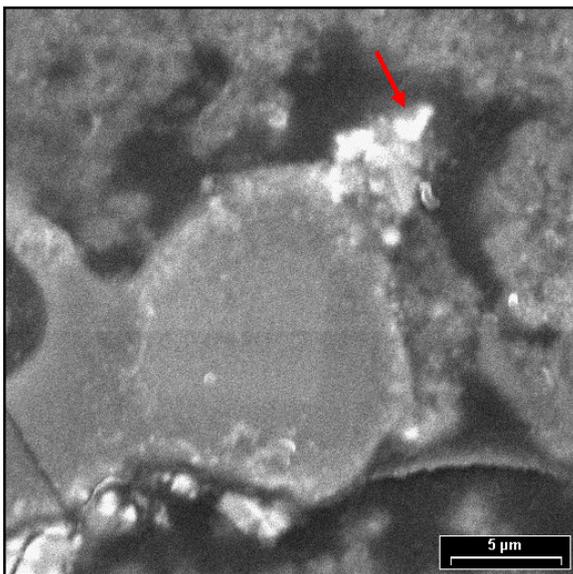
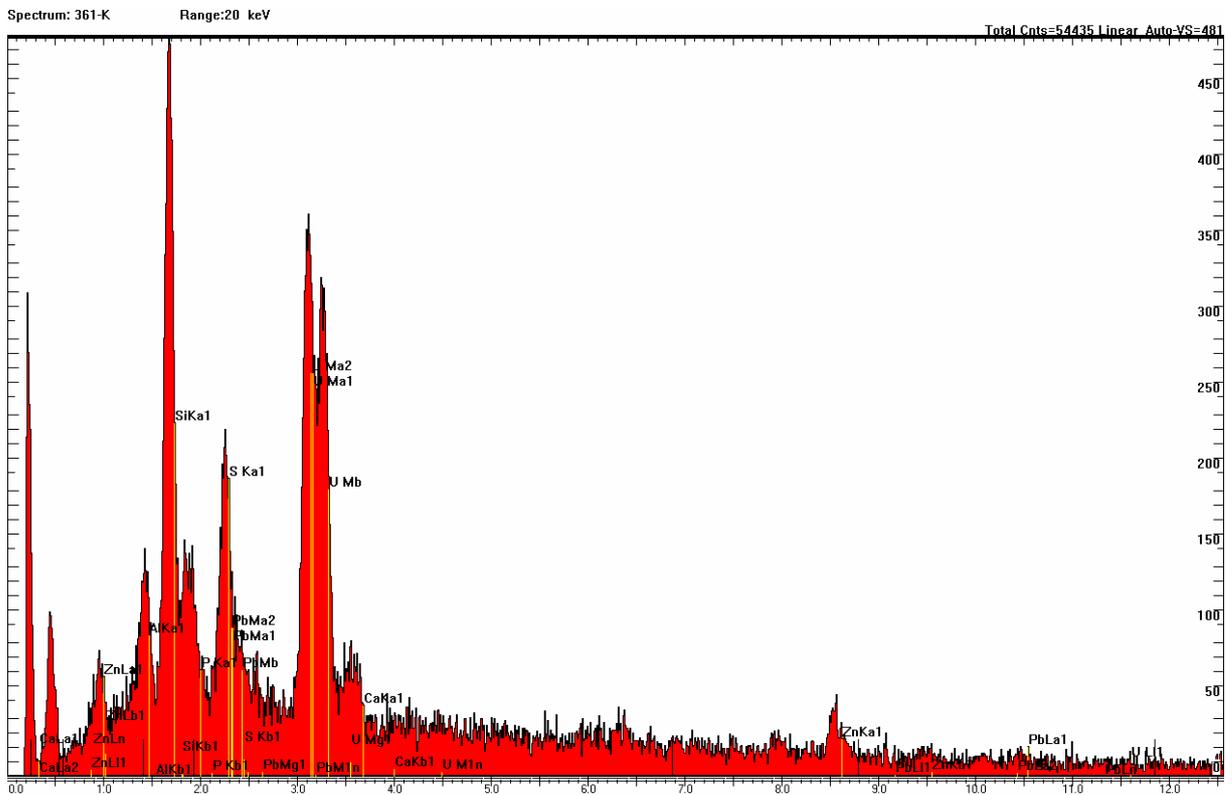
### Theisenschlamm



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Theisenschlamm-Probe 361 (Markierung i). Es handelt sich hier um ein ca. 5  $\mu\text{m}$  großes Urankörnchen ( $\text{UO}_2$ ; Pfeilspitze). Trotz der geringen Korngröße ist dieses Urankörnchen ein starker Strahler, erkennbar an dem deutlichen Uranpeak im Spektrum und dem Sternspurmuster mit hoher Spurdichte. Das Sternspurmuster ist sehr symmetrisch.

# Tafel 13

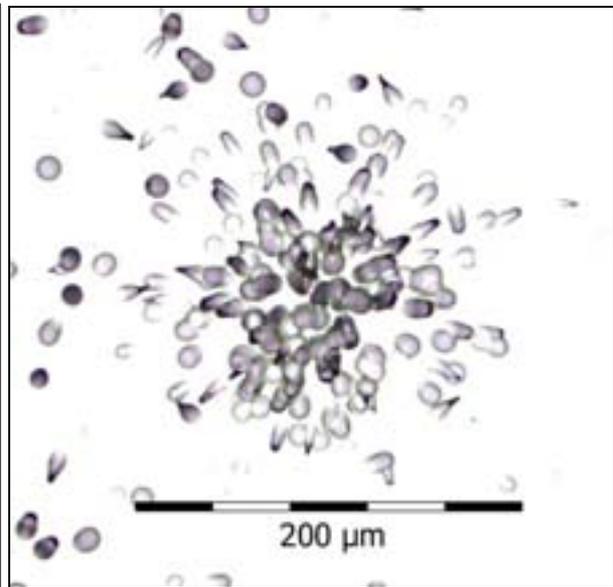
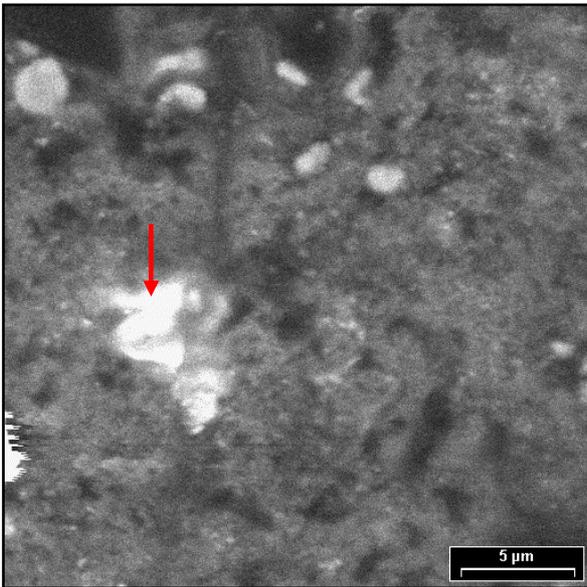
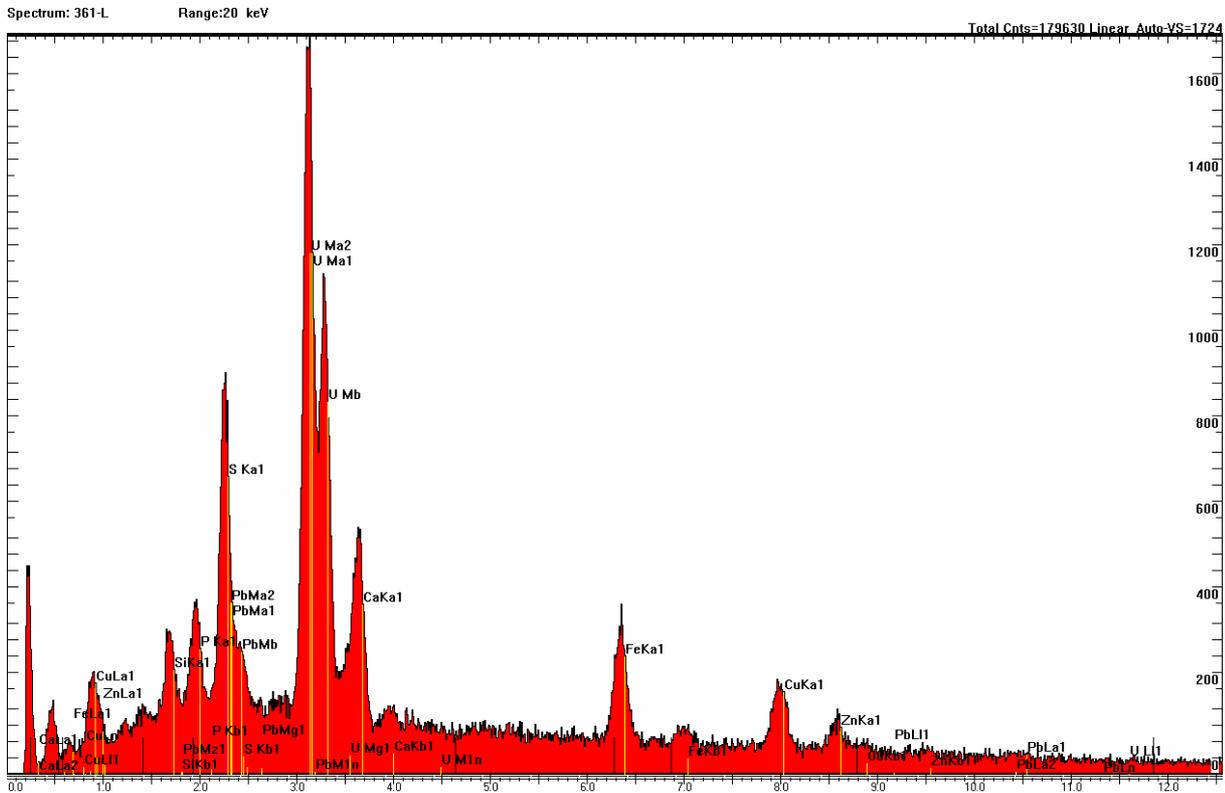
## Theisenschlamm



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Theisenschlamm-Probe 361 (Markierung k). An einem Silikatkörnchen hängt ein um 2 µm großes Uranpartikel (UO<sub>2</sub>, Pfeilspitze). In der Umgebung bzw. Matrix des Partikels finden sich die für den Theisenschlamm typischen Elemente Zn, S, Pb.

# Tafel 14

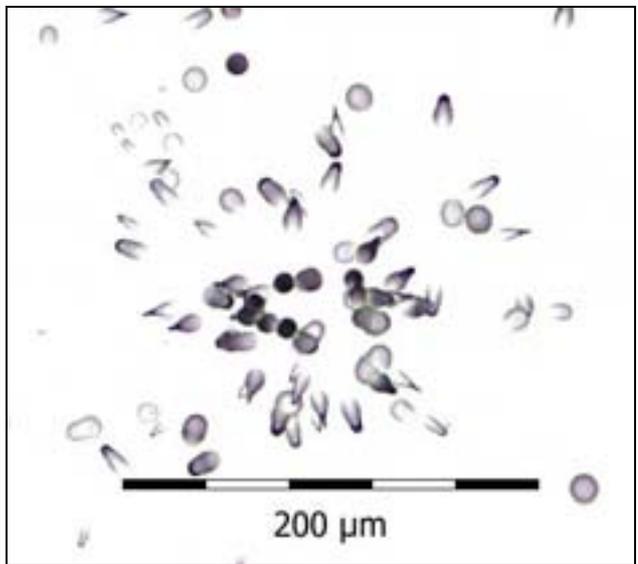
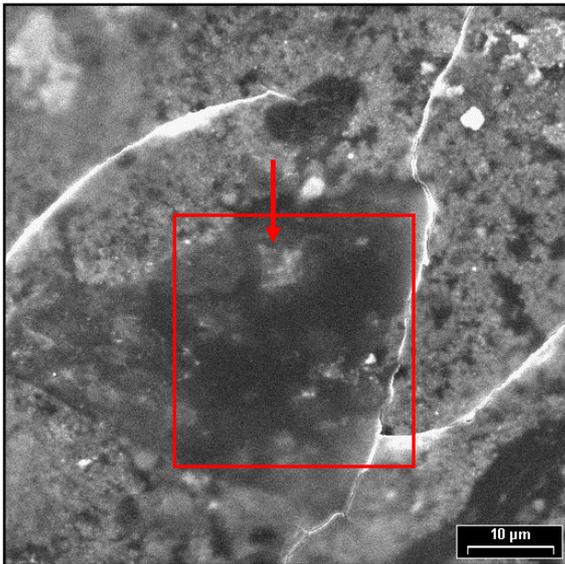
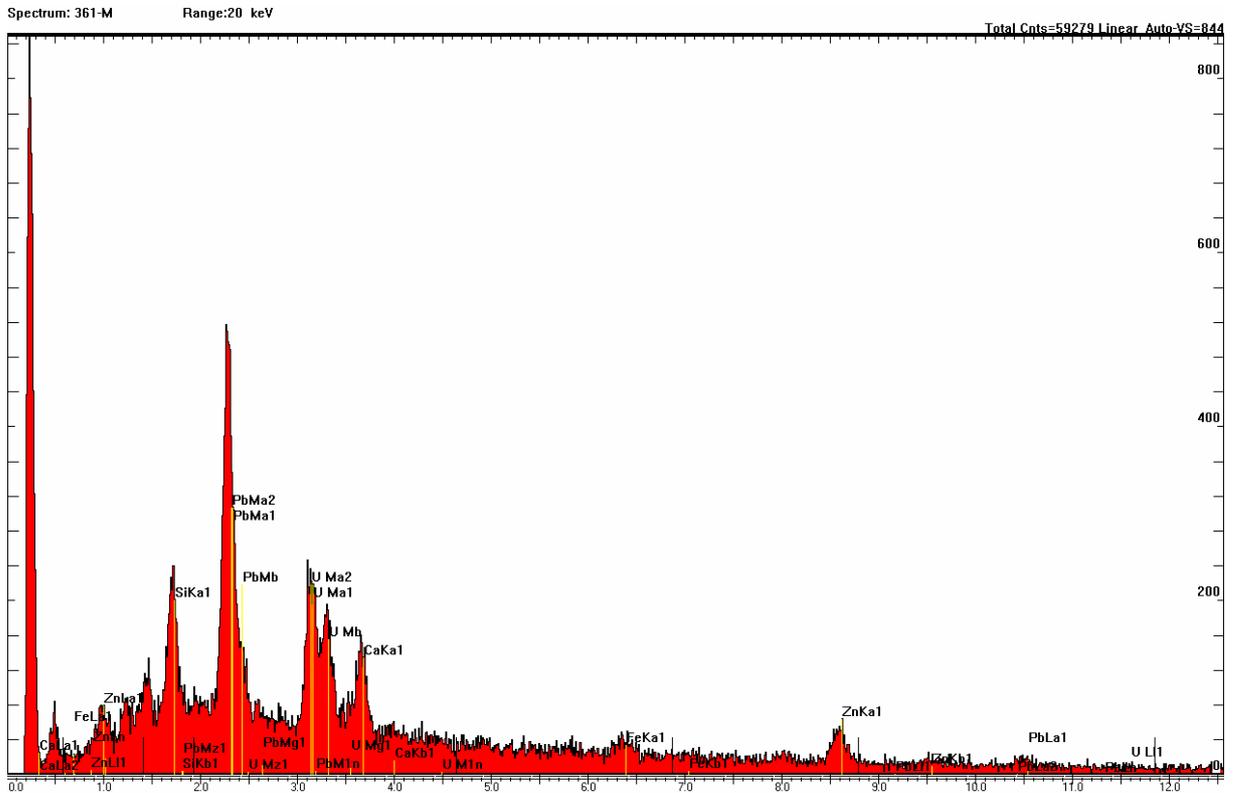
## Theisenschlamm



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Theisenschlamm-Probe 361 (Markierung 1). Der deutliche Uranpeak und die kräftige, symmetrische Sternspur werden von einem  $< 5 \mu\text{m}$  großen  $\text{UO}_2$ -Partikelchen verursacht. Das Uranpartikel liegt in einer Matrix aus Si, Fe, Pb, P, Cu, Zn und S.

# Tafel 15

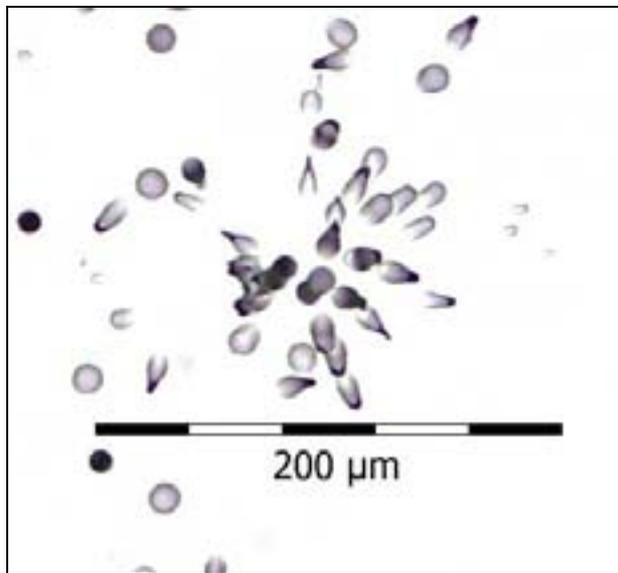
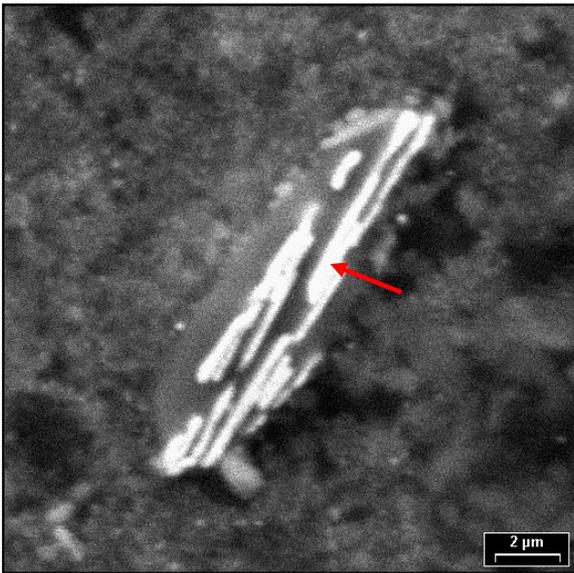
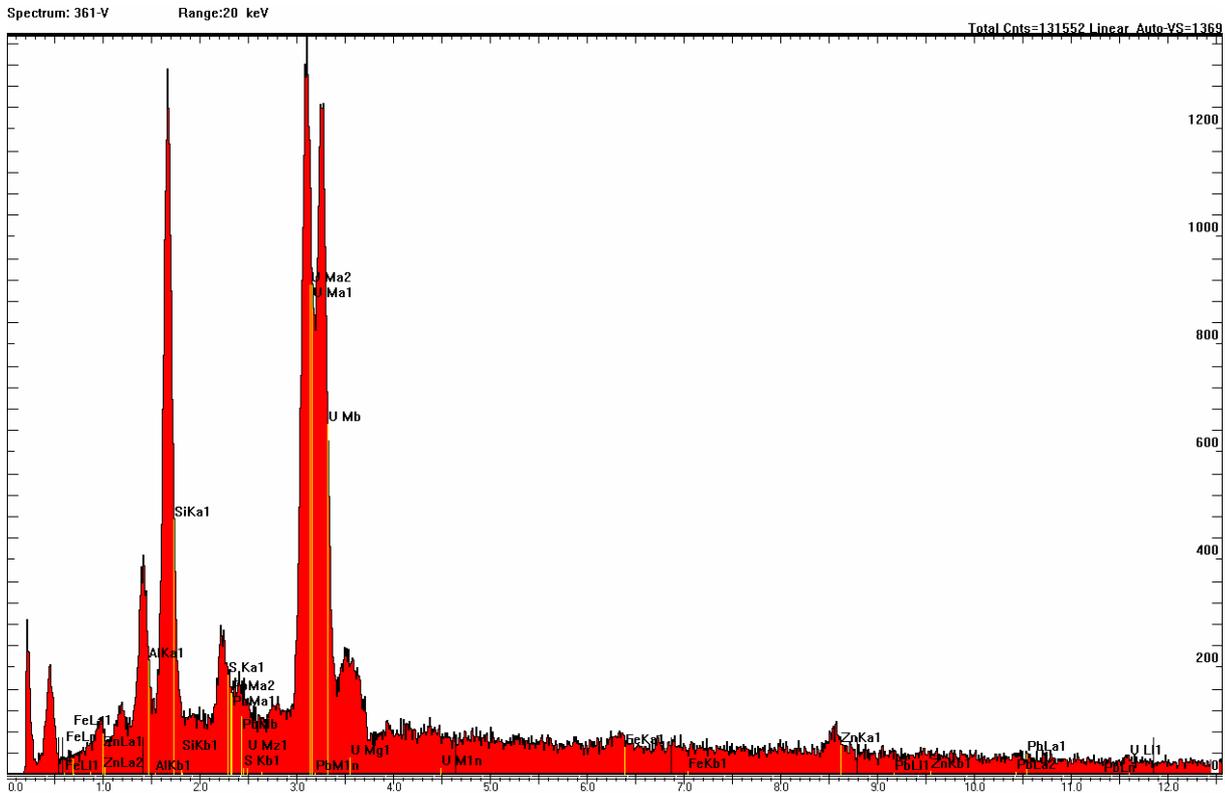
## Theisenschlamm



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Theisenschlamm-Probe 361 (Markierung m). Ein ca. 20 × 30 μm großes, kohliges Partikel (Viereck) enthält Uran (Pfeilspitze). In der Umgebung des Urans kommen Pb, Zn, Si, Ca vor.

# Tafel 16

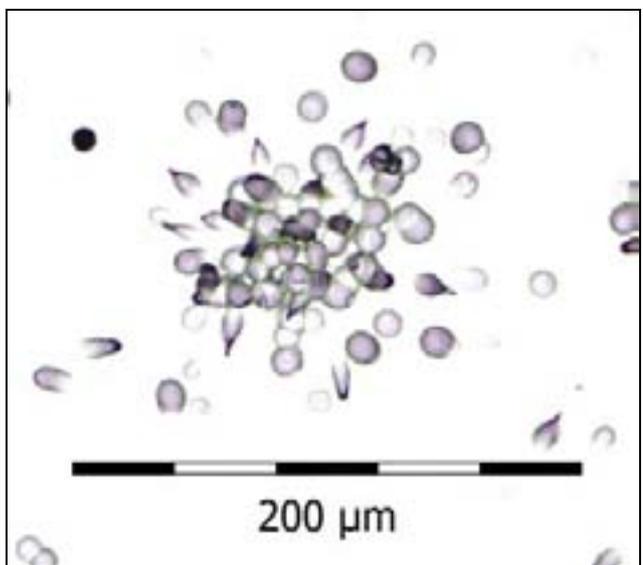
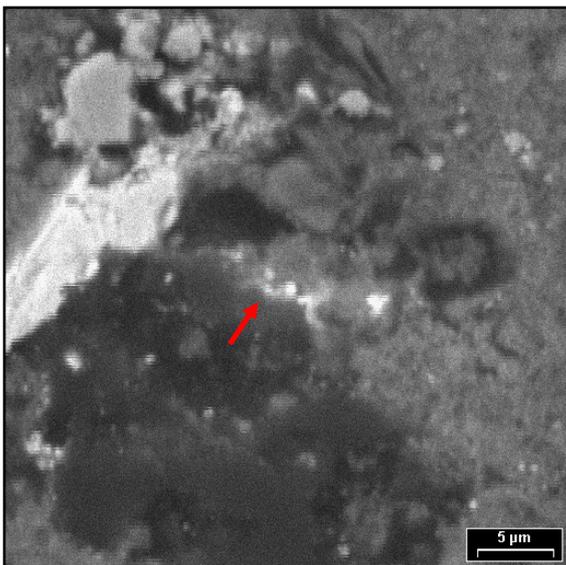
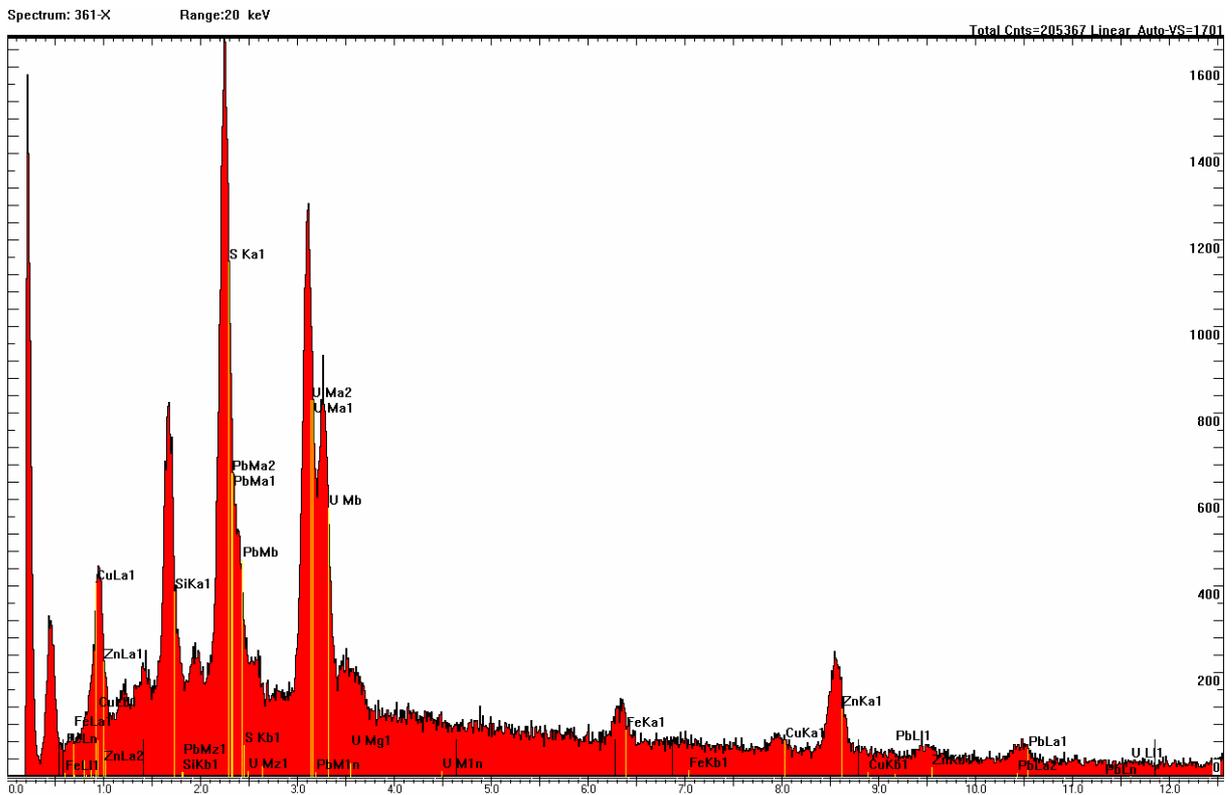
## Theisenschlamm



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Theisenschlamm-Probe 361 (Markierung v). Es handelt sich hier um ein Silikatkorn (grau, Bildmitte) mit Uran (UO<sub>2</sub>, Pfeilspitze).

# Tafel 17

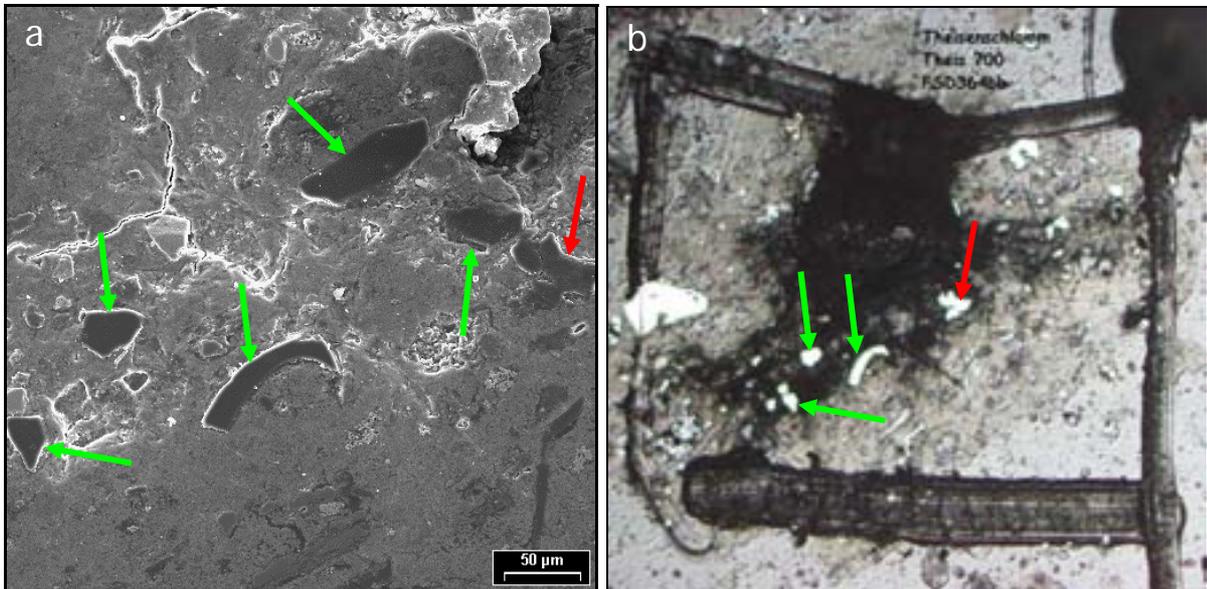
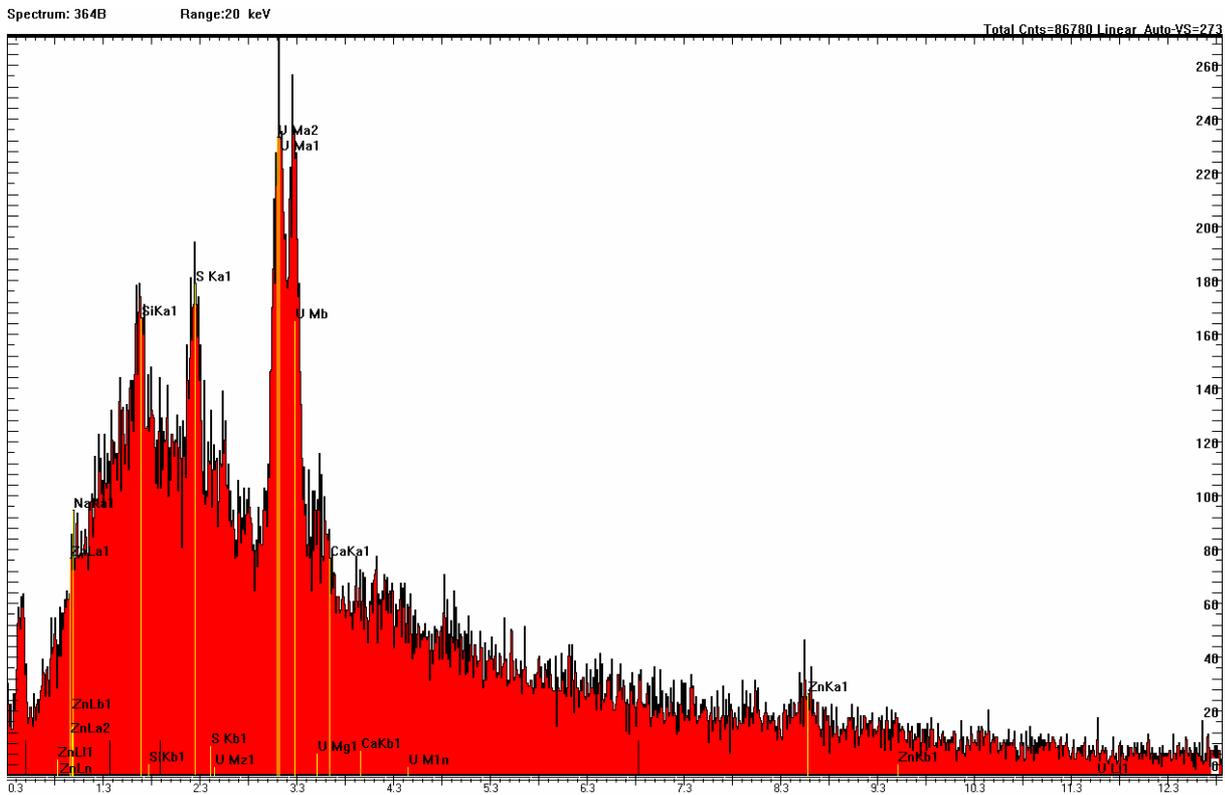
## Theisenschlamm



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Theisenschlamm-Probe 361 (Markierung x). Es handelt sich hier um einen hellen Saum aus  $UO_2$  (Pfeilspitze) an einem Korngemisch aus Kohlenstoff (unterhalb Pfeilspitze, schwarz-schwarzgrau) und einem PbS-ZnS-Si-Agglomerat (oberhalb Pfeilspitze).

## Tafel 18 – Teil A

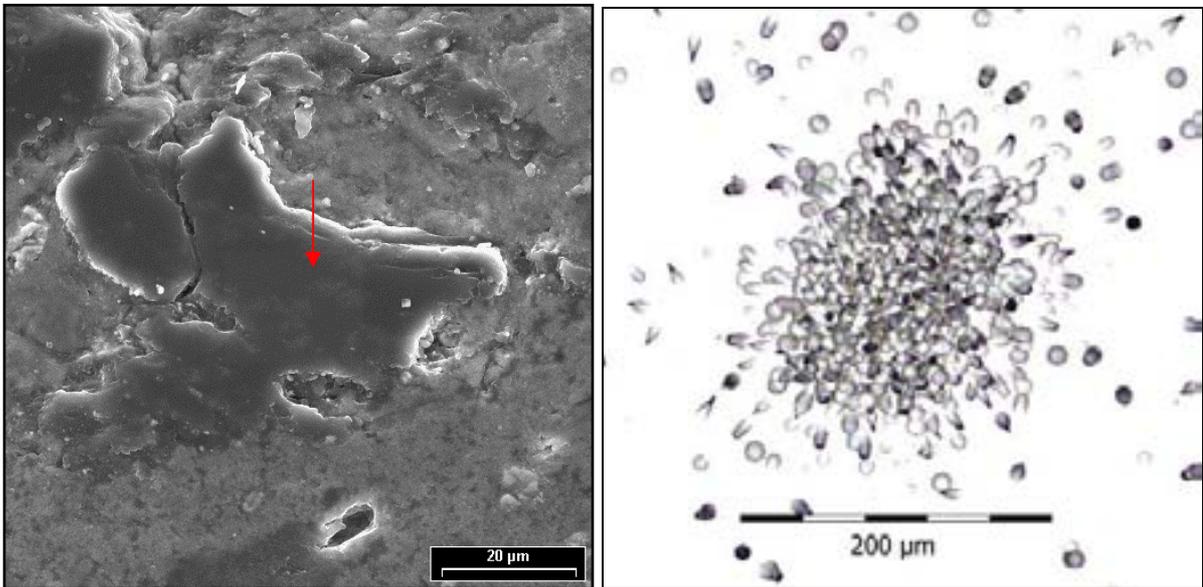
### Theisenschlamm



Spektrum, REM-Aufnahme (a) und lichtmikroskopische Aufnahme (b) eines Heißen Teilchens bzw. der Oberfläche der Theisenschlamm-Probe 364 (Markierung b). Die grünen Pfeile markieren kohlige Partikel, die im Theisenschlamm häufig Uran (Heiße Teilchen) enthalten. Sie sind im REM-Bild schwarz, unter dem Lichtmikroskop jedoch strahlend weiß. An der abgebildeten Stelle enthält nur das mit dem roten Pfeil gekennzeichnete Kohlenstoff-Partikel Uran. Typisch für solcherart zusammengesetzte Partikel ist der stark erhöhte Untergrund im unteren Energiebereich des Spektrums.

## Tafel 18 – Teil B

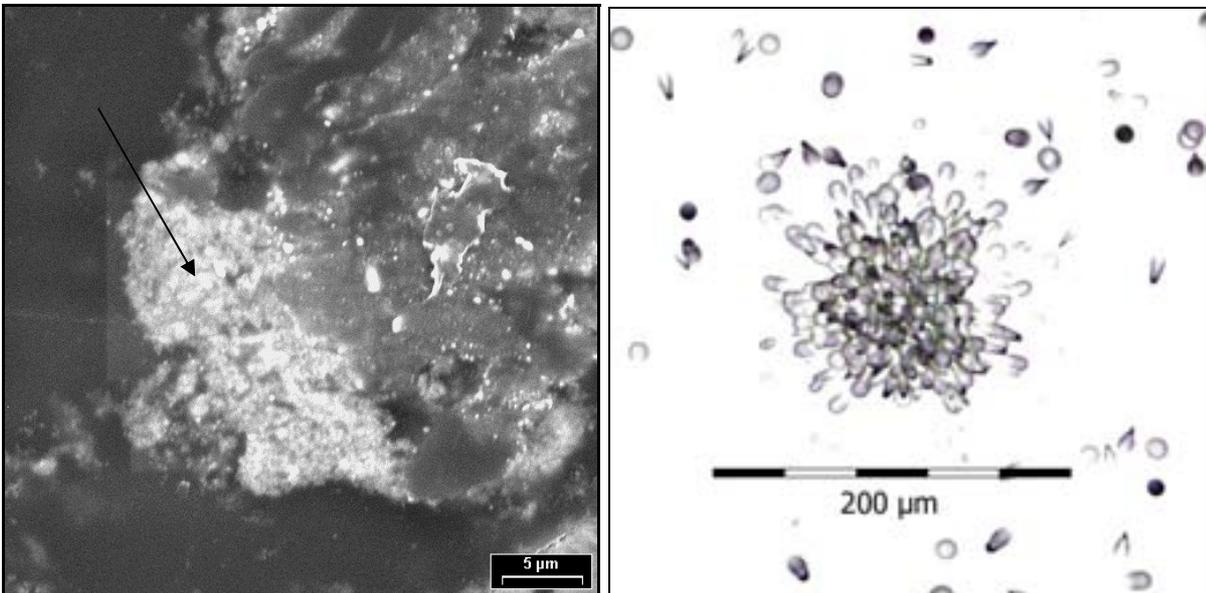
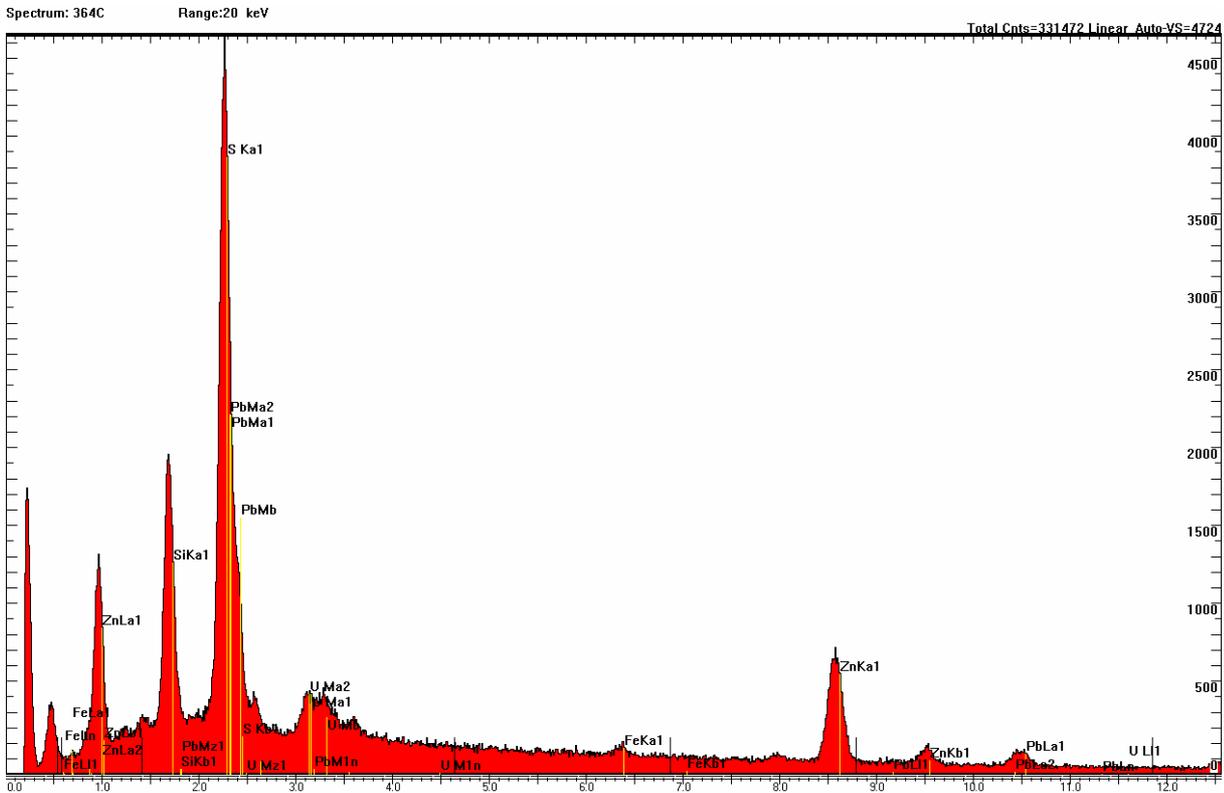
### Theisenschlamm



REM-Aufnahme und Spurbild des Heißen Teilchens aus der Theisenschlamm-Probe 364 b (vgl. oben).

# Tafel 19

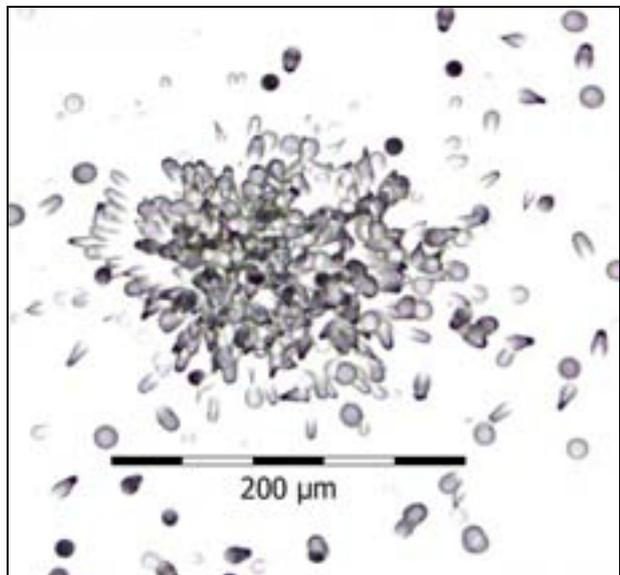
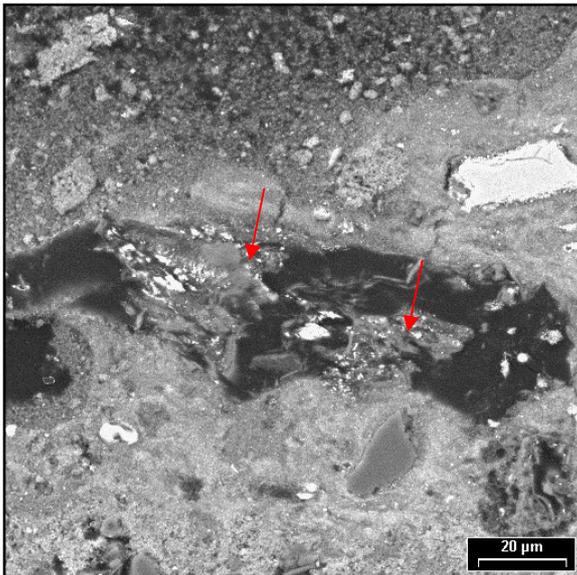
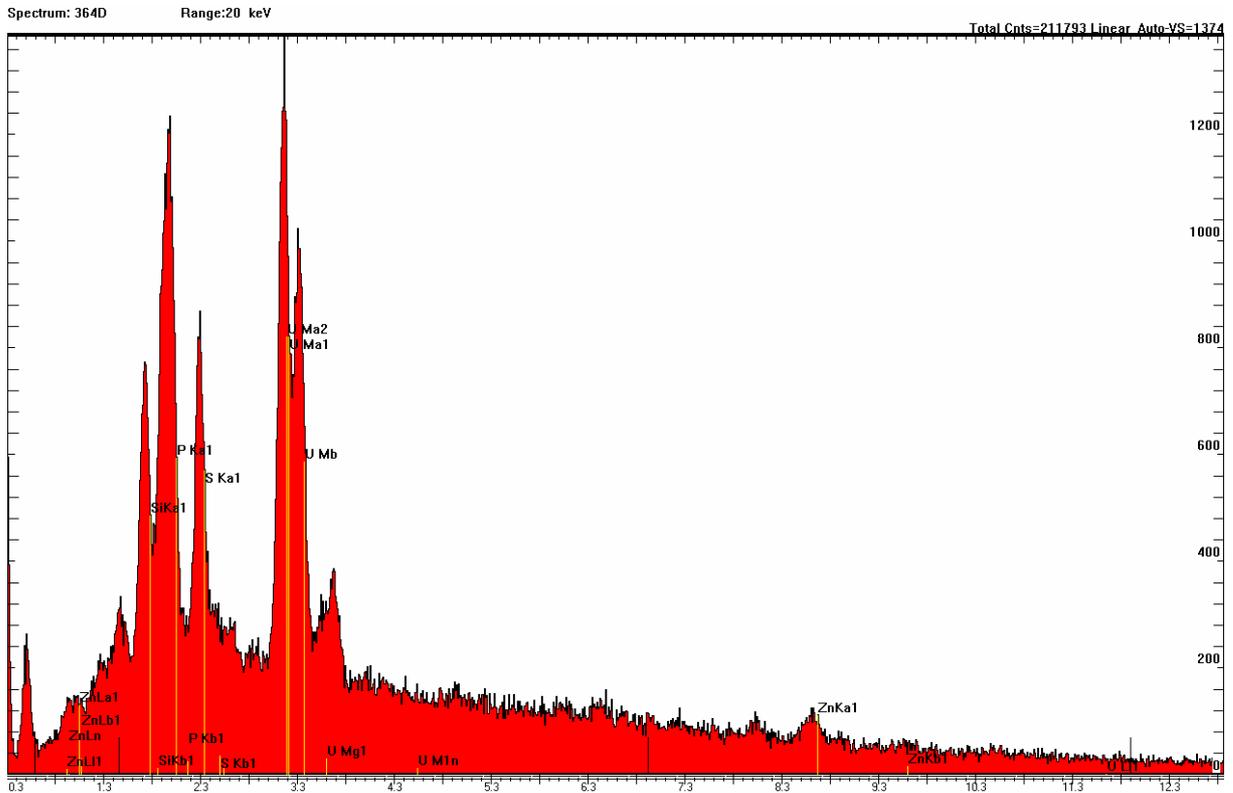
## Theisenschlamm



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Theisenschlamm-Probe 364 (Markierung c). Am Rand eines Pb-Zn-Korns konnte Uran (weiße Partie an Pfeilspitze) detektiert werden, wobei der Uranpeak sehr schwach ausgebildet ist. Das Sternspurmuster des Heißen Teilchens hingegen zeigt eine hohe Spurdichte und ist symmetrisch entwickelt. Vermutlich liegt das Heiße Teilchen nicht direkt an der Probenoberfläche.

# Tafel 20

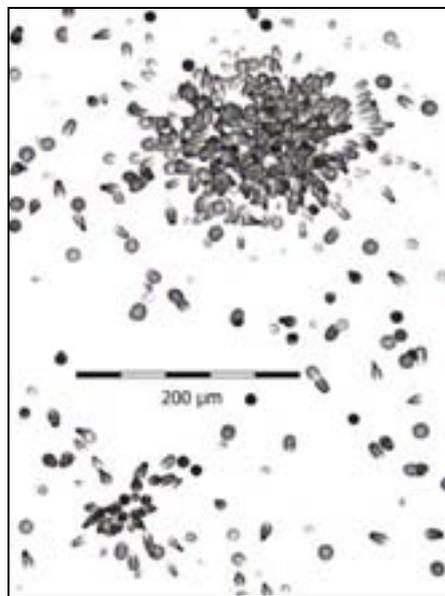
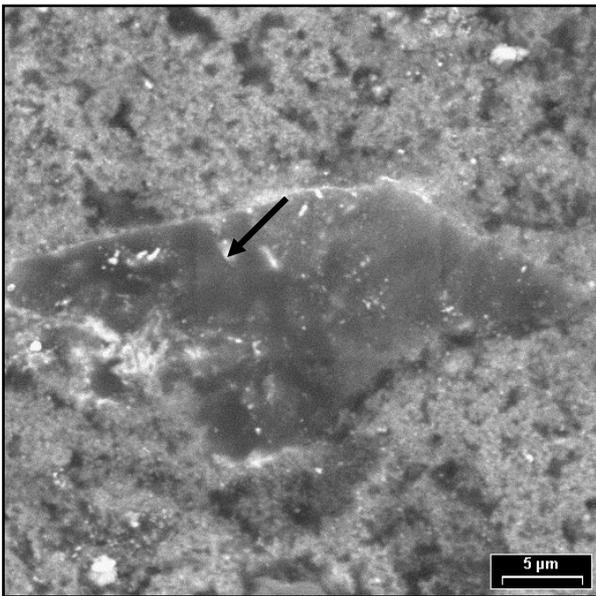
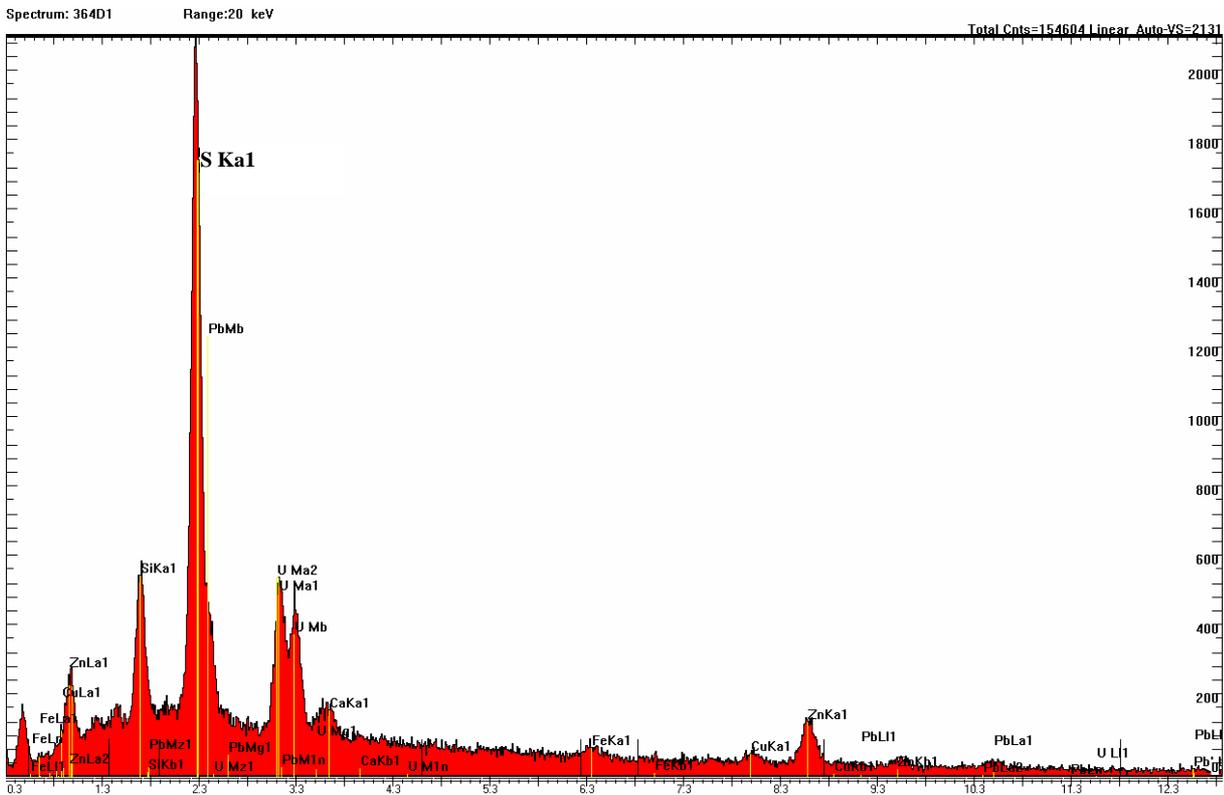
## Theisenschlamm



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Theisenschlamm-Probe 364 (Markierung d). Ein Kohlenstoff-Partikel (schwarz, Bildmitte) enthält hier an zwei Stellen Uran (Pfeilspitze). Da in einem Abstand von ca. 40  $\mu\text{m}$  zwei Heiße Teilchen-Quellen existieren, ist die Spur auf dem Autoradiogramm asymmetrisch und weist keinen genau zu definierenden Zentrumsbereich auf, wie er sonst für Heiße Teilchen-Spuren charakteristisch ist.

# Tafel 21

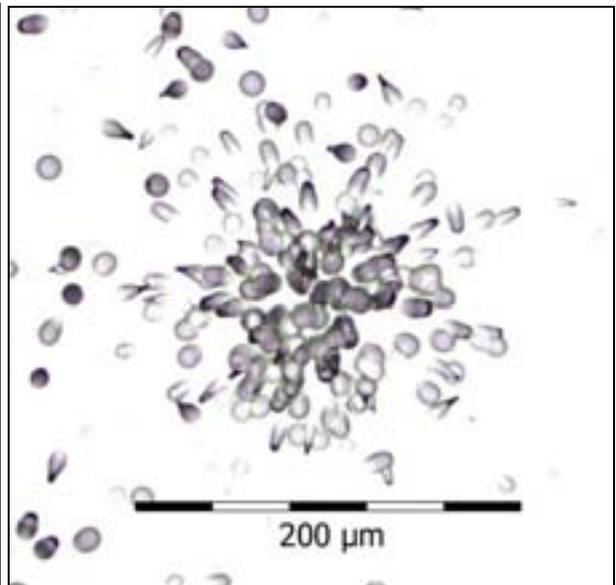
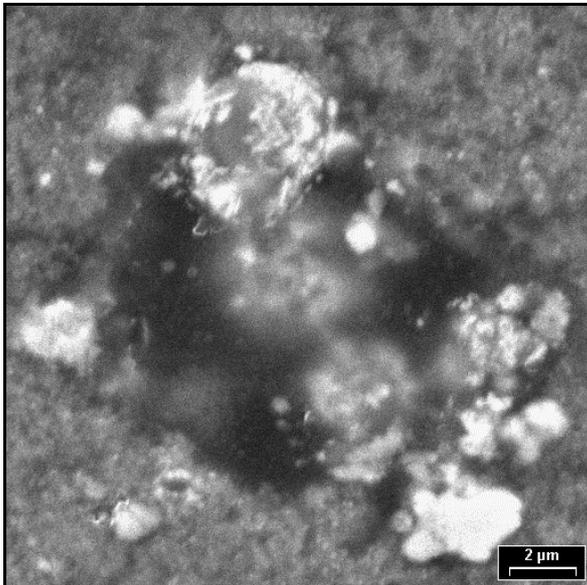
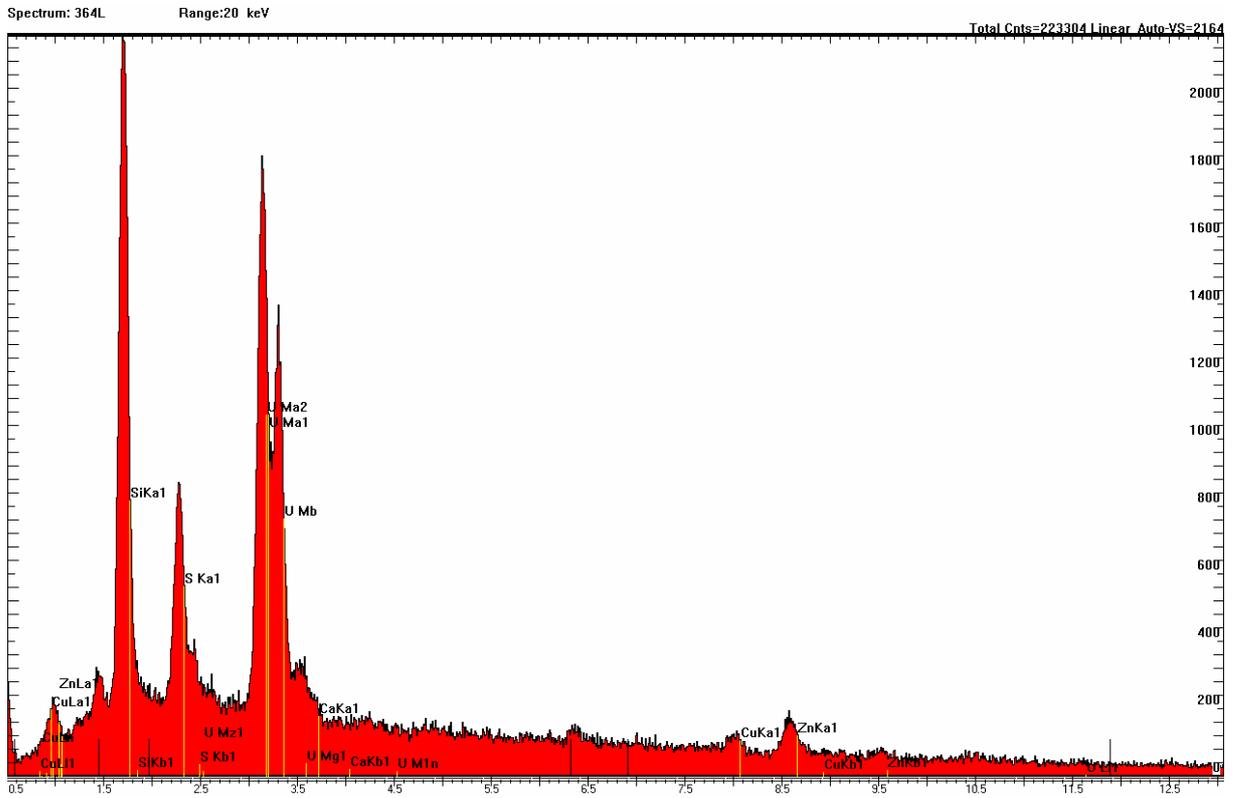
## Theisenschlamm



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Theisenschlamm-Probe 364 (Markierung d). Innerhalb der Markierung d wurde anhand der Sternspurmuster auf dem Autoradiogramm ein weiteres Heißes Teilchen gefunden. Dabei handelt es sich ebenfalls um ein Kohlenstoff-Partikel (dunkelgrau, Bildmitte) mit Uran (helle Stelle an Pfeilspitze, wahrscheinlich UO<sub>2</sub>). Die Größe des Uranpartikels liegt weit unter 5 μm. Zu diesem Heißes Teilchen gehört das kleine Sternspurmuster (Autoradiogramm, unten links). Das größere Sternspurmuster wird in der vorhergehenden Tafel beschrieben.

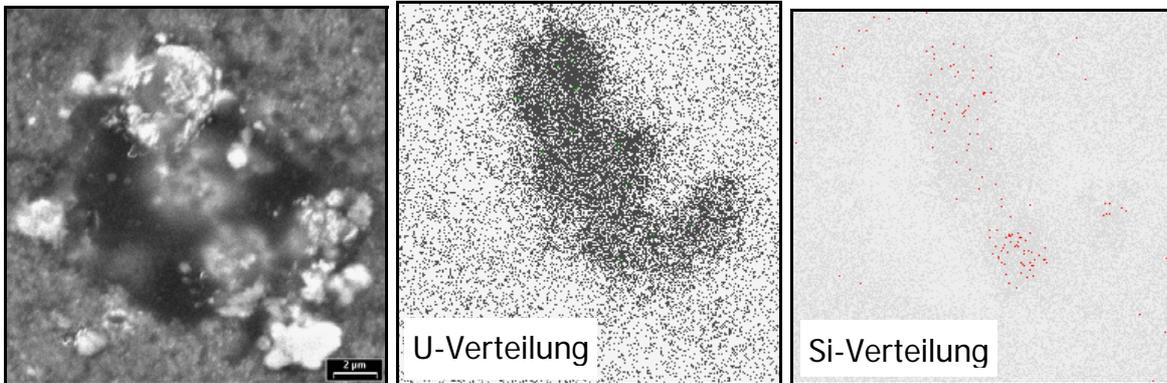
# Tafel 22 – Teil A

## Theisenschlamm



## Tafel 22 – Teil B

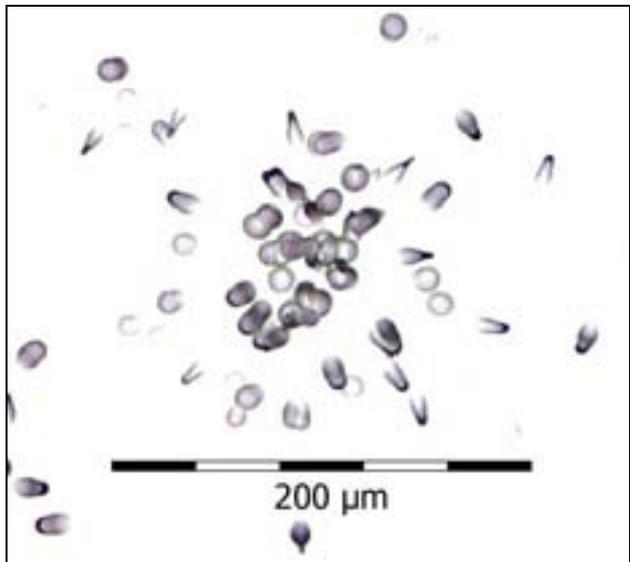
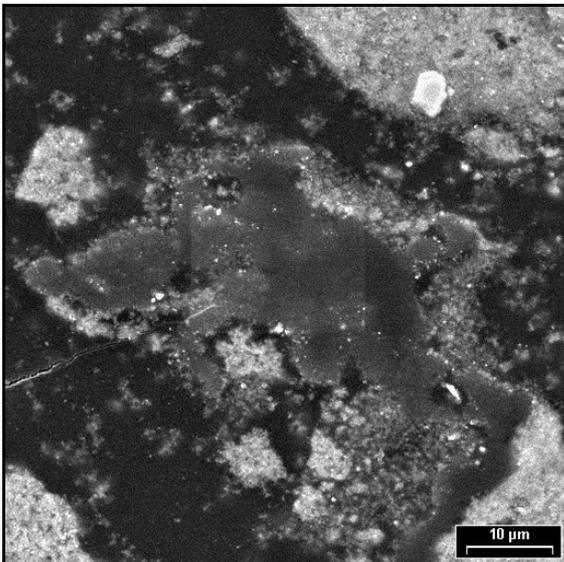
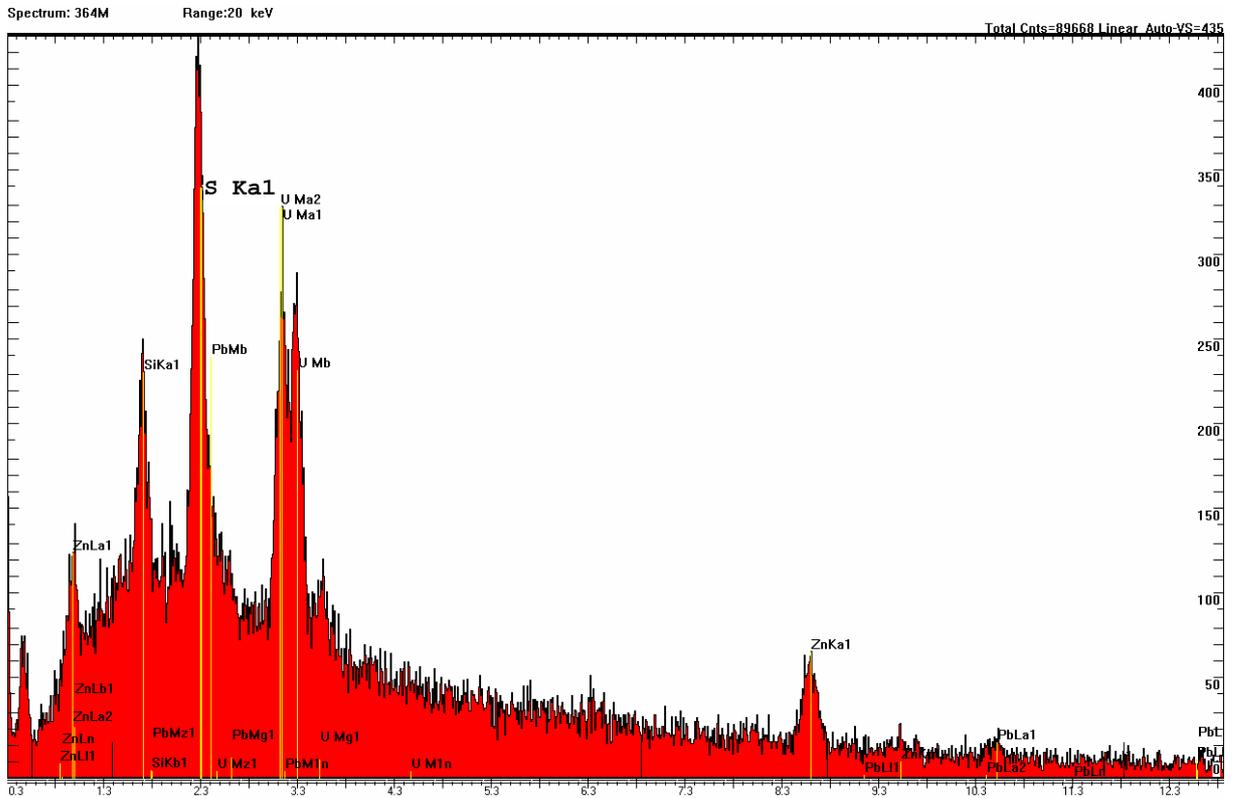
### Theisenschlamm



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Theisenschlamm-Probe 364 (Markierung 1) sowie Elementverteilungsbilder der Elemente Uran und Silizium an der detektierten Stelle innerhalb der Markierung 1. Ein ca.  $12 \times 4 \mu\text{m}$  großer, diffuser, heller Bereich (Bildmitte, REM-Aufnahme) enthält hier deutlich Uran ( $\text{UO}_2$ ). Über diesem diffusen uranhaltigen Bereich hat sich auf dem Detektor ein symmetrisches Sternpurbild mit hoher Spurdichte entwickelt (Autoradiogramm). Die Elementverteilungsbilder zeigen, an welchen Stellen der detektierten Probenoberfläche Uran und Silizium konzentriert sind.

# Tafel 23

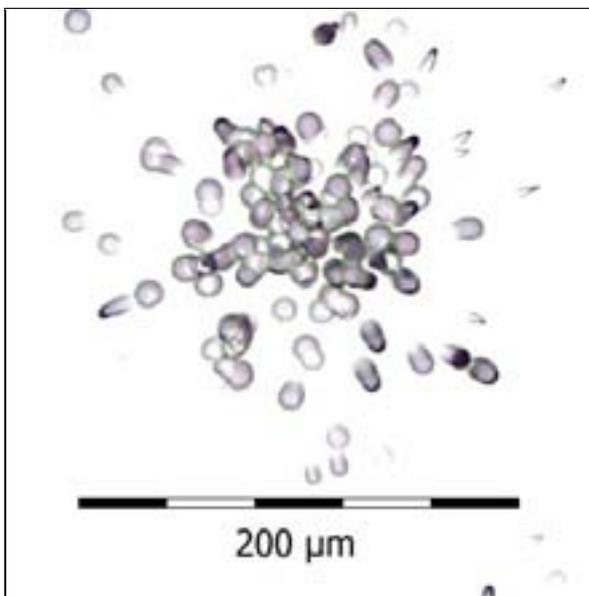
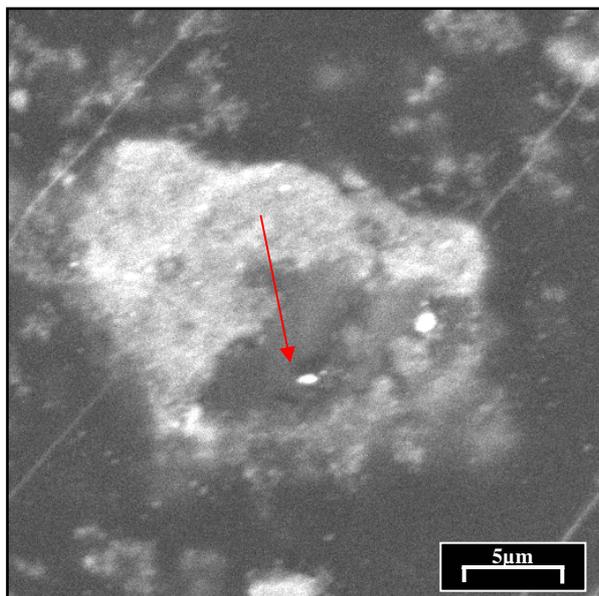
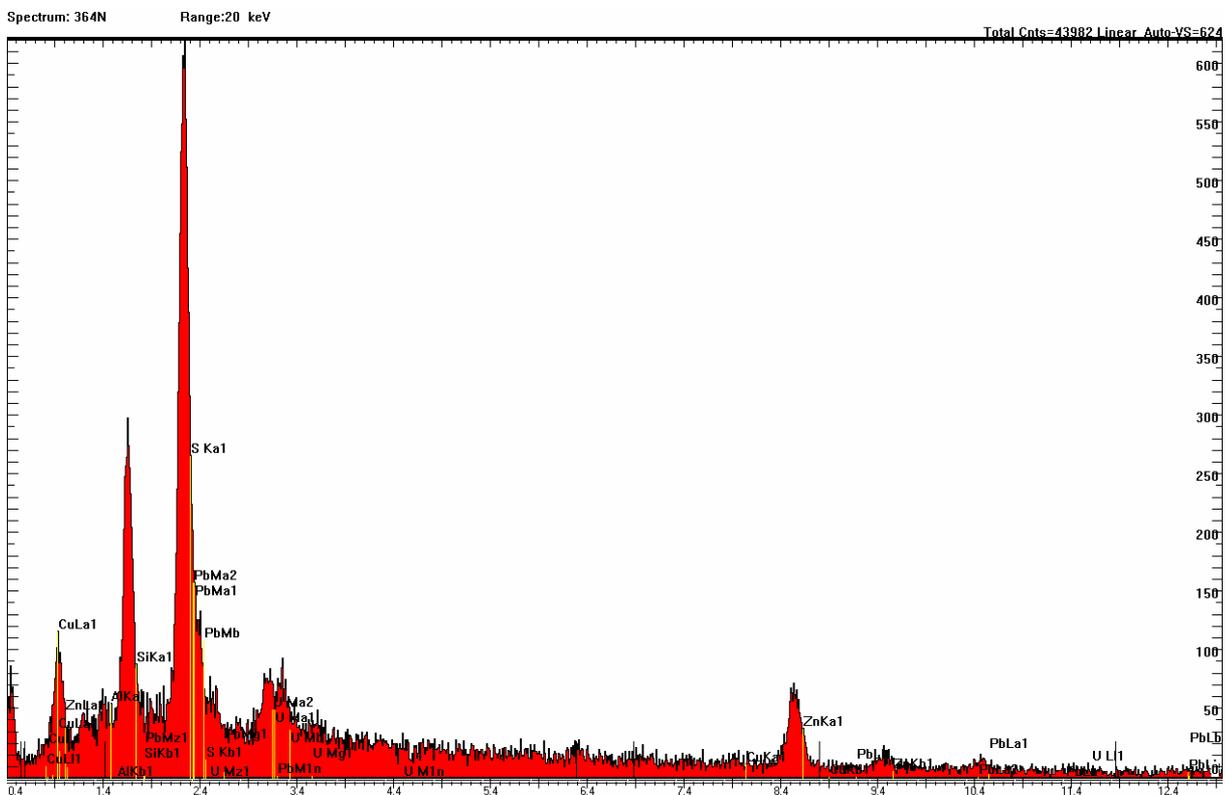
## Theisenschlamm



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines heißen Teilchens der Theisenschlamm-Probe 364 (Markierung m). Bei dem dunkelgrauen Teilchen in der Bildmitte der REM-Aufnahme handelt es sich wiederum um ein Kohlenstoff-Partikel mit Uran. Im Spektrum zeigen sich diese Kohlenstoffpartikel durch einen erhöhten Untergrund im vorderen Energiebereich. Der Uranpeak ist im Spektrum deutlich ausgeprägt, die heiße Teilchen-Spur hingegen ist weniger gut ausgebildet. Dies könnte damit zusammen hängen, dass Uran in dem Kohlenstoff-Partikel fein verteilt ist, und nicht auf ein Körnchen oder Partikel begrenzt ist.

## Tafel 24

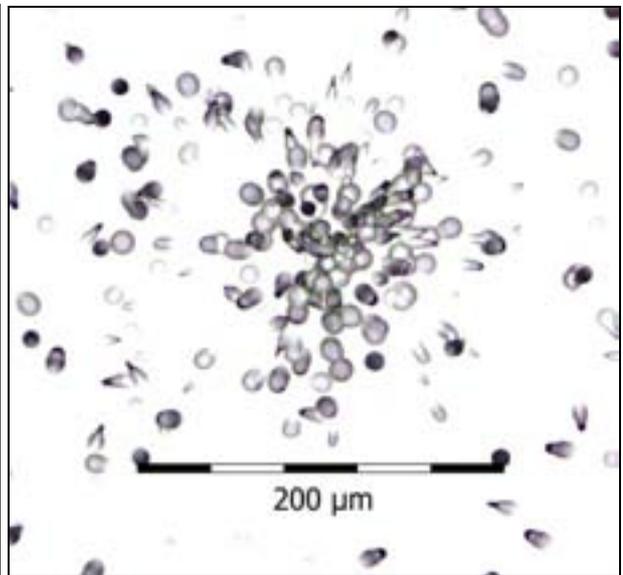
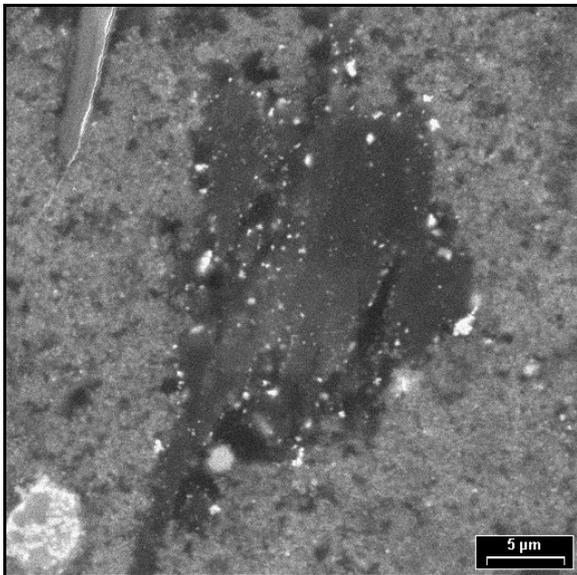
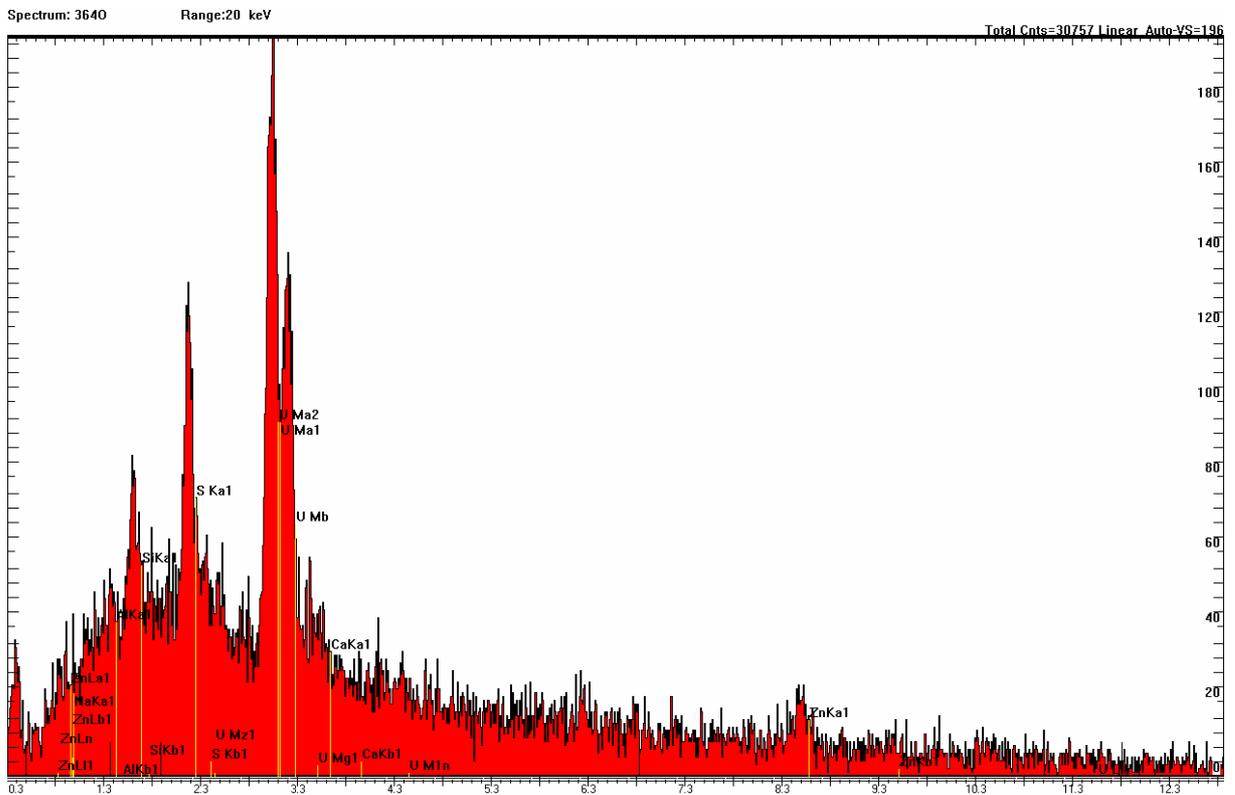
### Theisenschlamm



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Theisenschlamm-Probe 364 (Markierung n). In einer Kohlenstoffmatrix liegt hier ein ca. 1  $\mu\text{m}$  großes Urankörnchen (? $\text{UO}_2$ , Pfeilspitze).

# Tafel 25

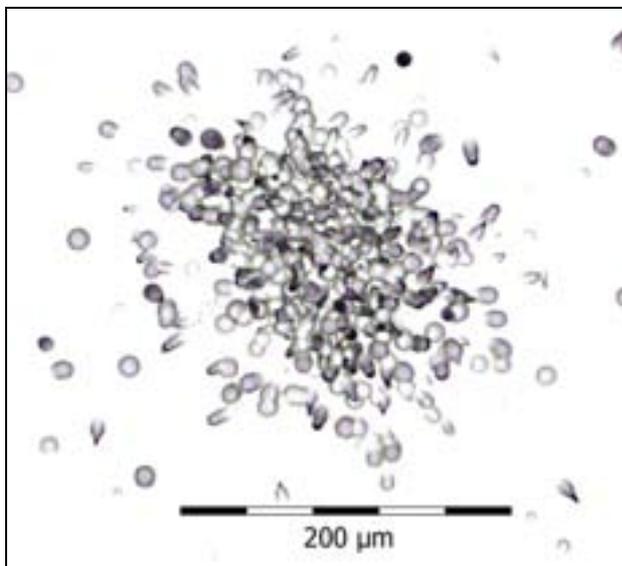
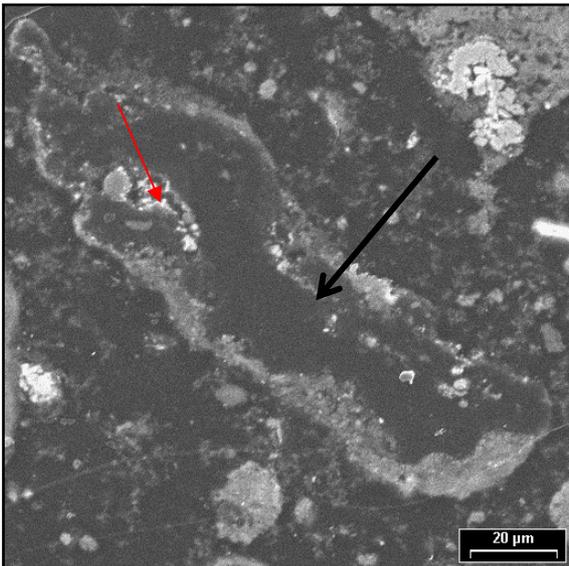
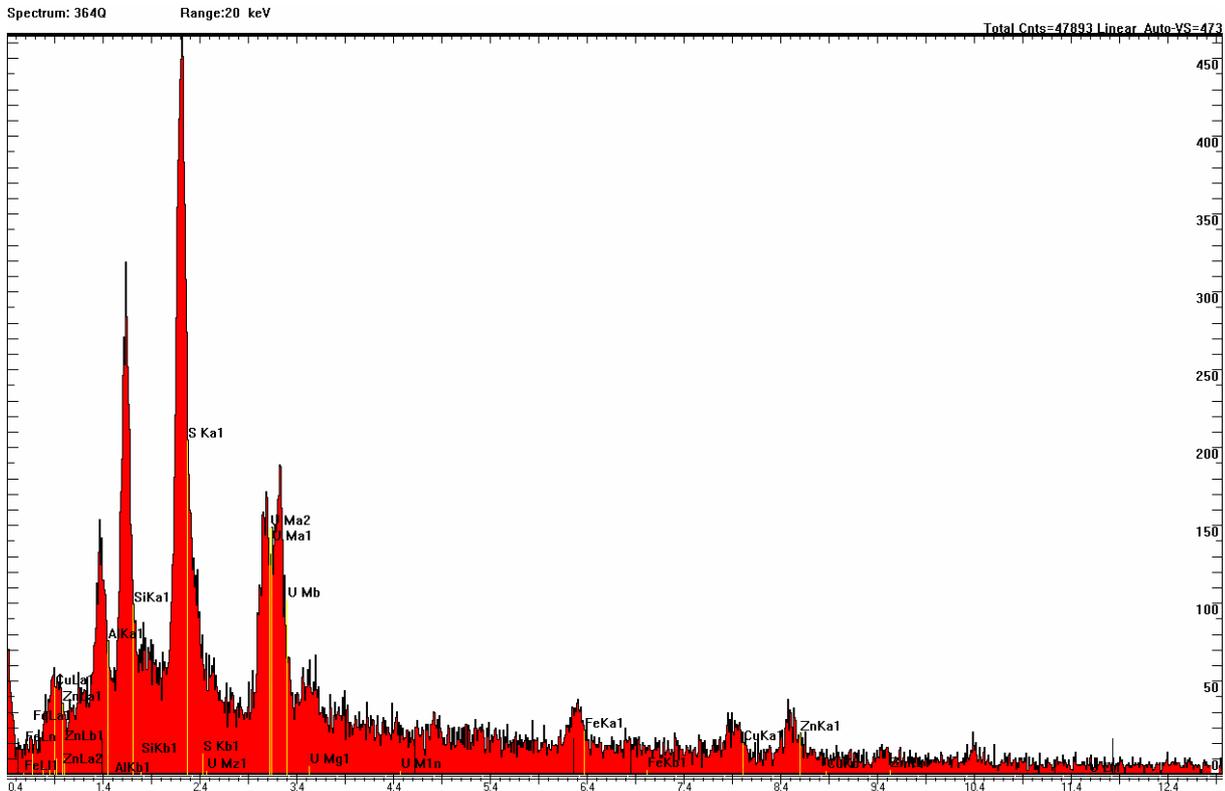
## Theisenschlamm



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Theisenschlamm-Probe 364 (Markierung o). Das in der Bildmitte der REM-Aufnahme erkennbare Kohlenstoff-Partikel (dunkelgrau) enthält hier wieder Uran als Heißes Teilchen. Im Spektrum ist der Uranpeak deutlich entwickelt, ebenso die für die kohligen Partikel charakteristische Erhöhung des Untergrundes in den niedrigen Energiebereichen.

## Tafel 26

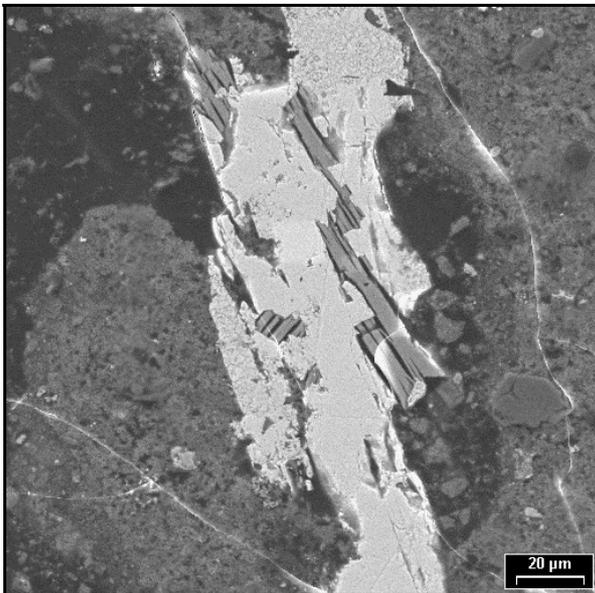
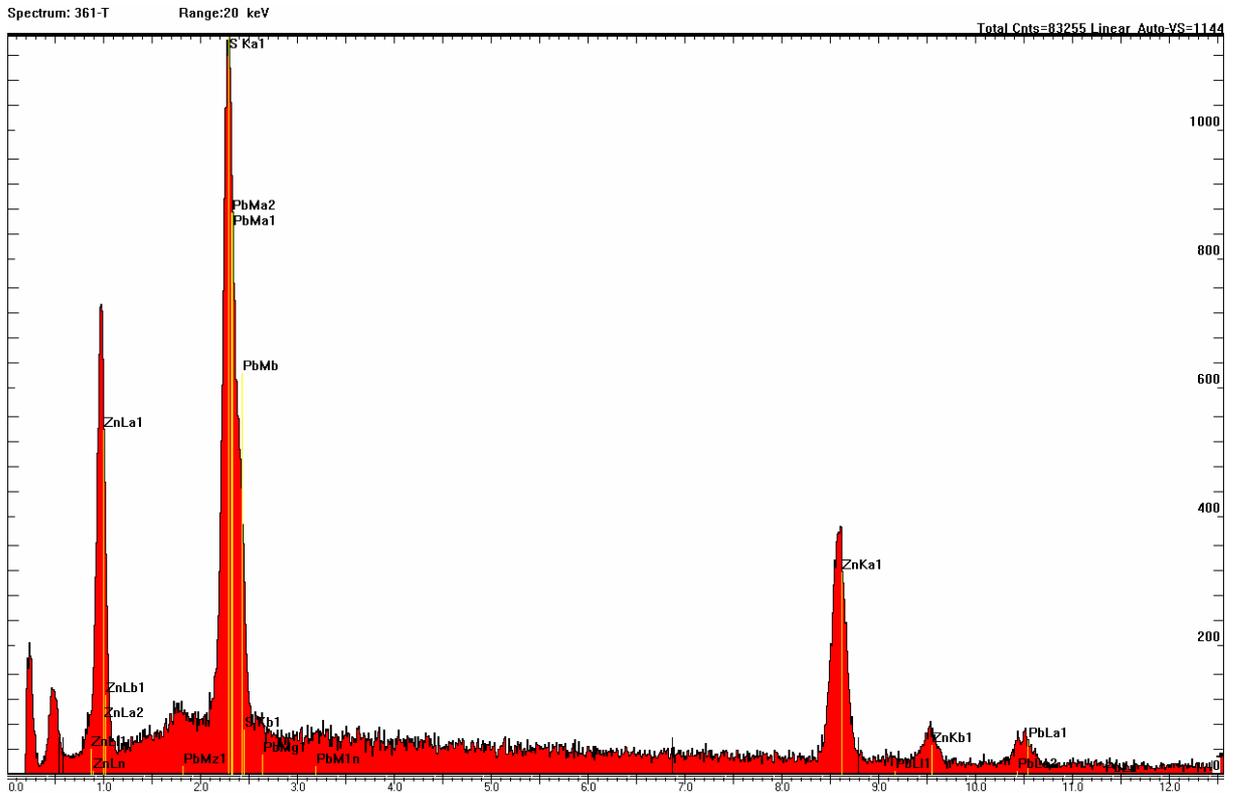
### Theisenschlamm



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Theisenschlamm-Probe 364 (Markierung q). Ein Kohlenstoff-Partikel (dunkelgrau, Bildmitte der REM-Aufnahme, schwarzer Pfeil) enthält Uran (rote Pfeilspitze). Die Heiße Teilchen-Spur ist zwar kräftig, aber nicht sehr charakteristisch ausgebildet. Wahrscheinlich ist Uran hier nicht punktförmig in einem Partikel konzentriert, sondern über einen größeren Bereich, der von der roten Pfeilspitze markiert wird, verteilt.

## Tafel 27

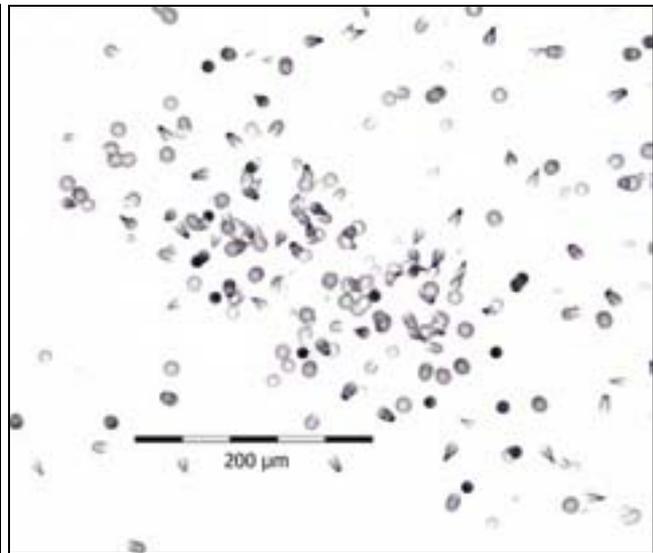
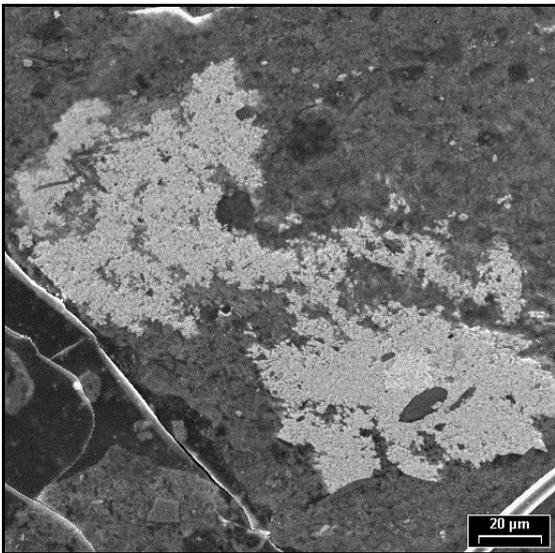
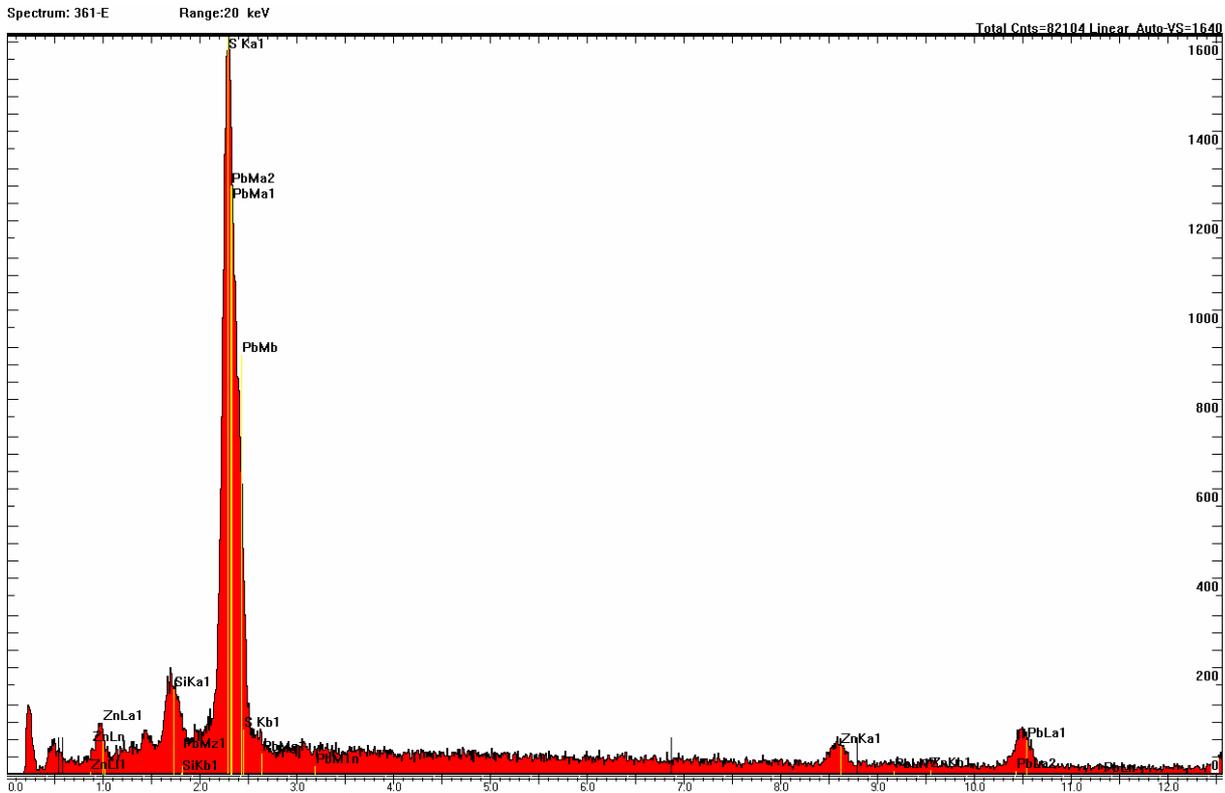
### Theisenschlamm — Cluster



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Clusters der Theisenschlamm-Probe 361 (Markierung t). Es handelt sich bei dem Korn in der Bildmitte um eine Verwachsung von gediegenem Pb (weiß) mit ZnS (grau). Gediegen Pb, ohne Beimischungen von S, wird in den Theisenschlamm-Proben immer von Cluster-Spurmustern nachgezeichnet. Diese Cluster-Spurmuster zeichnen meist die Form des Pb-Partikels nach.

## Tafel 28

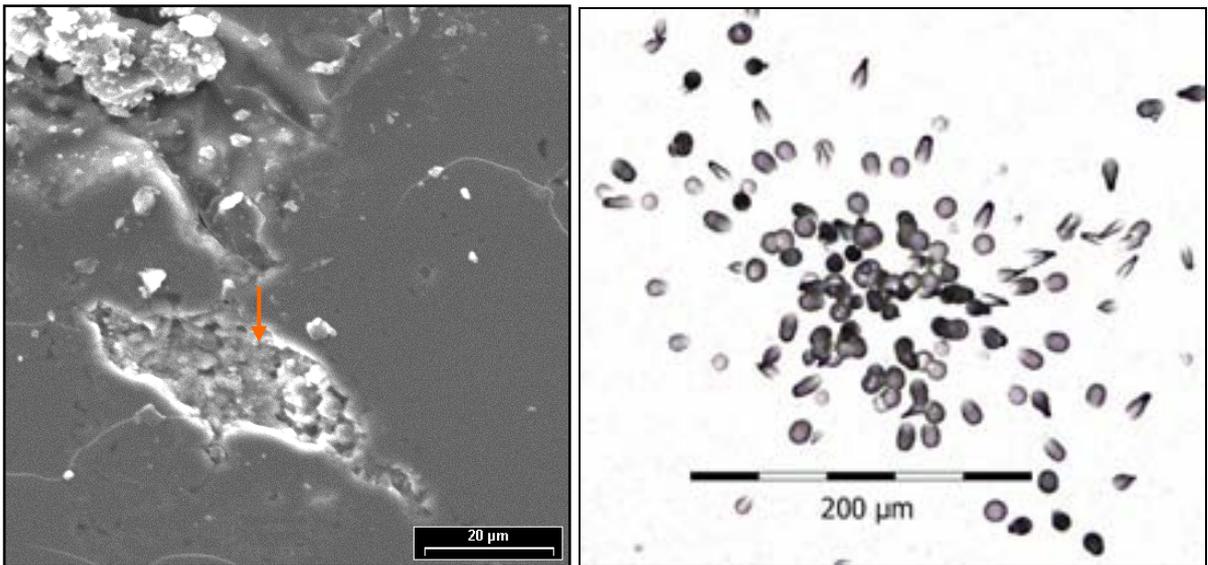
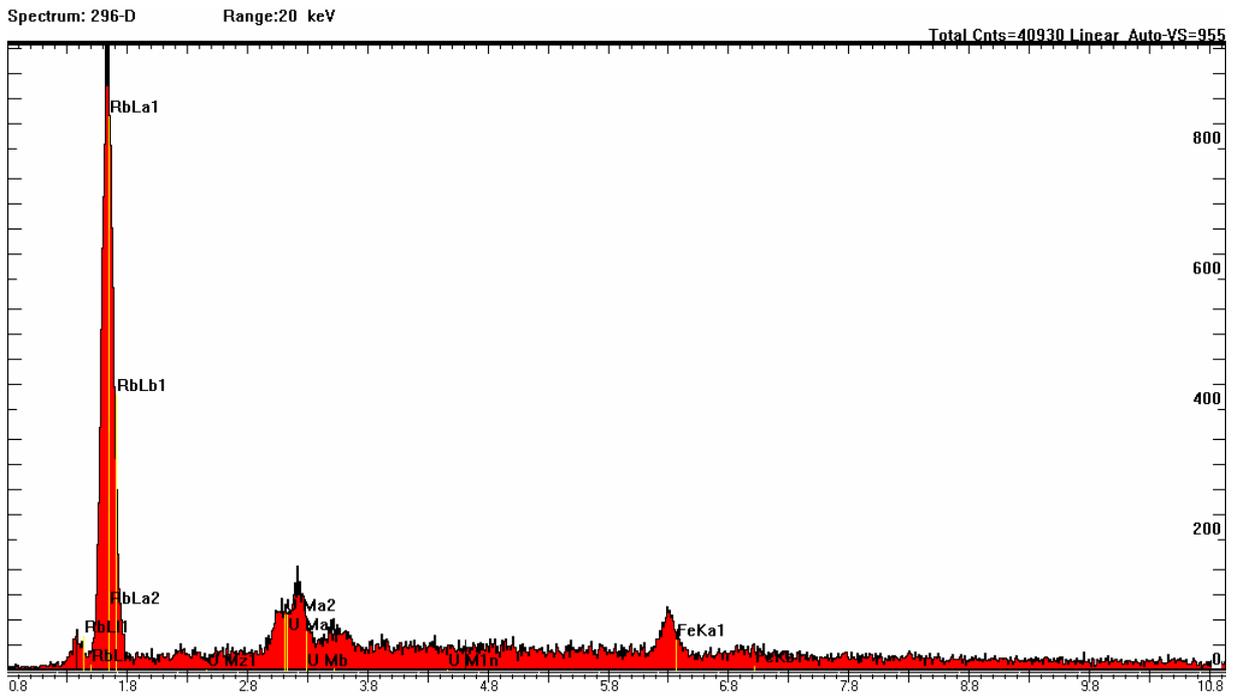
### Theisenschlamm — Cluster



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Clusters der Theisenschlamm-Probe 361 (Markierung e). Die REM-Aufnahme zeigt ein Partikel aus gediegen Pb (weißgrau), über dem auf dem Detektor Spuren (Clusterspurmuster) erzeugt wurden.

# Tafel 29

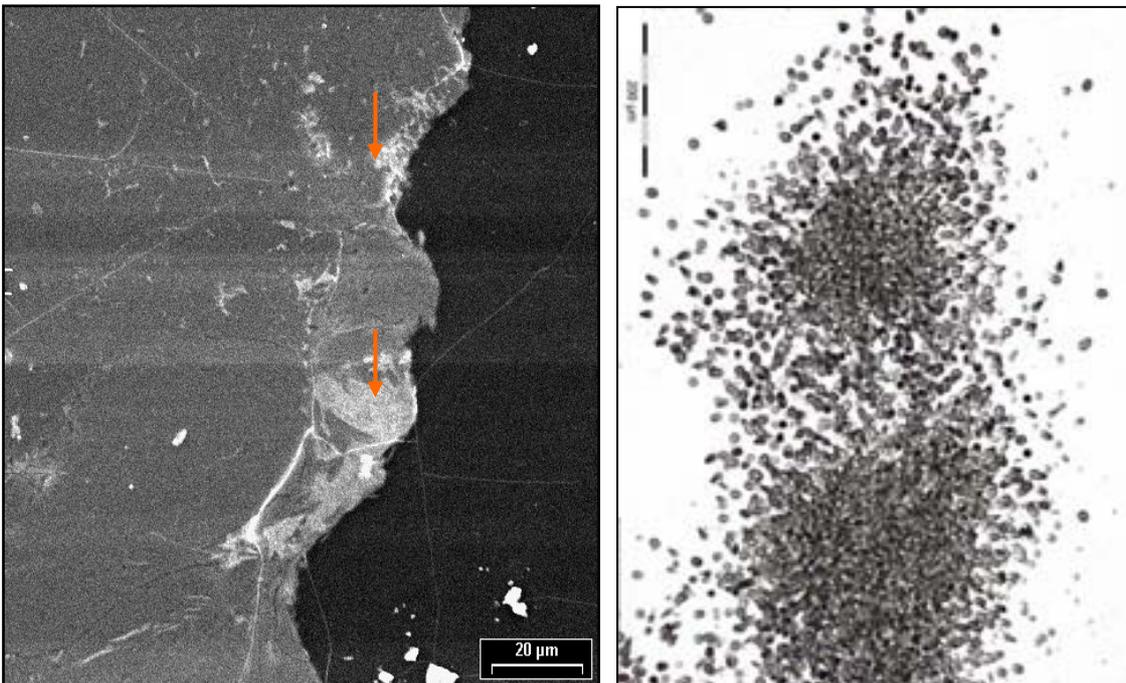
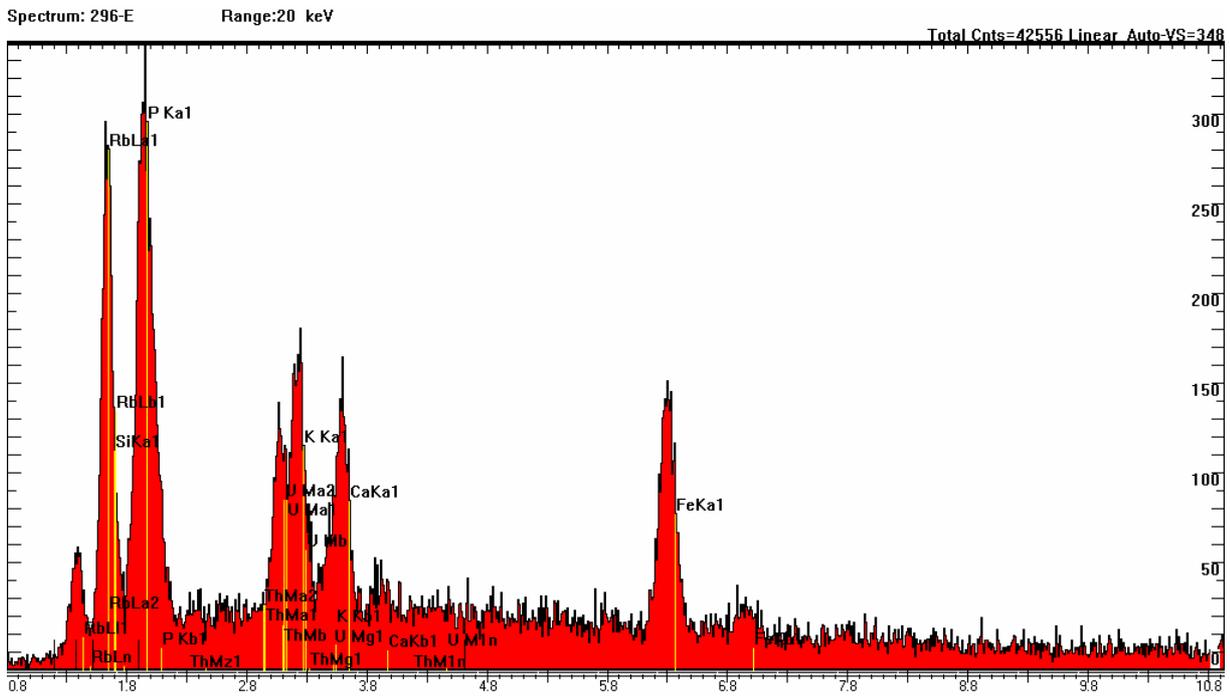
## Lengenfeld



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens aus dem Haldenmaterial von Lengsfeld (296 d). Es handelt sich hier um ein ca.  $17 \times 43 \mu\text{m}$  großes Loch in einem größeren Korn (Bildmitte, Pfeil) mit Uran.

# Tafel 30

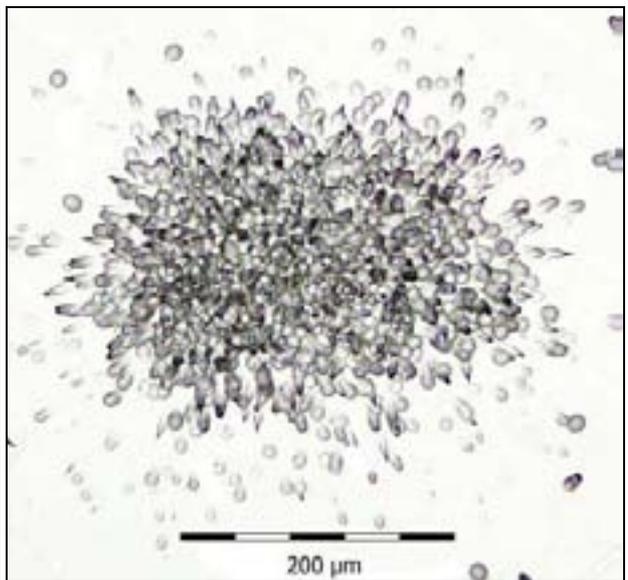
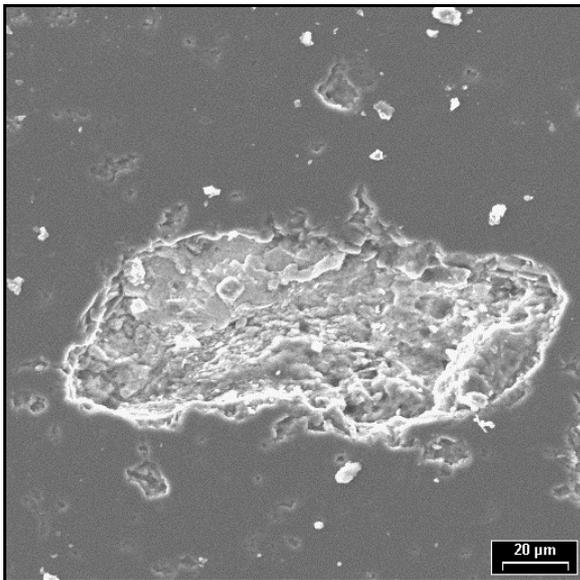
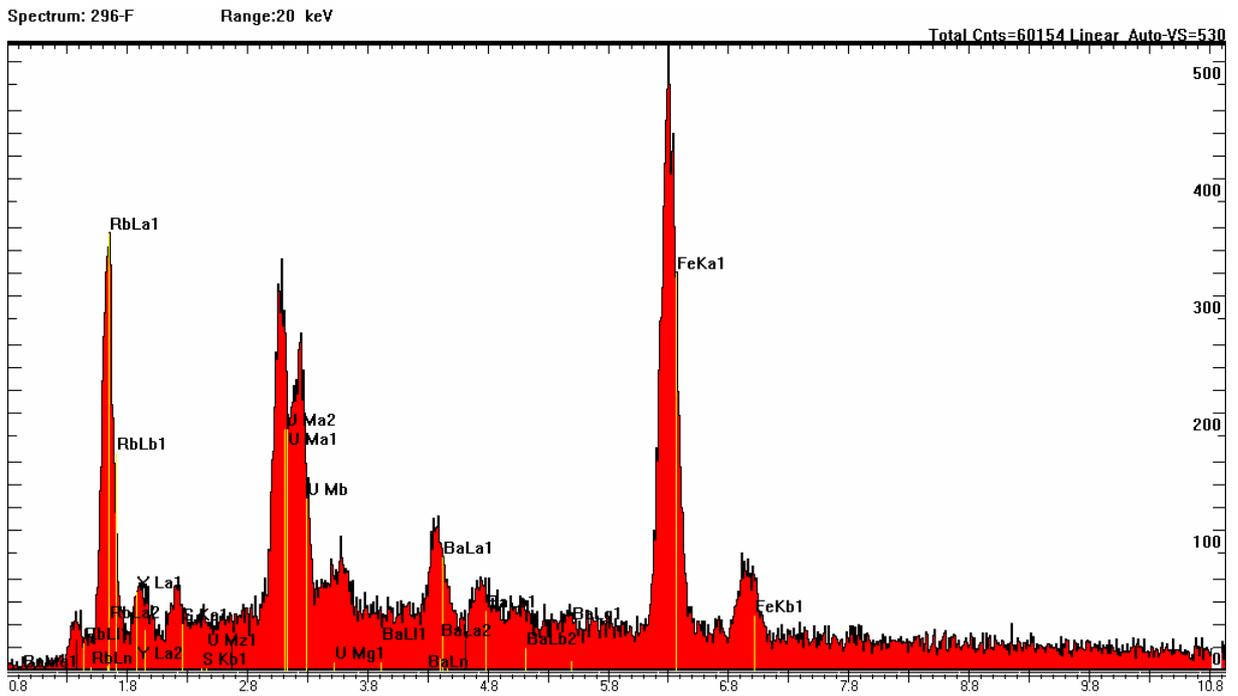
## Lengenfeld



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens aus dem Haldenmaterial von Lengenfeld (296 e). Es handelt sich hier um ca.  $5 \times 7 \mu\text{m}$  und  $10 \times 19 \mu\text{m}$  große helle Partien (Pfeilspitzen) mit Uran in einem größeren Korn.

# Tafel 31

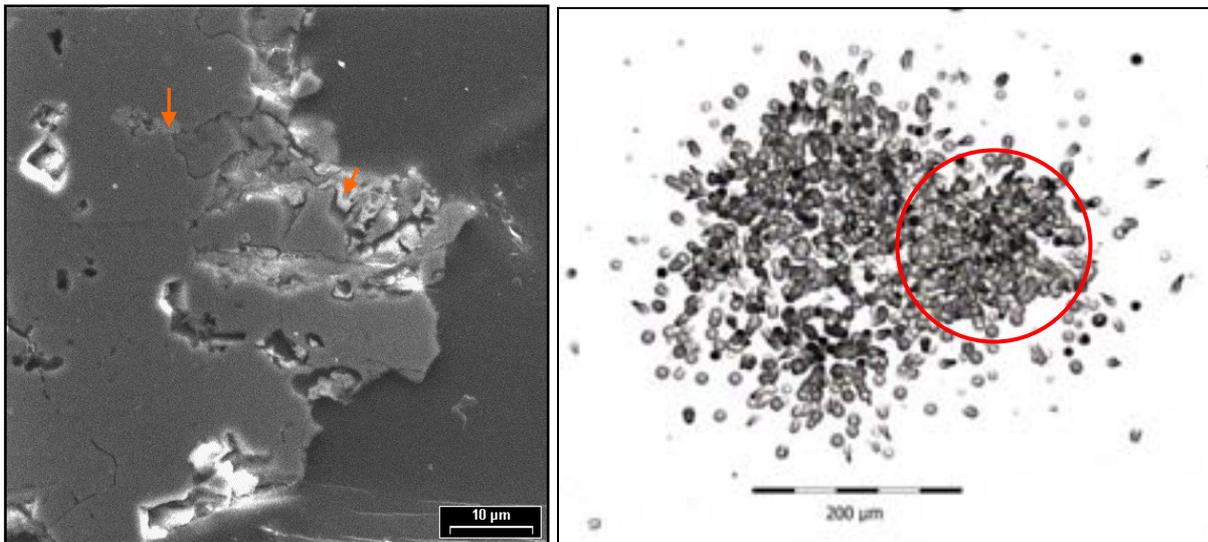
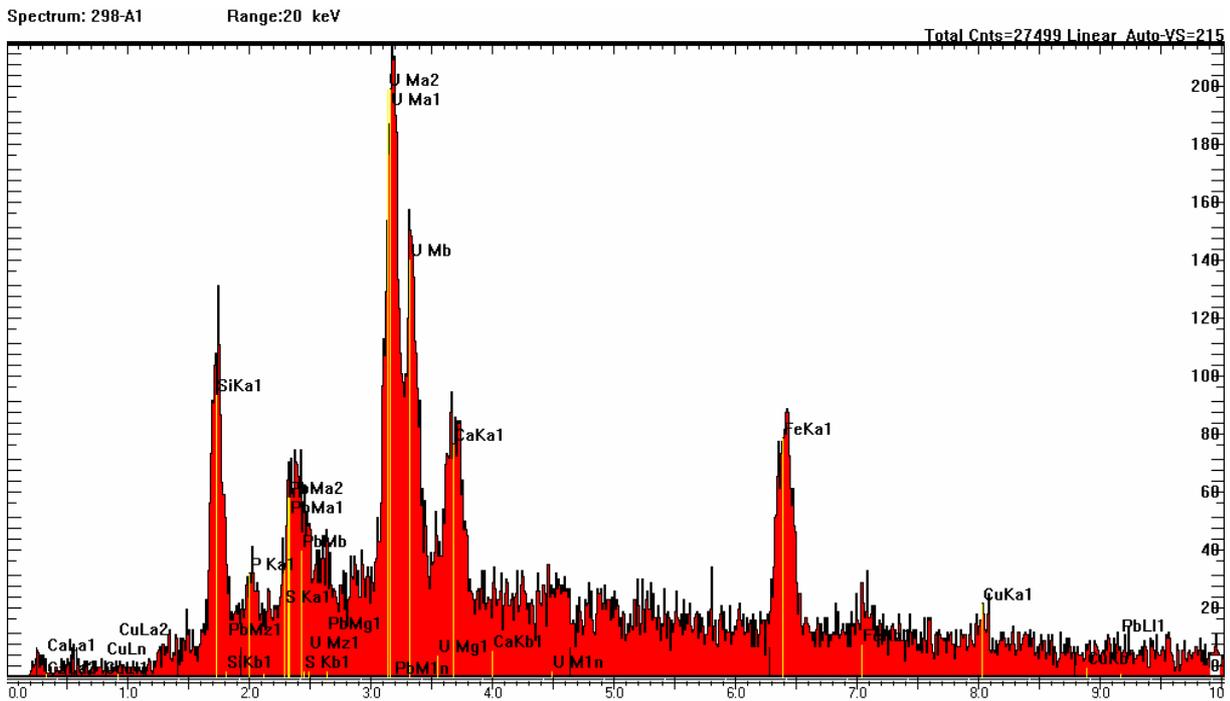
## Lengenfeld



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens aus dem Haldenmaterial von Lengenfeld (296 f). Es handelt sich hier um ein ca.  $52 \times 139 \mu\text{m}$  großes Loch in einem größeren Korn (Bildmitte) mit Uran.

## Tafel 32

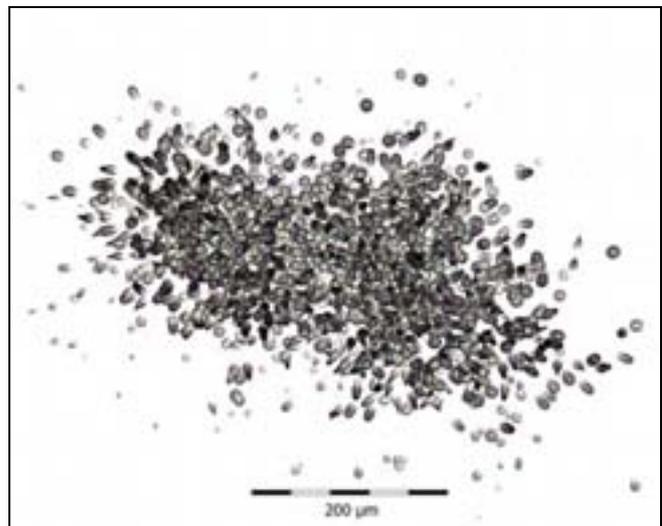
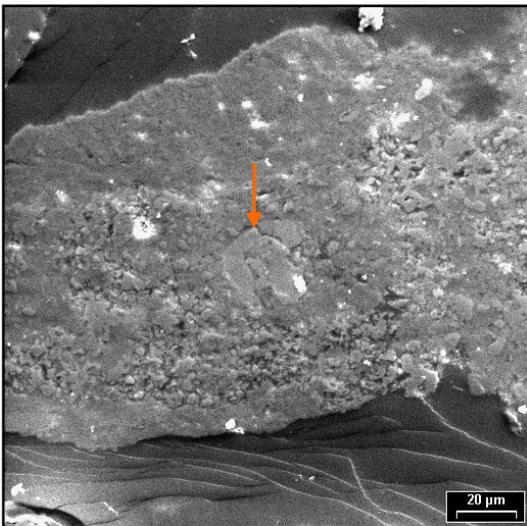
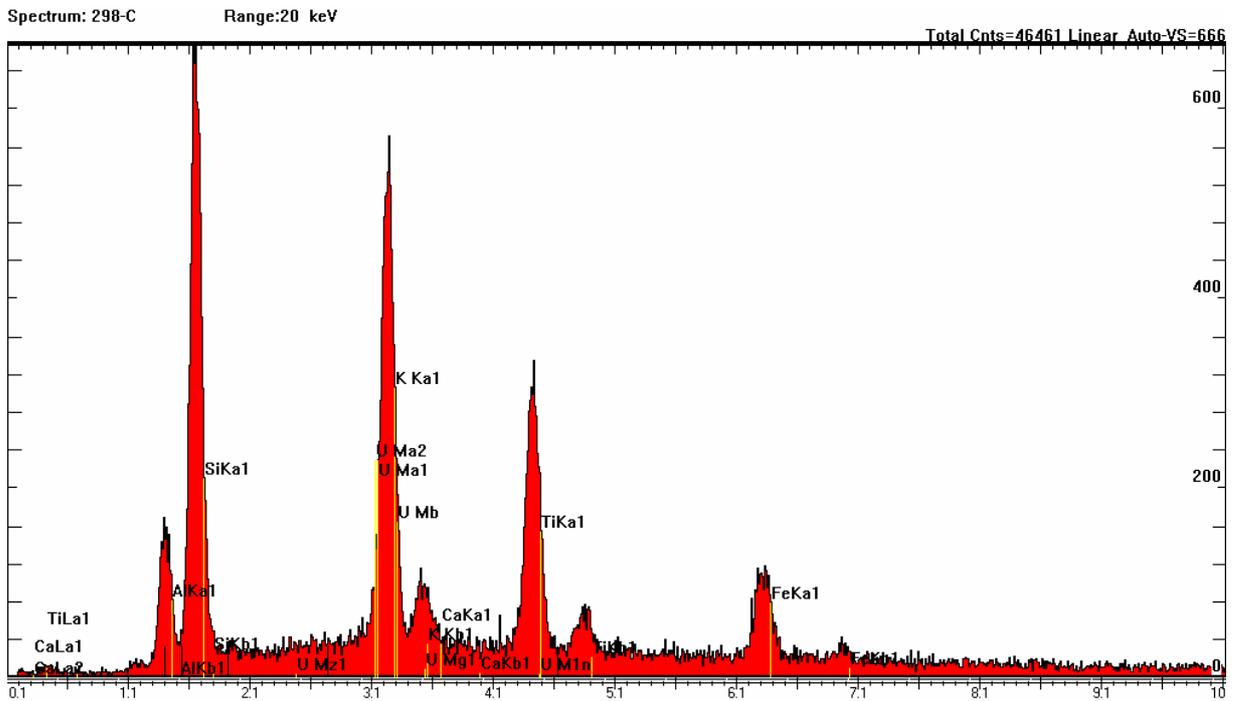
### Lengenfeld



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild (roter Kreis in Autoradiogramm) eines Heißen Teilchens aus dem Haldenmaterial von Lengsfeld (298 a). Es handelt sich hier um ein Quarzkörnchen mit Cu, Fe, S (weiße Flecken) sowie mit Uran (helle Flecken, Pfeilspitze, zwischen 1 und 5 µm groß). Auf dem Autoradiogramm sind neben der Heiße Teilchen-Spur (innerhalb des roten Kreises) noch zahlreiche weitere Spuren entwickelt. Dabei handelt es sich überwiegend um Cluster-Spurmuster. Offensichtlich enthält das Quarzkörnchen weitere alphaemittierende Radionuklide. Die Ätzspuren der Alphateilchen zeichnen die Form des Quarzkörnchens nach.

## Tafel 33

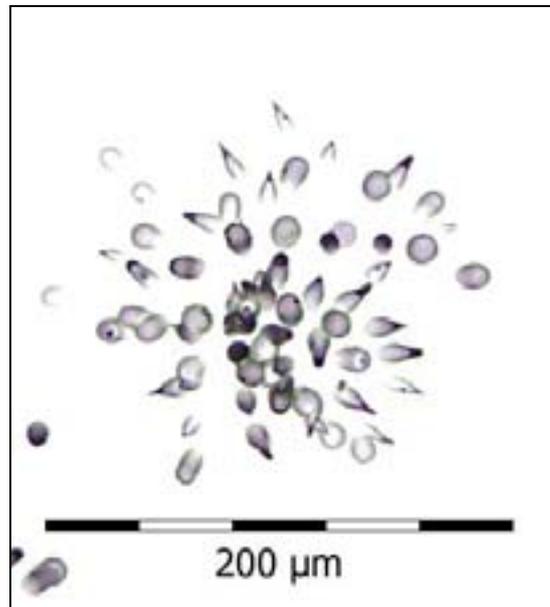
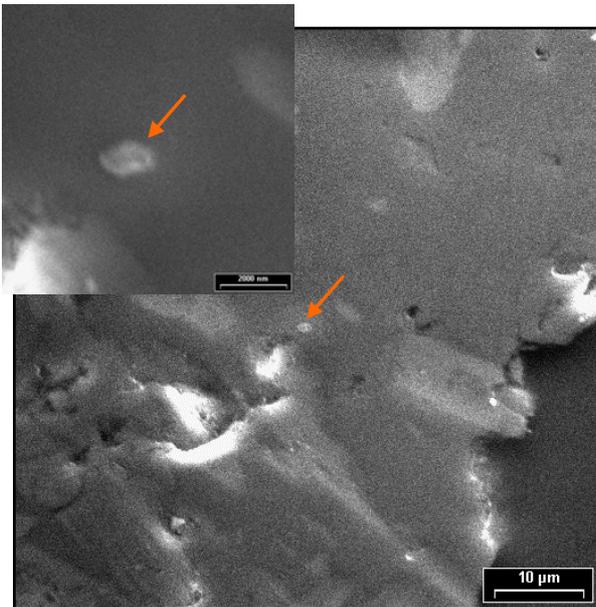
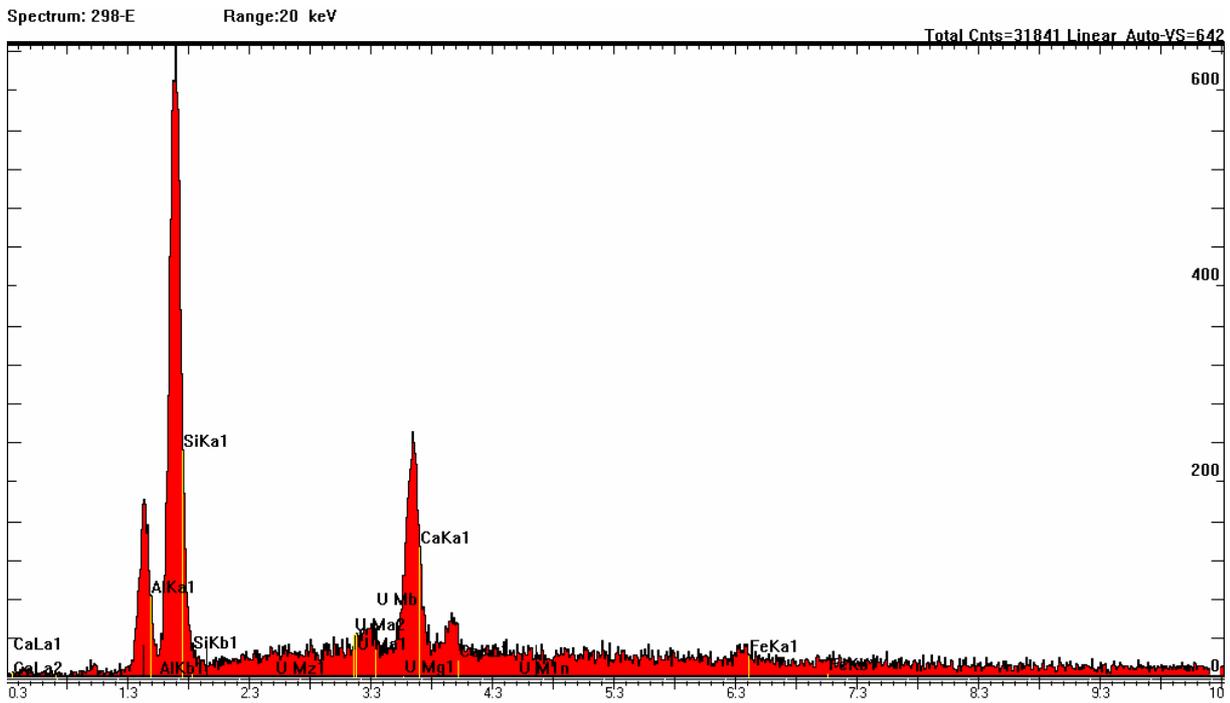
### Lengenfeld



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens aus dem Haldenmaterial von Lengenfeld (298 c). Es handelt sich hier um ein Silikatkorn mit mehreren hellen Flecken (z.B. Pfeilspitze), die U, Ti und Ca (=??Brannerit) enthalten. Die räumliche Verteilung von Uran in dem Silikatkorn resultiert in einer großen, etwas diffusen Heiße Teilchen-Spur.

# Tafel 34

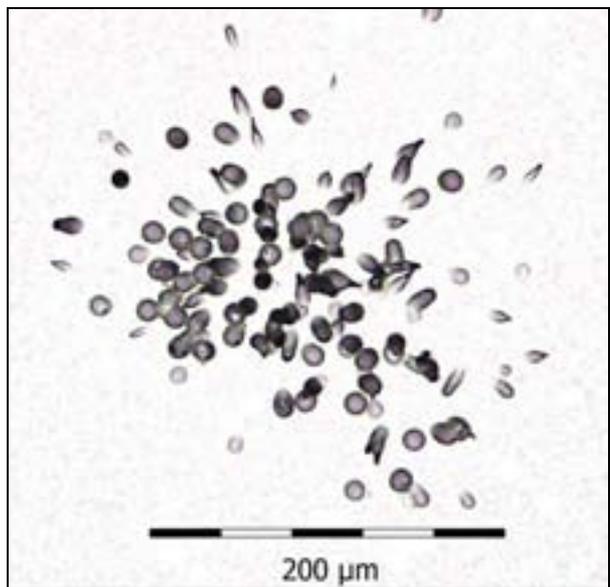
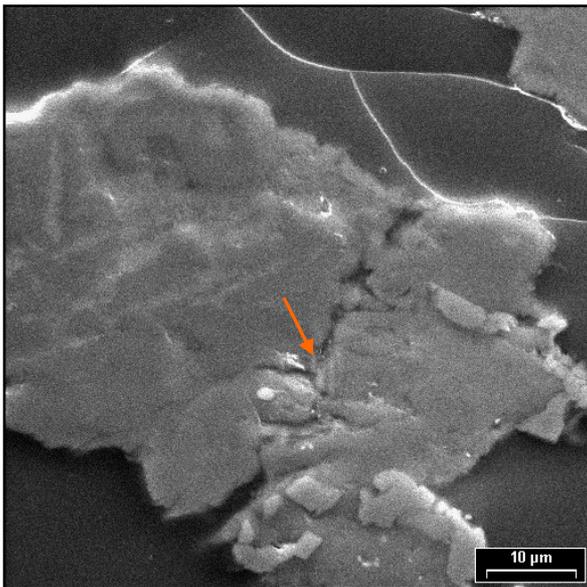
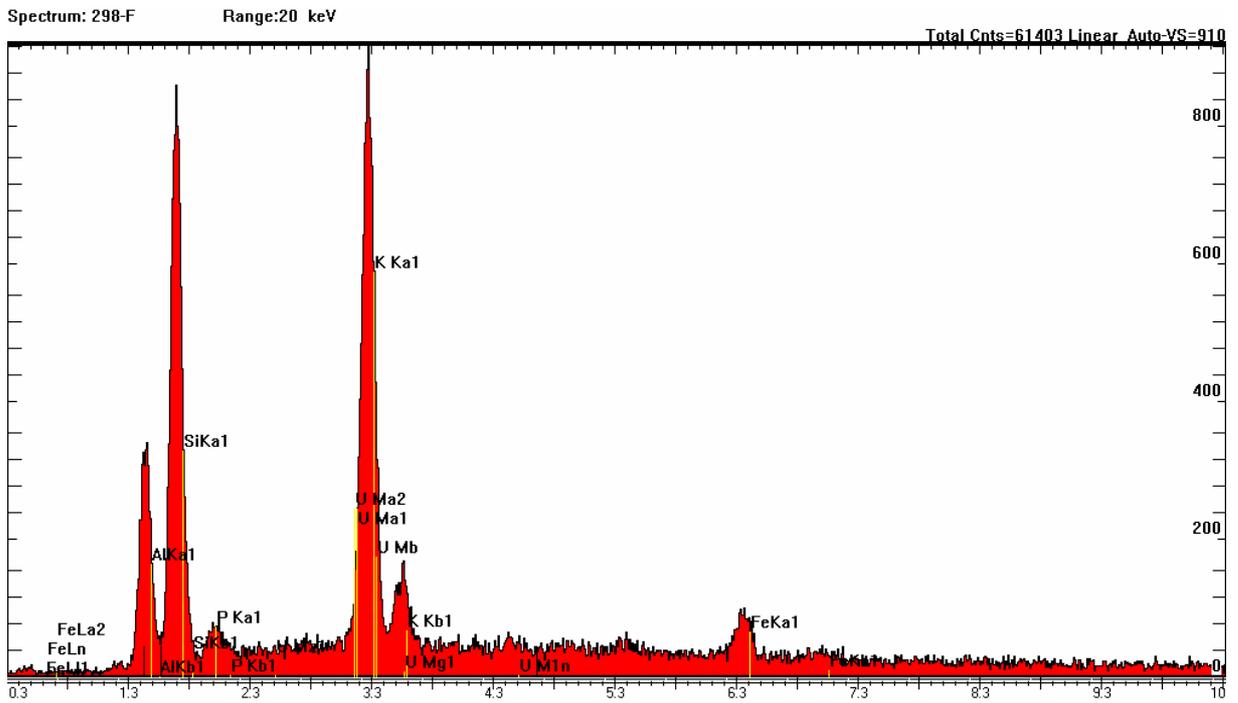
## Lengenfeld



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens aus dem Haldenmaterial von Lengfeld (298 e). Es handelt sich hier um ein  $<2 \mu\text{m}$  großes Uranpartikelchen (Pfeil). Der Maßstab des kleinen REM-Bildes ist 2000 nm.

# Tafel 35

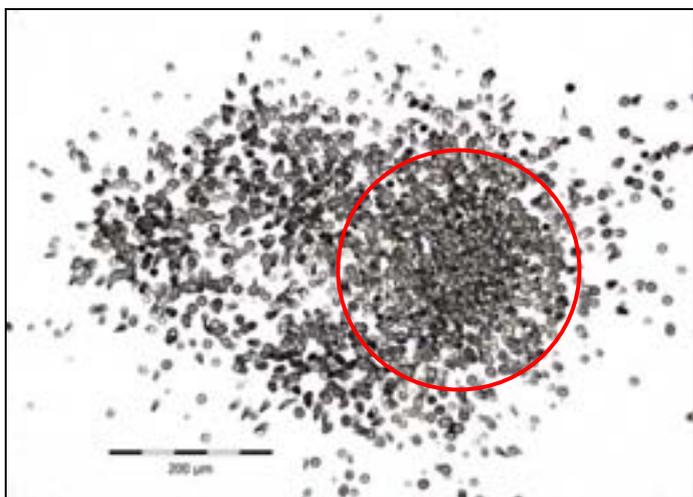
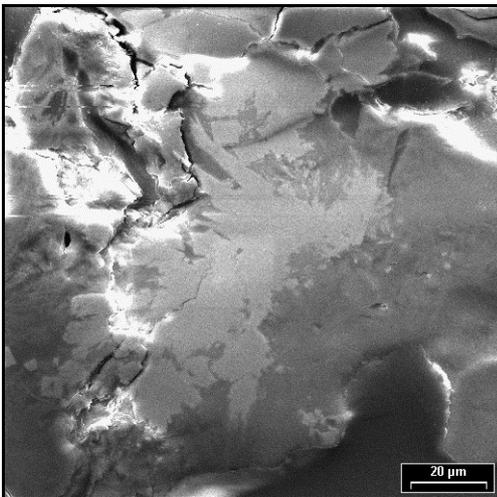
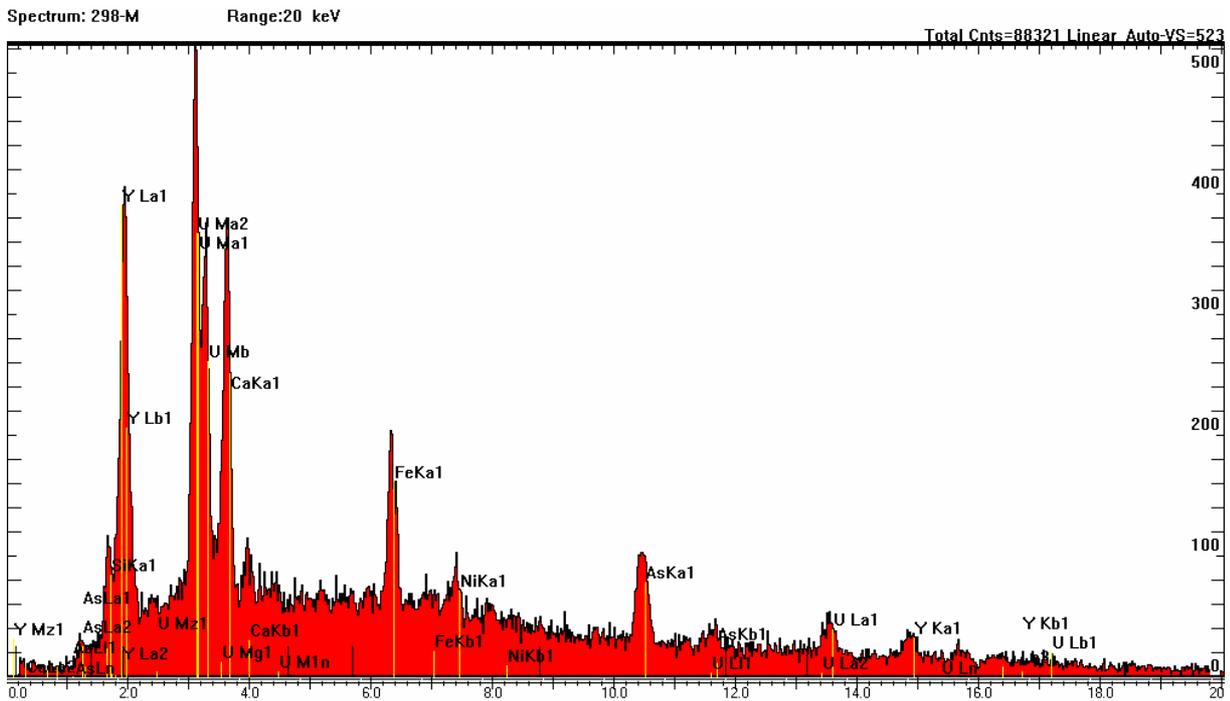
## Lengenfeld



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens aus dem Haldenmaterial von Lengelfeld (298 f). Es handelt sich hier um einen <5 µm großen Bereich (Pfeil) mit Uran in einem Silikat Korn.

# Tafel 36

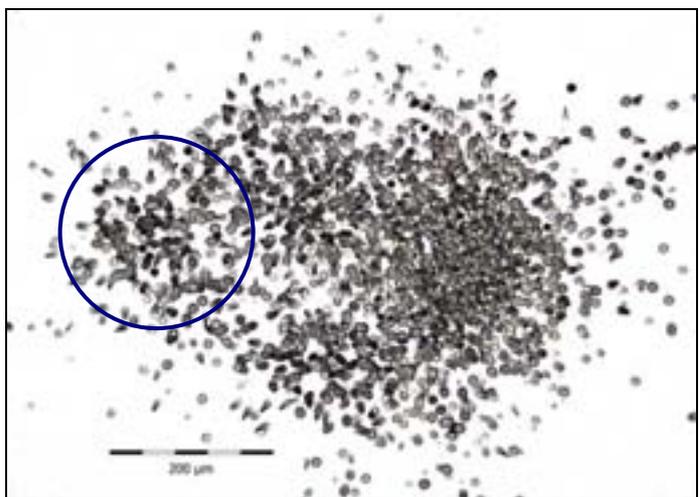
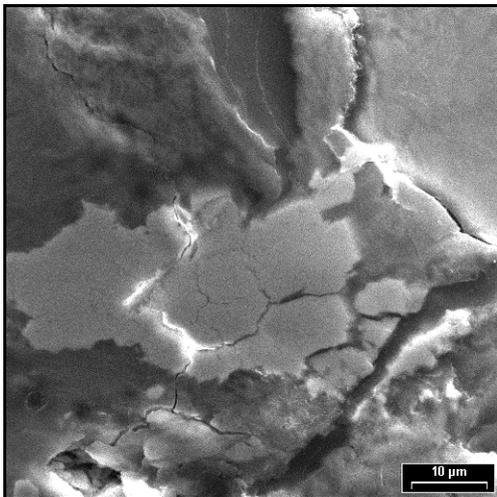
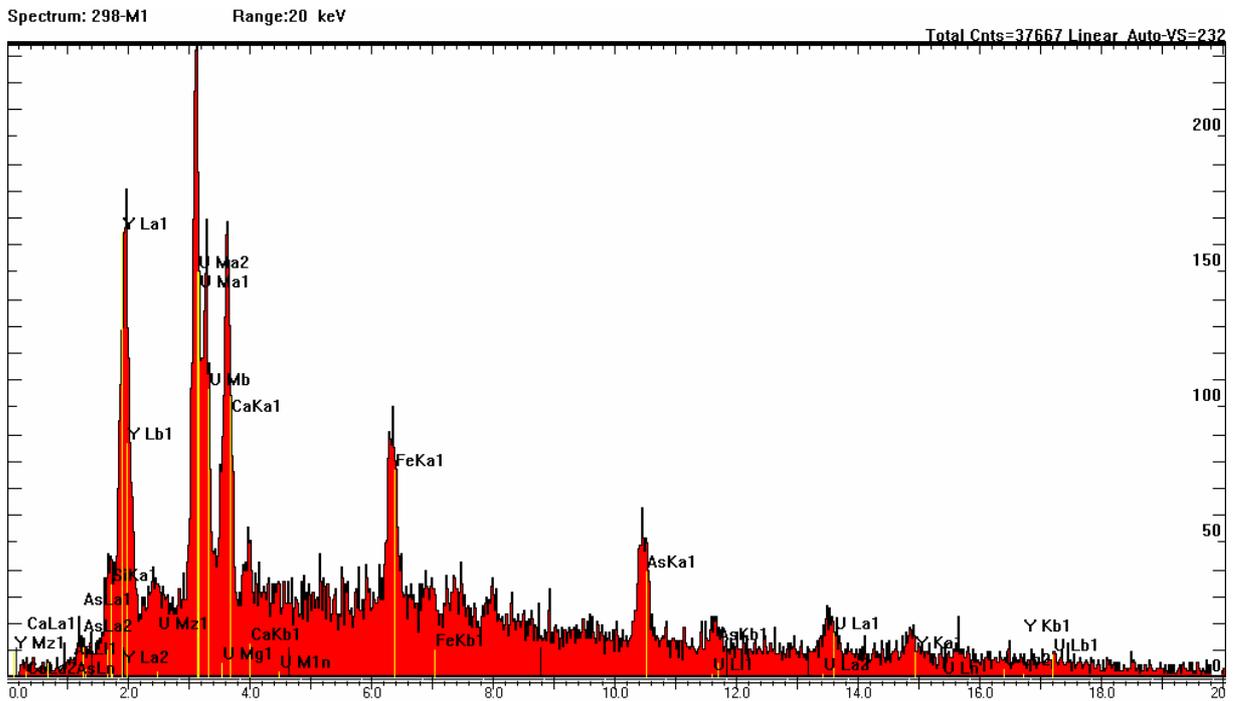
## Lengenfeld



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens aus dem Haldenmaterial von Lengenfeld (298 m). Es handelt sich hier um ein Körnchen mit Ni, As, Fe, Ca und Y, das Uraninit enthält. Die REM-Aufnahme zeigt den rechten Teil des detektierten Körnchens. Die hellen Bereiche im Korn (Bildmitte, ca. 22×44 µm groß) bestehen aus Uraninit. Die dazugehörige Heiße Teilchen-Spur ist durch den roten Kreis gekennzeichnet.

# Tafel 37

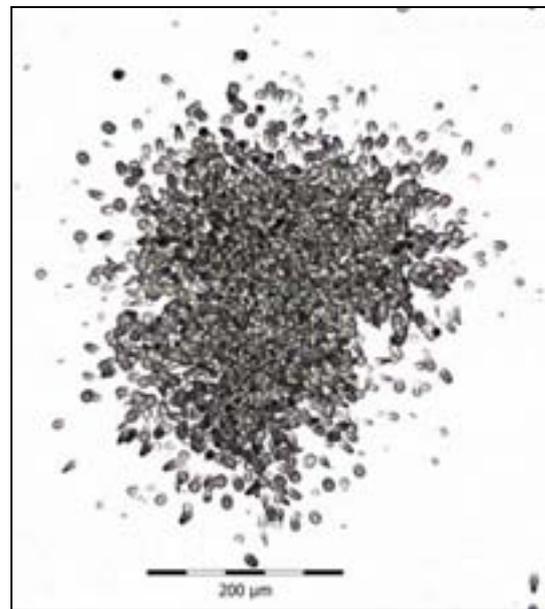
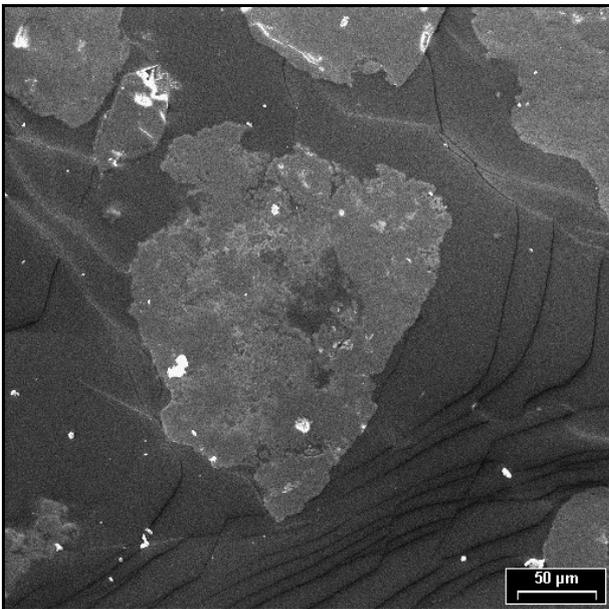
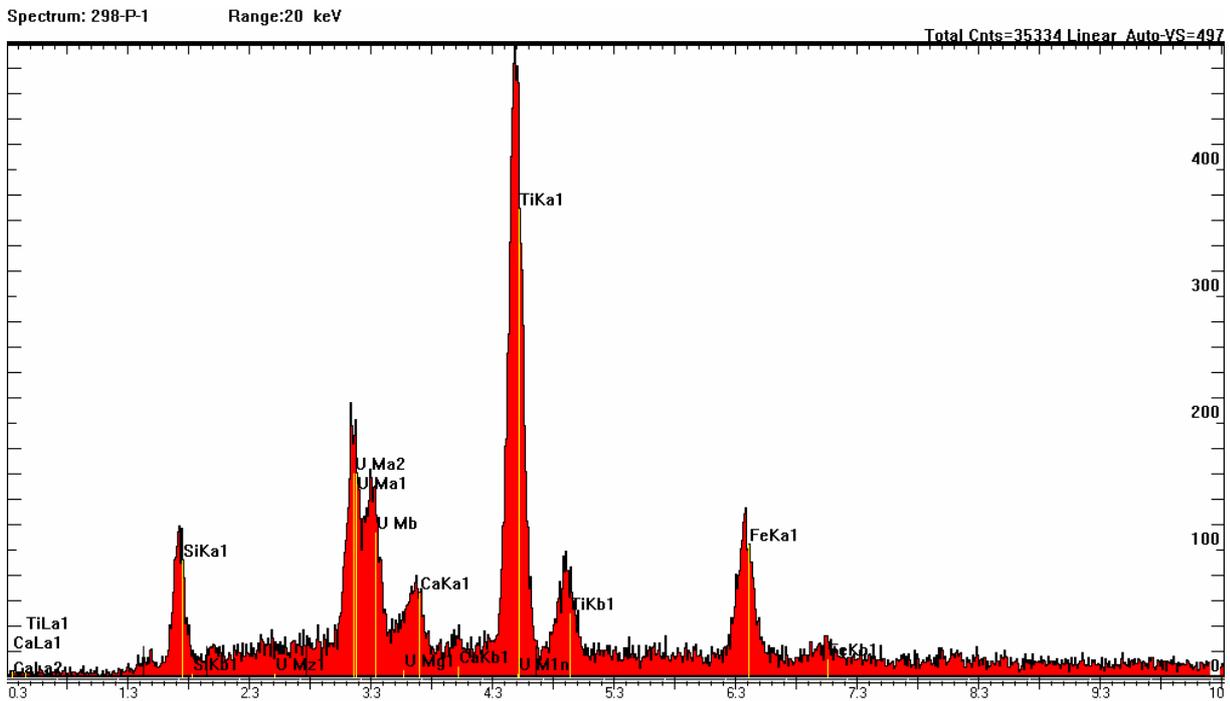
## Lengenfeld



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens aus dem Haldenmaterial von Lengenfeld (298 mm). Es handelt sich hier um ein Körnchen mit Ni, As, Fe, Ca und Y, das Uraninit enthält (vgl. auch vorhergehende Tafel). Die REM-Aufnahme zeigt den linken Teil des detektierten Körnchens. Die hellen Bereiche im Korn (Bildmitte) bestehen aus Uraninit. Die dazugehörige Heiße Teilchen-Spur ist durch den blauen Kreis gekennzeichnet.

# Tafel 38

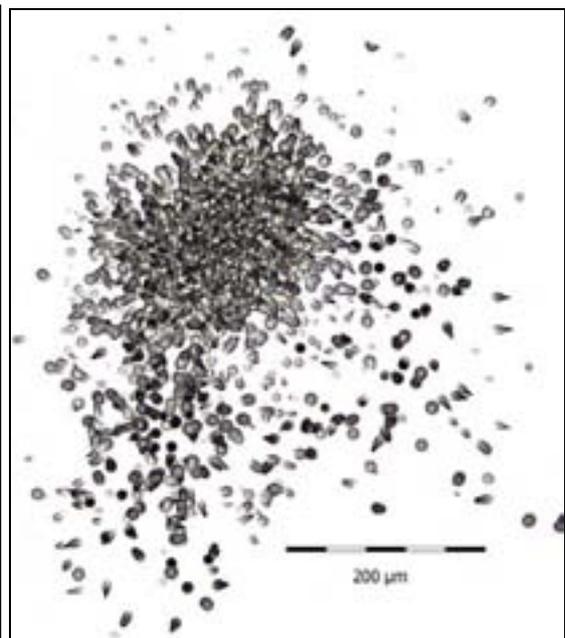
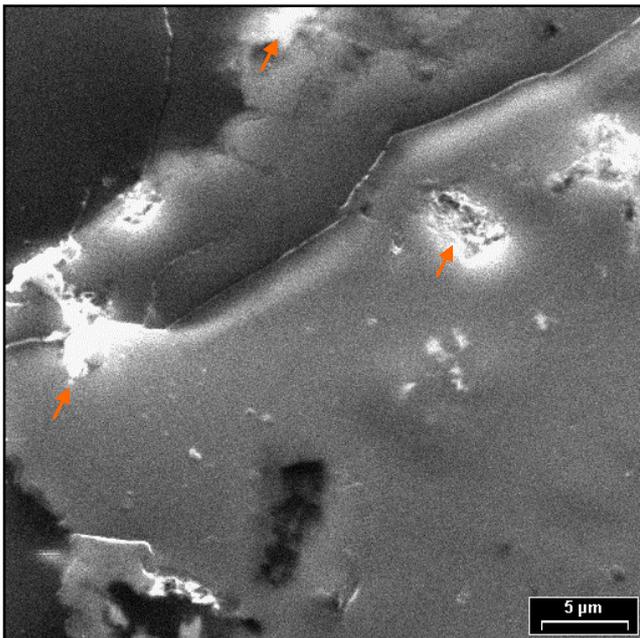
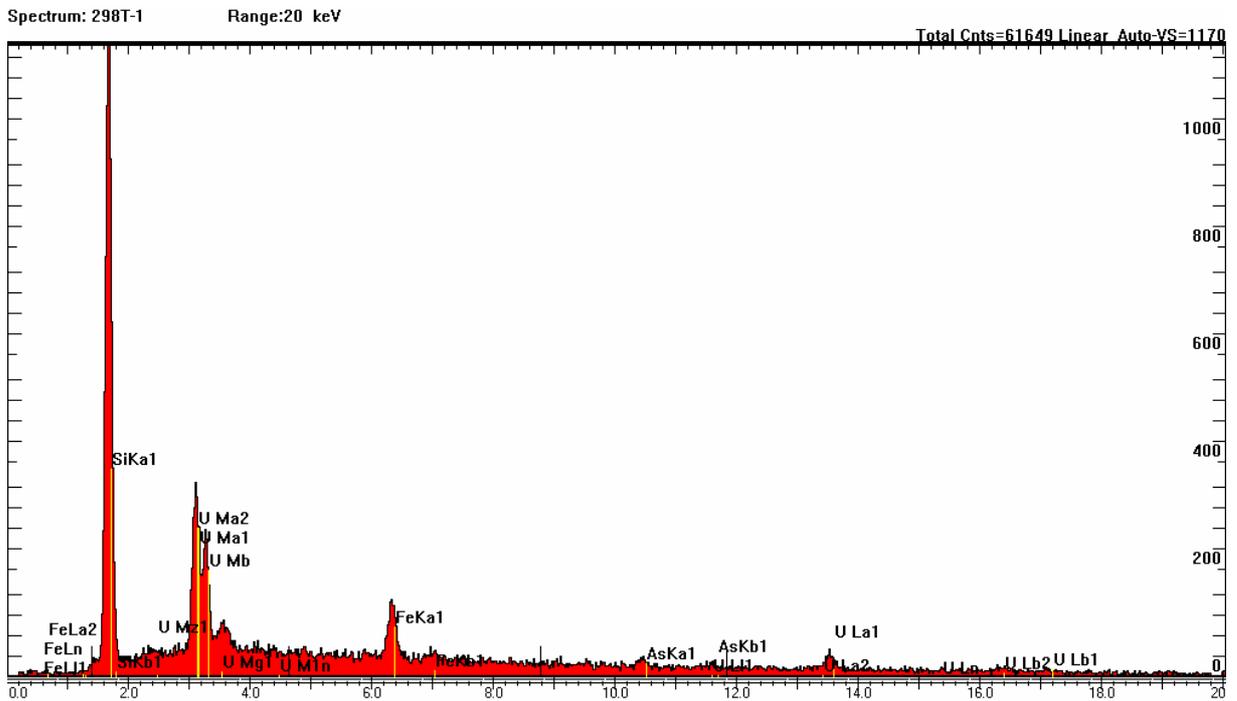
## Lengenfeld



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens aus dem Haldenmaterial von Lengenfeld (298 p). Es handelt sich hier um ein Quarzkorn (Bildmitte, mittelgraues Korn) mit As-, Ca- und Fe-Tröpfchen (weiße Punkte im Korn) sowie hellgrauen Schlieren aus U und Ti (??Brannerit).

# Tafel 39

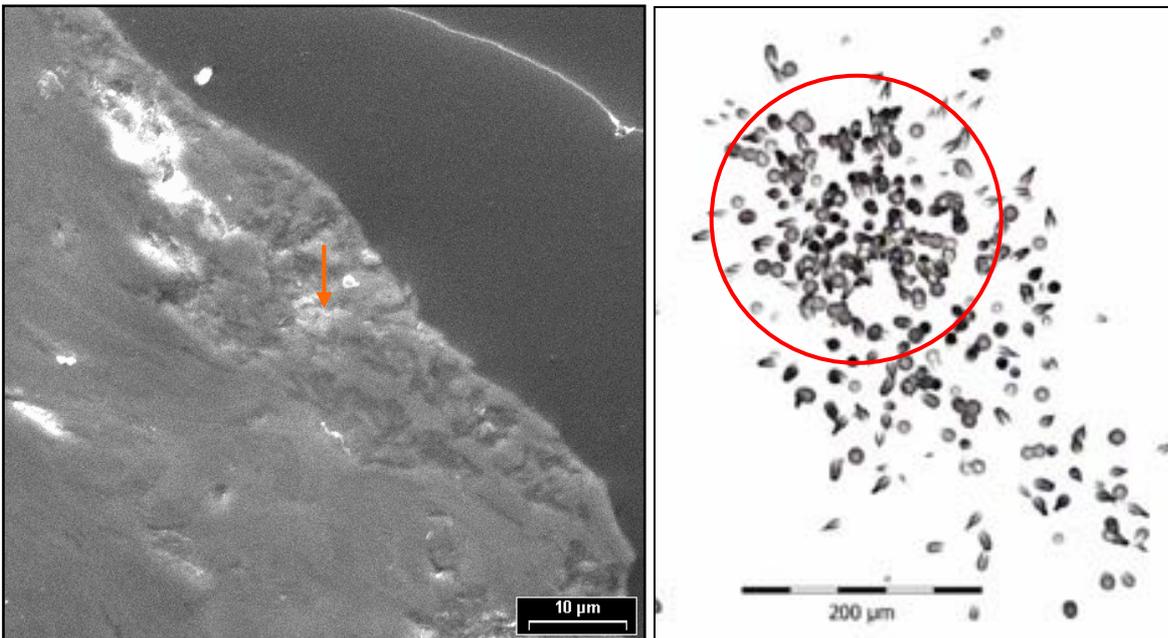
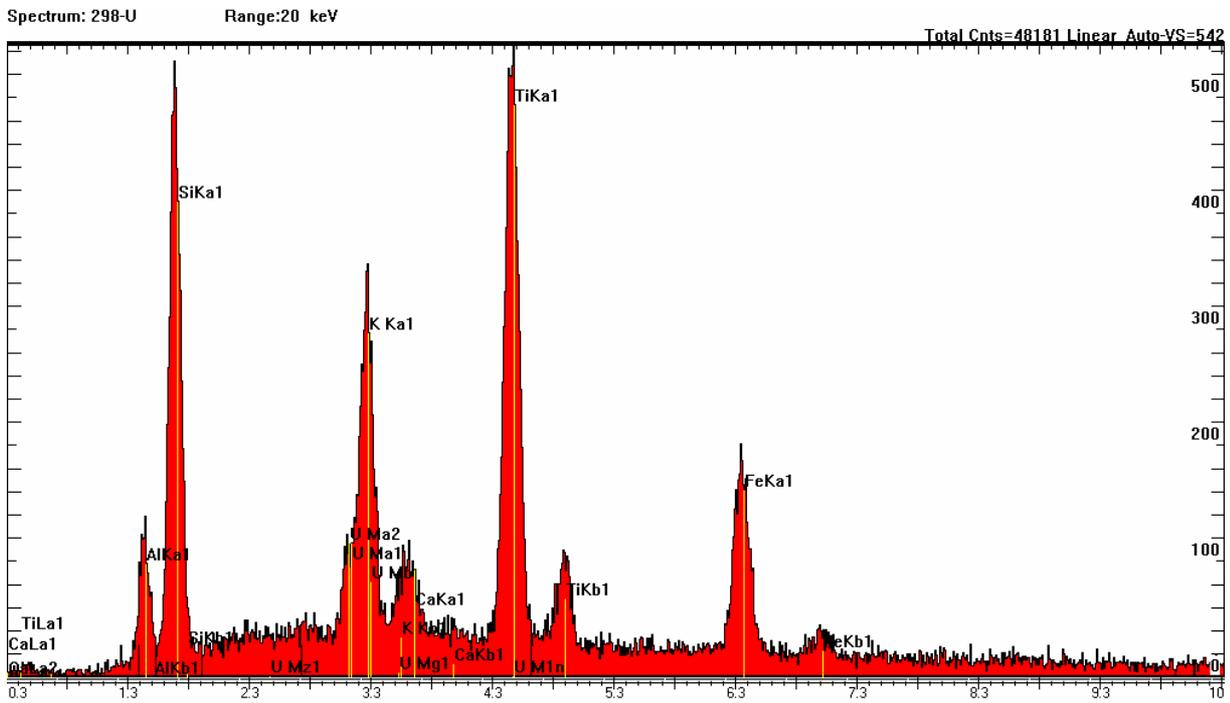
## Lengenfeld



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens aus dem Haldenmaterial von Lengenfeld (298 t). Ein Silikat Korn enthält hier wiederum Uran (Uraninit) als winzige, um 2 µm große Einschlüsse (weiße Punkte auf dem grauen Korn, an Pfeilspitze).

# Tafel 40

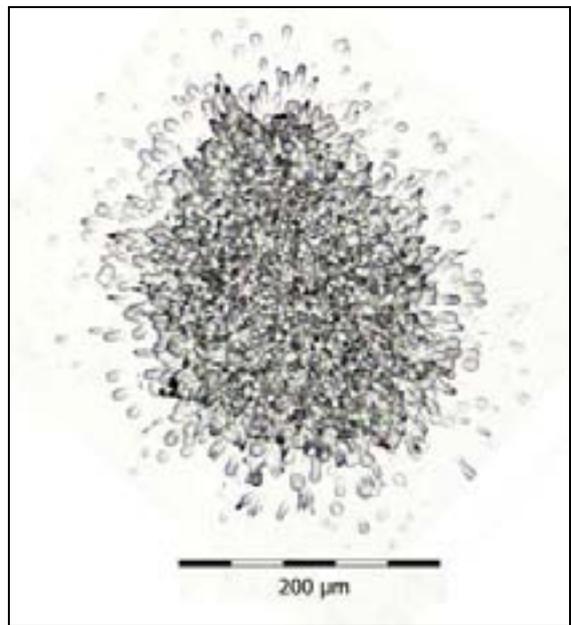
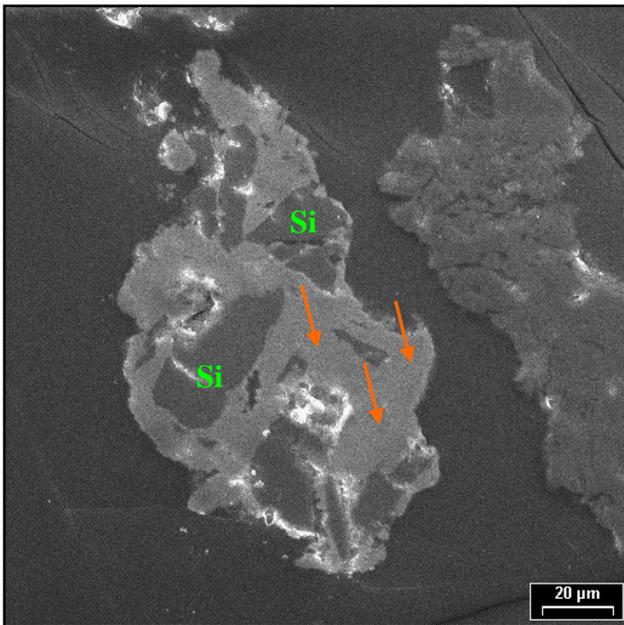
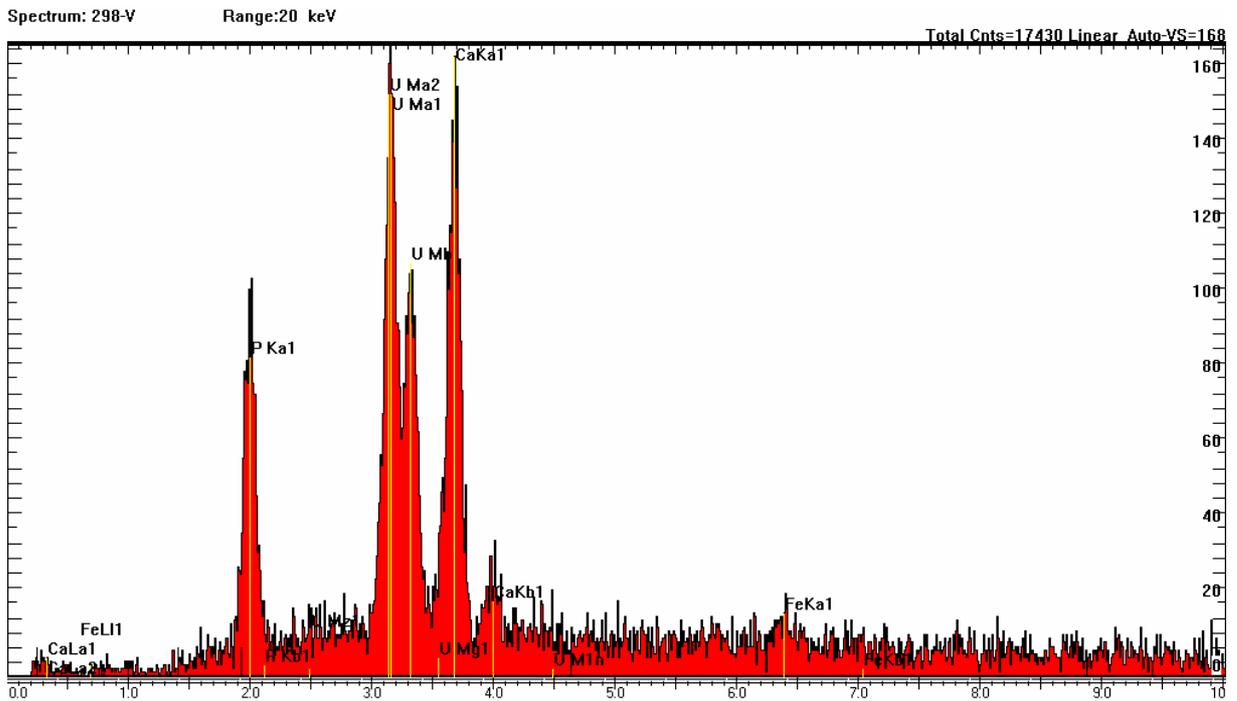
## Lengenfeld



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens aus dem Haldenmaterial von Lengelfeld (298 u). Ein ca. 5 μm große Bereiche am Rand eines Silikatkorns bestehen aus U, Ti, Ca. Wahrscheinlich handelt es sich hier um Brannerit.

# Tafel 41

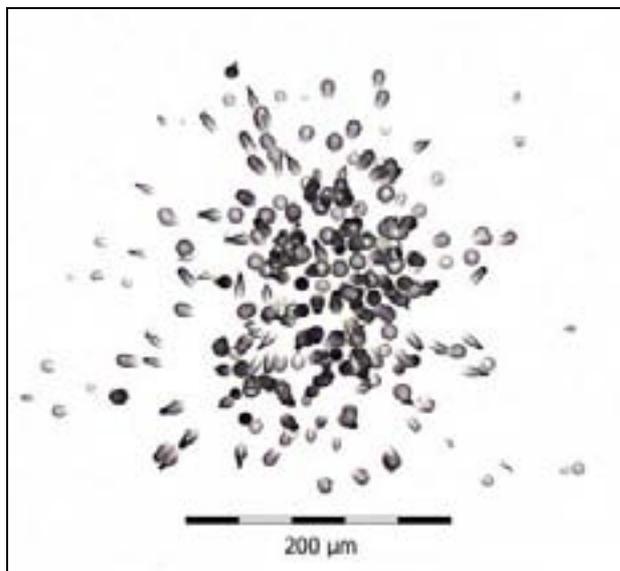
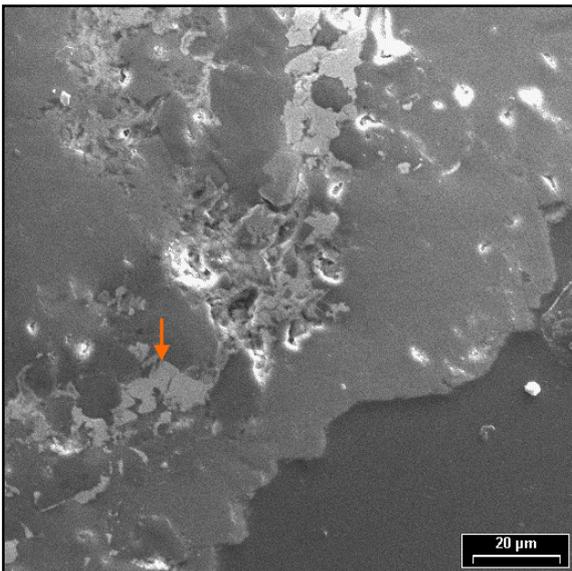
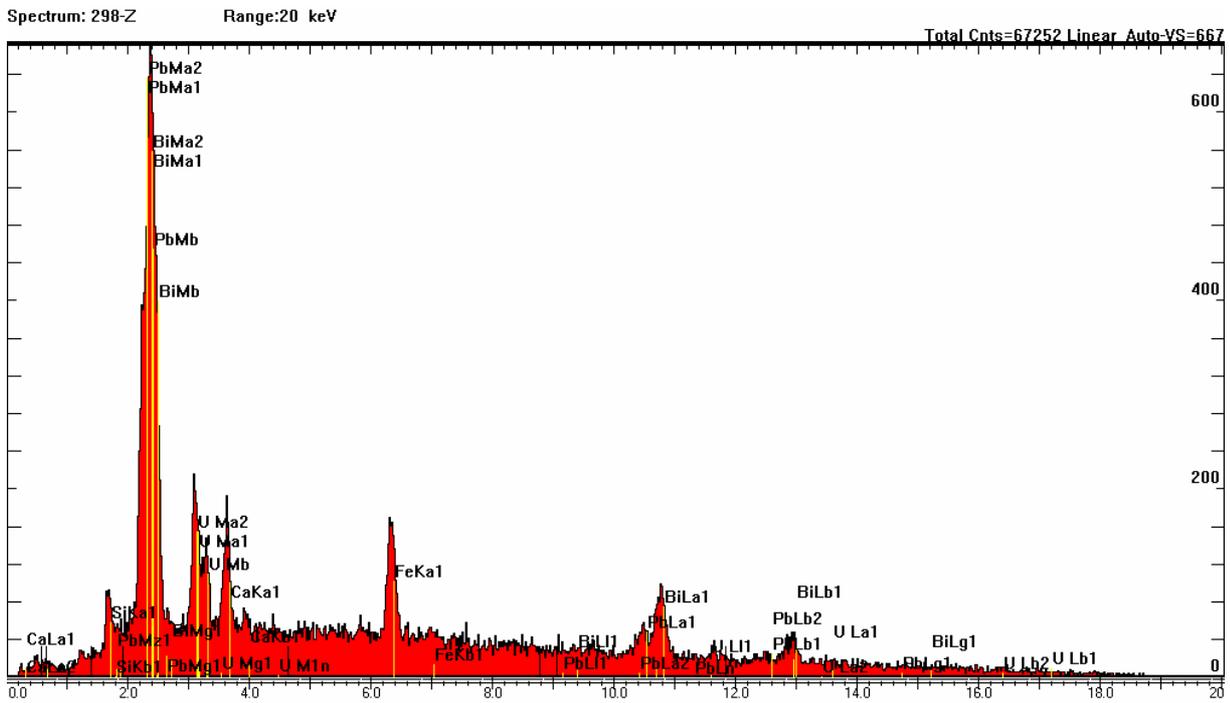
## Lengenfeld



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens aus dem Haldenmaterial von Lengenfeld (298 v). Es handelt sich hier um eine Verwachsung von  $\text{SiO}_2$  und ??Autunit (Kalkuranglimmer, hellgraue Bereiche/Pfeil).

# Tafel 42

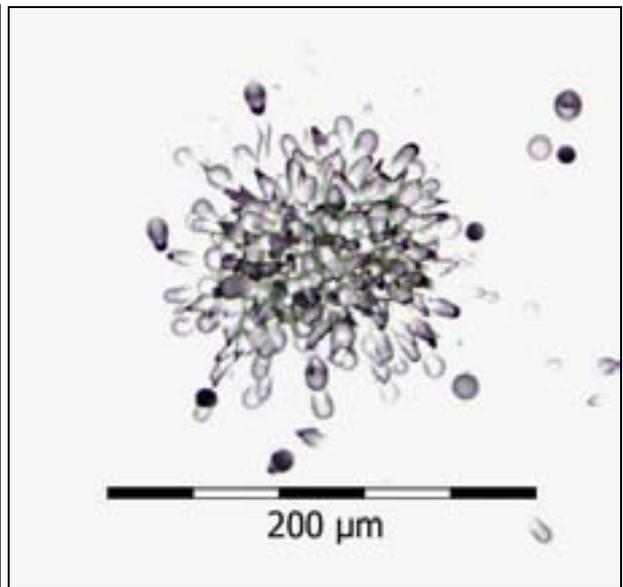
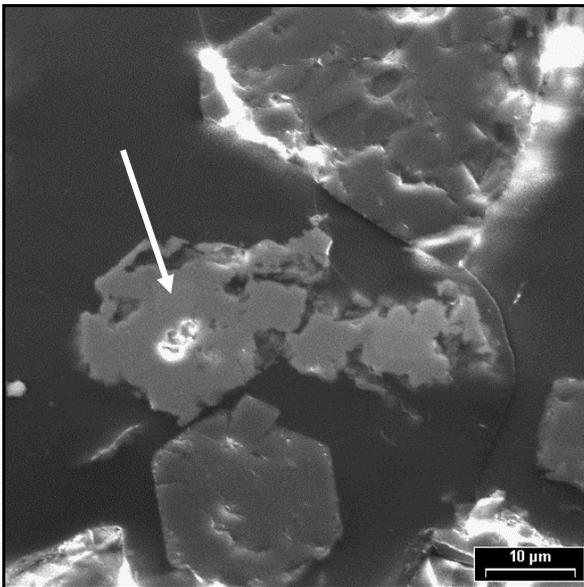
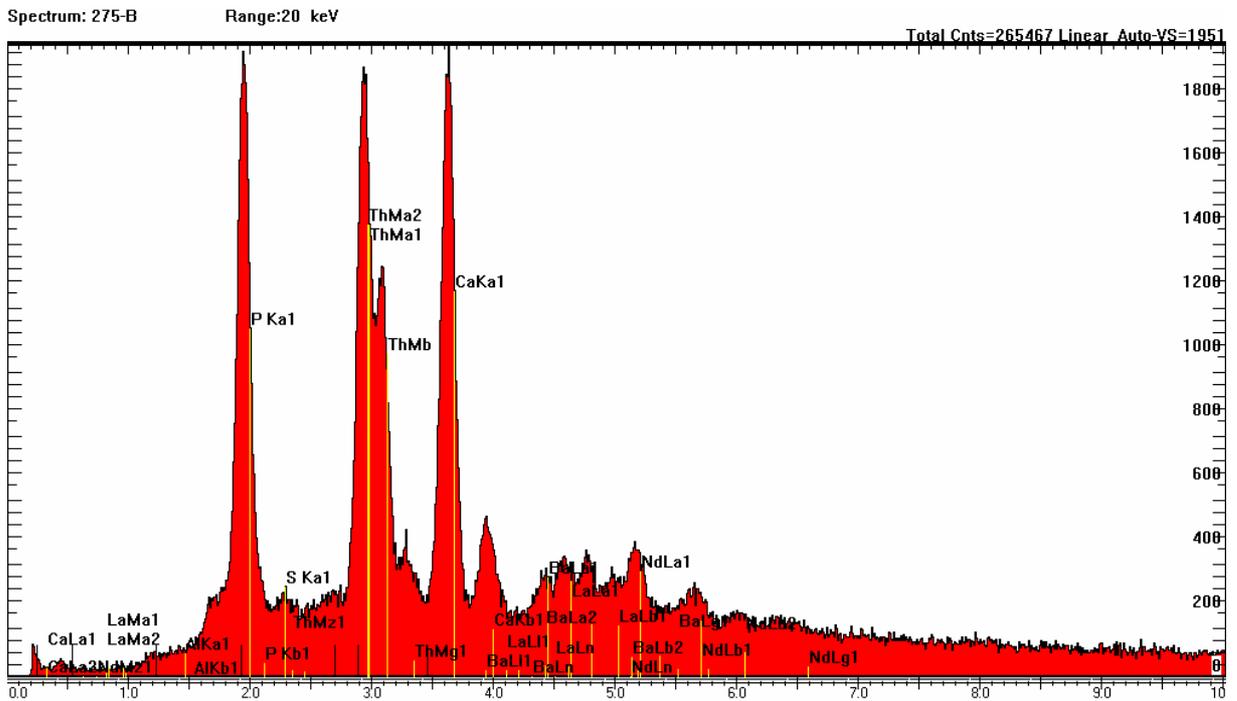
## Lengenfeld



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens aus dem Haldenmaterial von Lengenfeld (298 z). Es handelt sich hier um einen ca. 18  $\mu\text{m}$  großen Bereich in einem Silikat Korn mit Uraninit (Pfeil).

## Tafel 43

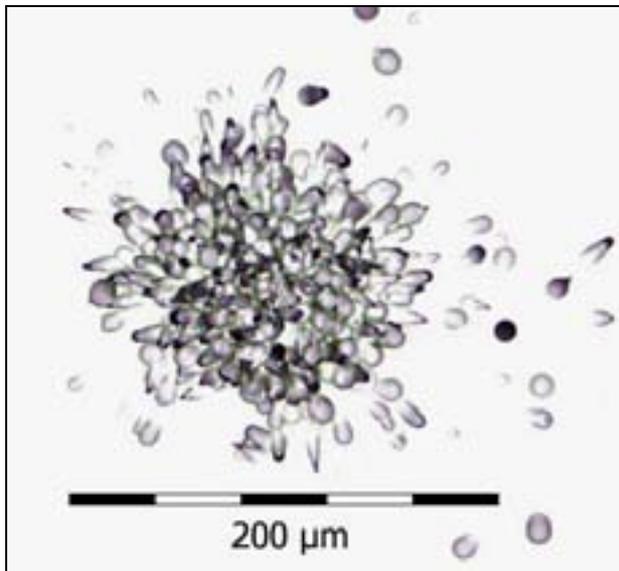
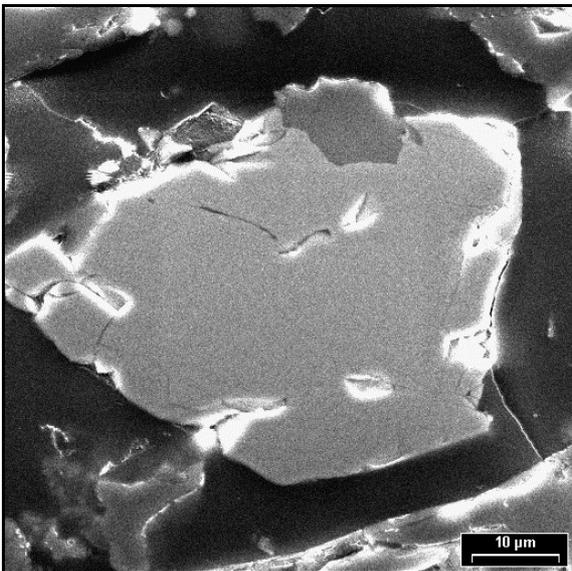
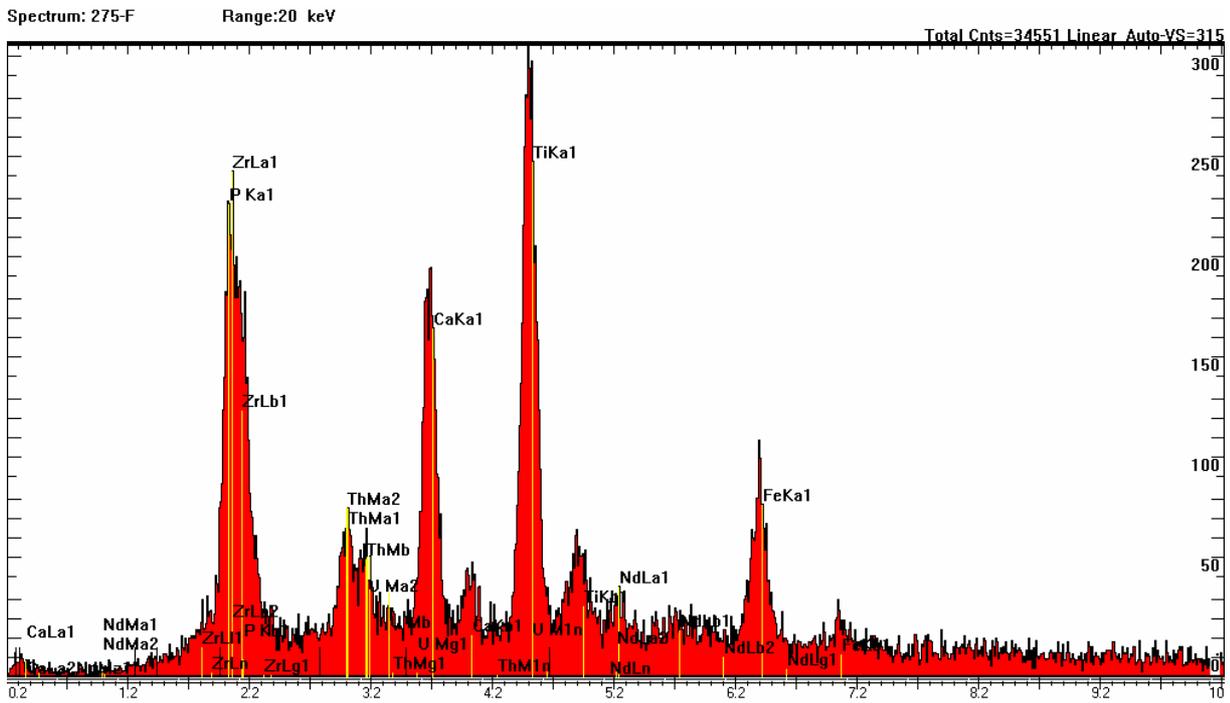
### Phosphate rock Araxá



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Probe Phosphate rock Araxá (275 b). Es handelt sich hier um ein ca.  $20 \times 44 \mu\text{m}$  großes Monazitkorn (Bildmitte, Pfeilspitze). Der deutliche Thoriumpeak im EDX-Spektrum lässt auf einen hohen Thoriumgehalt dieses Monazites schließen. Das spiegelt sich auch in dem Sternspurmuster mit hoher Spurdichte wider.

# Tafel 44

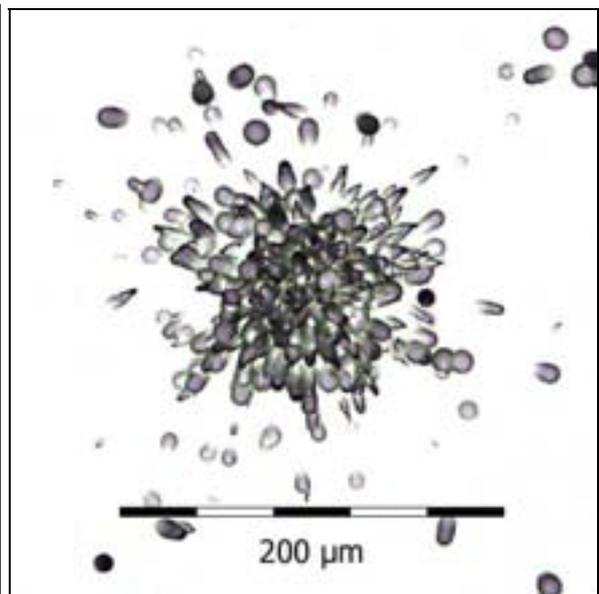
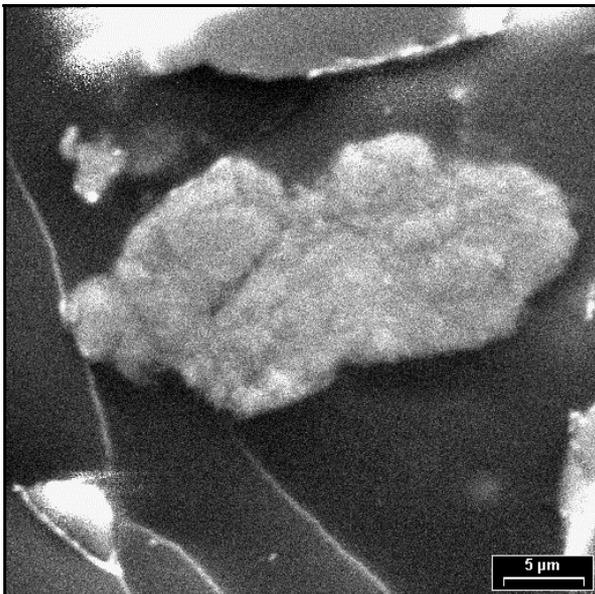
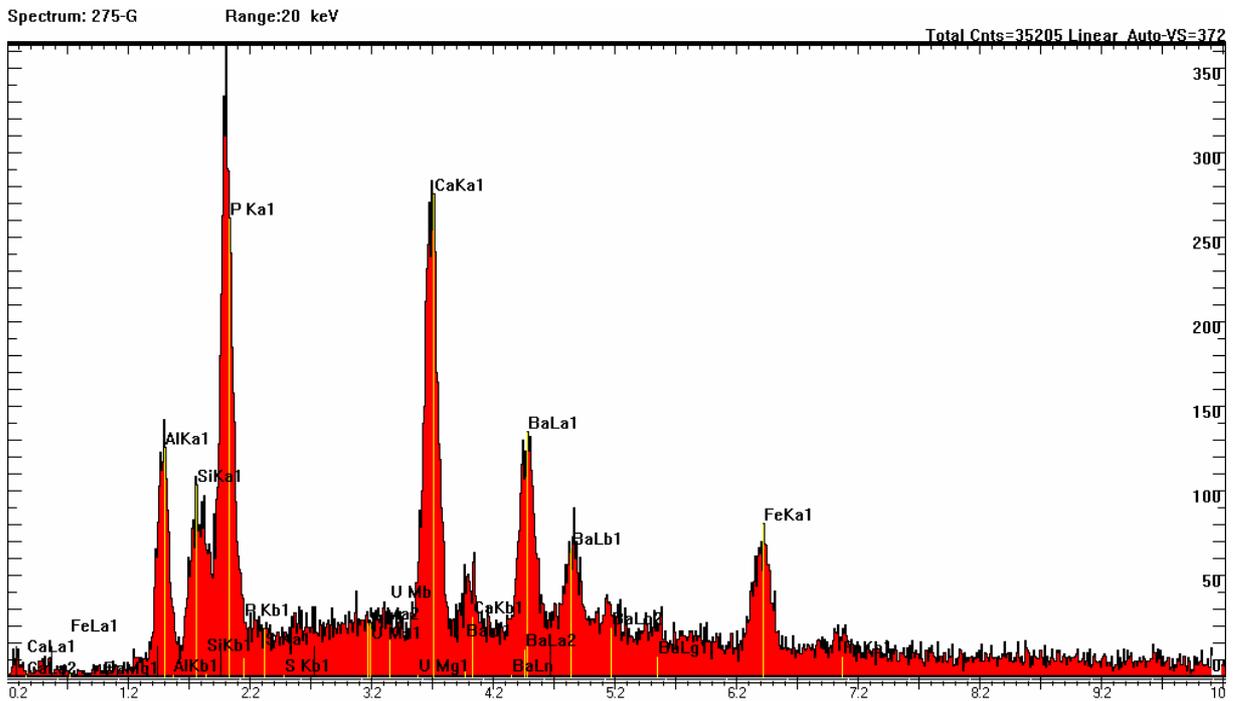
## Phosphate rock Araxá



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Probe Phosphate rock Araxá (275 f). Es handelt sich hier um ein 48×56 μm großes Betafitkorn (Bildmitte, mittelgraues Korn). Das Sternspurmuster (Autoradiogramm) zeigt eine hohe Spurdichte.

## Tafel 45

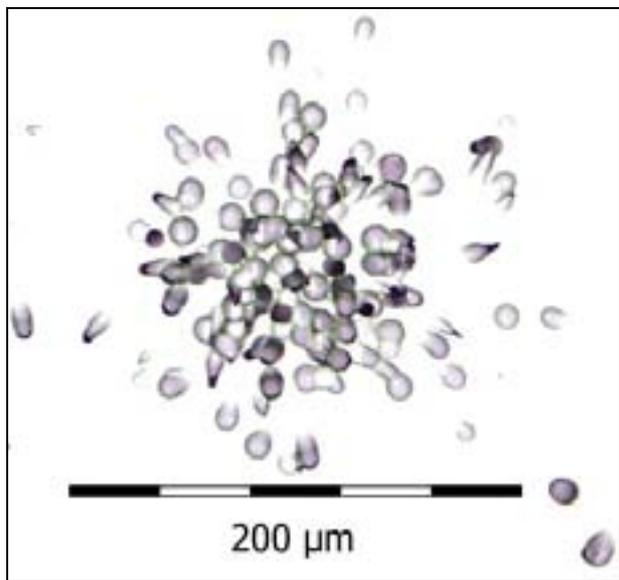
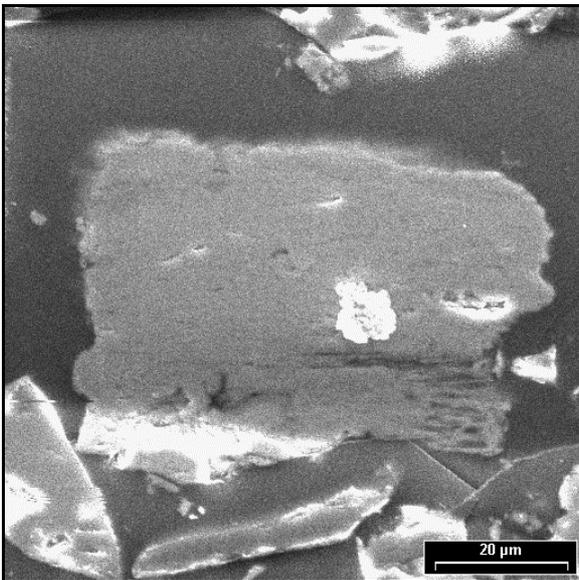
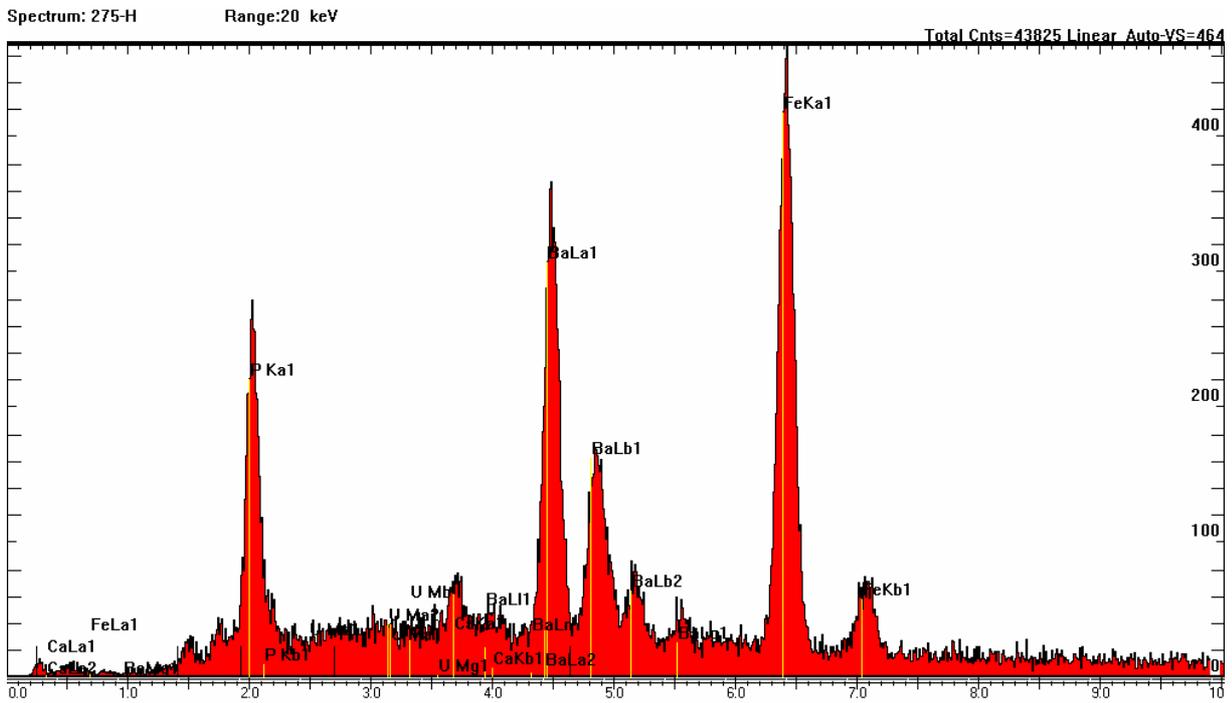
### Phosphate rock Araxá



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Probe Phosphate rock Araxá (275 g). Es handelt sich hier wahrscheinlich um ein ca.  $16 \times 32 \mu\text{m}$  großes Apatitkorn (Bildmitte, mittelgraues Korn).

# Tafel 46

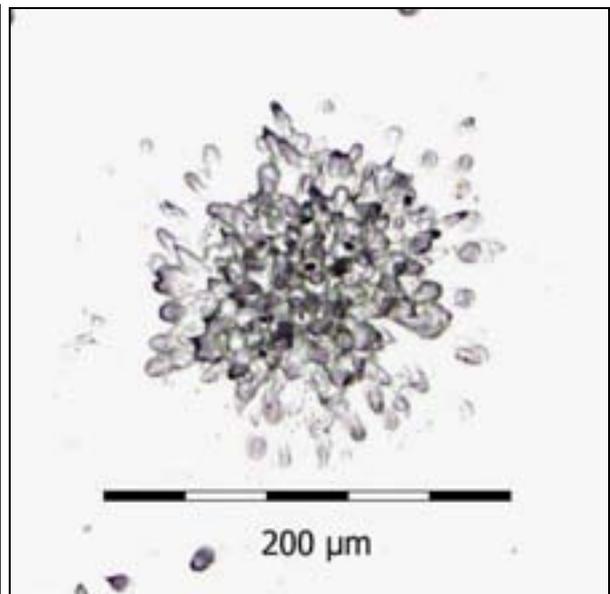
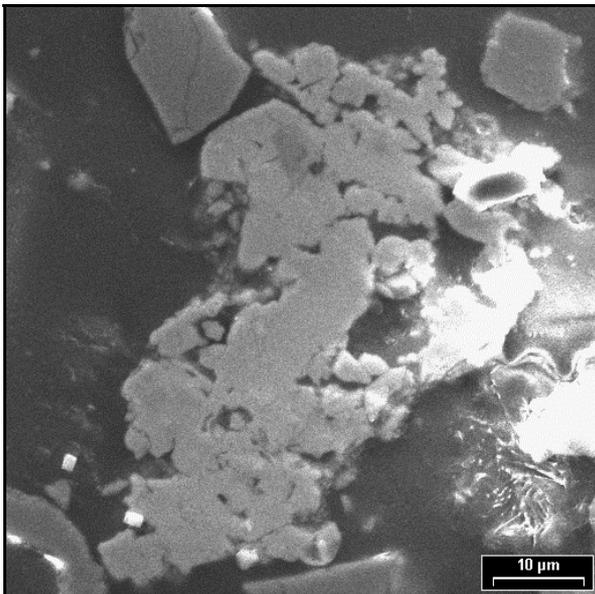
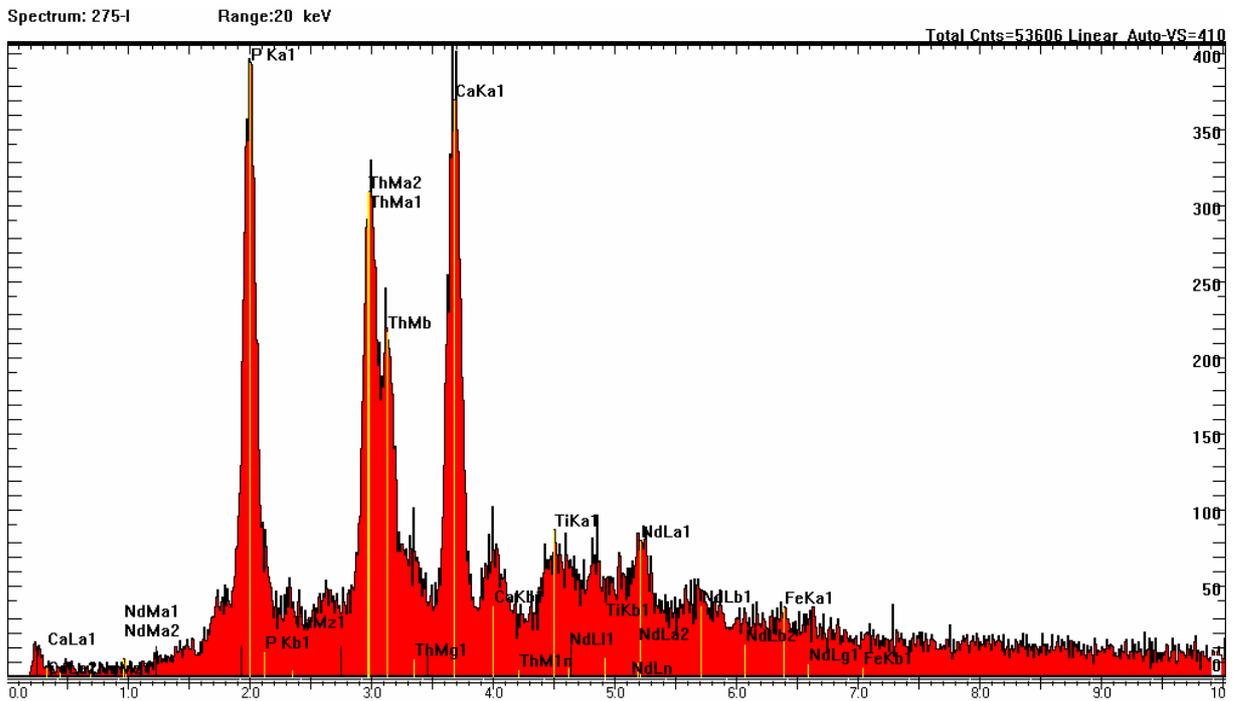
## Phosphate rock Araxá



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Probe Phosphate rock Araxá (275 h). Es handelt sich hier um ein ca. 47×70 μm großes Bariumkorn (Bildmitte) mit sehr wenig Uran.

## Tafel 47

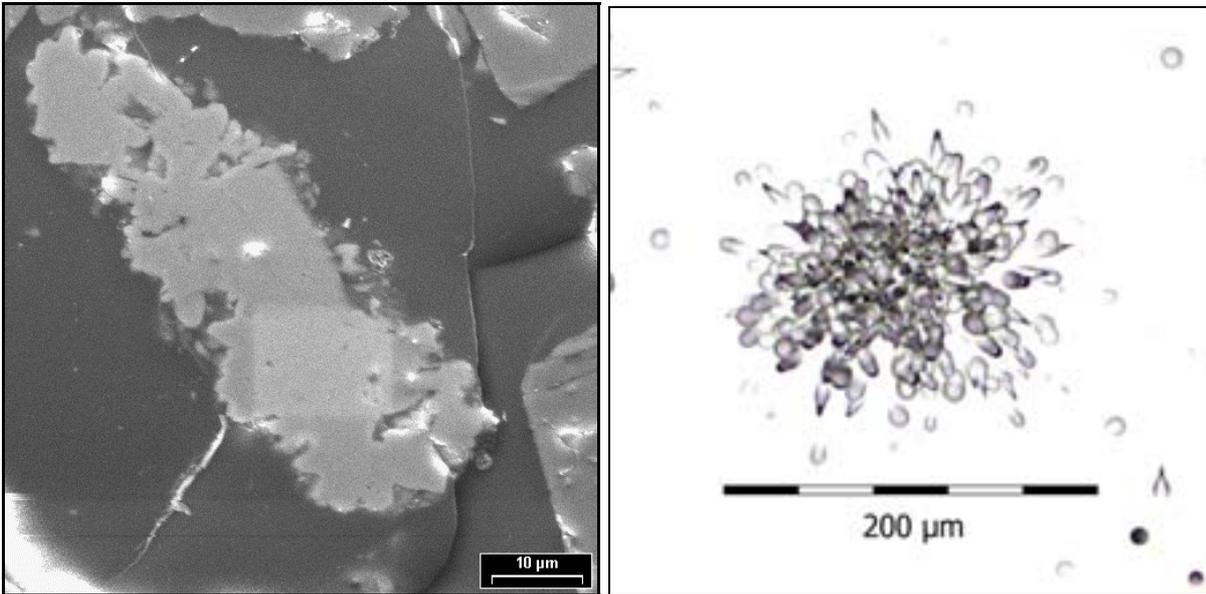
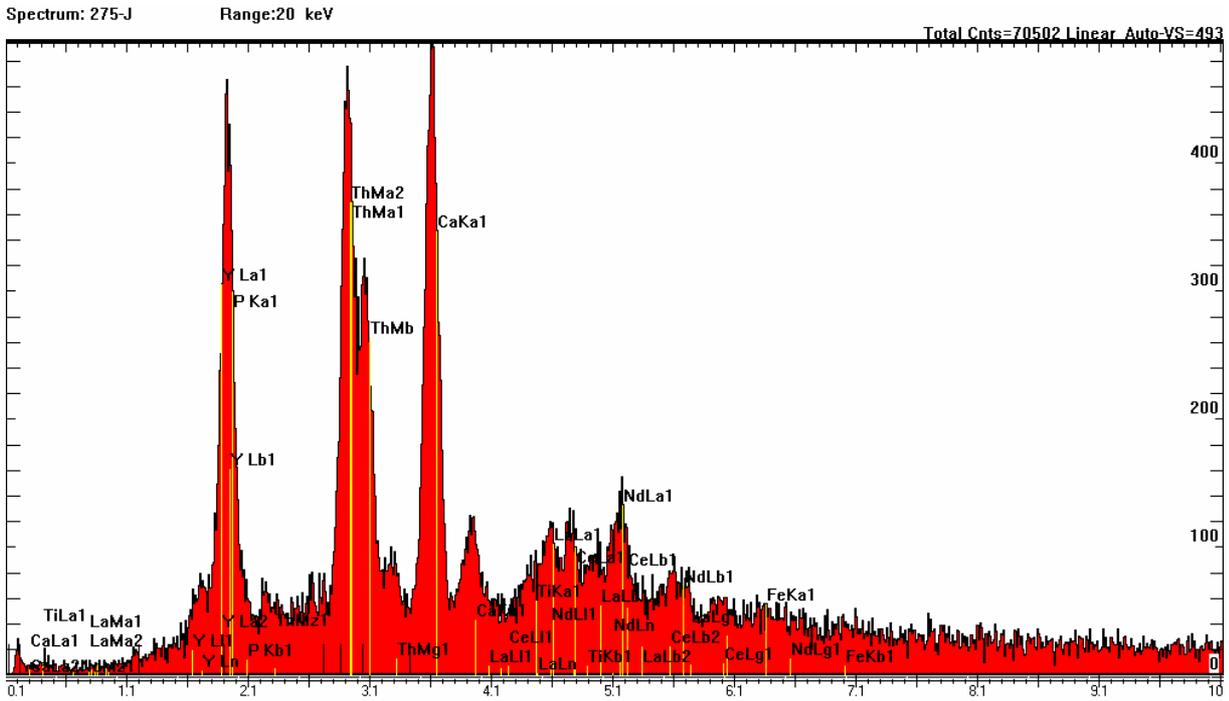
### Phosphate rock Araxá



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Probe Phosphate rock Araxá (275 i). Es handelt sich hier um ein ca. 20×44 µm großes Korn (Bildmitte, mittelgraues Korn) aus Ca und P mit viel Thorium sowie Titan und Seltenen Erden. Eventuell handelt es sich um einen Apatit. Das Sternspurmuster ist groß und hat eine hohe Spurdichte.

# Tafel 48

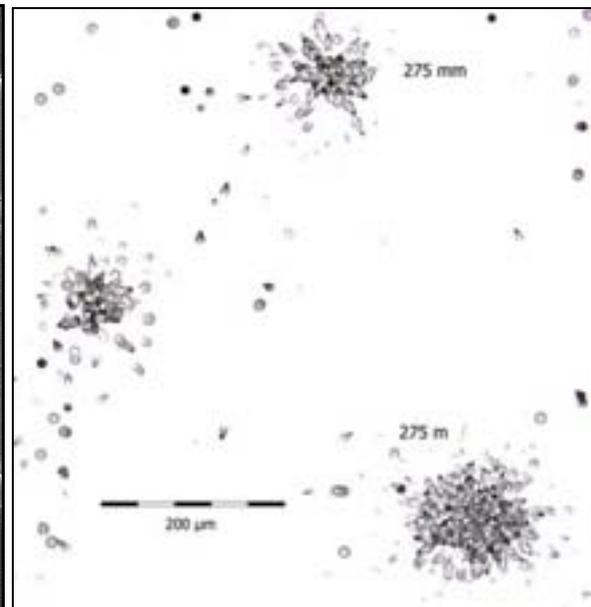
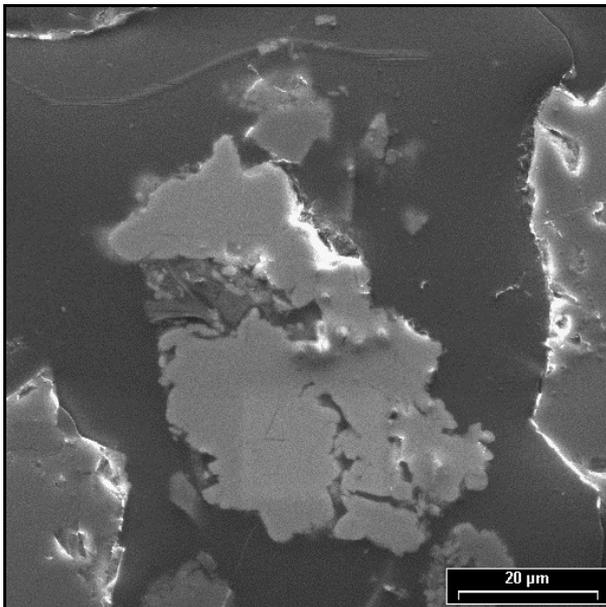
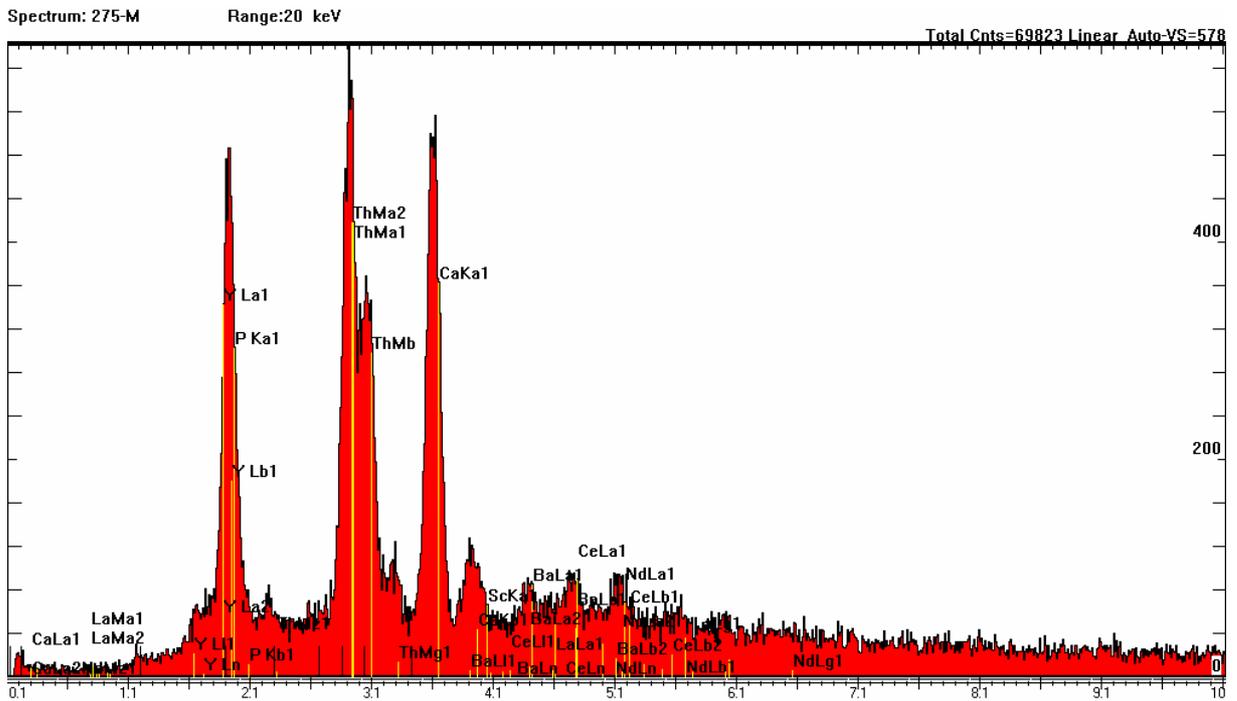
## Phosphate rock Araxá



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Probe Phosphate rock Araxá (275 j). Es handelt sich hier um ein ca.  $19 \times 63 \mu\text{m}$  großes Korn (Bildmitte, mittelgraues Korn) aus Ca und P mit viel Thorium sowie Titan und Seltenen Erden. Eventuell handelt es sich um einen Apatit (?Betafit). Das Sternspurmuster ist groß und hat eine hohe Spurdichte.

## Tafel 49

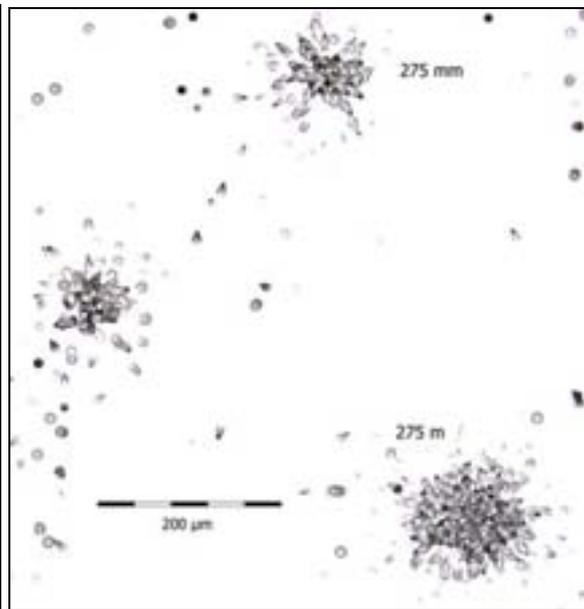
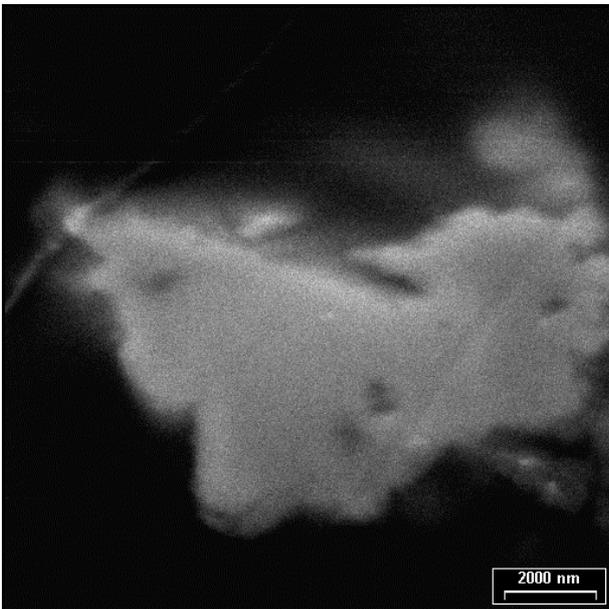
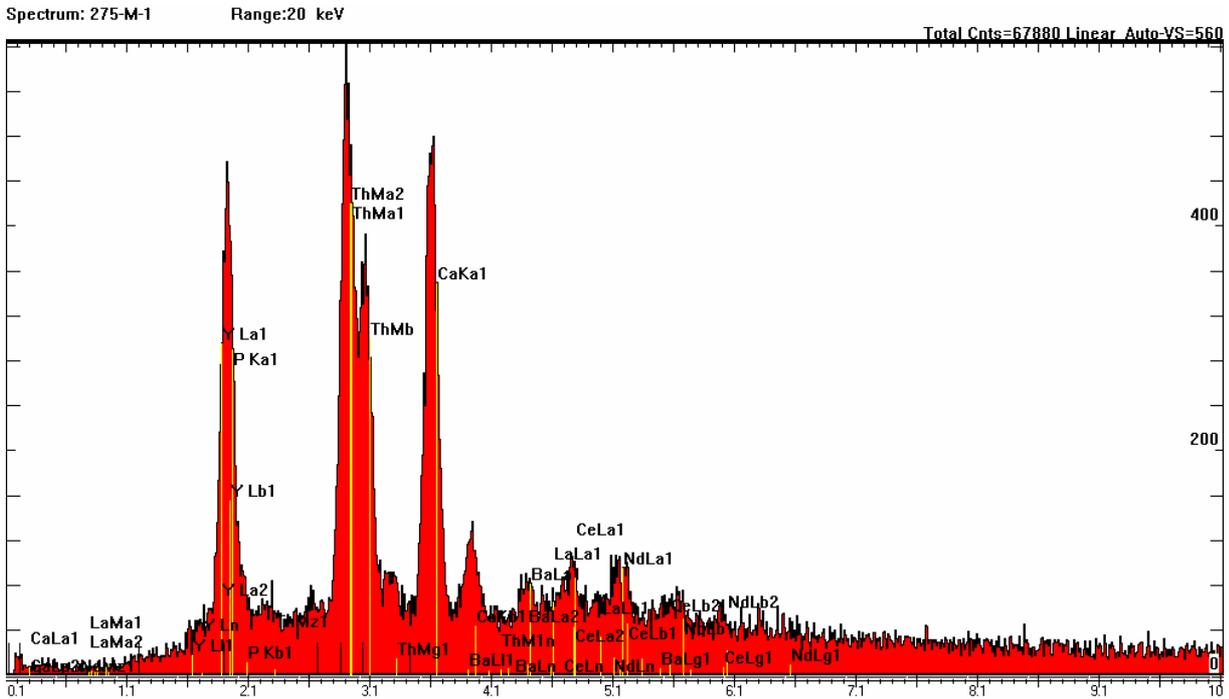
### Phosphate rock Araxá



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Probe Phosphate rock Araxá (275 m). Innerhalb der Markierung m liegen drei Heiße Teilchen-Spuren, unter denen bei 2 (bezeichnet als m und mm) Alphaemitter detektiert wurden. Unter der dritten Spur konnten keine alphaemittierenden Partikel gefunden werden. Es handelt sich hier (275 m) um ein ca. 35×60 µm großes Korn (Bildmitte, mittelgraues Korn) aus Ca und P mit viel Thorium sowie Titan und Seltenen Erden. Wahrscheinlich handelt es sich um einen Apatit. Das Sternspurmuster ist groß und hat eine hohe Spurdichte.

# Tafel 50

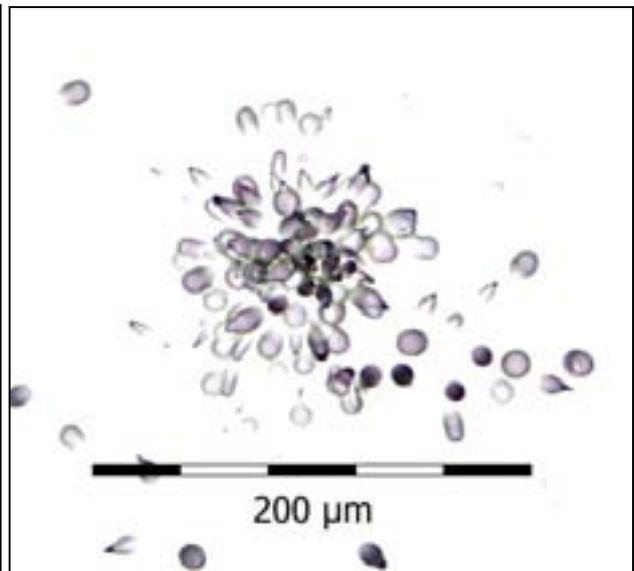
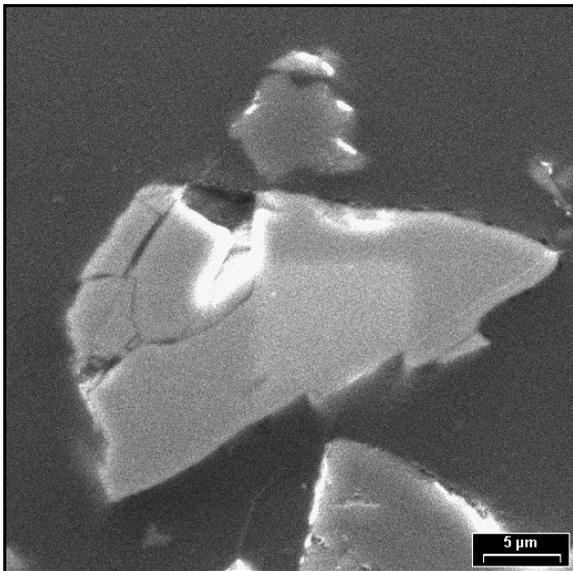
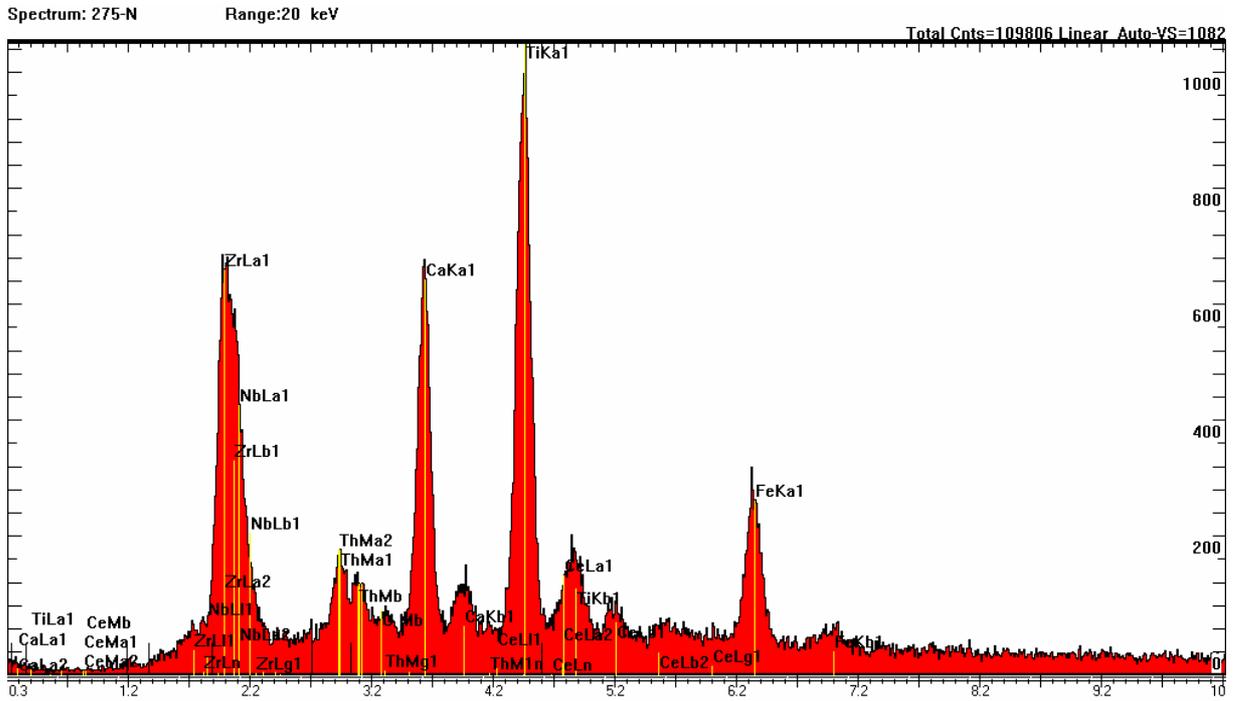
## Phosphate rock Araxá



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Probe Phosphate rock Araxá (275 mm). Innerhalb der Markierung m liegen drei Heiße Teilchen-Spuren, unter denen bei 2 (bezeichnet als m und mm) Alphaemitter detektiert wurden. Unter der dritten Spur konnten keine alphaemittierenden Partikel gefunden werden. Es handelt sich hier (275 mm) ebenfalls um ein ca.  $5 \times 11 \mu\text{m}$  großes Korn (Bildmitte, mittelgraues Korn) aus Ca und P mit viel Thorium sowie Titan und Seltenen Erden. Wahrscheinlich handelt es sich um einen Apatit. Das Sternspurmuster ist ebenfalls gut ausgebildet, aber wegen der geringeren Korngröße des alphaemittierenden Partikels kleiner als das Sternspurmuster 275 m (vgl. vorige Tafel).

# Tafel 51

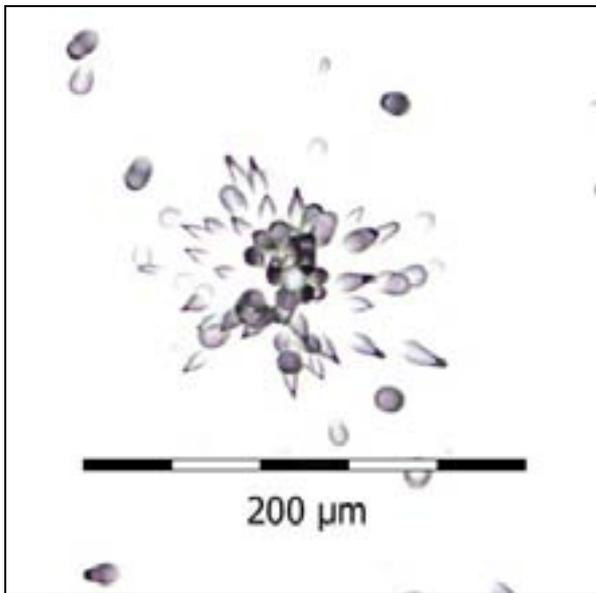
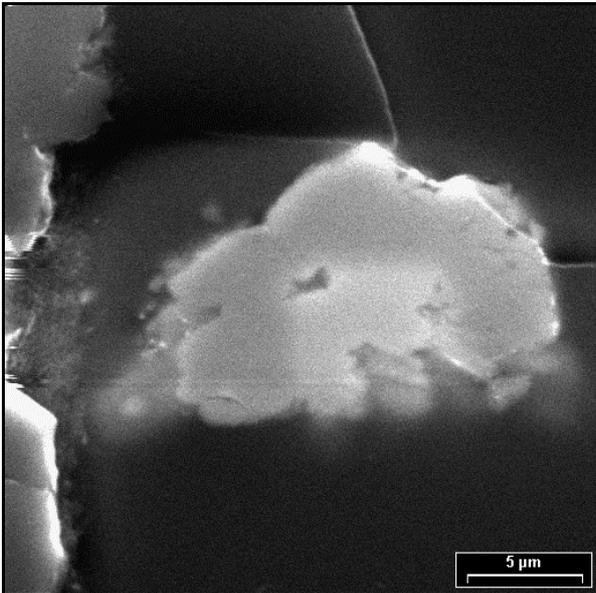
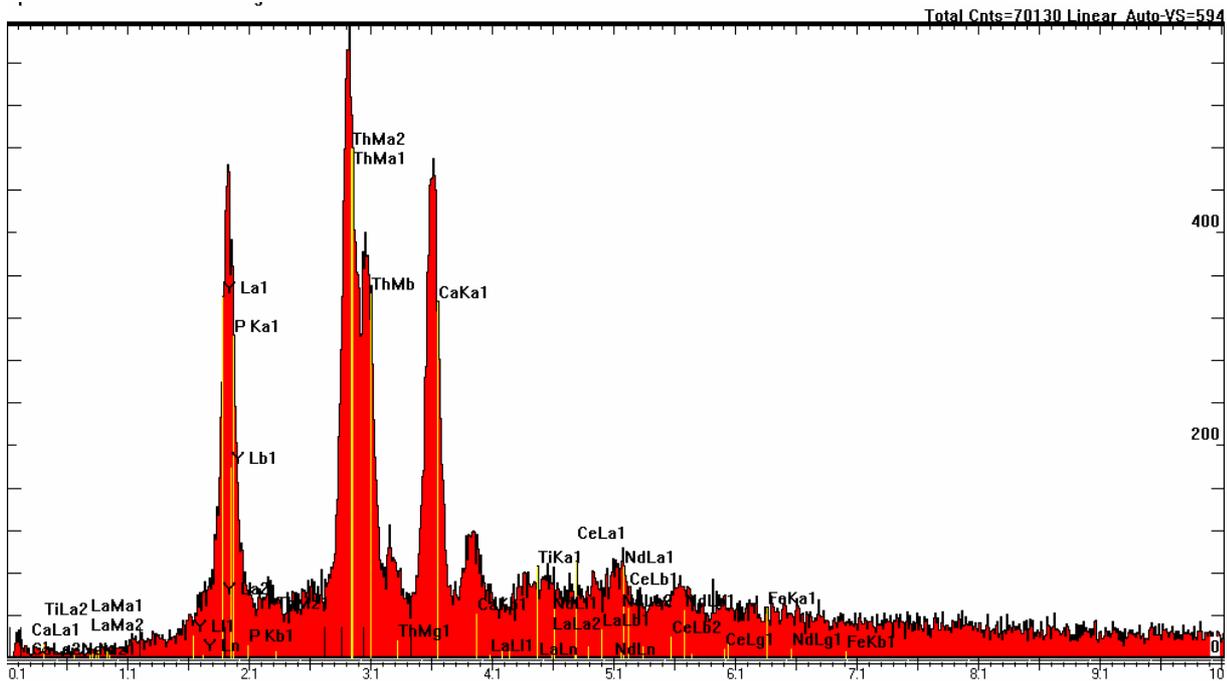
## Phosphate rock Araxá



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Probe Phosphate rock Araxá (275 n). Es handelt sich hier um ein ca. 13×29 μm großes Betafitkorn (Bildmitte, mittelgraues Korn).

## Tafel 52

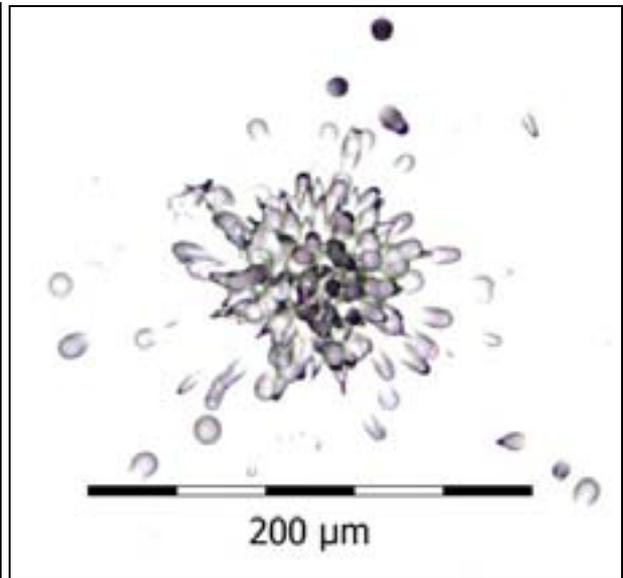
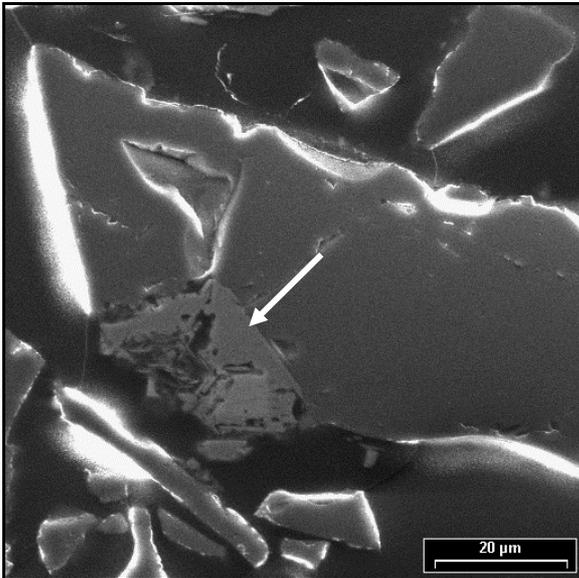
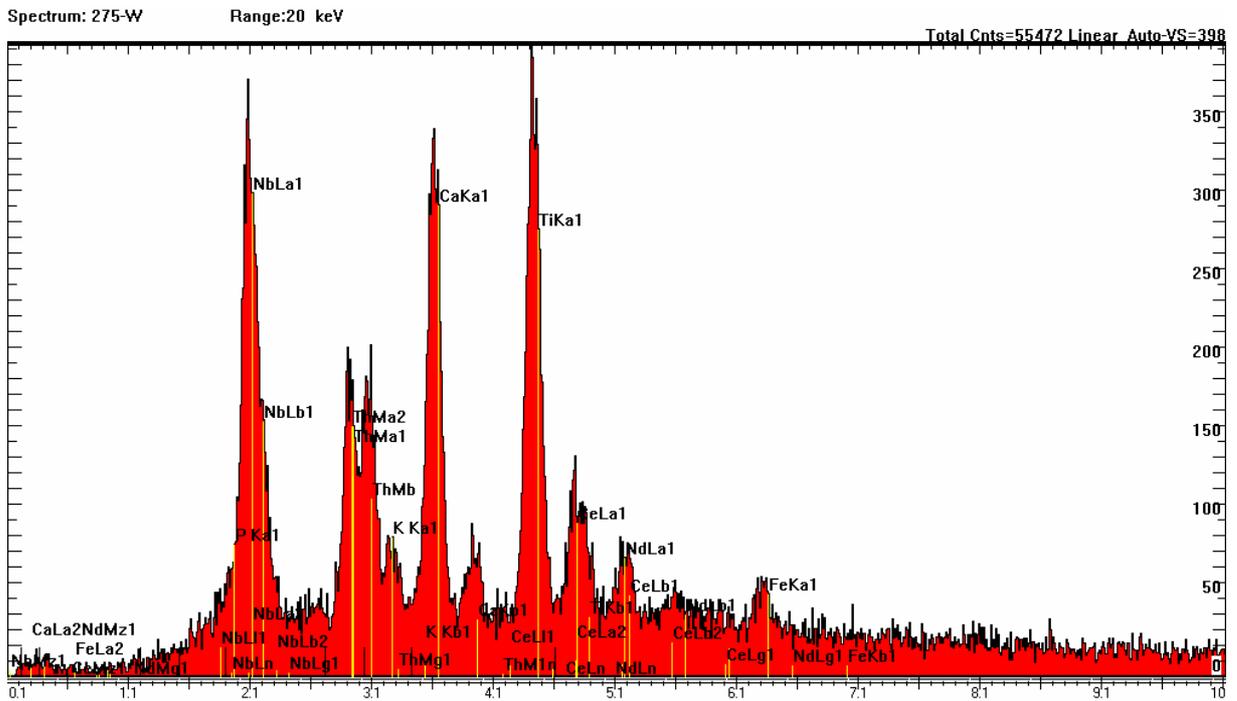
### Phosphate rock Araxá



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Probe Phosphate rock Araxá (275 s). Es handelt sich hier um ein ca. 10×15 μm großes Korn (Bildmitte, mittelgraues Korn) aus Ca und P mit viel Thorium sowie Titan und Seltenen Erden, wahrscheinlich Apatit.

## Tafel 53

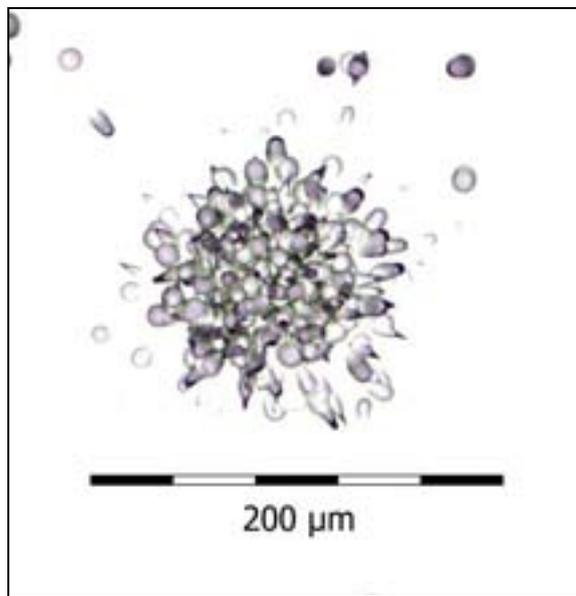
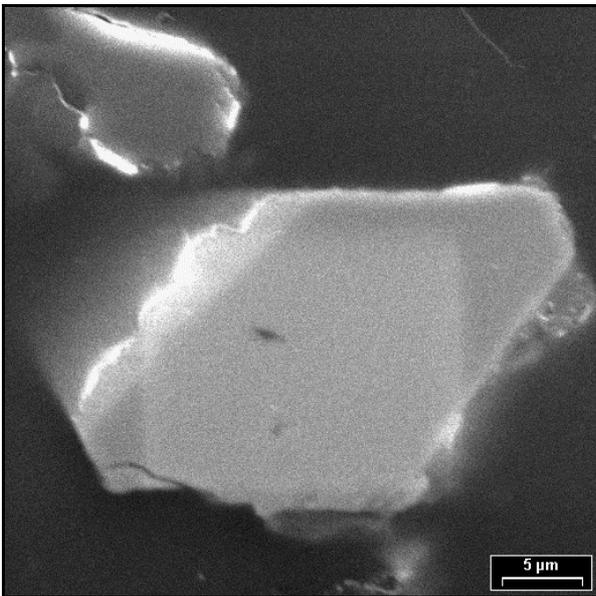
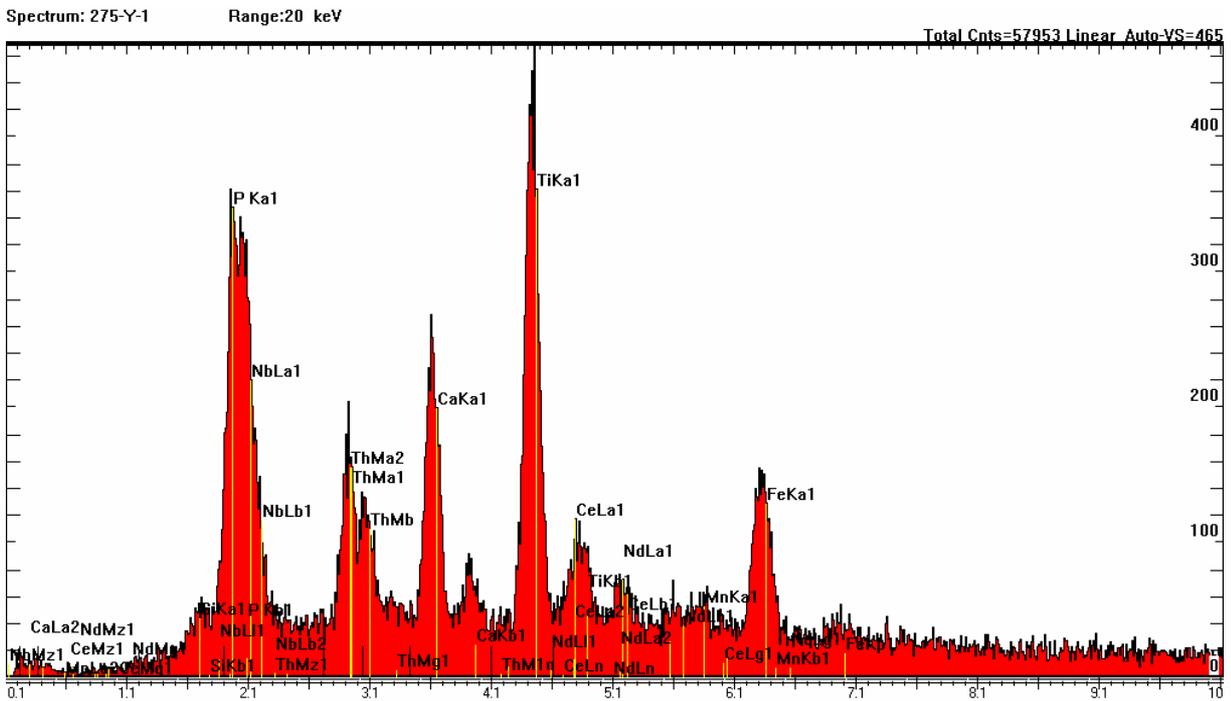
### Phosphate rock Araxá



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Probe Phosphate rock Araxá (275 w). Es handelt sich hier um ein ca.  $16 \times 23 \mu\text{m}$  großes Betafitkorn (Bildmitte, Pfeil), das mit einem größeren Korn verwachsen ist. Das Sternspurmuster ist sehr symmetrisch und zeigt eine hohe Spurdichte.

# Tafel 54

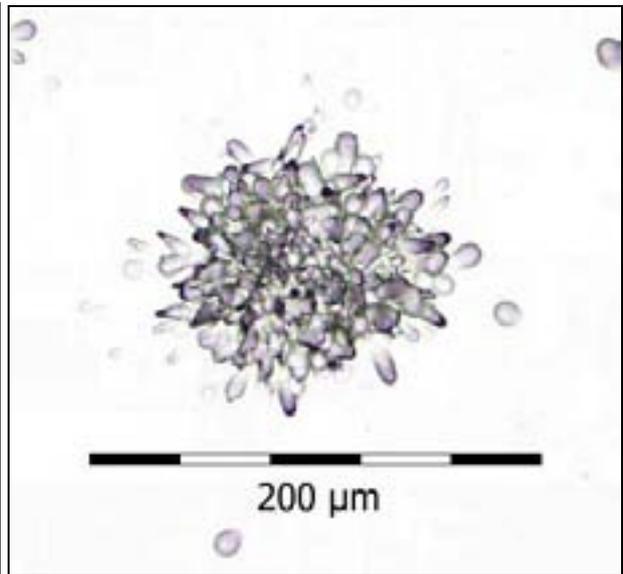
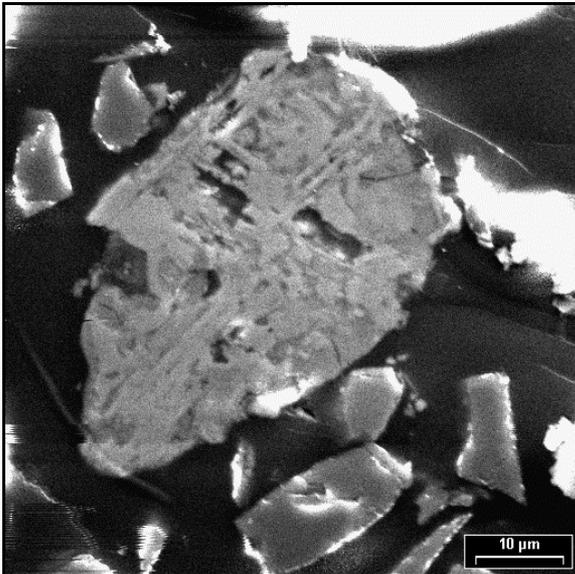
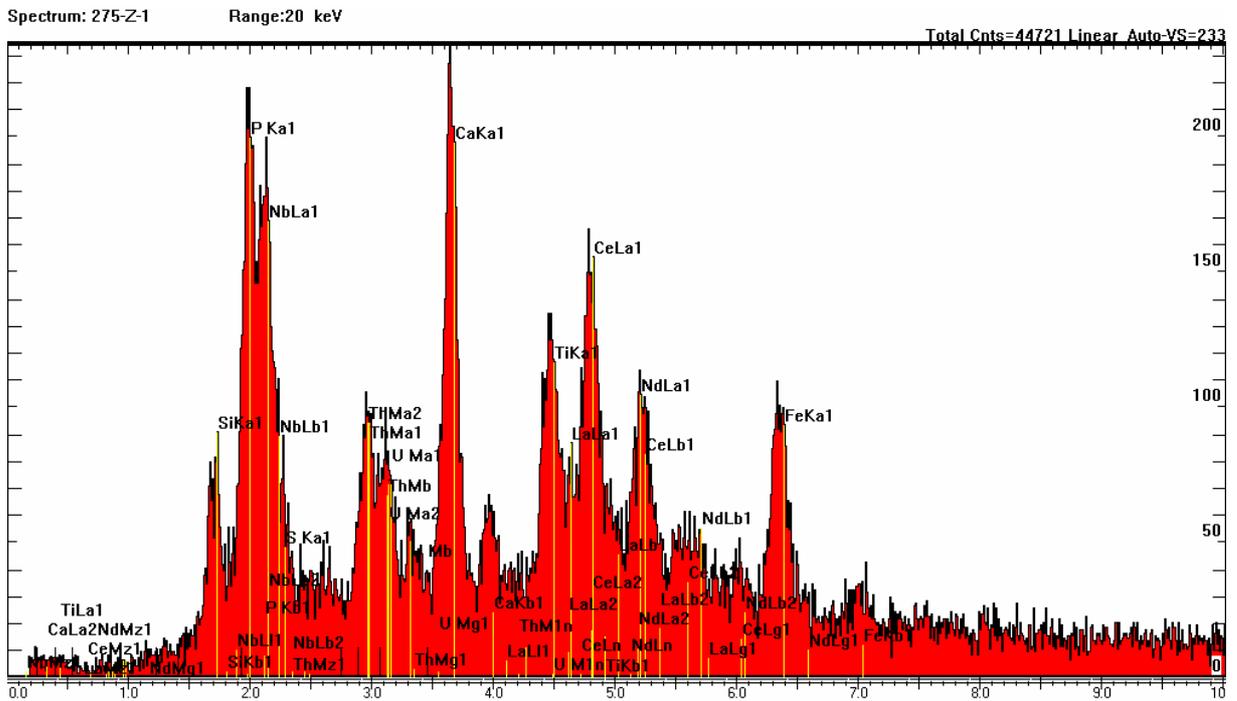
## Phosphate rock Araxá



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Probe Phosphate rock Araxá (275 yy). Es handelt sich hier um ein ca.  $18 \times 32 \mu\text{m}$  großes Körnchen aus Betafit/Columbit (Bildmitte, mittelgraues Korn). Das Sternspurmuster ist symmetrisch und zeigt eine hohe Spurdichte.

# Tafel 55

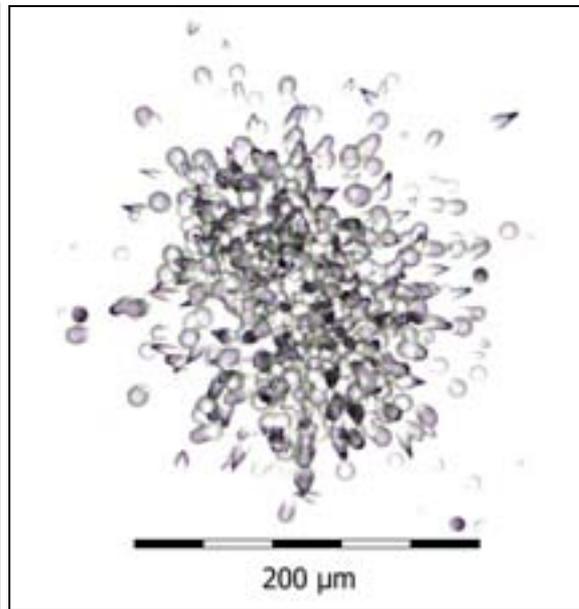
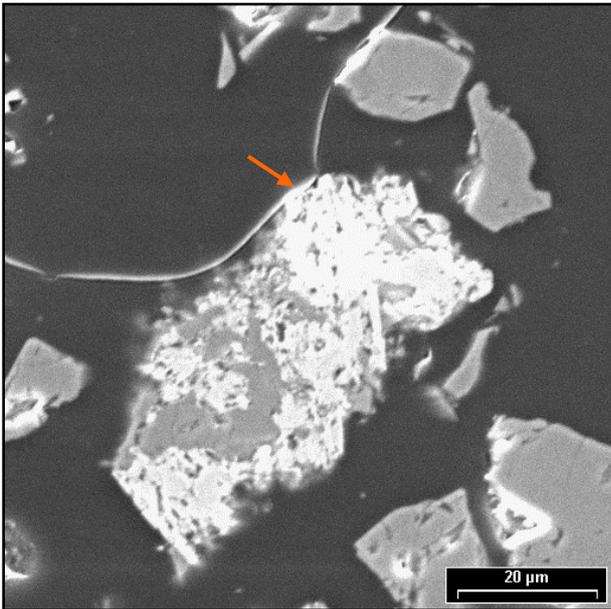
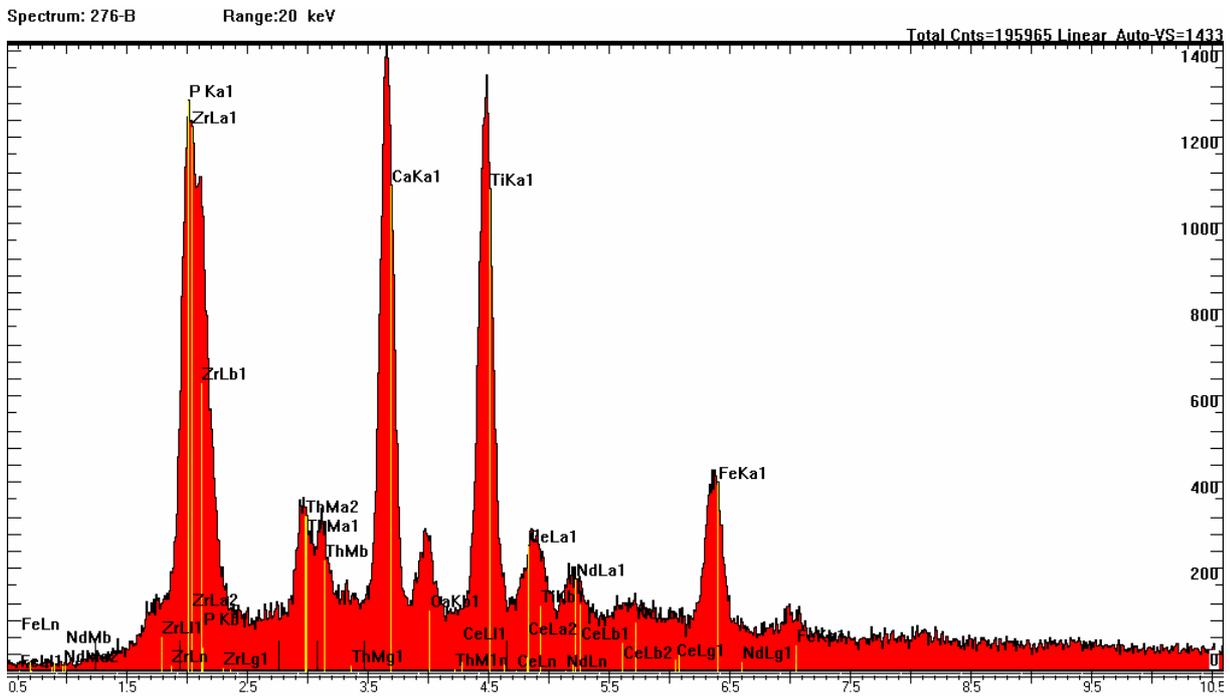
## Phosphate rock Araxá



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Probe Phosphate rock Araxá (275 zz). Es handelt sich hier um ein ca. 34×54 µm großes Korn (Bildmitte, mittelgraues Korn) aus Pyrochlor/Betafit. Das Sternspurmuster ist symmetrisch und zeigt eine hohe Spurdichte.

# Tafel 56

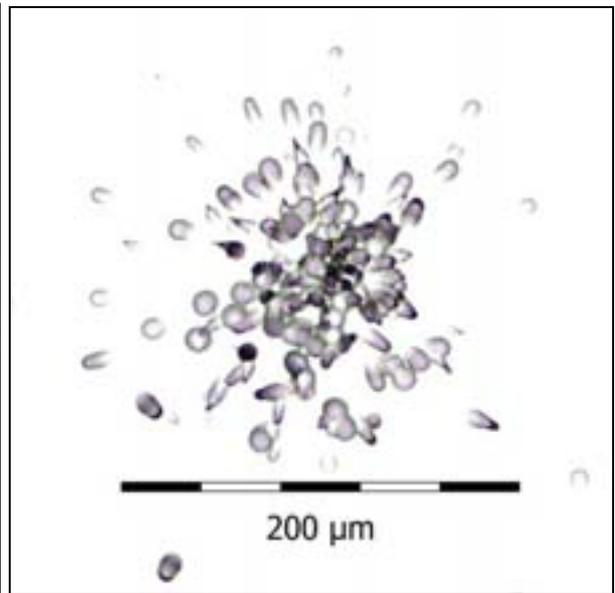
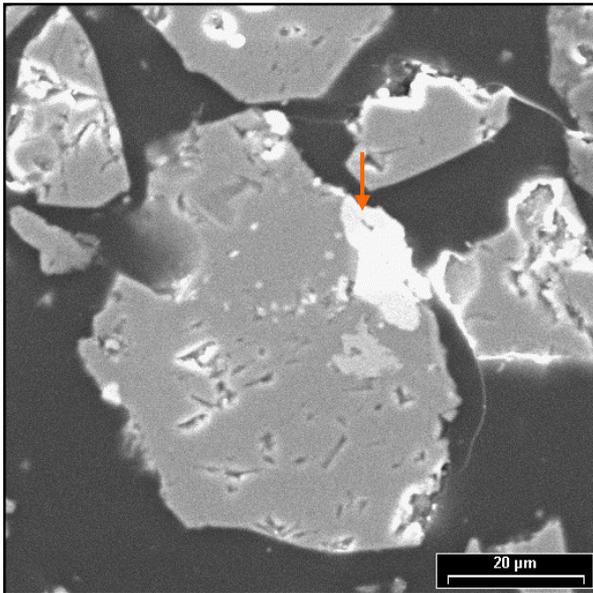
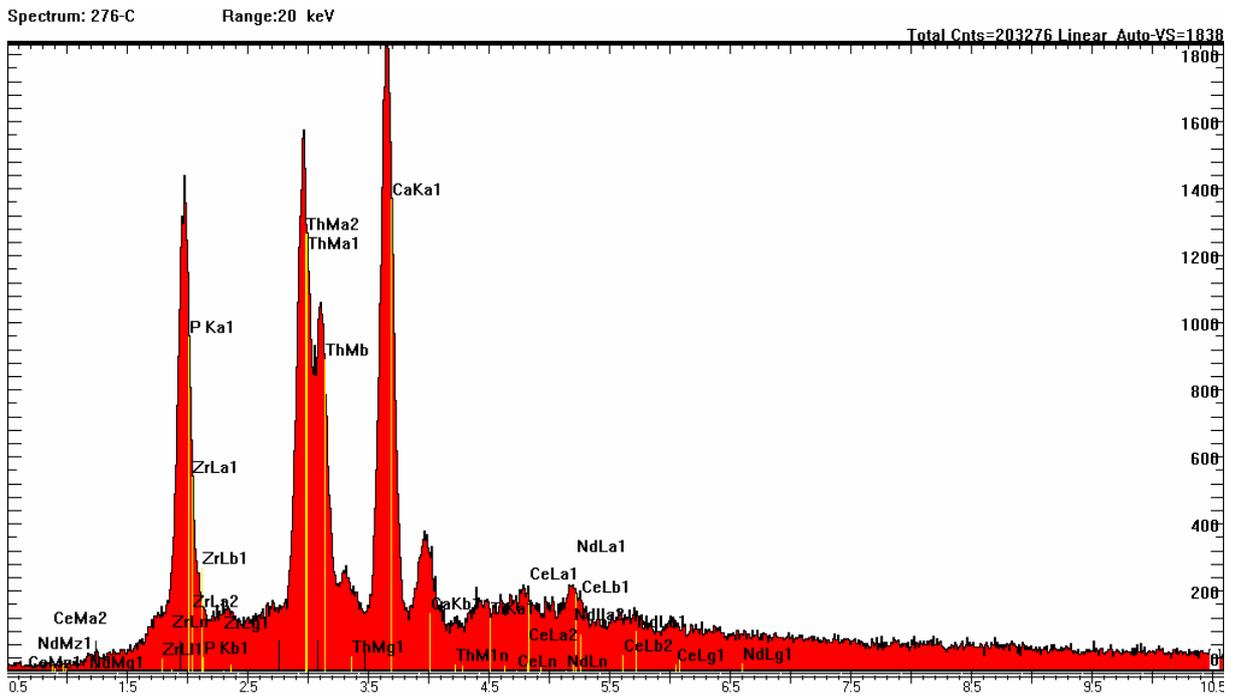
## Concentrate of rock Tapira-Araxá



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines heißen Teilchens der Probe Concentrate of rock Tapira-Araxá (276 b). Es handelt sich hier um ein ca. 26×60 µm großes Korn (Bildmitte) aus einer Verwachsung von Apatit und ??Betafit (Pfeil).

## Tafel 57

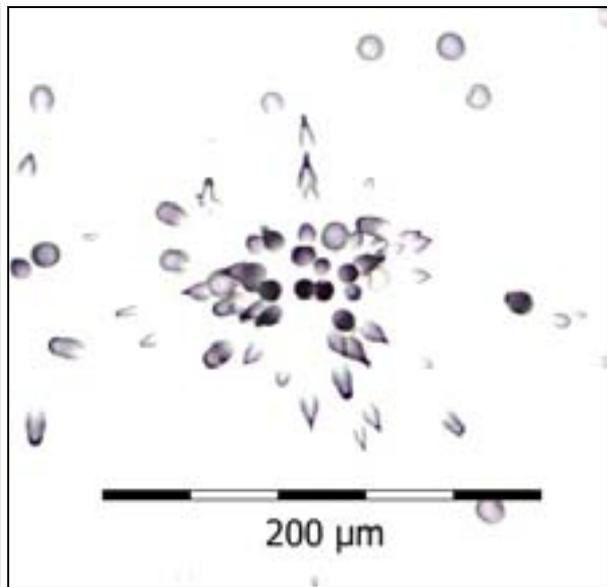
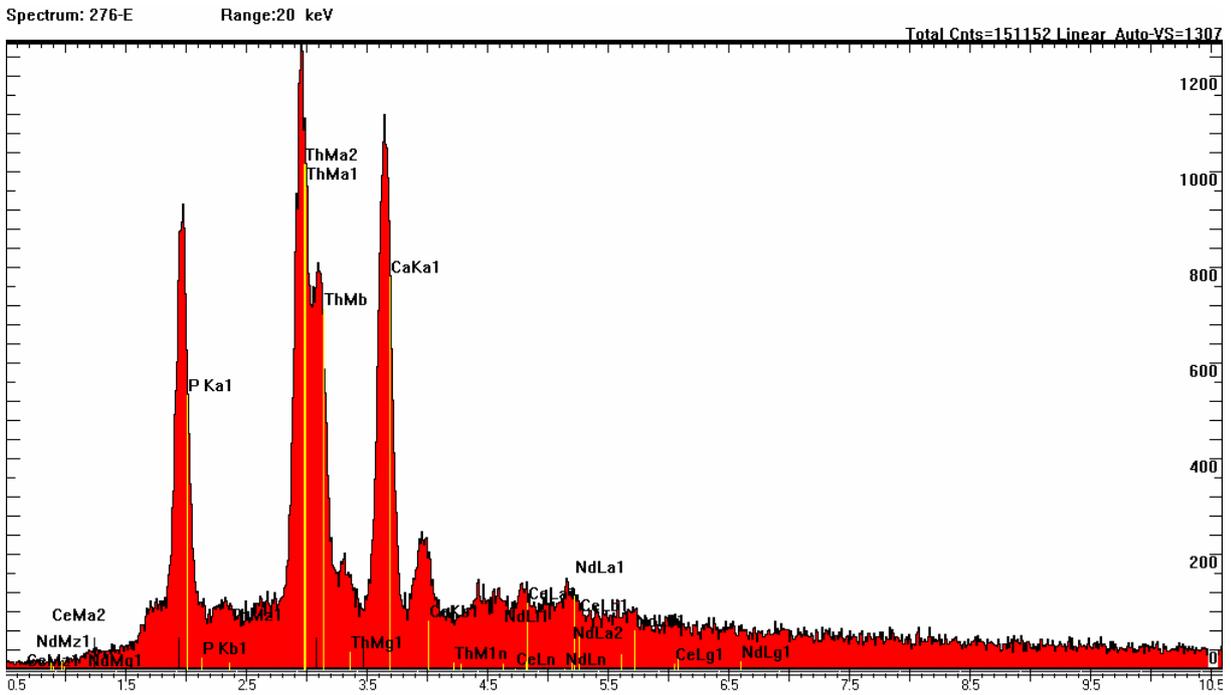
### Concentrate of rock Tapira-Araxá



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Probe Concentrate of rock Tapira-Araxá (276 c). Es handelt sich hier um ein ca. 48×70 μm großes Korn (Bildmitte) aus einer Verwachsung von Apatit mit ??Betafit. Der thoriumhaltige Bereich (strahlend weiß) des Körnchens ist durch den roten Pfeil gekennzeichnet.

# Tafel 58

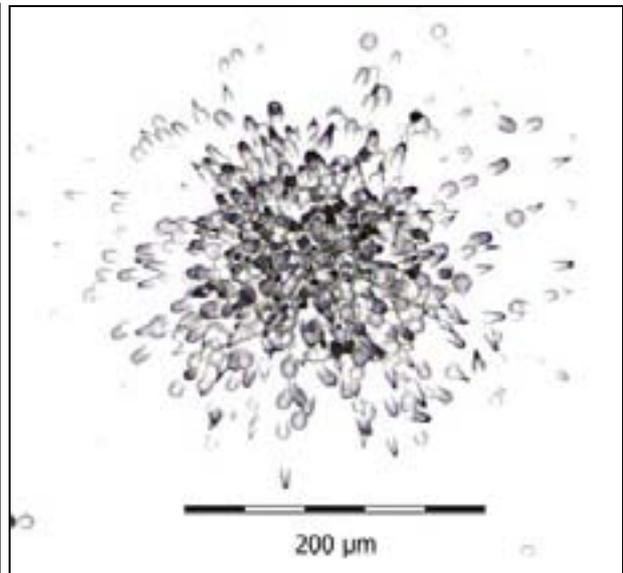
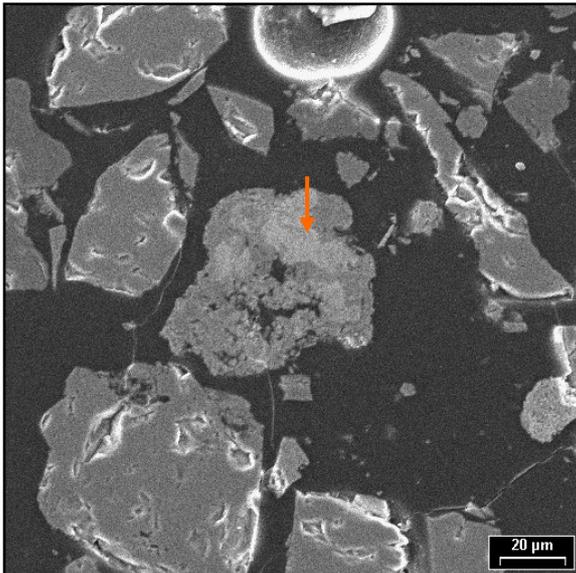
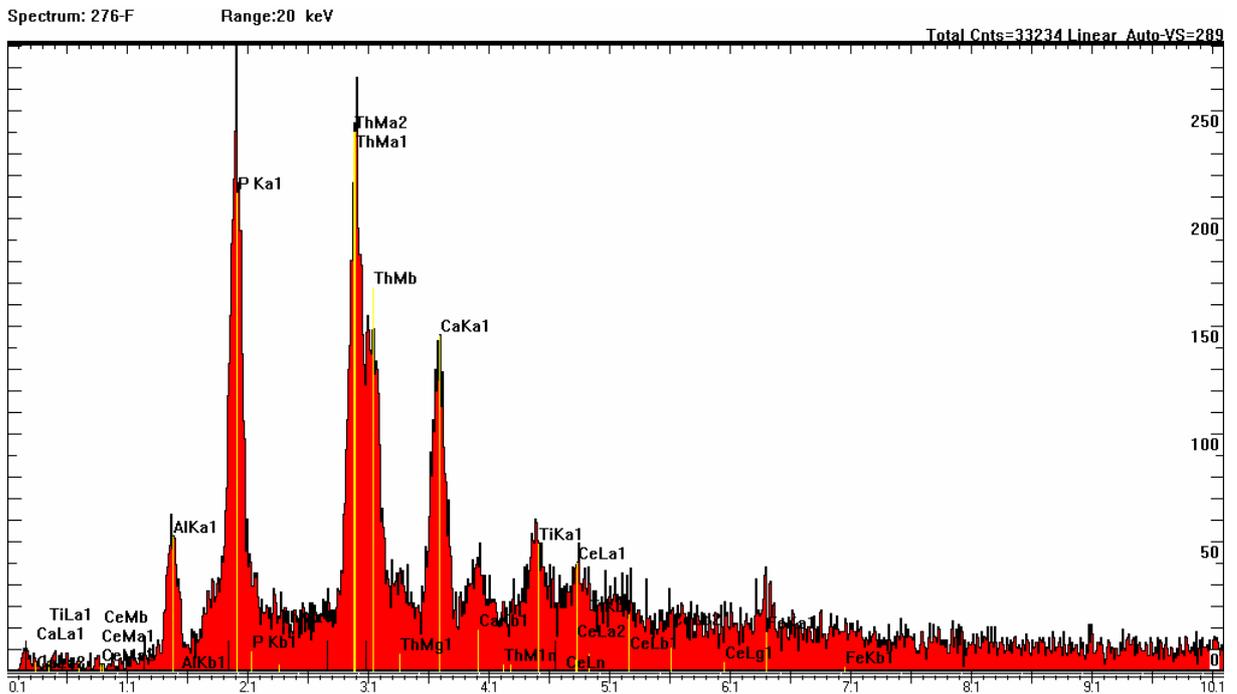
## Concentrate of rock Tapira-Araxá



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Probe Concentrate of rock Tapira-Araxá (276 e). Es handelt sich hier um ein ca.  $5 \times 12 \mu\text{m}$  großes ??Apatitkorn (Pfeil) mit viel Thorium.

## Tafel 59

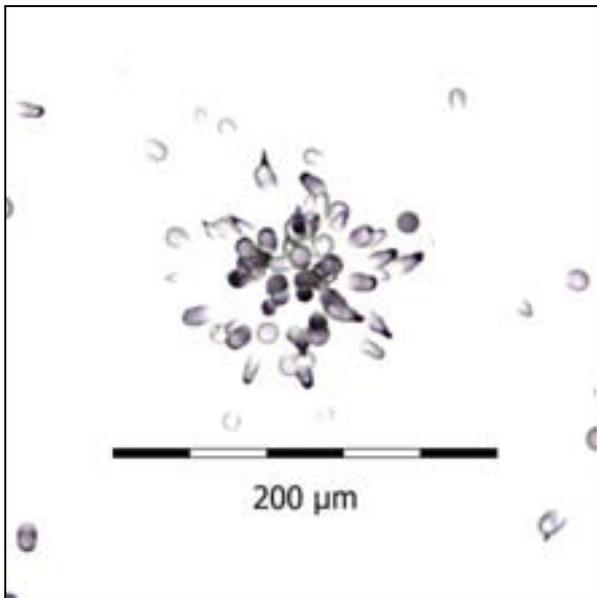
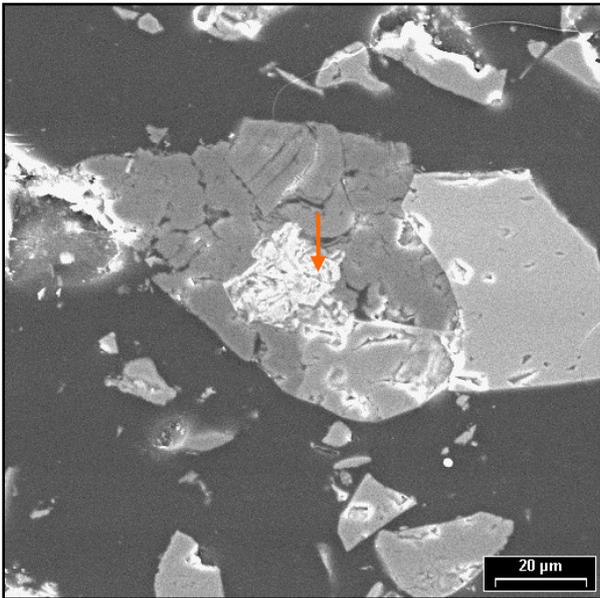
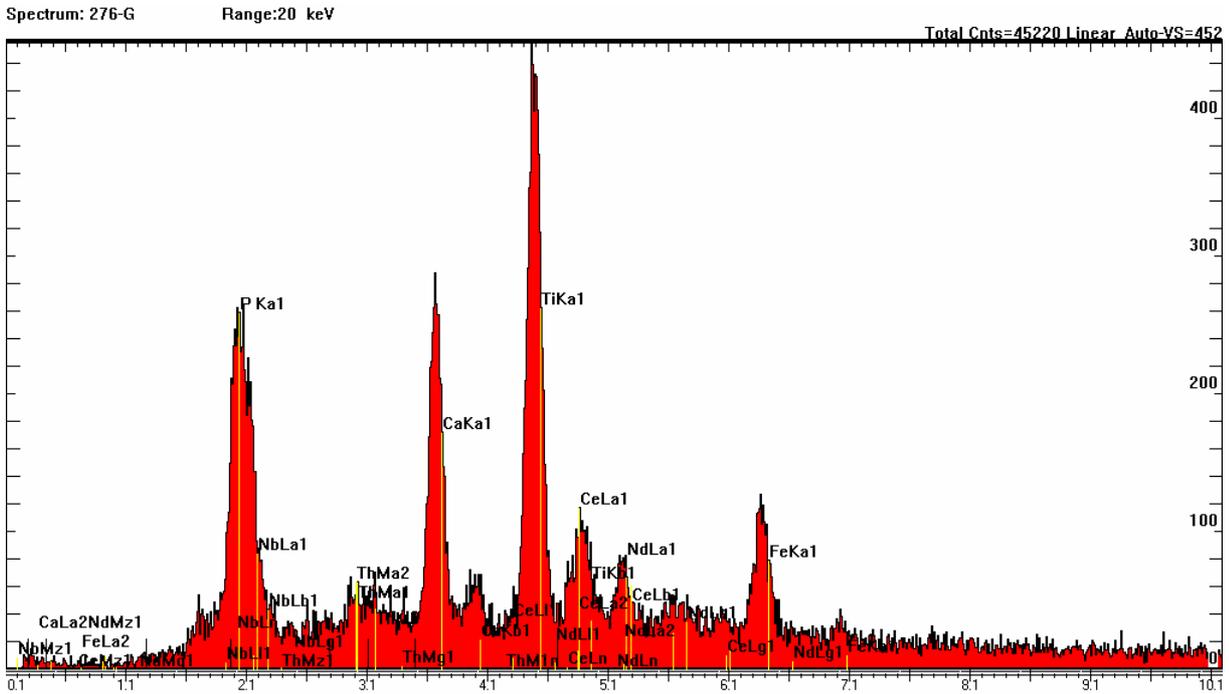
### Concentrate of rock Tapira-Araxá



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Probe Concentrate of rock Tapira-Araxá (276 f). Es handelt sich hier um ein ca. 60×70 μm großes Korn (Bildmitte, Pfeil) aus einer Verwachsung von Apatit mit Betafit (helle Bereiche im Korn, an Pfeilspitze).

# Tafel 60

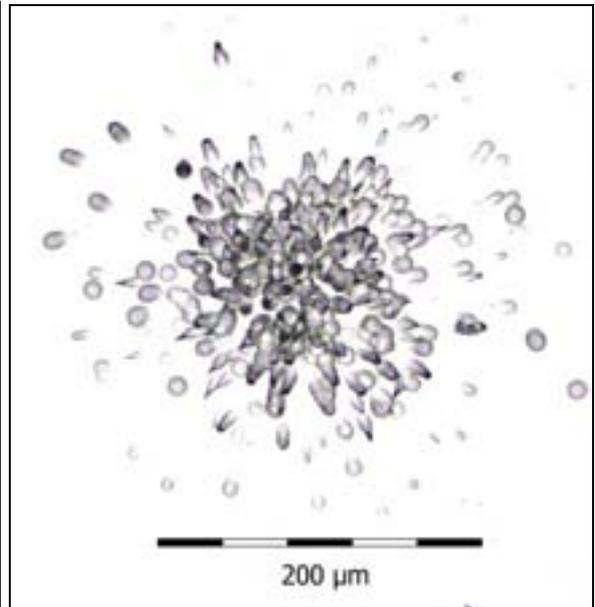
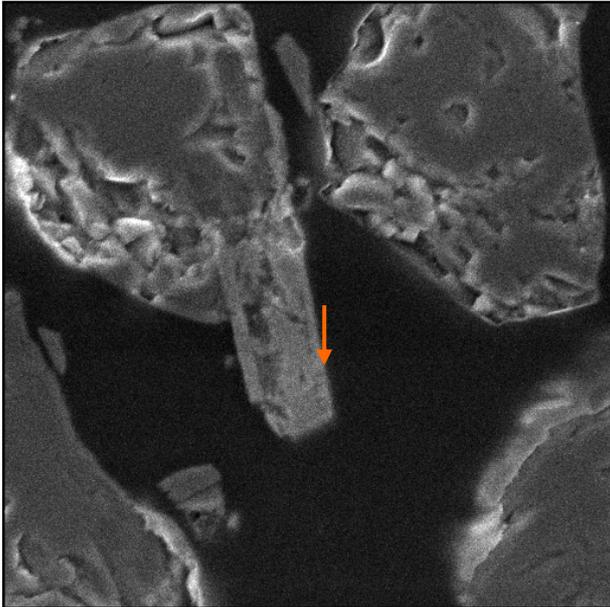
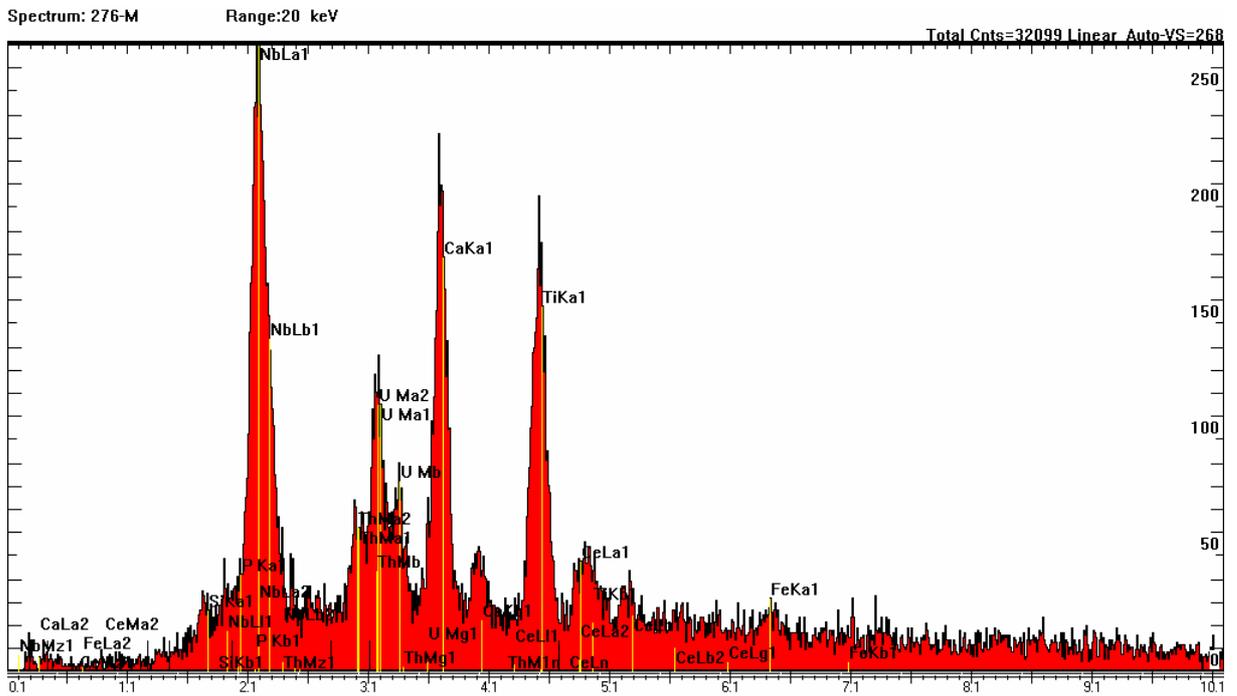
## Concentrate of rock Tapira-Araxá



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Probe Concentrate of rock Tapira-Araxá (276 g). Es handelt sich hier wiederum um eine Verwachsung von Betafit (helle Bereiche im Korn, Pfeilspitze), ca. 23×26 μm groß, mit Apatit (ca. 53×80 μm mittel-graues Körnchen in der Bildmitte).

## Tafel 61

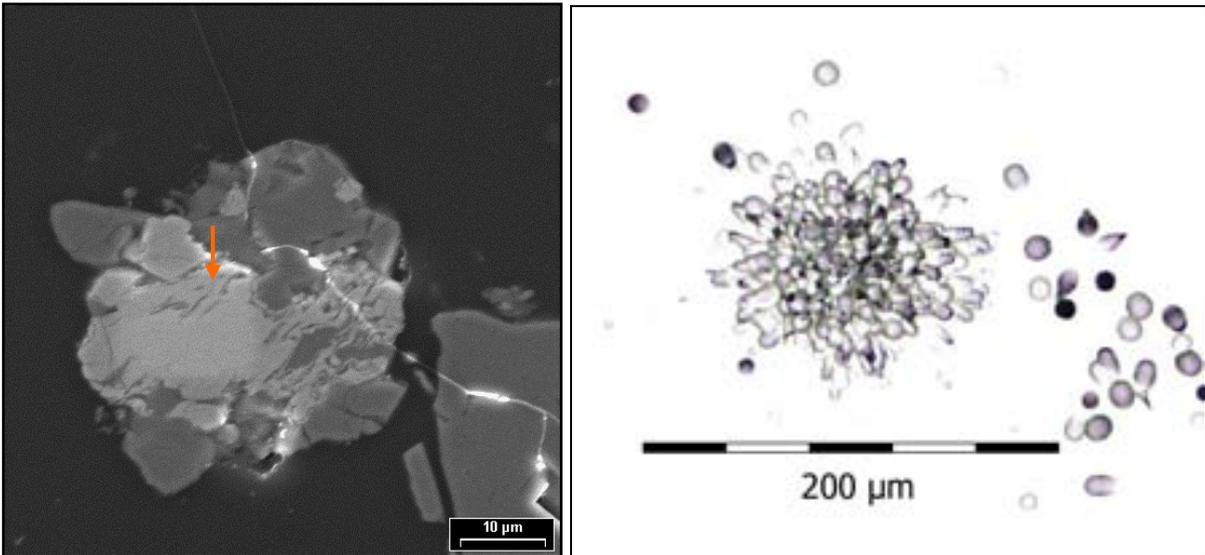
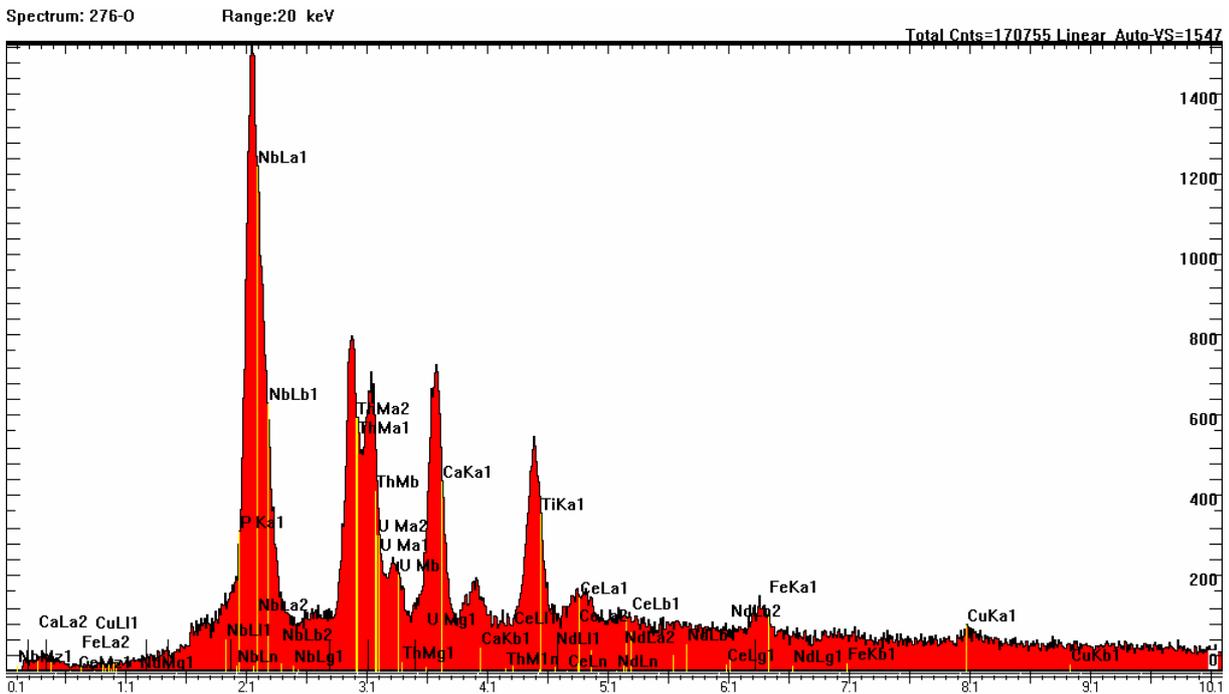
### Concentrate of rock Tapira-Araxá



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Probe Concentrate of rock Tapira-Araxá (276 m). Es handelt sich hier wiederum um eine Verwachsung von Betafit (helle Bereiche an Pfeilspitze) mit einem ca. 30×50 μm großen Apatitkorn (Körnchen im linken oberen Bildbereich, Pfeil). Die Bildbreite beträgt ca. 65 μm.

## Tafel 62

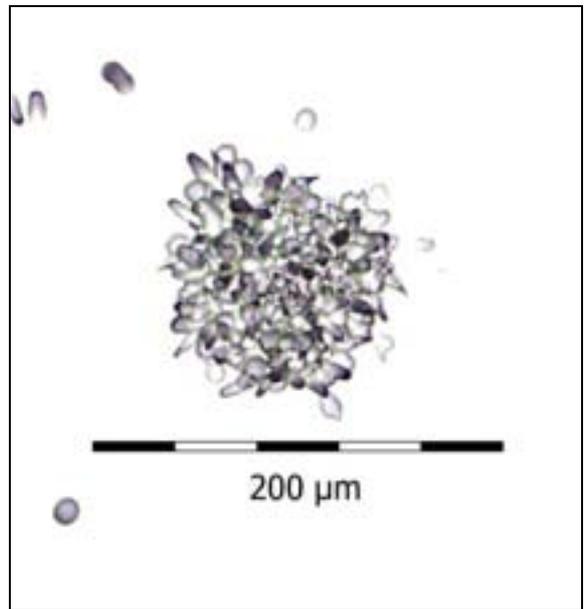
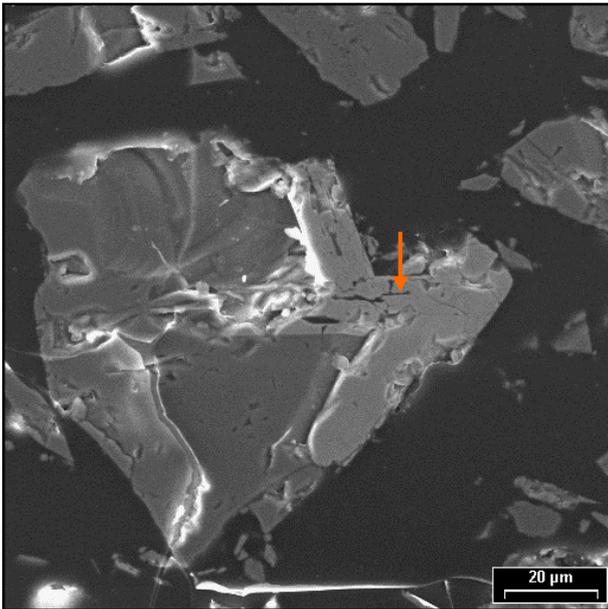
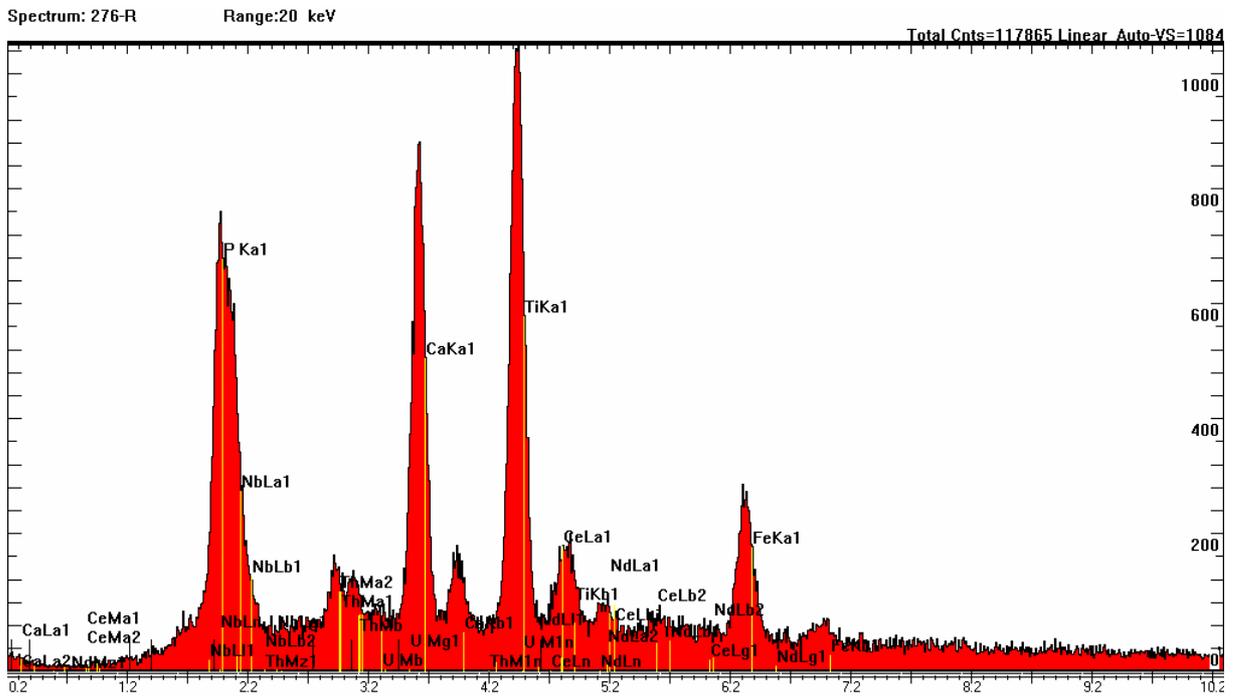
### Concentrate of rock Tapira-Araxá



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Probe Concentrate of rock Tapira-Araxá (276 o). Das detektierte alphaemittierende Partikel ist ein Betafit (heller Bereich im Korn an Pfeilspitze). Dieser Bereich ist ca. 30×30 µm groß. Der Betafit ist mit Apatit verwachsen (ca. 40×40 µm groß, mittelgraues Körnchen in der Bildmitte).

## Tafel 63

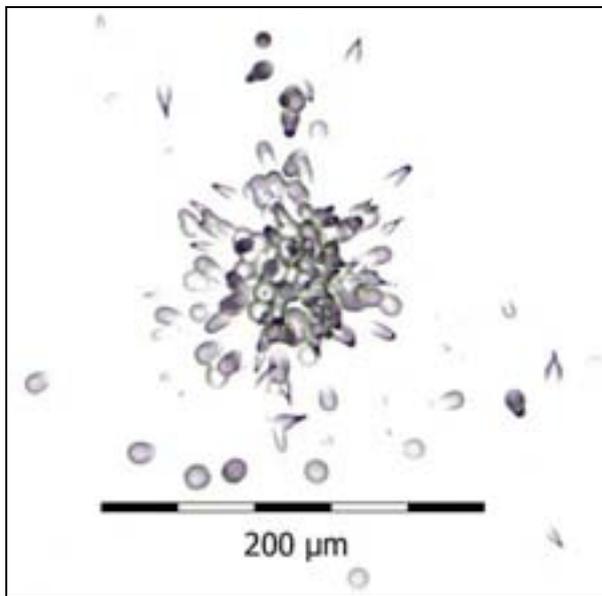
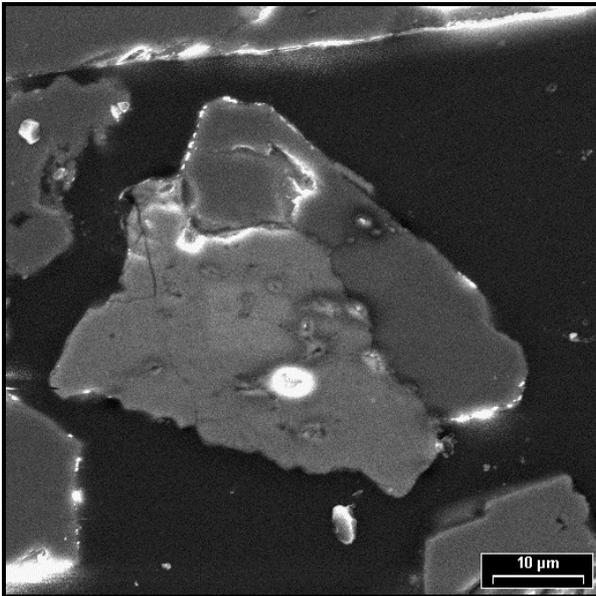
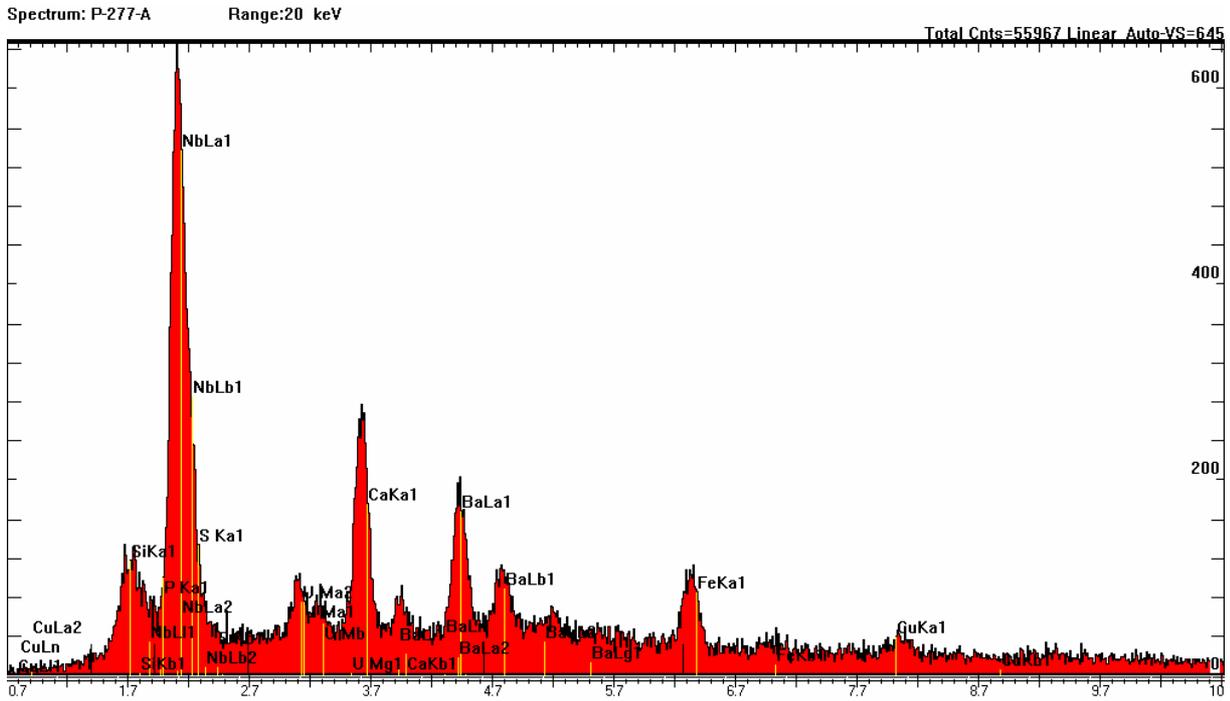
### Concentrate of rock Tapira-Araxá



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Probe Concentrate of rock Tapira-Araxá (276 r). Es handelt sich hier wiederum um eine Verwachsung von Betafit (hellere Bereiche im Korn, Pfeilspitze) mit Apatit (ca.  $80 \times 93 \mu\text{m}$  großes mittelgraues Körnchen in der Bildmitte).

# Tafel 64

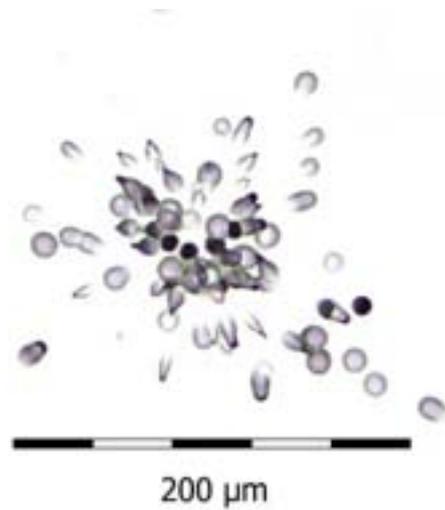
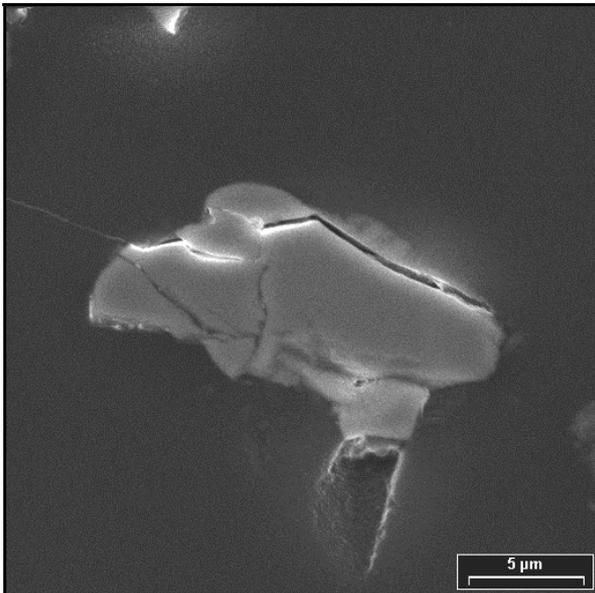
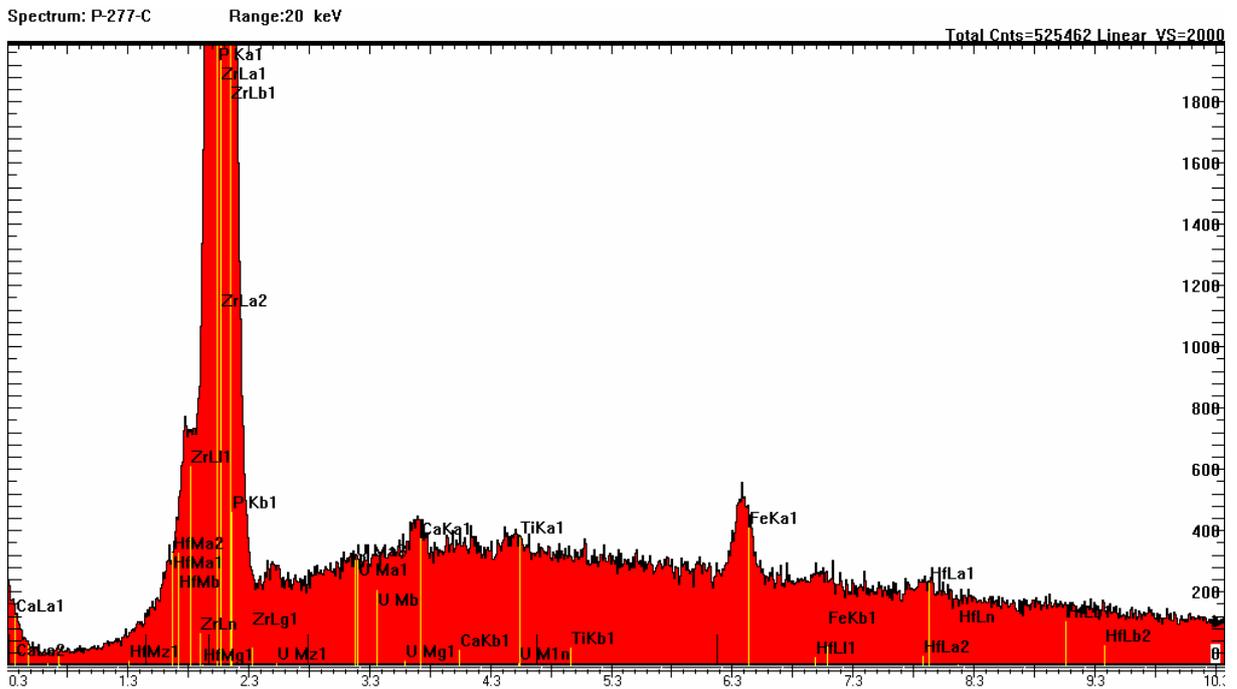
## Concentrate of rock Catalão



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Probe Concentrate of rock Catalão (277 a). Es handelt sich hier um eine Verwachsung von Betafit (hellerer, unterer Bereich des Kornes in der Bildmitte) mit Apatit. Das Betafitkorn ist ca.  $22 \times 37 \mu\text{m}$  groß.

# Tafel 65

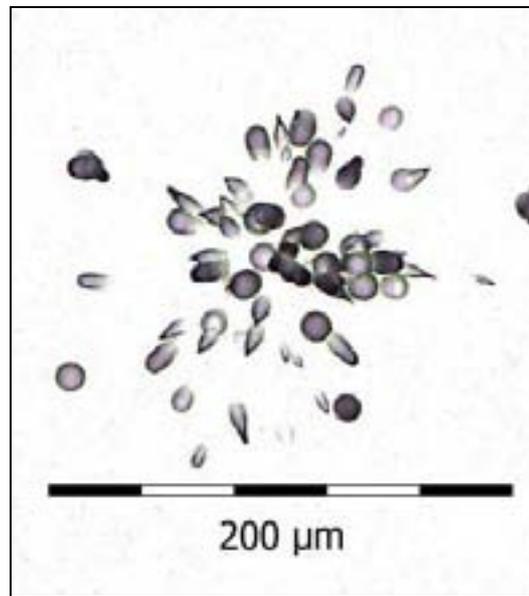
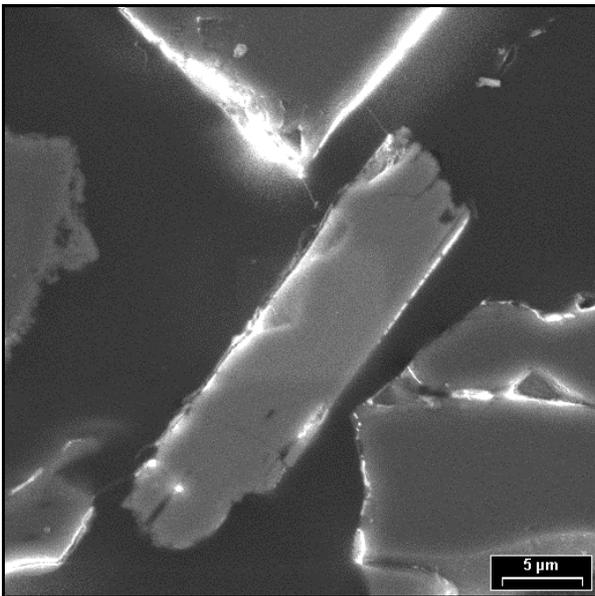
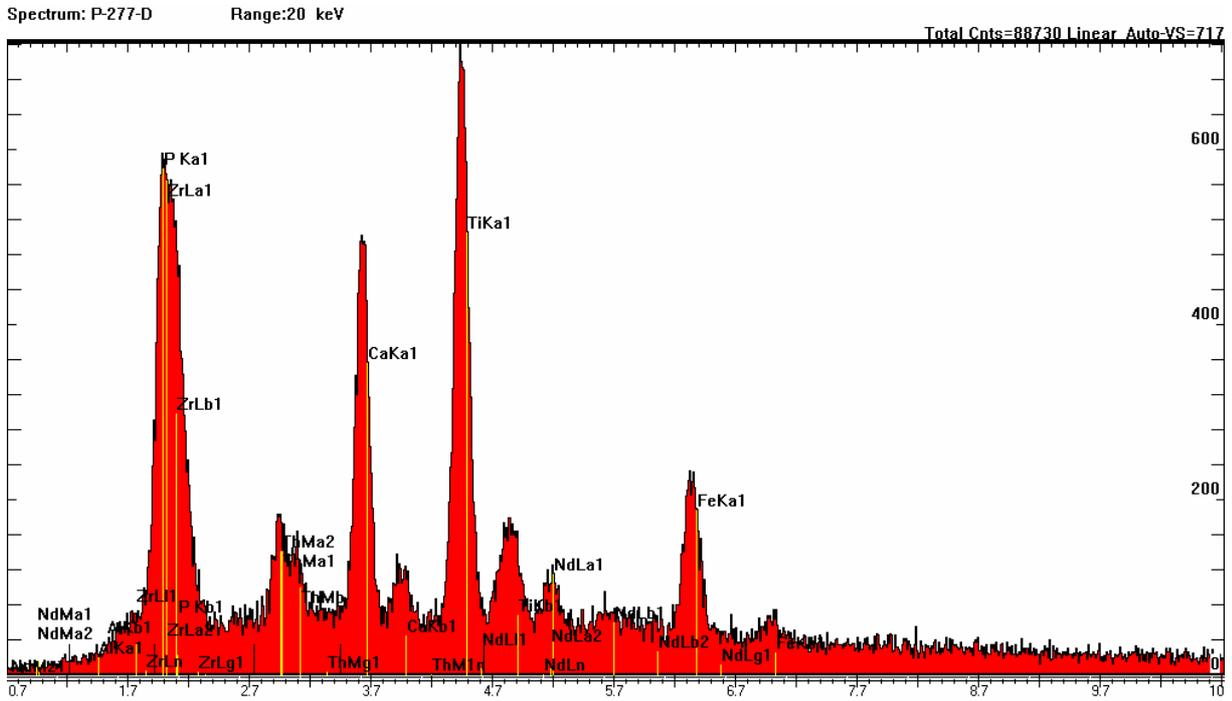
## Concentrate of rock Catalão



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Probe Concentrate of rock Catalão (277 c). Es handelt sich hier um ein ca.  $7,5 \times 17,5 \mu\text{m}$  großes Korn (Bildmitte) aus Zr, Hf, Fe, Ca, Ti, das wenig Uran enthält.

# Tafel 66

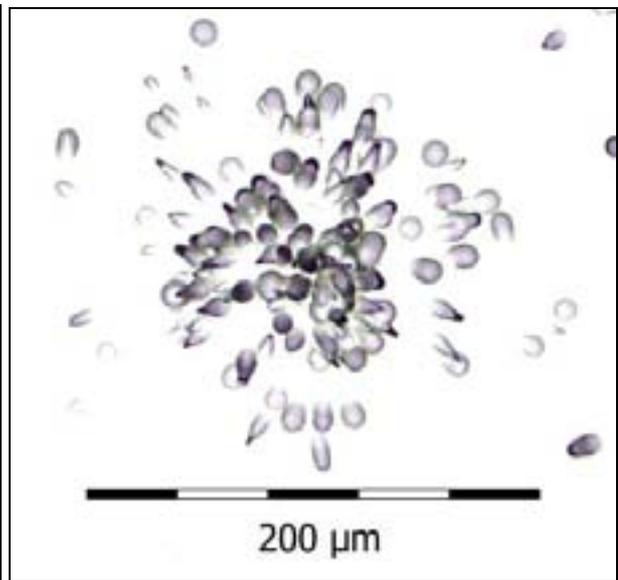
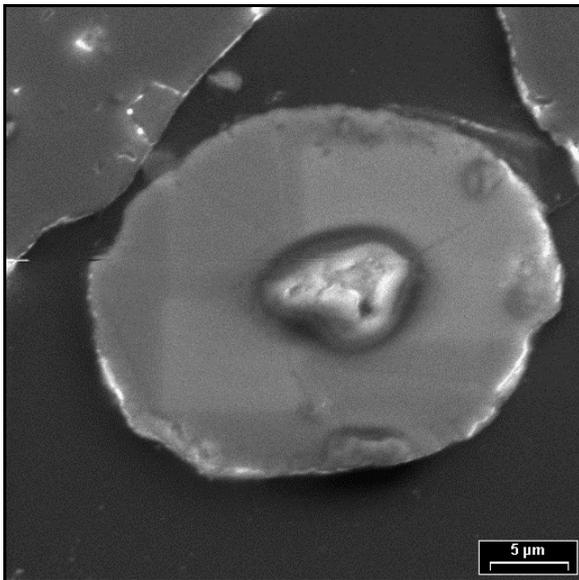
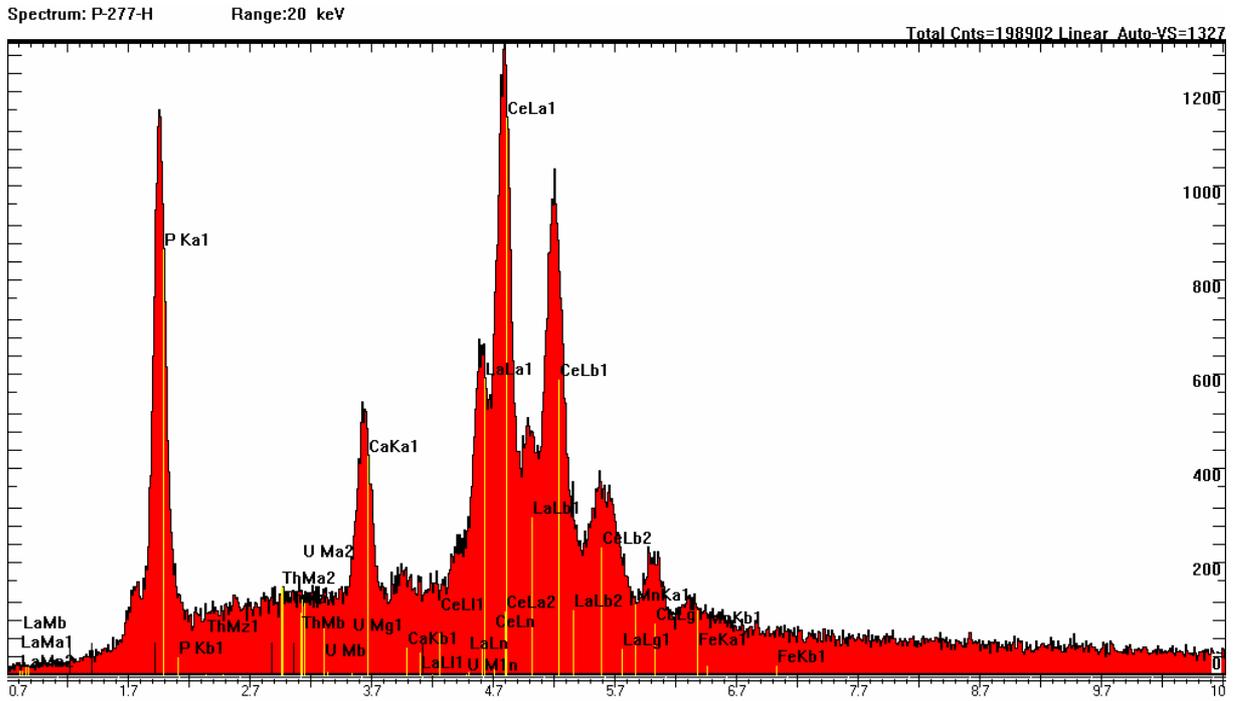
## Concentrate of rock Catalão



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Probe Concentrate of rock Catalão (277 d). Es handelt sich hier um ein ca.  $7 \times 29 \mu\text{m}$  großes Betafitpartikelchen (Bildmitte, mittelgraues stängliges Korn), vermutlich in Verwachsung mit Apatit.

# Tafel 67

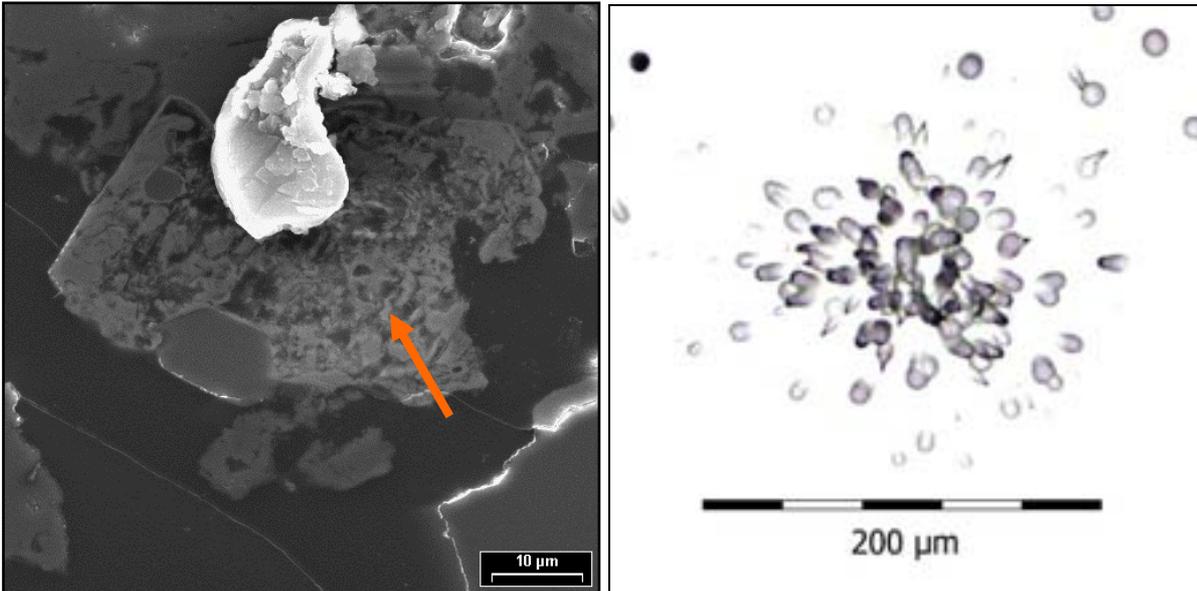
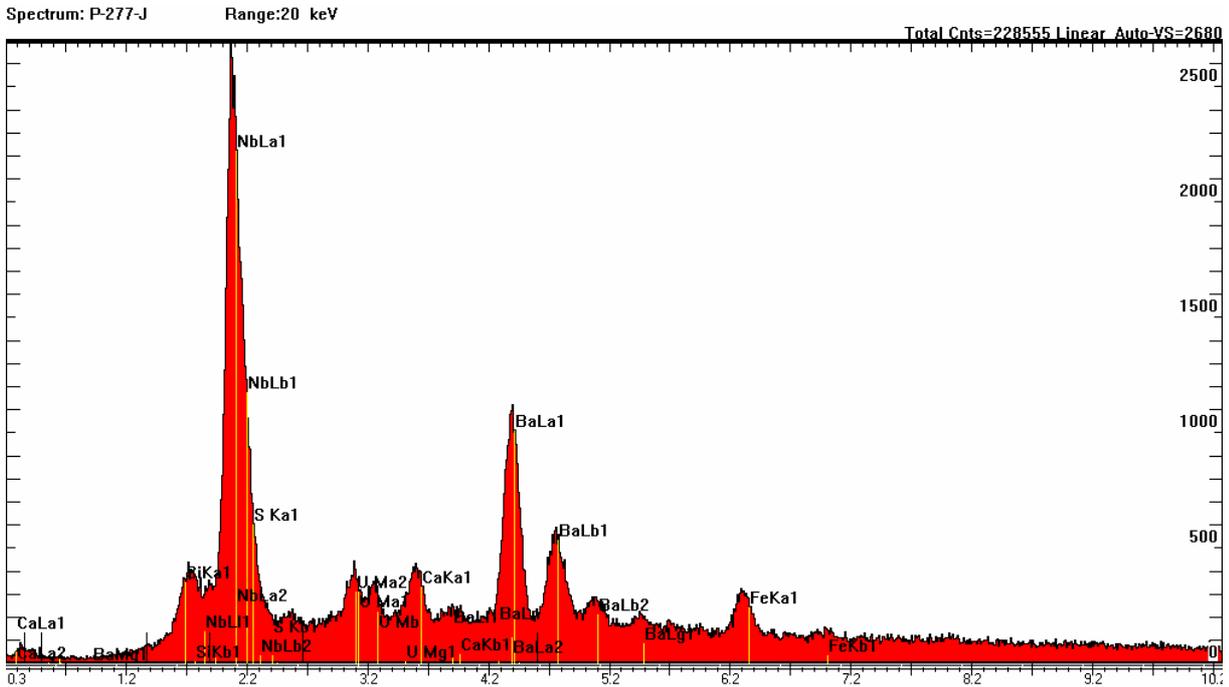
## Concentrate of rock Catalão



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Probe Concentrate of rock Catalão (277 h). Es handelt sich hier um ein ca. 23×29 μm großes Monazitkorn (Bildmitte, mittelgraues rundes Korn) mit geringen Gehalten an Thorium und Uran.

# Tafel 68

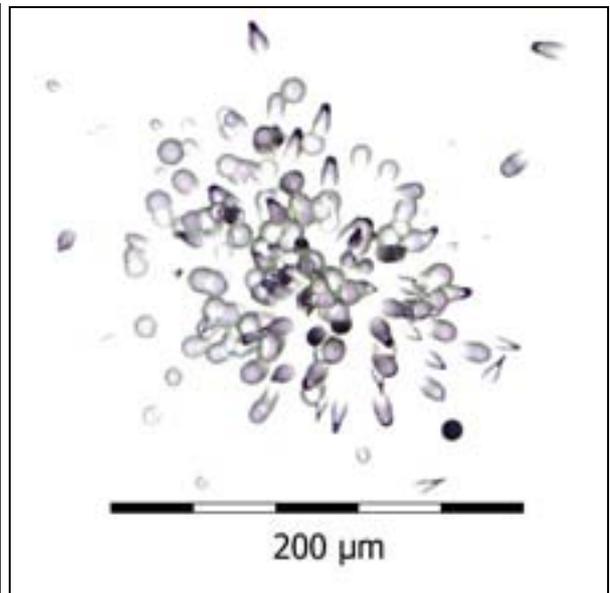
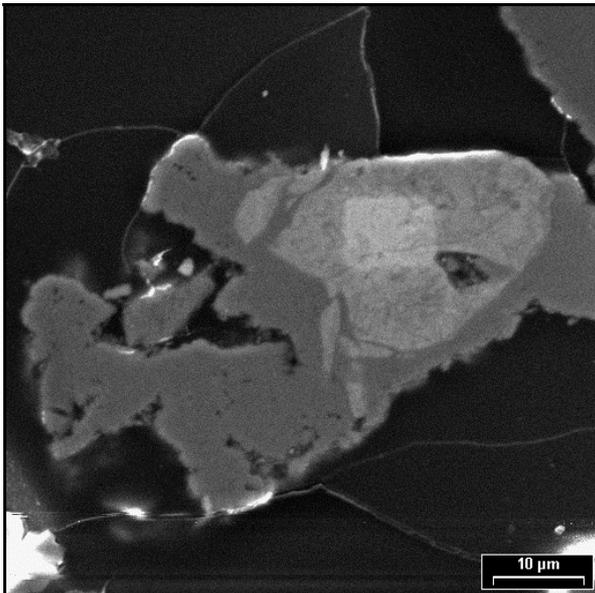
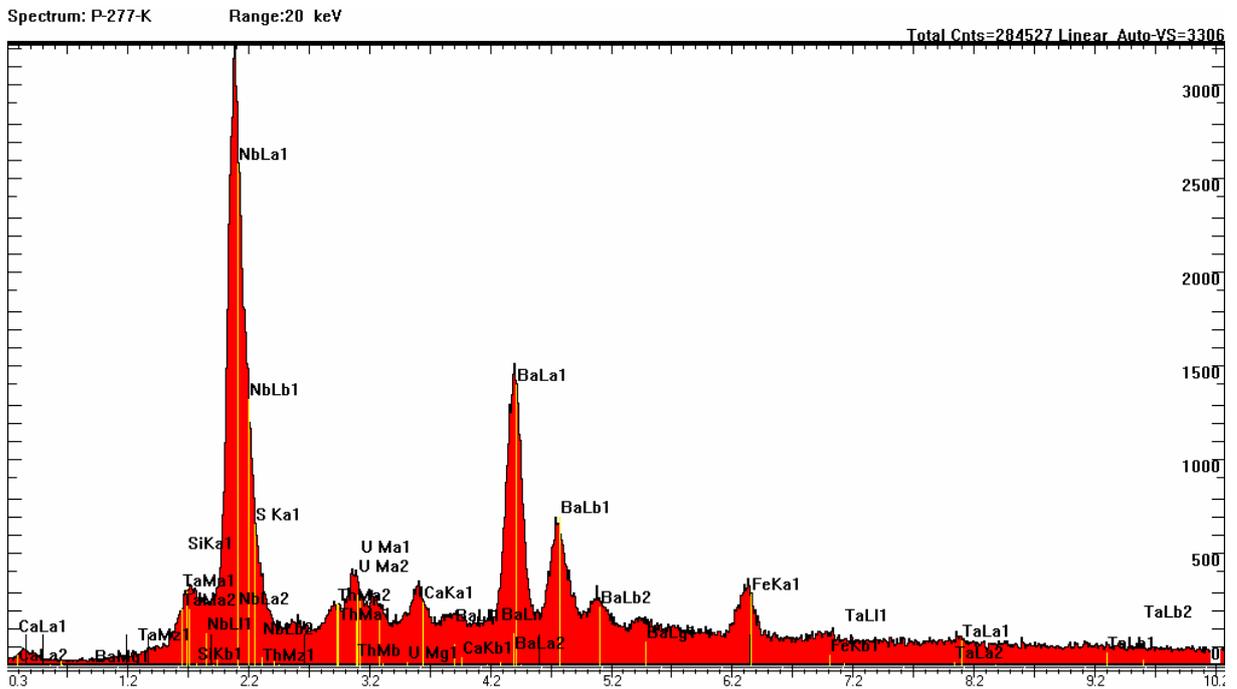
## Concentrate of rock Catalão



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Probe Concentrate of rock Catalão (277 j). Es handelt sich hier um eine Verwachsung von Baryt mit Betafit (helle Bereiche im Korn, Pfeil). Das Körnchen ist ca. 31×41 µm groß. Der Betafit enthält Uran. Das weiße Körnchen im oberen Bildbereich der REM-Aufnahme ist ein Fremdkörper, der auf der Probenoberfläche liegt.

## Tafel 69

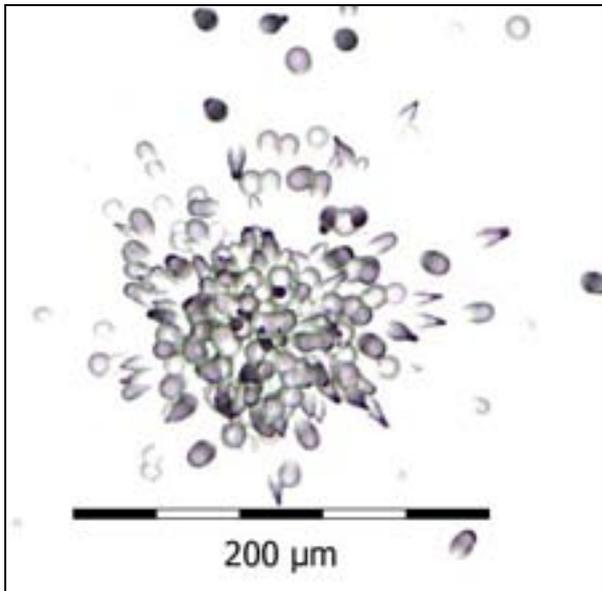
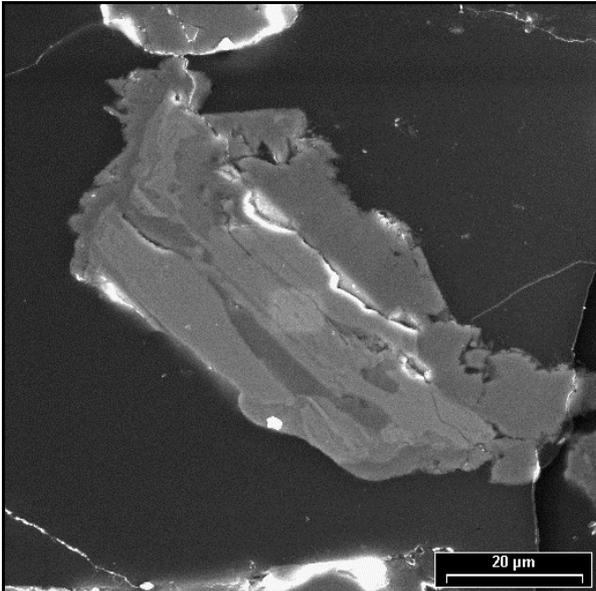
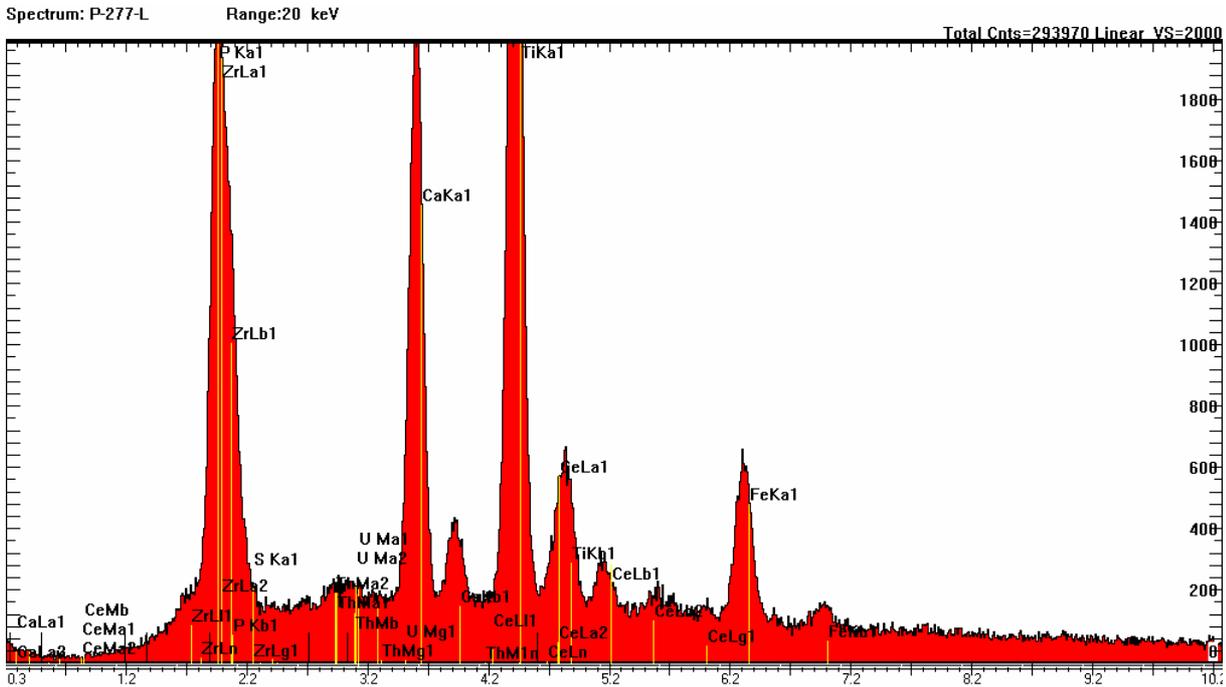
### Concentrate of rock Catalão



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Probe Concentrate of rock Catalão (277 k). Es handelt sich hier wiederum um eine Verwachsung von Baryt (dunkle Kornbereiche, ca.  $38 \times 63 \mu\text{m}$  groß) mit Betafit (helle Kornbereiche, ca.  $19 \times 31 \mu\text{m}$  groß). Der Betafit enthält Uran und Thorium als Alphaemitter. Das helle Rechteck auf dem Betafitkorn zeigt den Bereich, der bei der REM-Untersuchung abgerastert wurde.

# Tafel 70

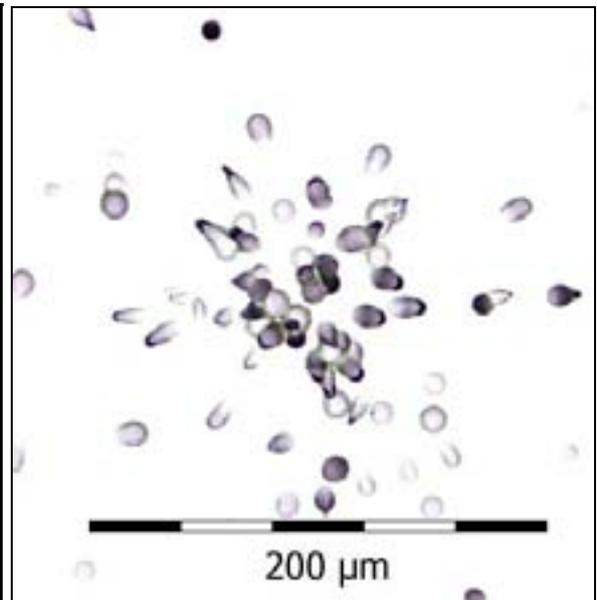
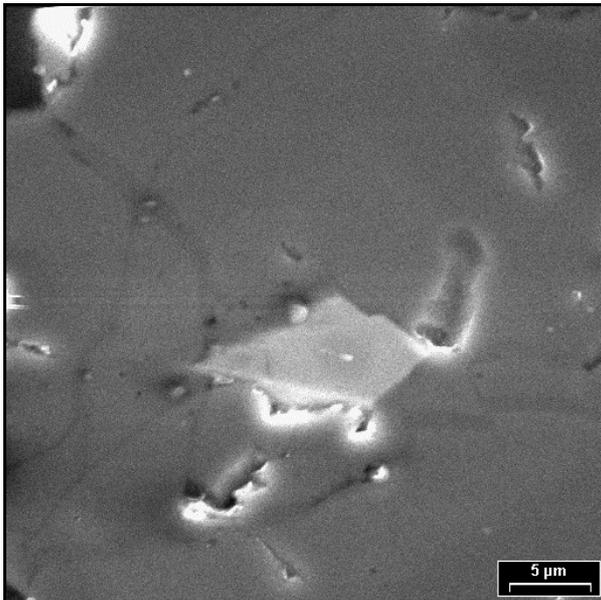
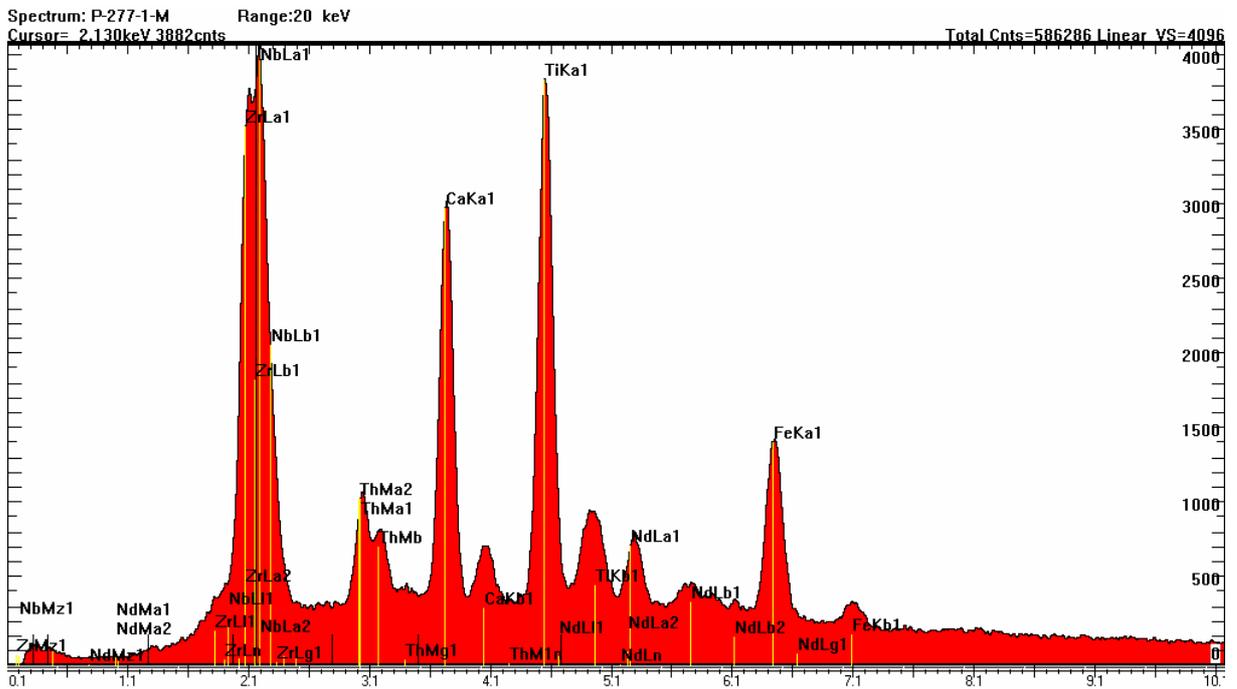
## Concentrate of rock Catalão



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Probe Concentrate of rock Catalão (277 l). Verwachsung von Apatit (dunkle Kornbereiche) mit Betafit (helle Kornbereiche). Der ca. 35×78 μm große Apatit enthält einen ca. 22×60 μm großen Bereich aus Betafit.

# Tafel 71 – Teil A

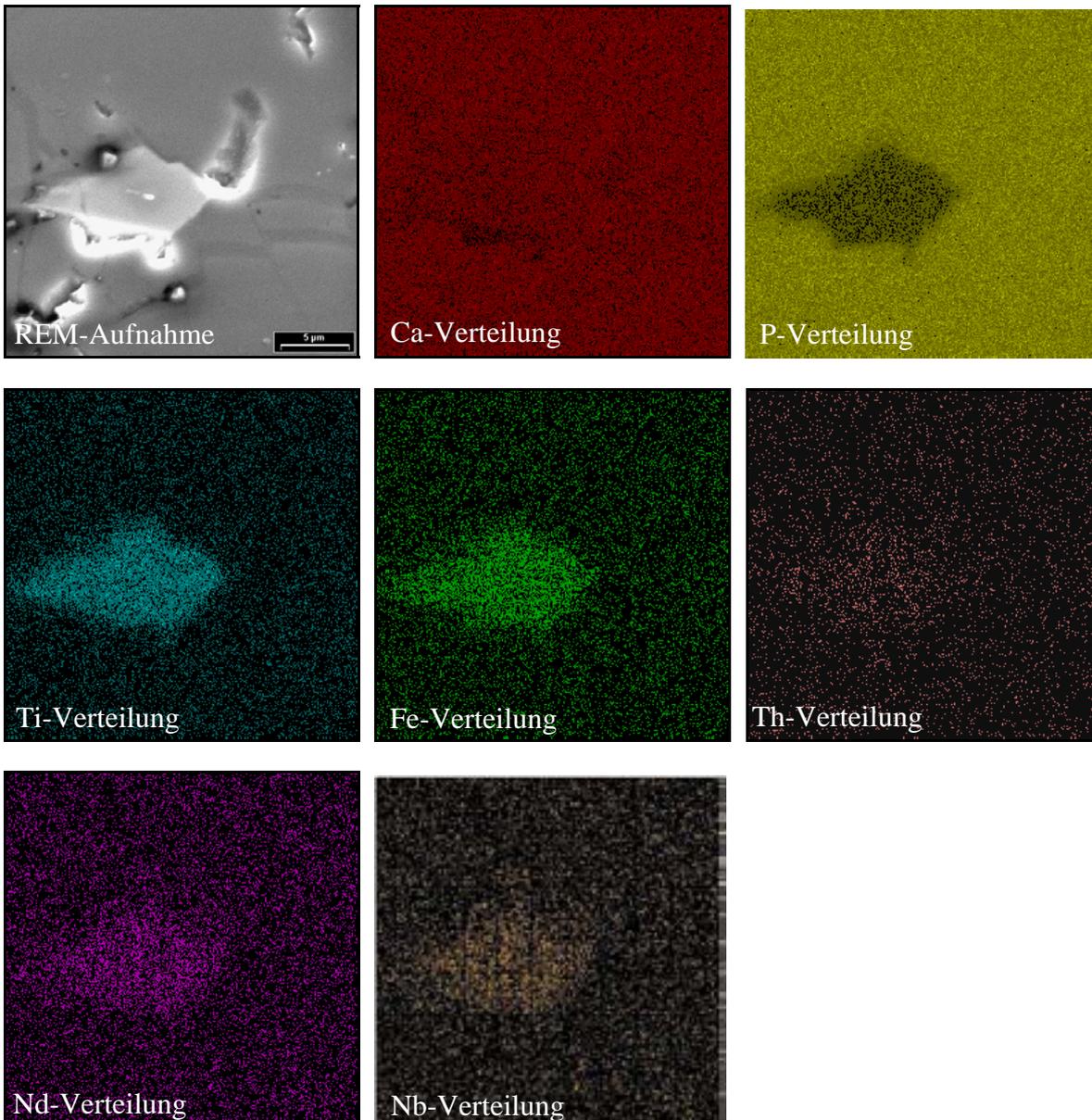
## Concentrate of rock Catalão



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Probe Concentrate of rock Catalão (277 m). Es handelt sich hier um ein ca.  $7 \times 13 \mu\text{m}$  großes Betafitkorn (Bildmitte, helles Korn), das mit einem Apatit verwachsen ist.

## Tafel 71 – Teil B

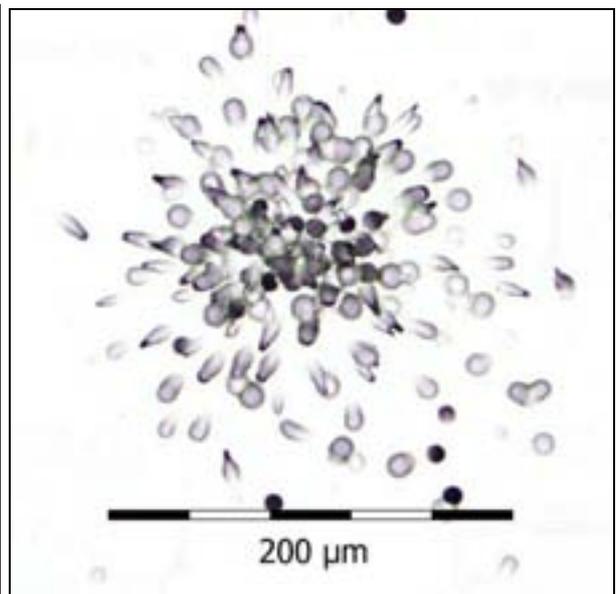
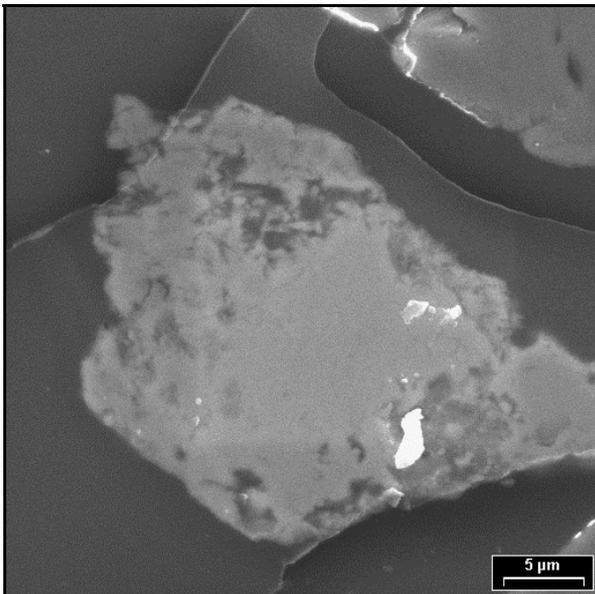
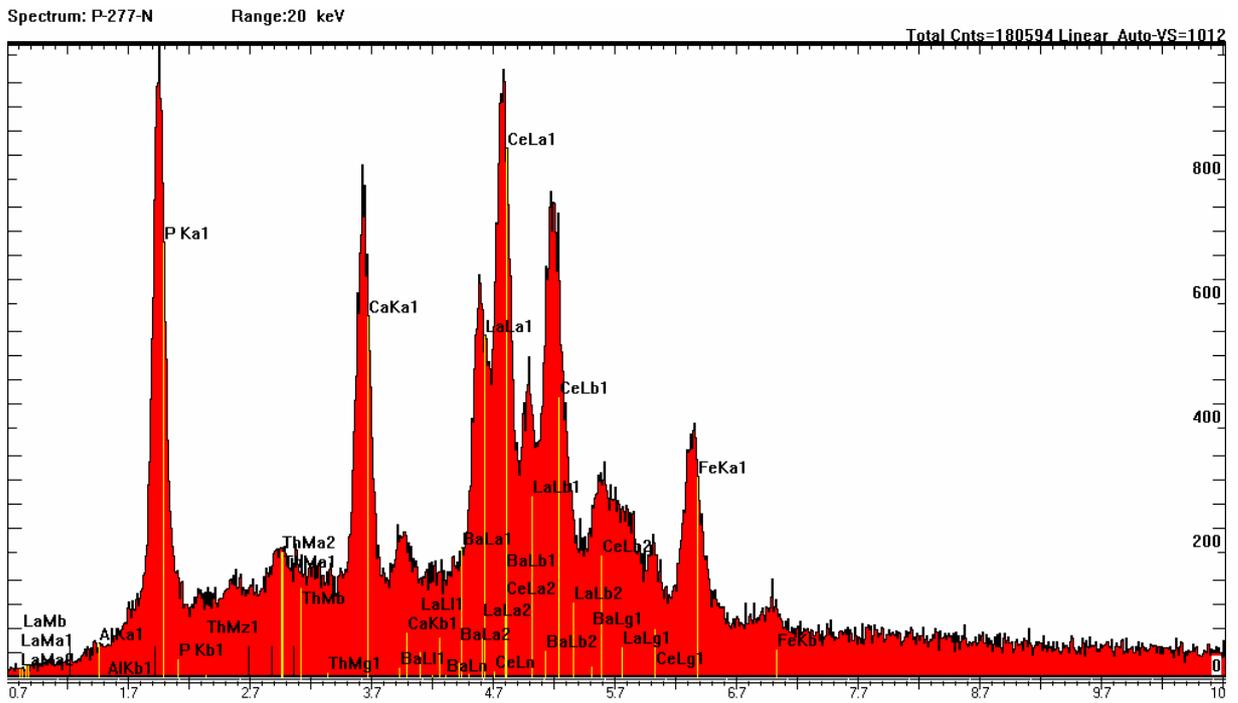
### Concentrate of rock Catalão



REM-Aufnahme und Elementverteilungsbilder der Probe Concentrate of rock Catalão (277 m). Die Elemente Ti, Fe, Th, Nd und Nb konzentrieren sich in dem kleinen rhombischen Körnchen (Bildmitte der REM-Aufnahme). Ca ist im gesamten detektierten Bereich vertreten. Entsprechend dieser Elementgehalte kann man bei dem rhombischen Körnchen auf einen Betafit, chemische Formel  $(Ca, Na, Th, U)_2 (Ti, Nb, Ta)_2 O_6 (OH, F)$ , schließen. Dieser ist eingebettet in einen Apatit, chemische Formel  $Ca_5(PO_4)_3$ . Im Spektrum finden sich die entsprechenden Elemente Ca und P.

## Tafel 72

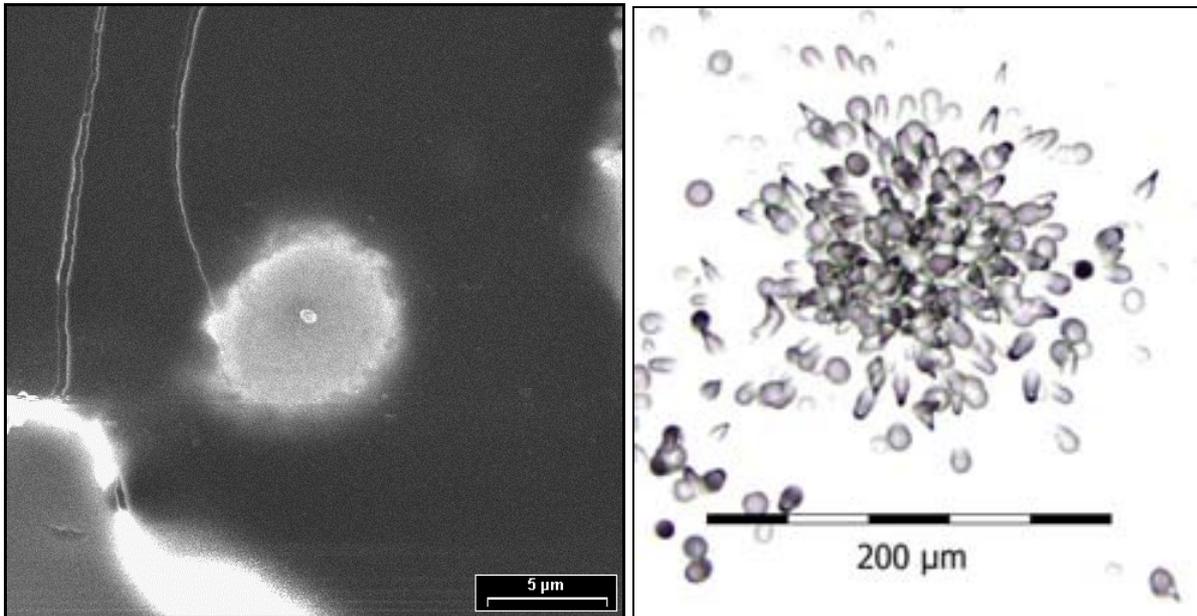
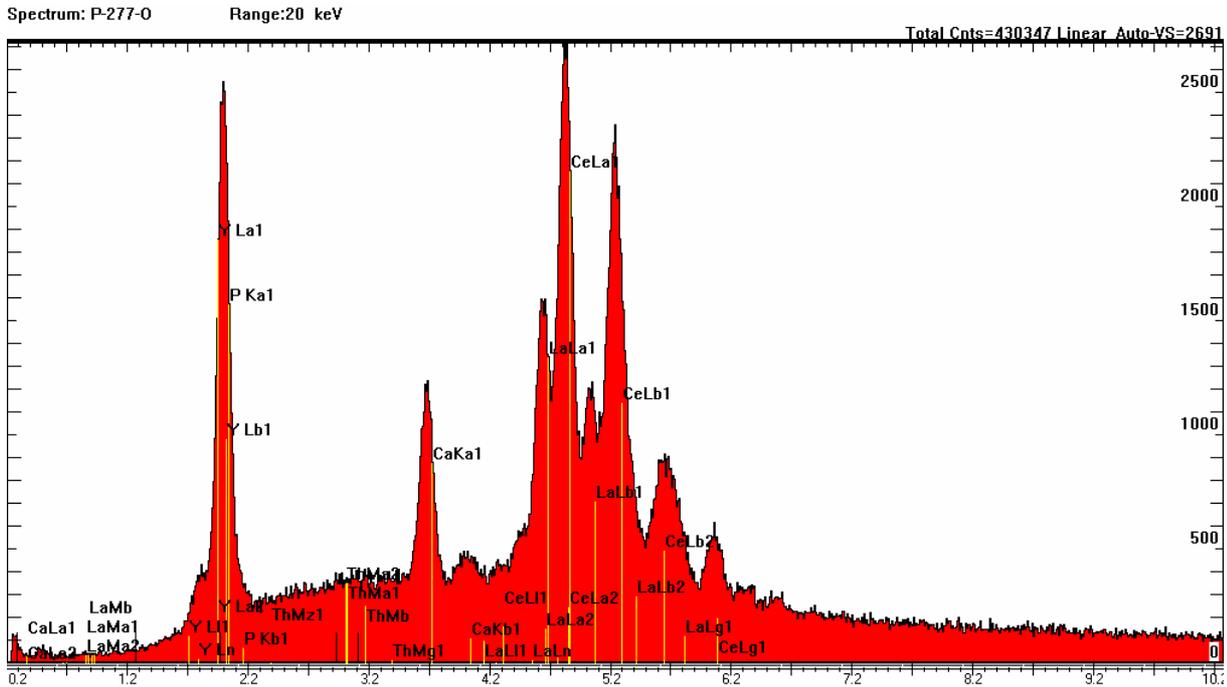
### Concentrate of rock Catalão



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Probe Concentrate of rock Catalão (277 n). Es handelt sich hier um ein ca. 25×25 μm großes Monazitkorn (Bildmitte, mittelgraues Korn).

# Tafel 73

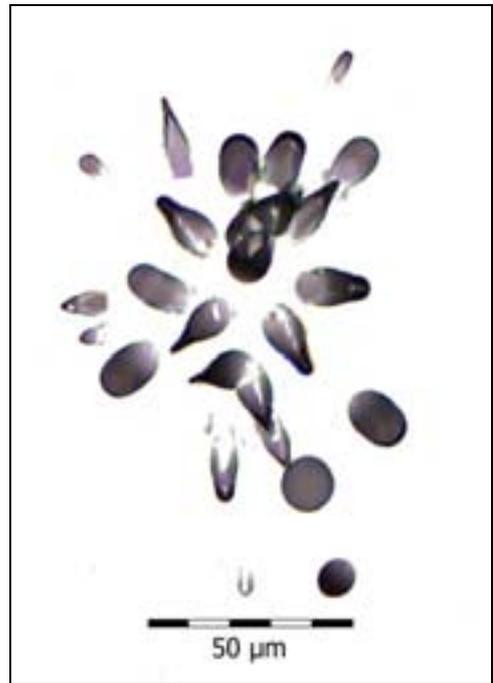
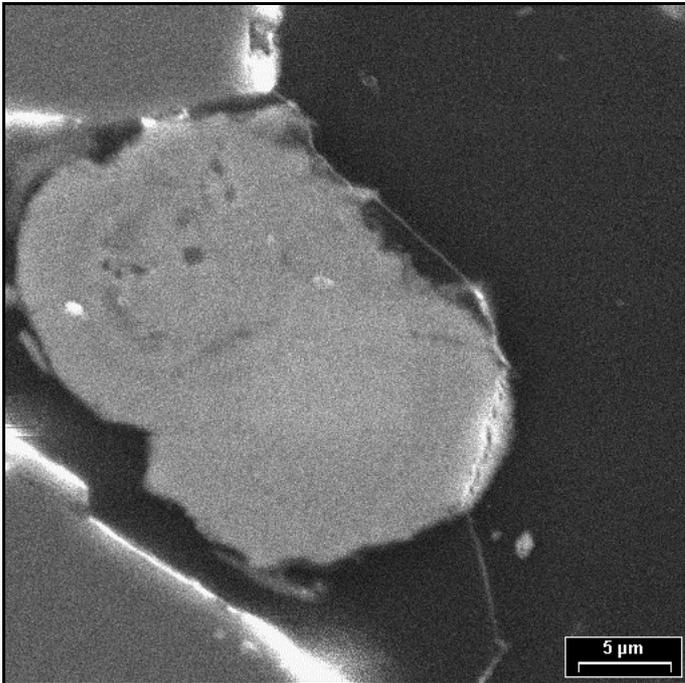
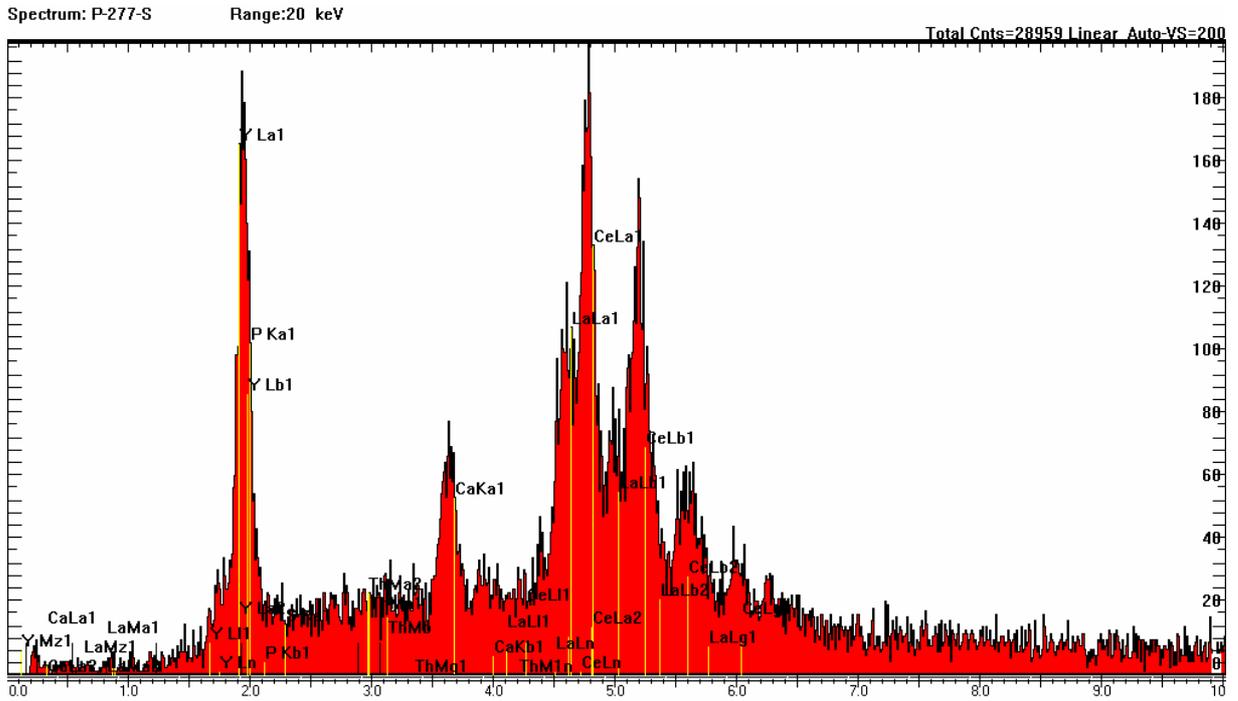
## Concentrate of rock Catalão



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Probe Concentrate of rock Catalão (277 o). Es handelt sich hier um ein ca.  $15 \times 15 \mu\text{m}$  großes Monazitkorn (Bildmitte, hellgraues Korn). Trotz des laut Spektrum relativ geringen Thoriumgehaltes (sehr kleiner Thoriumpeak), hat das Sternspurmuster eine hohe Spurdichte.

# Tafel 74

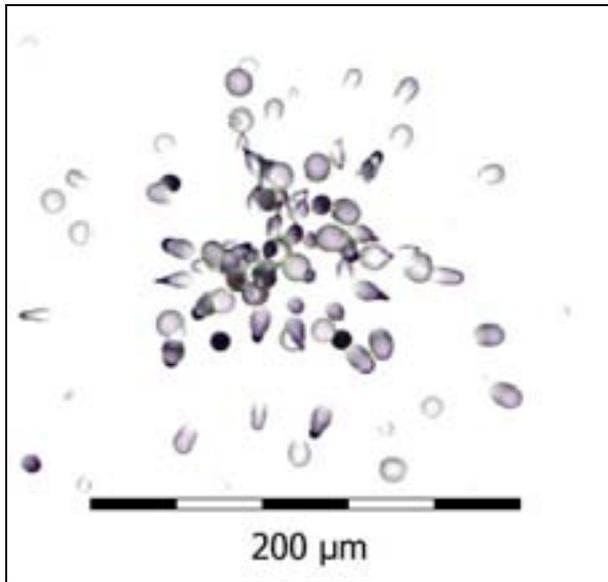
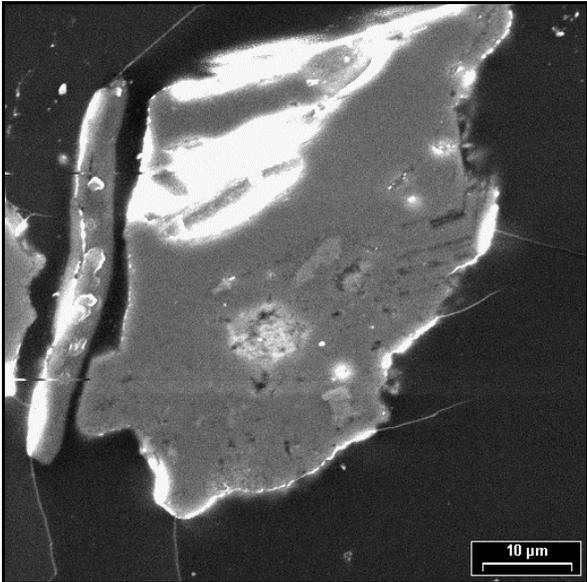
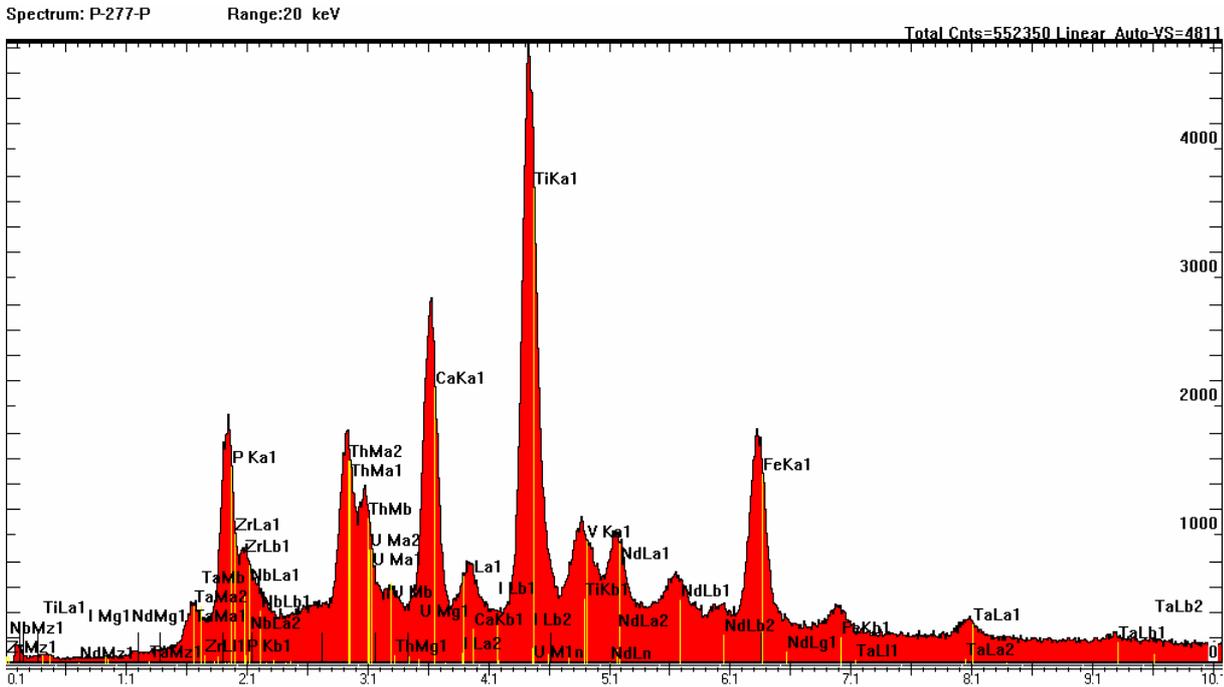
## Concentrate of rock Catalão



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Probe Concentrate of rock Catalão (277 s). Es handelt sich hier um ein ca. 18×29 µm großes Monazitkorn (Bildmitte, mittelgraues Korn).

## Tafel 75

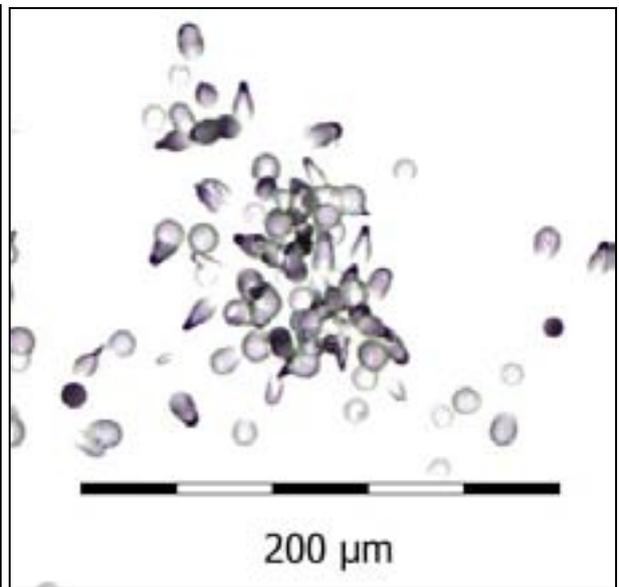
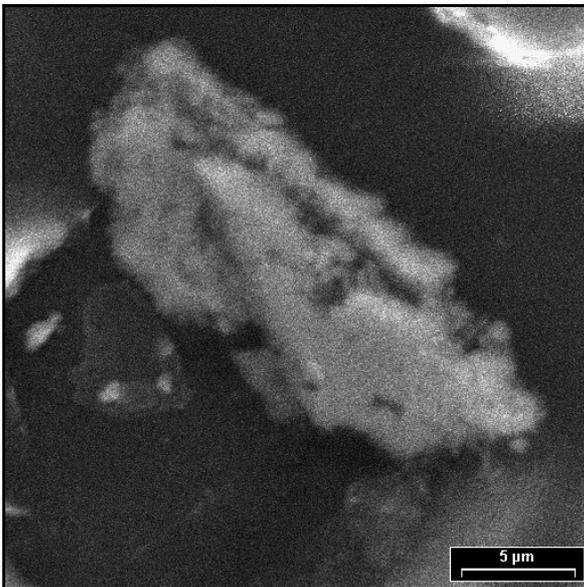
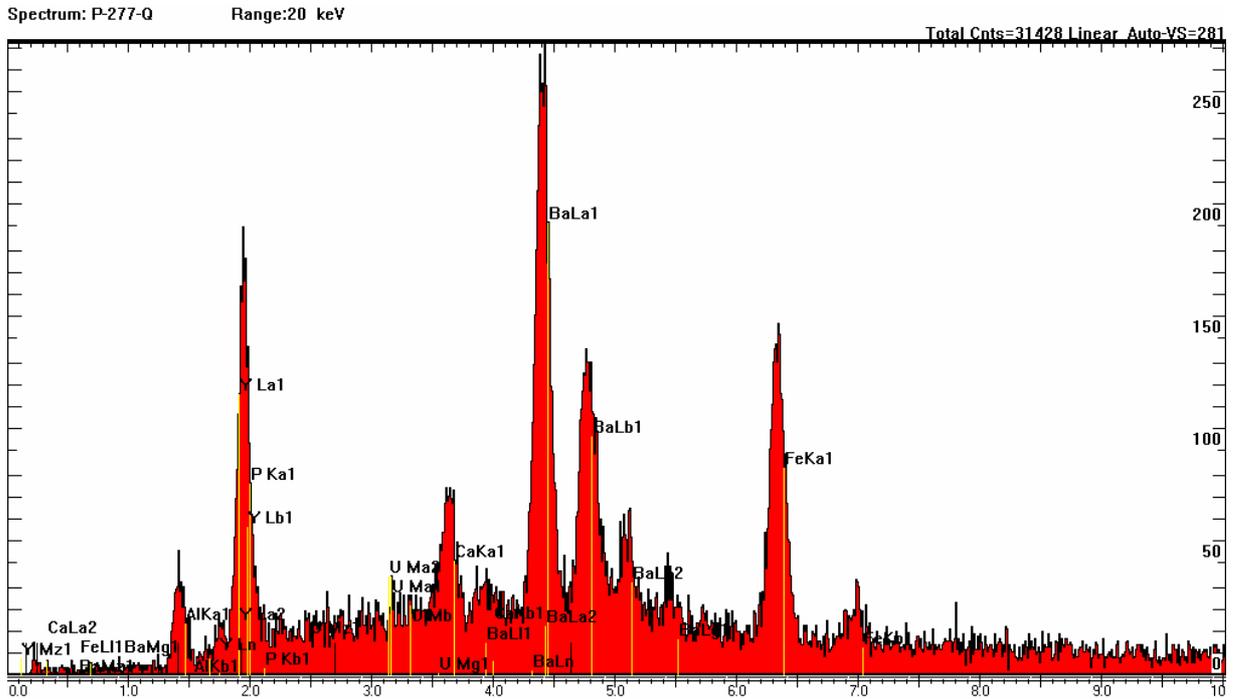
### Concentrate of rock Catalão



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Probe Concentrate of rock Catalão (277 p). Es handelt sich hier um ein ca.  $33 \times 67 \mu\text{m}$  großes Betafitkorn (Bildmitte, mittelgraues Korn). Die strahlend weißen Bereiche auf der REM-Aufnahme resultieren aus Aufladungseffekten bei der REM-Untersuchung.

## Tafel 76

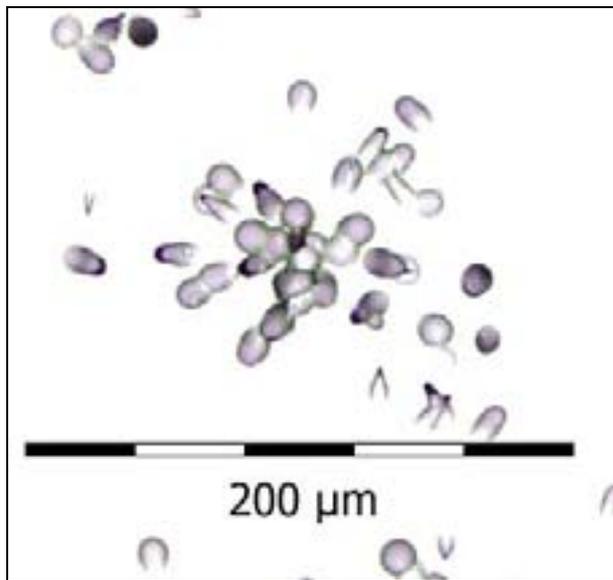
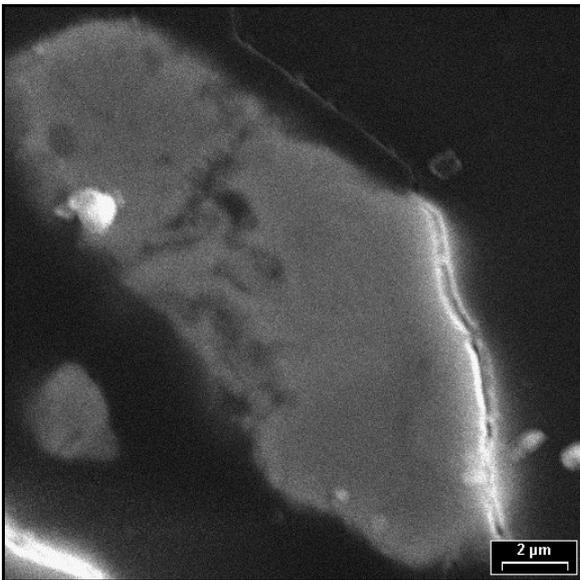
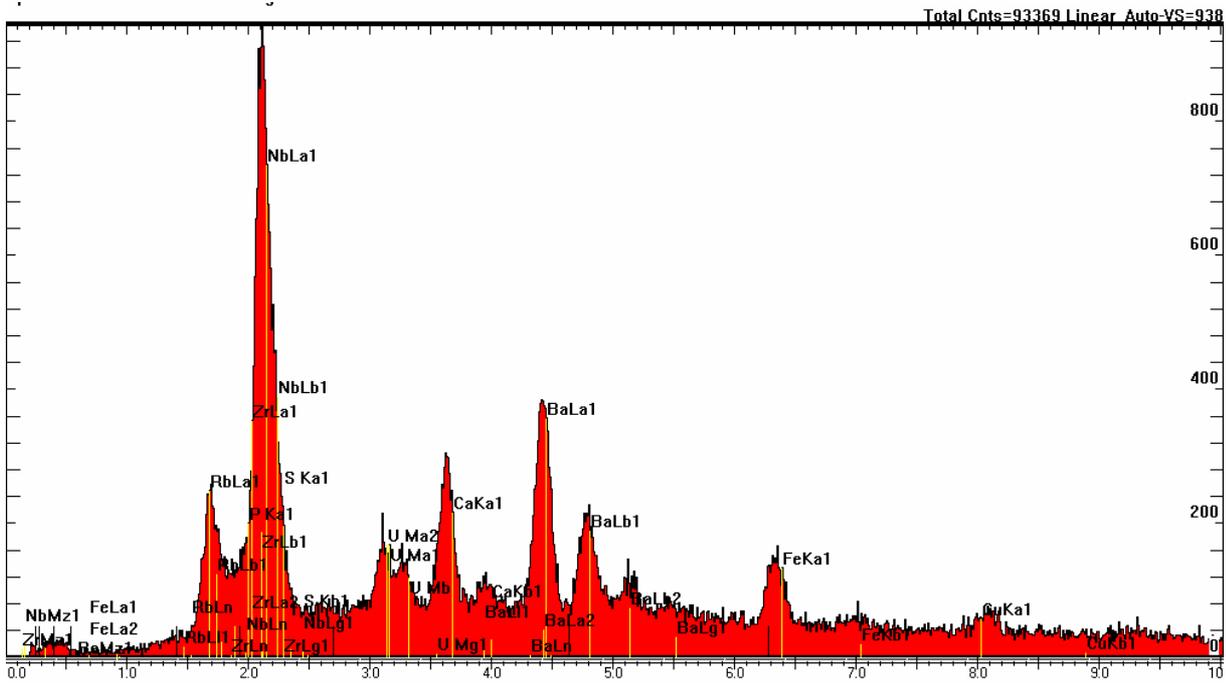
### Concentrate of rock Catalão



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Probe Concentrate of rock Catalão (277 q). Es handelt sich hier um ein ca.  $7,5 \times 22,5 \mu\text{m}$  großes Körnchen (Bildmitte, mittelgraues Korn) aus Ba, Fe und P sowie Ca und Uran. Die Heiße Teilchen-Spur ist sehr asymmetrisch mit geringer Spurdichte.

# Tafel 77

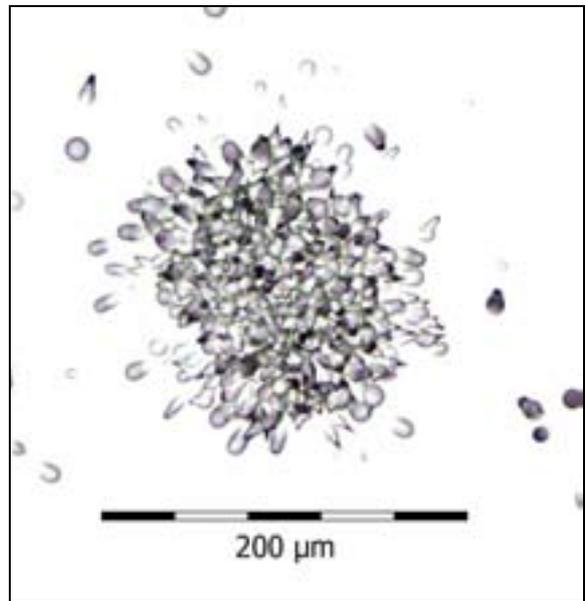
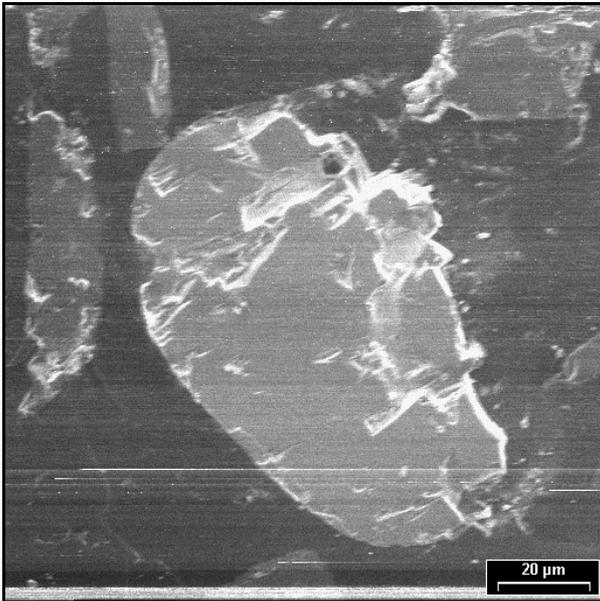
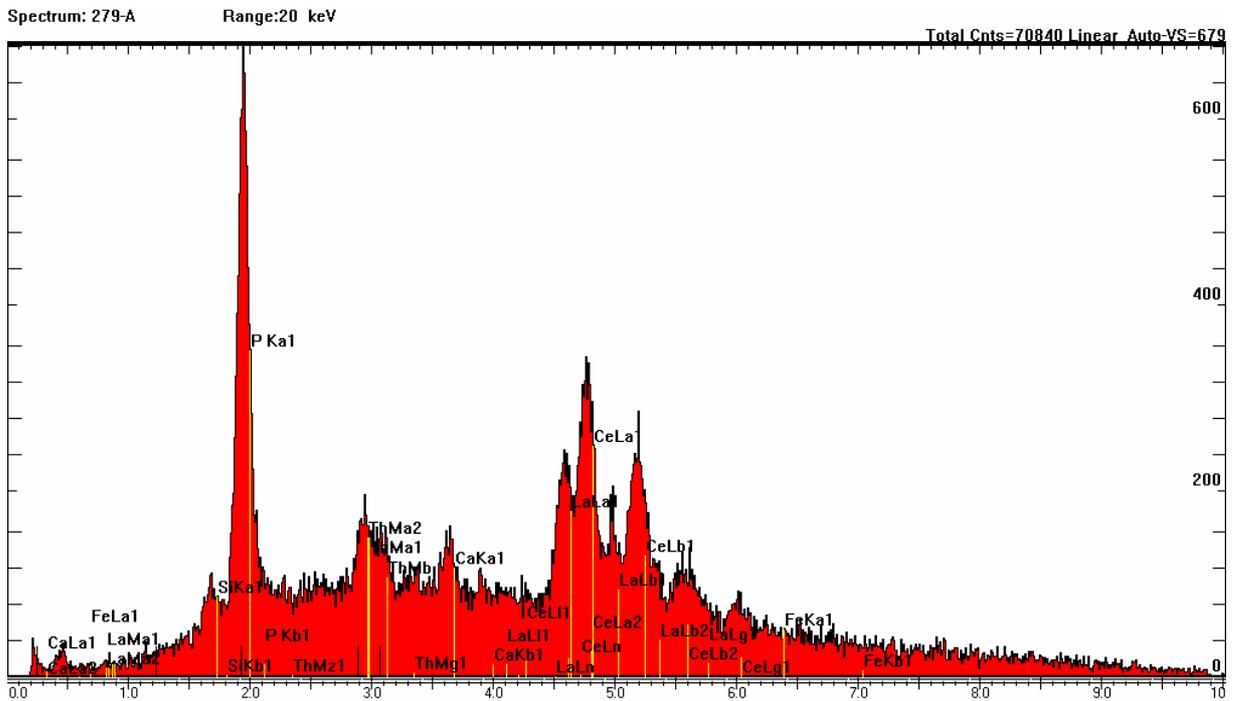
## Concentrate of rock Catalão



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Probe Concentrate of rock Catalão (277 t). Es handelt sich hier um ein ca.  $7 \times 20 \mu\text{m}$  großes Betafitkorn (Bildmitte, mittelgraues Korn) mit Uran.

## Tafel 78

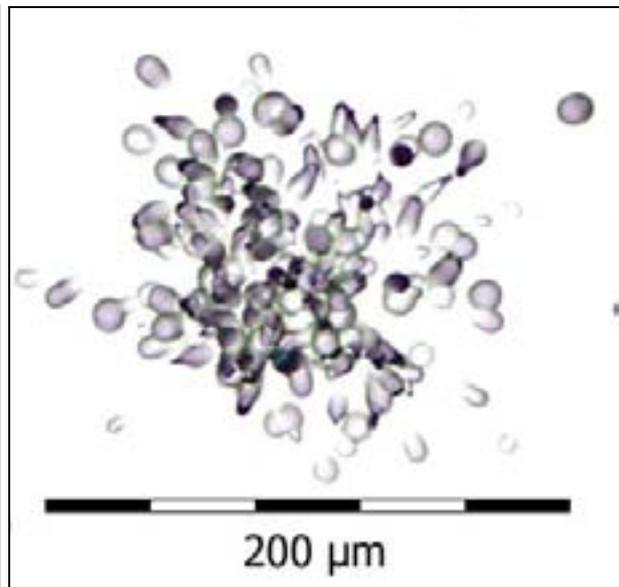
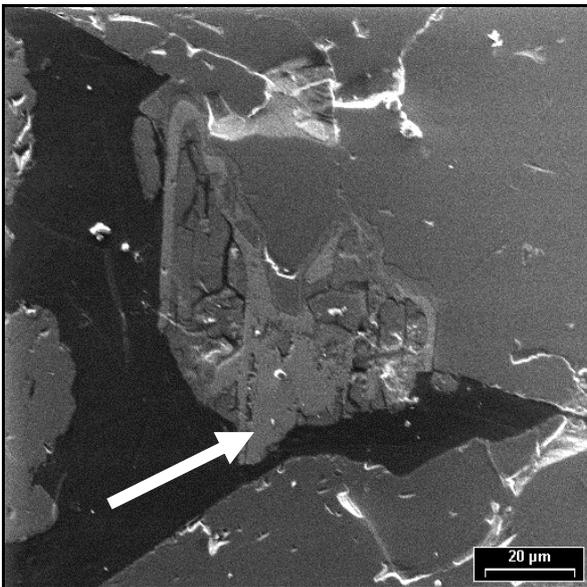
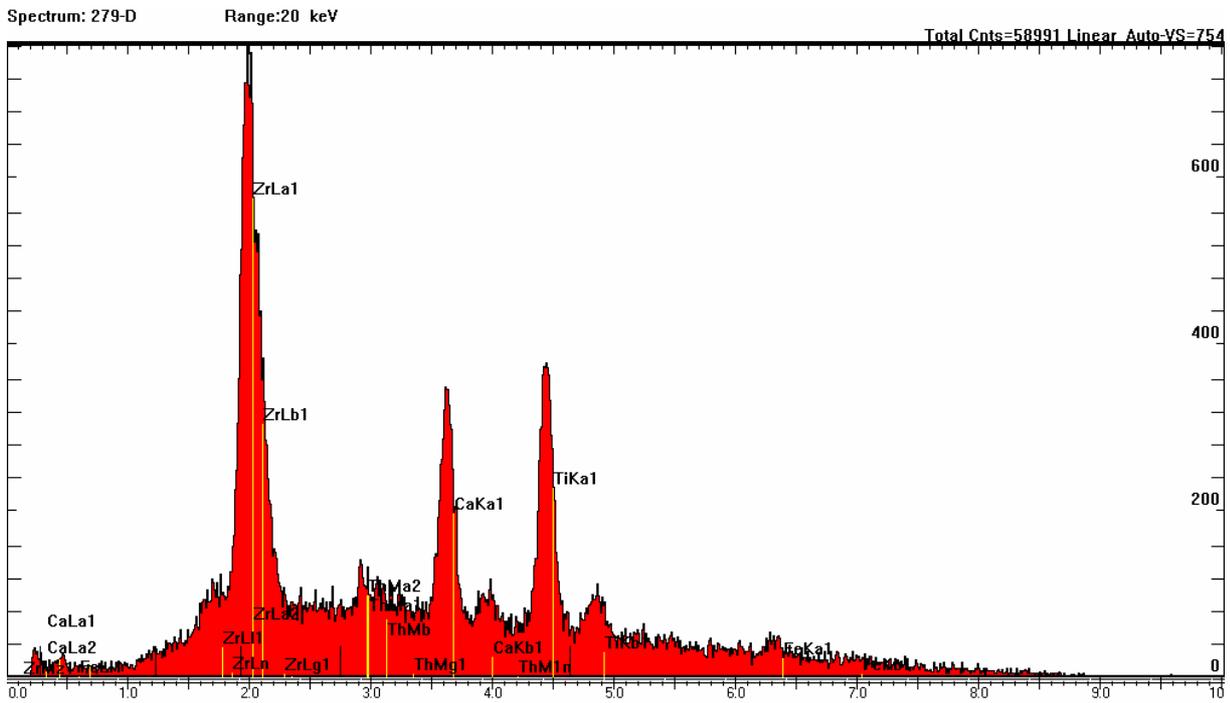
### Rocha fosfaticá Catalão



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Probe Rocha fosfaticá Catalão (279 a). Es handelt sich hier um ein ca.  $67 \times 106 \mu\text{m}$  großes Monazitkorn (Bildmitte, mittelgraues Korn).

# Tafel 79

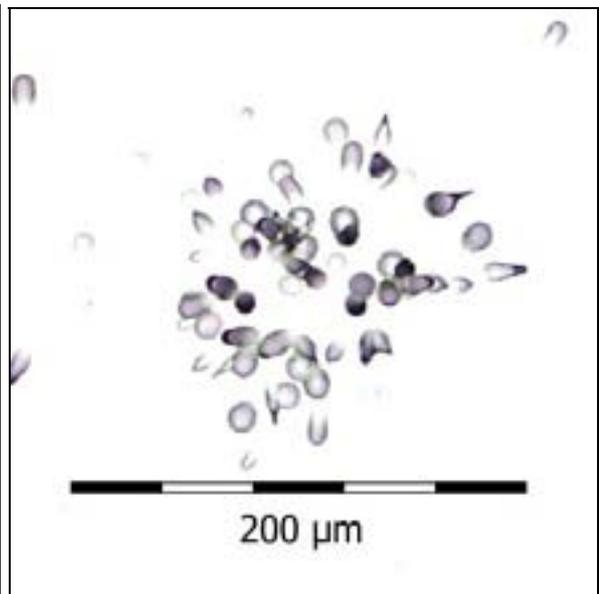
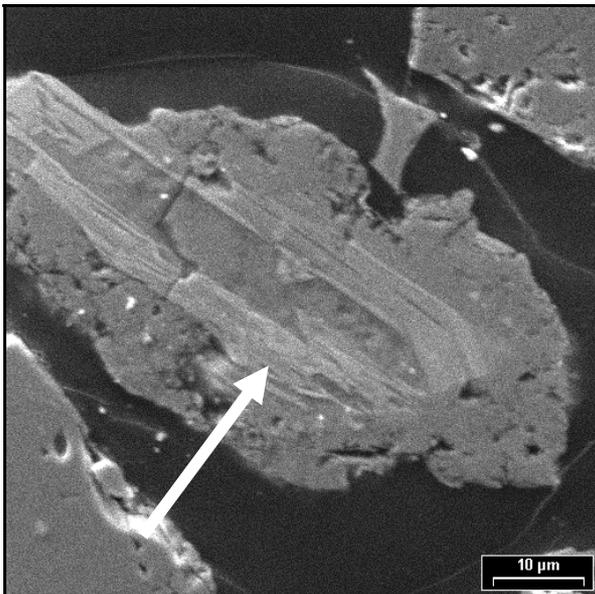
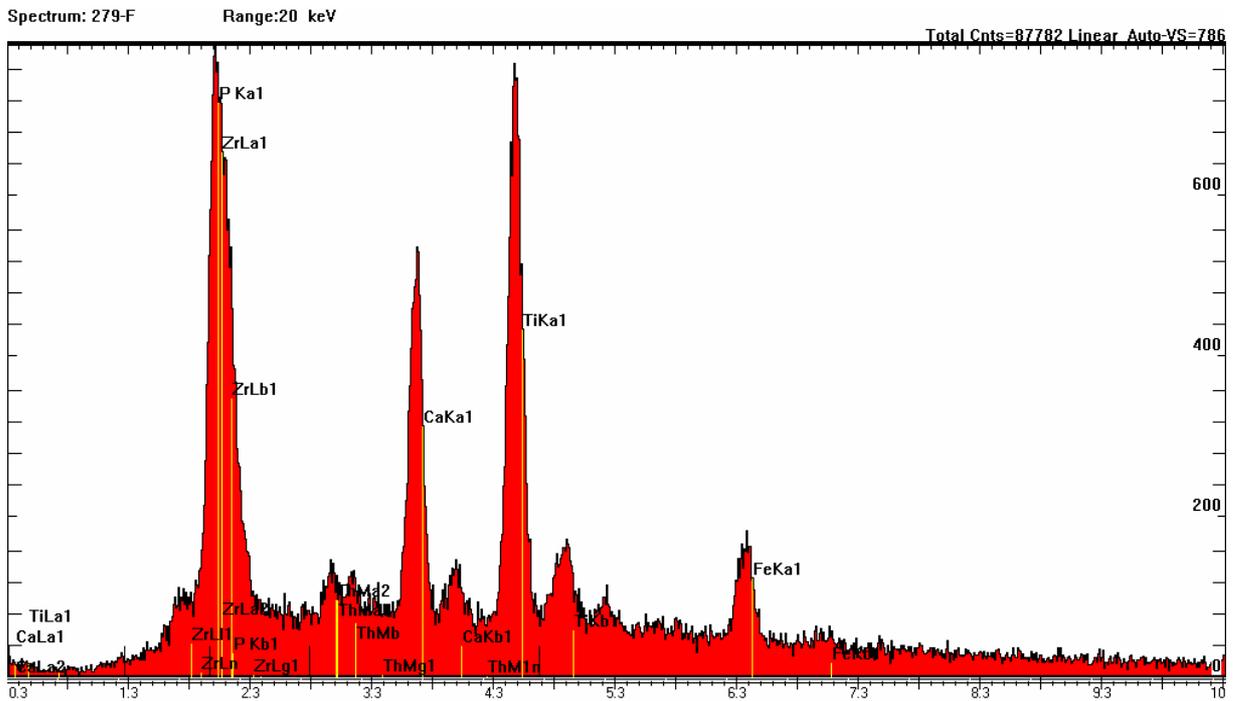
## Rocha fosfaticá Catalão



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines heißen Teilchens der Probe Rocha fosfaticá Catalão (279 d). Es handelt sich hier um einen ca. 40×54 µm großen hellen Bereich aus ??Be-tafit/??Titanit, Ilmenit + Zirkonium mit Uran (Pfeil) in einem größeren Korn..

## Tafel 80

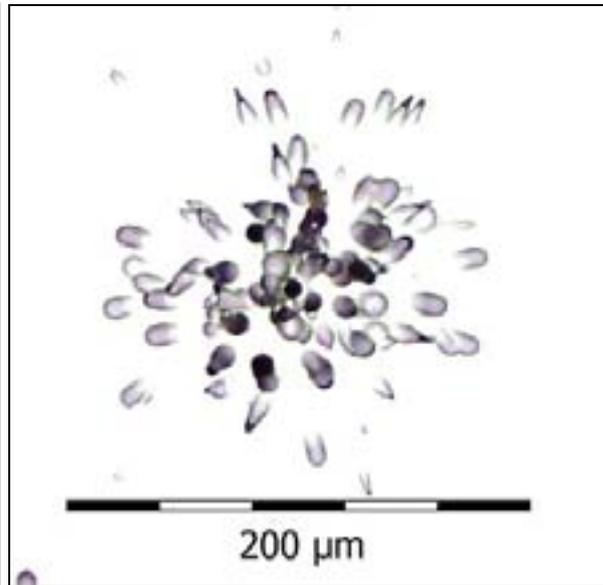
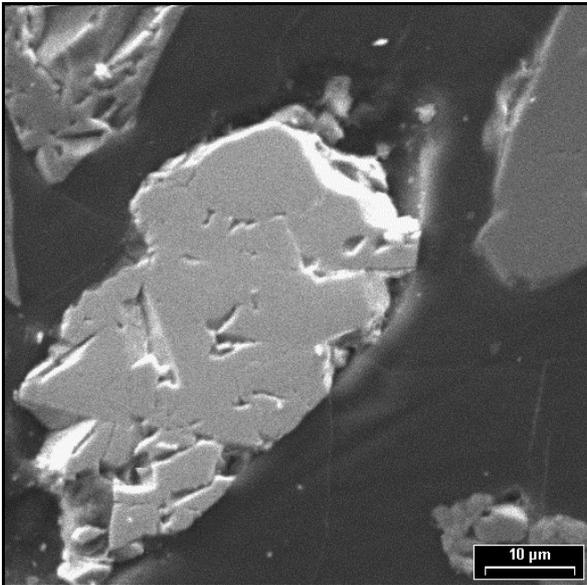
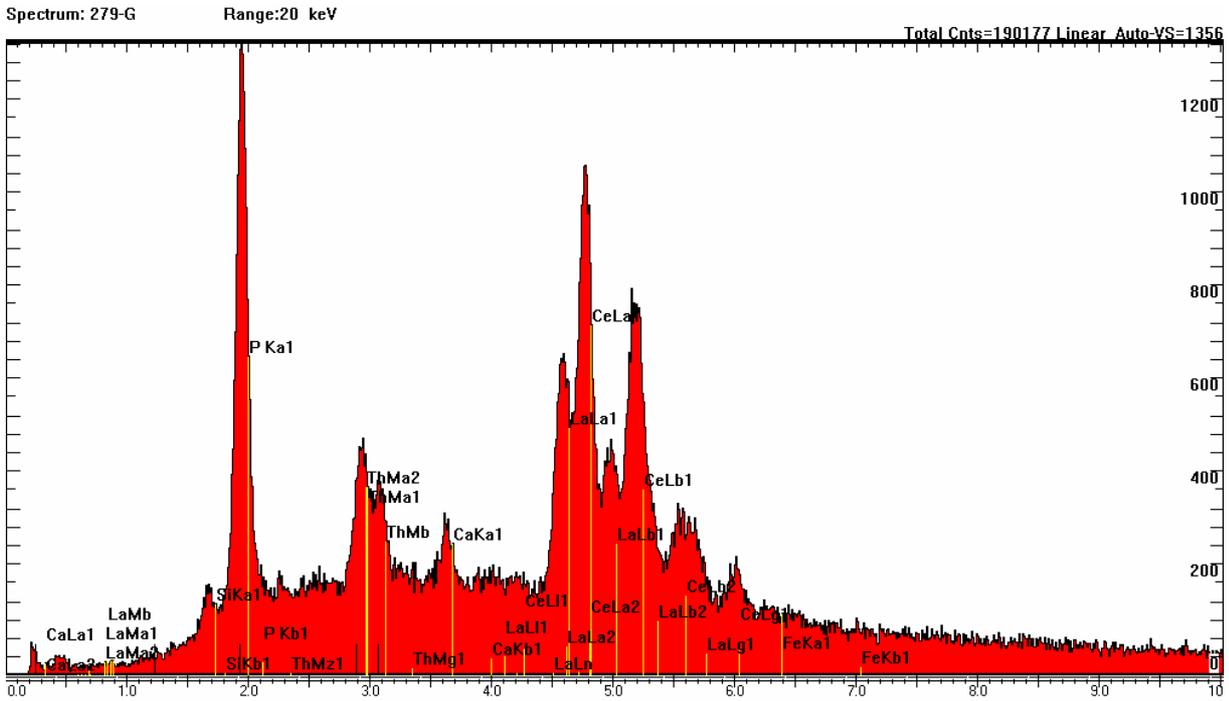
### Rocha fosfaticá Catalão



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines heißen Teilchens der Probe Rocha fosfaticá Catalão (279 f). Ca. großes Apatitkorn (Bildmitte, mittelgraues Korn) mit hellerem, ca. 20×60 μm großen Bereich (Pfeil) aus Ti, Zr, Fe, Ca, Th (=?=?=Betafit). Die Heiße Teilchen-Spur zeichnet diesen thoriumhaltigen Bereich nach.

# Tafel 81

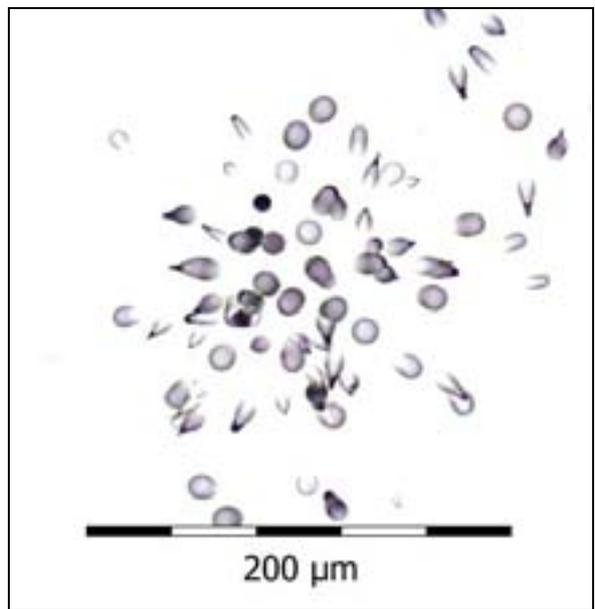
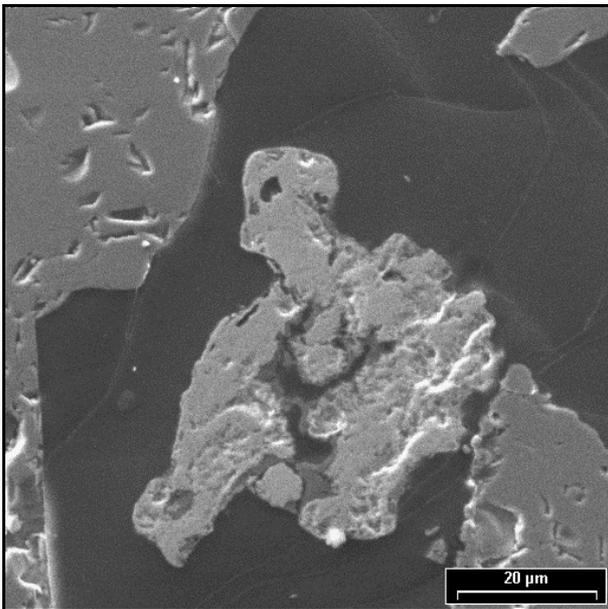
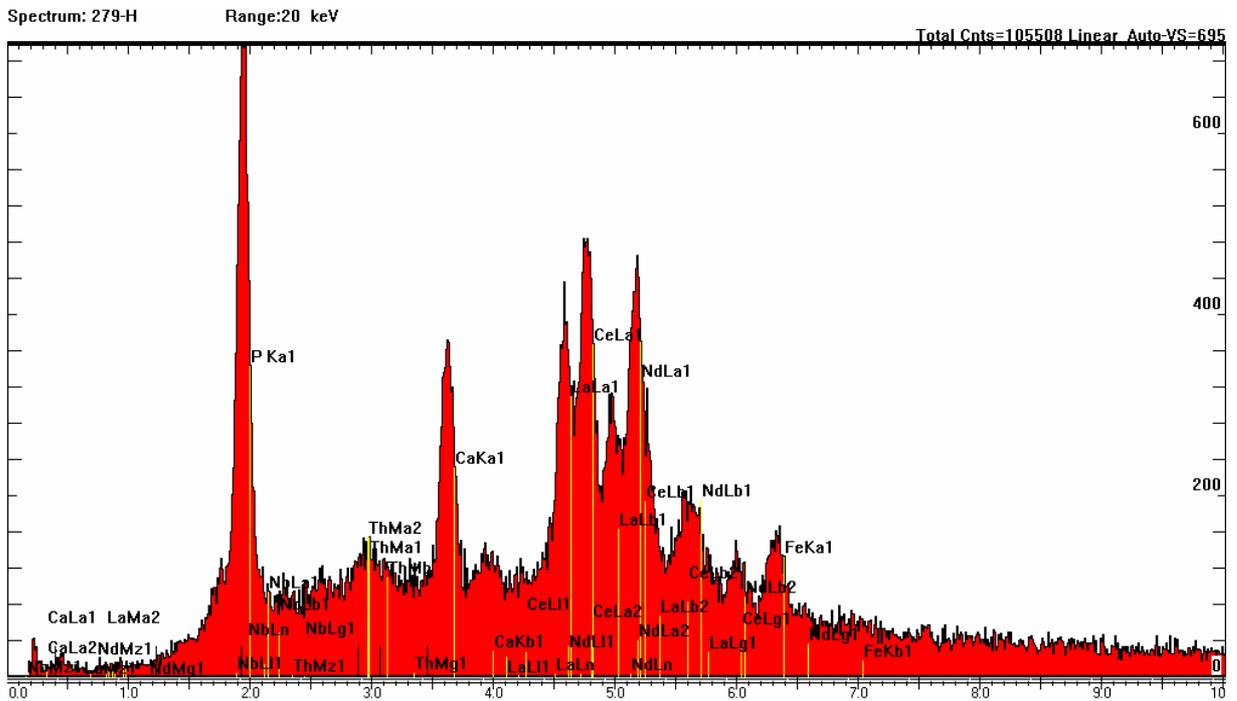
## Rocha fosfaticá Catalão



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Probe Rocha fosfaticá Catalão (279 g). Es handelt sich hier um ein ca. 27 $\times$ 47  $\mu$ m großes Monazitkorn (Bildmitte, graues Korn).

## Tafel 82

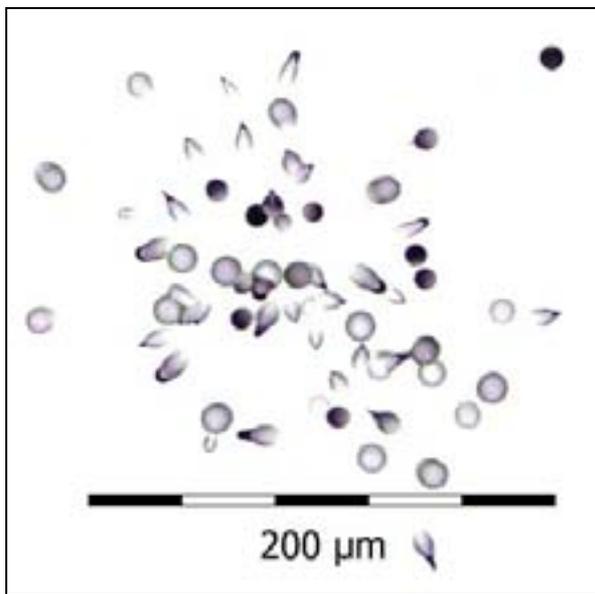
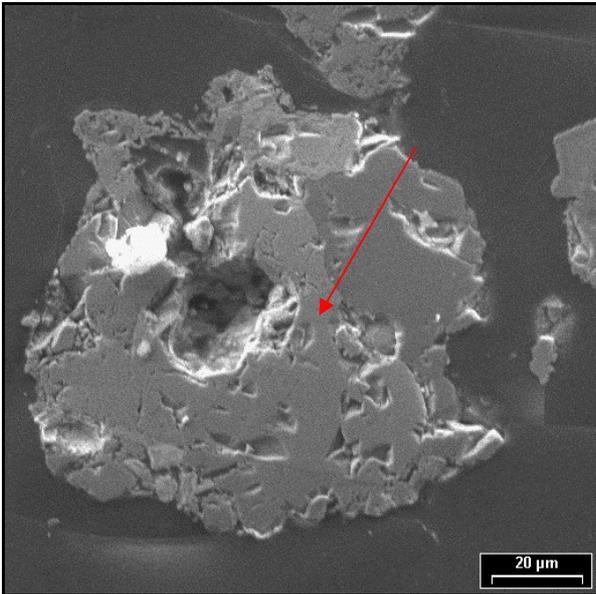
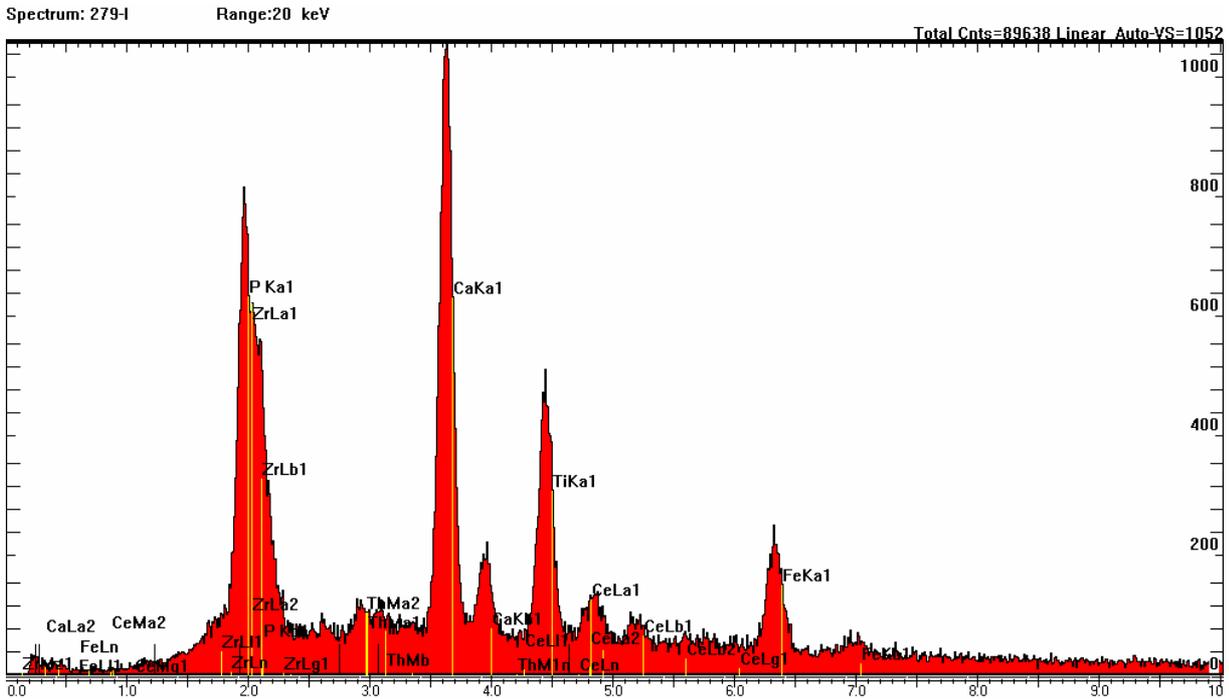
### Rocha fosfaticá Catalão



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Probe Rocha fosfaticá Catalão (279 h). Es handelt sich hier um ein ca. 35×43 μm großes Monazitkorn (Bildmitte, mittelgraues Korn).

## Tafel 83

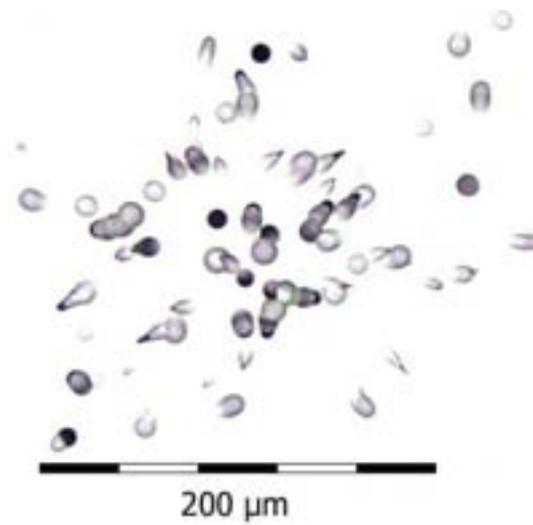
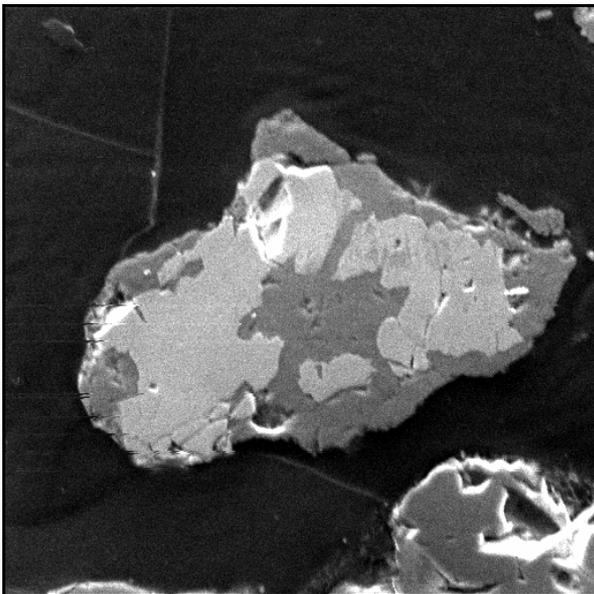
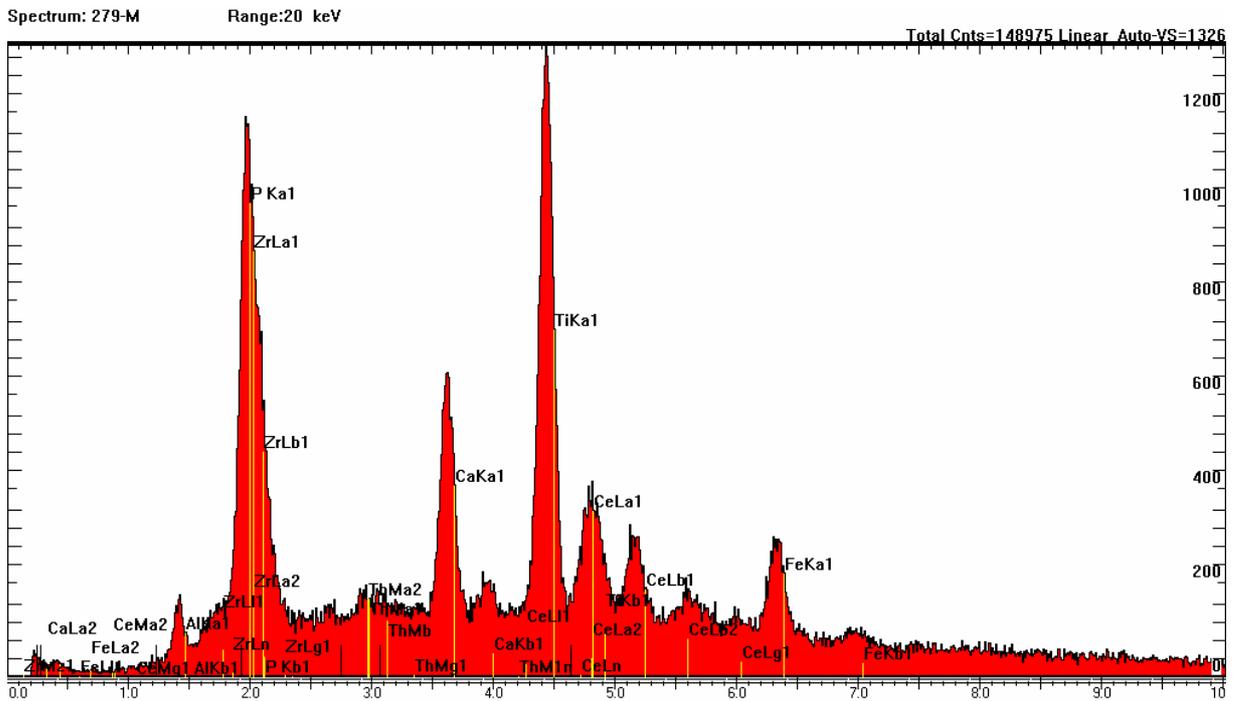
### Rocha fosfaticá Catalão



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Probe Rocha fosfaticá Catalão (279 i). Es handelt sich hier um ein ca.  $75 \times 87 \mu\text{m}$  großes Apatitkorn (Bildmitte, dunkler Kornbereich) das mit (?)Betafit verwachsen ist (hellere Kornbereiche). Die Heiße Teilchen-Spur ist schwach ist ausgesprochen asymmetrisch mit geringer Spurdichte. Dies hängt mit der Verteilung des Betafits in dem relativ großen detektierten Körnchen sowie dem geringen Thoriumgehalt zusammen.

## Tafel 84

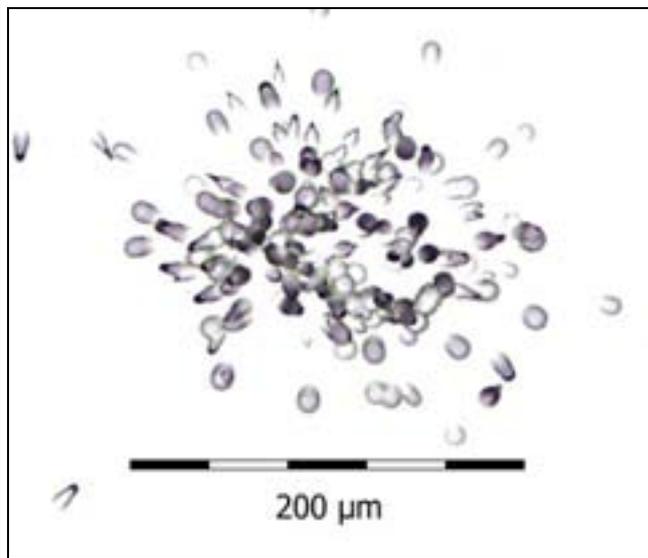
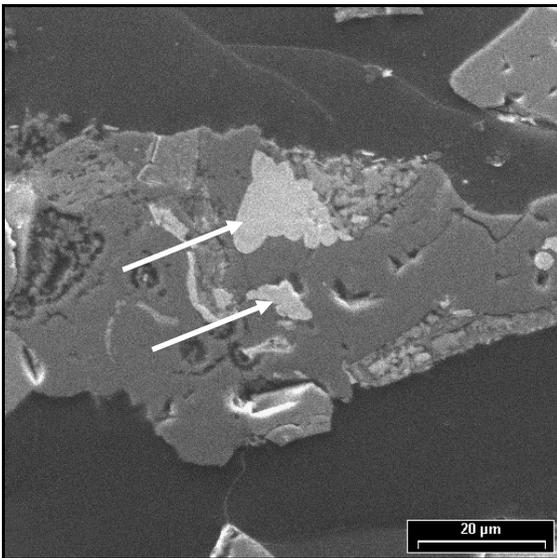
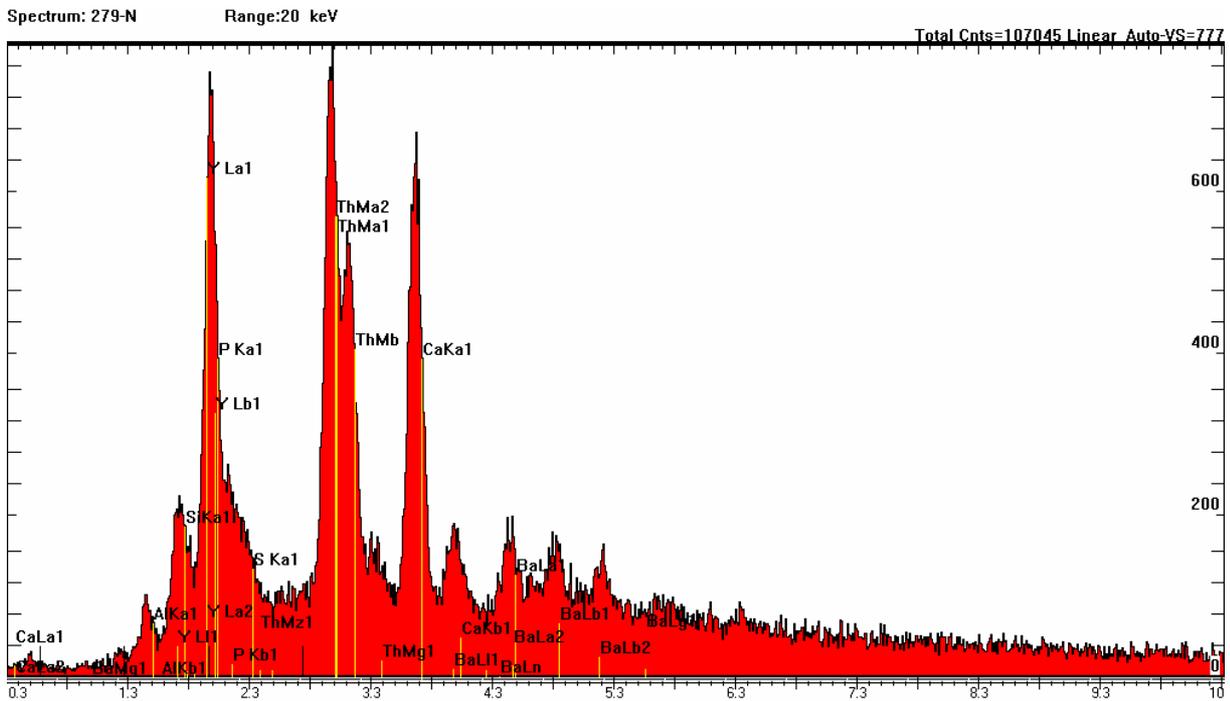
### Rocha fosfaticá Catalão



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Probe Rocha fosfaticá Catalão (279 m). Es handelt sich hier um ein ca. 33×53 μm großes Apatitkörnchen (Korn Bildmitte, mittelgraue Partien), das mit (?)Betafit (helle Partien des Korn) verwachsen ist. Die Bildbreite beträgt ca. 66 μm.

# Tafel 85 - Teil A

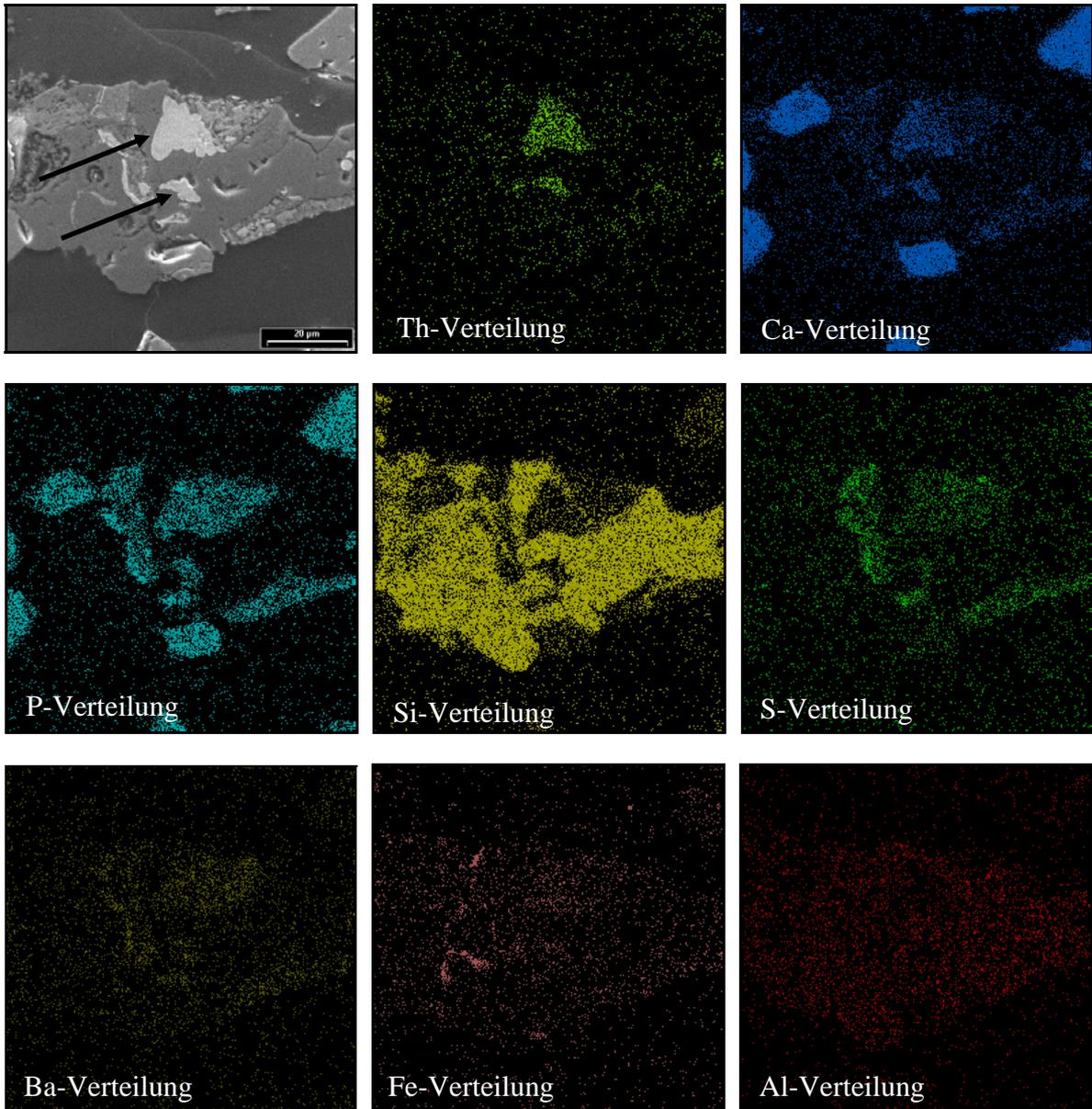
## Rocha fosfaticá Catalão



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Probe Rocha fosfaticá Catalão (279 n). Es handelt sich hier um ein ca.  $50 \times 100 \mu\text{m}$  großes Korn (Bildmitte) unterschiedlichster Zusammensetzung (vgl. nachfolgende Tafel) mit Thorium. Thorium ist an die mit den weißen Pfeilen markierten hellen Kornbereiche gebunden.

## Tafel 85 - Teil B

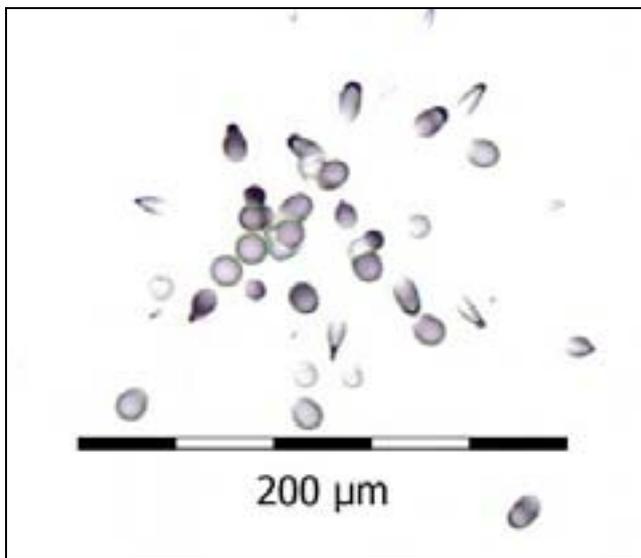
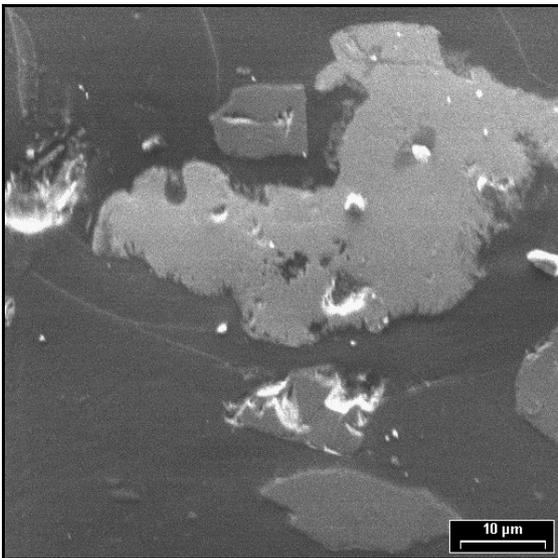
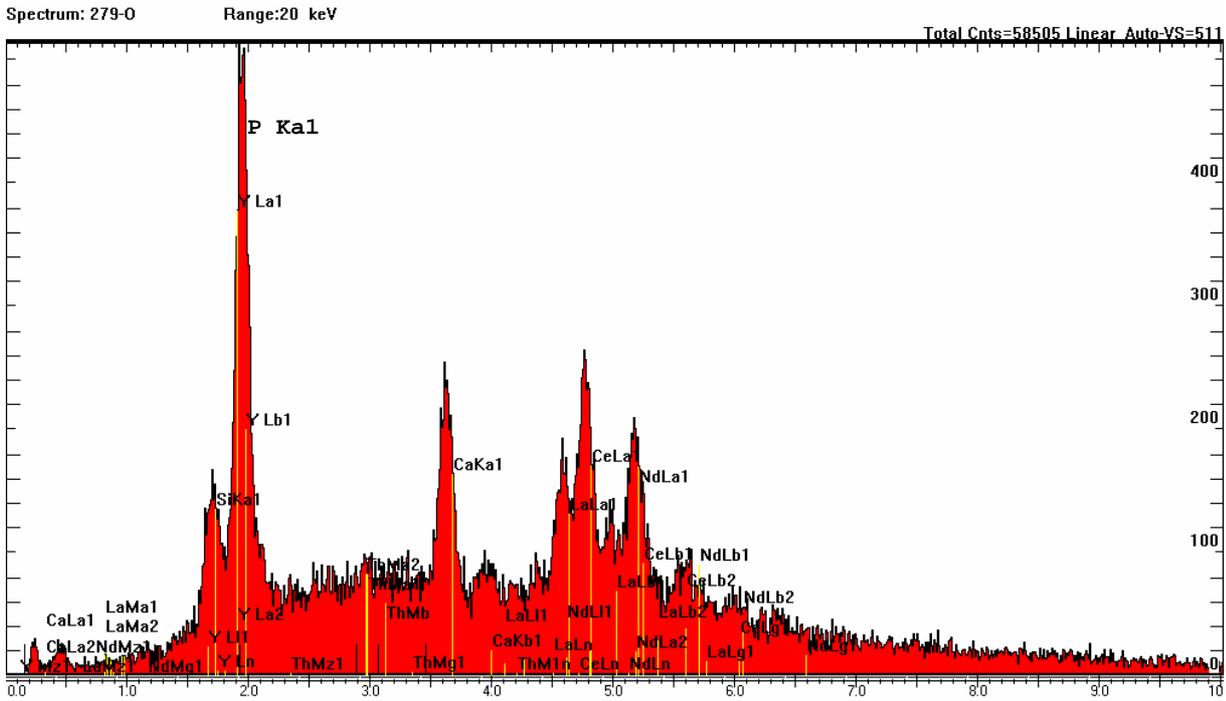
### Rocha fosfaticá Catalão



REM-Aufnahme und Elementverteilungsbilder der Probe Rocha fosfaticá Catalão (279 n). Die Elementverteilungsbilder zeigen die unterschiedliche Zusammensetzung des untersuchten Körnchens. Es besteht aus einem Silikat (Si, Al, Fe) in Verwachsung mit Apatit (Ca, P) und Baryt (Ba, S). Thorium ist nur in den beiden hellsten Kornbereichen (REM-Bild, schwarze Pfeile) enthalten.

# Tafel 86

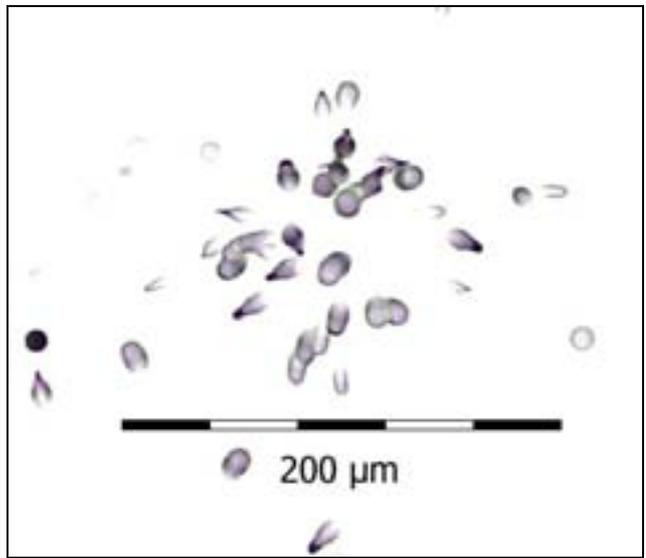
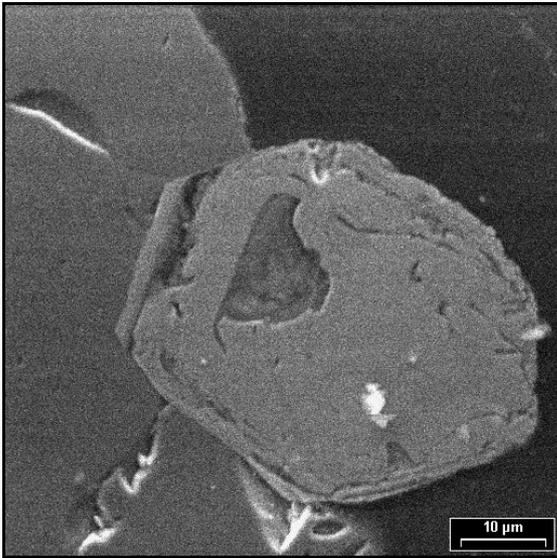
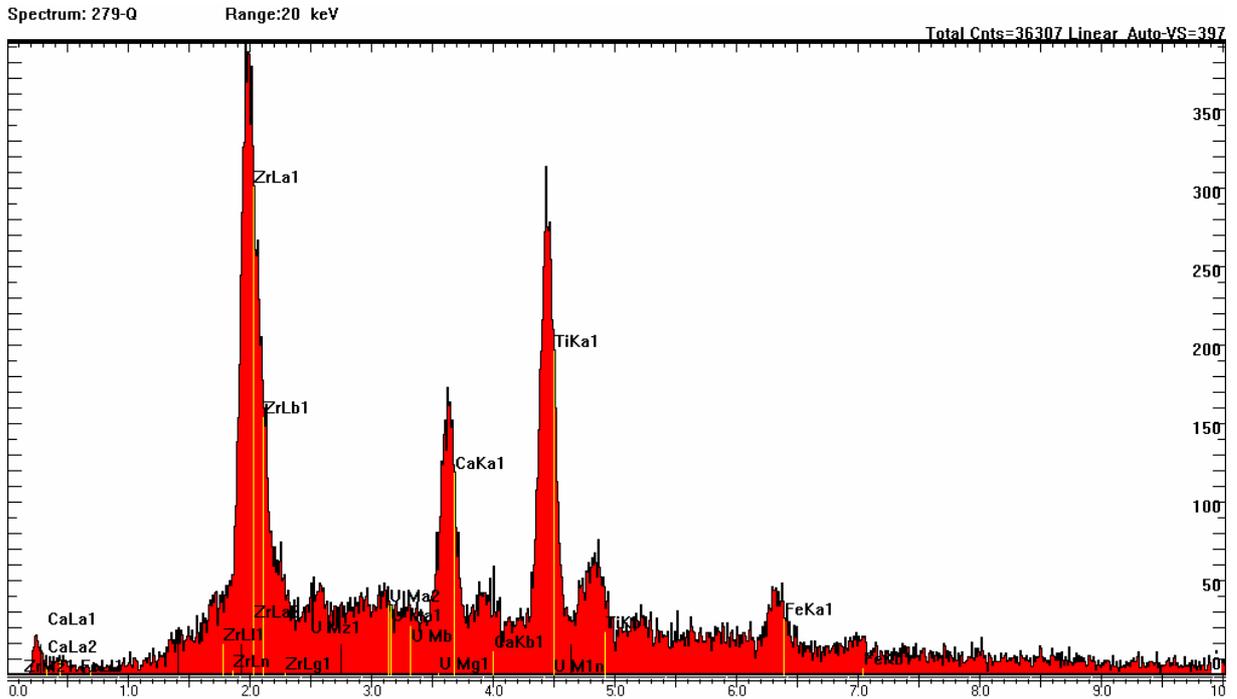
## Rocha fosfaticá Catalão



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Probe Rocha fosfaticá Catalão (279 o). Es handelt sich hier um ein ca. 40×60 μm großes Monazitkorn (Bildmitte, mittelgraues Korn). Der geringe Thoriumgehalt dieses Monazites spiegelt sich in der schwach ausgebildeten Heiße Teilchen-Spur wider.

## Tafel 87

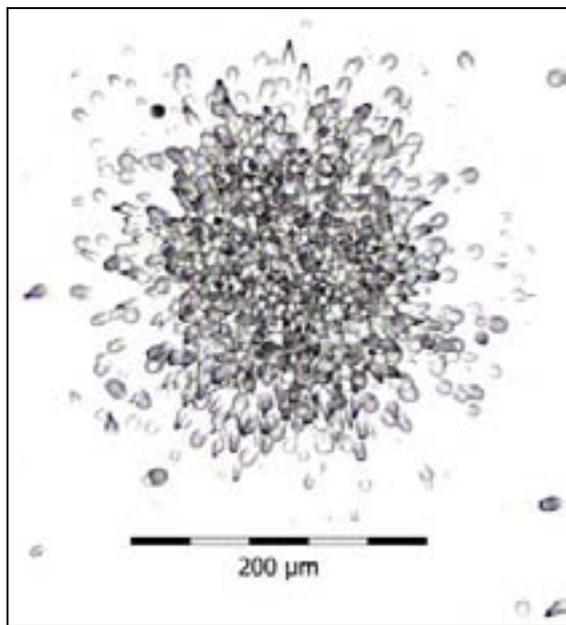
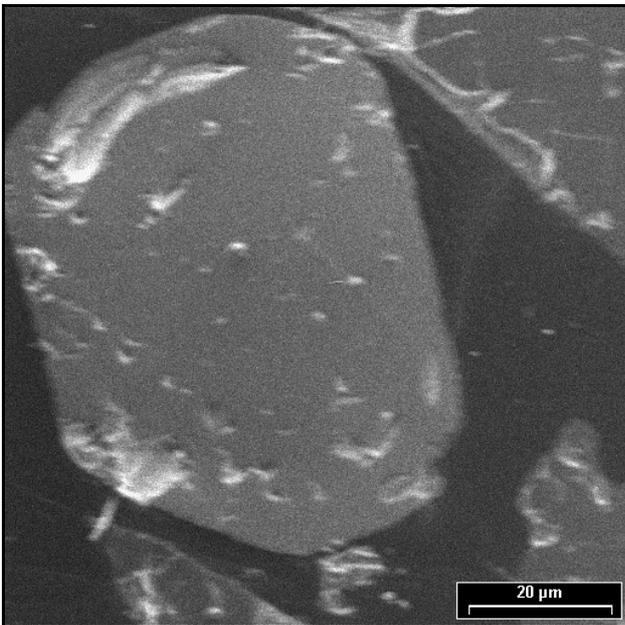
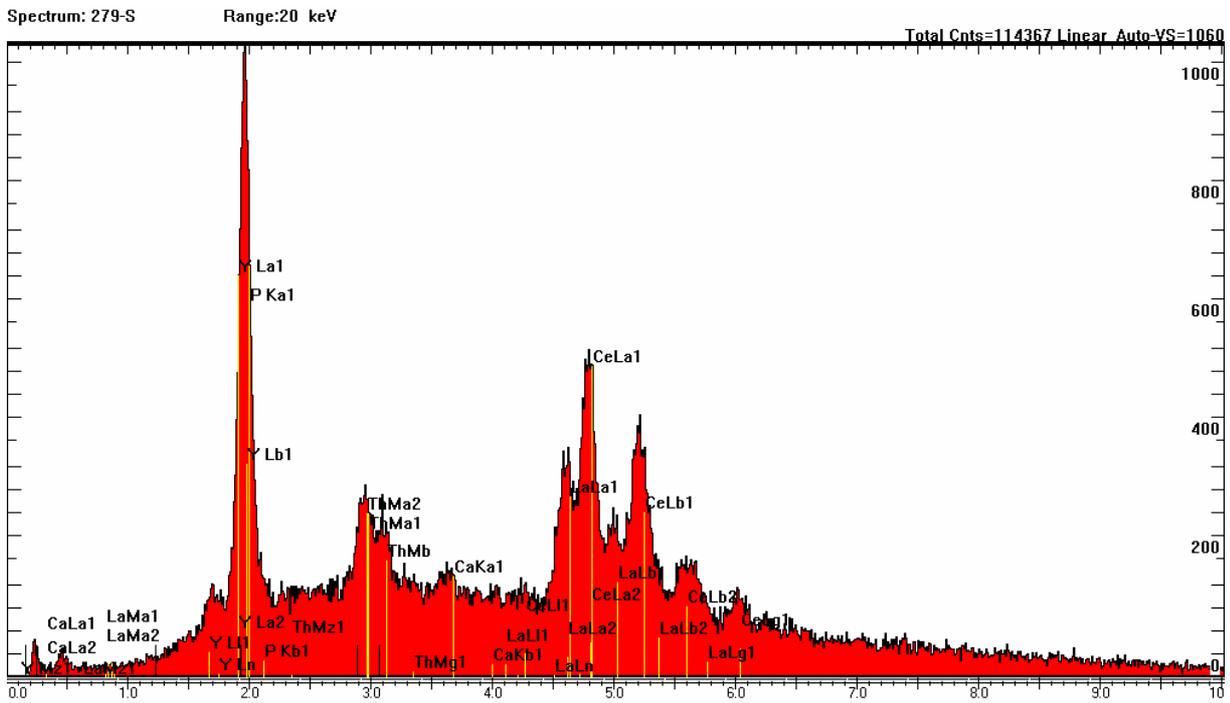
### Rocha fosfaticá Catalão



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Probe Rocha fosfaticá Catalão (279 q). Es handelt sich hier um ein ca.  $34 \times 35 \mu\text{m}$  großes Körnchen (Bildmitte, graues sechseckiges Korn) aus einer Verwachsung von Titanit/Ilmenit mit Zirkonium. Es enthält wenig Uran. Dieses Körnchen ist wiederum mit einem Apatit (dunkelgraues Korn im linken Bildbereich der REM-Aufnahme) verwachsen.

# Tafel 88

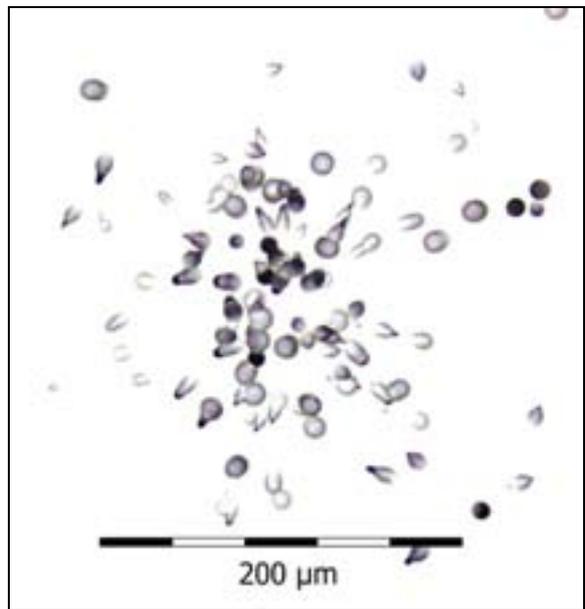
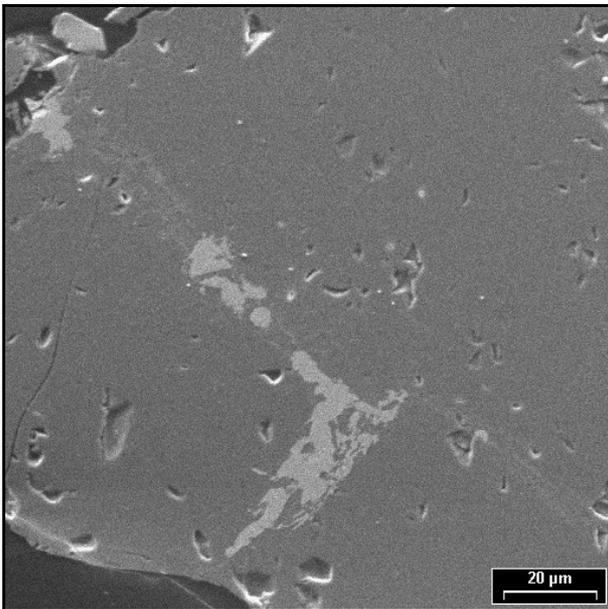
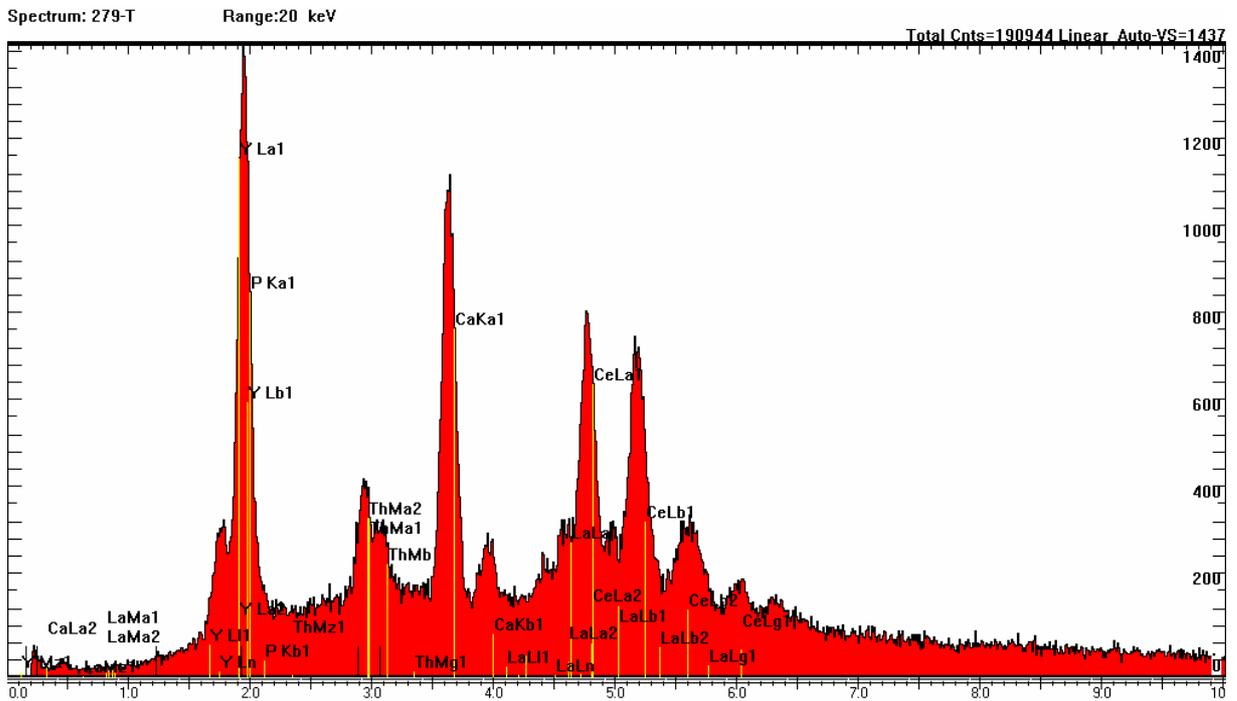
## Rocha fosfaticá Catalão



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Probe Rocha fosfaticá Catalão (279 s). Es handelt sich hier um ein ca.  $57 \times 78 \mu\text{m}$  großes Monazitkorn (Bildmitte, mittelgraues Korn). Die Heiße Teilchen-Spur ist sehr symmetrisch ausgebildet und hat eine hohe Spurdichte.

## Tafel 89

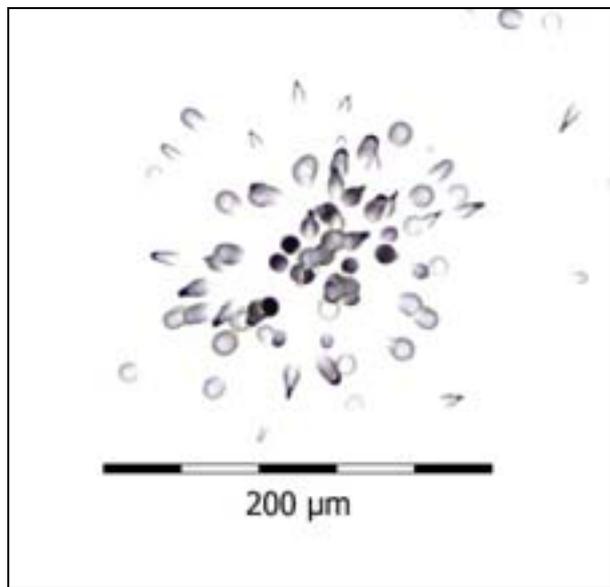
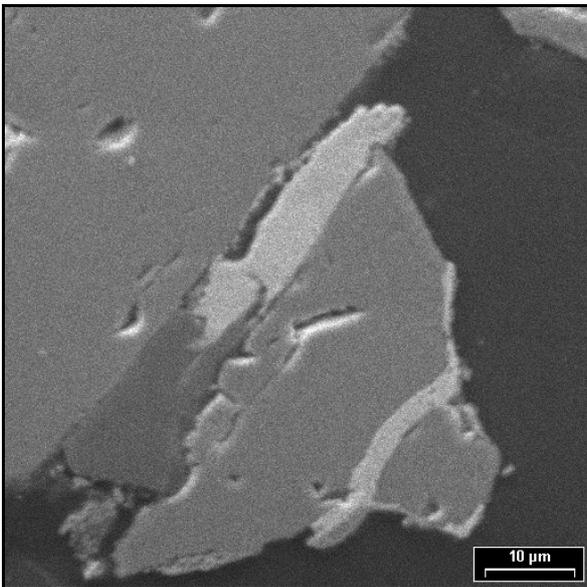
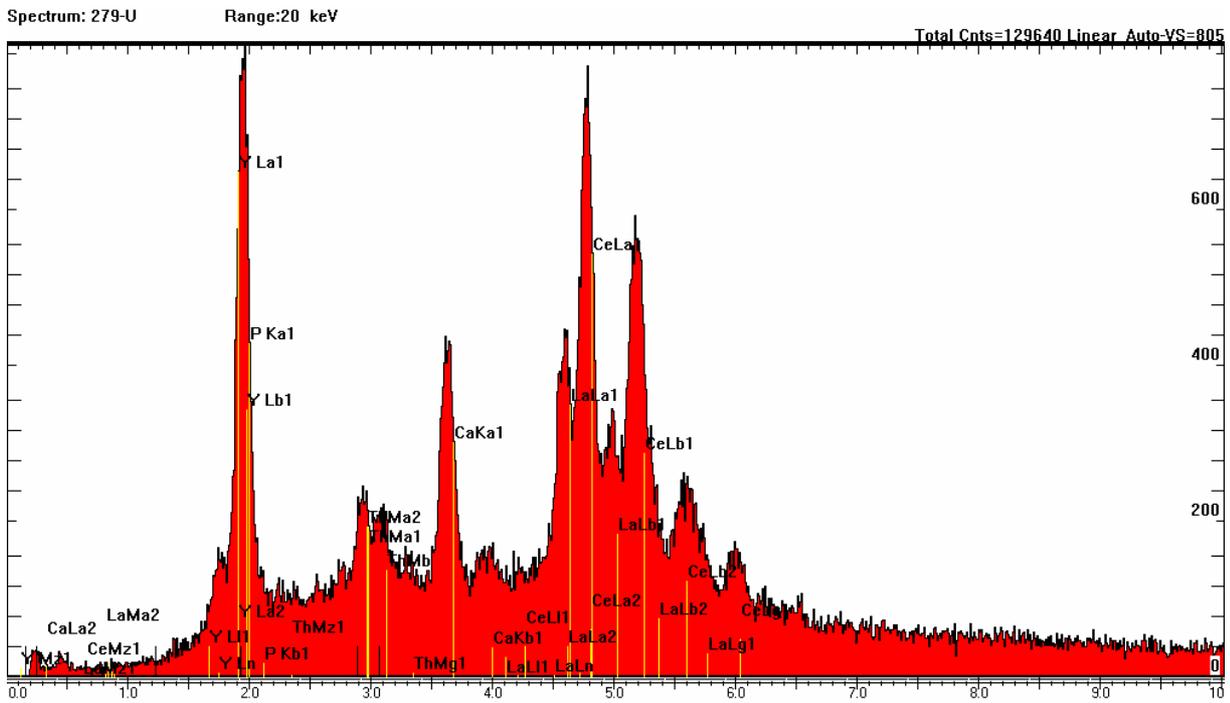
### Rocha fosfaticá Catalão



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Probe Rocha fosfaticá Catalão (279 t). Es handelt sich hier um ein großes Apatitkorn mit hellen Schlieren (Bildmitte), ca. 12×38 μm groß, aus Monazit.

# Tafel 90

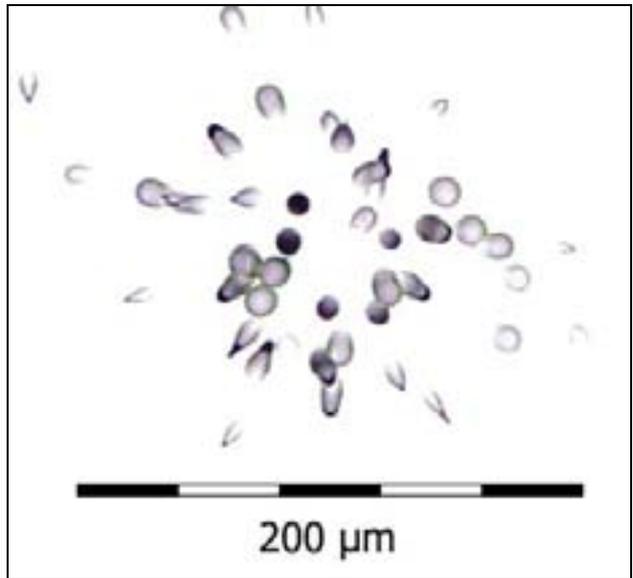
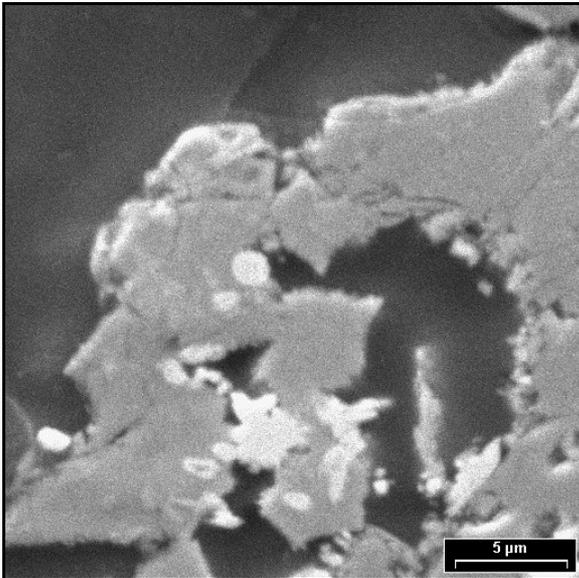
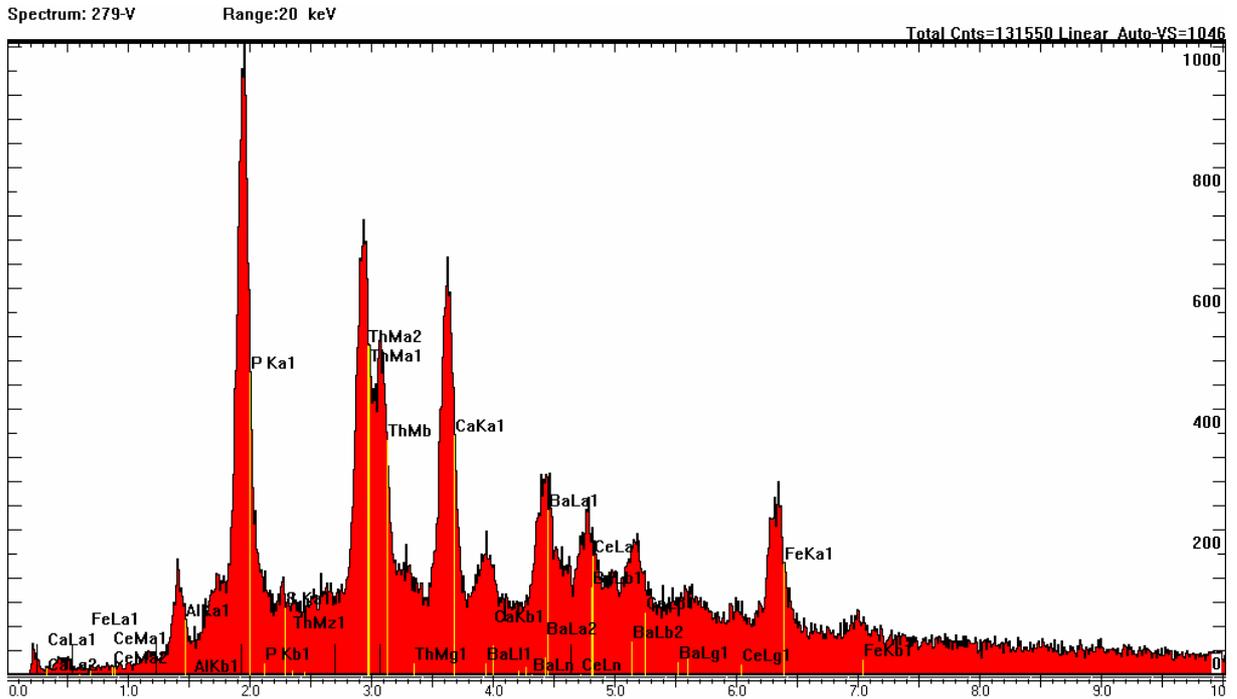
## Rocha fosfaticá Catalão



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Probe Rocha fosfaticá Catalão (279 u). Verwachsung von Apatit (mittelgrau), Silikat (dunkelgrau) und Monazit mit Thorium (hellgrau). Die Monazit-Schlieren sind  $6,5 \times 31 \mu\text{m}$  und  $25 \times 31 \mu\text{m}$  groß.

# Tafel 91

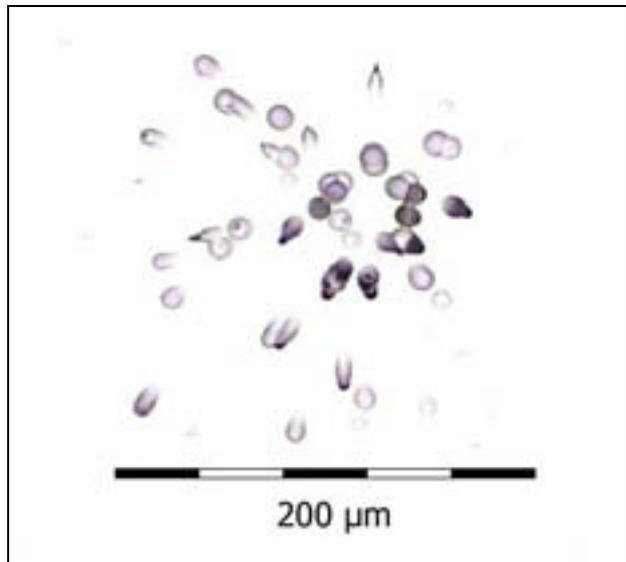
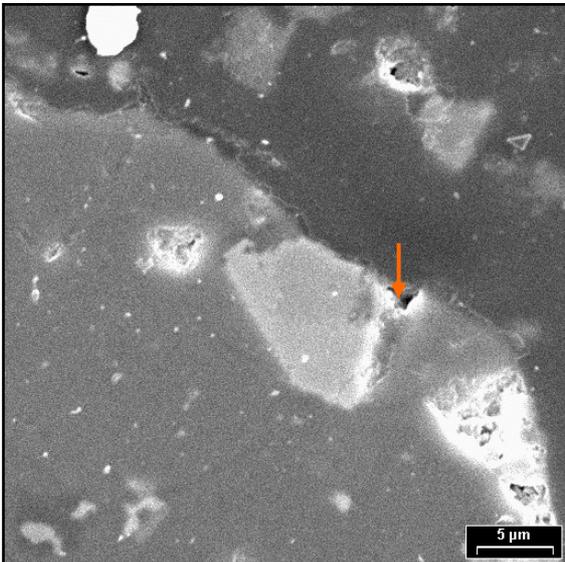
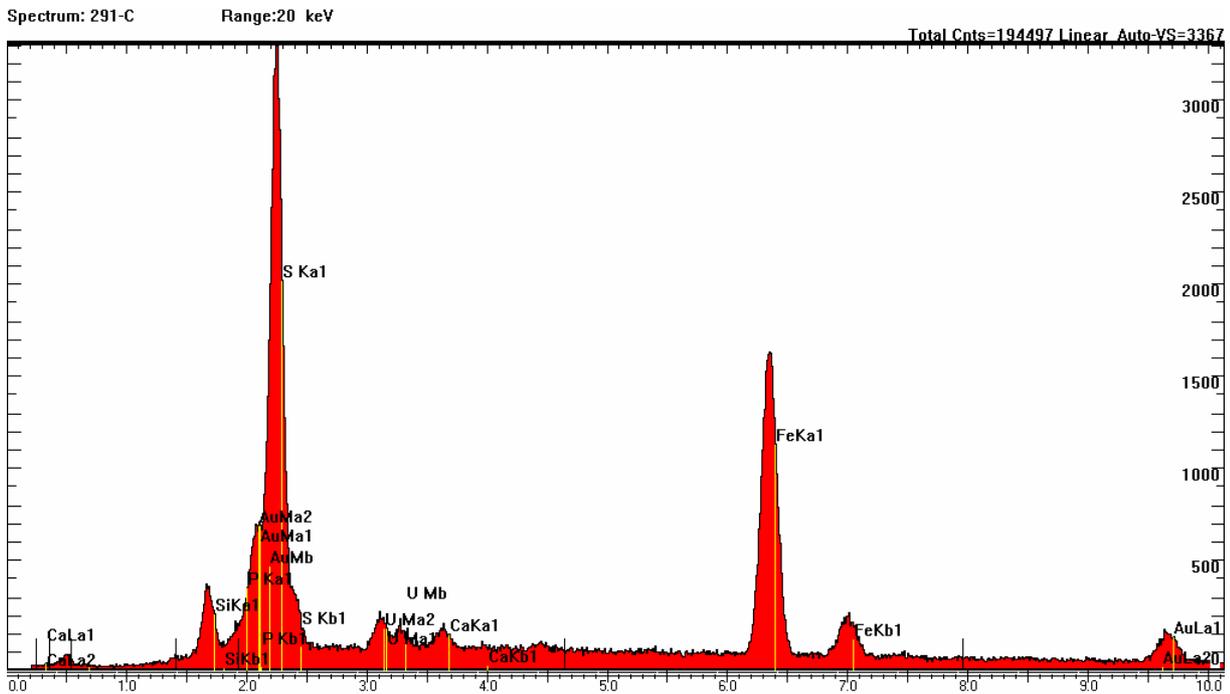
## Rocha fosfaticá Catalão



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Probe Rocha fosfaticá Catalão (279 v). Es handelt sich hier um ein Apatitkorn, das max. 4  $\mu\text{m}$  große, helle Körnchen/Partien mit Thorium (??Monazit) enthält.

## Tafel 92

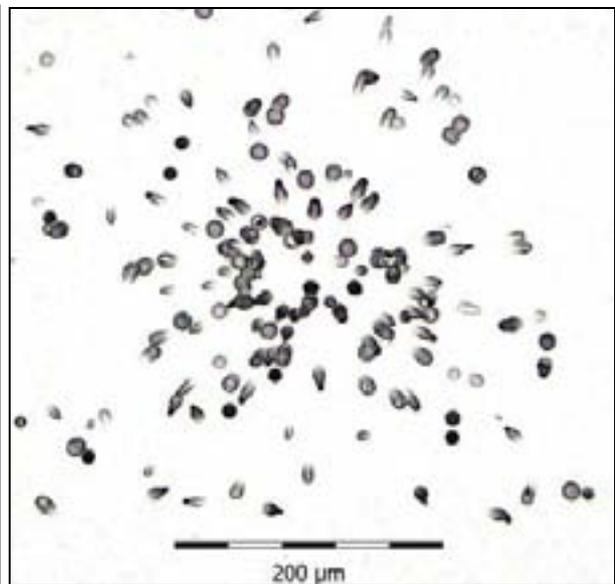
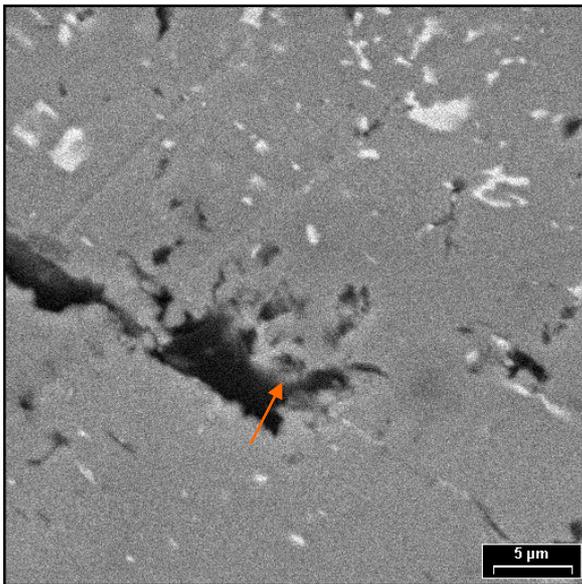
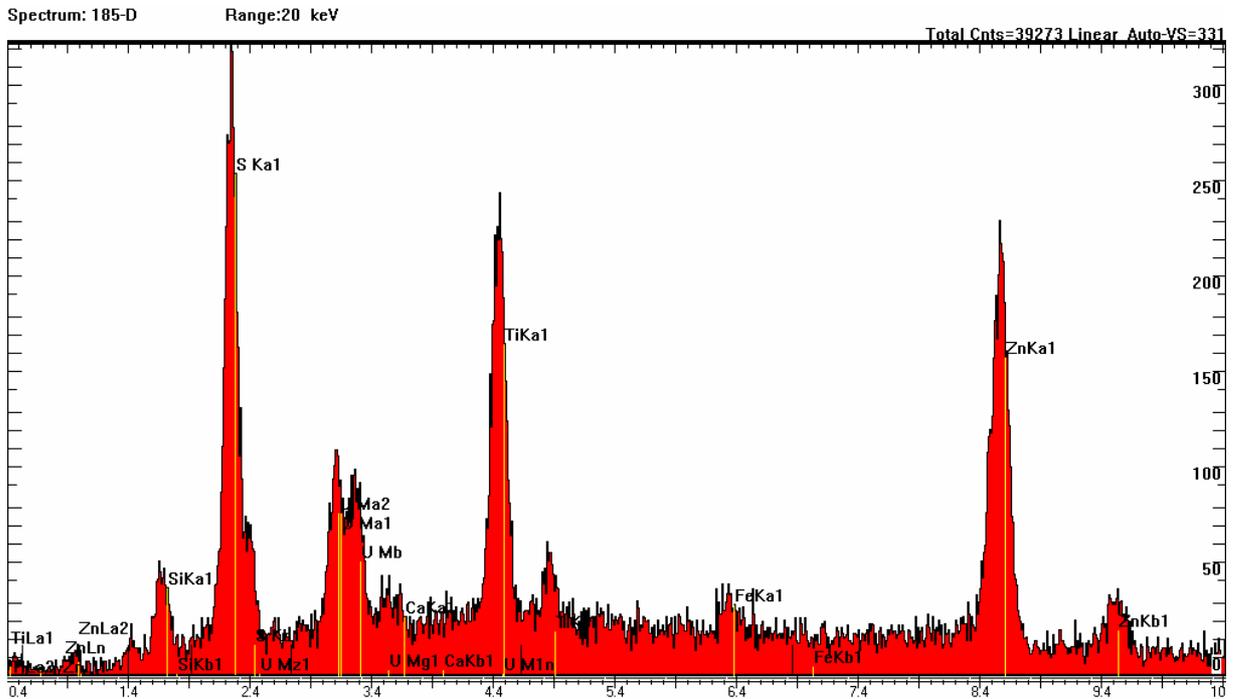
### Phosphatdünger



EDX-Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines heißen Teilchens der Phosphatdüngerprobe 291 c. Es handelt sich um einen schmalen, kaum 2  $\mu\text{m}$  großen Saum mit Uran (heller Bereich an rotem Pfeil, REM-Bild) an einem größeren Korn ( $\text{FeS}_2$ ?). Wegen des nur geringen Urangeltes sind der Uranpeak im Spektrum und die Spur nur schwach ausgeprägt. Der Goldpeak im EDX-Spektrum ist auf die Besputterung der Probe mit Gold zurückzuführen.

# Tafel 93

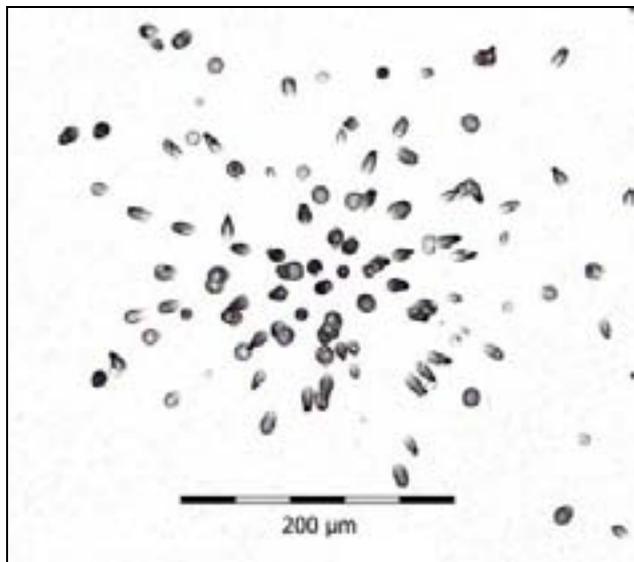
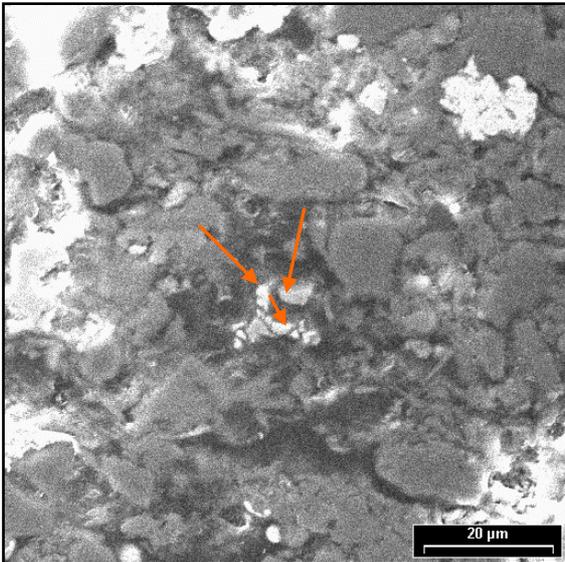
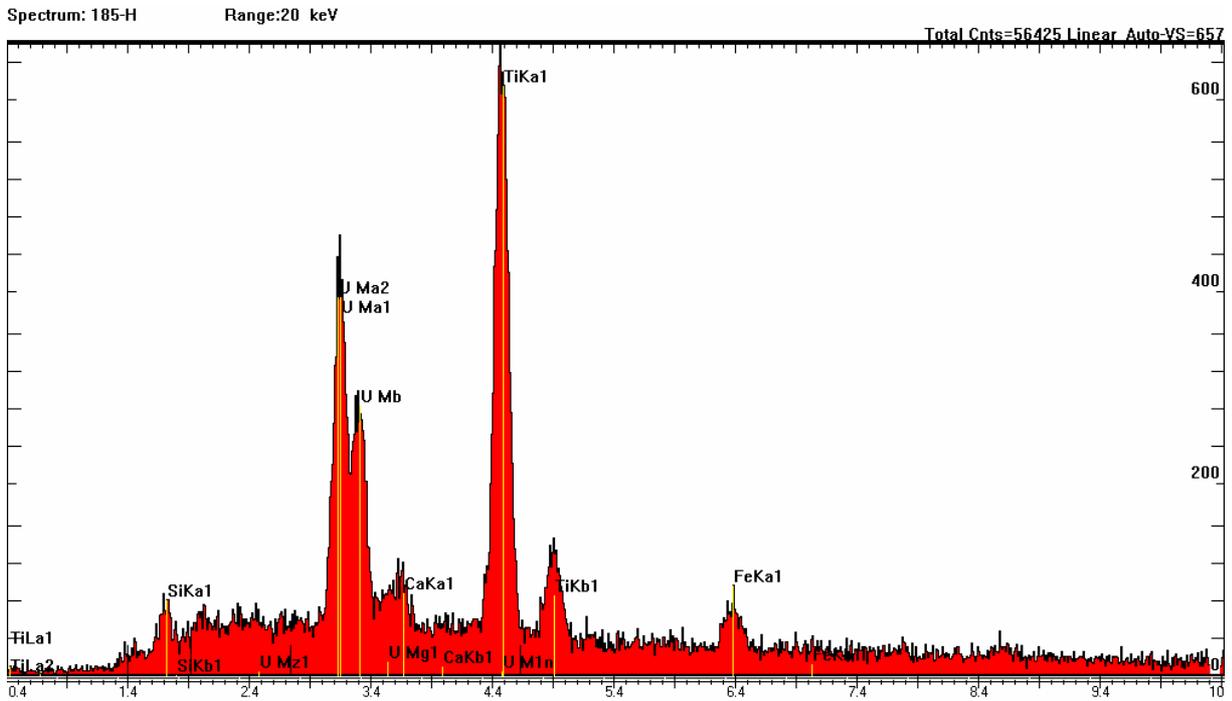
## Kupferschiefer



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Kupferschiefer-Probe 185 (Markierung d). Im Hohlraum eines ZnS-PbS-Korns (grau: Sphalerit; weiß: Galenit) findet sich ein um 2 µm großer Saum (roter Pfeil) aus Brannerit ( $UTi_2O_6$ ).

# Tafel 94

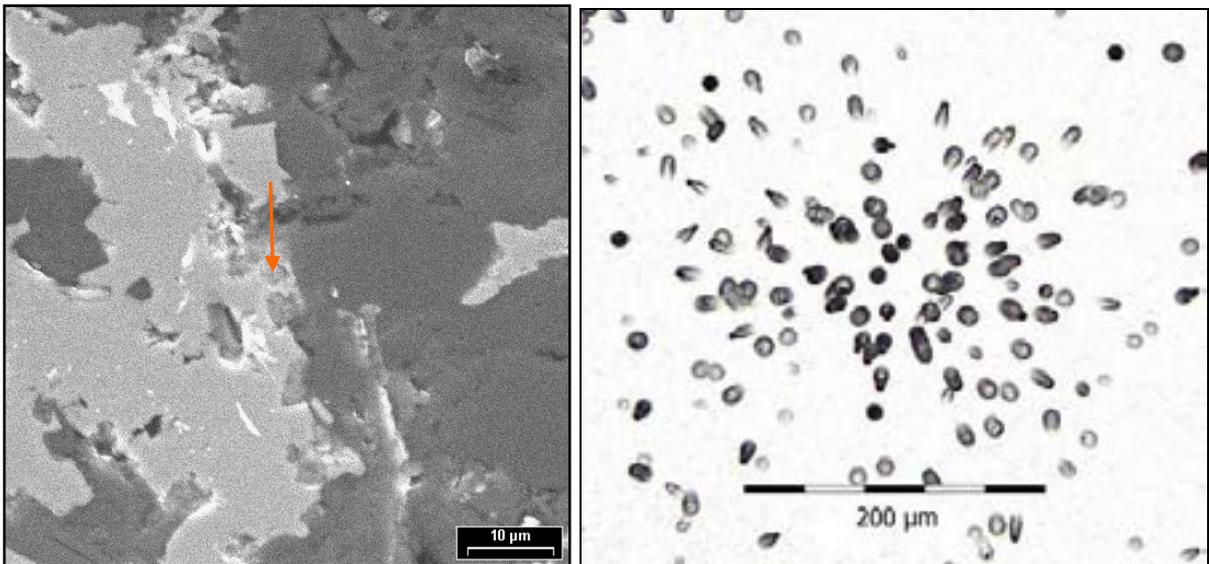
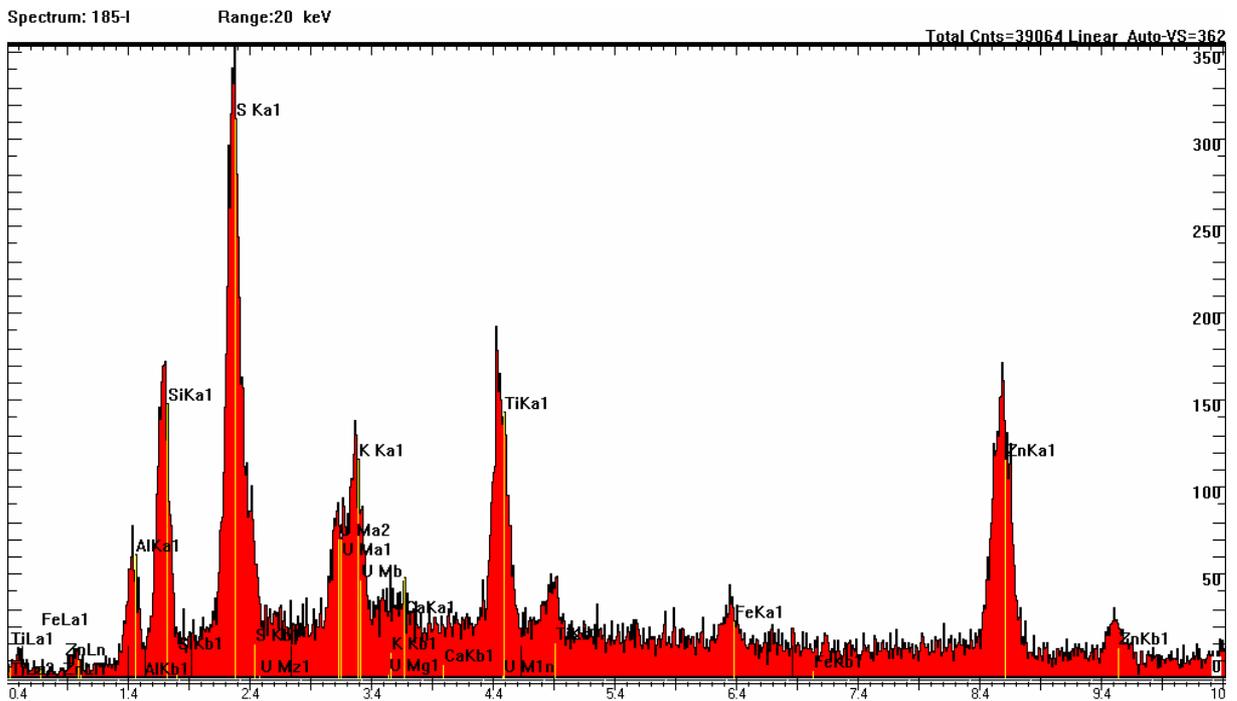
## Kupferschiefer



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Kupferschiefer-Probe 185 (Markierung h). Es handelt sich hier um ein ca. 5 µm großes Körnchen (roter Pfeil) aus Brannerit ( $UTi_2O_6$ ).

# Tafel 95

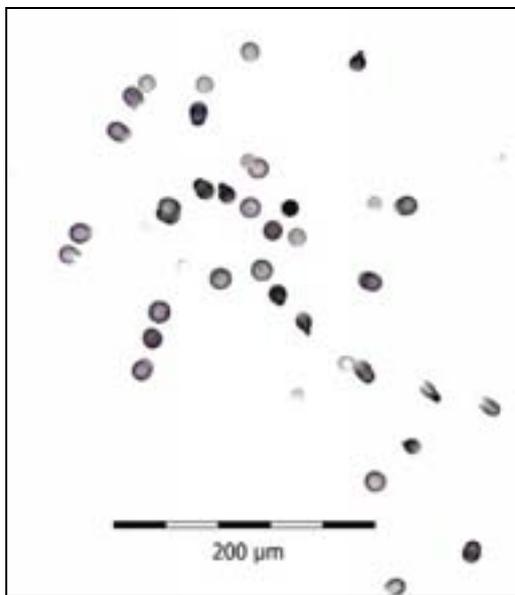
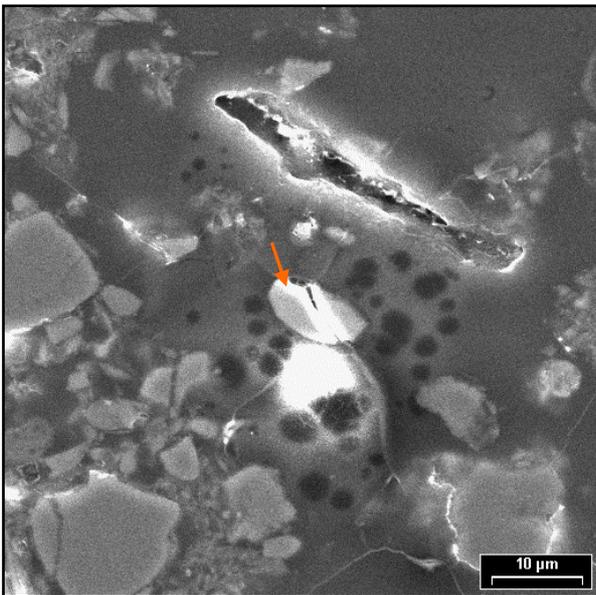
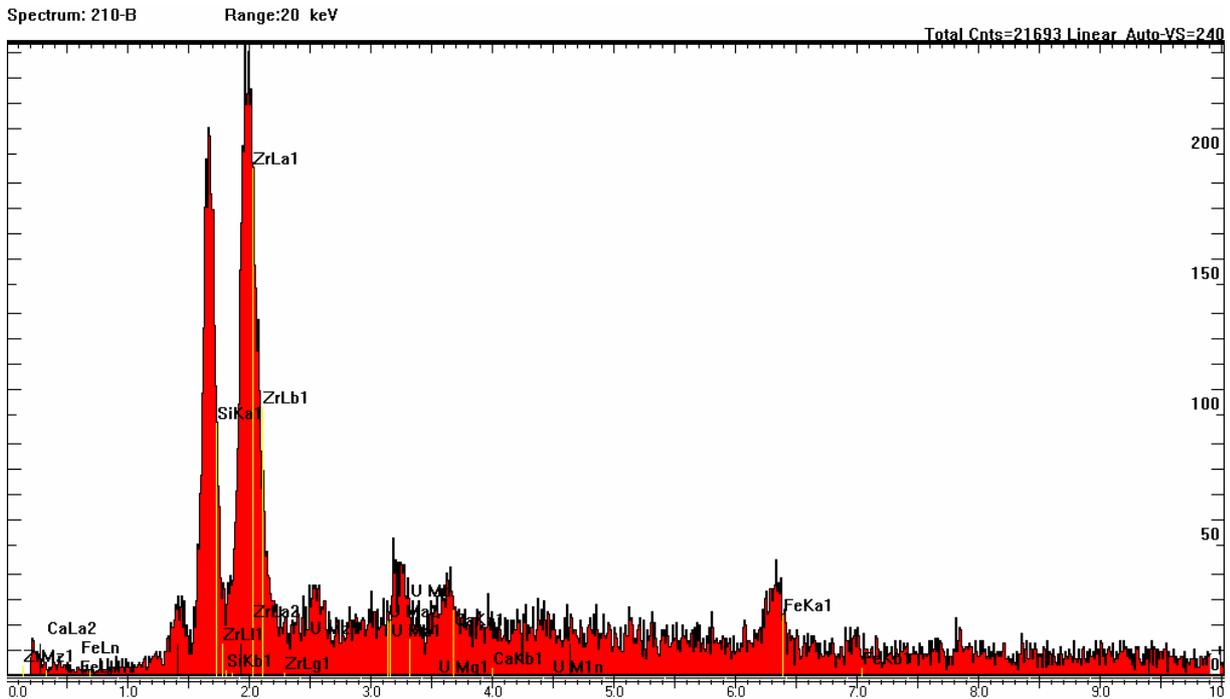
## Kupferschiefer



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines heißen Teilchens der Kupferschiefer-Probe 185 (Markierung i). Im Hohlraum eines ZnS-PbS-Korns (grau: Sphalerit; weiß: Galenit) wurde als Saum wiederum Brannerit ( $UTi_2O_6$ ) detektiert (roter Pfeil).

# Tafel 96

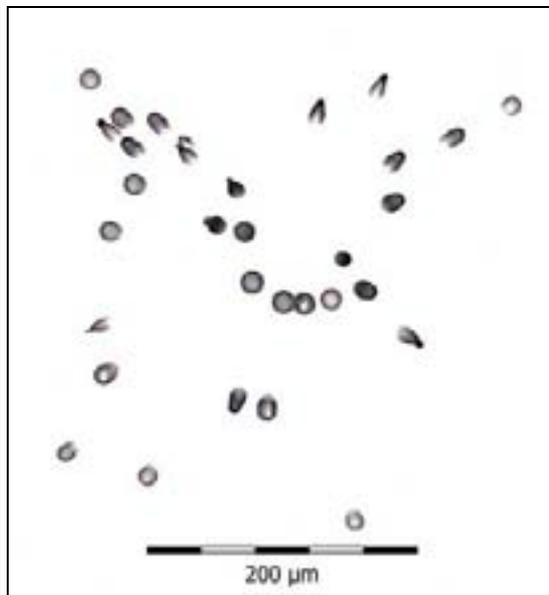
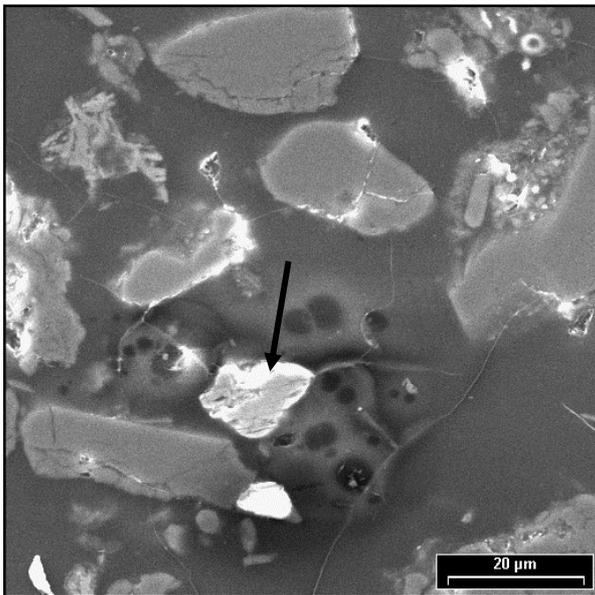
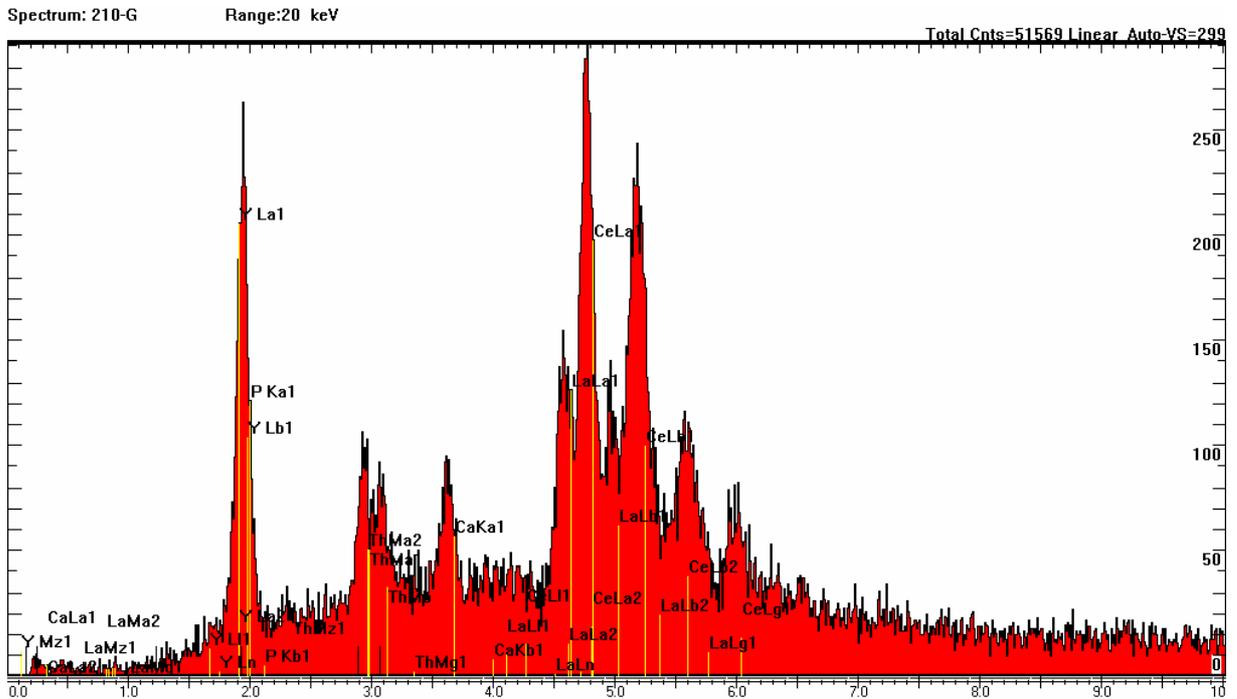
## Goldgrundbach



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Bachsediment-Probe 210 (Markierung b). Träger des Heißen Teilchens ist ein ca. 10 µm großer Zirkon (Pfeilspitze), der Uran enthält. Die schwarzen Flecken um dieses Zirkonkörnchen herum sind Löcher, die bei der Analyse mit der wellenlängendispersiven Mikrosonde infolge starker Materialbeanspruchung entstanden sind.

# Tafel 97

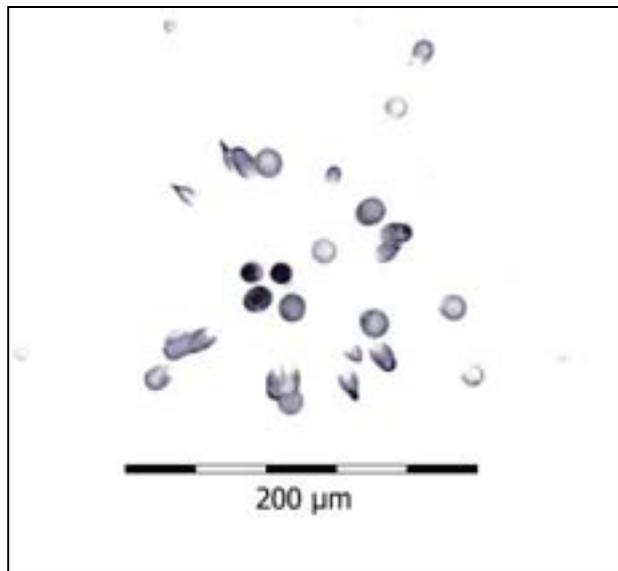
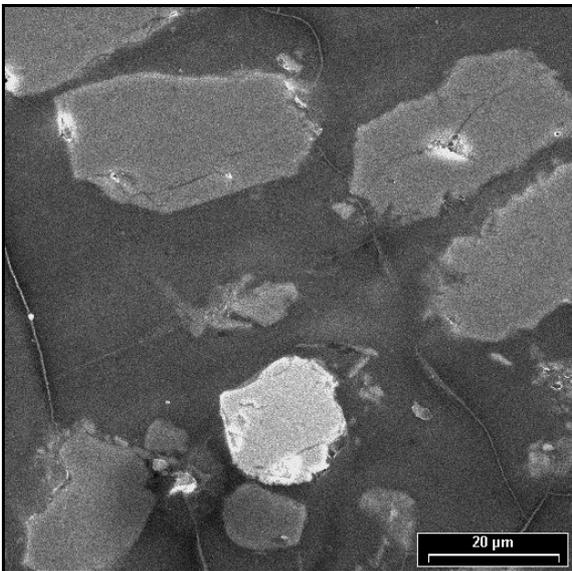
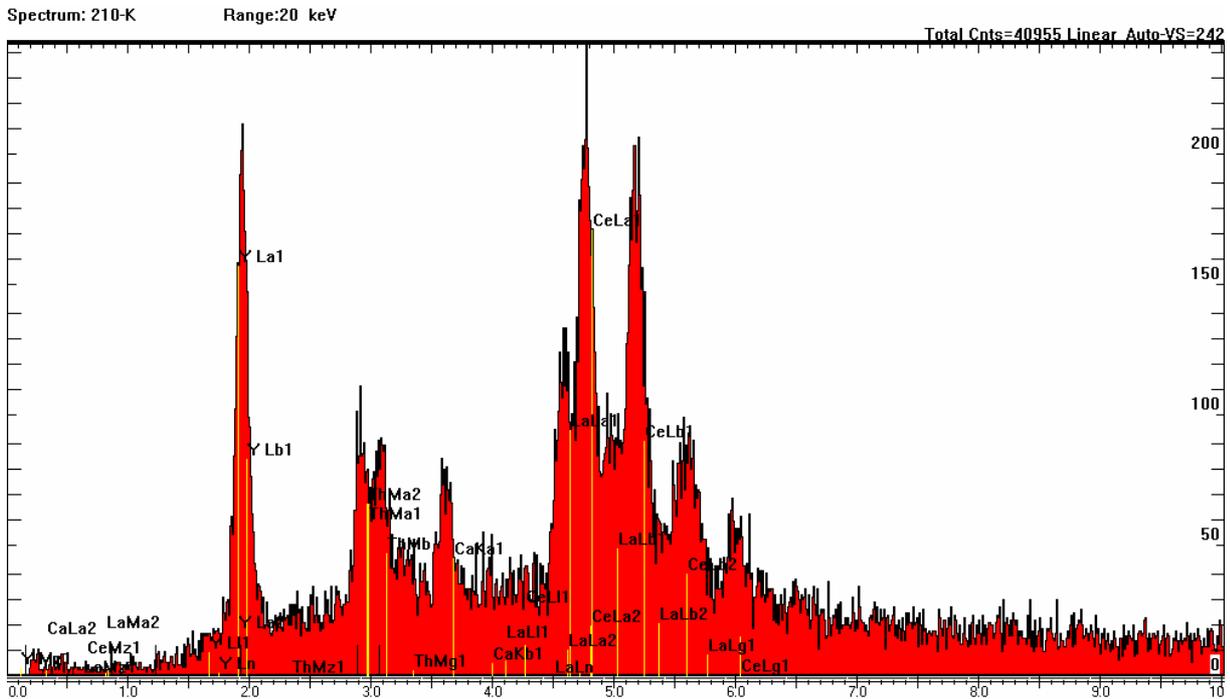
## Goldgrundbach



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Bachsediment-Probe 210 (Markierung g). Träger des Heißen Teilchens ist ein ca. 15 µm großer Monazit (Pfeilspitze), der Thorium enthält. Im Spektrum wird Monazit durch die Peaks der Seltenen Erden (La, Ce) sowie P und Ca charakterisiert.

# Tafel 98

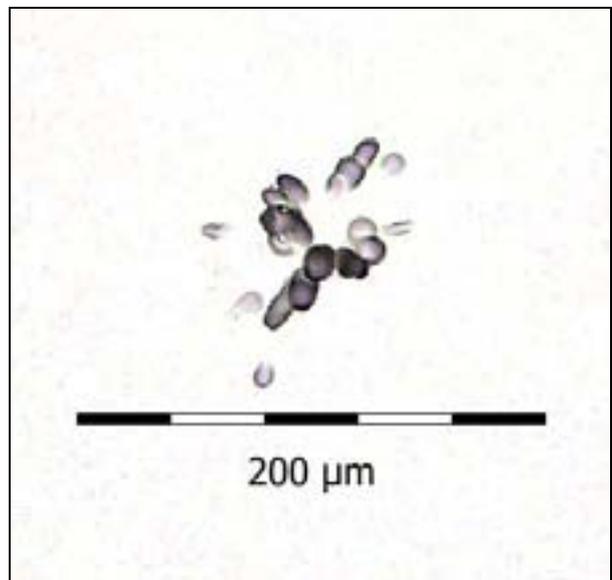
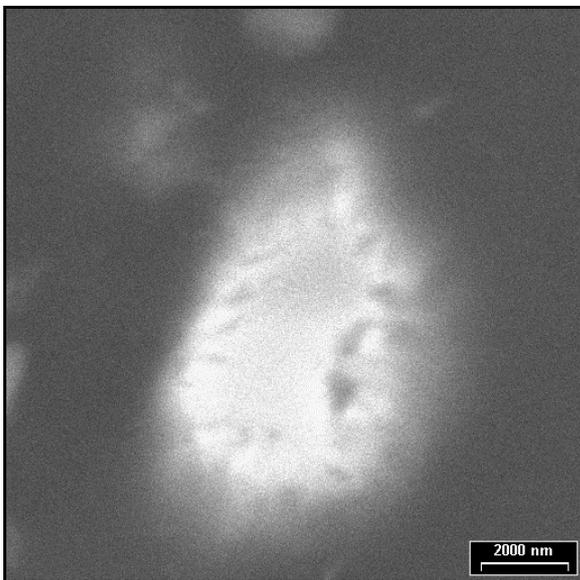
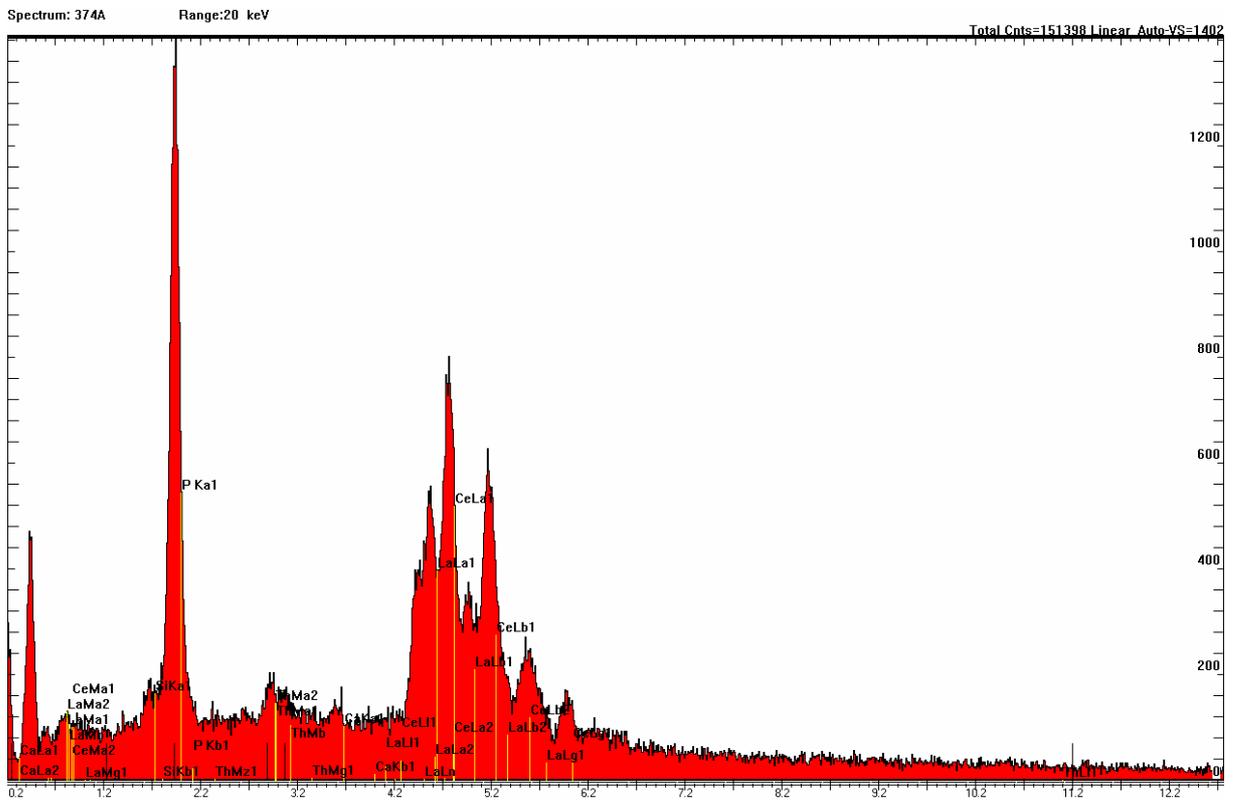
## Goldgrundbach



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Bachsediment-Probe 210 (Markierung k). Träger des Heißen Teilchens ist wiederum ein ca. 15 µm großer Monazit (helles Korn, untere Bildmitte der REM-Aufnahme), der Thorium enthält.

# Tafel 99

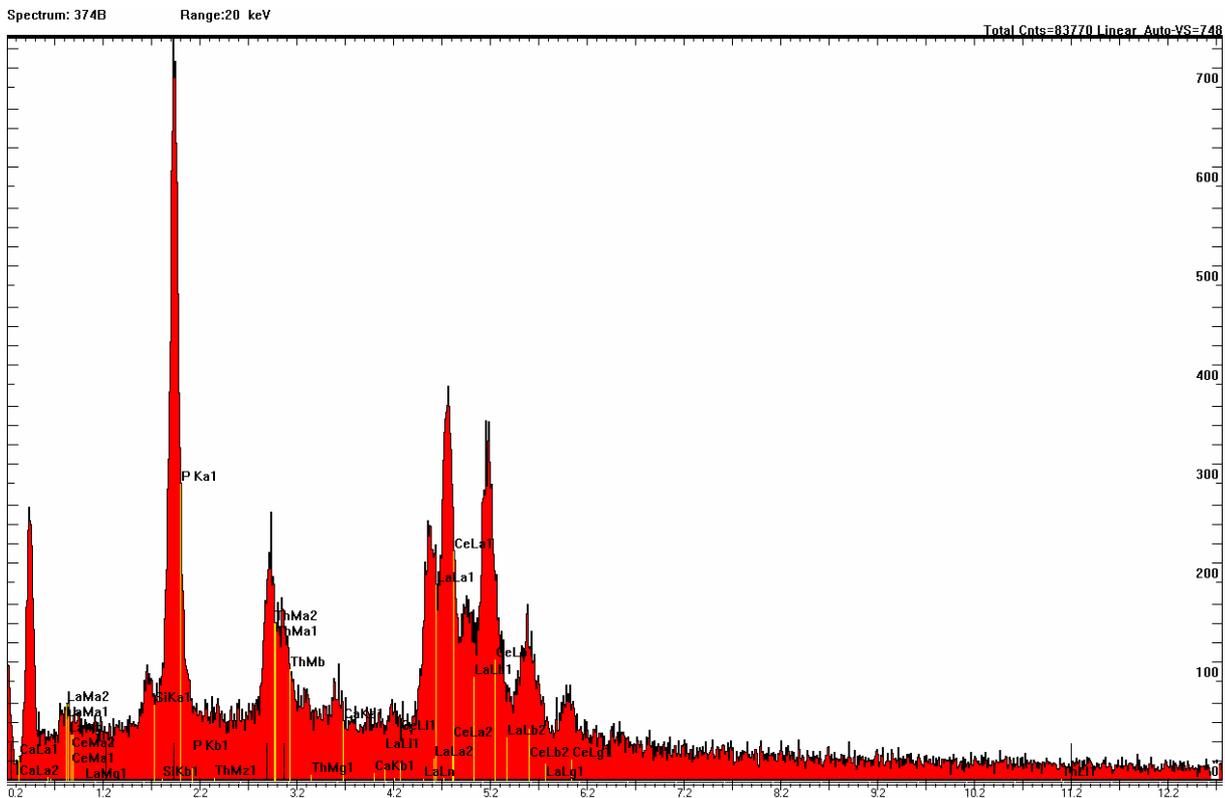
## Glume



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Bachsediment-Probe 374 (Markierung a). Es handelt sich hier um ein 4×7 μm großes Monazitkörnchen, das nur wenig Thorium enthält.

## Tafel 100 – Teil 1

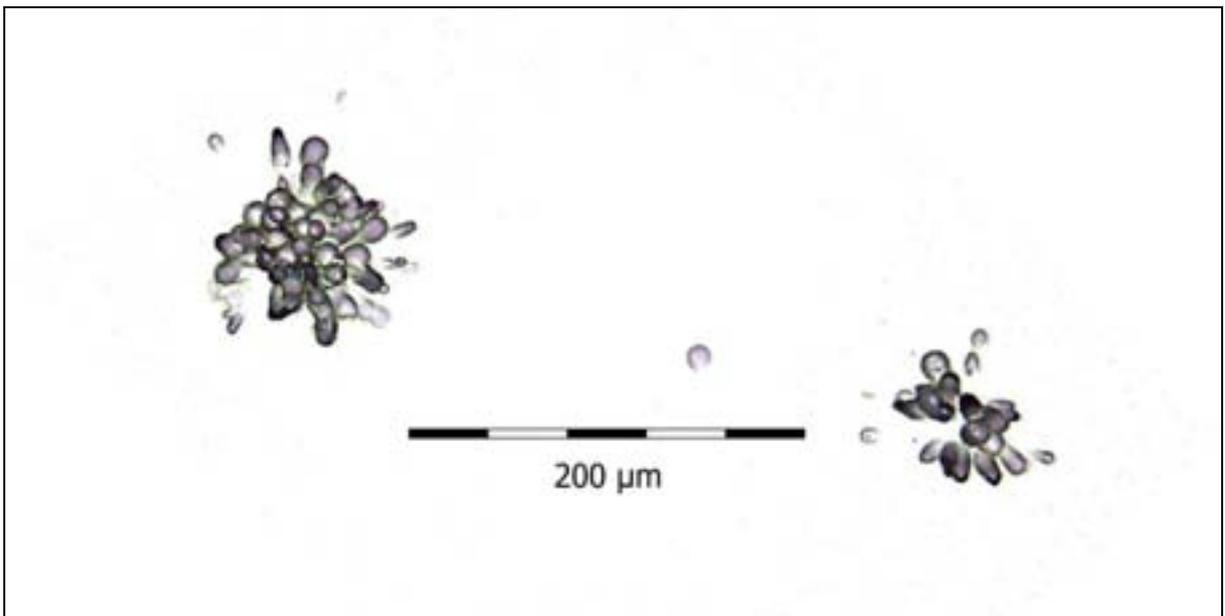
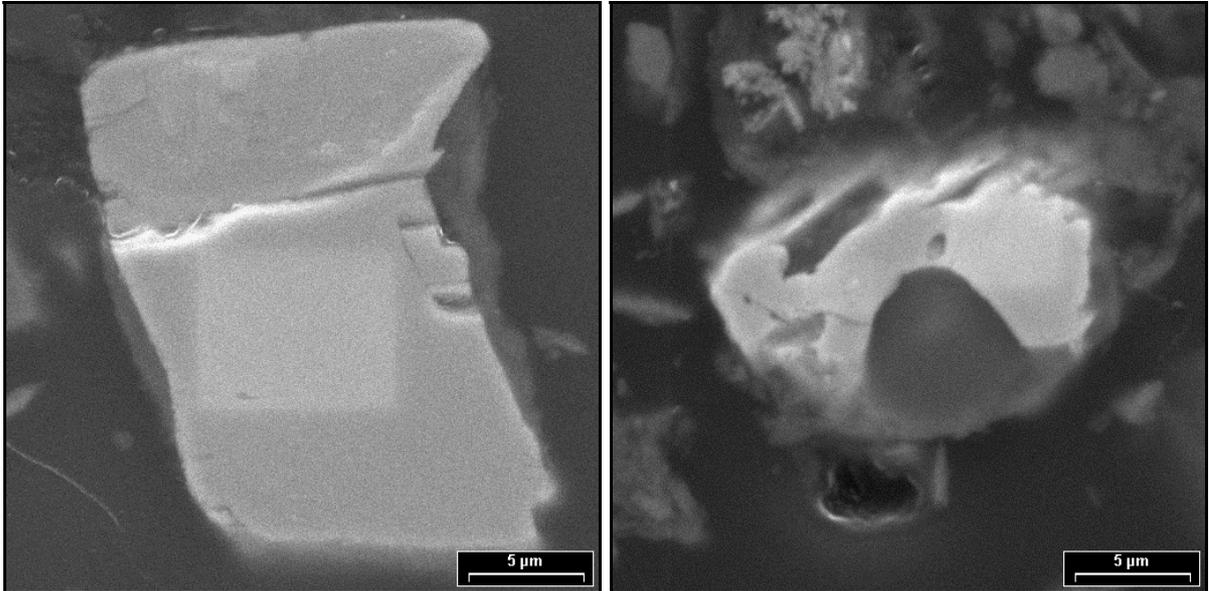
### Glume



Spektrum, REM-Aufnahme (nächste Seite) und Spurbild (nächste Seite) von Heißen Teilchen der Bachsediment-Probe 374 (Markierung b). In dieser Markierung wurden zwei Heiße Teilchen gefunden. Es handelt sich in beiden Fällen um Monazitkörnchen (ca.  $14 \times 22 \mu\text{m}$  und  $11 \times 17 \mu\text{m}$  groß) mit Thorium. Das Spektrum ist charakteristisch für einen Monazit. Es ist durch die Gehalte an Seltenen Erden wie Ce, La und durch P gekennzeichnet. Da sich die Spektren der beiden detektierten Monazite gleichen, wurde nur das Spektrum des größeren Monazitkörnchens abgebildet. Auf dem Autoradiogramm gehört das größere Sternspurmuster zu dem größeren Monazit, das kleinere entsprechend zu dem kleinen.

## Tafel 100 – Teil 2

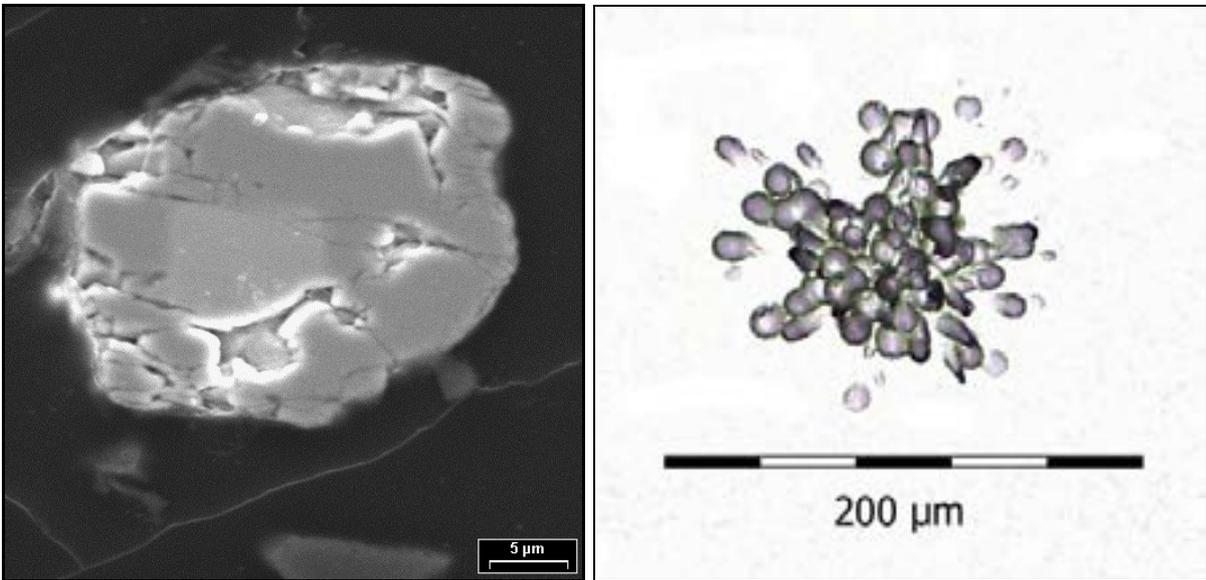
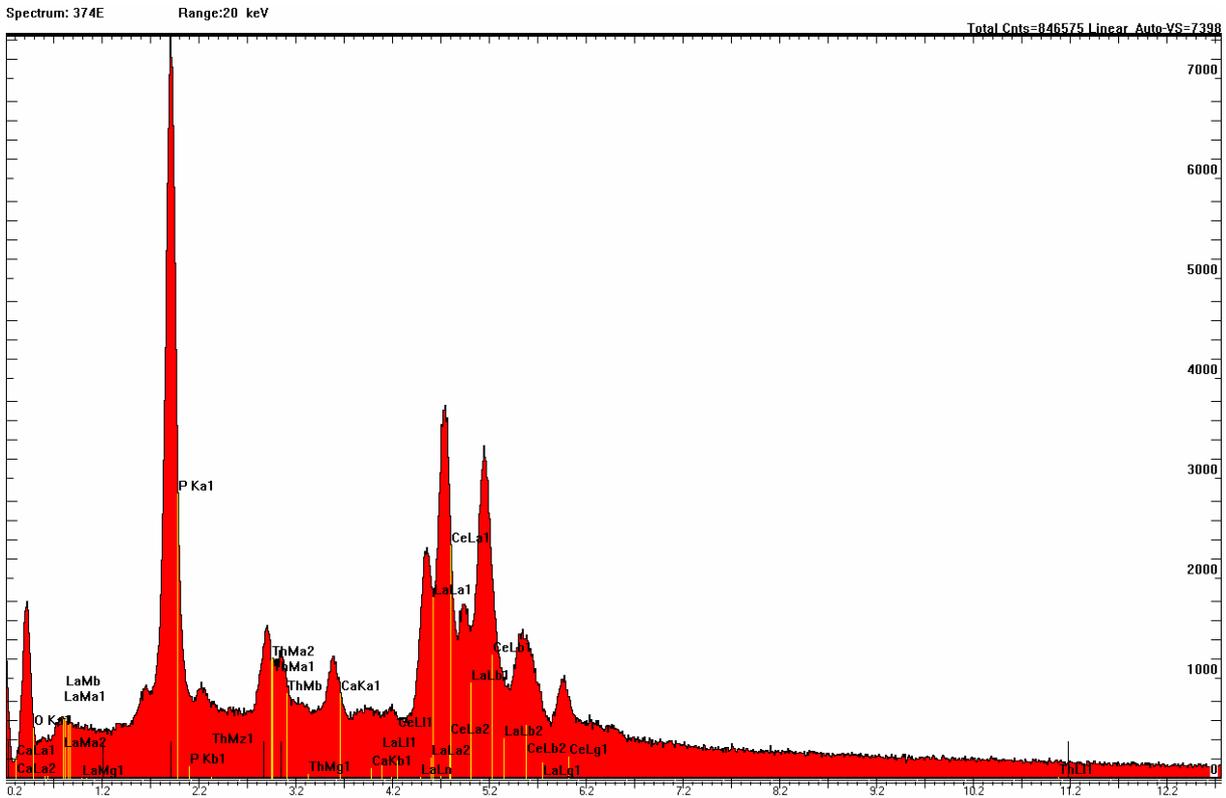
### Glume



Erläuterungen siehe vorige Tafel.

# Tafel 101

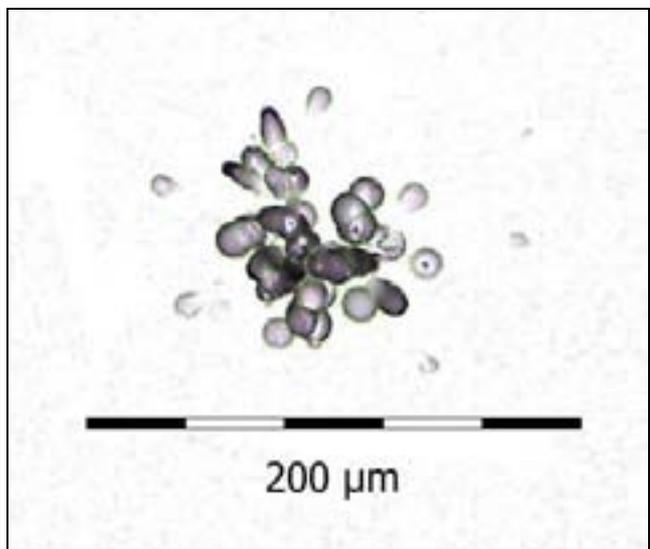
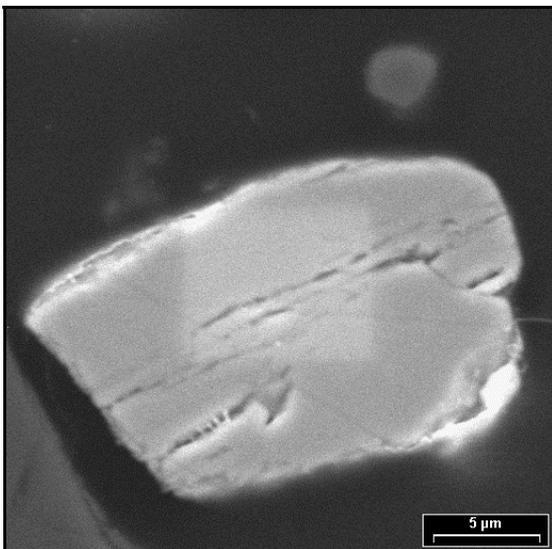
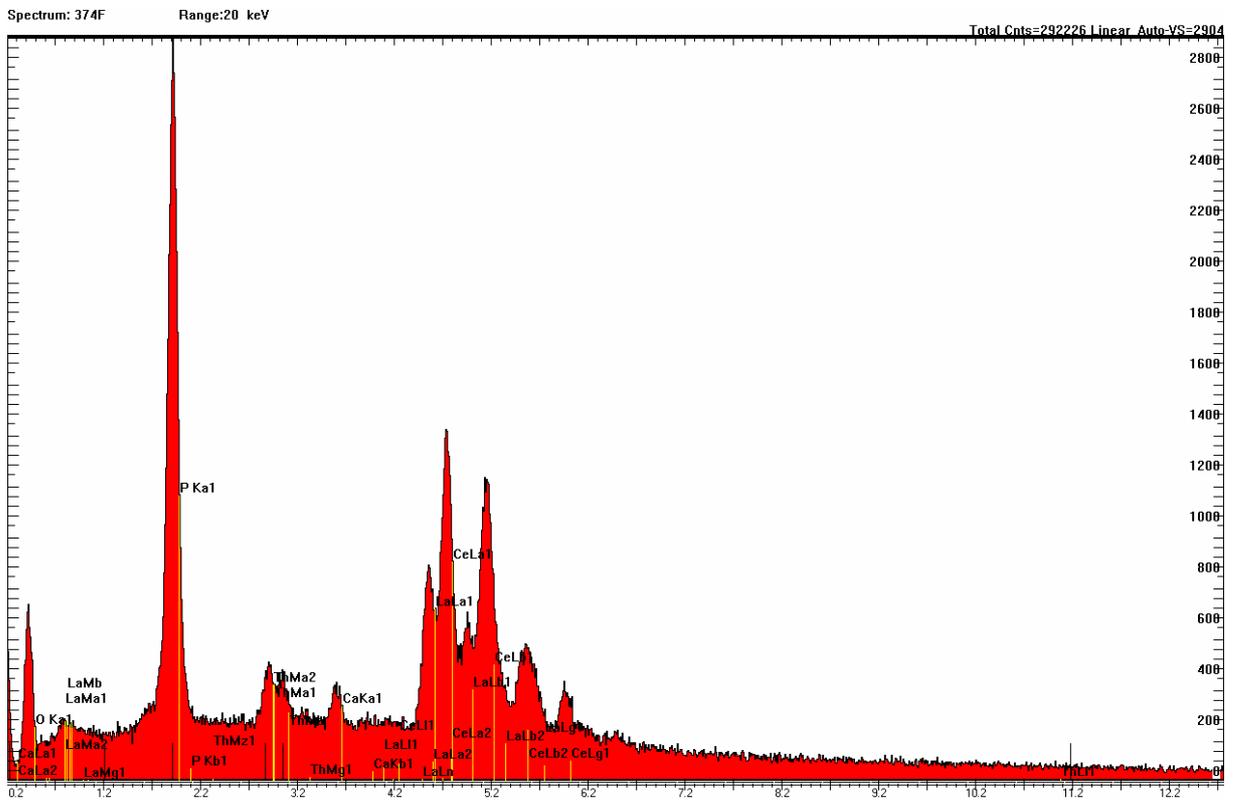
## Glume



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Bachsediment-Probe 374 (Markierung e). Es handelt sich hier um ein ca. 28×22 μm großes Monazitkorn, das Thorium enthält.

# Tafel 102

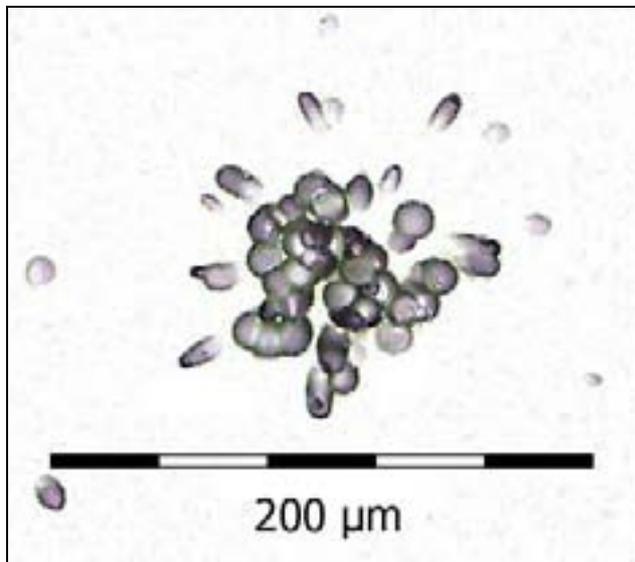
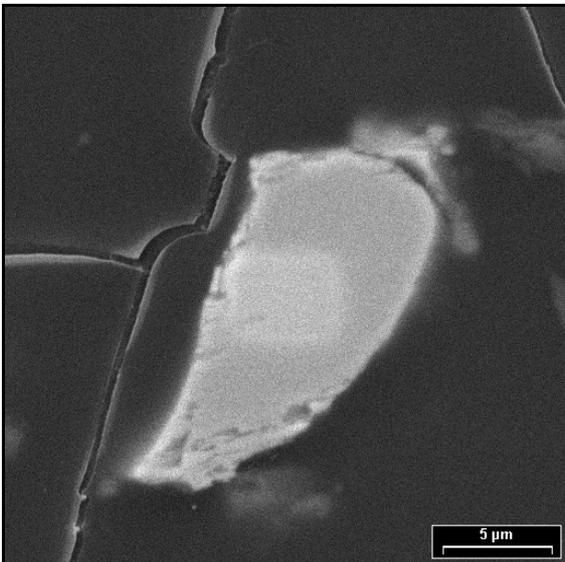
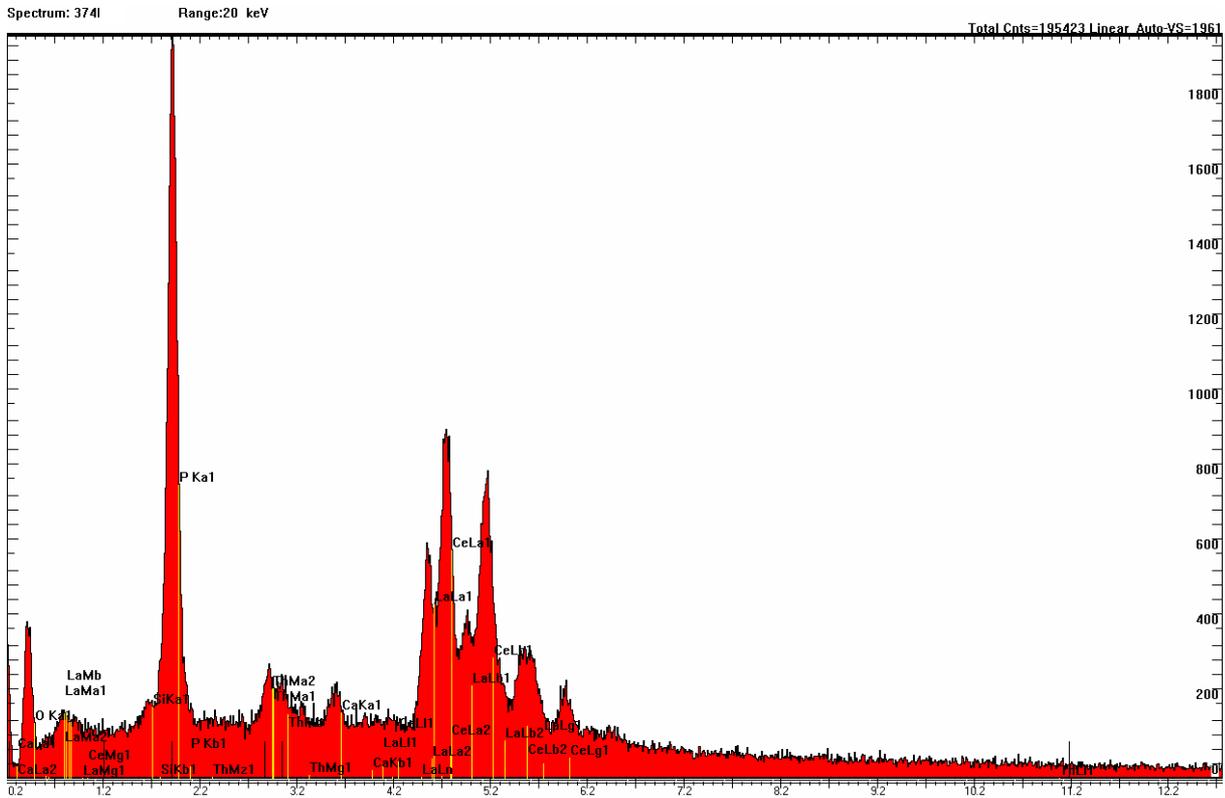
## Glume



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Bachsediment-Probe 374 (Markierung f). Es handelt sich hier um ein ca. 14 $\times$ 21  $\mu$ m großes Monazitkorn, das Thorium enthält.

# Tafel 103

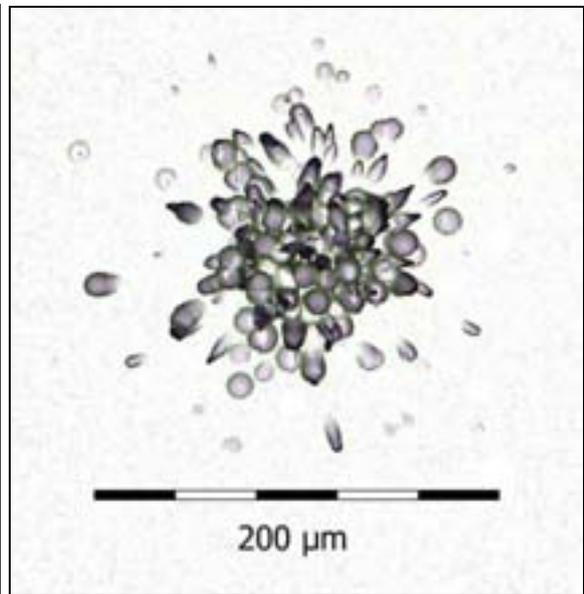
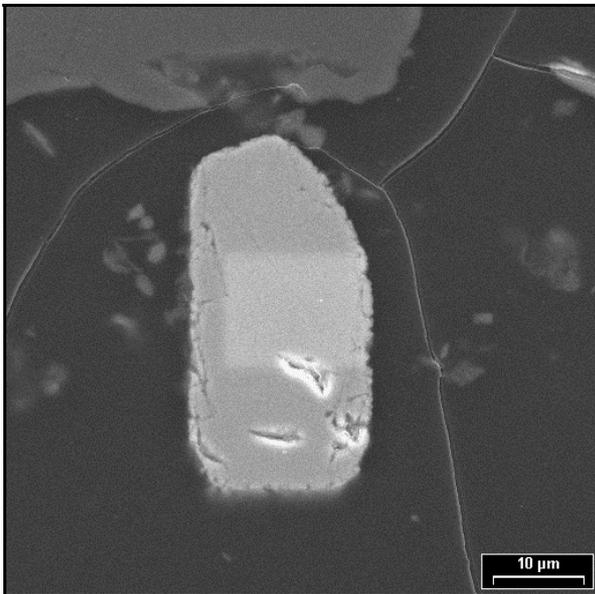
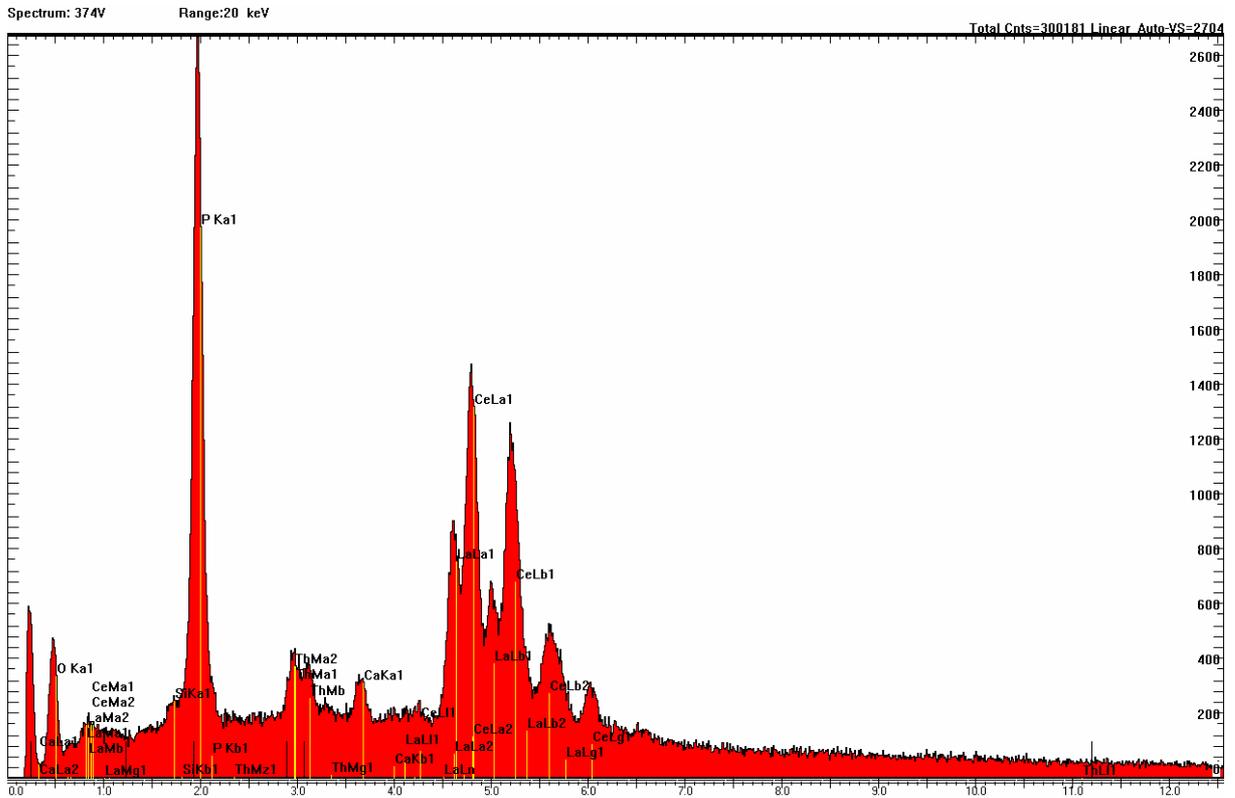
## Glume



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Bachsediment-Probe 374 (Markierung g). Es handelt sich hier um ein ca.  $9 \times 16 \mu\text{m}$  großes Monazitkorn, das Thorium enthält. Der Thoriumgehalt ist relativ gering, erkennbar an dem schwachen Peak im Spektrum.

# Tafel 104

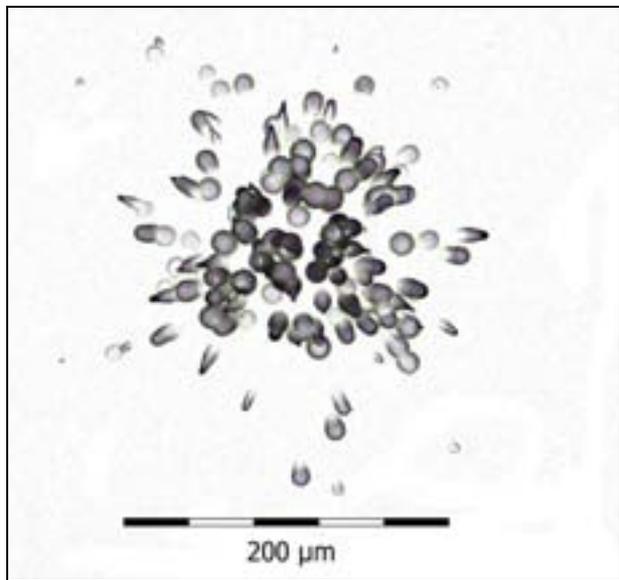
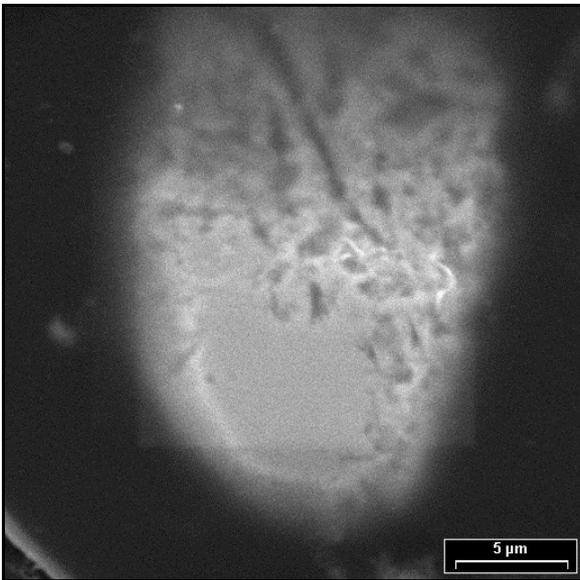
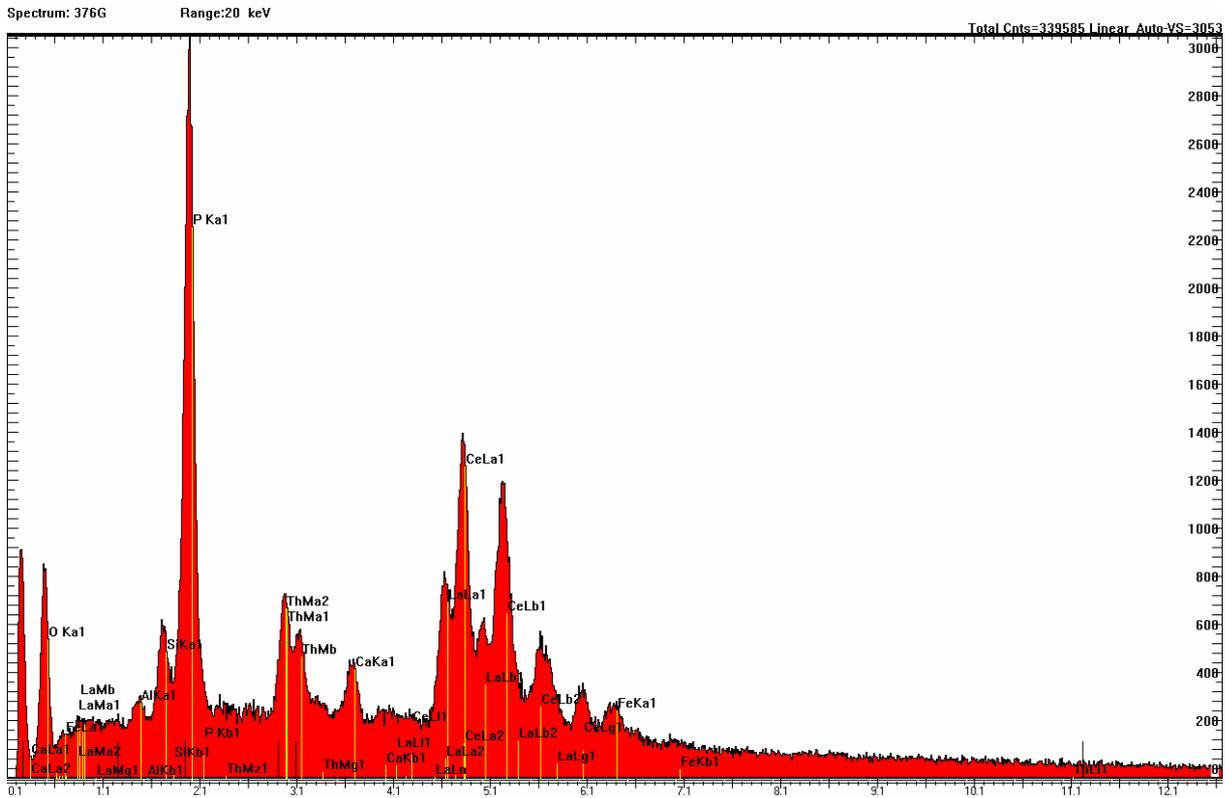
## Glume



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Bachsediment-Probe 374 (Markierung v). Es handelt sich hier um ein ca. 20×40 µm großes Monazitkorn, das Thorium enthält.

# Tafel 105

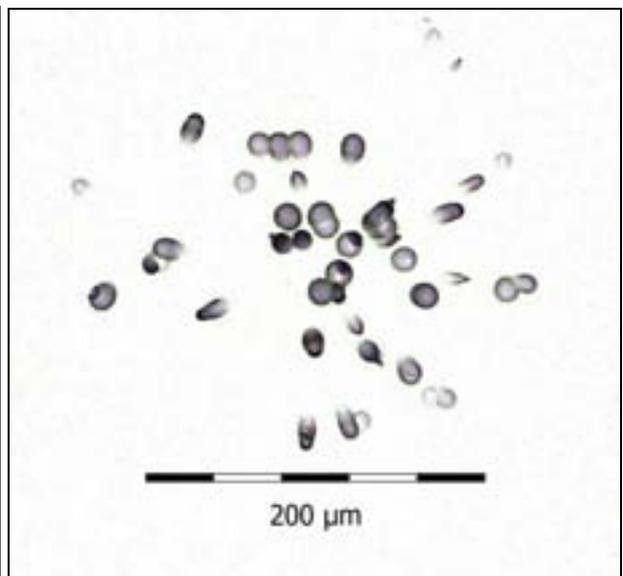
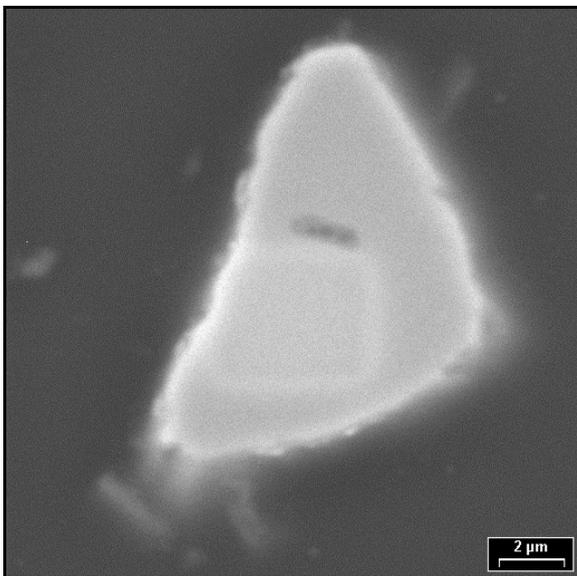
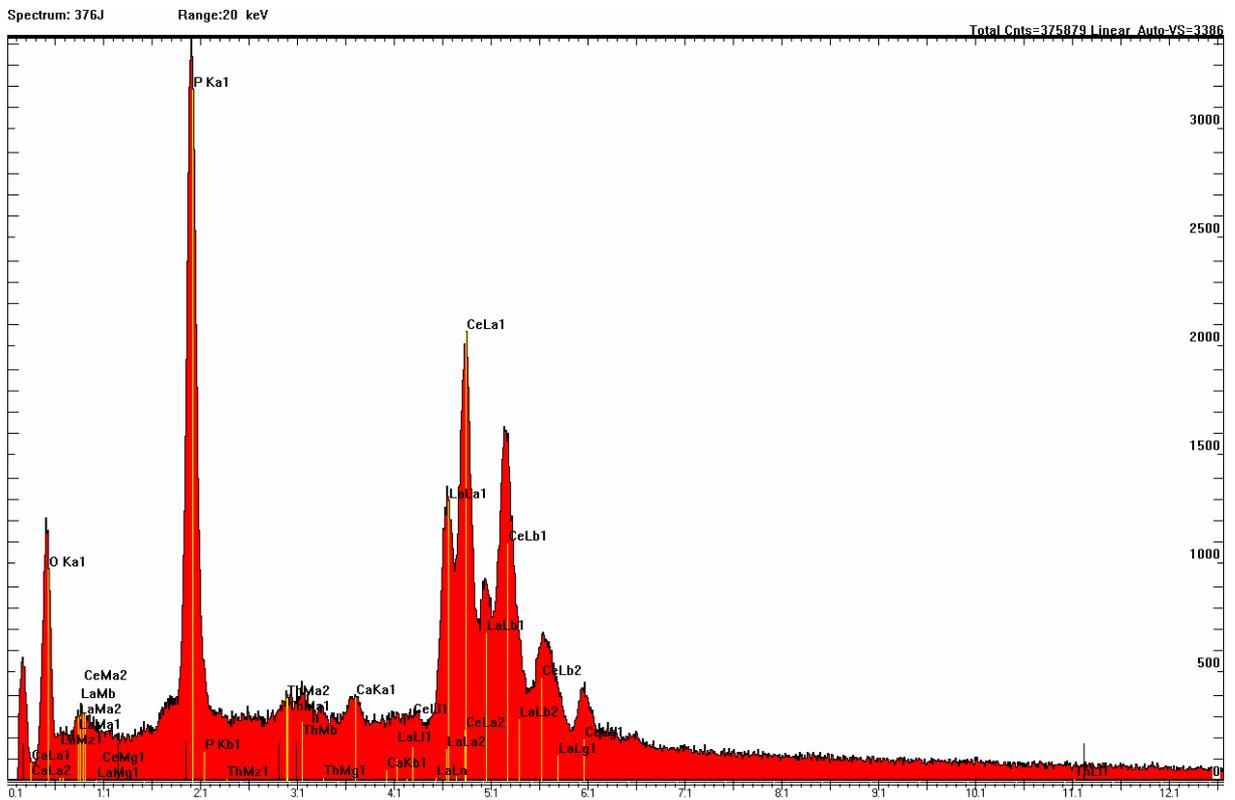
## Glume



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Bachsediment-Probe 376 (Markierung g). Es handelt sich hier um ein Monazitkorn, das Thorium enthält. Das Monazitkörnchen liegt nur z.T. an der Probenoberfläche (siehe REM-Aufnahme). Dieser Teil wurde analysiert.

# Tafel 106

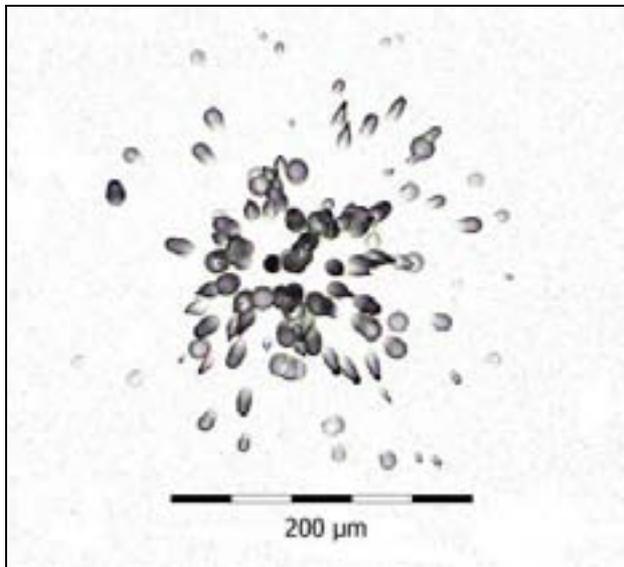
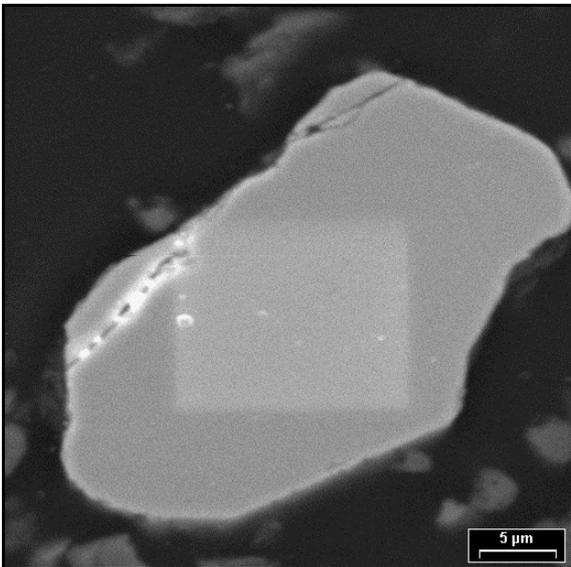
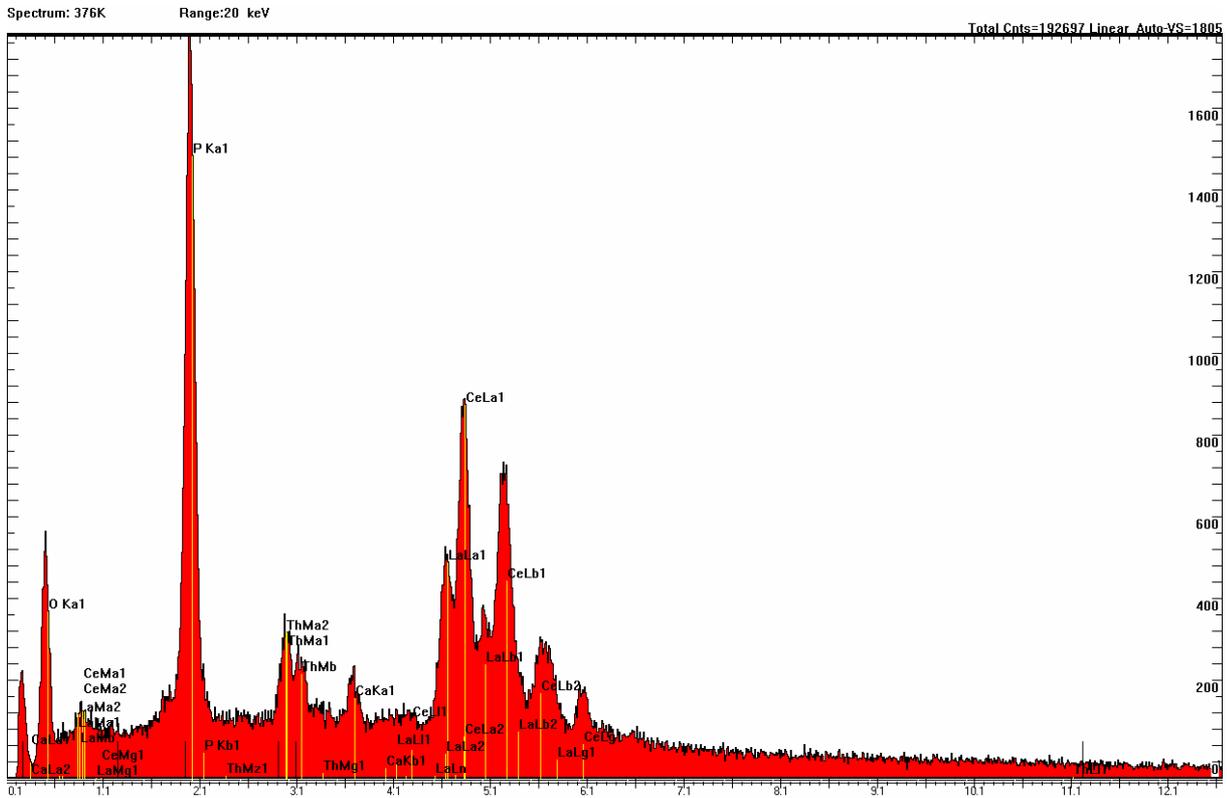
## Glume



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Bachsediment-Probe 376 (Markierung j). Es handelt sich hier um ein ca.  $7 \times 12 \mu\text{m}$  großes Monazitkörnchen, das Thorium enthält. Der Thoriumgehalt ist gering.

# Tafel 107

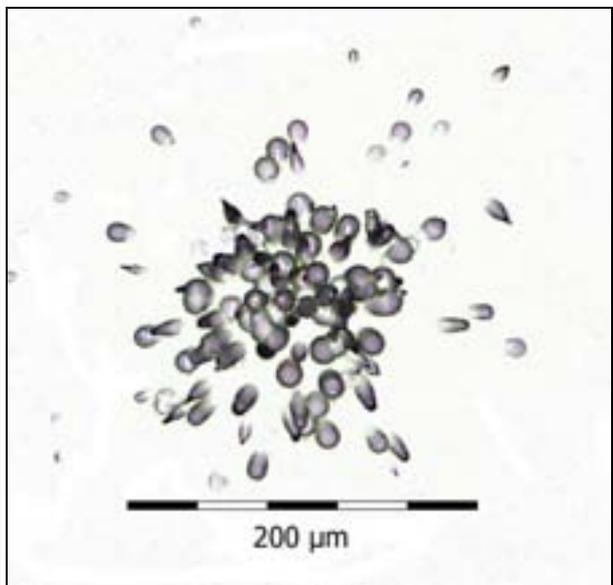
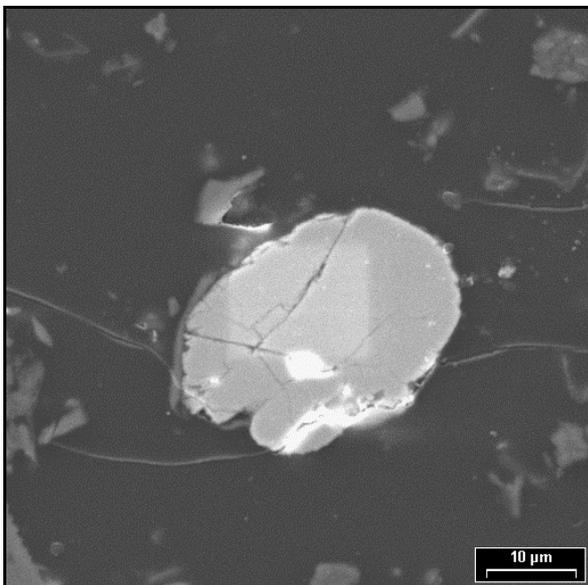
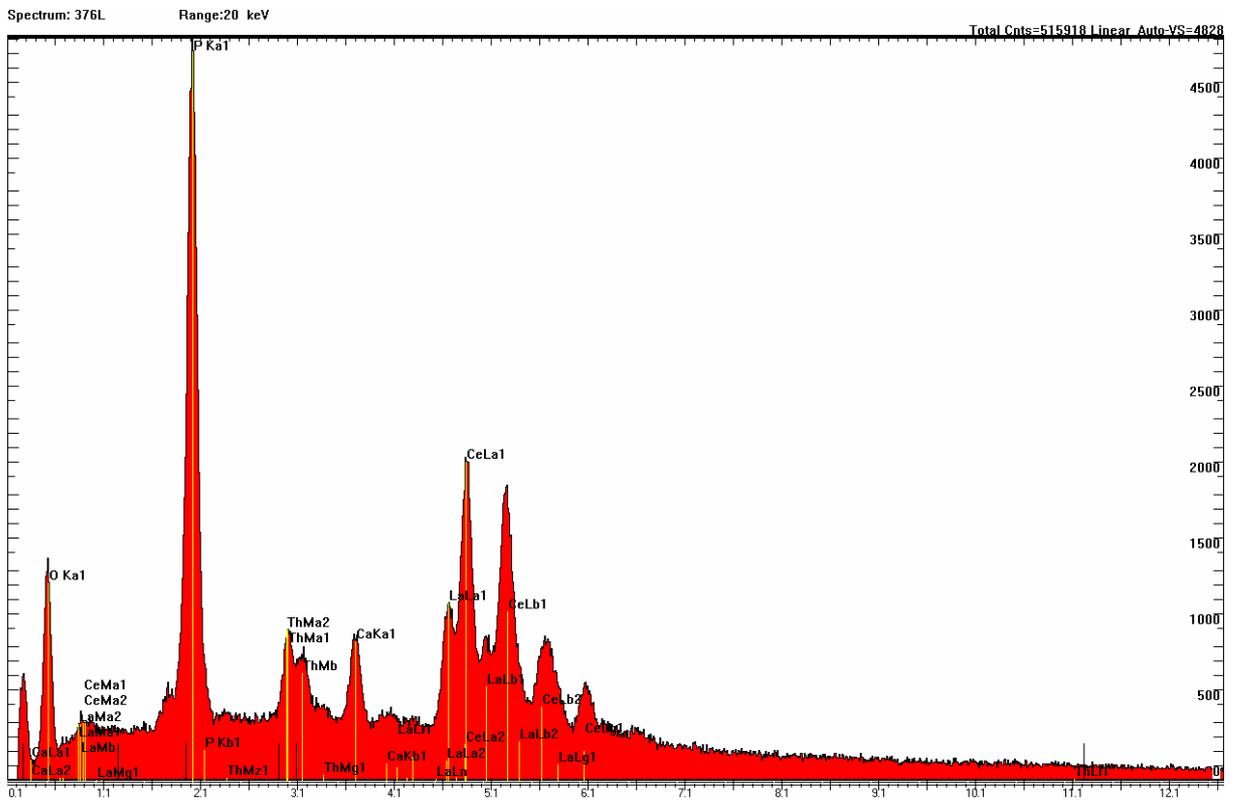
## Glume



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Bachsediment-Probe 376 (Markierung k). Es handelt sich hier um ein ca. 20×38 µm großes Monazitkörnchen mit Thorium.

# Tafel 108

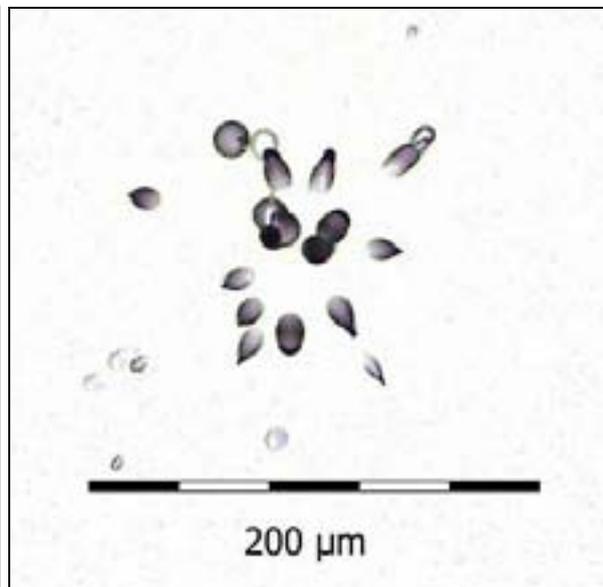
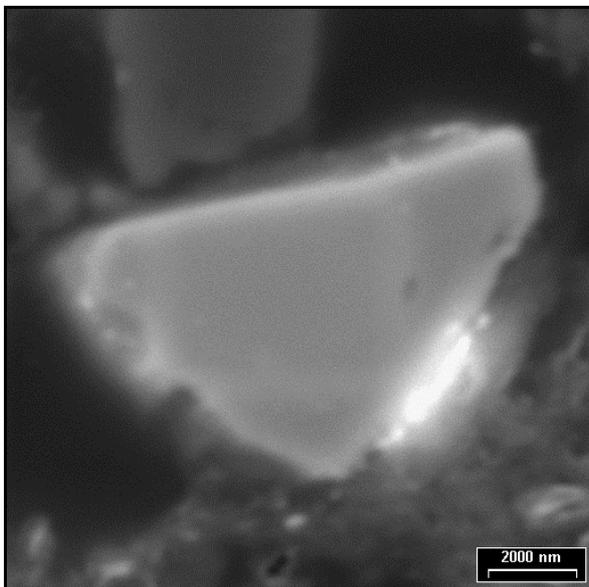
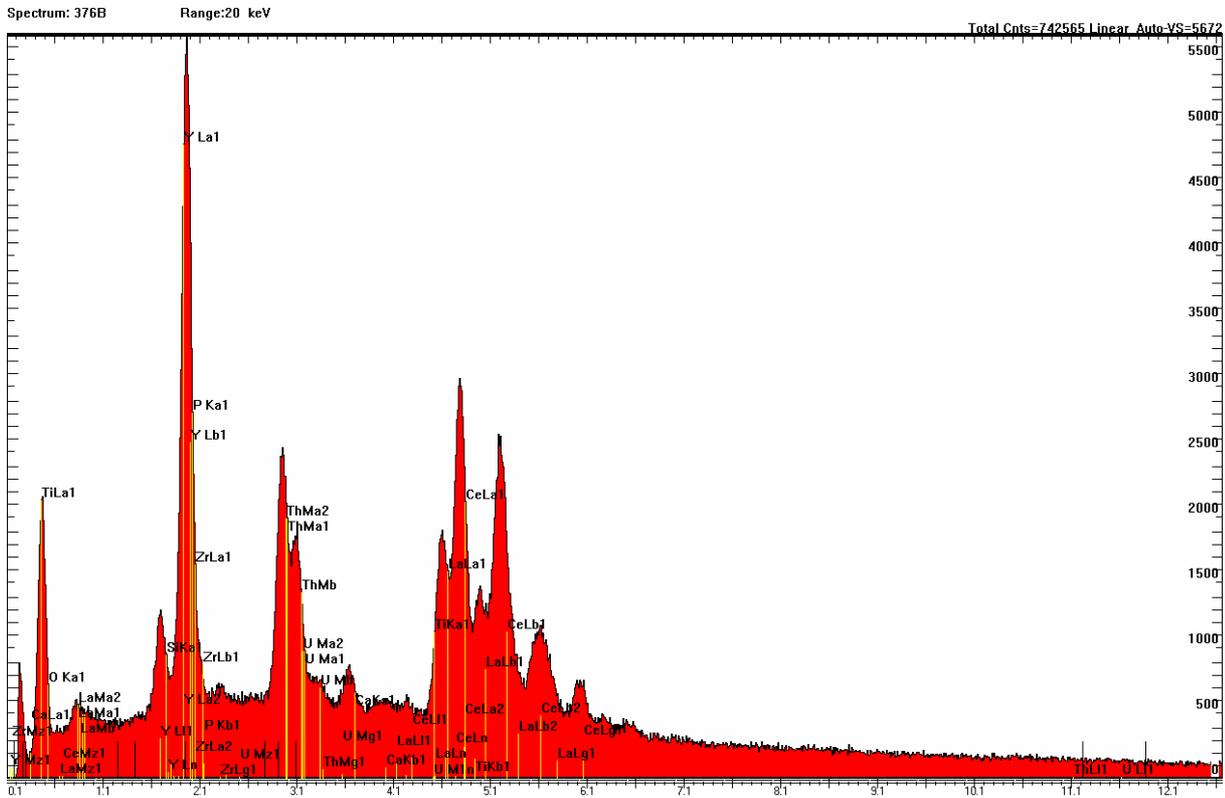
## Glume



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Bachsediment-Probe 376 (Markierung 1). Es handelt sich hier um ein ca. 22×30 μm großes Monazitkörnchen mit Thorium.

# Tafel 109

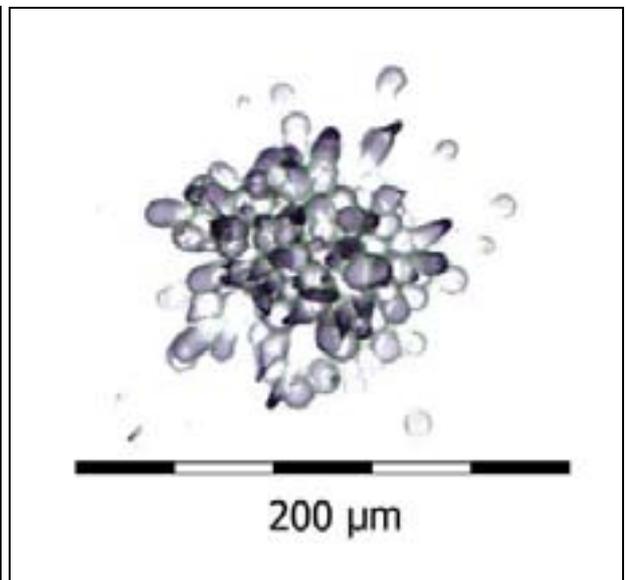
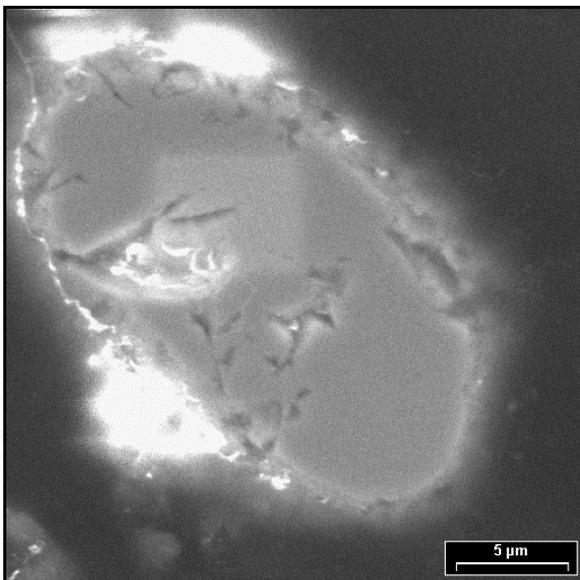
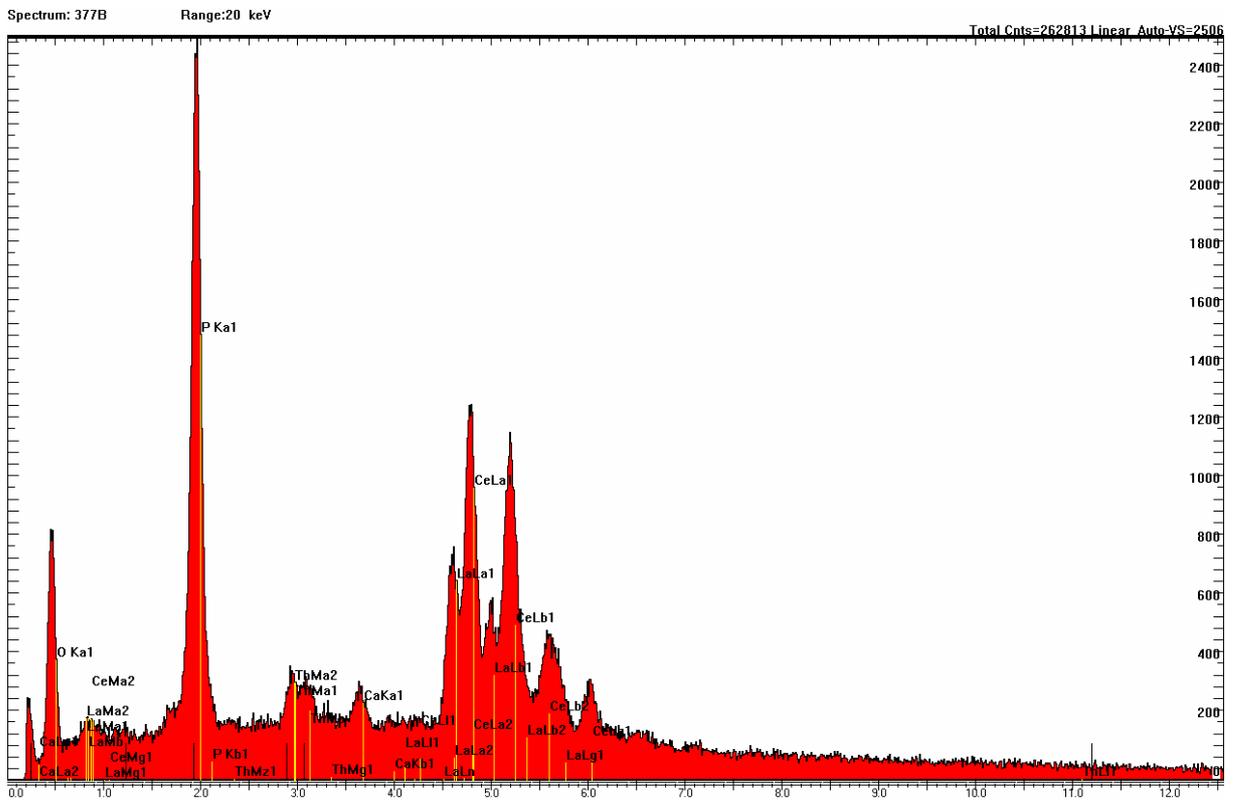
## Glume



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Bachsediment-Probe 376 (Markierung b). Es handelt sich hier um ein ca.  $5 \times 9 \mu\text{m}$  großes Xenotimkörnchen mit Thorium und Uran.

# Tafel 110

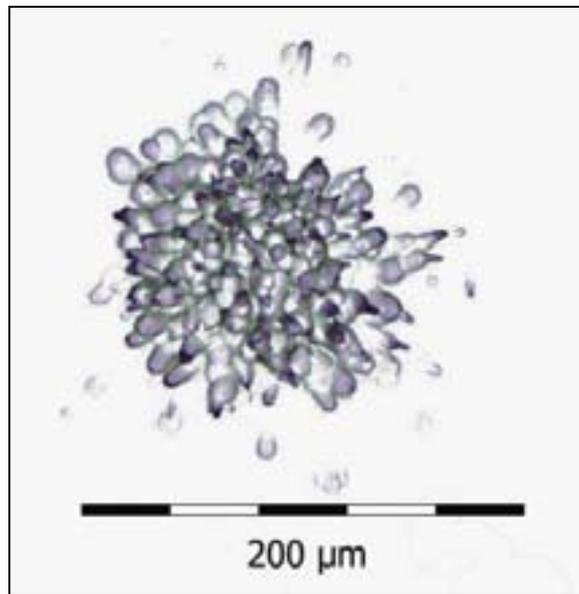
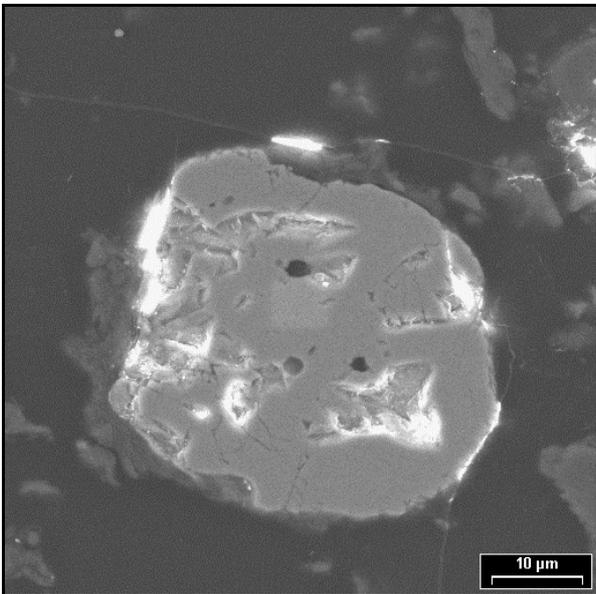
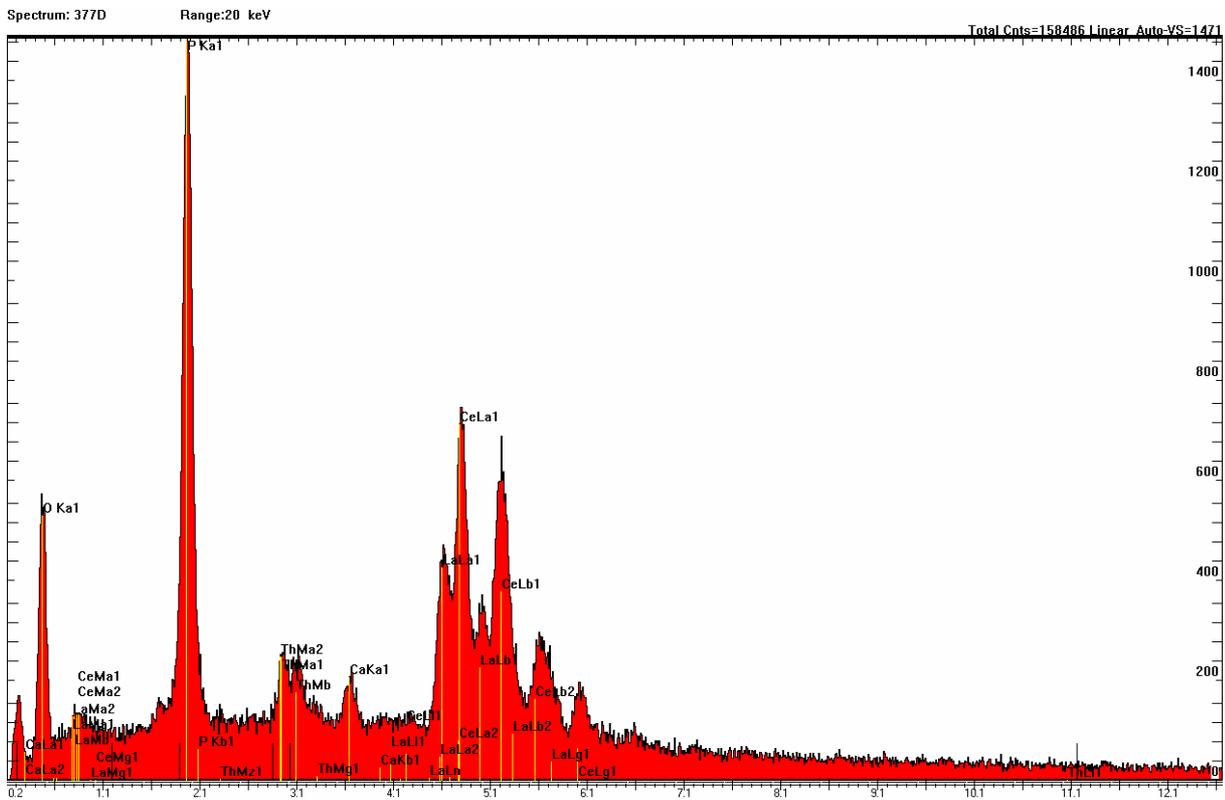
## Glume



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Bachsediment-Probe 377 (Markierung b). Es handelt sich hier um ein ca.  $12 \times 23 \mu\text{m}$  großes Monazitkörnchen mit Thorium.

# Tafel 111

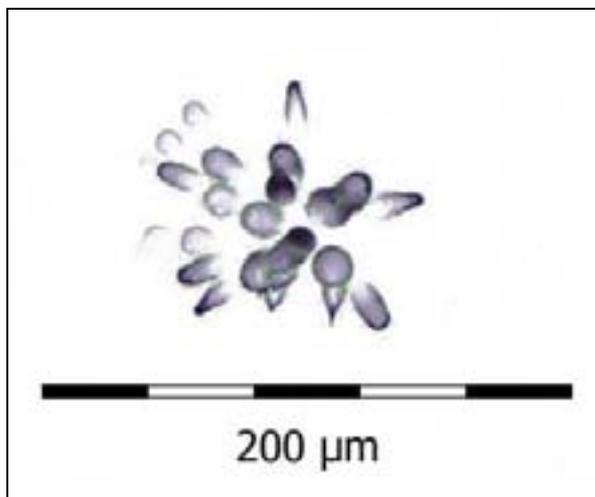
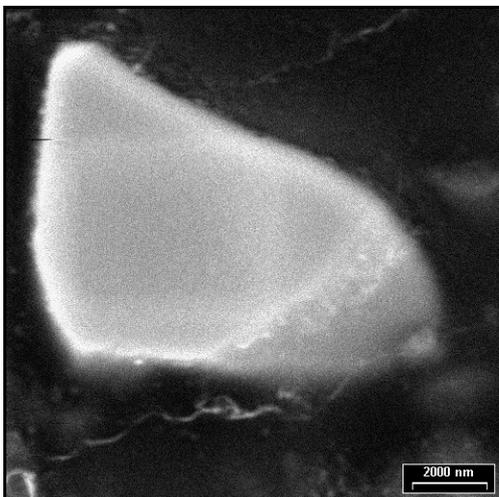
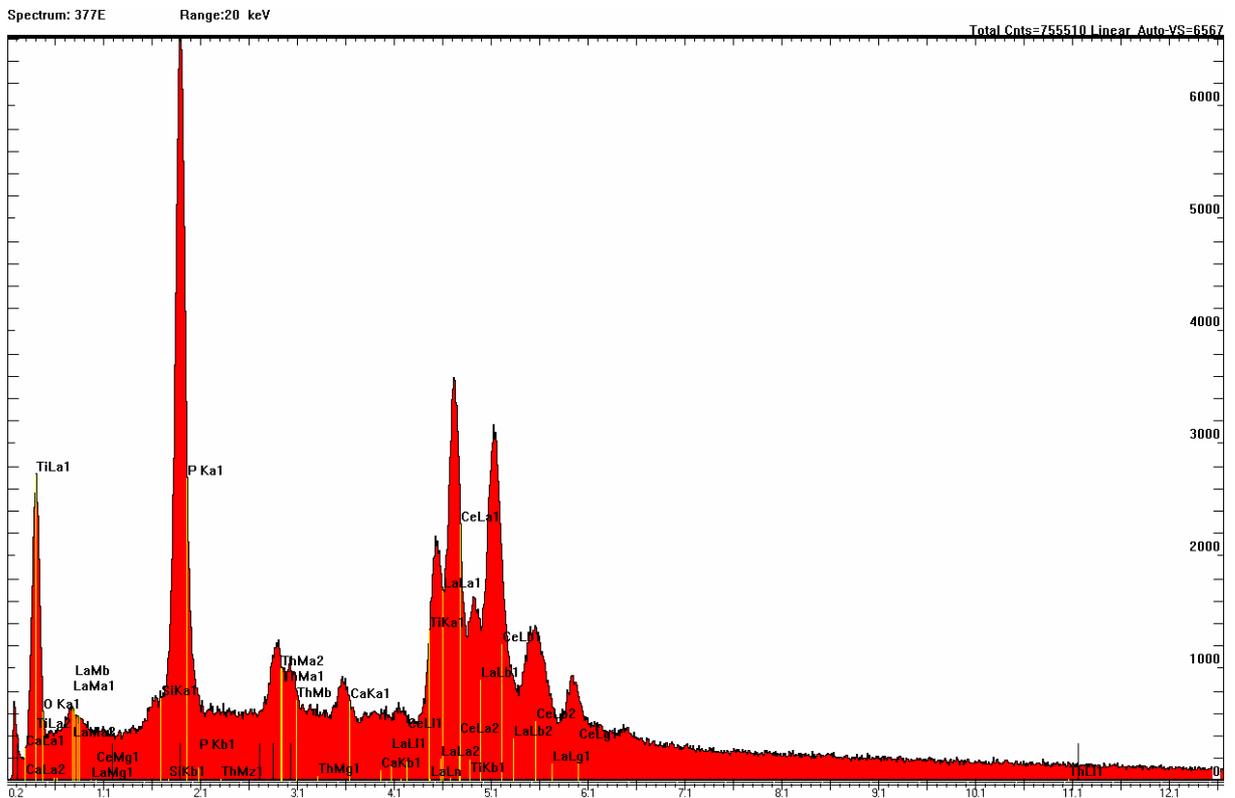
## Glume



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Bachsediment-Probe 377 (Markierung d). Es handelt sich hier um ein ca. 35×35 µm großes Monazitkörnchen mit Thorium.

# Tafel 112

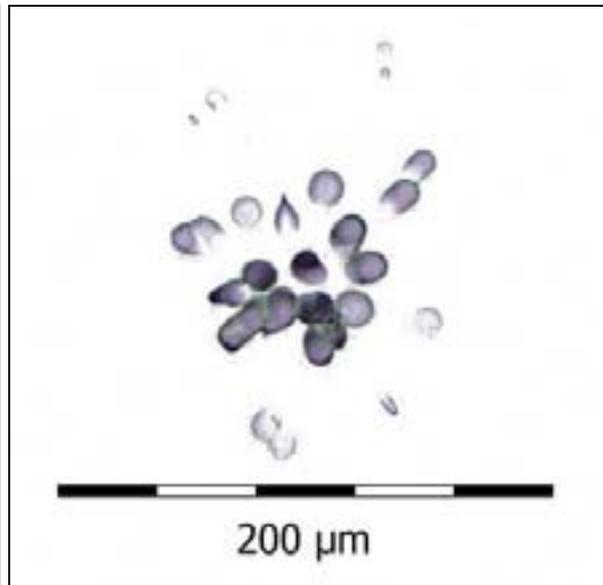
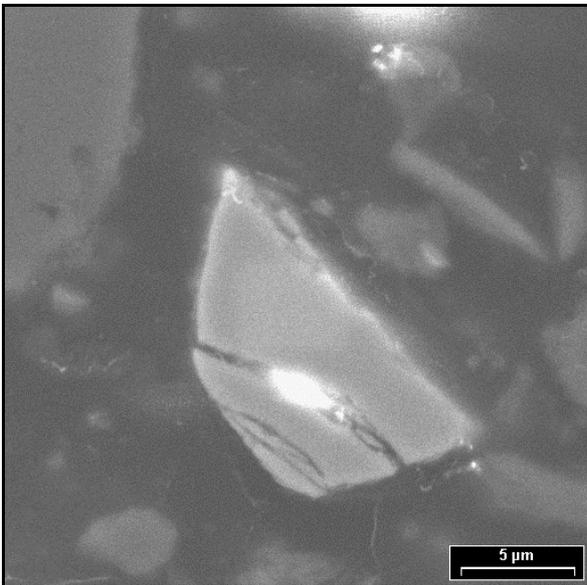
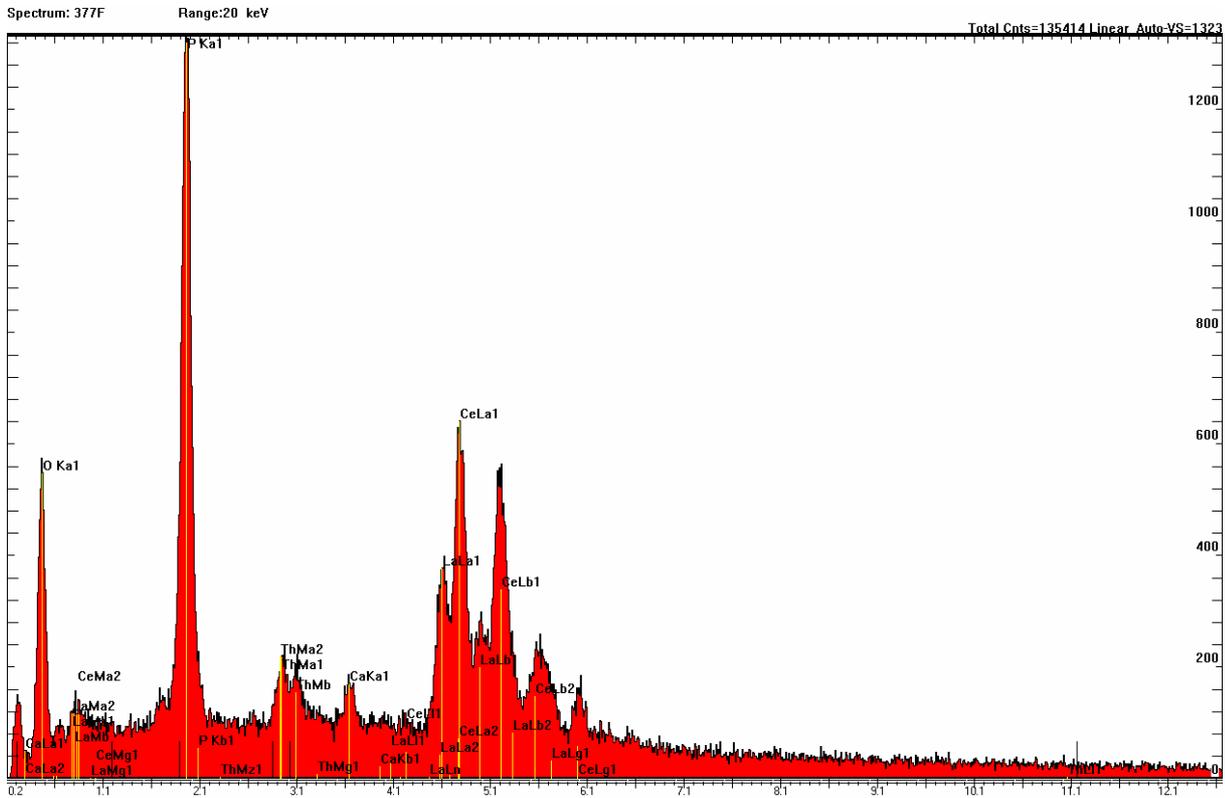
## Glume



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Bachsediment-Probe 377 (Markierung e). Es handelt sich hier um ein ca.  $6 \times 10 \mu\text{m}$  großes Monazitkörnchen mit Thorium.

# Tafel 113

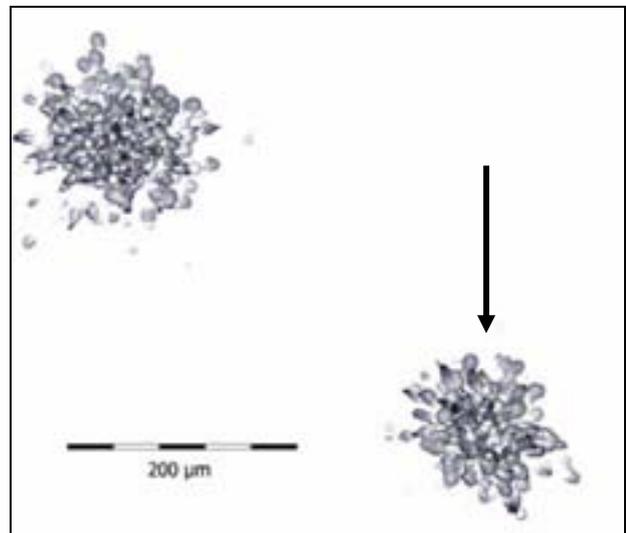
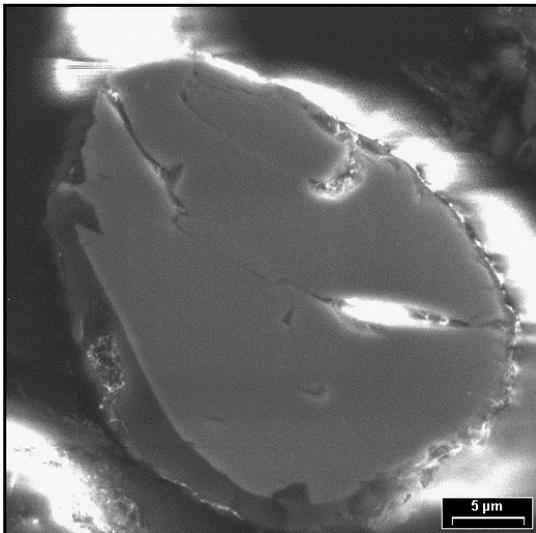
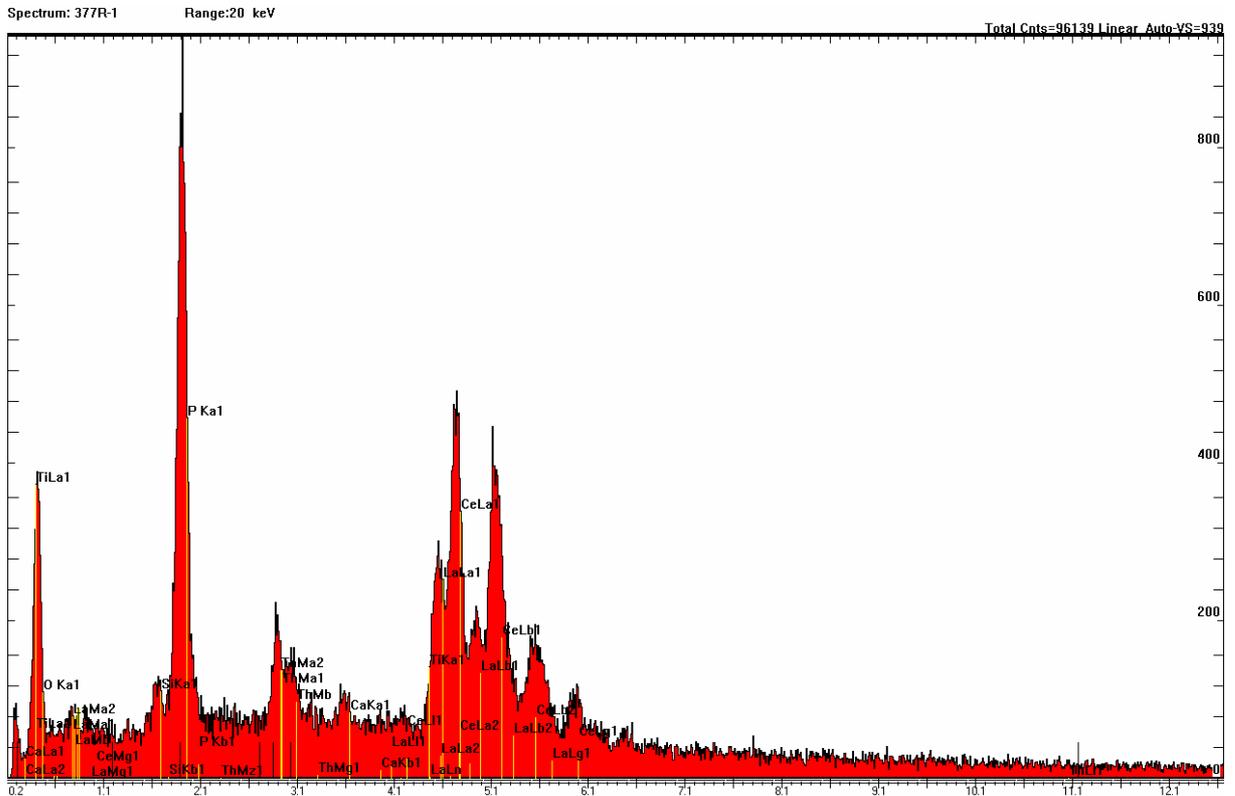
## Glume



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines heißen Teilchens der Bachsediment-Probe 377 (Markierung f). Es handelt sich hier um ein ca.  $8 \times 12 \mu\text{m}$  großes Monazitkörnchen mit Thorium.

# Tafel 114

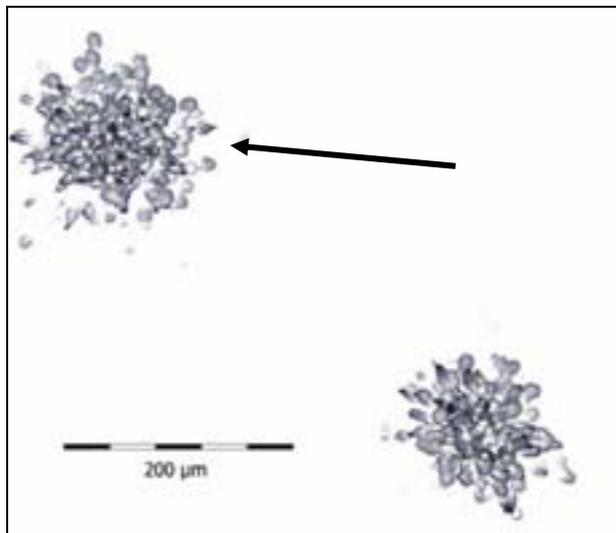
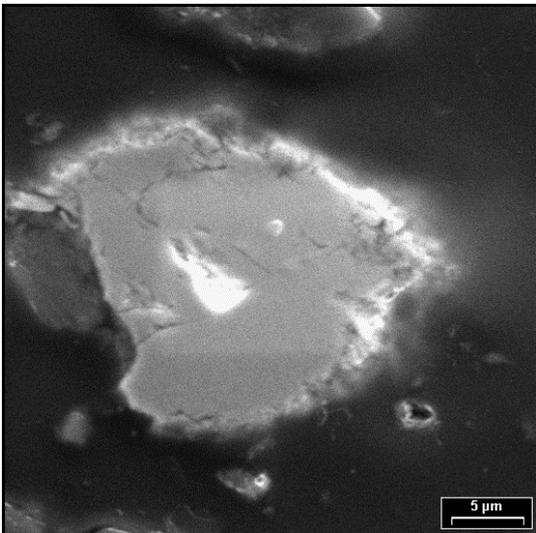
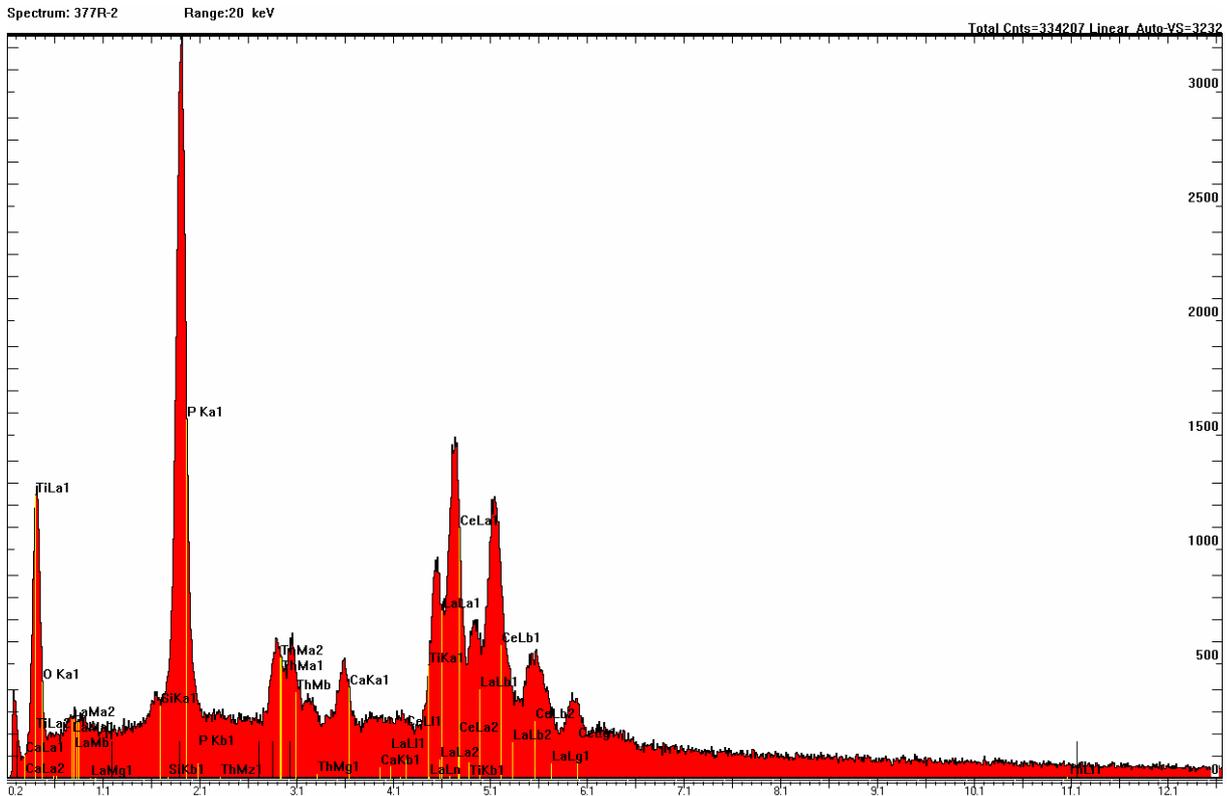
## Glume



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Bachsediment-Probe 377 (Markierung r-1). Es handelt sich hier um ein ca. 24×35 µm großes Monazitkörnchen mit Thorium. Innerhalb der Markierung r liegen zwei Heiße Teilchen, erkennbar an den zwei Sternspurmustern auf dem Autoradiogramm. Sie wurden beide untersucht und zur Unterscheidung mit r-1 und r-2 bezeichnet. Das hier abgebildete Heiße Teilchen hat das mit dem Pfeil markierte Sternspurmuster verursacht. Das zu der anderen Spur gehörende Heiße Teilchen und dessen Elementgehalte sind auf der folgenden Tafel dargestellt.

# Tafel 115

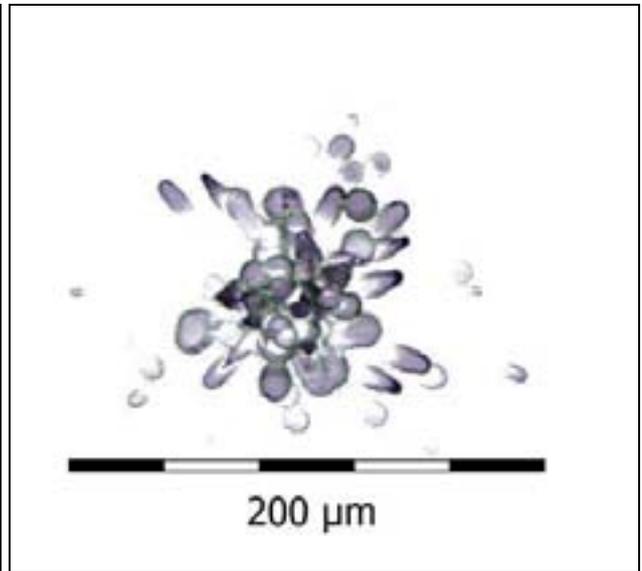
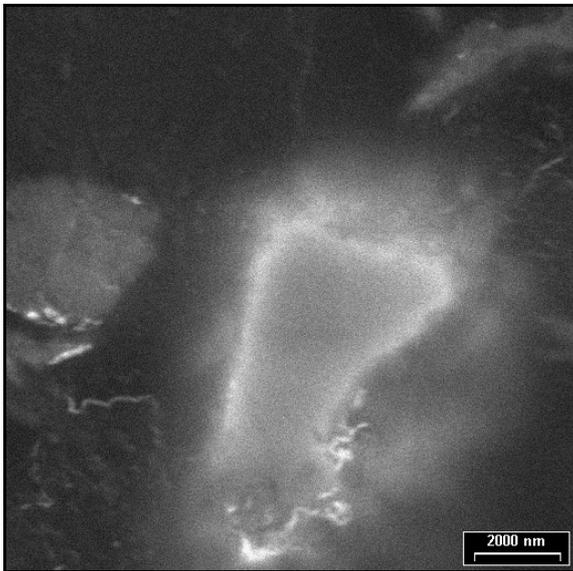
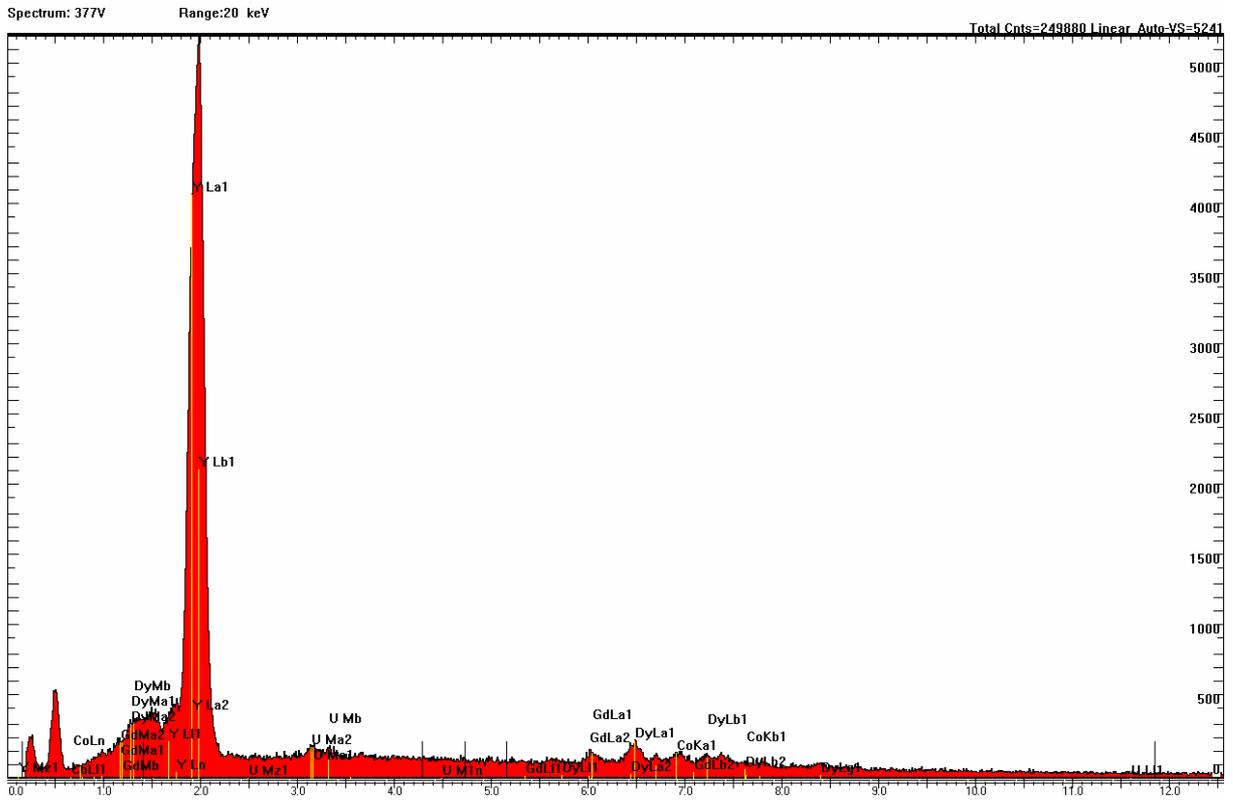
## Glume



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Bachsediment-Probe 377 (Markierung r-2). Es handelt sich hier um ein ca. 20×20 µm großes Monazitkörnchen mit Thorium. Der Pfeil markiert das zum dargestellten Heißen Teilchen gehörende Spurbild.

# Tafel 116

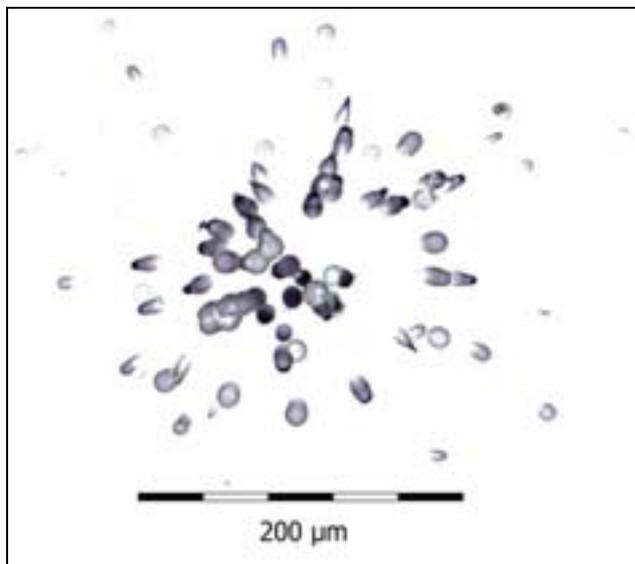
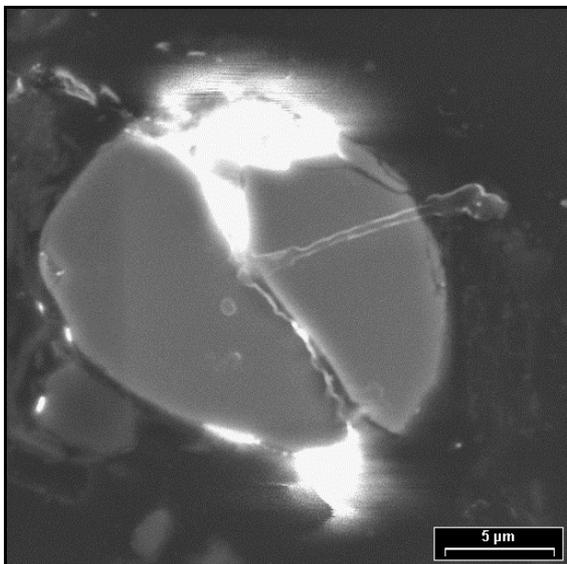
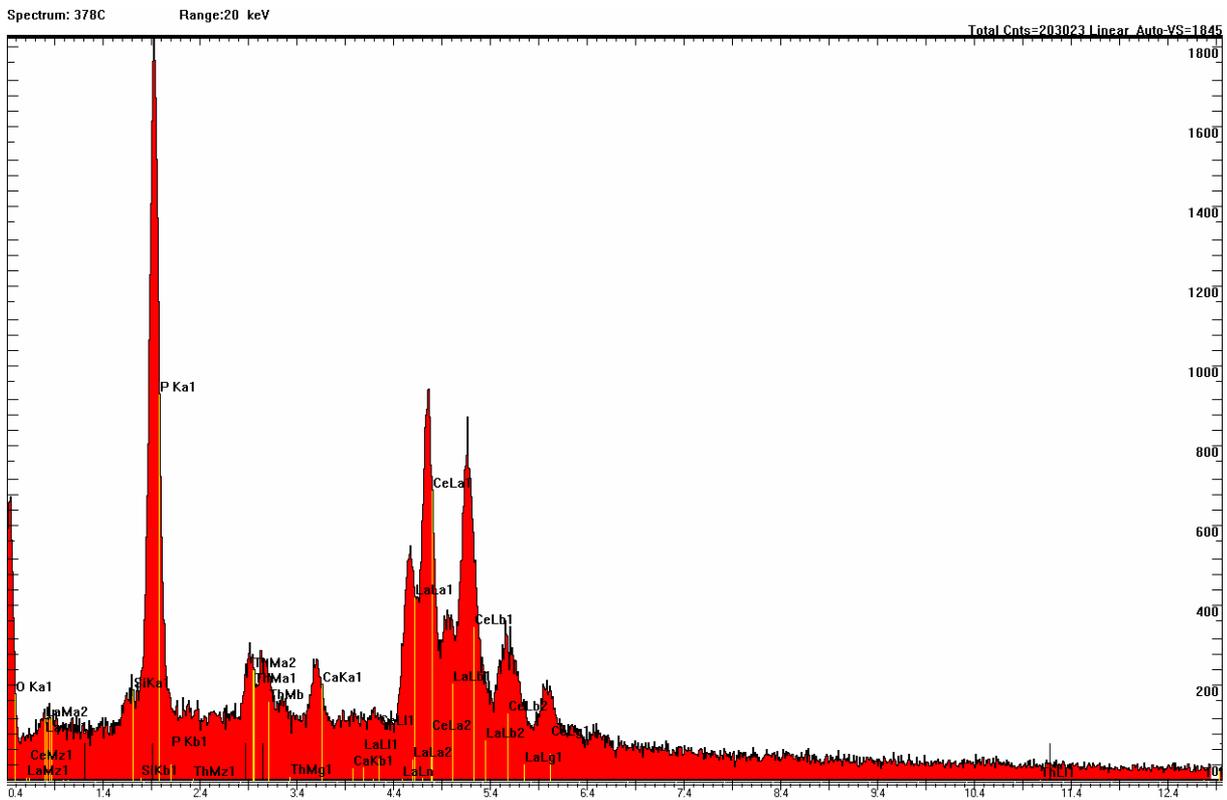
## Glume



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Bachsediment-Probe 377 (Markierung v). Es handelt sich hier um ein ca.  $3 \times 7 \mu\text{m}$  großes Xenotimkörnchen mit Uran. Der Uranpeak ist im Spektrum nur schwach ausgebildet. Das Sternspurmuster jedoch ist gut entwickelt.

# Tafel 117

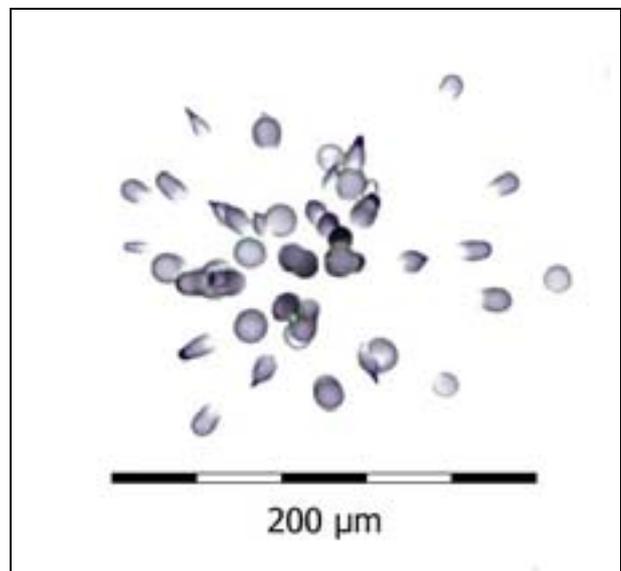
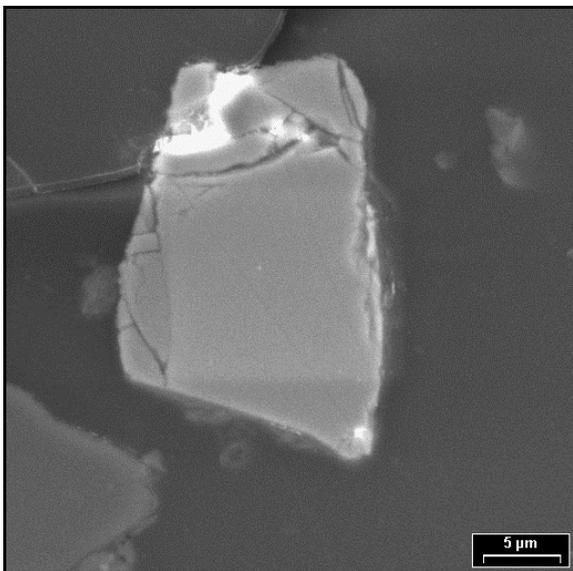
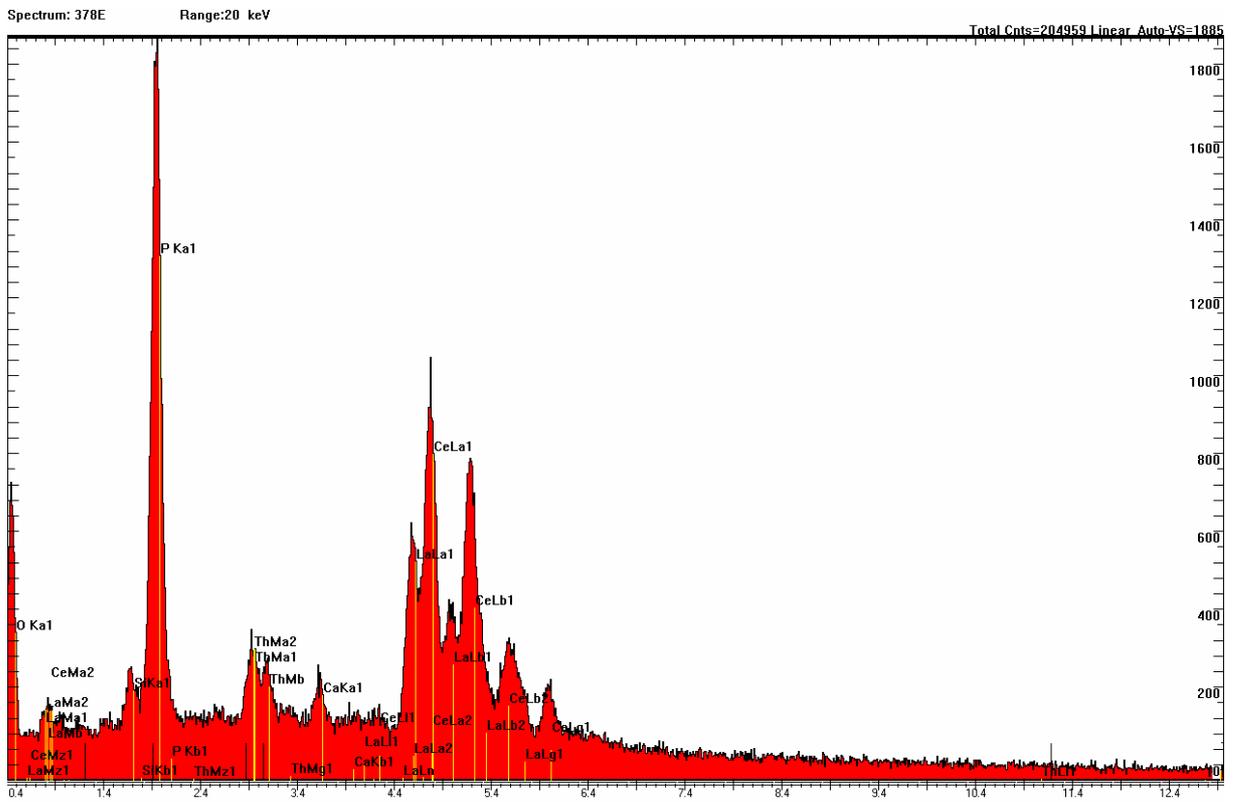
## Glume



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Bachsediment-Probe 378 (Markierung c). Es handelt sich hier um ein Monazitkörnchen mit Thorium.

# Tafel 118

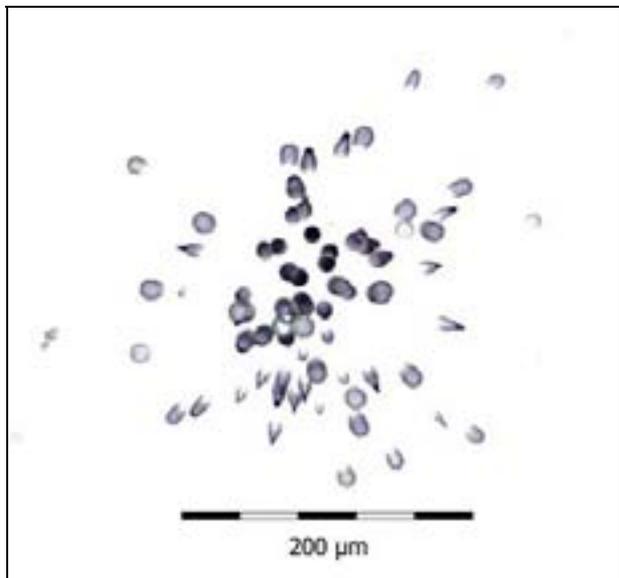
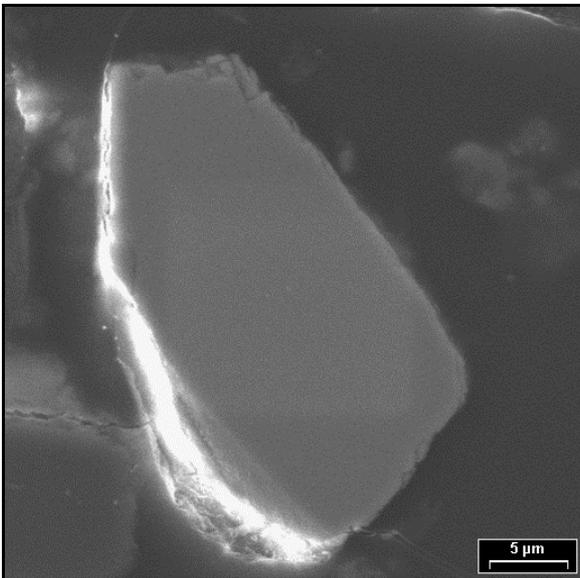
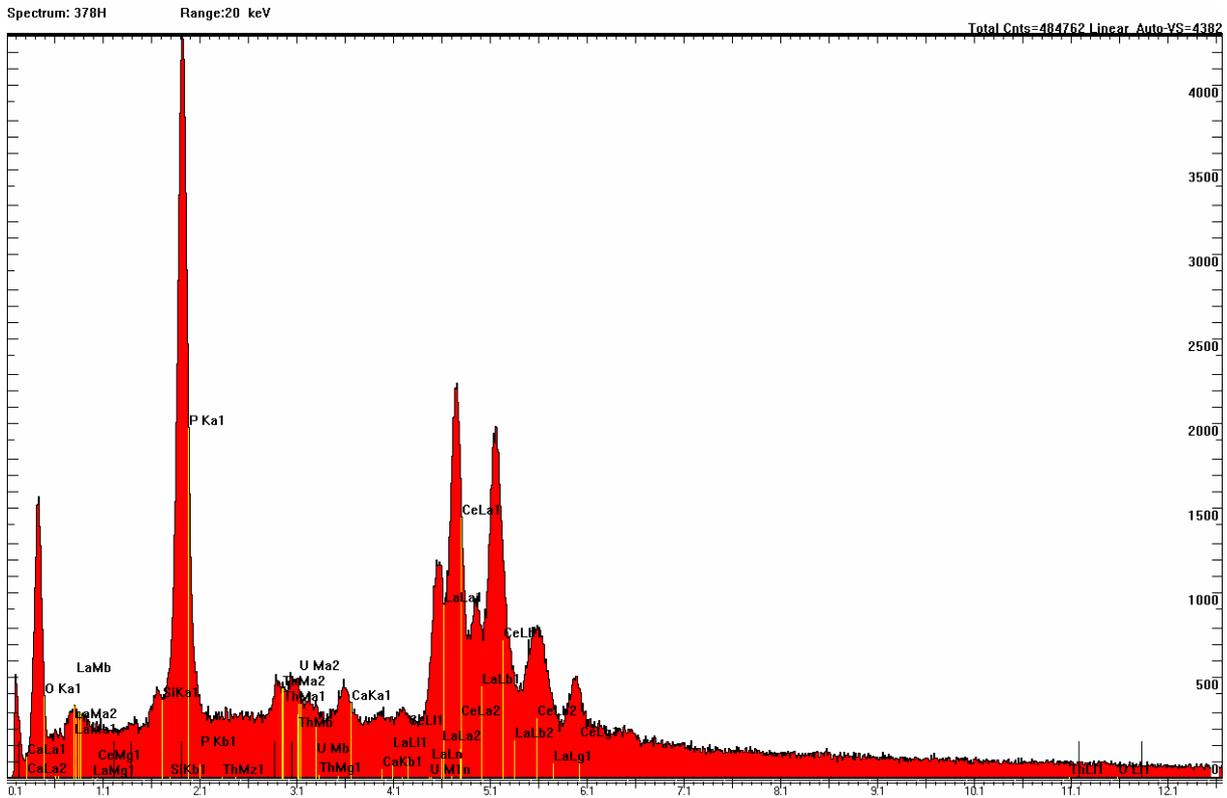
## Glume



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Bachsediment-Probe 378 (Markierung e). Es handelt sich hier um ein Monazitkörnchen mit Thorium.

# Tafel 119

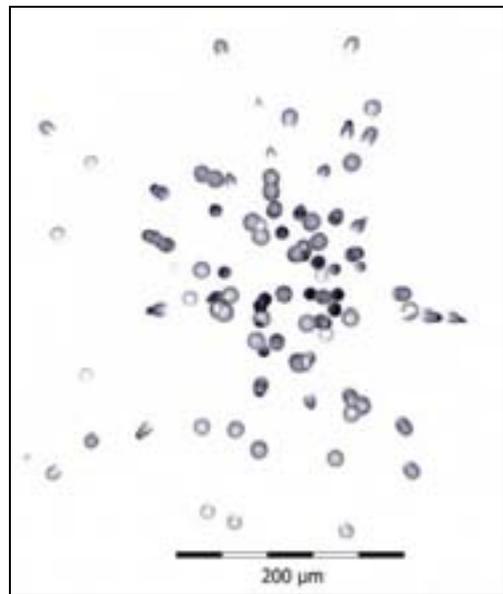
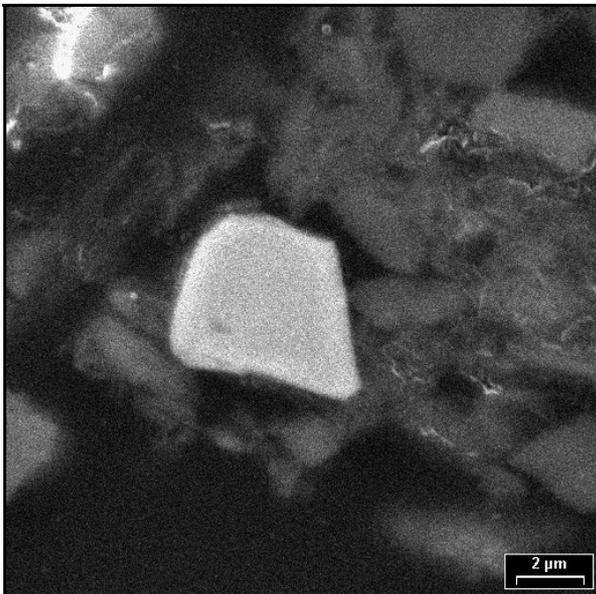
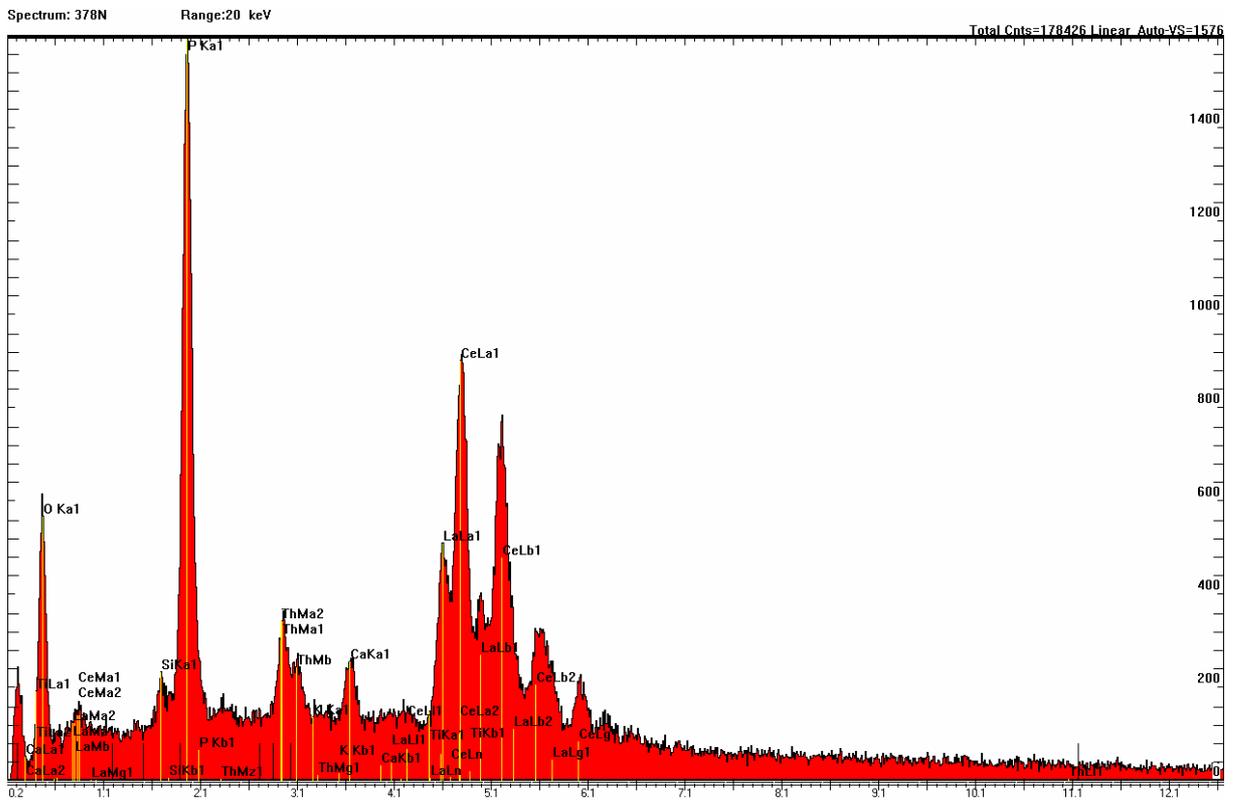
## Glume



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Bachsediment-Probe 378 (Markierung h). Es handelt sich hier um ein Monazitkörnchen mit Thorium.

# Tafel 120

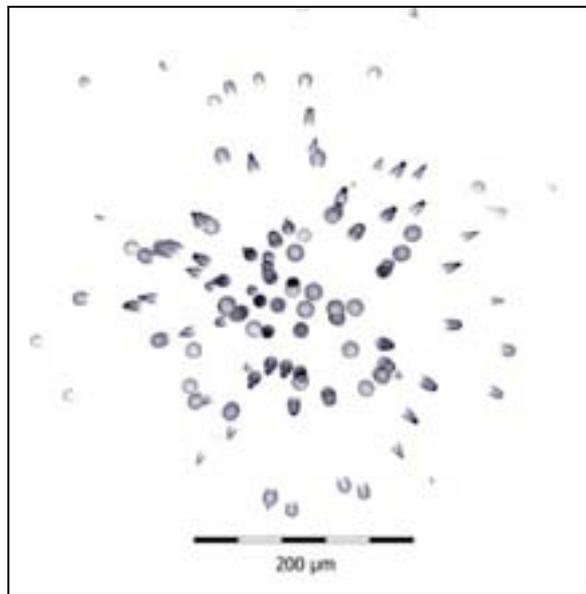
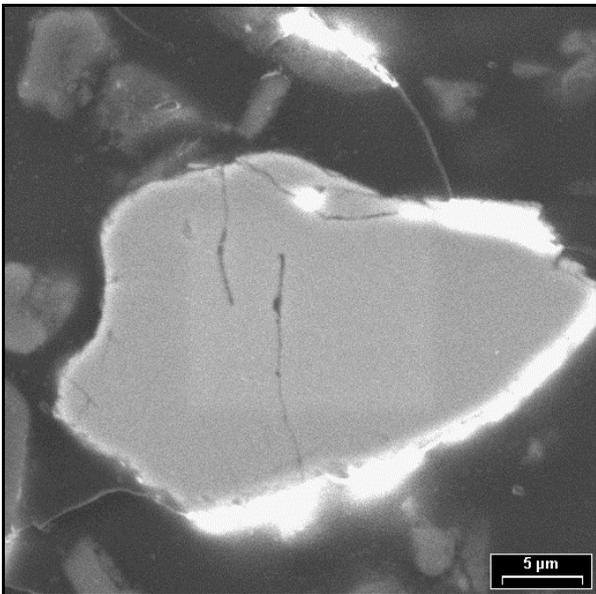
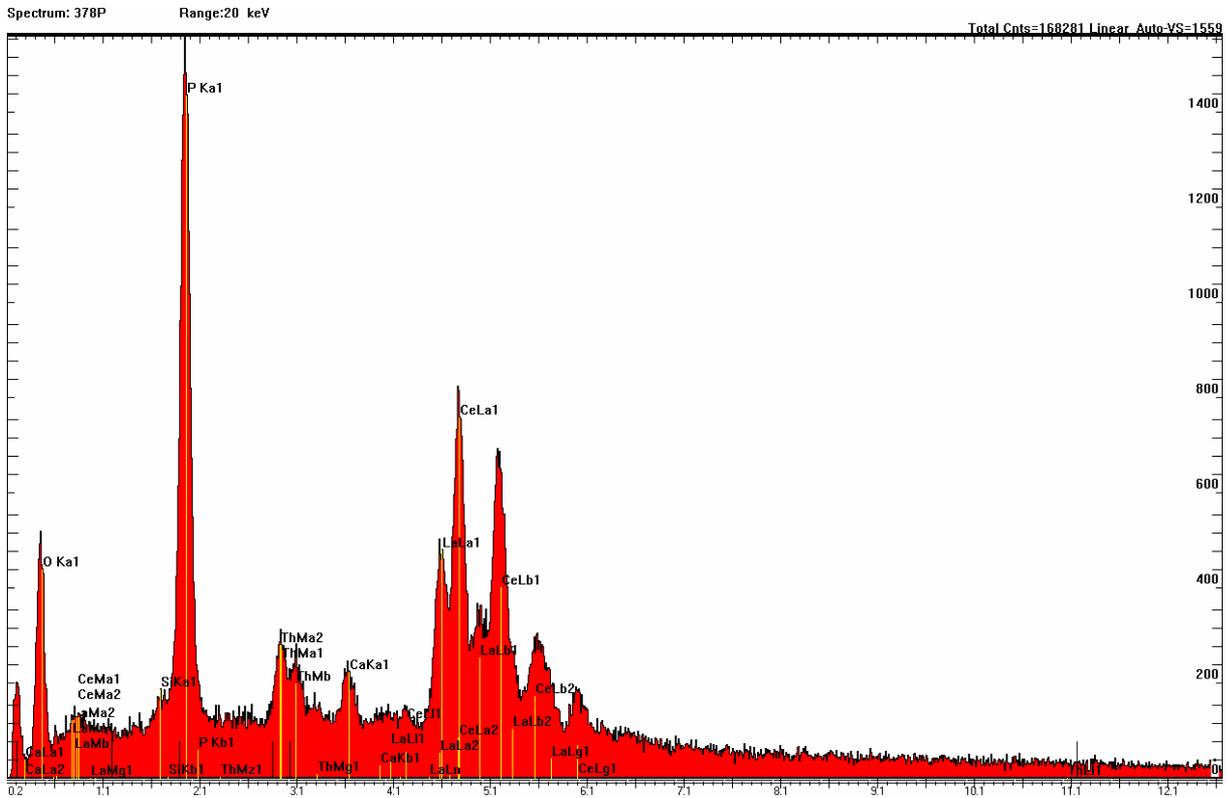
## Glume



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Bachsediment-Probe 378 (Markierung n). Es handelt sich hier um ein Monazitkörnchen mit Thorium.

# Tafel 121

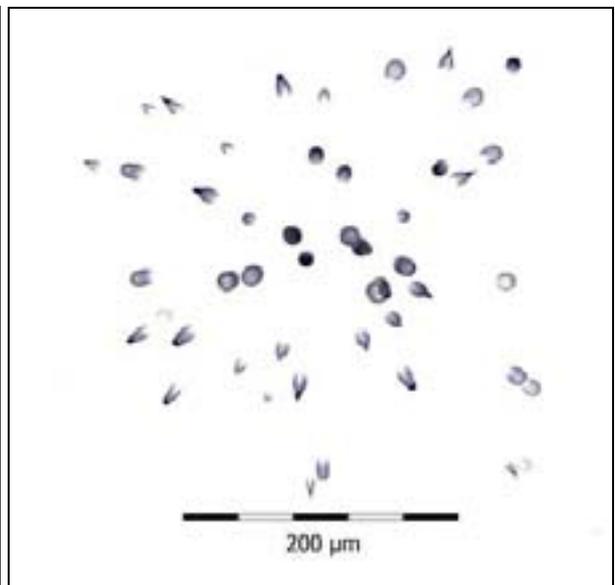
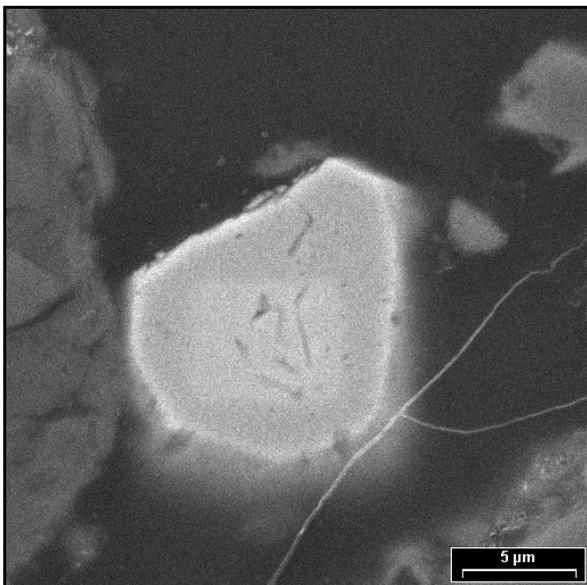
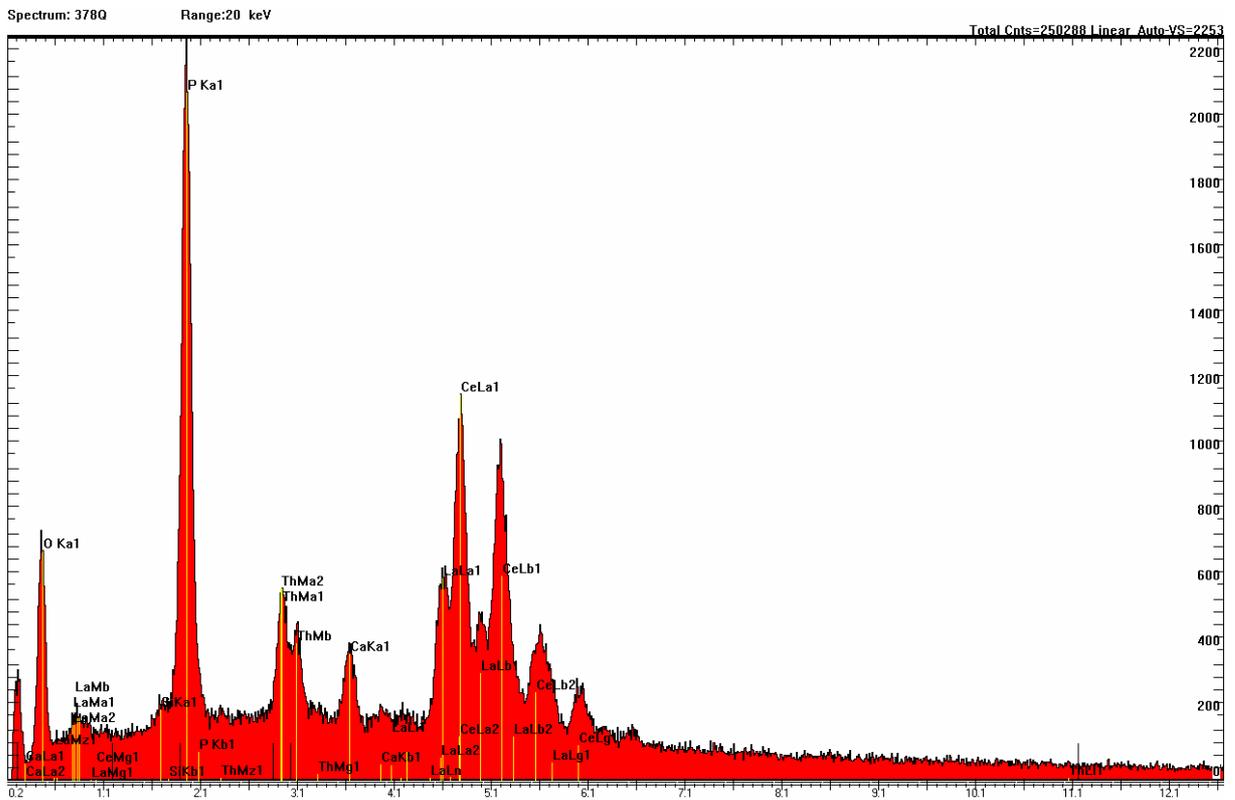
## Glume



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Bachsediment-Probe 378 (Markierung p). Es handelt sich hier um ein Monazitkörnchen mit Thorium.

# Tafel 122

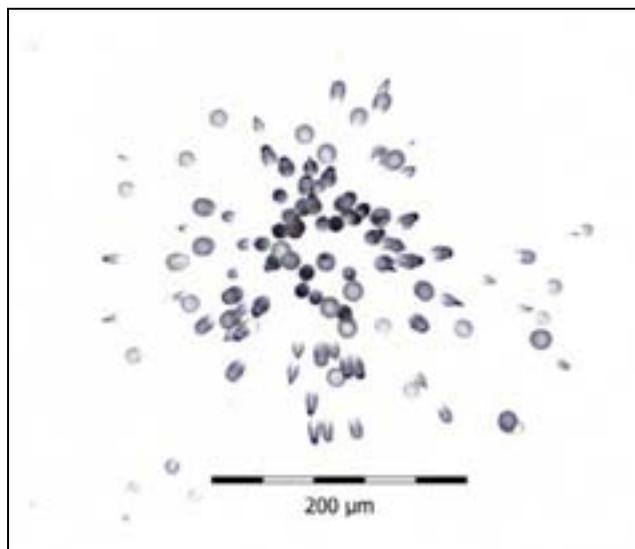
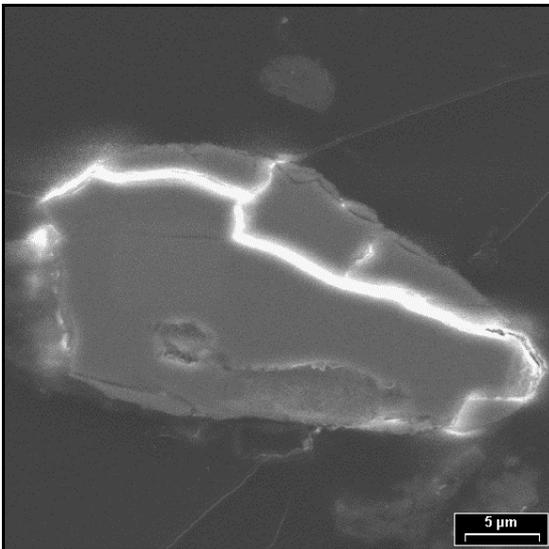
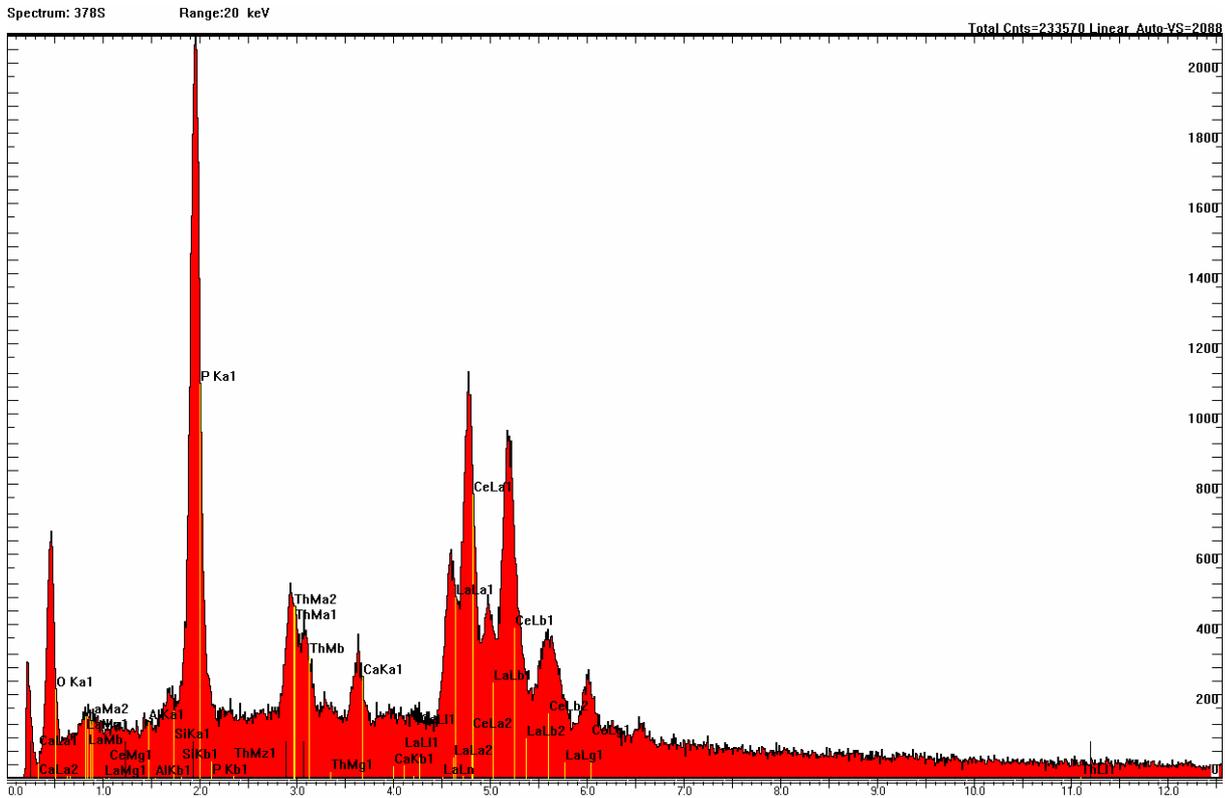
## Glume



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Bachsediment-Probe 378 (Markierung q). Es handelt sich hier um ein Monazitkörnchen mit Thorium.

# Tafel 123

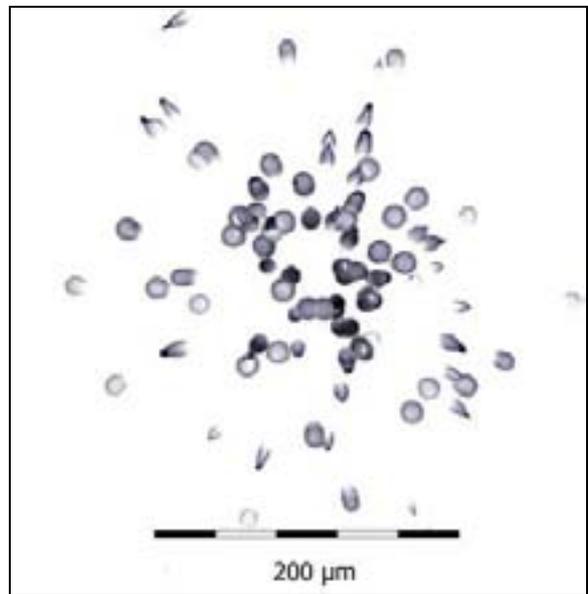
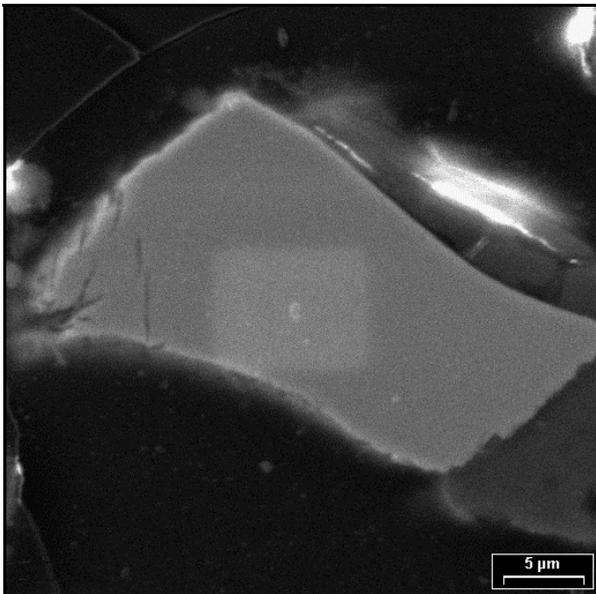
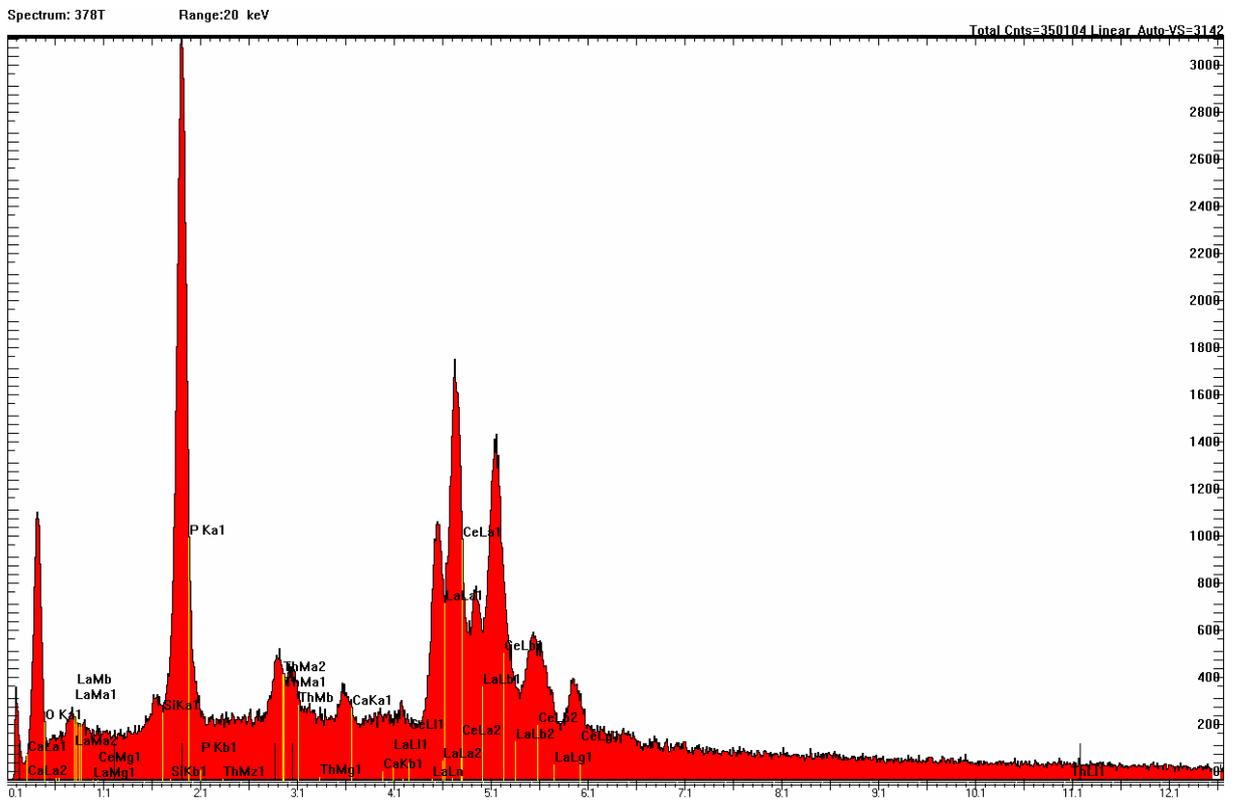
## Glume



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Bachsediment-Probe 378 (Markierung s). Es handelt sich hier um ein Monazitkörnchen mit Thorium.

# Tafel 124

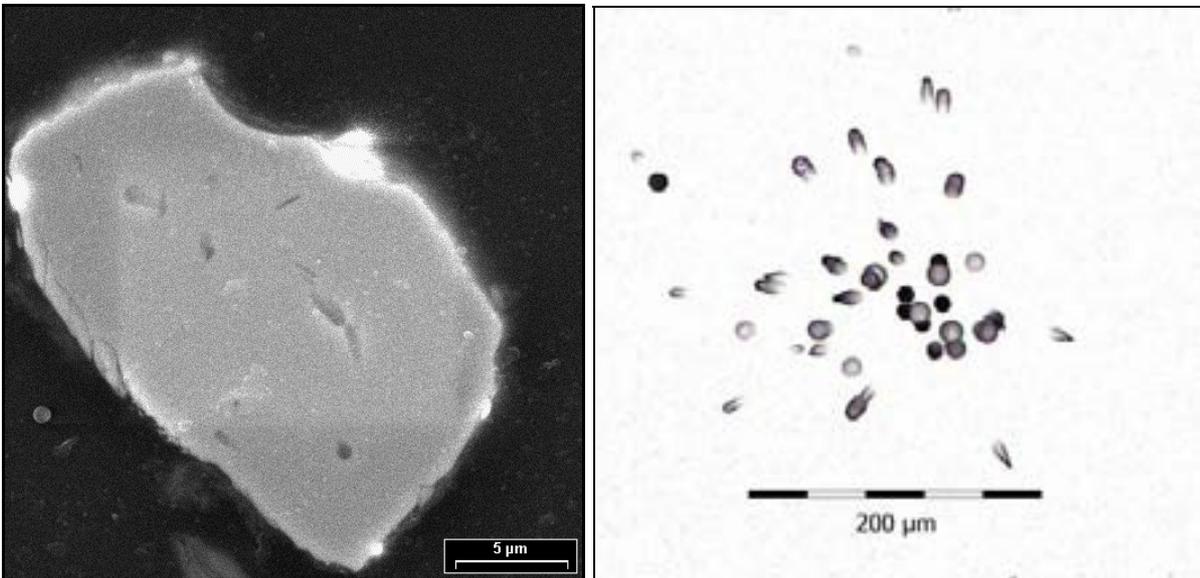
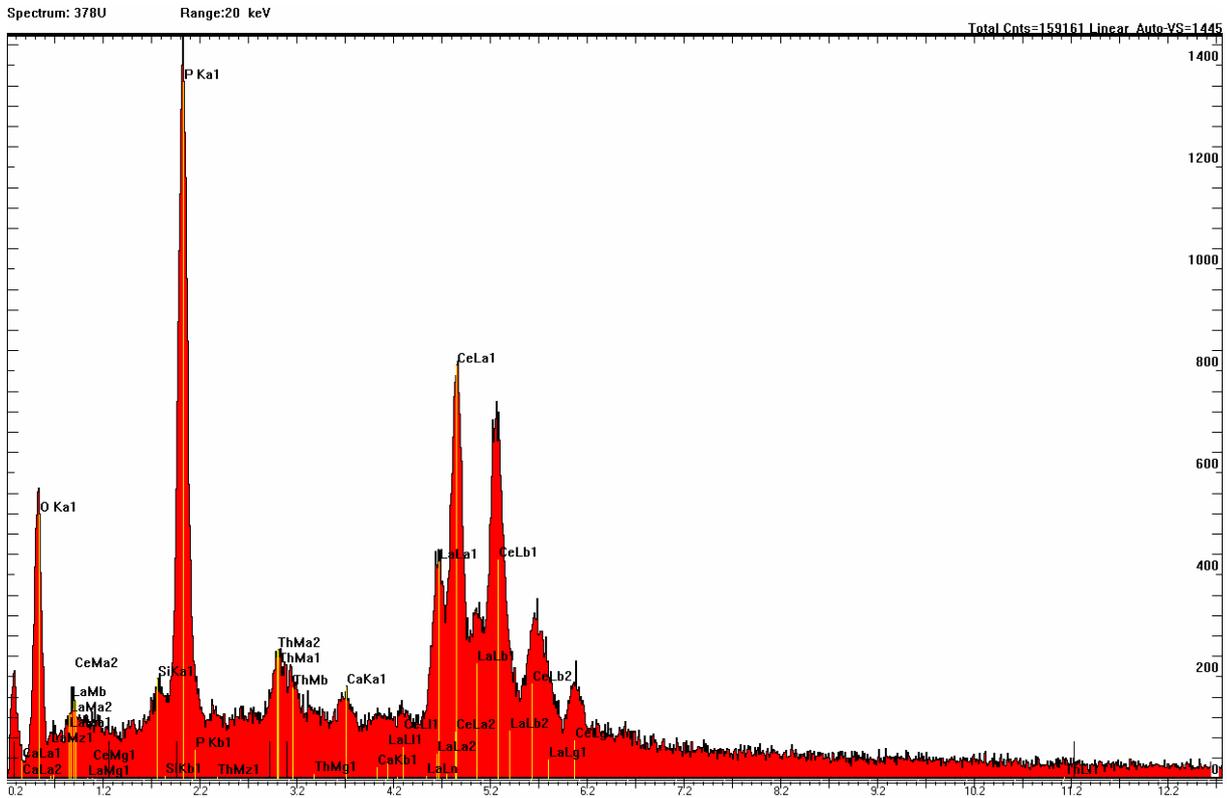
## Glume



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Bachsediment-Probe 378 (Markierung t). Es handelt sich hier um ein Monazitkörnchen mit Thorium.

# Tafel 125

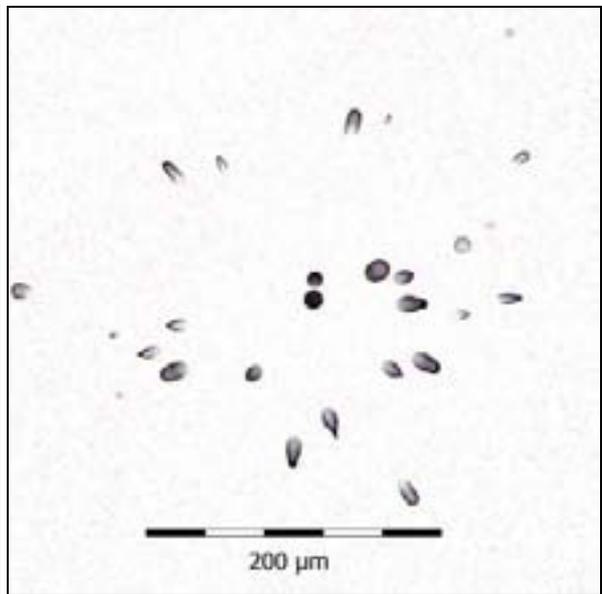
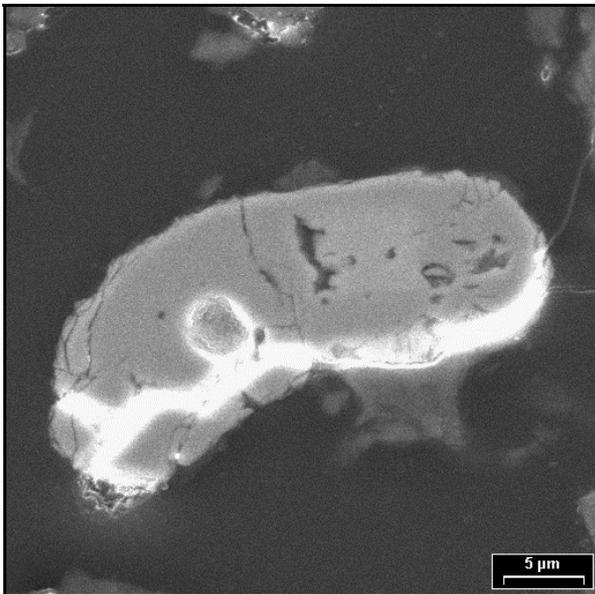
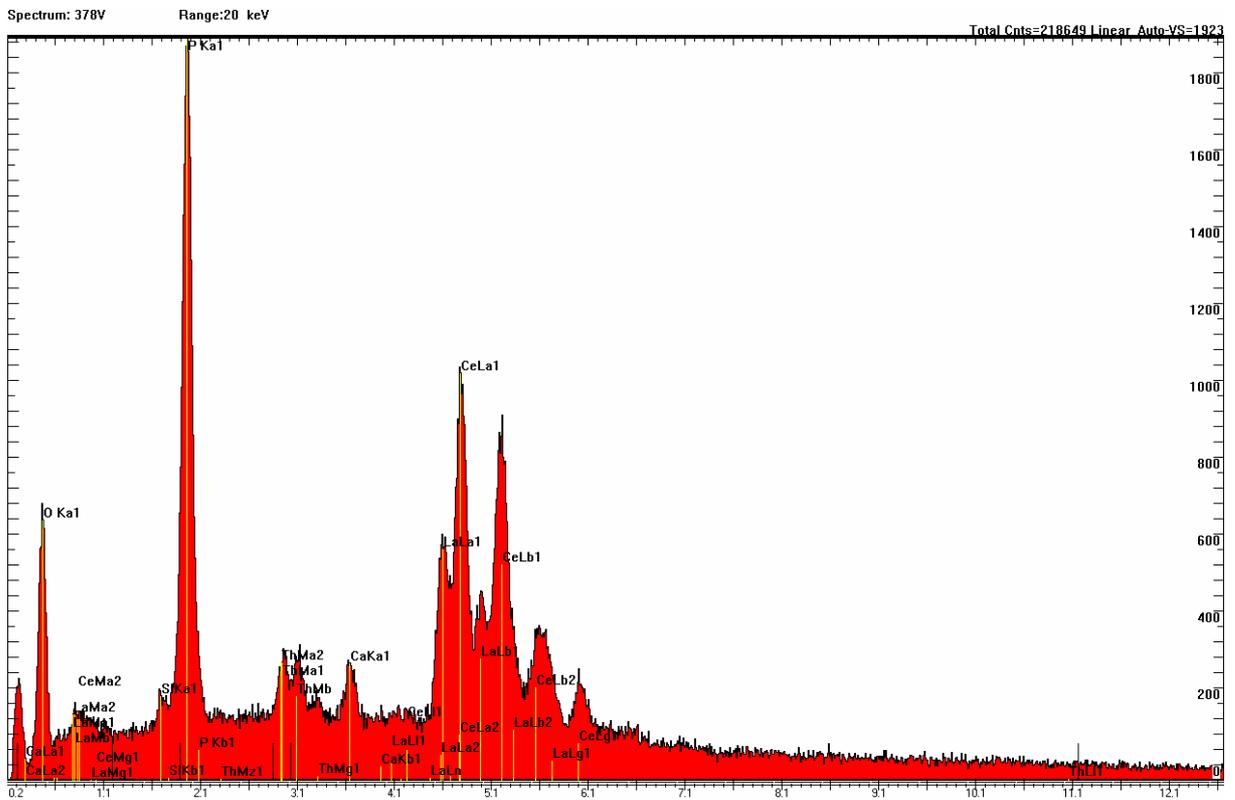
## Glume



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Bachsediment-Probe 378 (Markierung u). Es handelt sich hier um ein Monazitkörnchen mit Thorium.

# Tafel 126

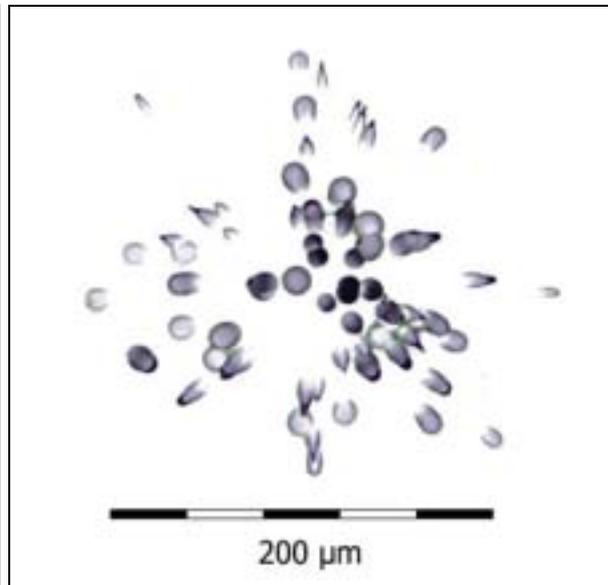
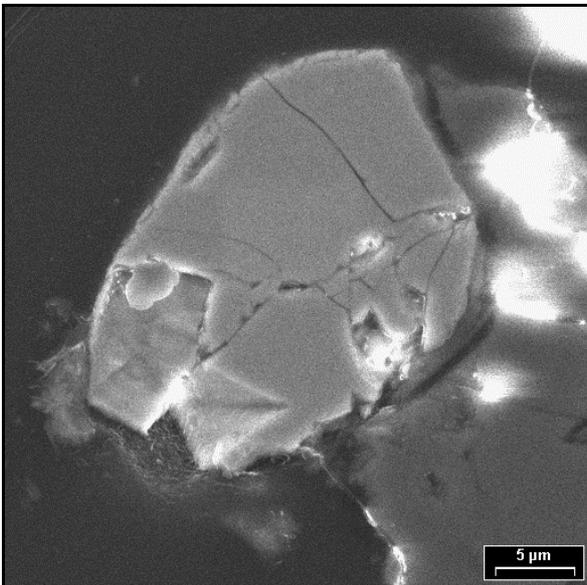
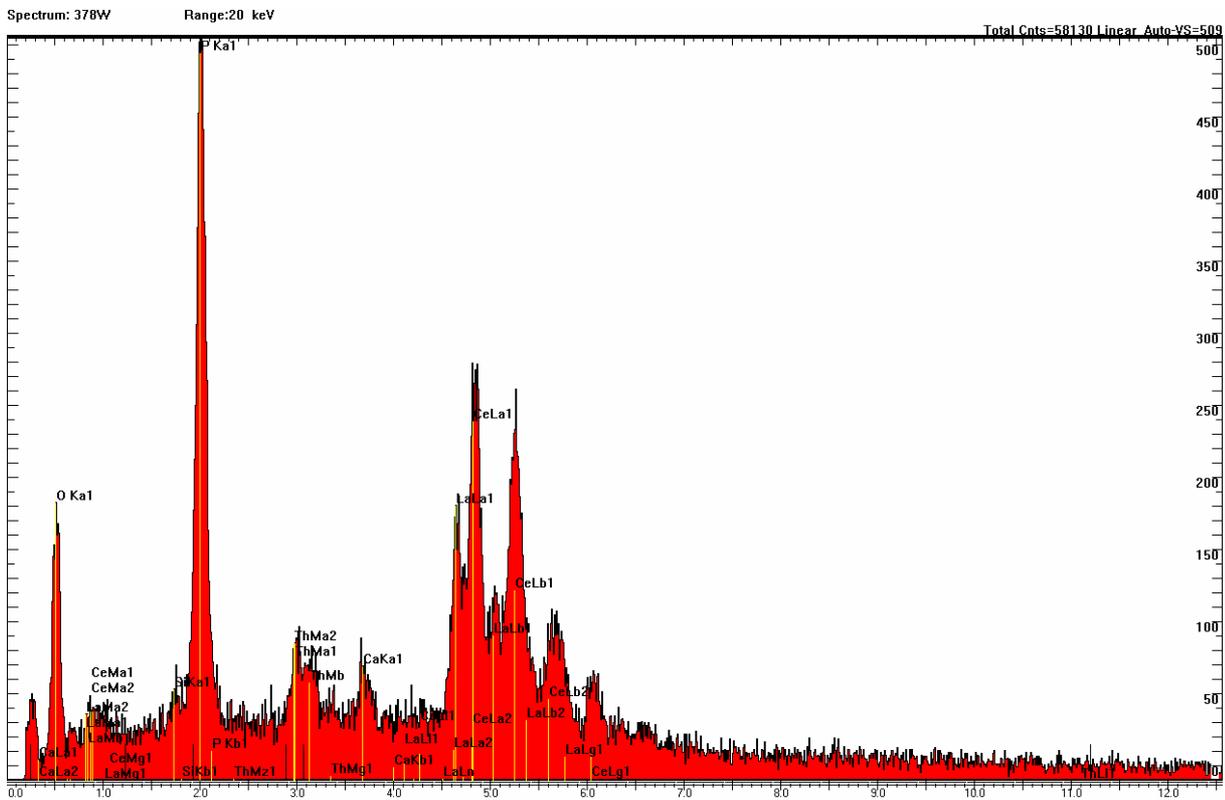
## Glume



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Bachsediment-Probe 378 (Markierung v). Es handelt sich hier um ein Monazitkörnchen mit Thorium.

# Tafel 127

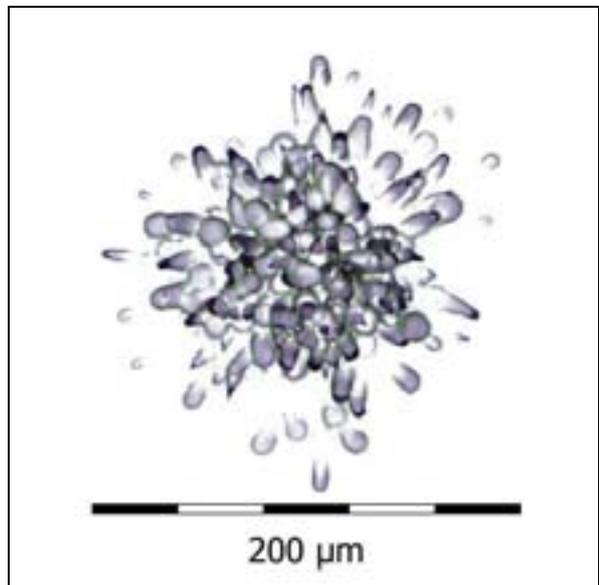
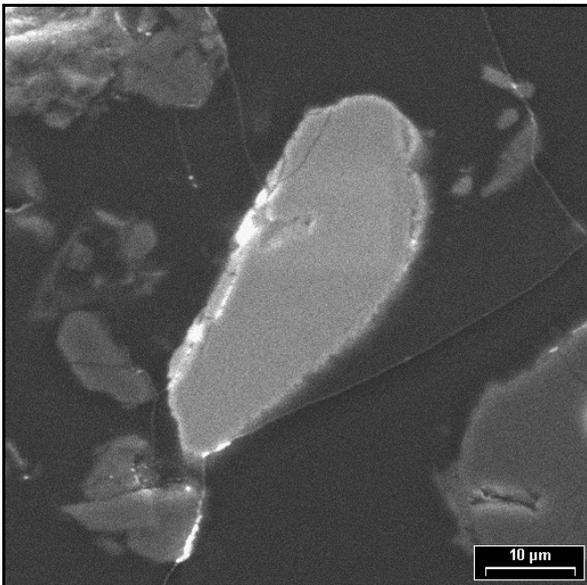
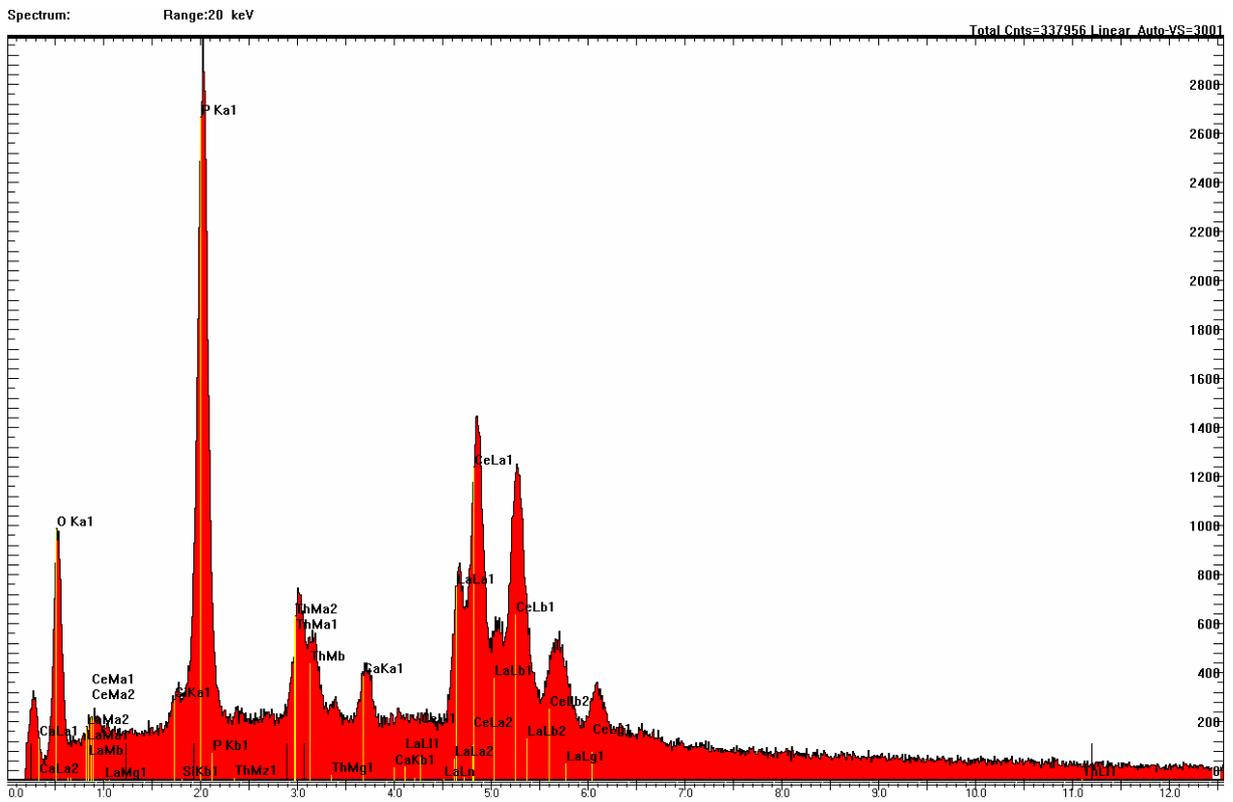
## Glume



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Bachsediment-Probe 378 (Markierung w). Es handelt sich hier um ein Monazitkörnchen mit Thorium.

# Tafel 128

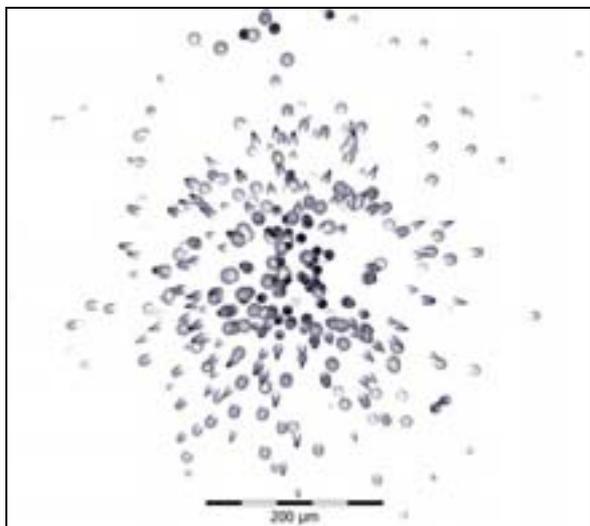
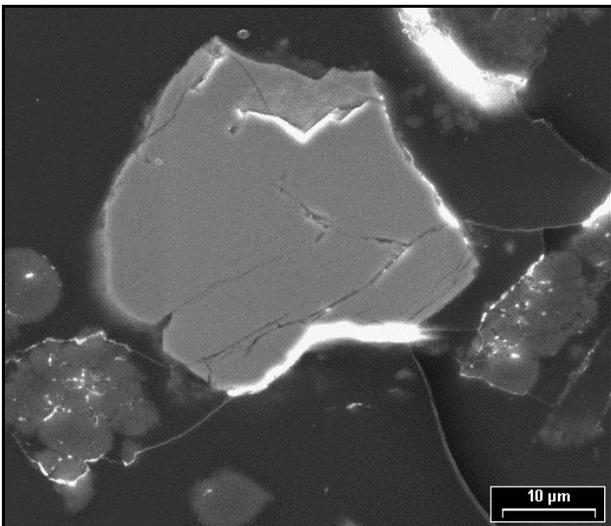
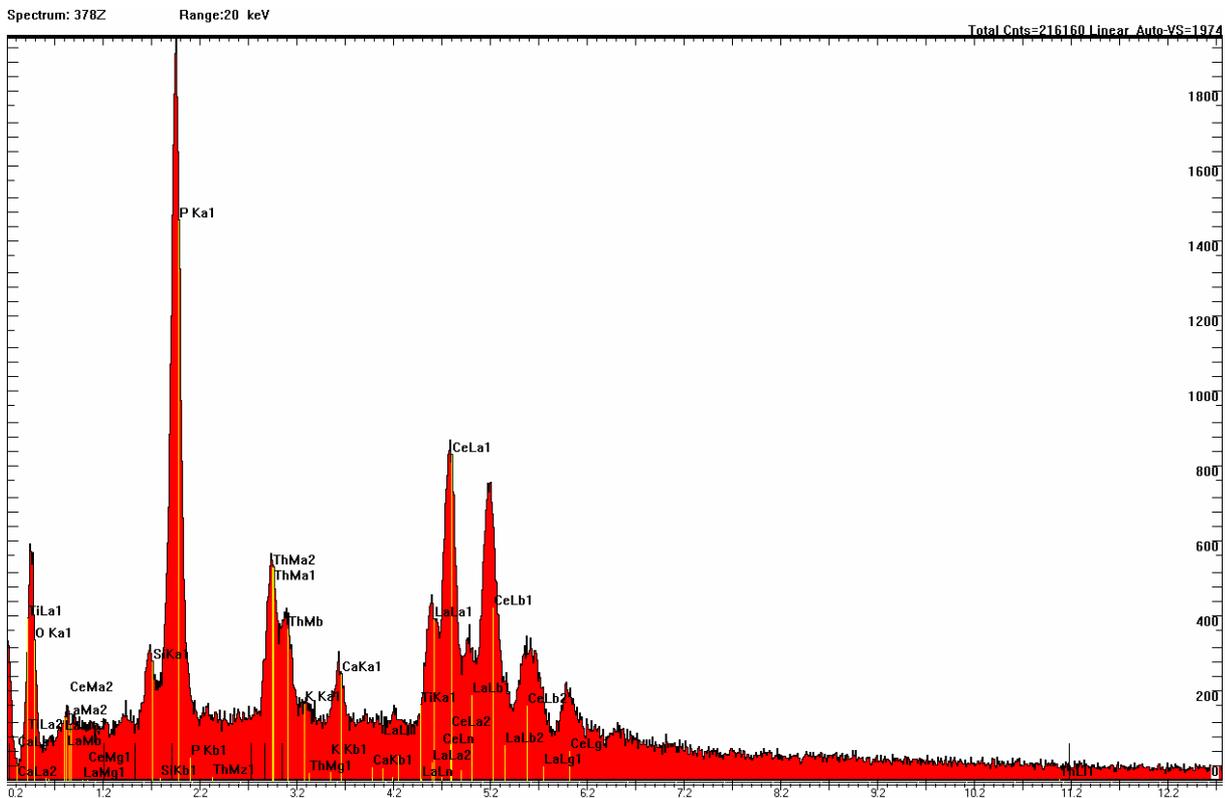
## Glume



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Bachsediment-Probe 378 (Markierung x). Es handelt sich hier um ein Monazitkörnchen mit Thorium.

# Tafel 129

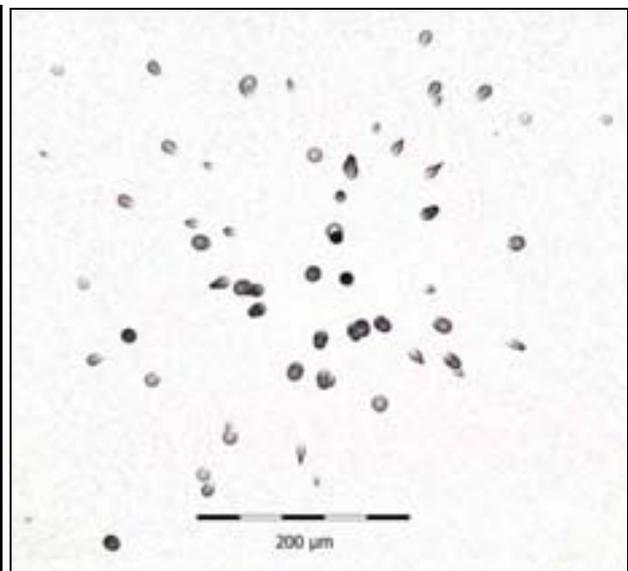
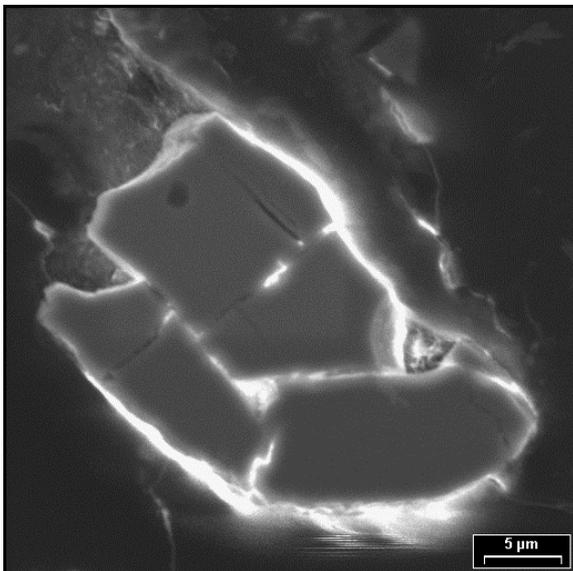
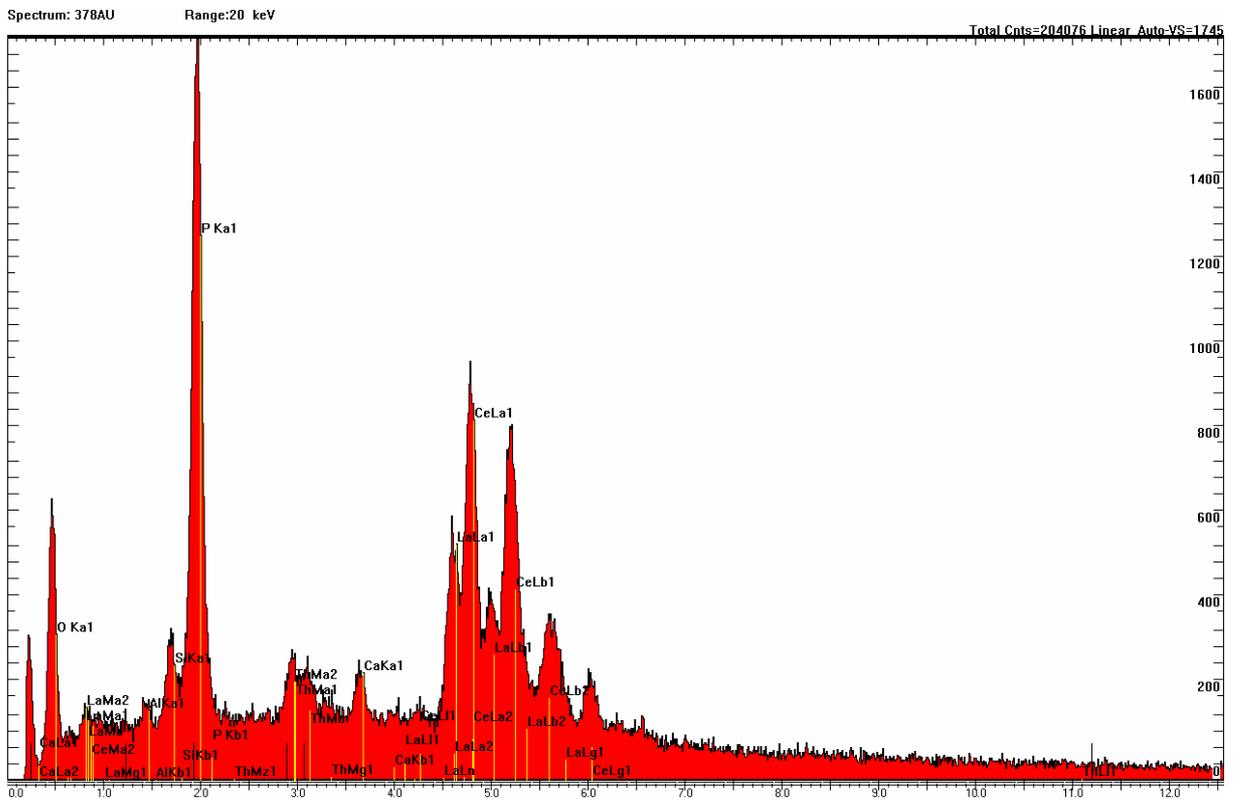
## Glume



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Bachsediment-Probe 378 (Markierung z). Es handelt sich hier um ein Monazitkörnchen mit Thorium.

# Tafel 130

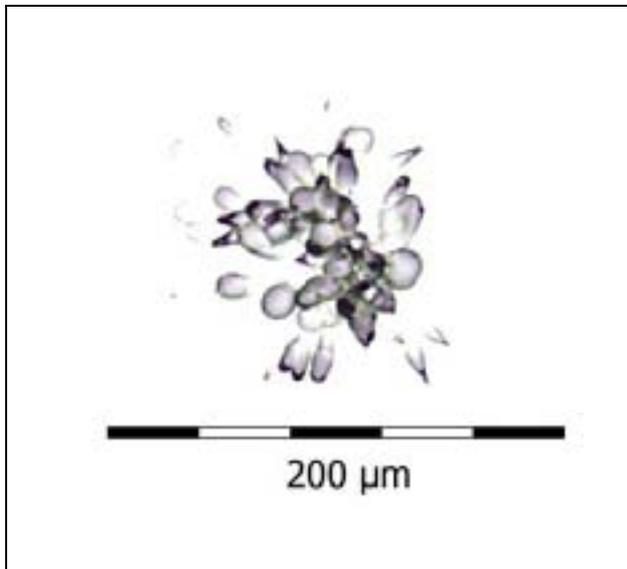
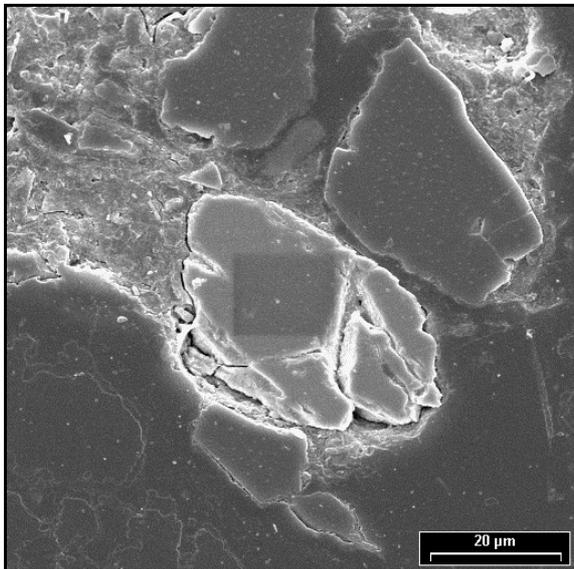
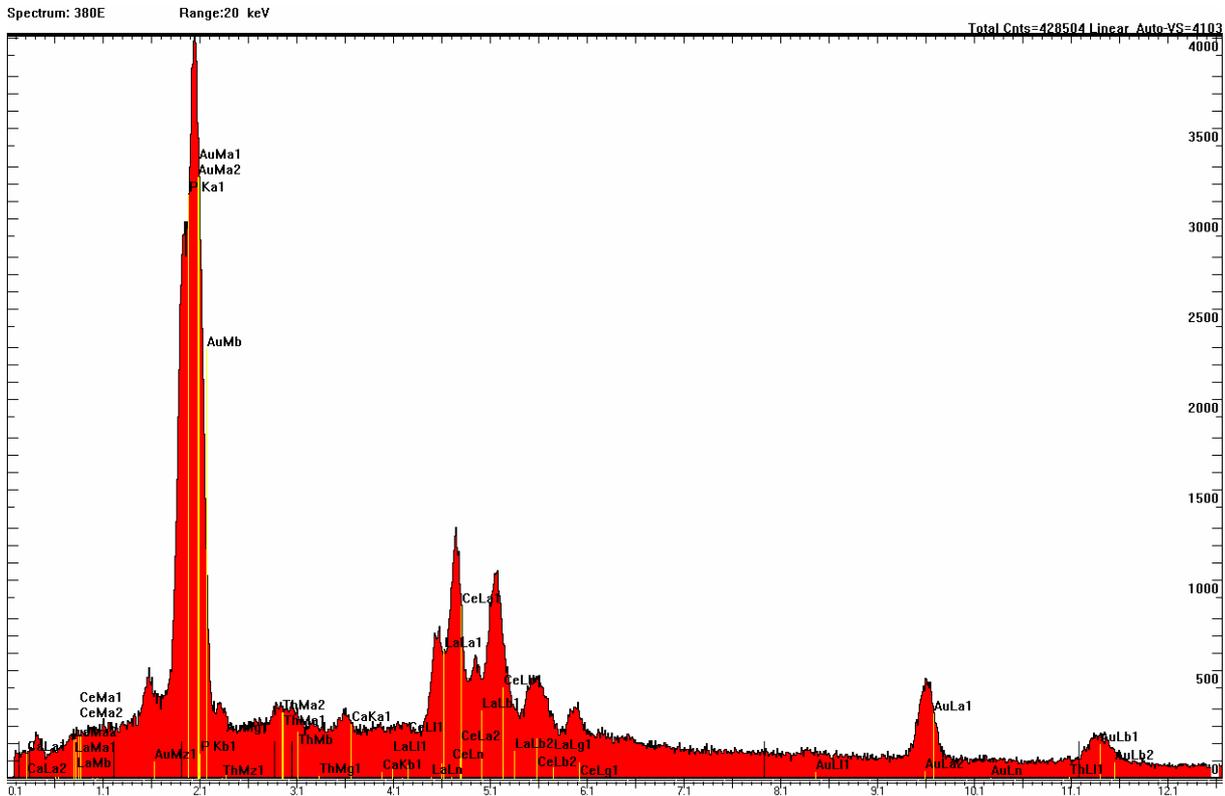
## Glume



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Bachsediment-Probe 378 (Markierung au). Es handelt sich hier um ein Monazitkörnchen mit Thorium.

# Tafel 131

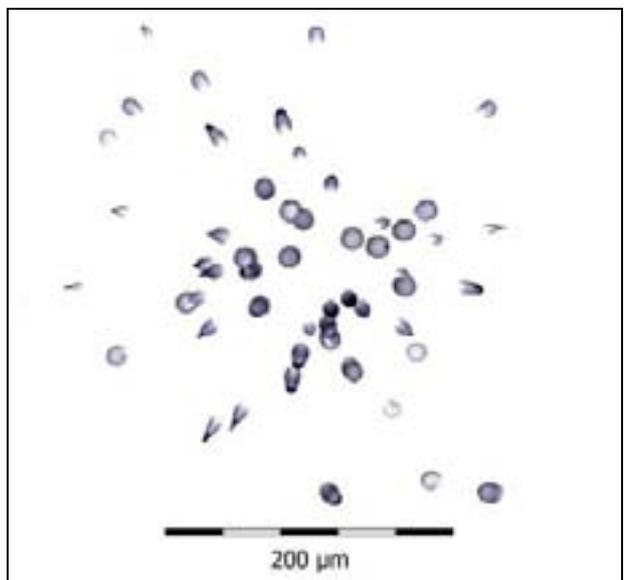
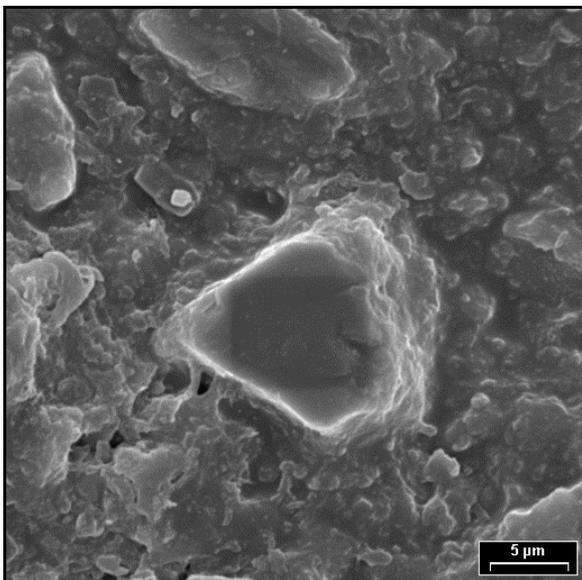
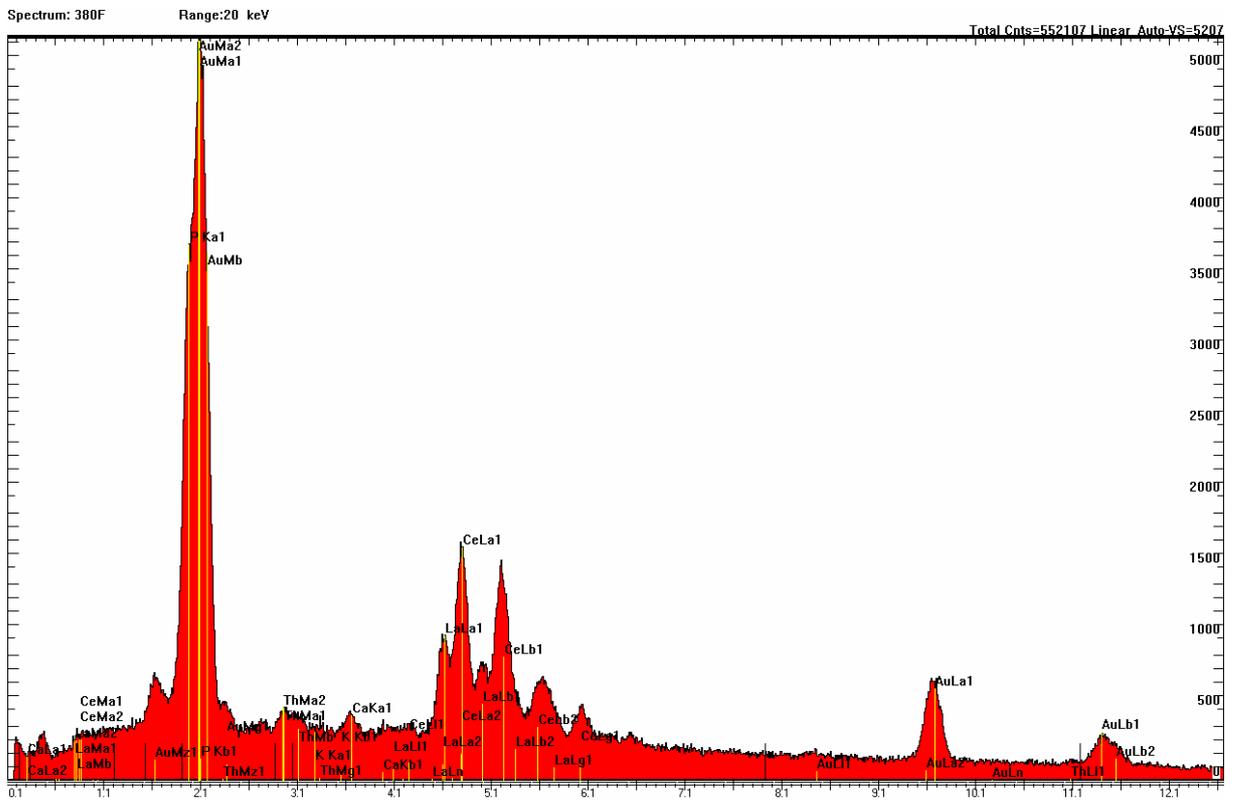
## Glume



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Bachsediment-Probe 380 (Markierung e). Es handelt sich hier um ein Monazitkörnchen (Bildmitte, REM-Aufnahme) mit Thorium. Wegen starker Aufladungseffekte wurde diese Probe mit Gold besputtert, um die Erstellung von Elektronenbildern und eine Röntgenanalyse zu ermöglichen. Im Spektrum der Probe spiegelt sich diese Goldbesputterung durch die entsprechenden Gold-peaks wider.

# Tafel 132

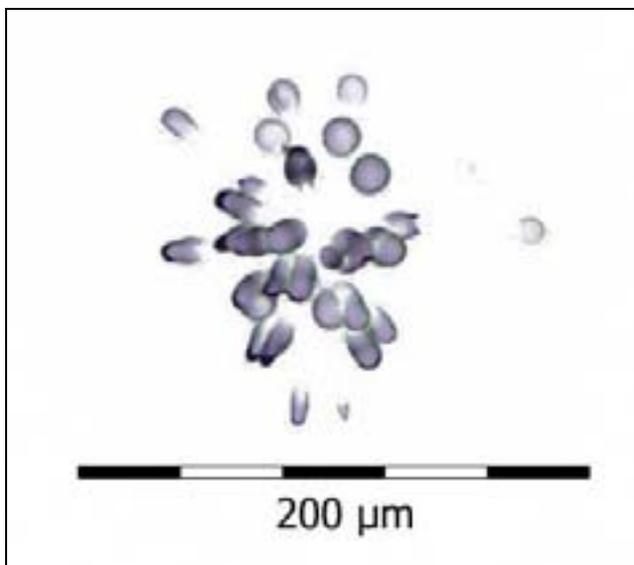
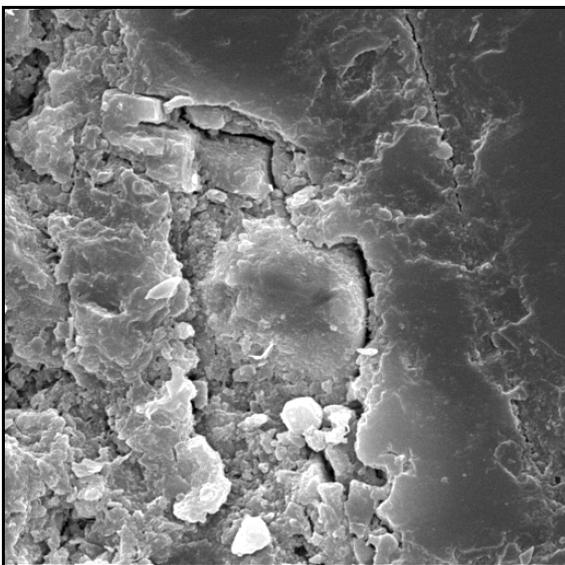
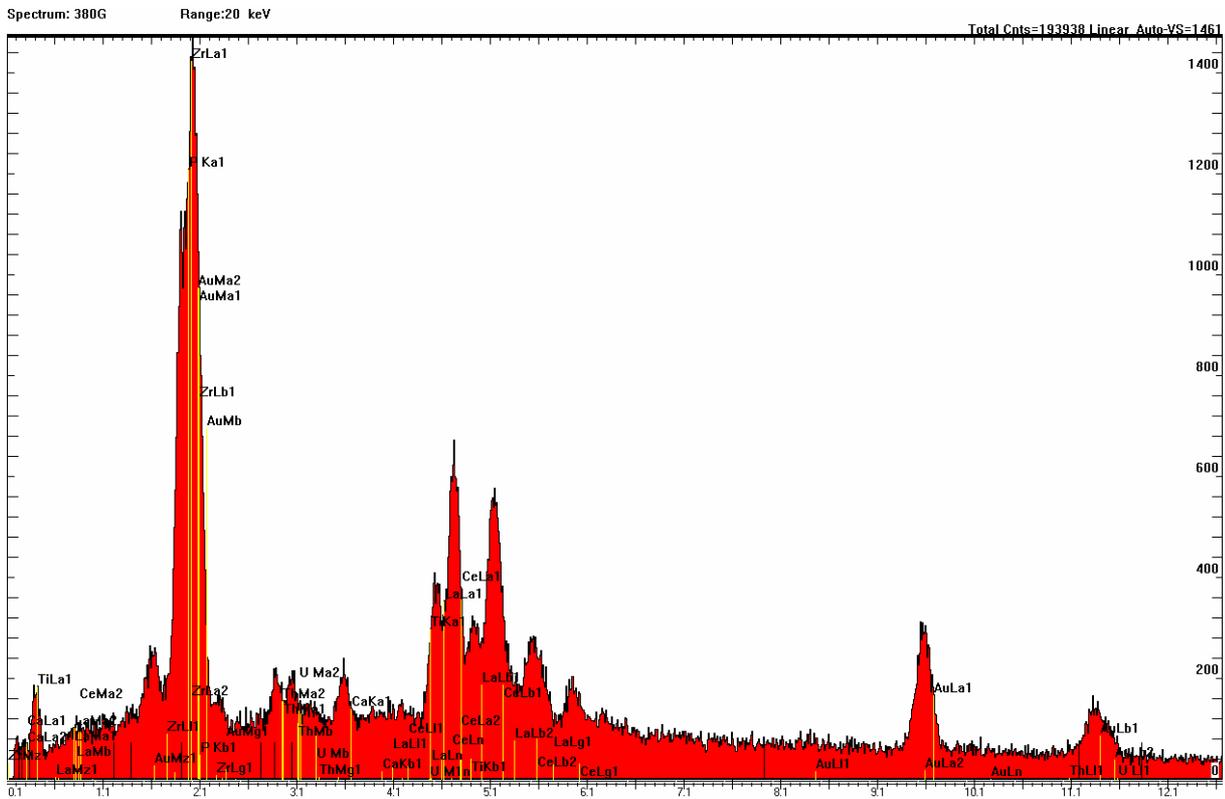
## Glume



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Bachsediment-Probe 380 (Markierung f). Es handelt sich hier um ein Monazitkörnchen (Bildmitte, REM-Aufnahme) mit Thorium. Wegen starker Aufladungseffekte wurde diese Probe mit Gold besputtert, um die Erstellung von Elektronenbildern und eine Röntgenanalyse zu ermöglichen. Im Spektrum der Probe spiegelt sich diese Goldbesputterung durch die entsprechenden Goldpeaks wider.

# Tafel 133

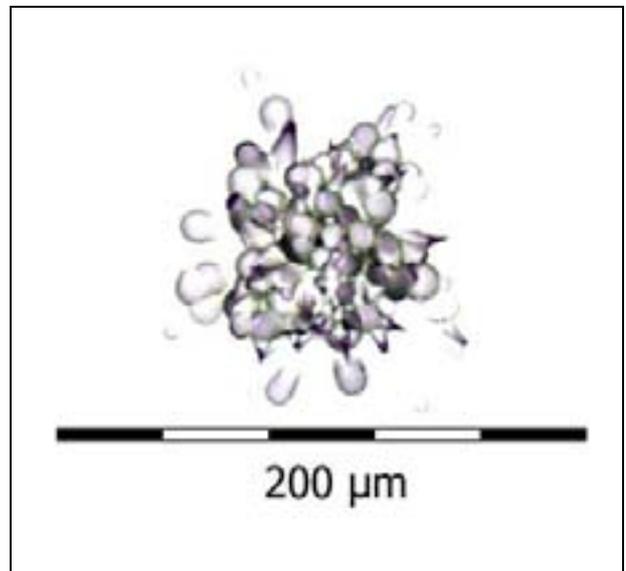
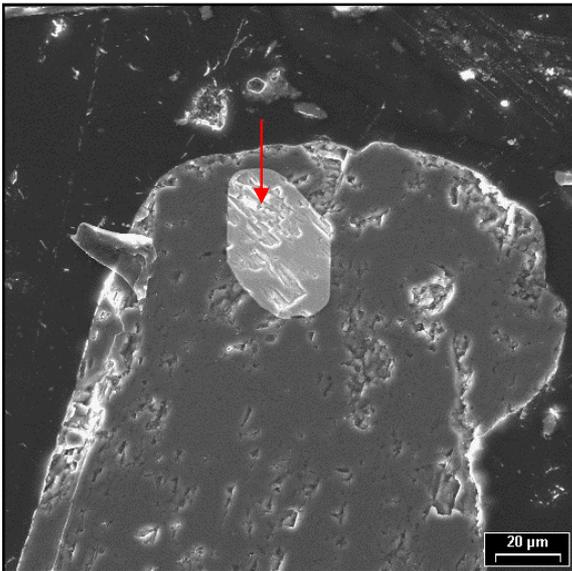
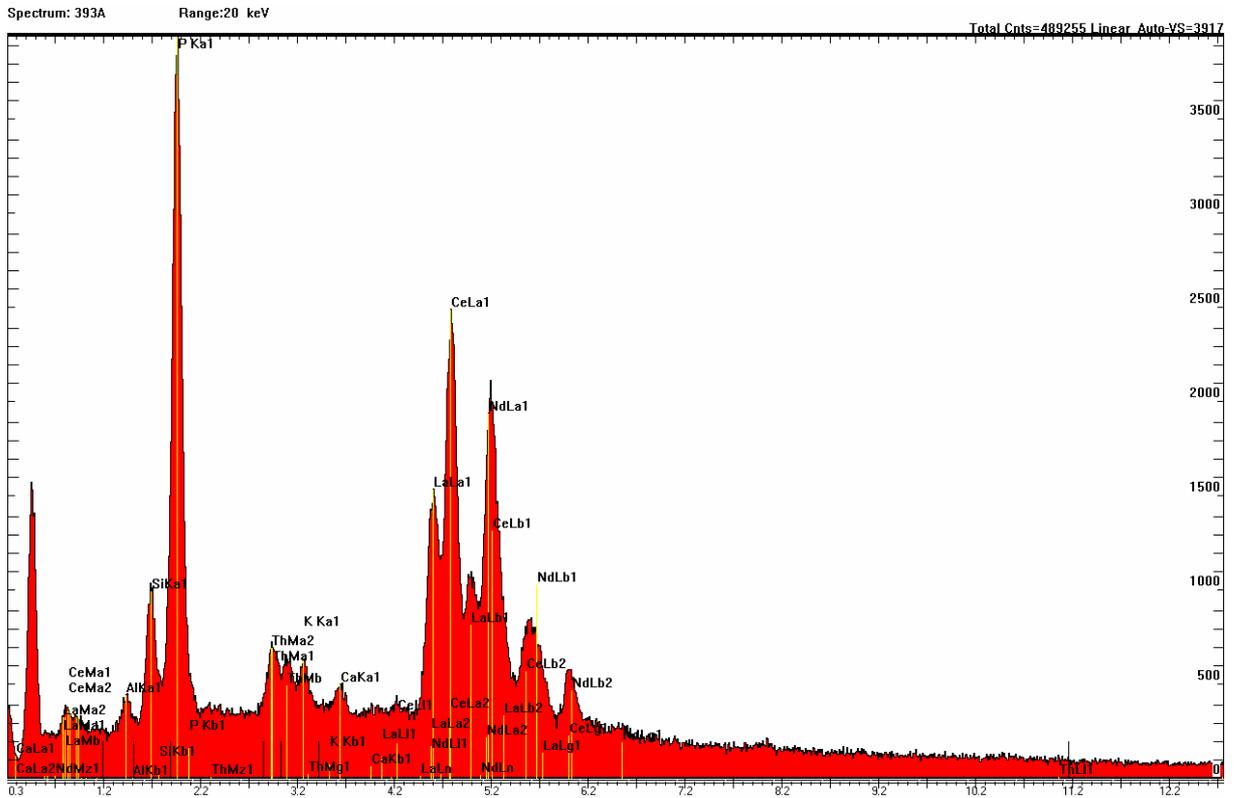
## Glume



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Bachsediment-Probe 380 (Markierung g). Die REM-Aufnahme zeigt die schlechte Qualität der Schliffoberfläche. Sie ist durch Ausbrüche gekennzeichnet, die zu Aufladungseffekten bei der Analyse mit dem Elektronenmikroskop führen. Um dem entgegenzuwirken, wurde die Probe mit Gold bedampft, was sich in den Goldpeaks im Spektrum widerspiegelt. Es handelt sich an der untersuchten Stelle (Bildmitte, REM-Bild) wahrscheinlich um ein Monazitkörnchen, eventuell auch Xenotimkörnchen, mit Thorium bzw. Uran.

# Tafel 134

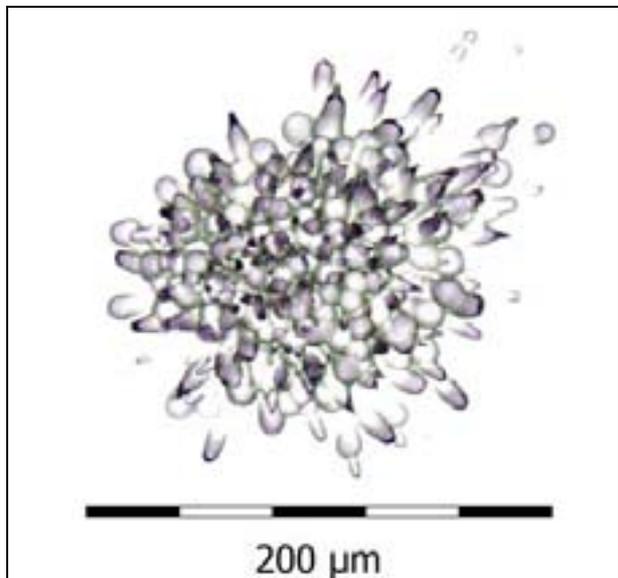
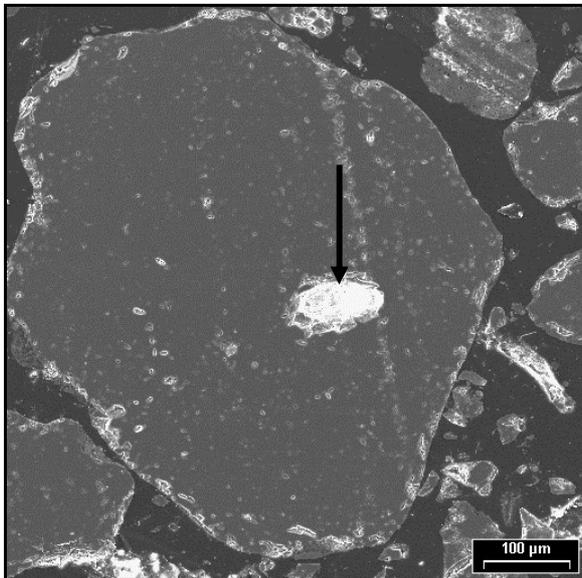
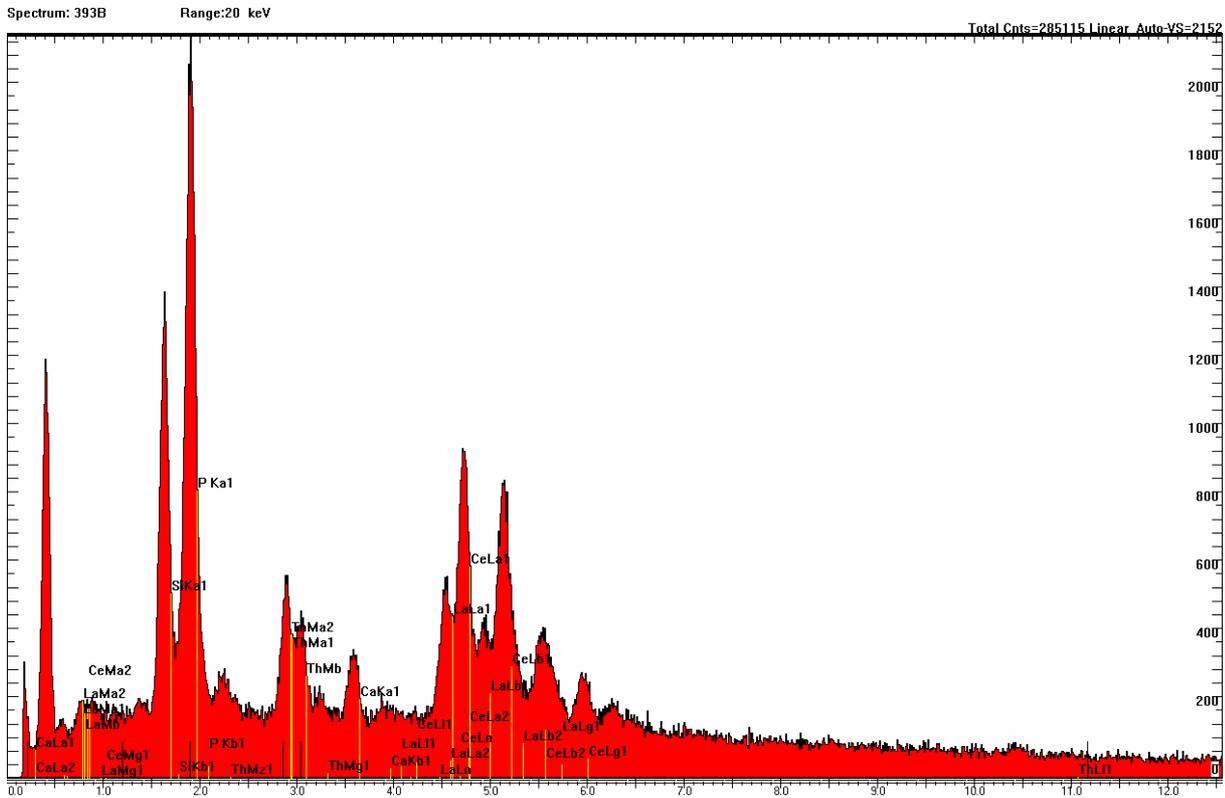
## Schlenze



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Bachsediment-Probe 393 (Markierung a). Es handelt sich um ein ca. 40 µm großes Monazitkörnchen (Pfeilspitze) mit den charakteristischen Gehalten an Ce, La, Nd, P und Th. Dieses Monazitkörnchen liegt in einem größeren Korn aus Si, Al, K (Silikat Korn).

# Tafel 135

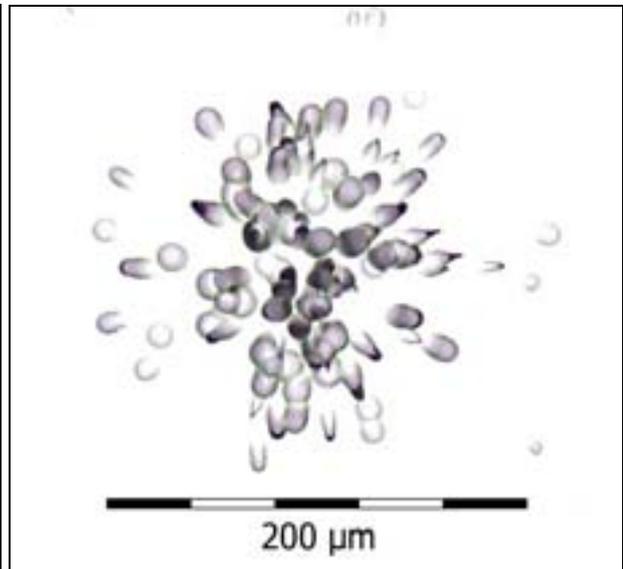
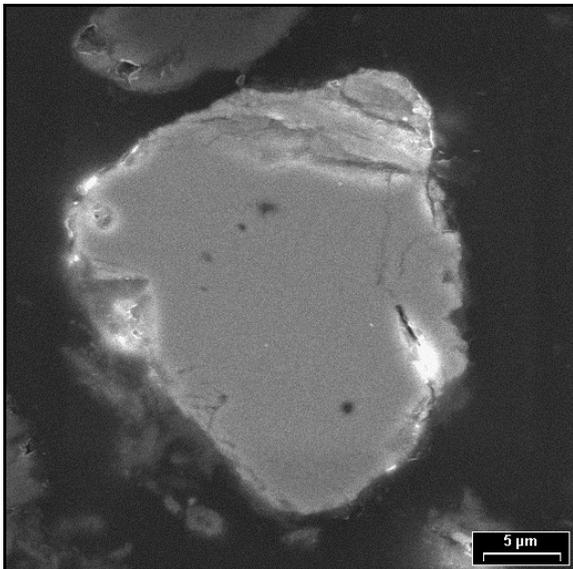
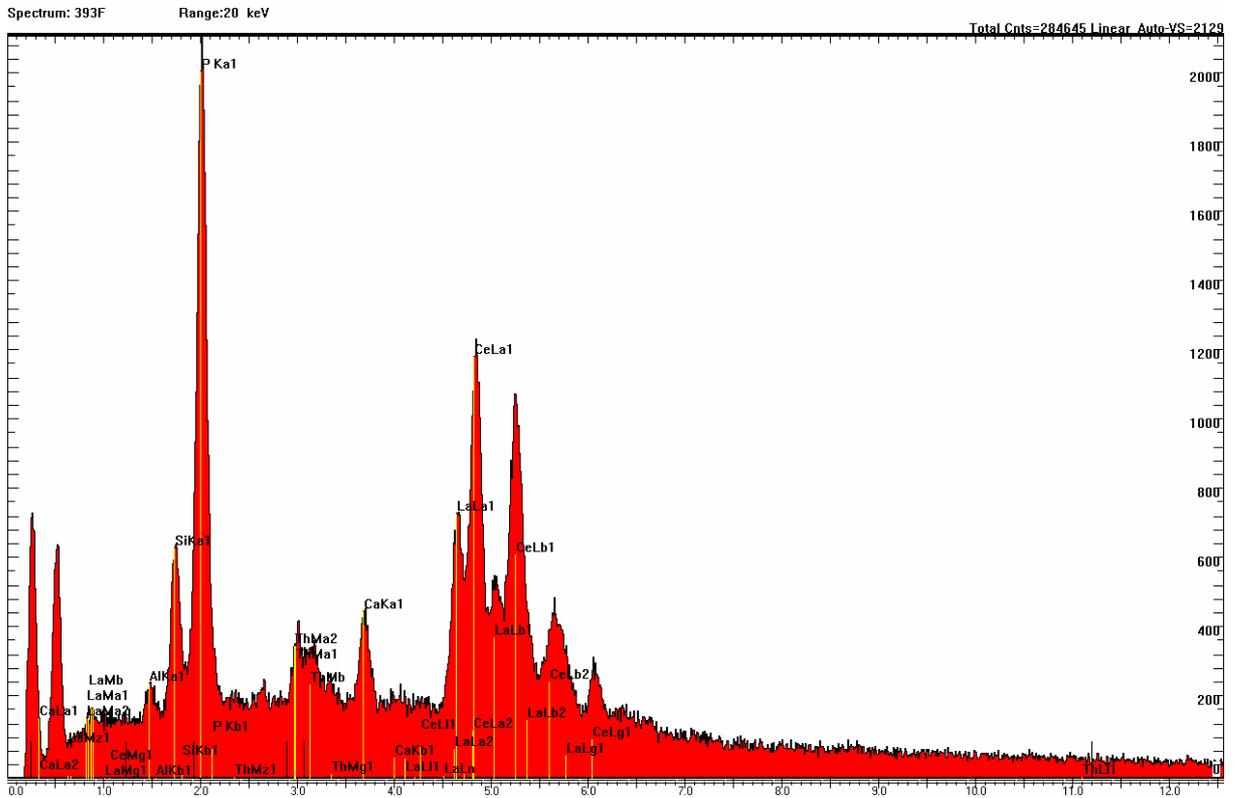
## Schlenze



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Bachsediment-Probe 393 (Markierung b). Es handelt sich hier um ein ca. 100×50 μm großes Monazitkorn (Pfeilspitze) mit Thorium, das in einem größeren Silikatkorn liegt.

# Tafel 136

## Schlenze

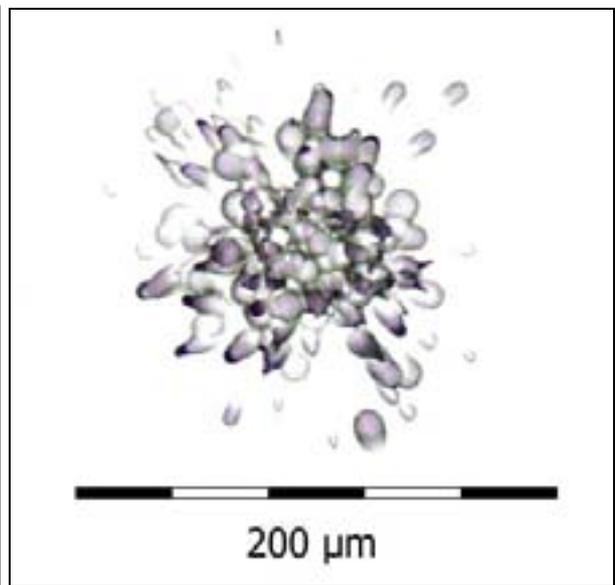
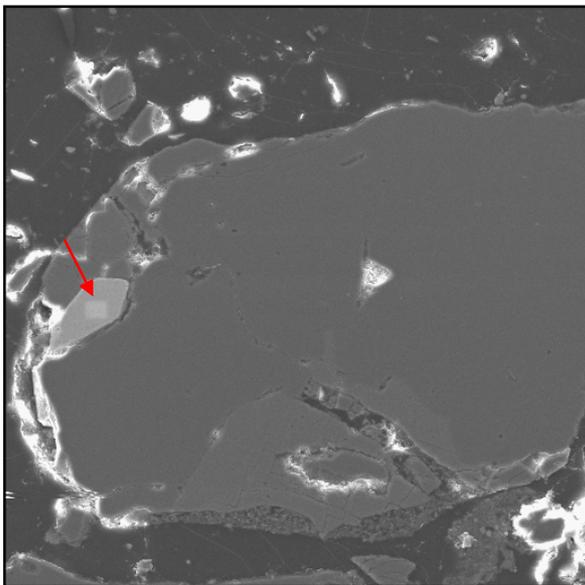
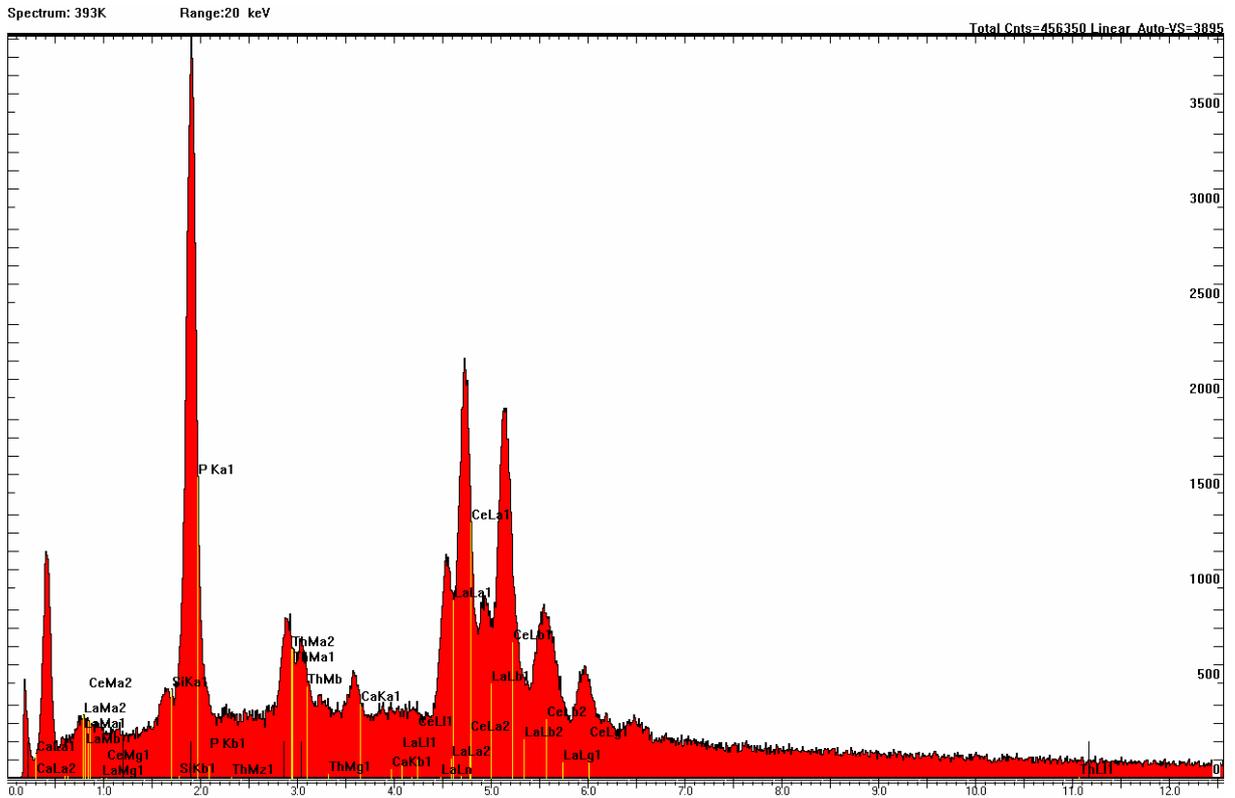


Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Bachsediment-Probe 393 (Markierung f). Es handelt sich hier um ein ca. 30 µm großes Monazitkörnchen (Bildmitte, REM-Aufnahme) mit Thorium.



# Tafel 138

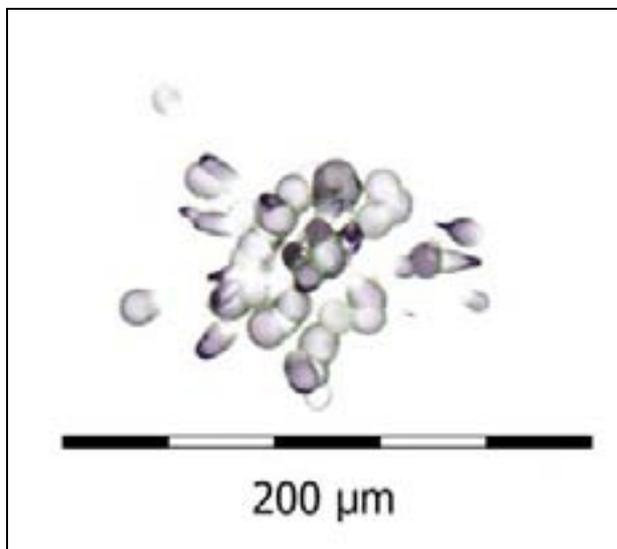
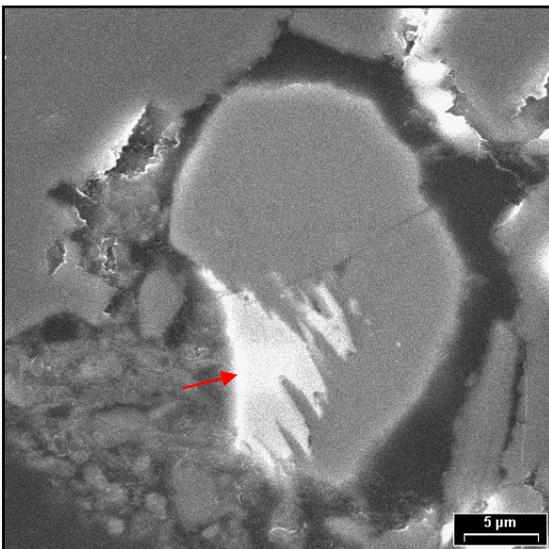
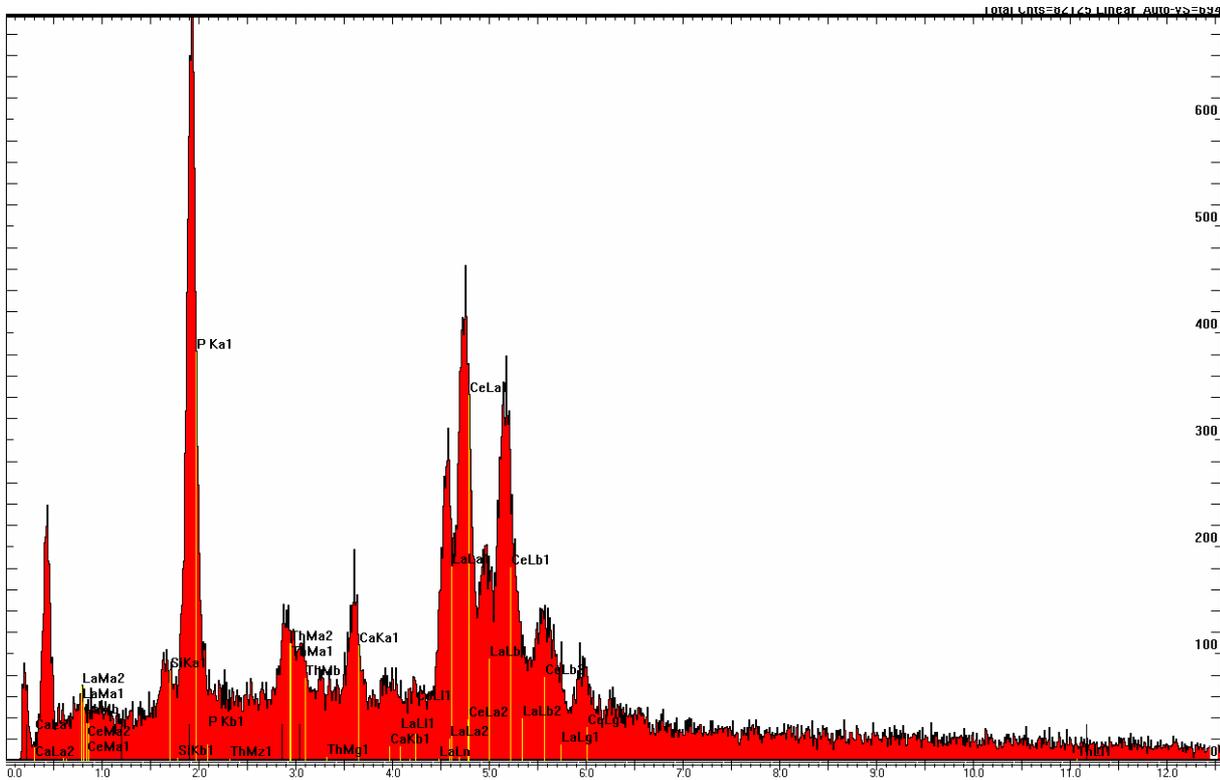
## Schlenze



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Bachsediment-Probe 393 (Markierung k). Es handelt sich hier wieder um ein Monazitkörnchen (Pfeilspitze), das mit einem größeren Korn verwachsen ist. Wegen des fehlenden Maßstabes ist keine Korngrößenangabe möglich.

# Tafel 139

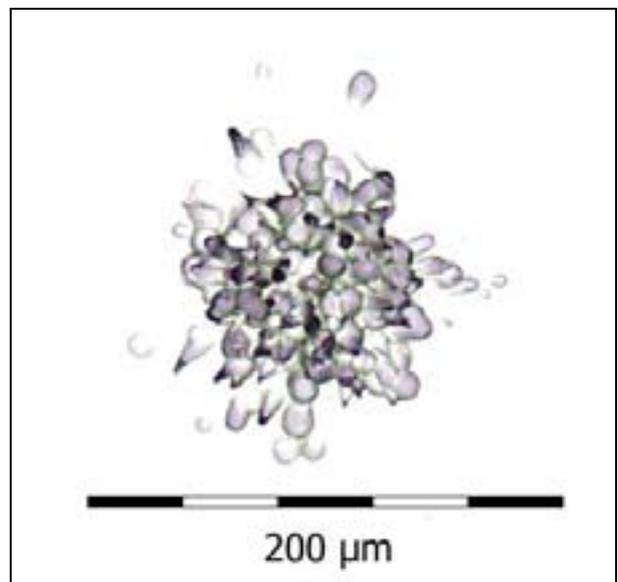
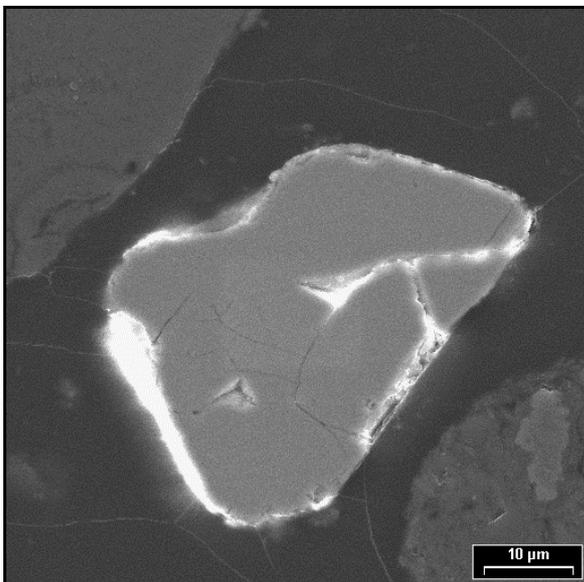
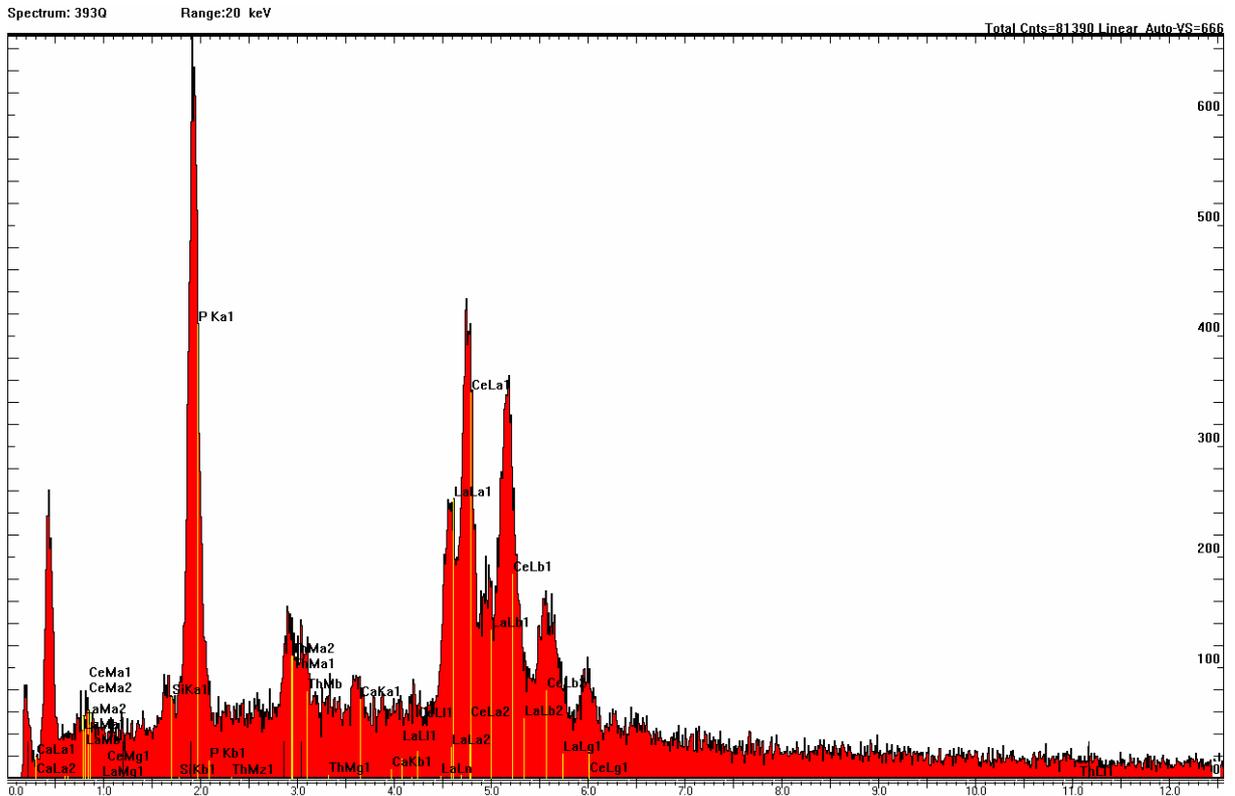
## Schlenze



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Bachsediment-Probe 393 (Markierung n). Es handelt sich hier um 5-10 μm große Schlieren von Monazit (Pfeilspitze) in einem größeren Korn.

# Tafel 140

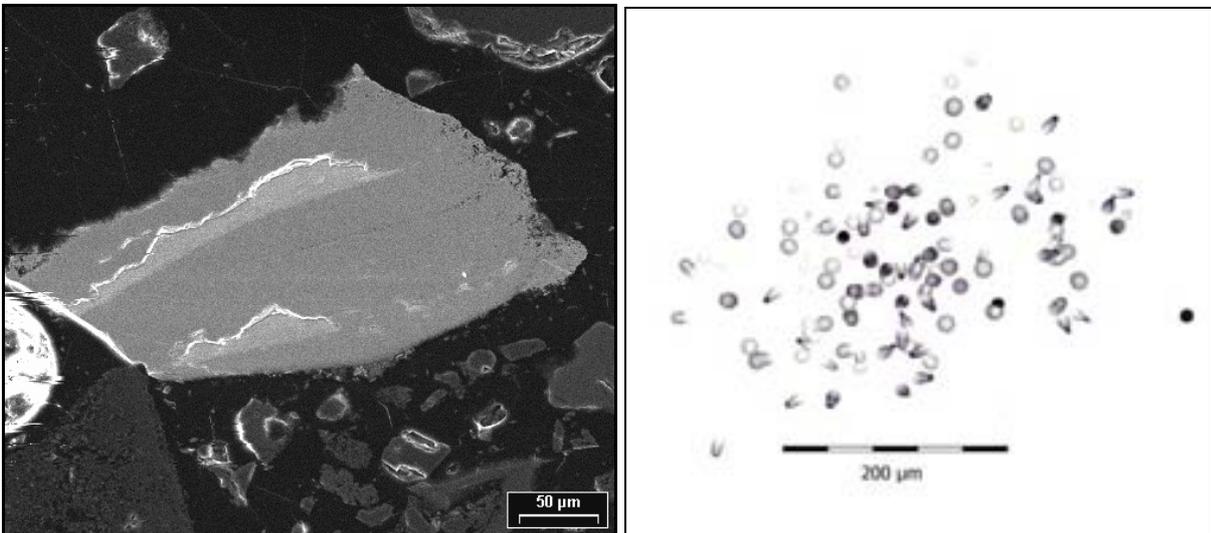
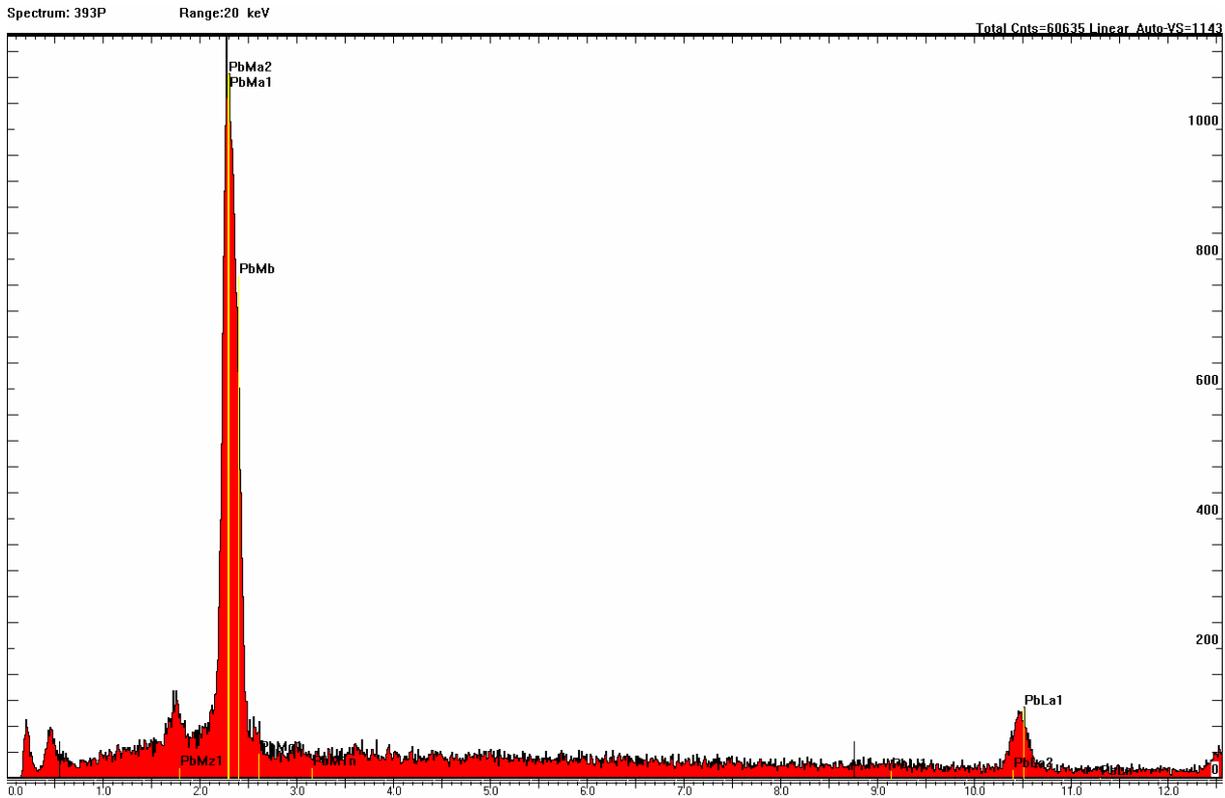
## Schlenze



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Bachsediment-Probe 393 (Markierung q). Es handelt sich hier um ein ca. 25×50 µm großes Monazitkorn (Bildmitte, mittelgraues Korn).

# Tafel 141

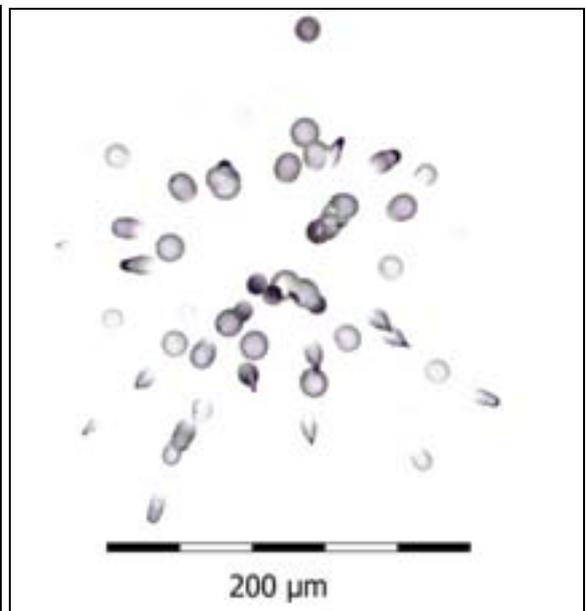
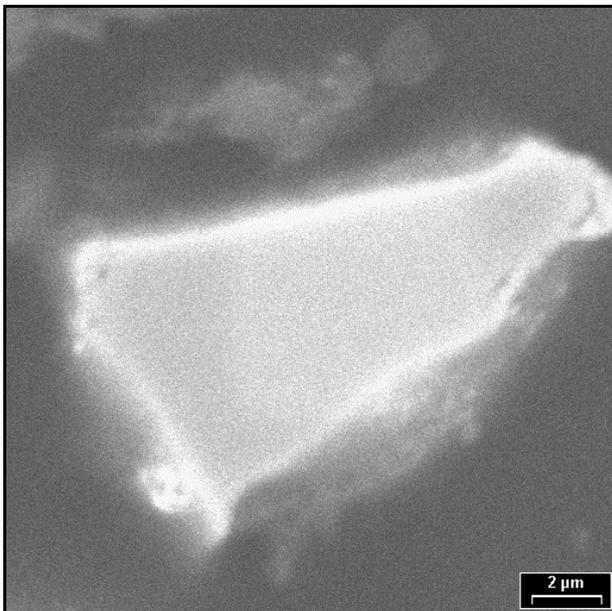
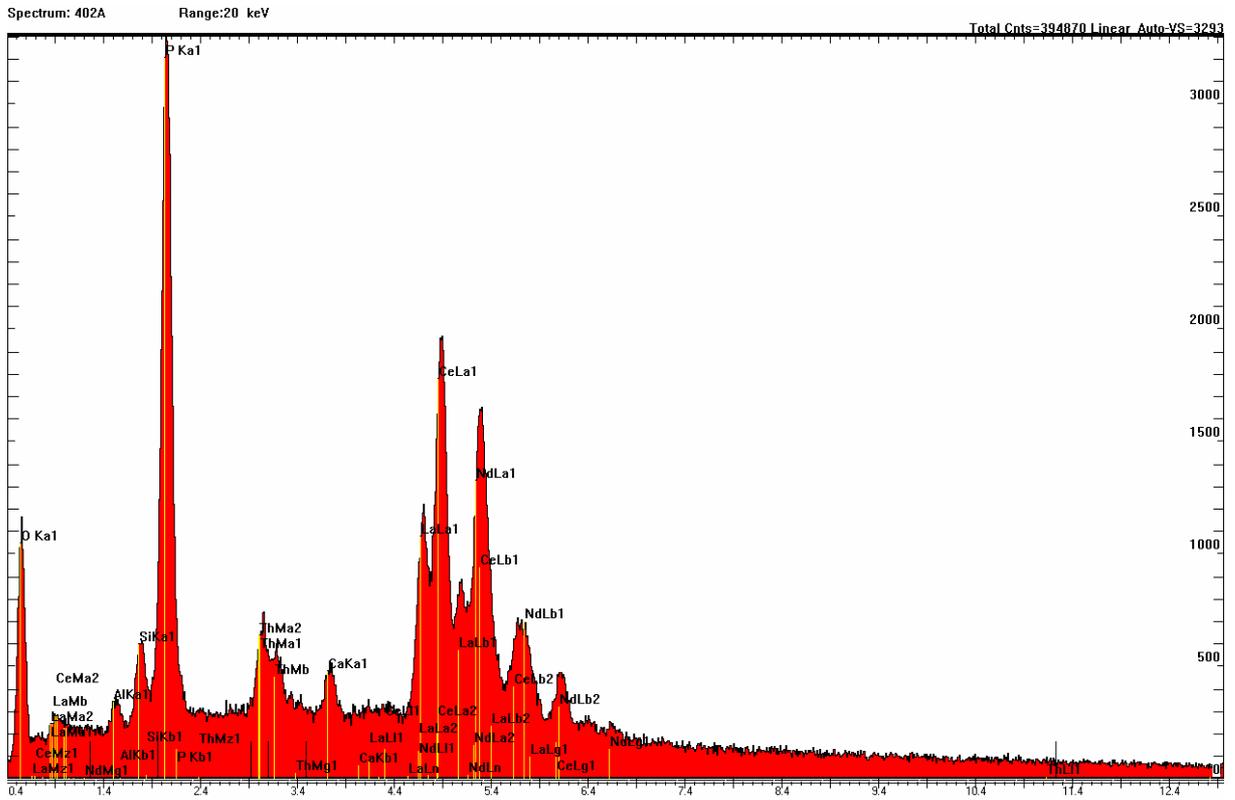
## Schlenze - Clusterspur



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines plattigen Partikels der Bachsediment-Probe 393 (Markierung p). Das mittelgraue, ca. 150×300 μm große Korn in der Bildmitte besteht fast ausschließlich aus Pb (siehe Spektrum). Es enthält vermutlich auch  $^{210}\text{Pb}$  und dessen Tochter  $^{210}\text{Po}$ , ein Alphaemitter, der die Spuren auf dem Detektor erzeugt hat.

# Tafel 142

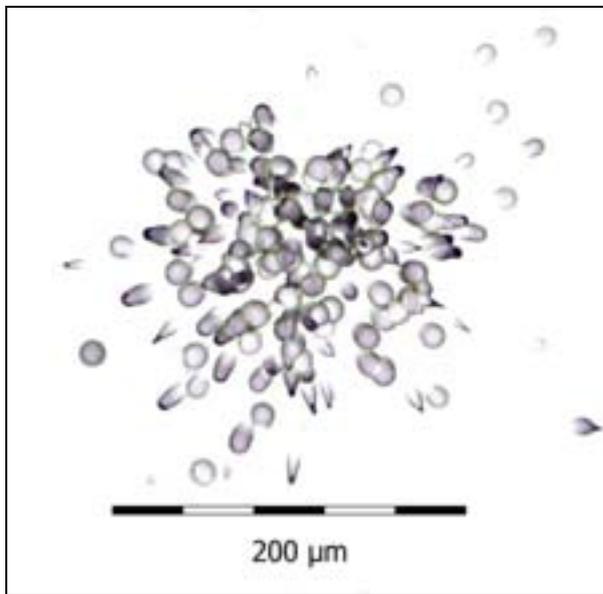
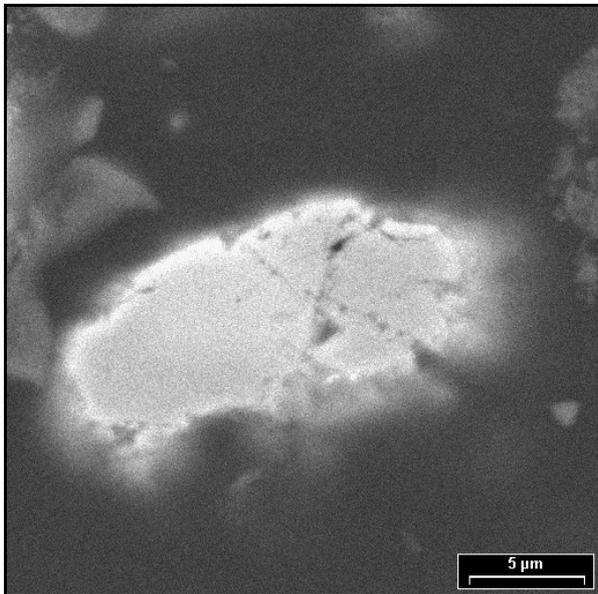
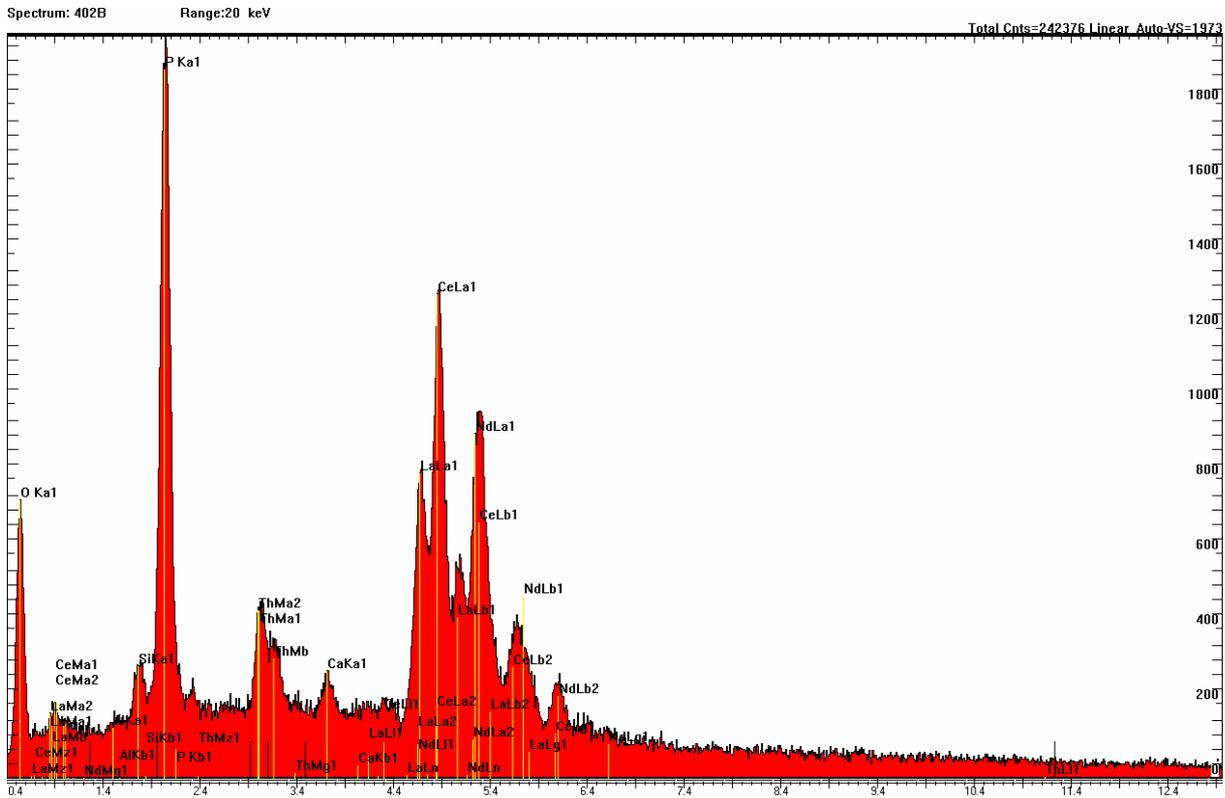
## Böse Sieben



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Bachsediment-Probe 402 (Markierung a). Es handelt sich um ein ca.  $7 \times 15 \mu\text{m}$  großes Monazitkörnchen.

# Tafel 143

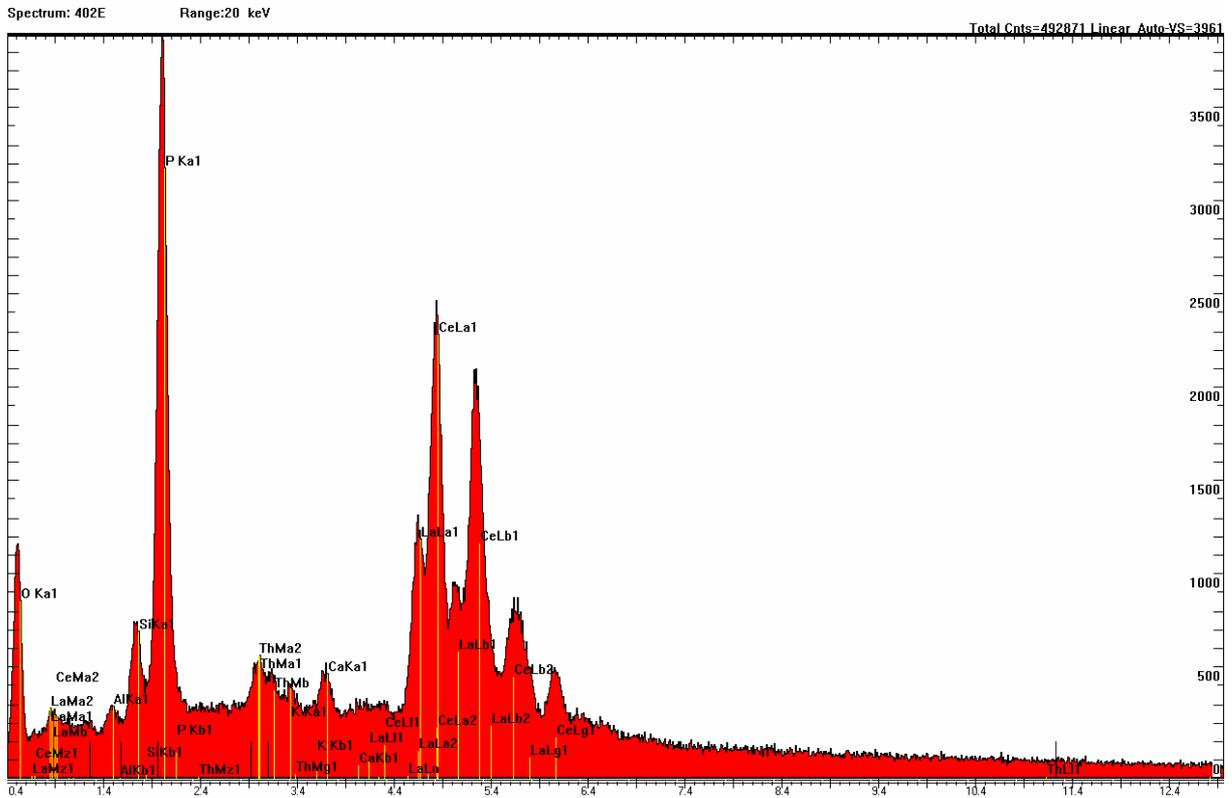
## Böse Sieben



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines heißen Teilchens der Bachsediment-Probe 402 (Markierung b). Es handelt sich hier um ein ca.  $8 \times 18 \mu\text{m}$  großes Monazitkorn (Bildmitte, helles Korn).

# Tafel 144 – Teil I

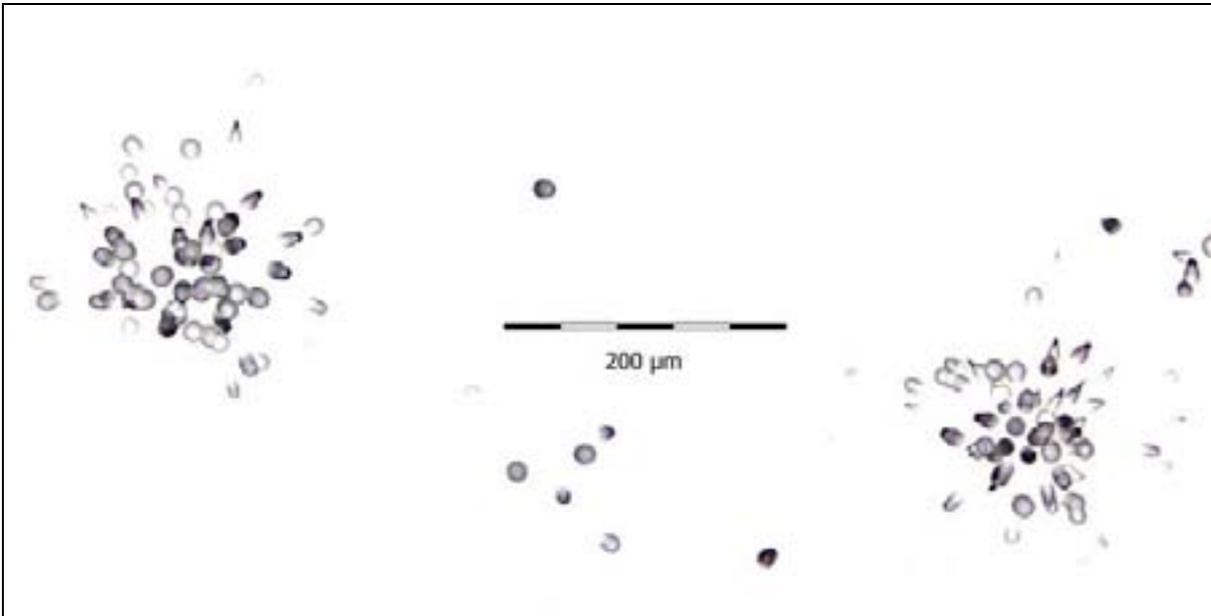
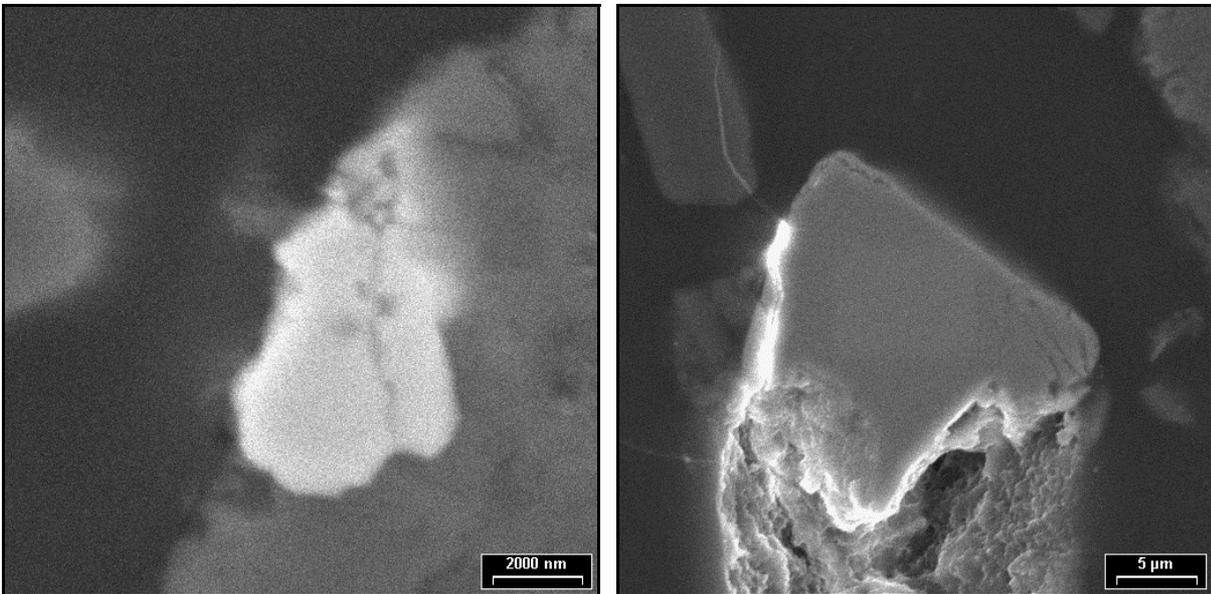
## Böse Sieben



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Bachsediment-Probe 402 (Markierung e). Innerhalb dieser Markierung wurden zwei Heiße Teilchen gefunden, bei denen es sich um Monazitkörnchen ( $4 \times 6 \mu\text{m}$  und ca.  $17 \times 25 \mu\text{m}$  groß) handelt. Auf die Darstellung beider Spektren wurde verzichtet, da sie sich gleichen. Die nachfolgende Tafel zeigt die REM-Aufnahmen und Spurbilder der detektierten Heißen Teilchen. Dabei ist das Heiße Teilchen jeweils über seiner zugehörigen Sternspur abgebildet.

## Tafel 144 – Teil II

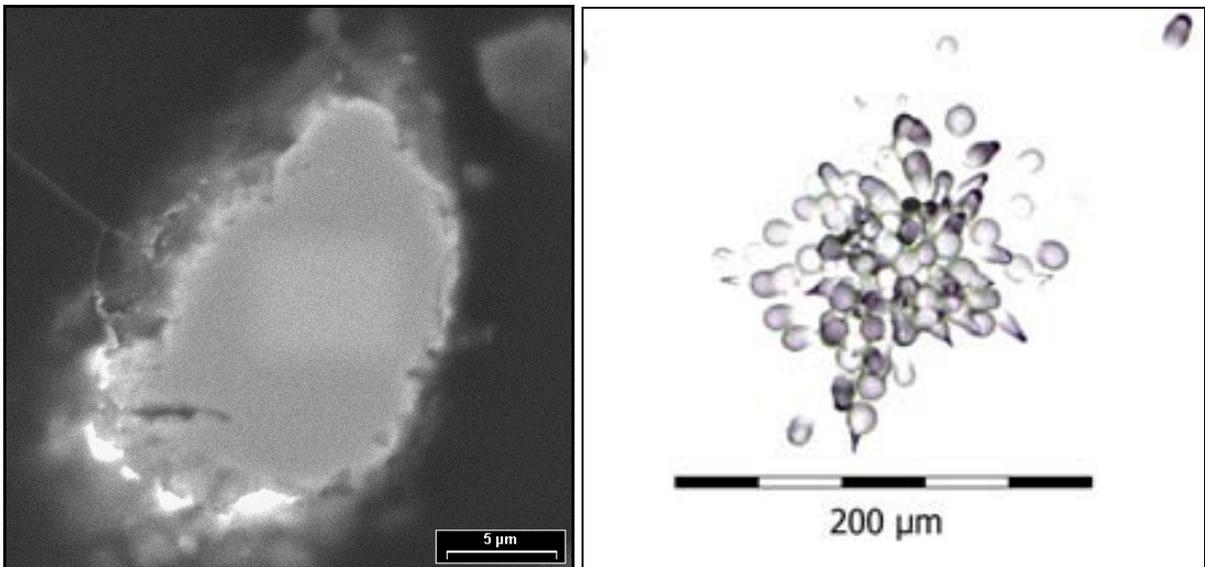
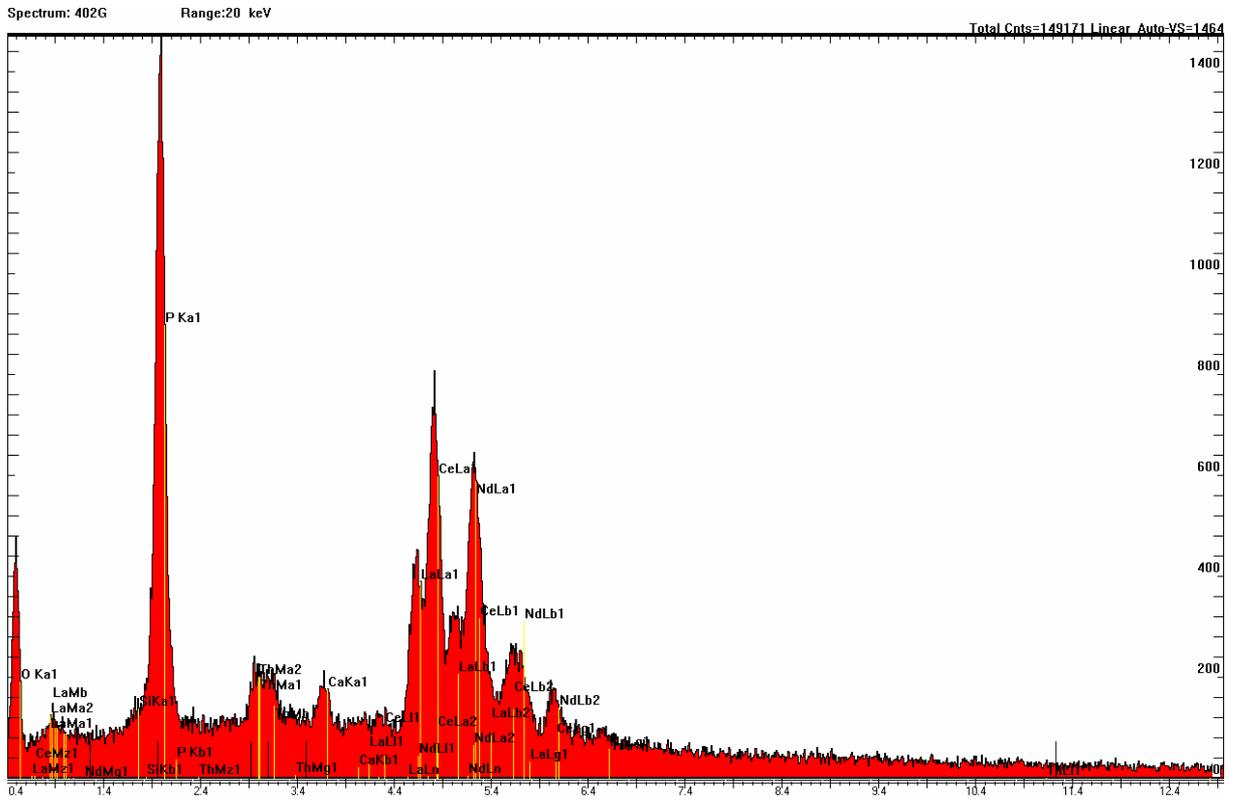
### Böse Sieben



Erläuterungen siehe Tafel oben.

# Tafel 145

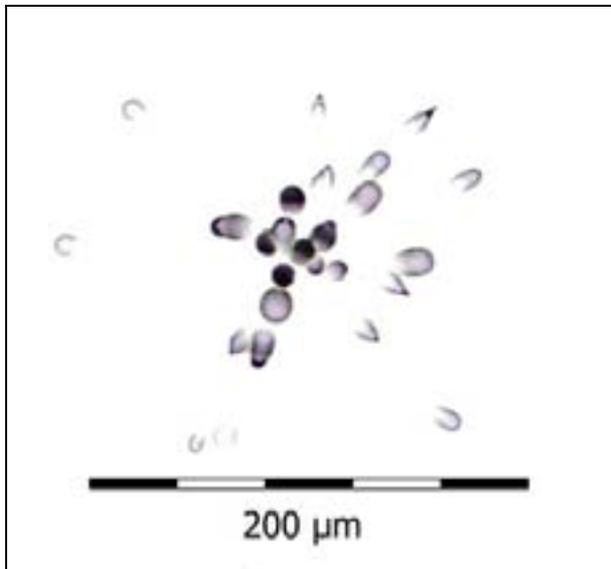
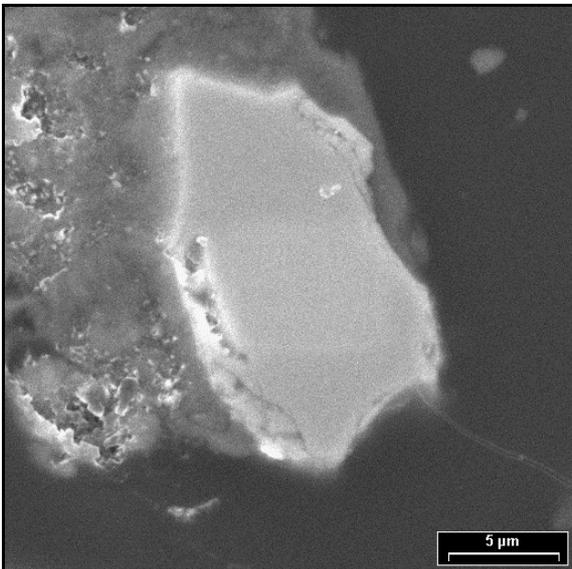
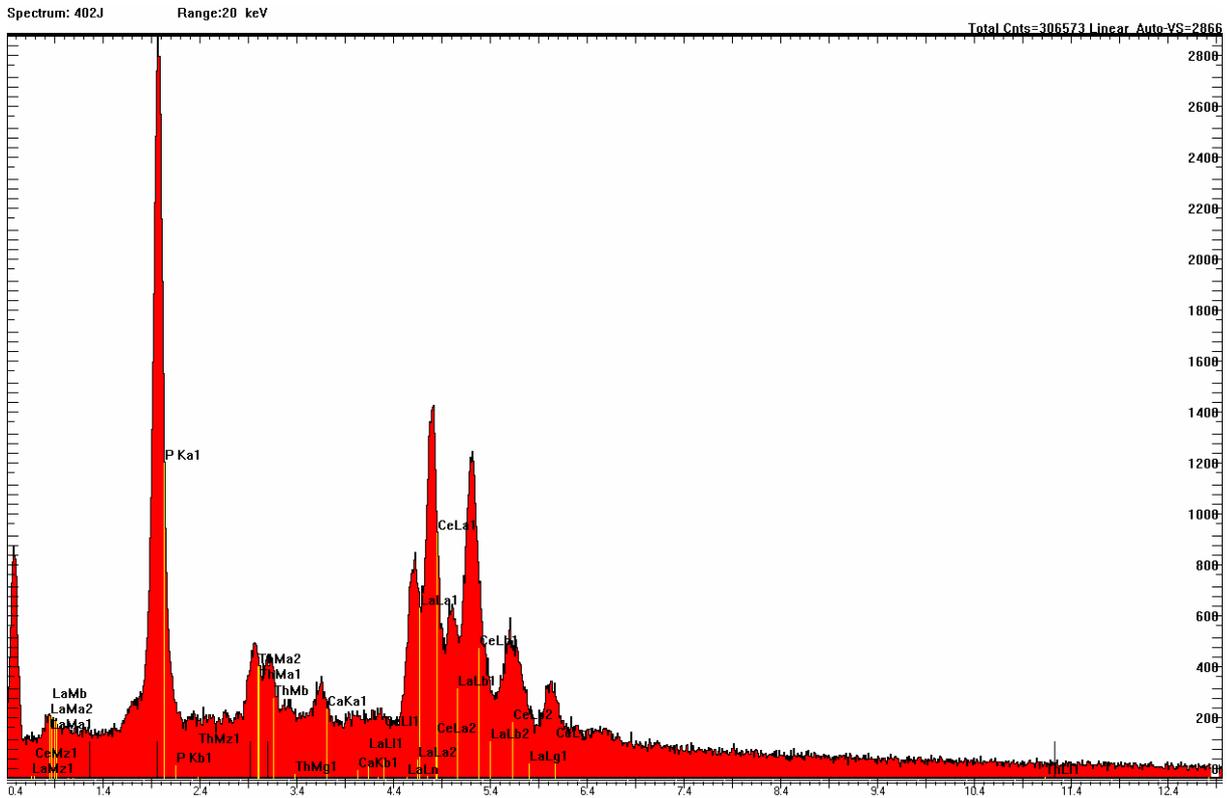
## Böse Sieben



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Bachsediment-Probe 402 (Markierung g). Es handelt sich hier um ein ca. 12×20 μm großes Monazitkorn.

# Tafel 146

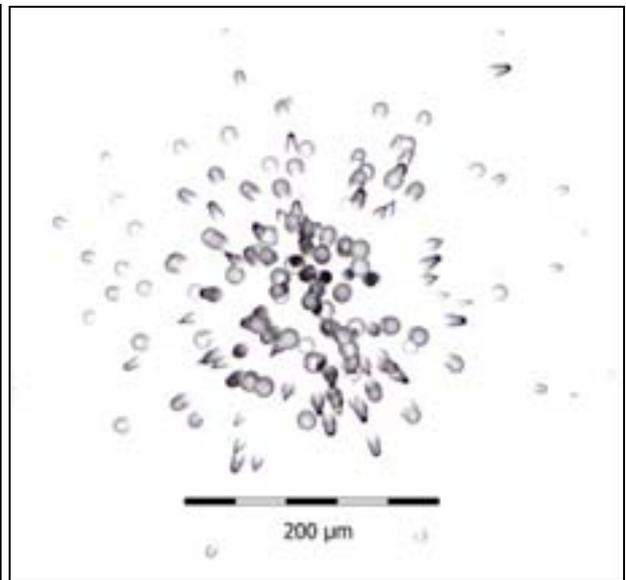
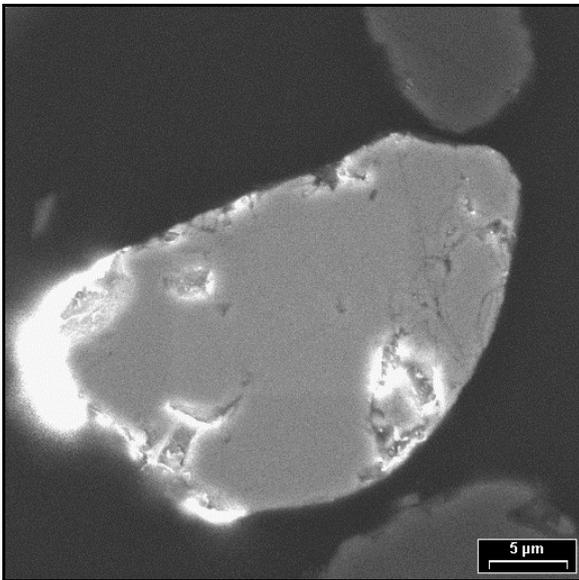
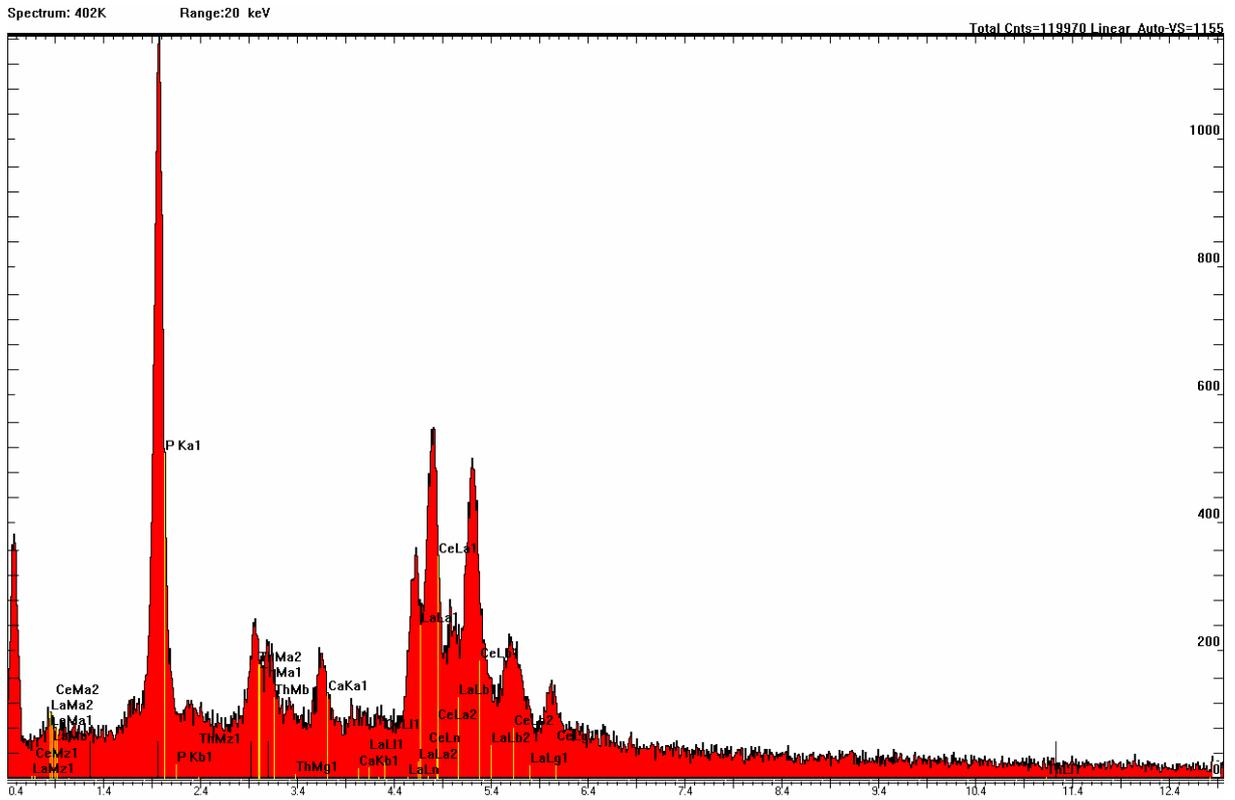
## Böse Sieben



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines heißen Teilchens der Bachsediment-Probe 402 (Markierung j). Es handelt sich hier um ein ca.  $10 \times 18 \mu\text{m}$  großes Monazitkörnchen (Bildmitte, helles Korn).

# Tafel 147

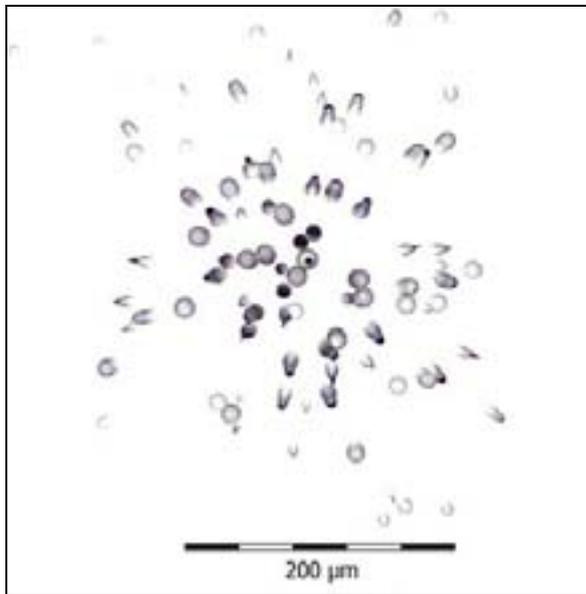
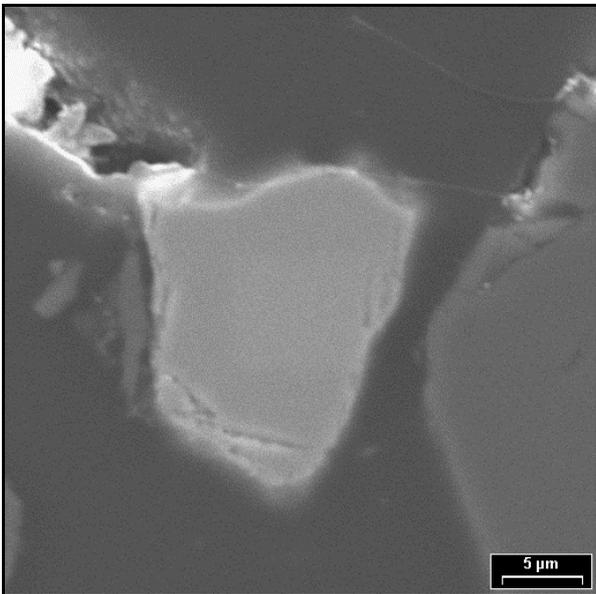
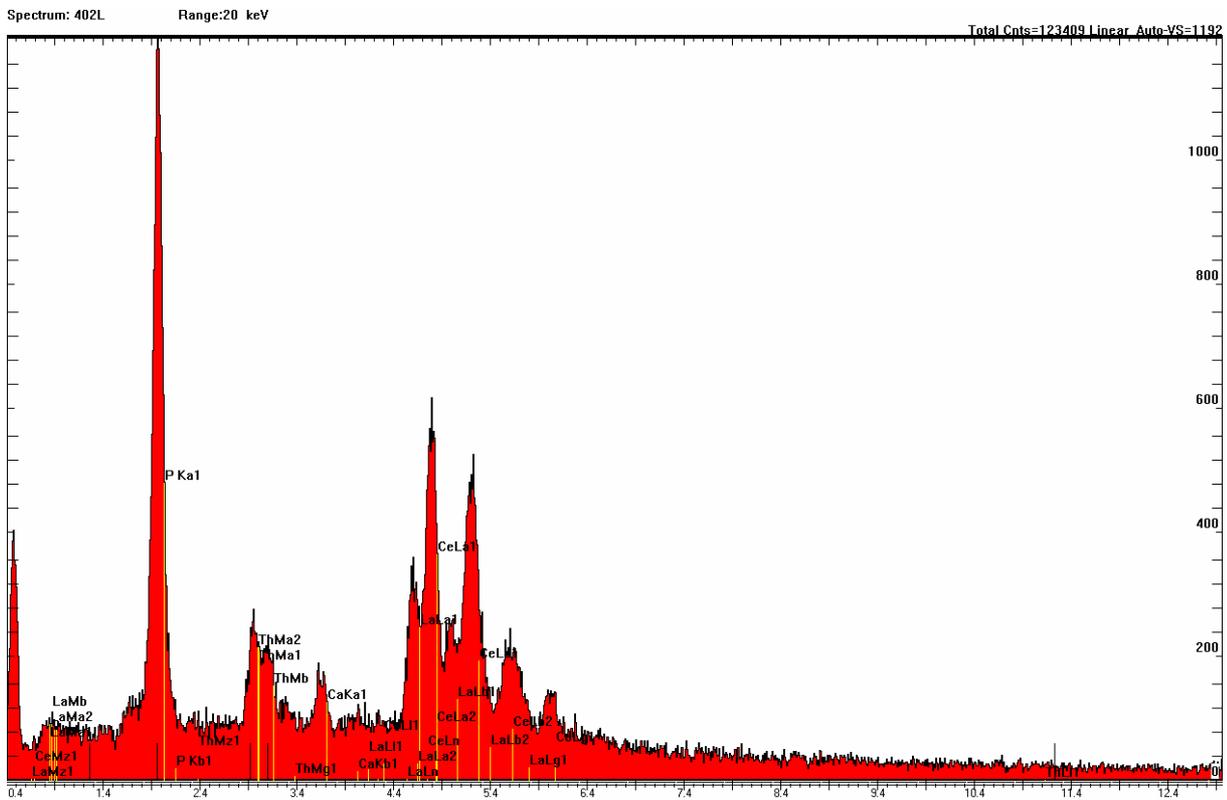
## Böse Sieben



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Bachsediment-Probe 402 (Markierung k). Es handelt sich hier um ein ca. 20×30 µm großes Monazitkörnchen (Bildmitte, helles Korn).

# Tafel 148

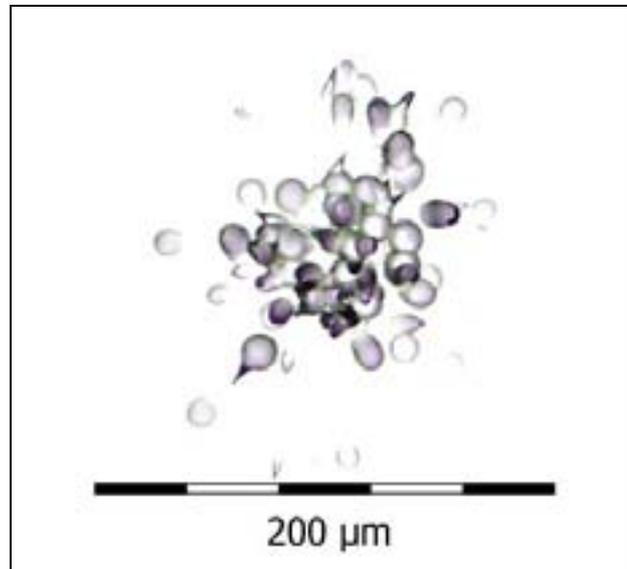
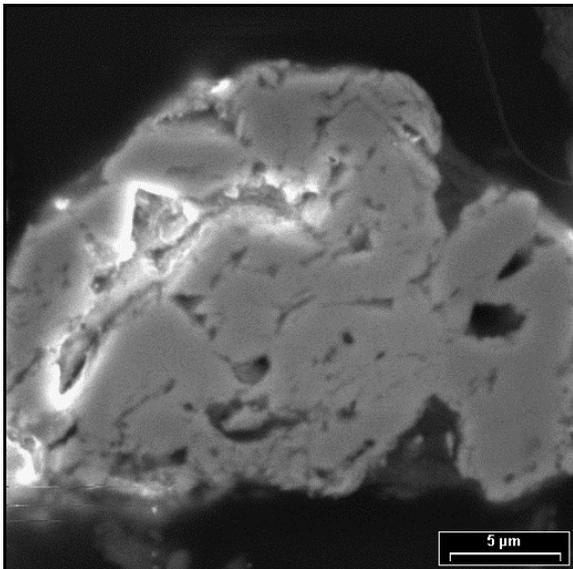
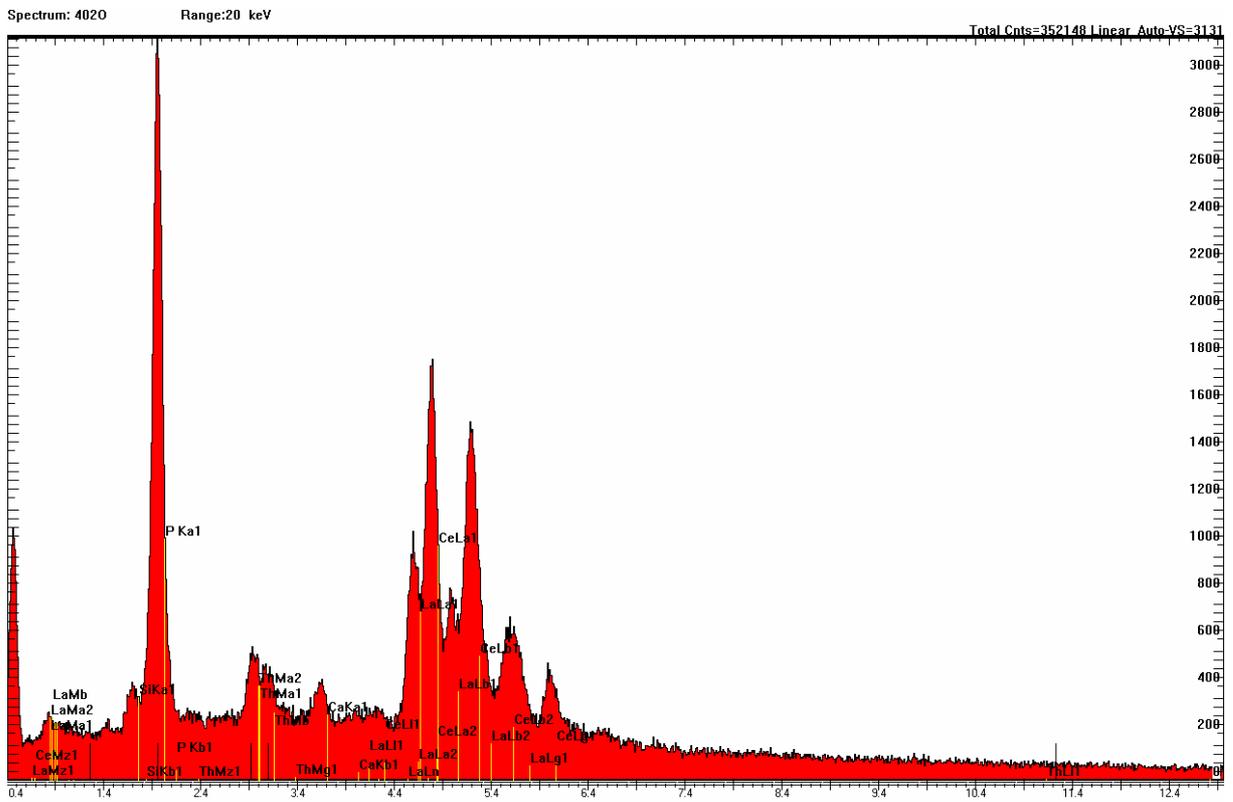
## Böse Sieben



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Bachsediment-Probe 402 (Markierung 1). Es handelt sich hier um ein ca.  $15 \times 20 \mu\text{m}$  großes Monazitkörnchen (Bildmitte, helles Korn).

# Tafel 149

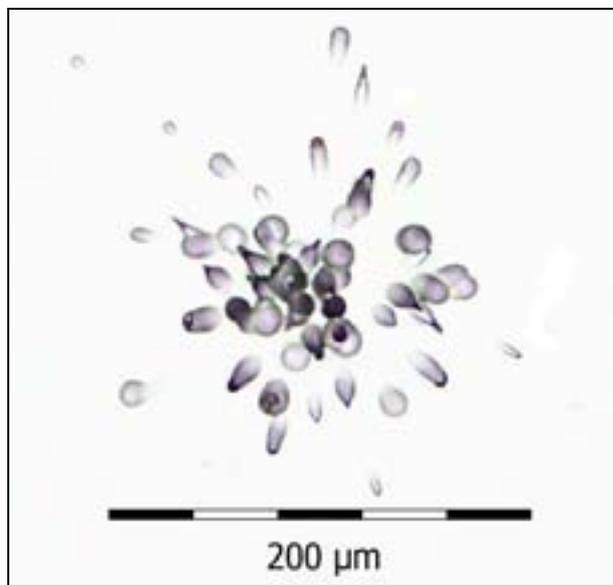
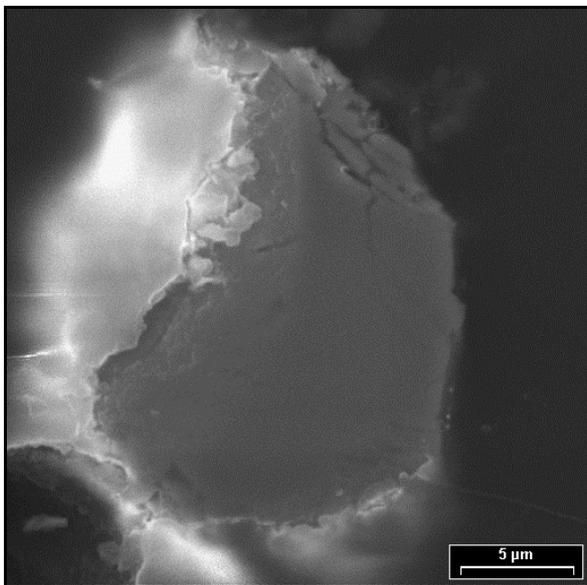
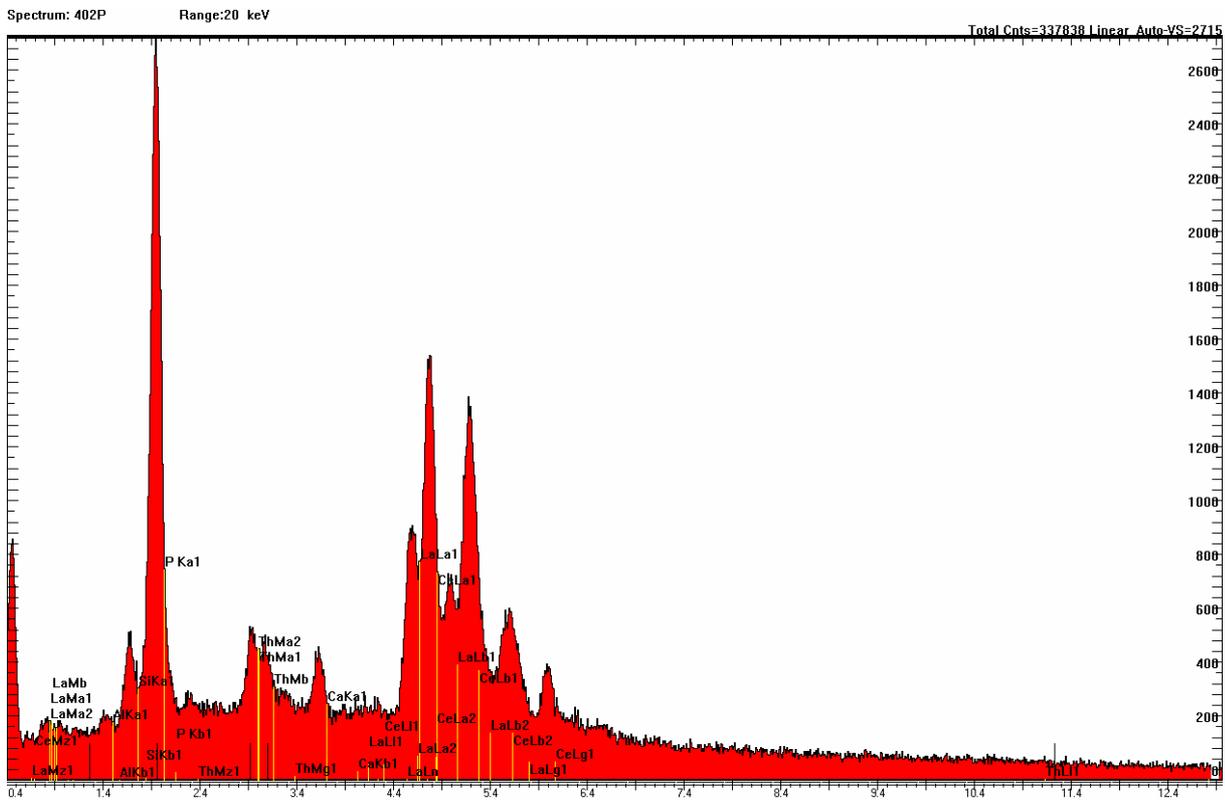
## Böse Sieben



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Bachsediment-Probe 402 (Markierung o). Es handelt sich hier um ein ca. 20×25 µm großes Monazitkörnchen (Bildmitte, mittelgraues Korn).

# Tafel 150

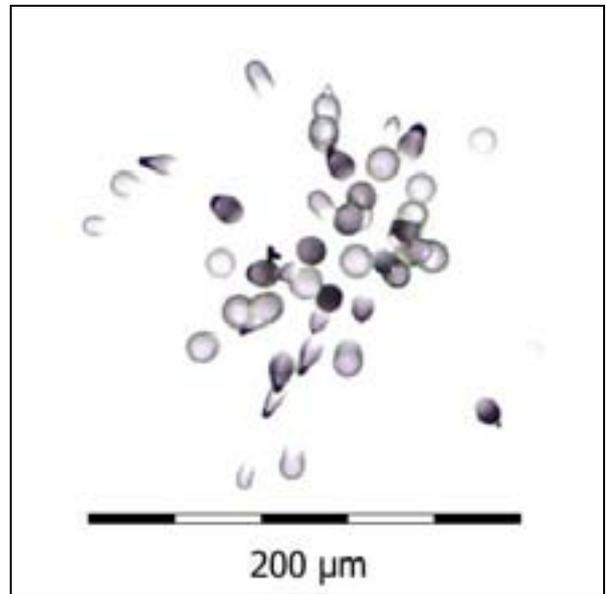
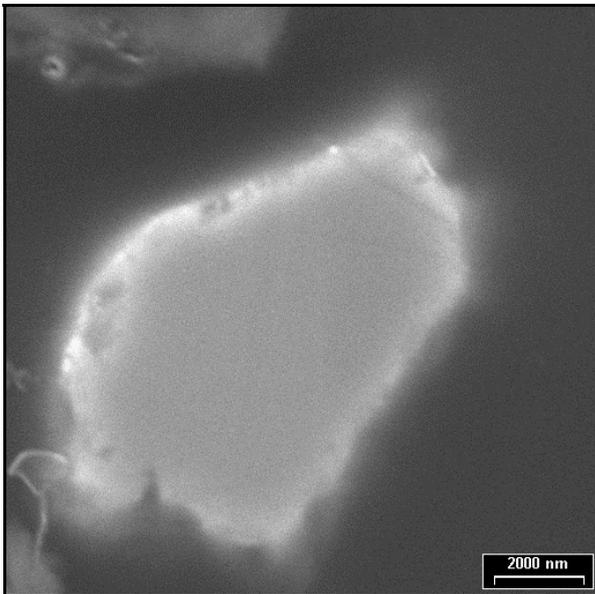
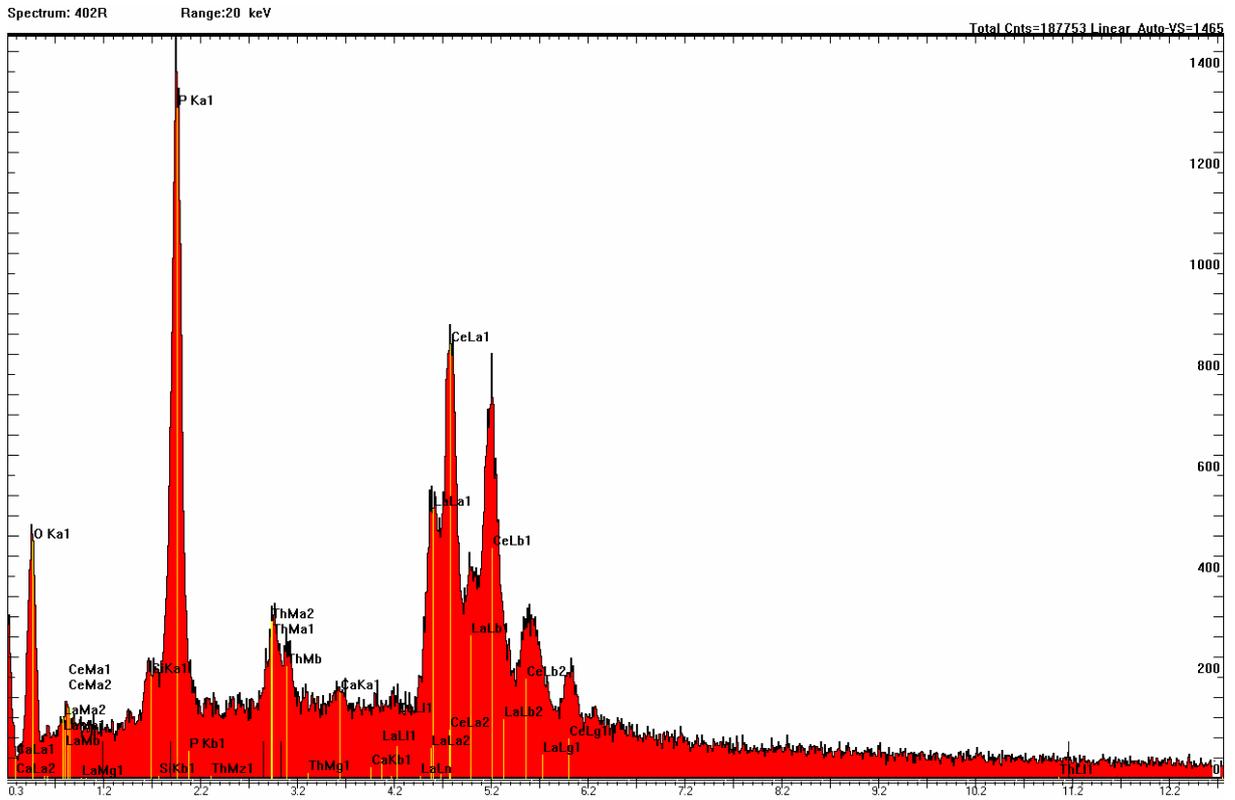
## Böse Sieben



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Bachsediment-Probe 402 (Markierung p). Es handelt sich hier um ein ca.  $15 \times 25 \mu\text{m}$  großes Monazitkörnchen (Bildmitte, dunkelgraues Korn). An den Rändern des Monazitkörnchens kam es bei der Analyse zu Aufladungseffekten (helle Farben).

# Tafel 151

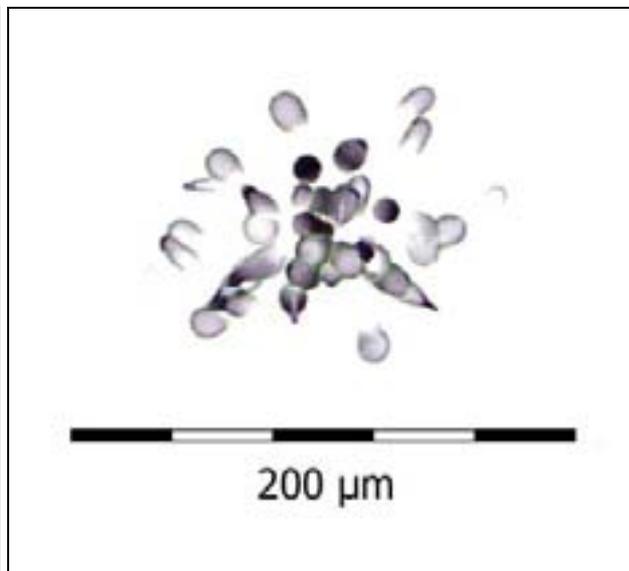
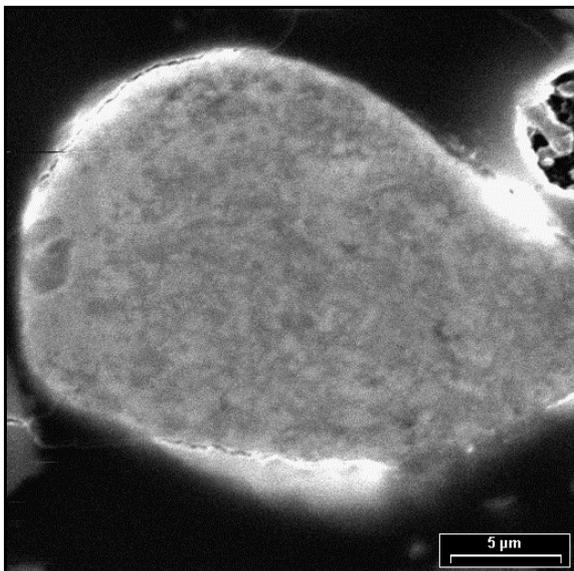
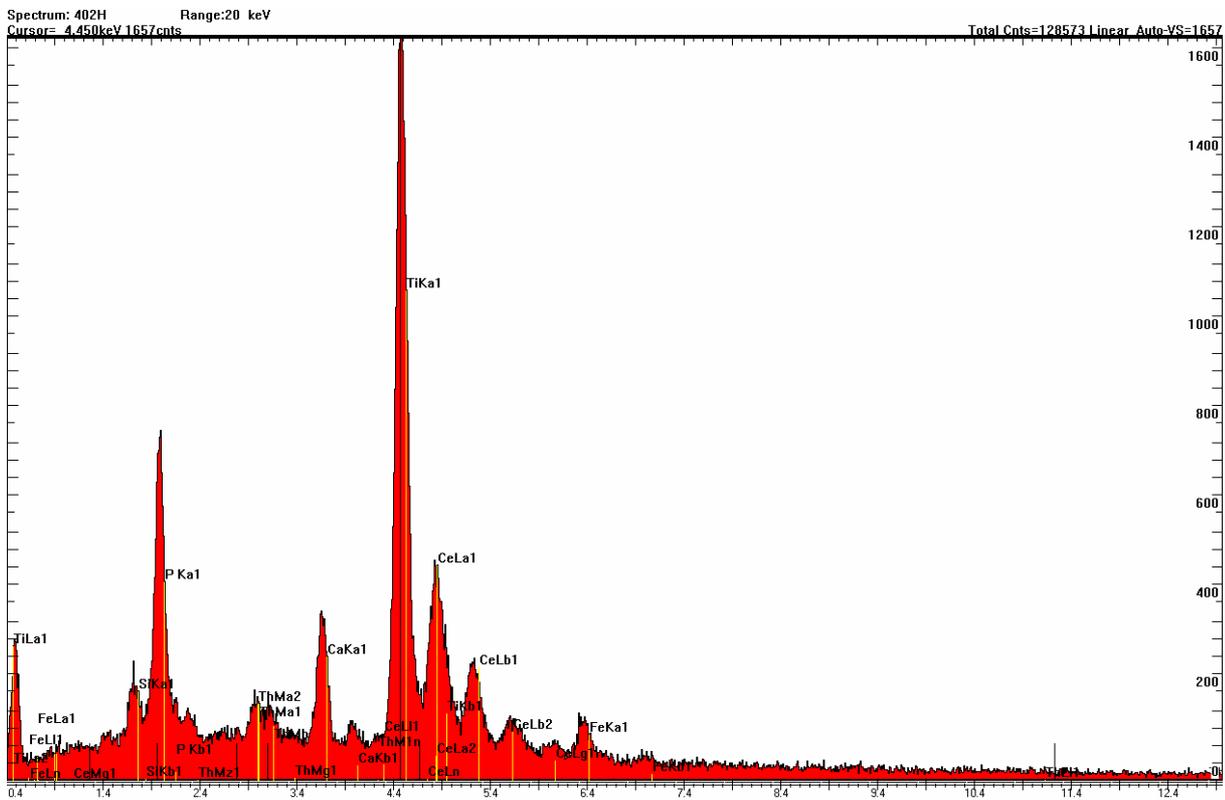
## Böse Sieben



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Bachsediment-Probe 402 (Markierung r). Es handelt sich hier um ein ca.  $6 \times 10 \mu\text{m}$  großes Monazitkörnchen.

# Tafel 152

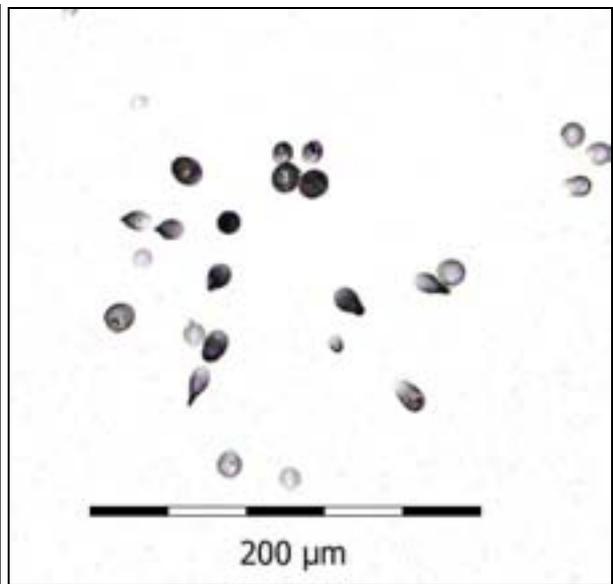
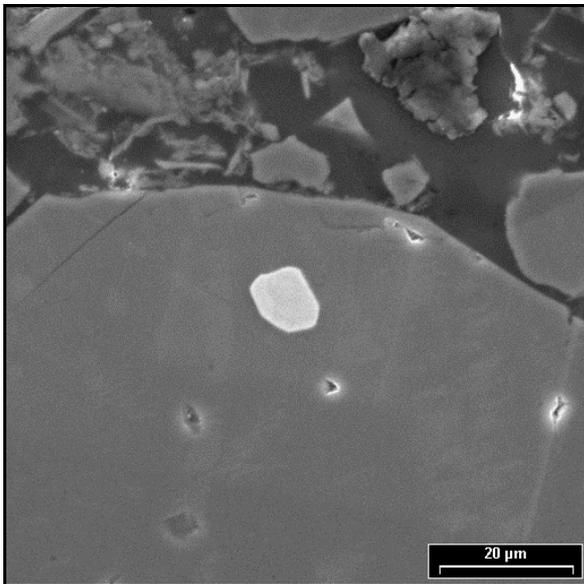
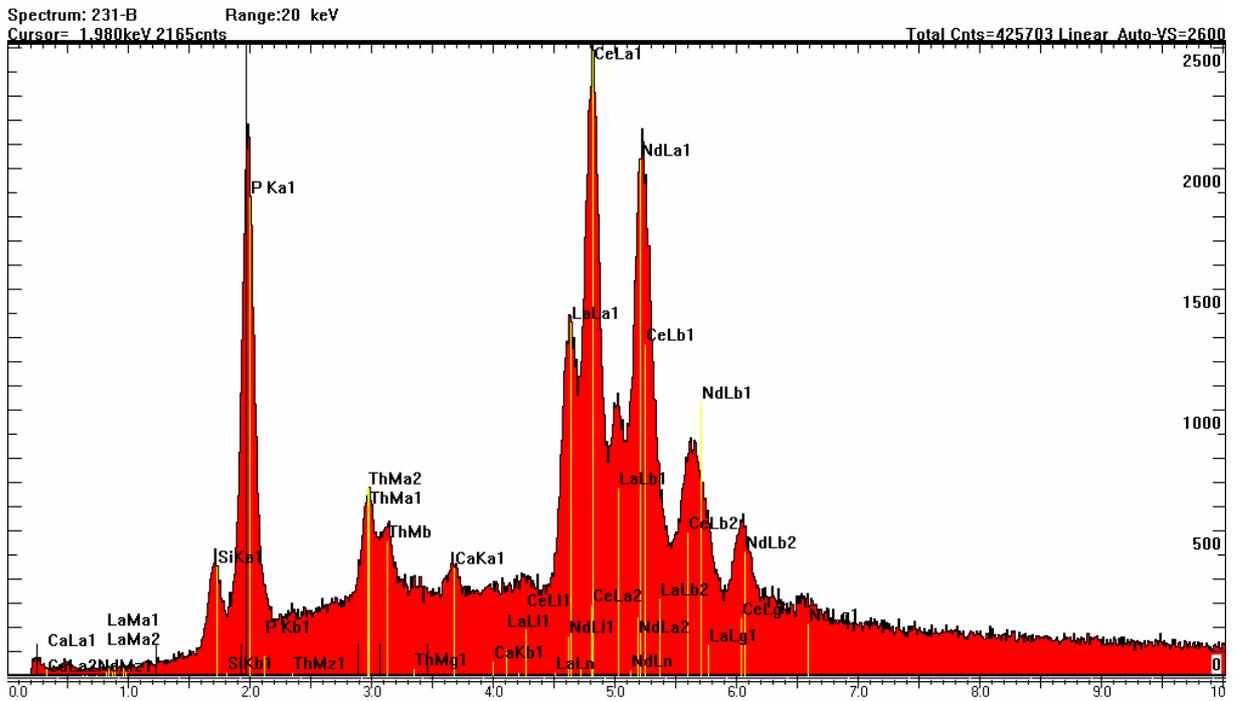
## Böse Sieben



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Bachsediment-Probe 402 (Markierung h). Es handelt sich hier vermutlich um eine Verwachsung von Monazit und Titanit (?). Das thoriumhaltige Körnchen ist ca. 20×26 μm groß.

# Tafel 153

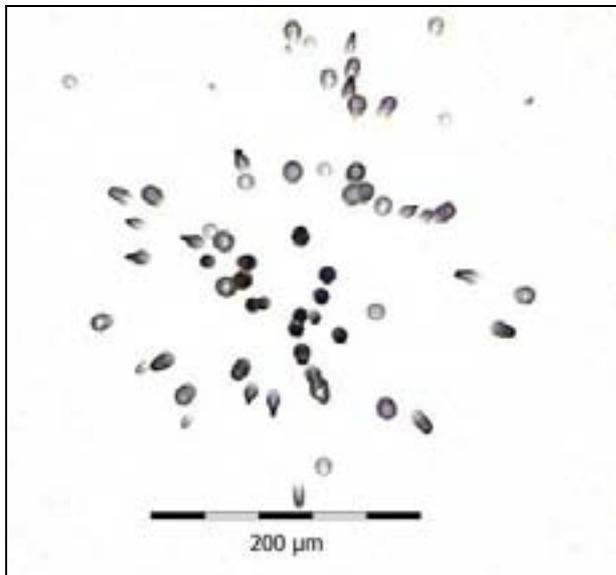
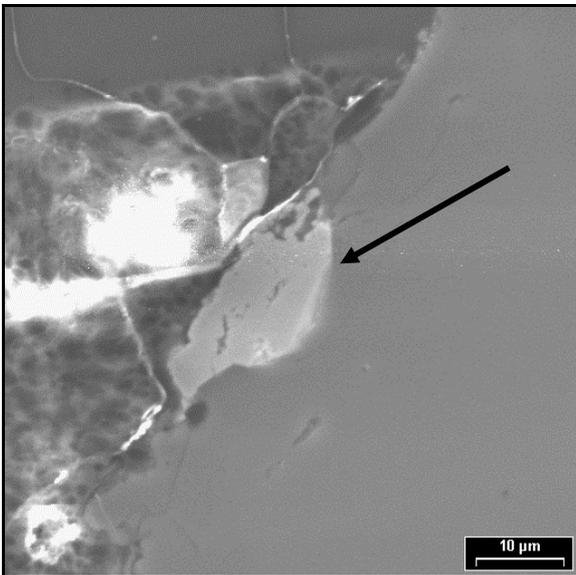
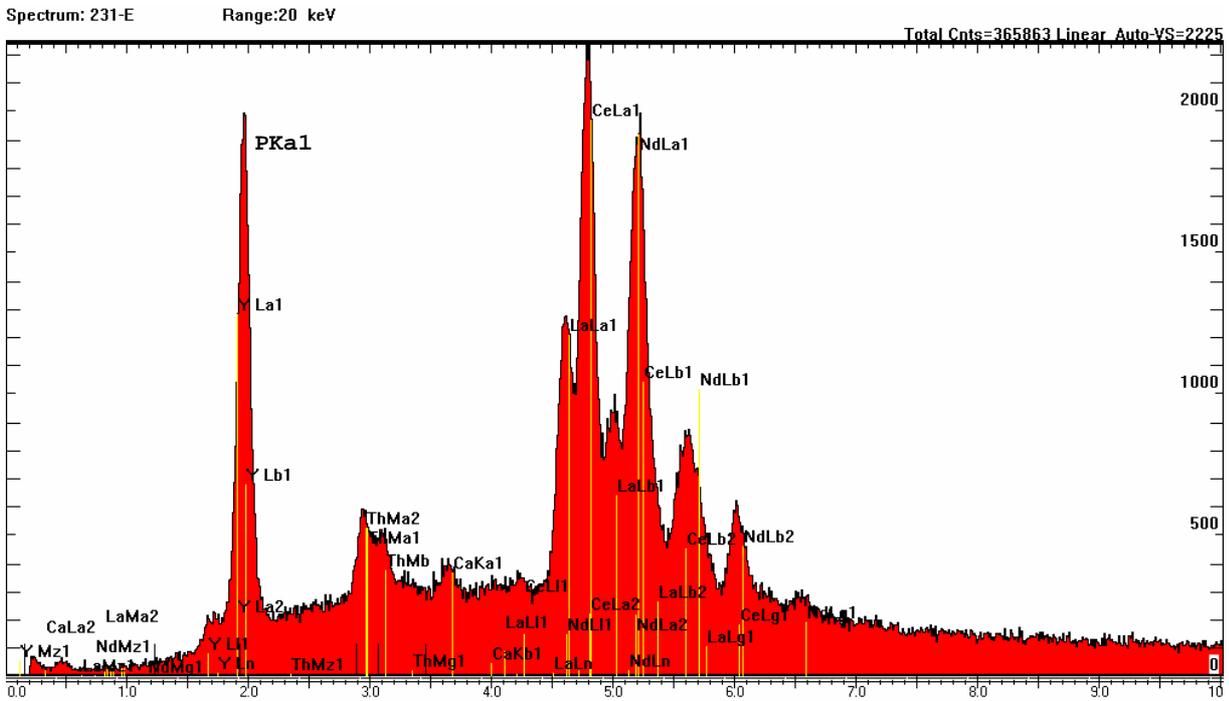
## Mulde bei Grimma



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Bachsediment-Probe 231 (Markierung b). Es handelt sich hier um ein ca. 11 µm großes Monazitkörnchen (Bildmitte, hellgraues Korn). Der Monazit ist mit einem größeren Silikat Korn verwachsen. Das Sternspurmuster ist asymmetrisch ausgebildet und hat eine geringe Spurdichte.

# Tafel 154

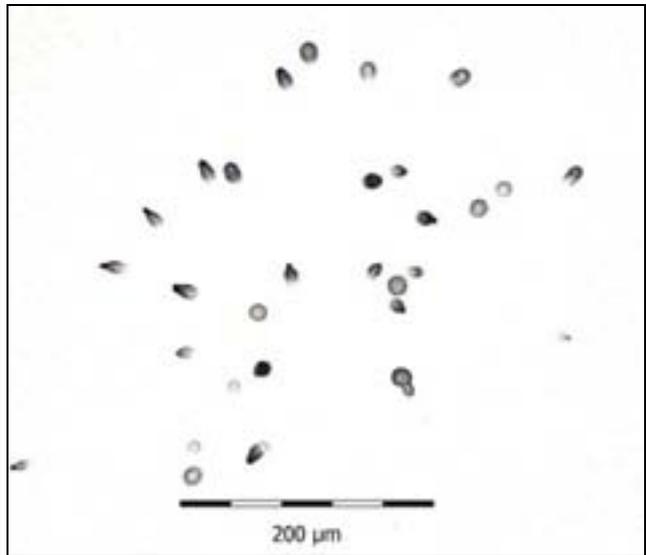
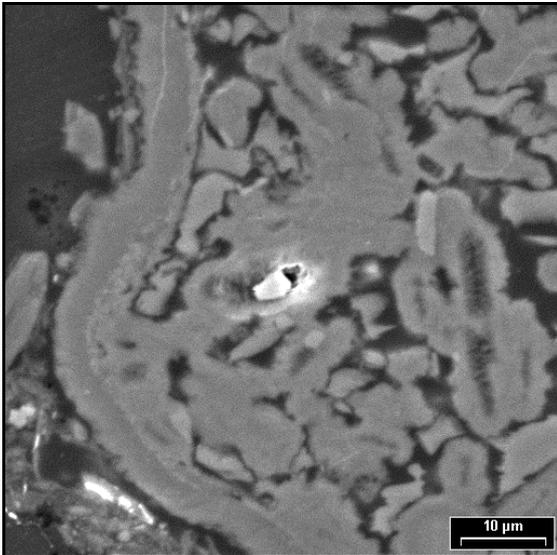
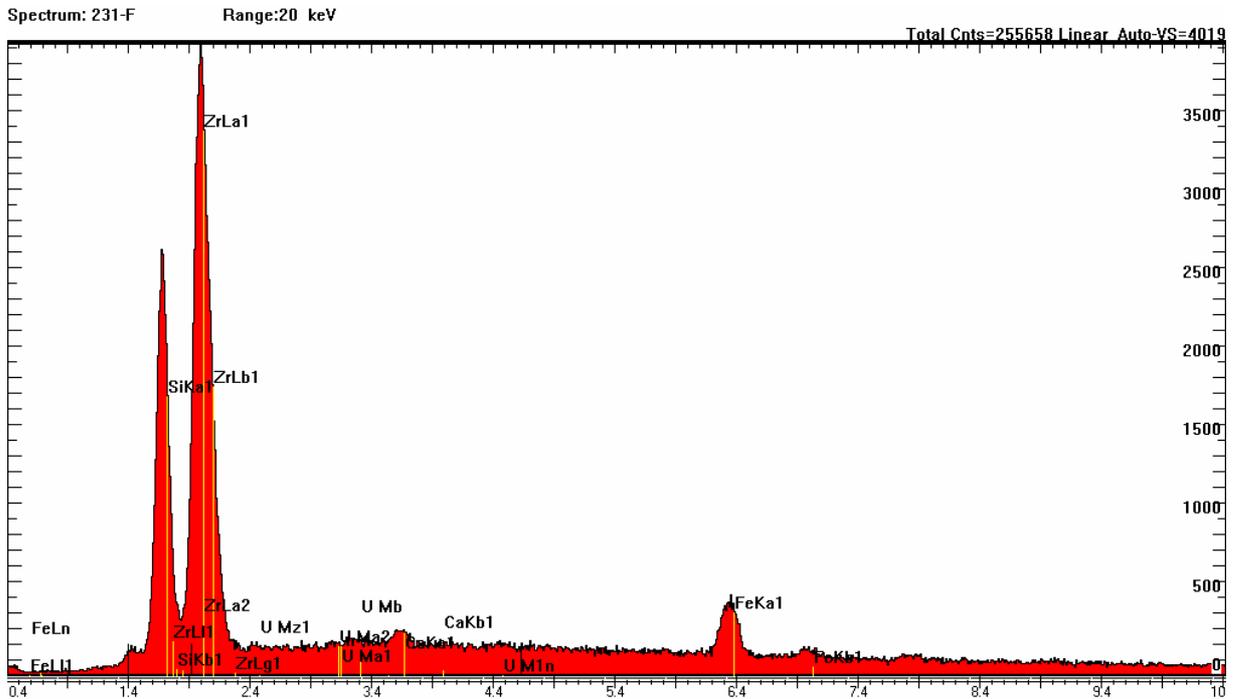
## Mulde bei Grimma



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Bachsediment-Probe 231 (Markierung e). Es handelt sich hier um ein ca. 25 µm großes Monazitkörnchen (Bildmitte, mittelgraues Korn an Pfeilspitze), das mit einem größeren Quarzkorn verwachsen ist.

# Tafel 155

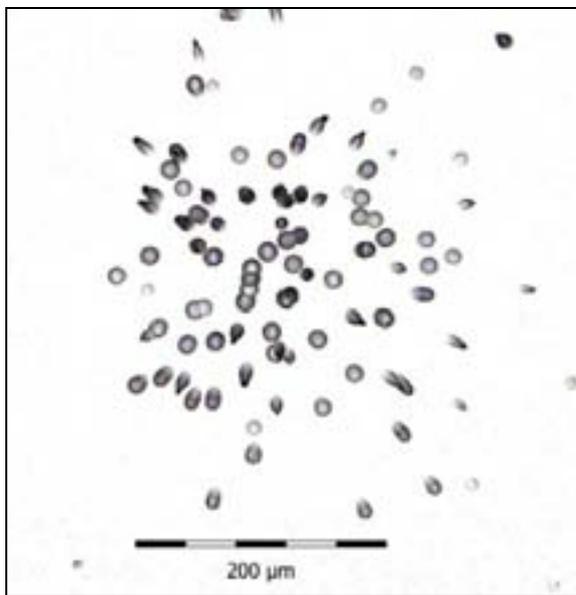
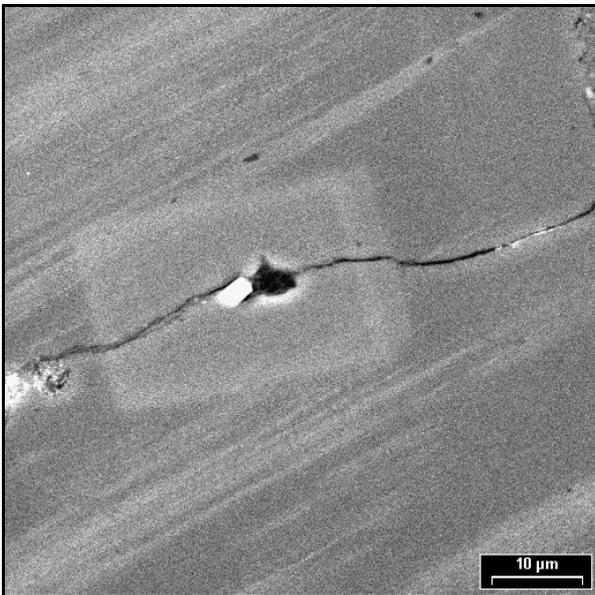
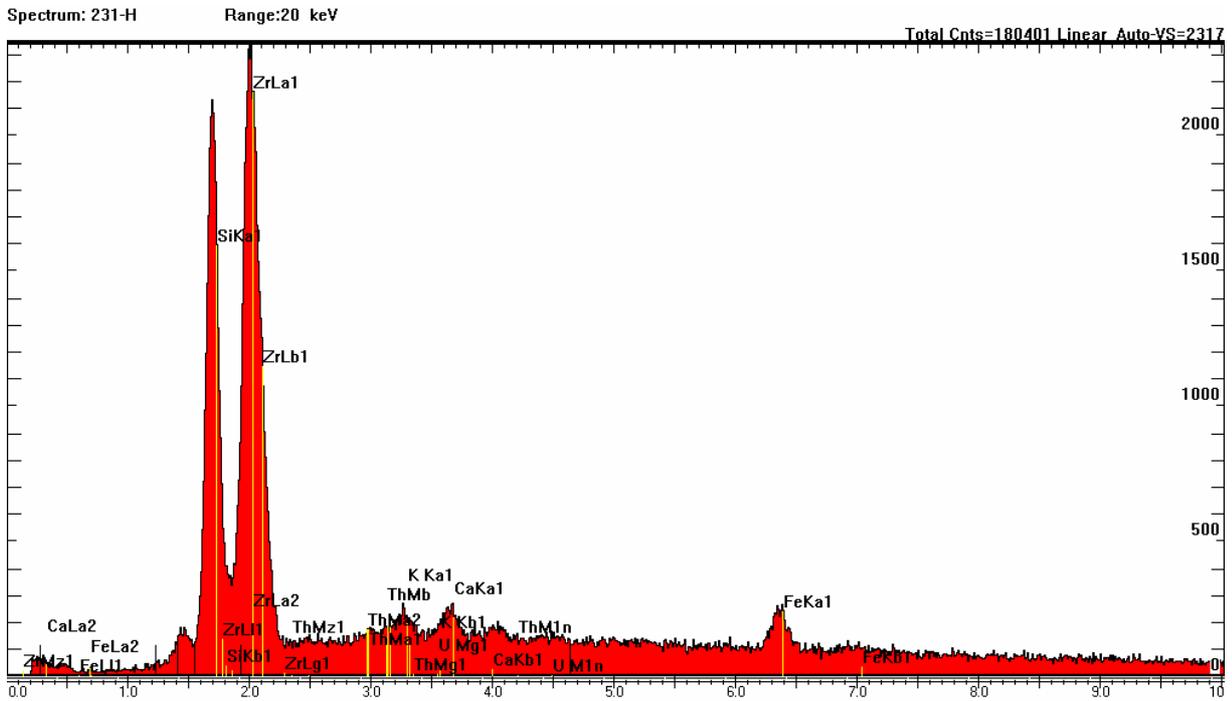
## Mulde bei Grimma



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Bachsediment-Probe 231 (Markierung f). Es handelt sich hier um ein ca. 4 µm großes Zirkonkörnchen (Bildmitte, helles Korn) in einer Silikatmatrix. Der Urangehalt des Zirkons ist sehr niedrig.

# Tafel 156

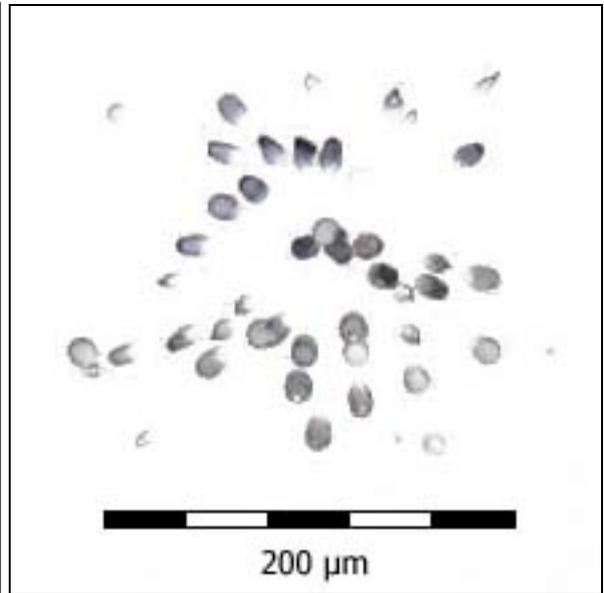
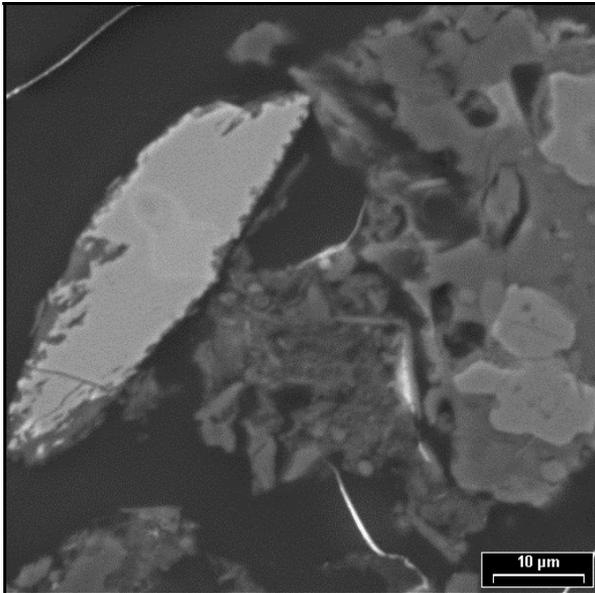
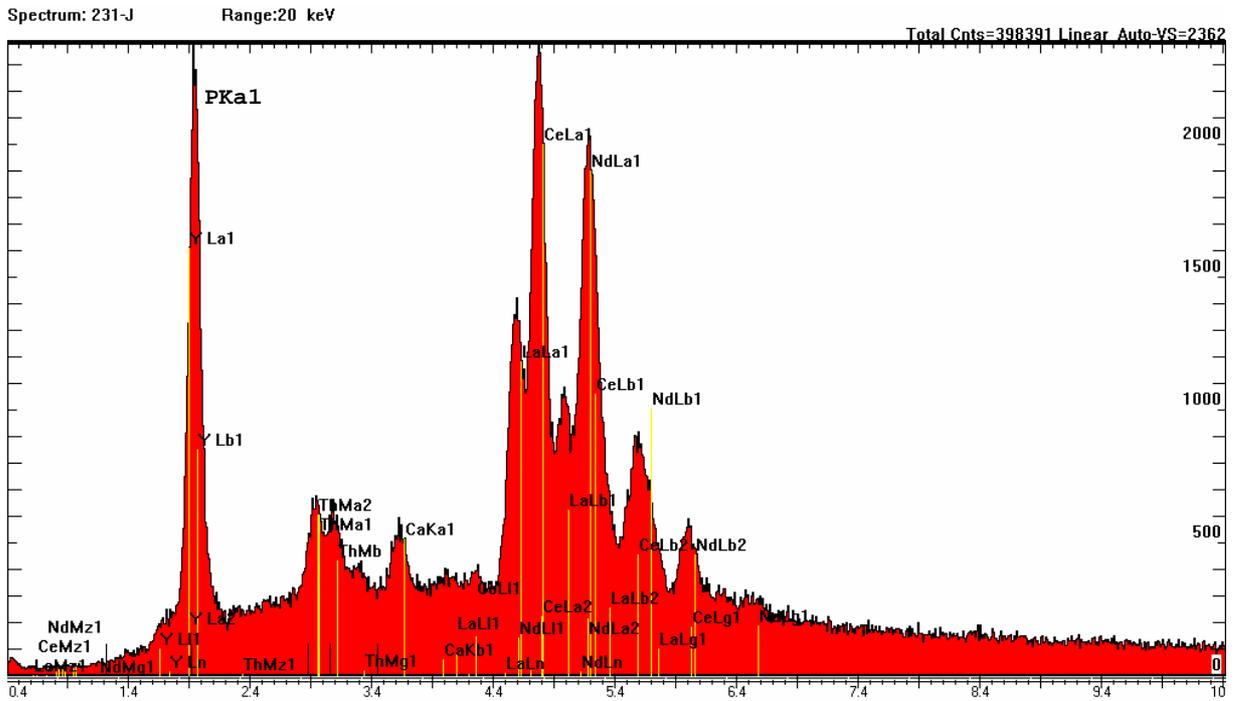
## Mulde bei Grimma



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Bachsediment-Probe 231 (Markierung h). Es handelt sich hier um ein Quarz-Feldspatkorn mit einem ca. 4 µm großen Zirkonkörnchen (Bildmitte, helles Korn). Der Thoriumgehalt des Zirkons ist sehr niedrig.

# Tafel 157

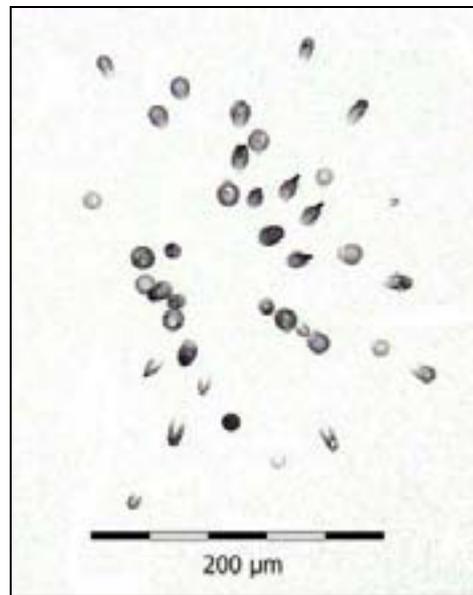
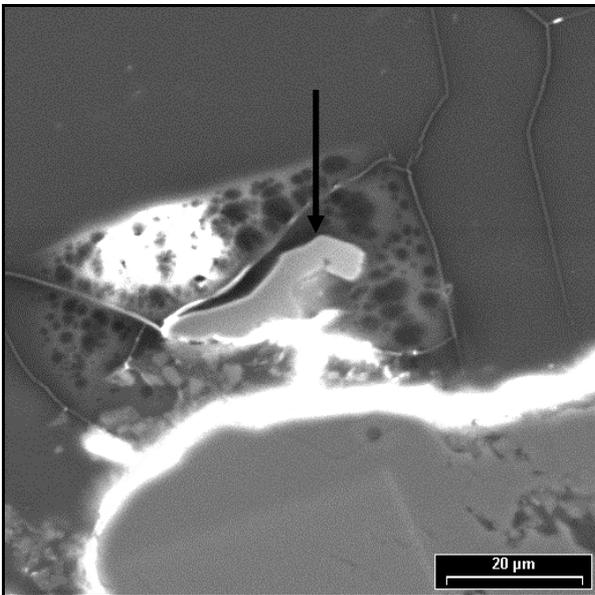
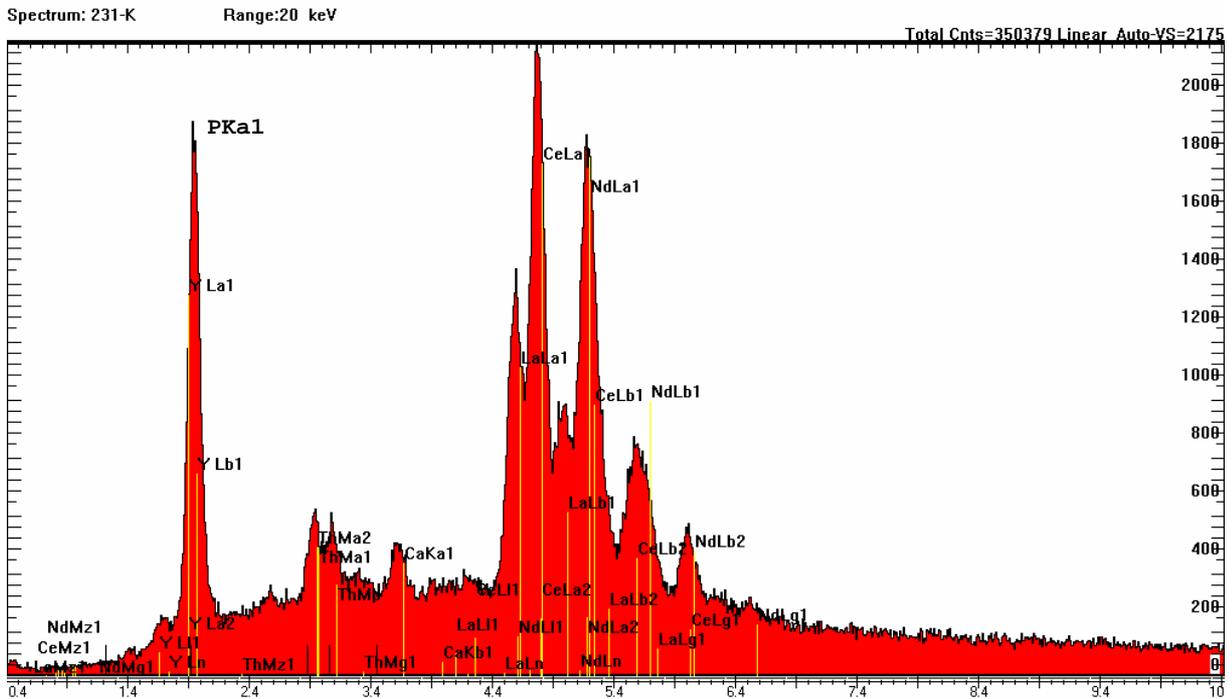
## Mulde bei Grimma



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Bachsediment-Probe 231 (Markierung j). Es handelt sich hier um ein ca. 14×48 µm großes, stängliges Monazitkorn (linke Bildmitte, mittelgraues Korn).

# Tafel 158

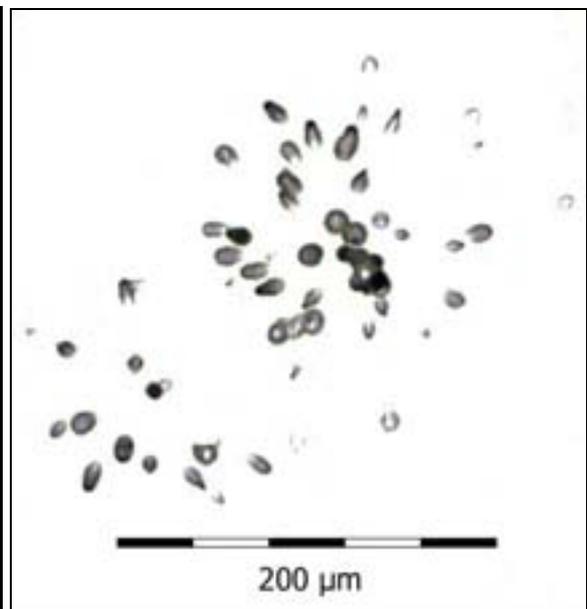
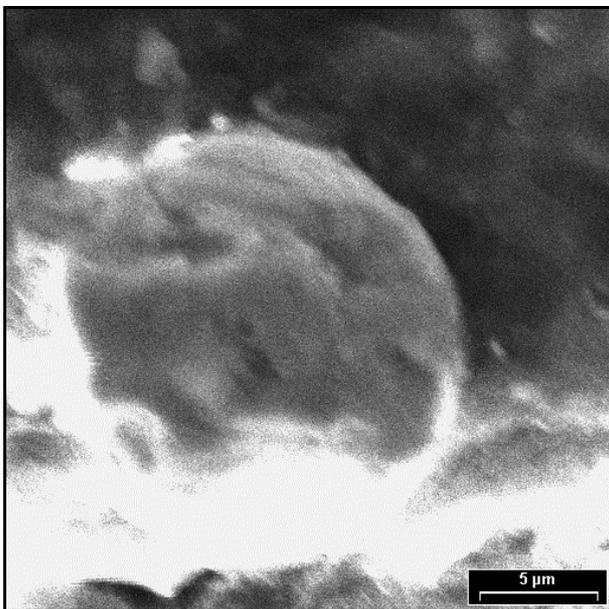
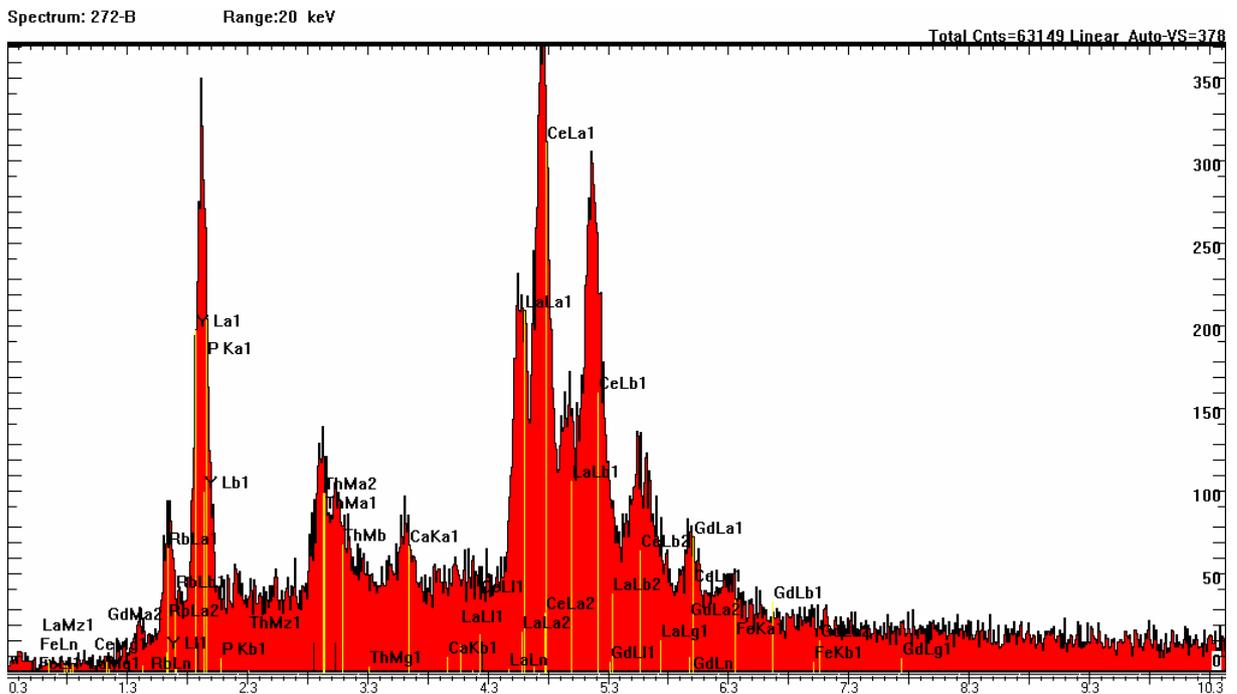
## Mulde bei Grimma



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Bachsediment-Probe 231 (Markierung k). Es handelt sich hier um ein ca.  $6 \times 36 \mu\text{m}$  großes Monazitkörnchen (Bildmitte, Pfeilspitze). Die löchrige Struktur des Harzes (Einbettungsmittel) um das analysierte Körnchen herum zeigt die starke Materialbeanspruchung bei der Mikrosondenuntersuchung. Dabei kann es, materialabhängig, zu starken Substanzverlusten kommen.

# Tafel 159

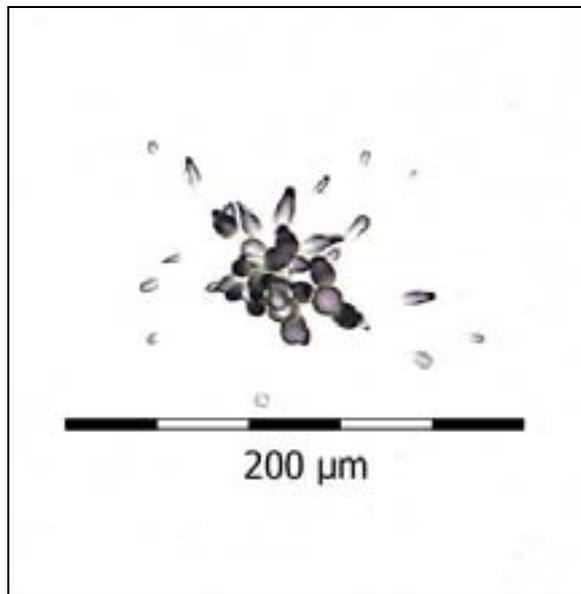
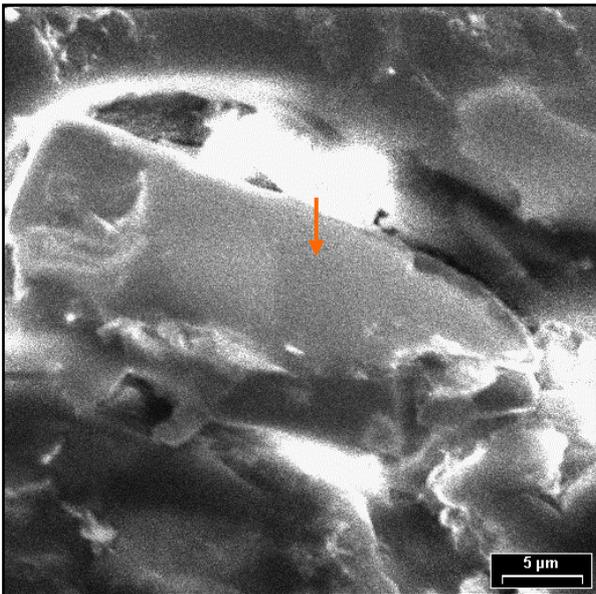
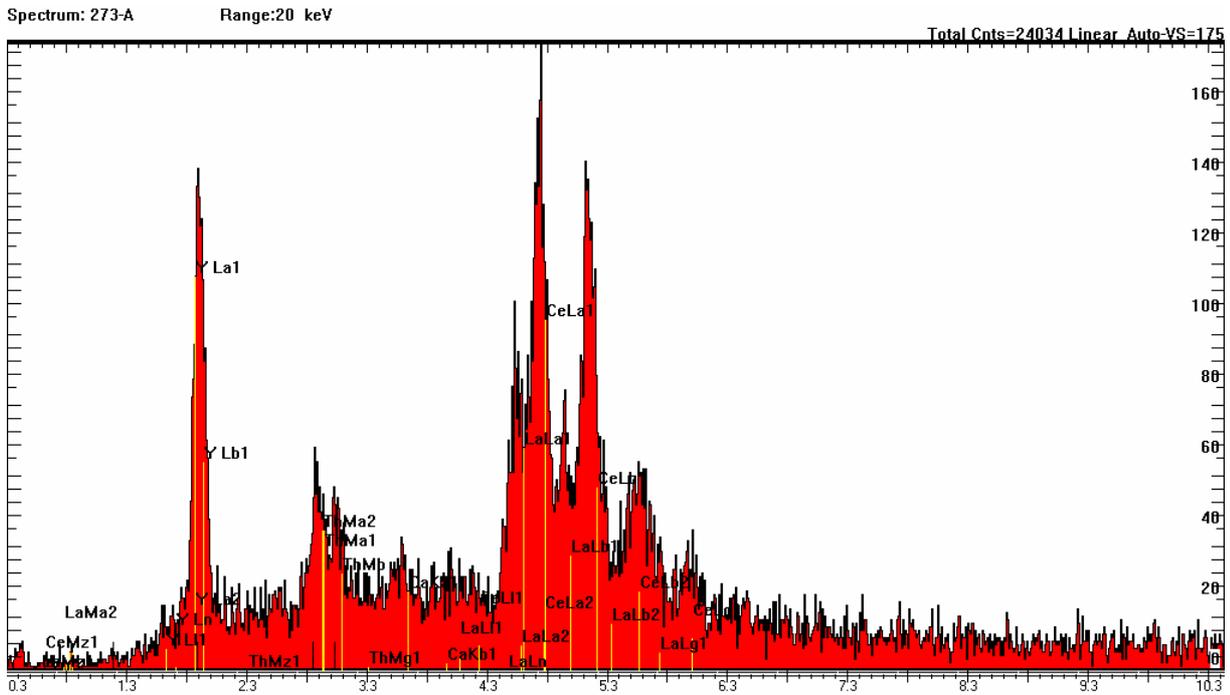
## Zöschchen



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Sediment-Probe 272 (Markierung b). Es handelt sich hier um ein ca.  $17 \times 17 \mu\text{m}$  großes Monazitkörnchen (Bildmitte, mittelgraues Korn). Die hellen Flecken in der REM-Aufnahme sind auf Aufladungseffekte an der Probenoberfläche zurückzuführen. Das Sternspurmuster (Autoradiogramm, obere Bildmitte) hat eine geringe Spurdichte und ist asymmetrisch ausgebildet.

# Tafel 160

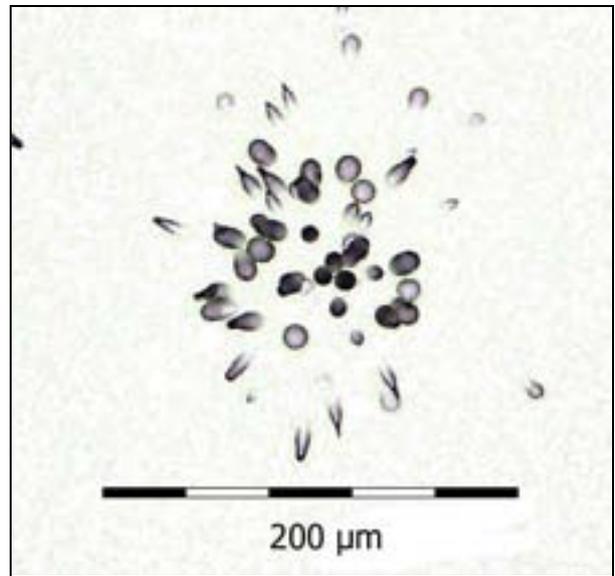
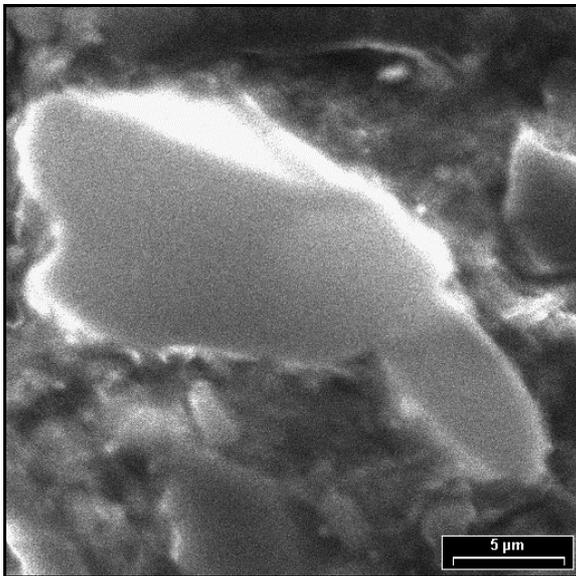
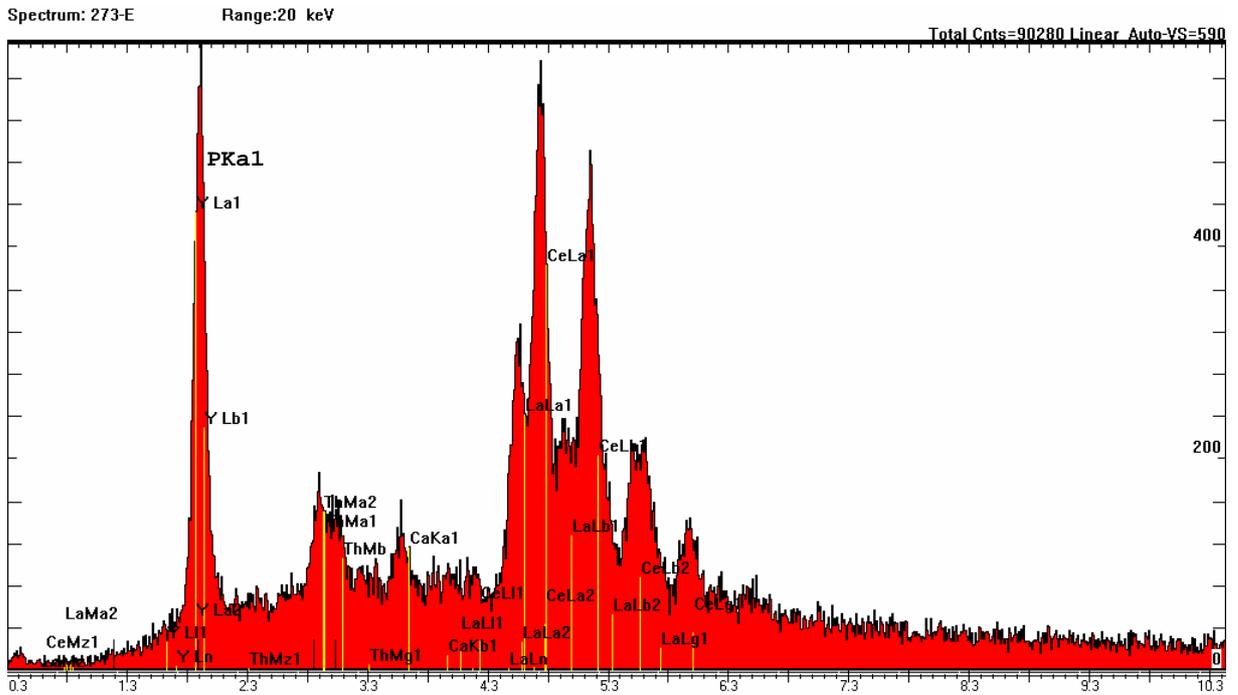
## Zöschchen



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Sediment-Probe 273 (Markierung a). Es handelt sich hier um ein ca.  $9 \times 19 \mu\text{m}$  großes Monazitkörnchen (Pfeil, mittelgraues Korn). Die hellen Flecken um dieses Körnchen herum sind Ausdruck von Aufladungseffekten bei der Probenuntersuchung.

# Tafel 161

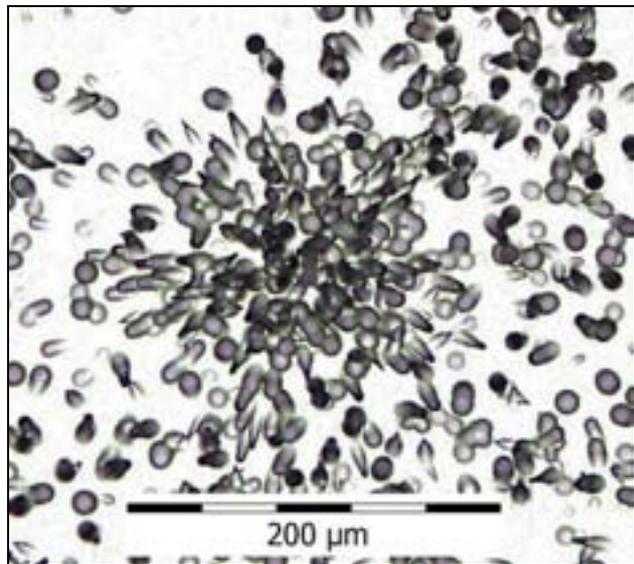
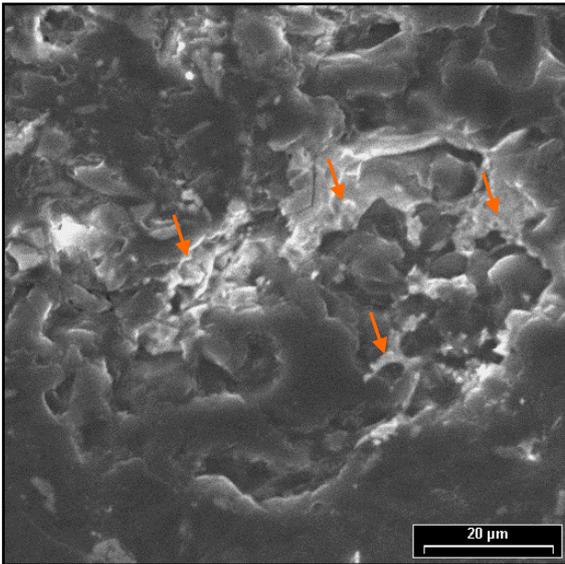
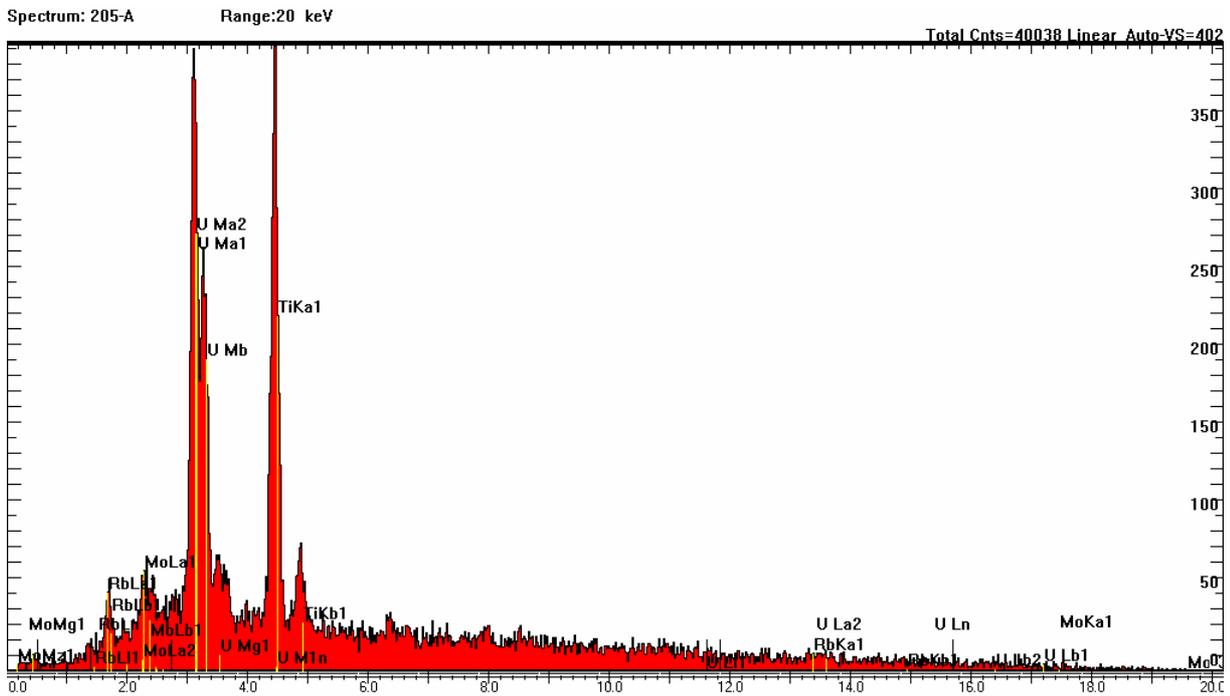
## Zöschchen



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens der Bachsediment-Probe 273 (Markierung e). Es handelt sich hier um ein ca.  $9 \times 34 \mu\text{m}$  großes Monazitkörnchen (Bildmitte, mittelgraues Korn).

## Tafel 162

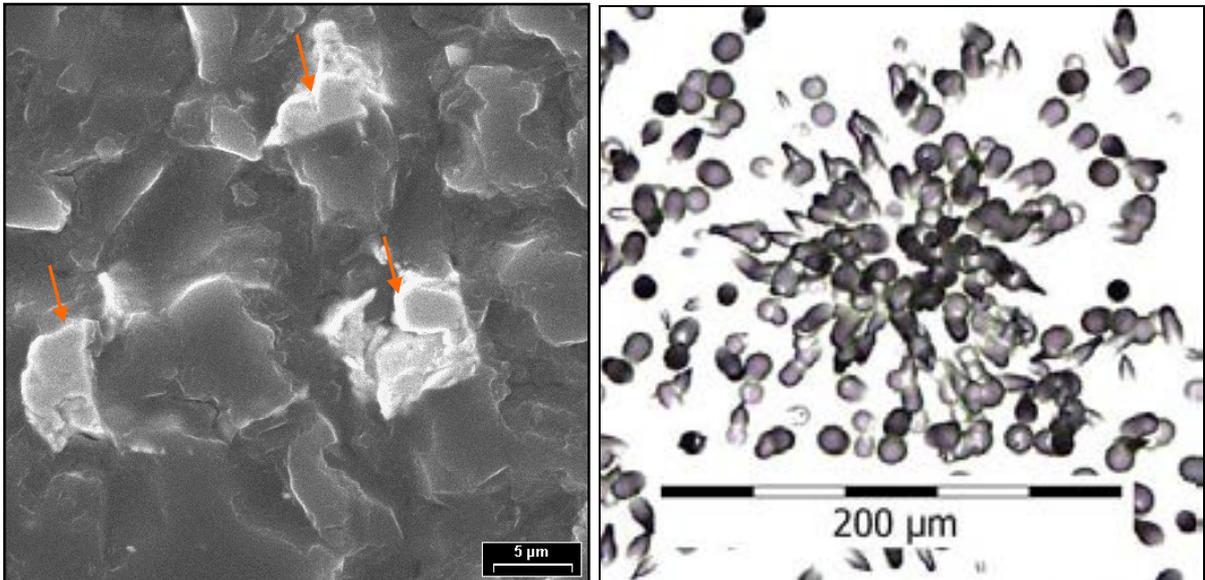
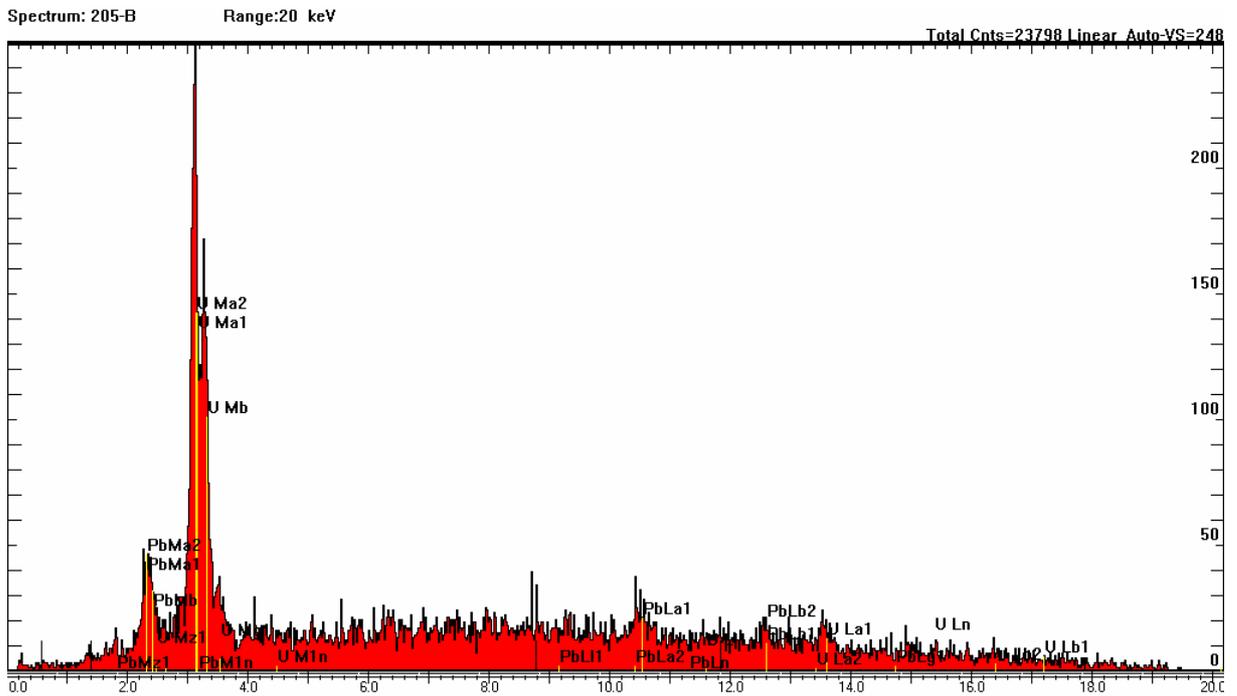
### Blind River-Konglomerat



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens aus dem Blind River-Konglomerat, Probe 205 (Markierung a). Das Heiße Teilchen besteht aus Brannerit. An den durch die Pfeile markierten Punkten der Probenoberfläche wurden Uran und Titan gefunden. Wahrscheinlich handelt es sich um ein Branneritkörnchen, das wegen der aufgebrochenen Probenoberfläche im REM-Bild nicht als solches zu erkennen ist.

# Tafel 163

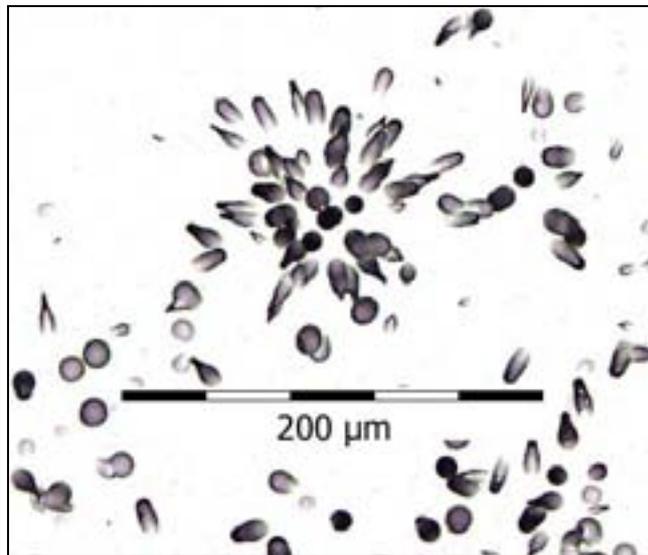
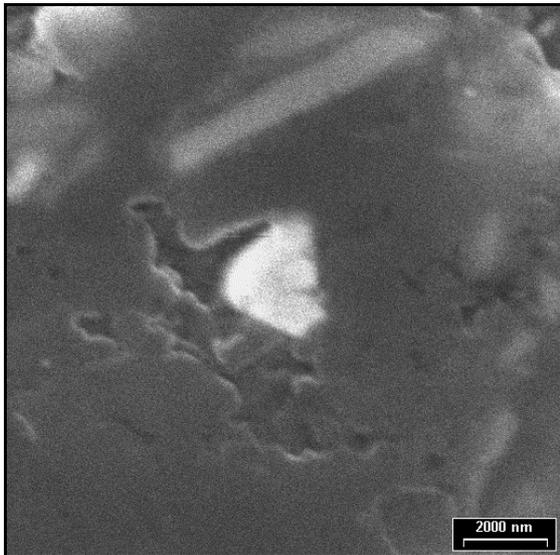
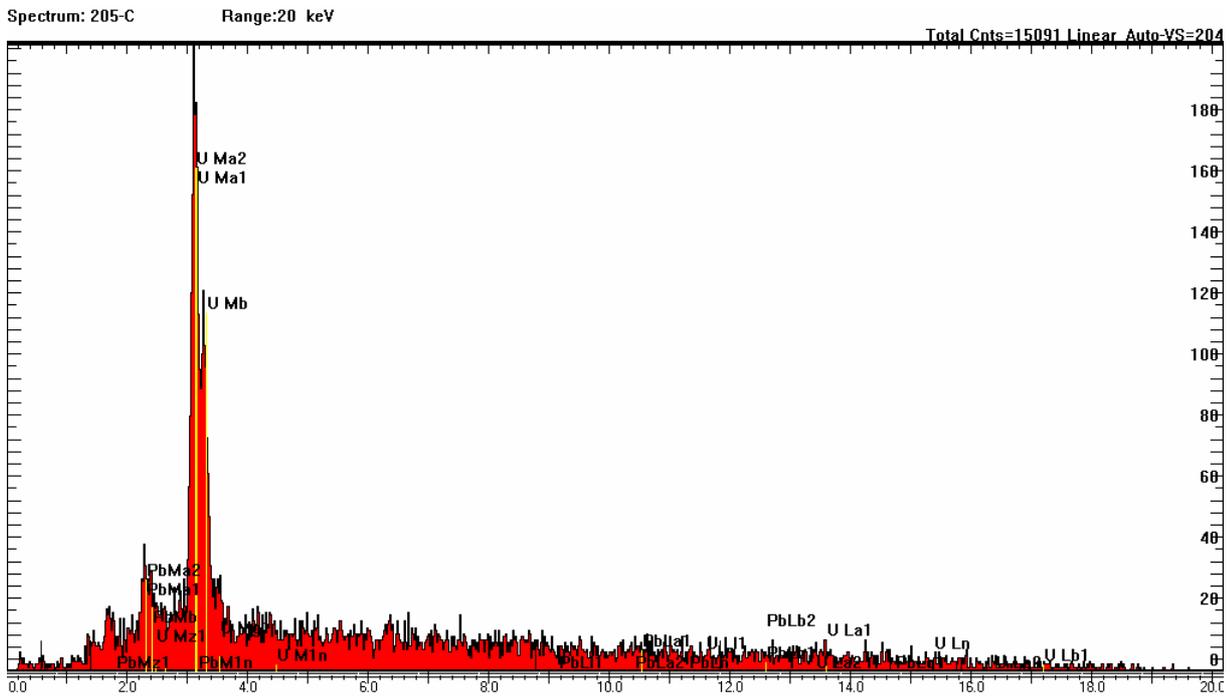
## Blind River-Konglomerat



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild von Heißen Teilchen aus dem Blind River-Konglomerat, Probe 205 (Markierung b). Die zwischen 4 und 8  $\mu\text{m}$  großen Heißen Teilchen (Pfeile) bestehen aus Uraninit. Es handelt sich um Einzelkörnchen.

# Tafel 164

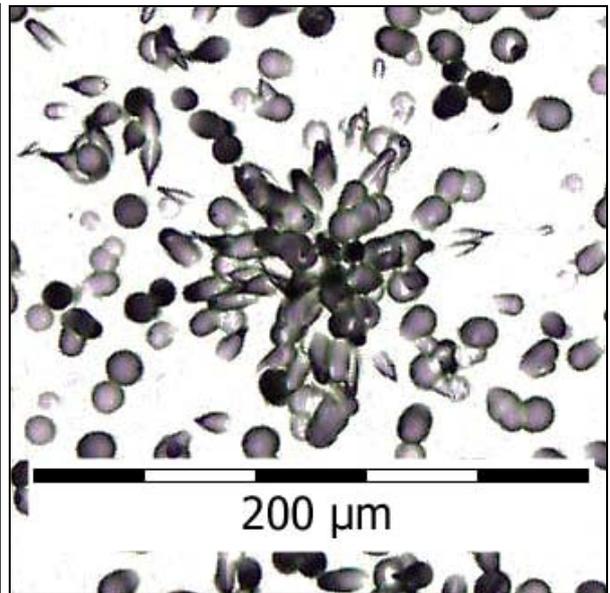
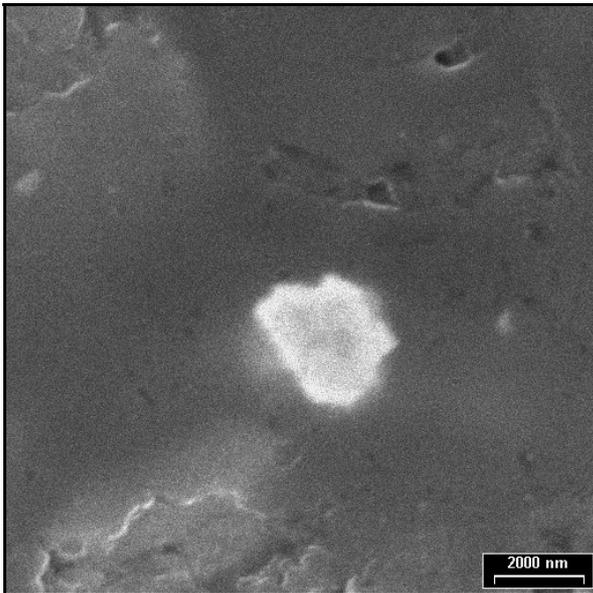
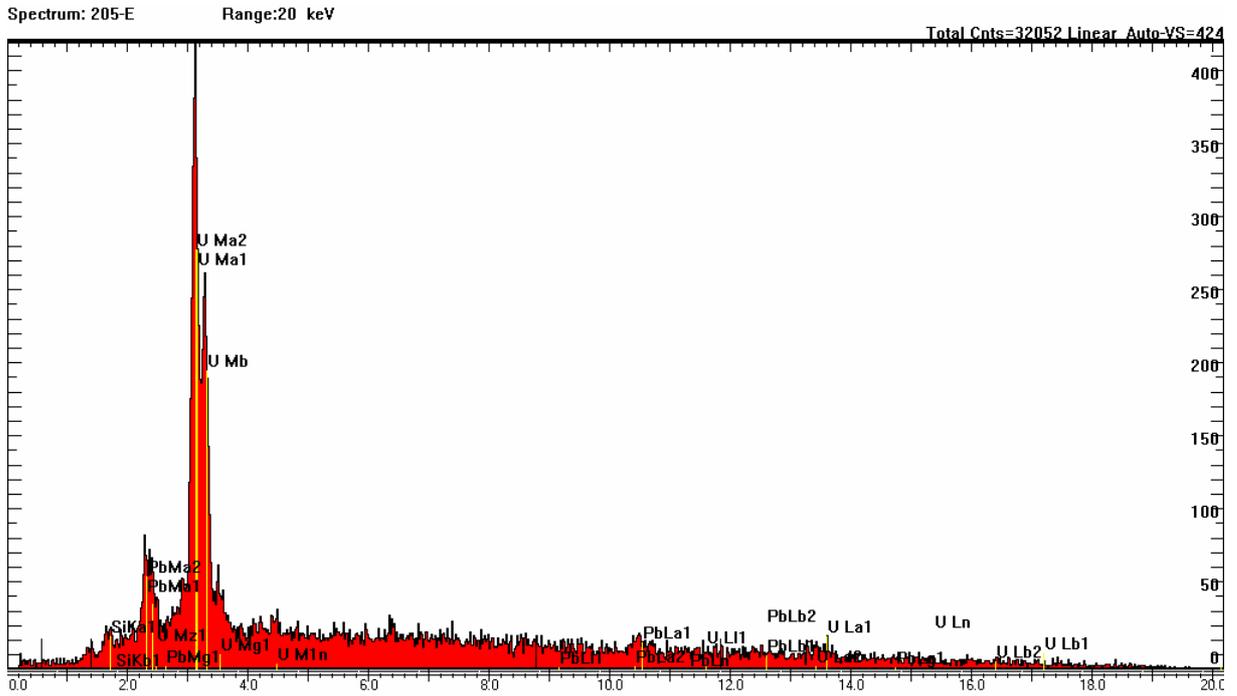
## Blind River-Konglomerat



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens aus dem Blind River-Konglomerat, Probe 205 (Markierung c). Das ca. 2 µm große Heiße Teilchen (Bildmitte, weißes Körnchen) besteht aus Uraninit. Im EDX-Spektrum findet sich ein deutlicher Uranpeak.

# Tafel 165

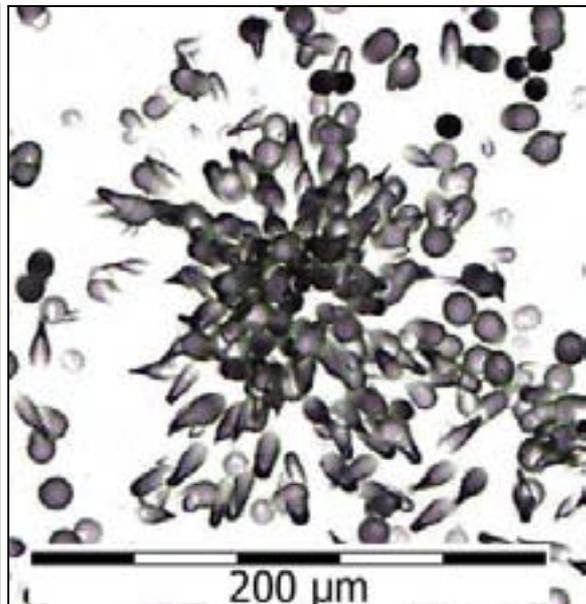
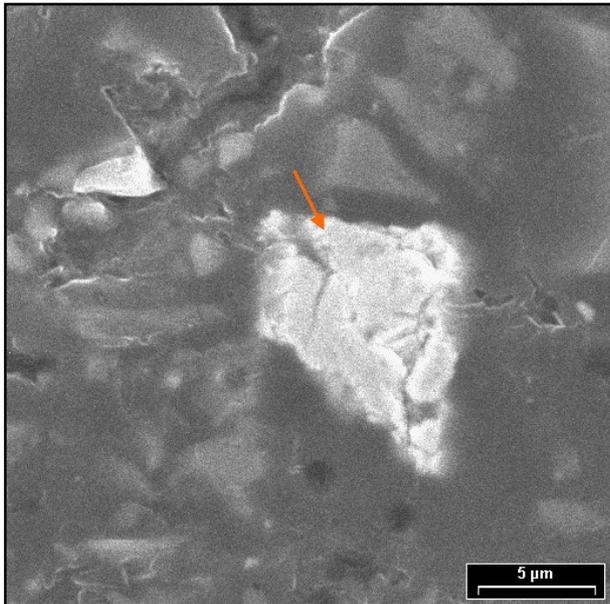
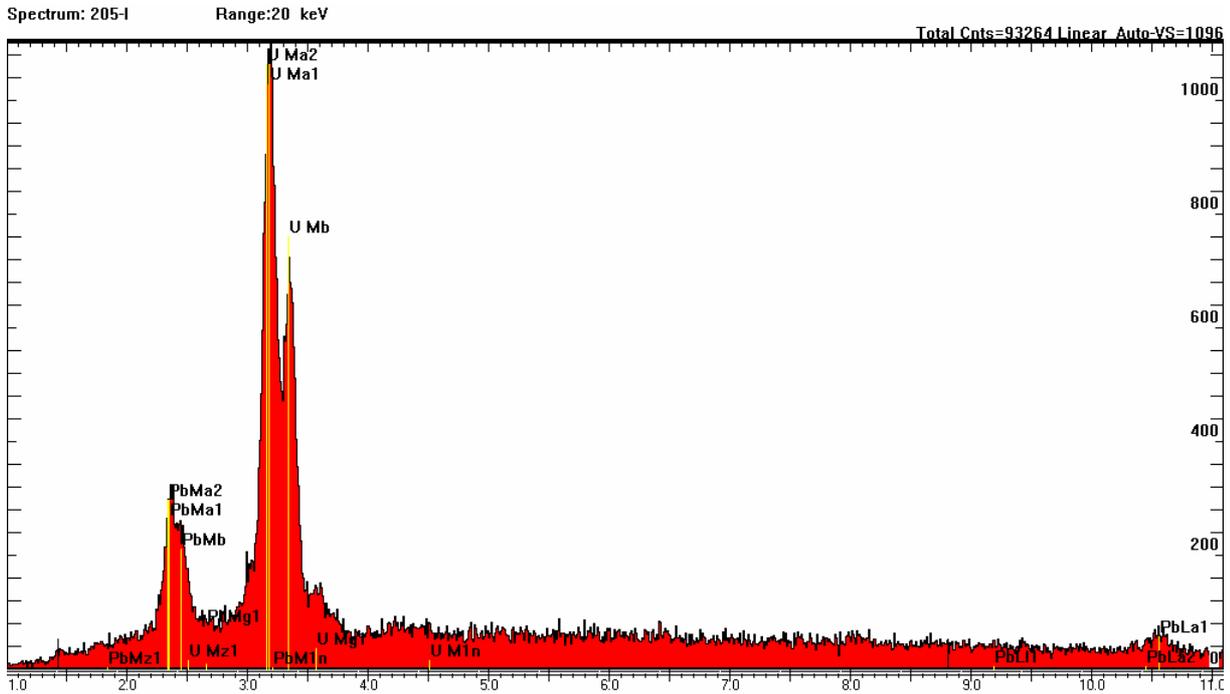
## Blind River-Konglomerat



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens aus dem Blind River-Konglomerat, Probe 205 (Markierung e). Das ca.  $2 \times 3 \mu\text{m}$  große Heiße Teilchen (Bildmitte,) besteht aus Uraninit. Im EDX-Spektrum findet sich ein deutlicher Uranpeak.

# Tafel 166

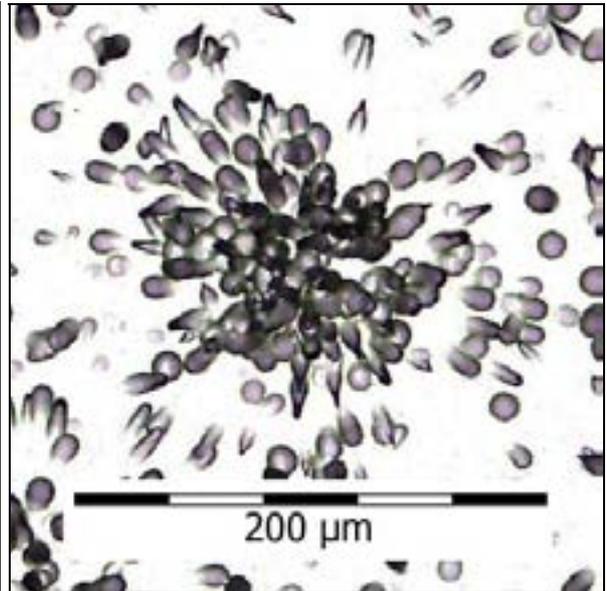
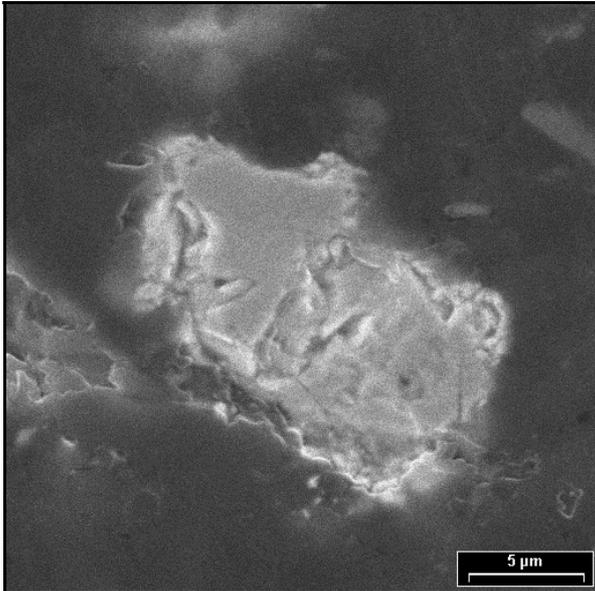
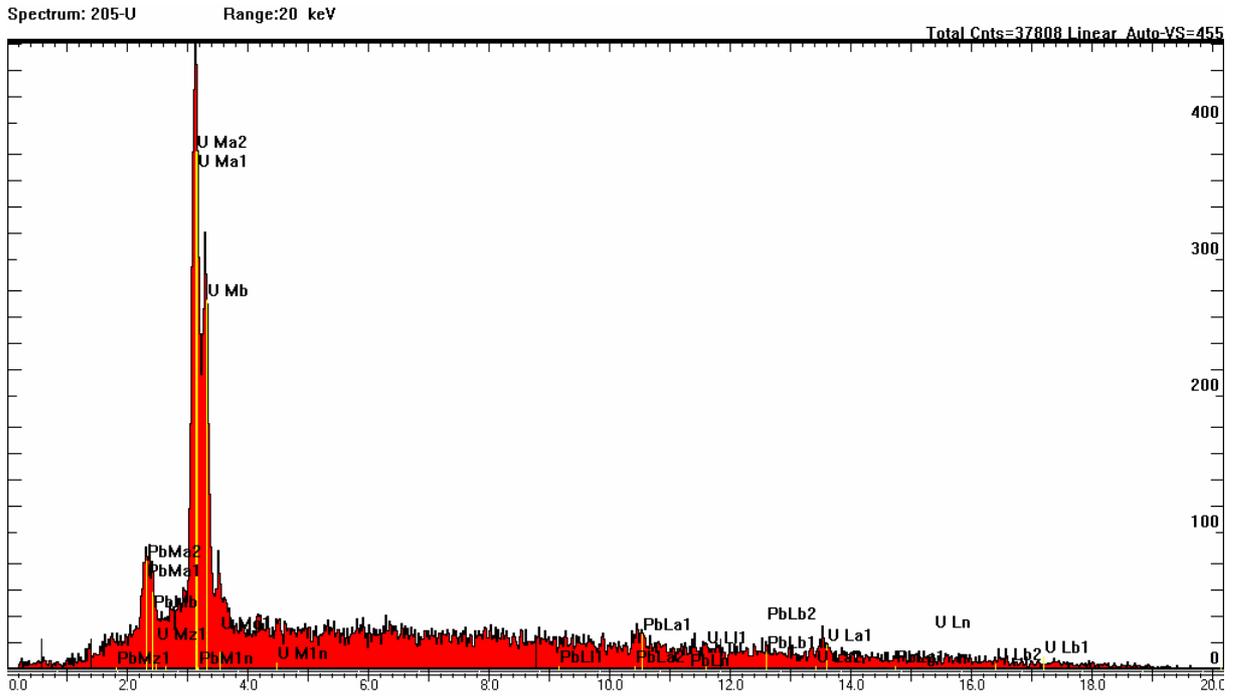
## Blind River-Konglomerat



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens aus dem Blind River-Konglomerat, Probe 205 (Markierung i). Das ca.  $7 \times 8 \mu\text{m}$  große Heiße Teilchen (Bildmitte, Pfeil) besteht aus Uraninit. Es handelt sich um ein Einzelkörnchen.

# Tafel 167

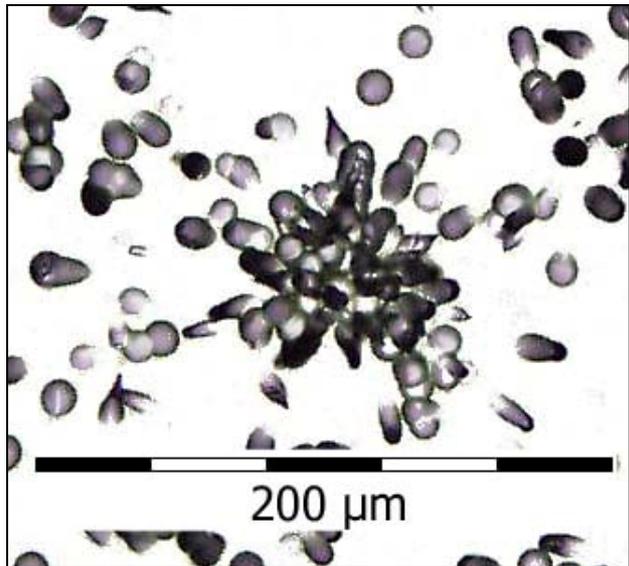
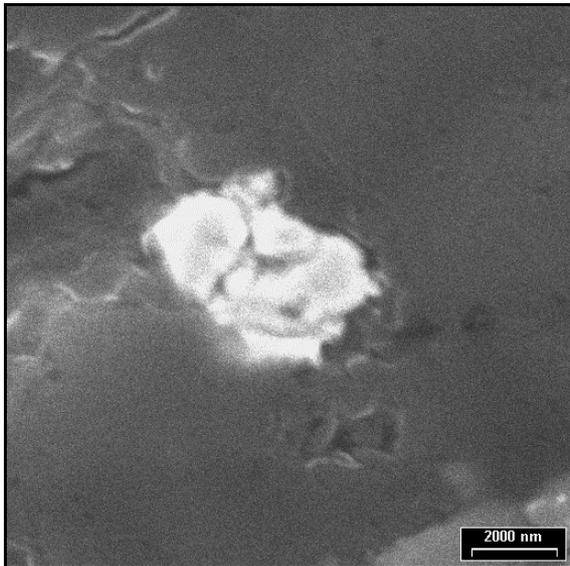
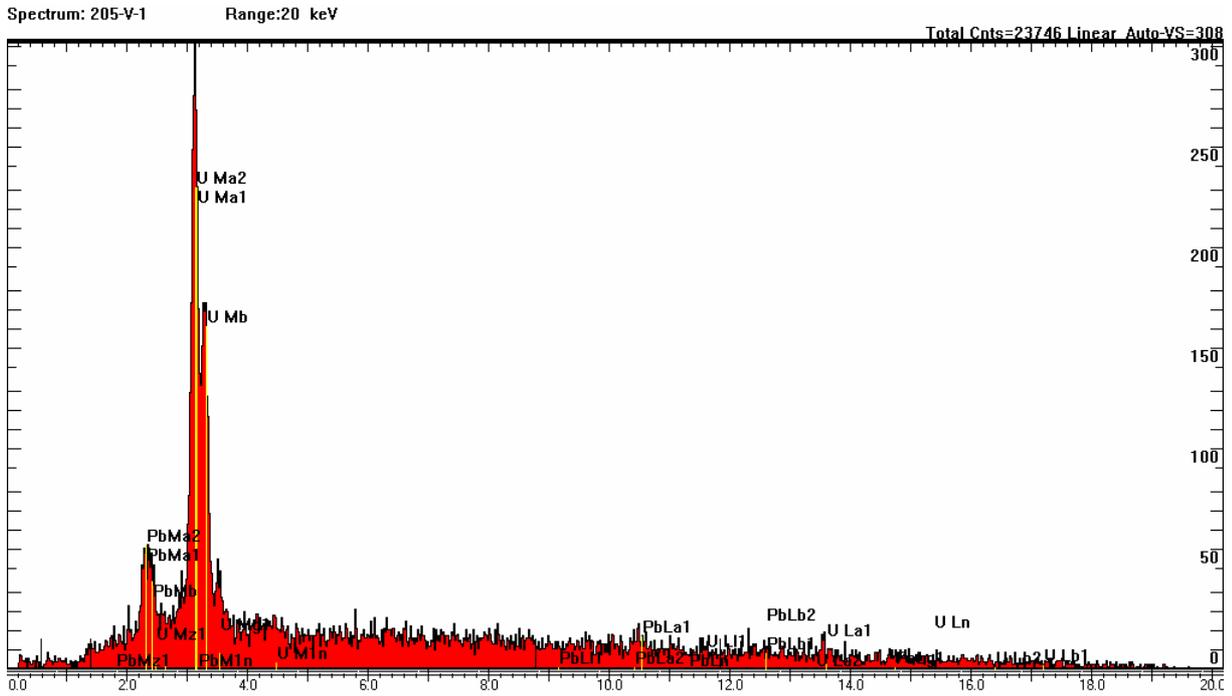
## Blind River-Konglomerat



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens aus dem Blind River-Konglomerat, Probe 205 (Markierung u). Das ca.  $9 \times 18 \mu\text{m}$  große Heiße Teilchen (Bildmitte, hellgraues Korn) besteht aus Uraninit. Es handelt sich um ein Einzelkörnchen.

# Tafel 168

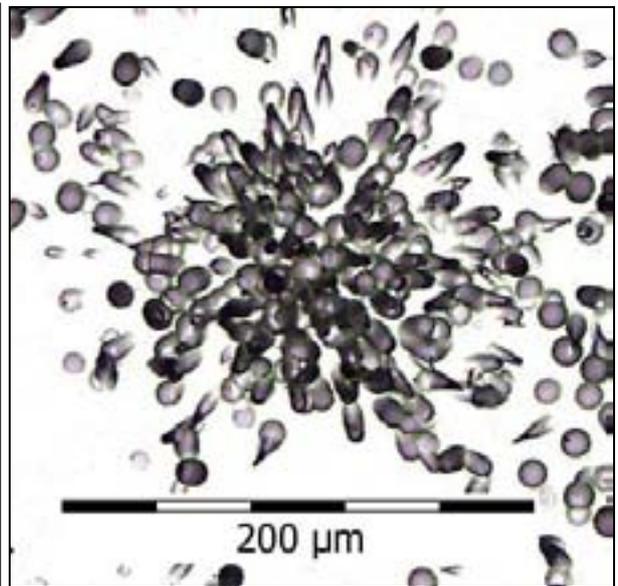
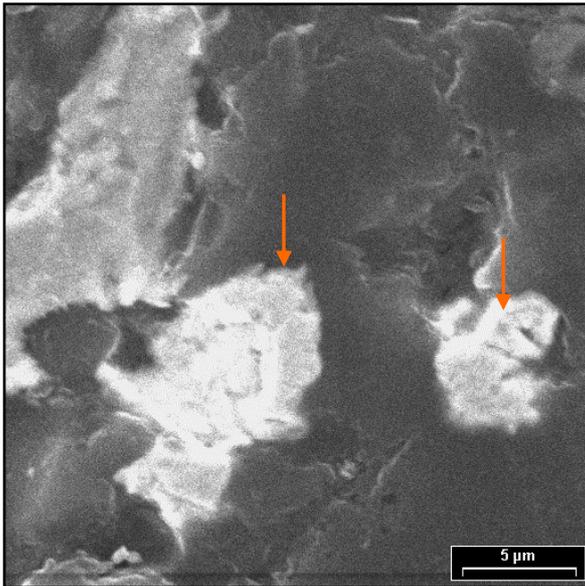
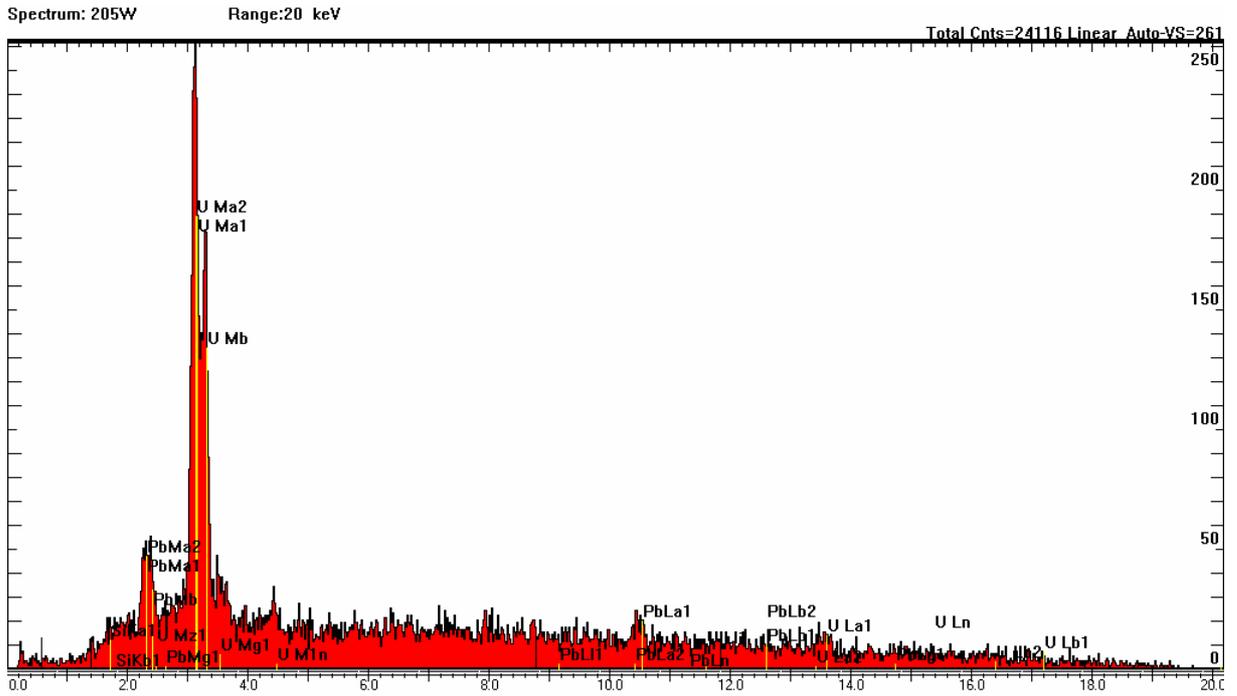
## Blind River-Konglomerat



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens aus dem Blind River-Konglomerat, Probe 205 (Markierung v). Das ca.  $3 \times 4 \mu\text{m}$  große Heiße Teilchen (Bildmitte, weißes Körnchen) besteht aus Uraninit . Es handelt sich um ein Einzelkörnchen.

# Tafel 169

## Blind River-Konglomerat

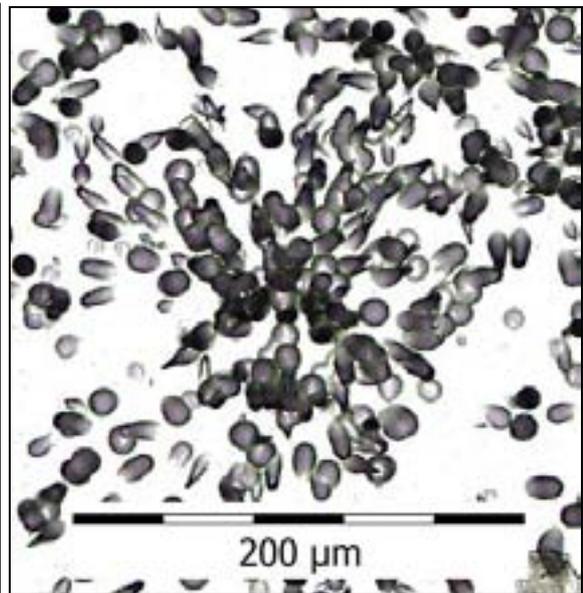
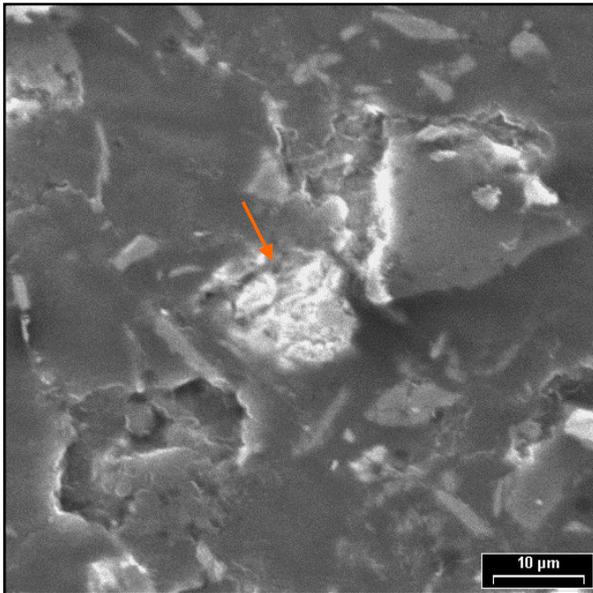
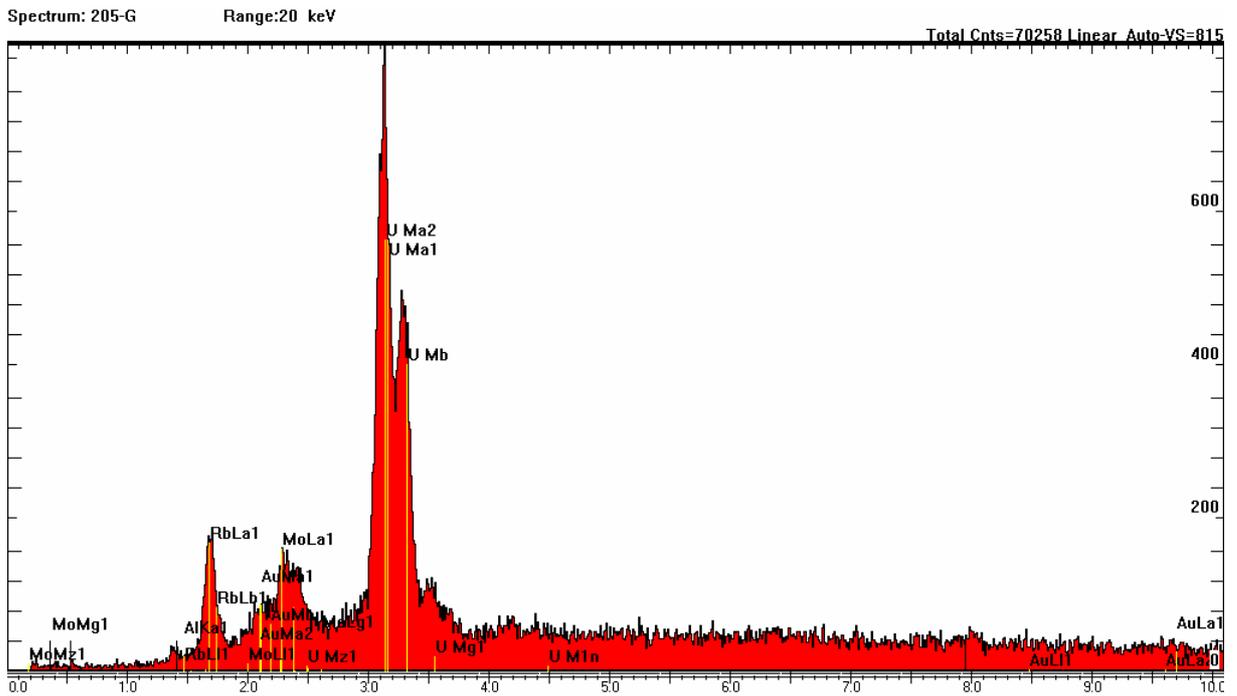


Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild von Heißen Teilchen aus dem Blind River-Konglomerat, Probe 205 (Markierung w). Die zwischen 6 und 13  $\mu\text{m}$  großen Heißen Teilchen (Pfeilspitzen) bestehen aus Uraninit. Im EDX-Spektrum findet sich ein deutlicher Uranpeak. Es handelt sich um zwei Einzelkörnchen.



# Tafel 171

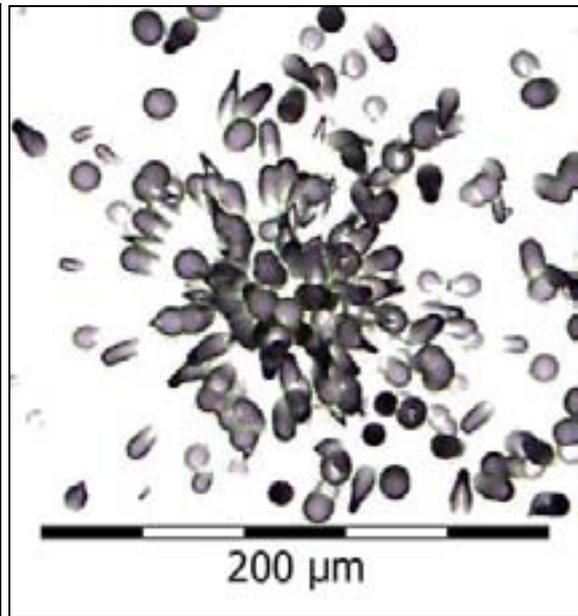
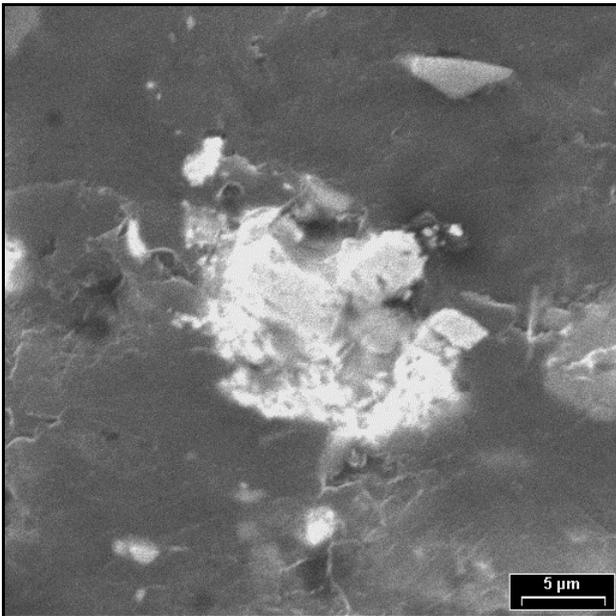
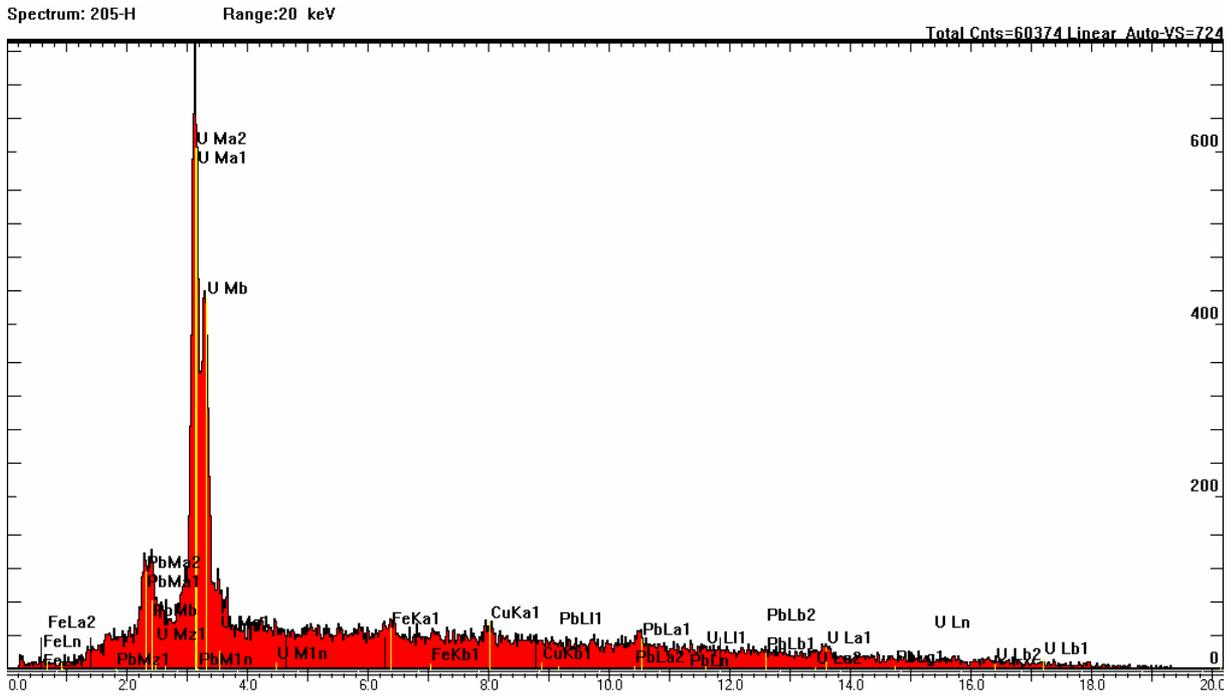
## Blind River-Konglomerat



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens aus dem Blind River-Konglomerat, Probe 205 (Markierung g). Das ca. 10  $\mu\text{m}$  große Heiße Teilchen (Bildmitte, Pfeilspitze) besteht aus Uraninit. Es handelt sich um ein Einzelkörnchen. Im EDX-Spektrum findet sich ein deutlicher Uranpeak. In der Umgebung dieses Körnchens kommen Mo, Au und Rb vor.

# Tafel 172

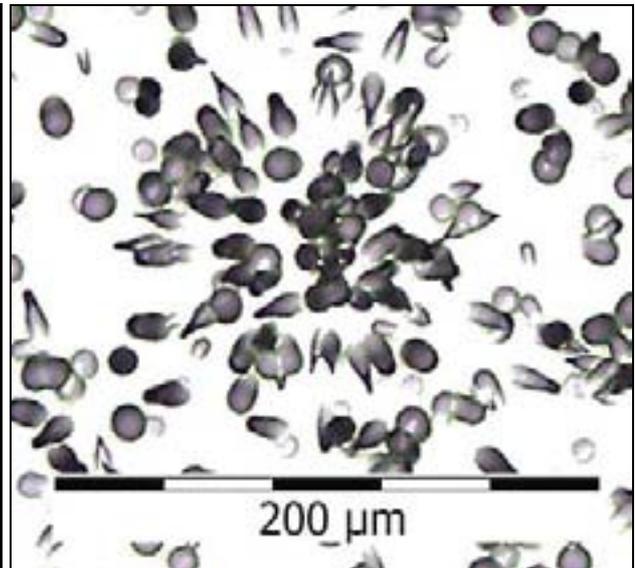
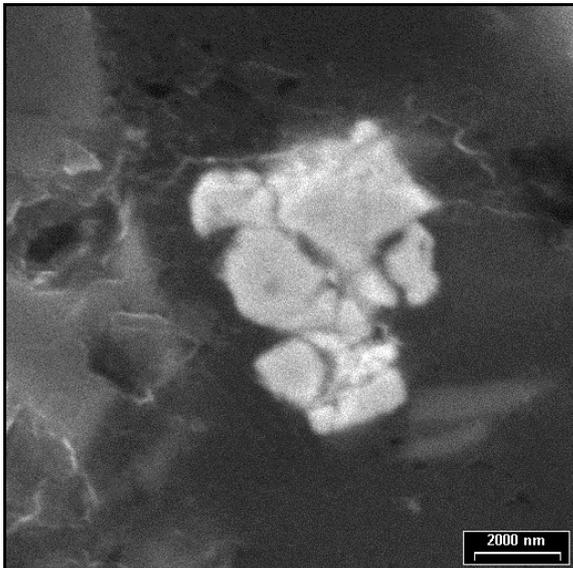
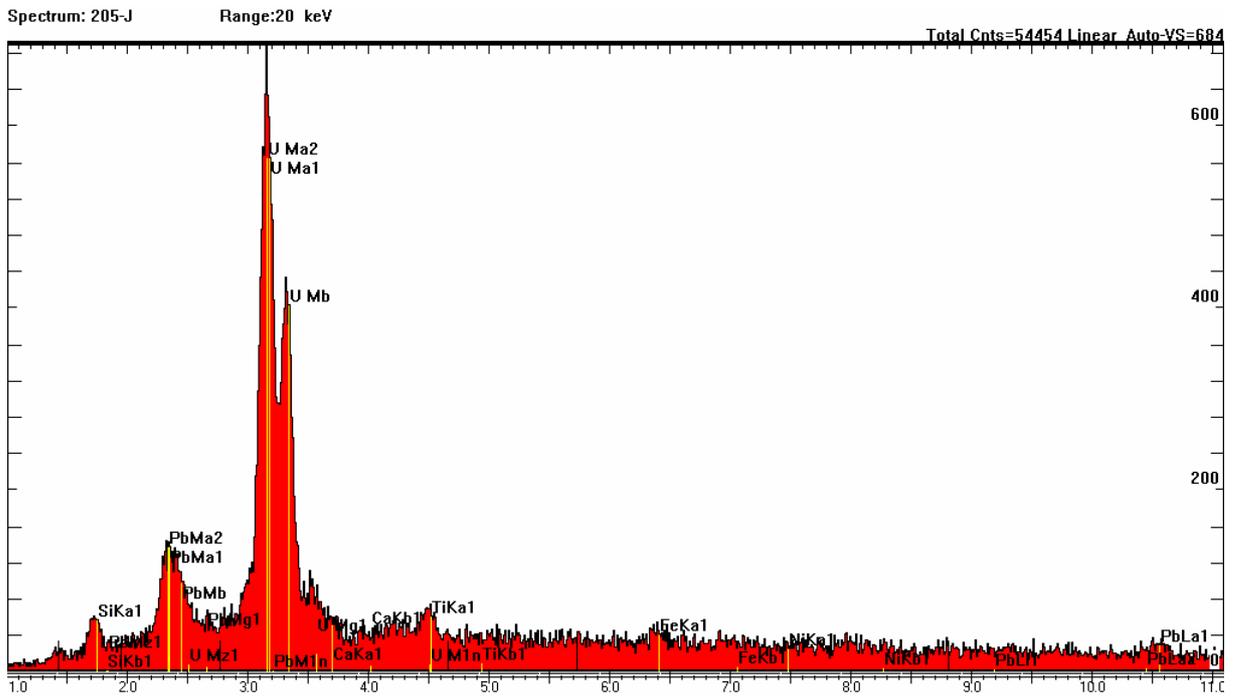
## Blind River-Konglomerat



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens aus dem Blind River-Konglomerat, Probe 205 (Markierung h). Das ca. 12×14 µm große Heiße Teilchen (Bildmitte, helles Korn) besteht aus Uraninit. Es handelt sich um ein Einzelkörnchen.

# Tafel 173

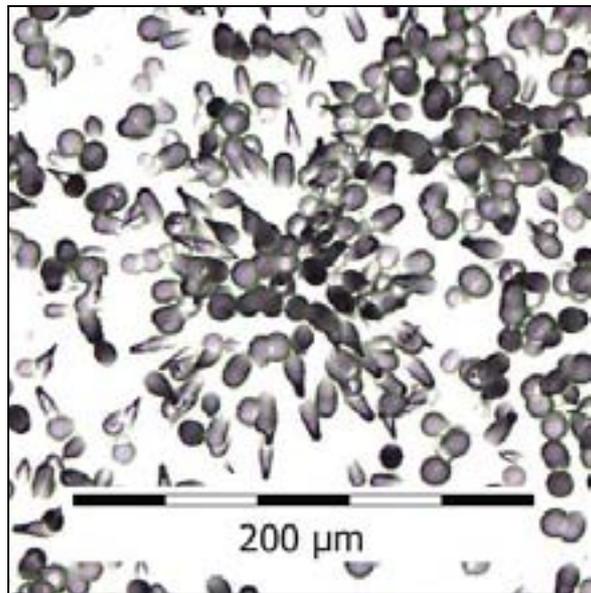
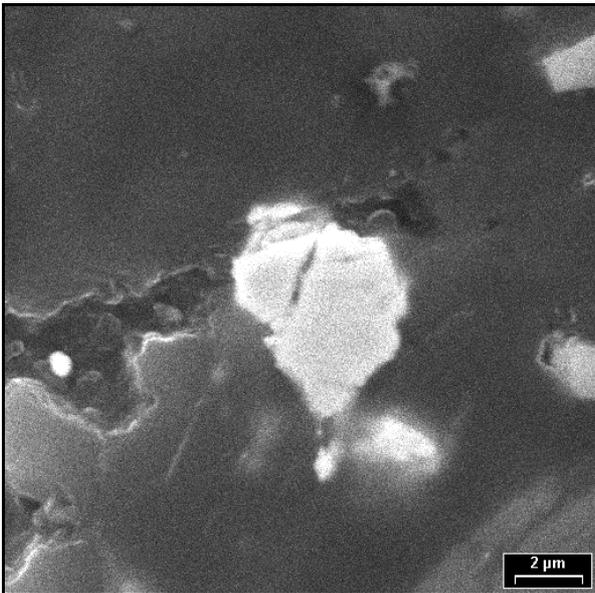
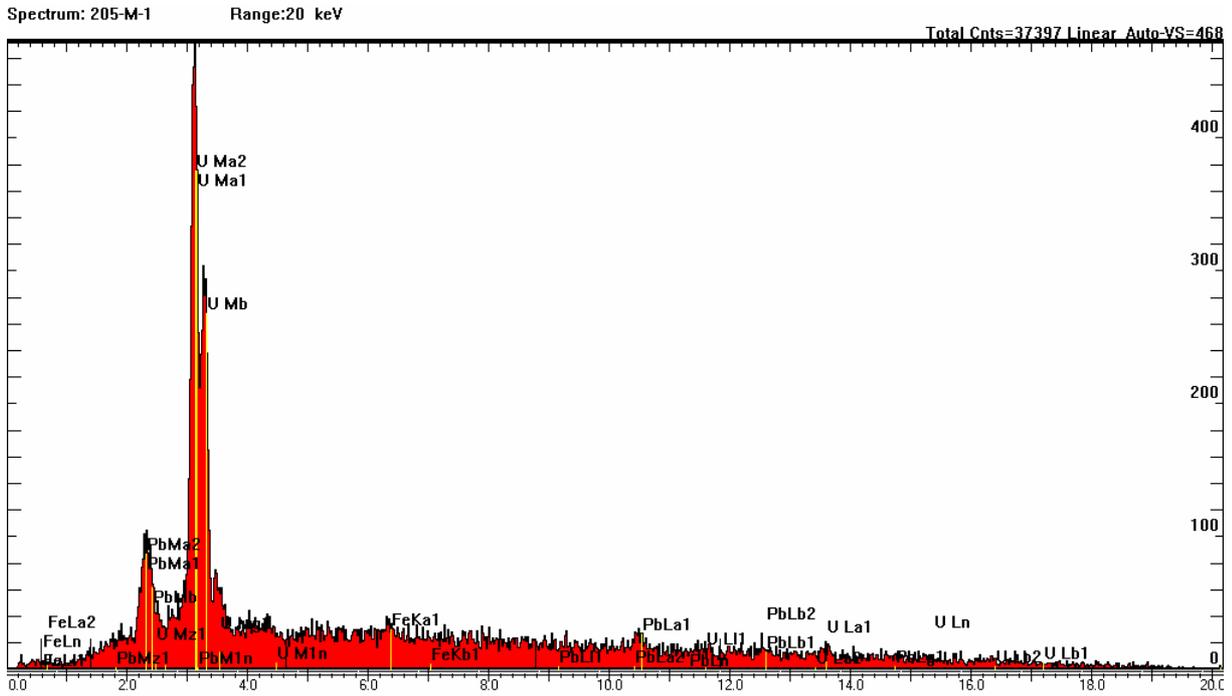
## Blind River-Konglomerat



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens aus dem Blind River-Konglomerat, Probe 205 (Markierung j). Das ca.  $5 \times 6 \mu\text{m}$  große Heiße Teilchen (Bildmitte, weißes Körnchen) besteht aus Uraninit. Es handelt sich um ein Einzelkörnchen.

# Tafel 174

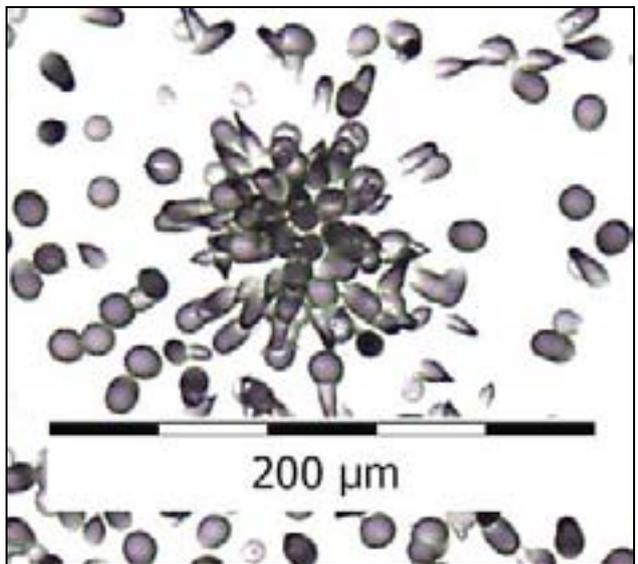
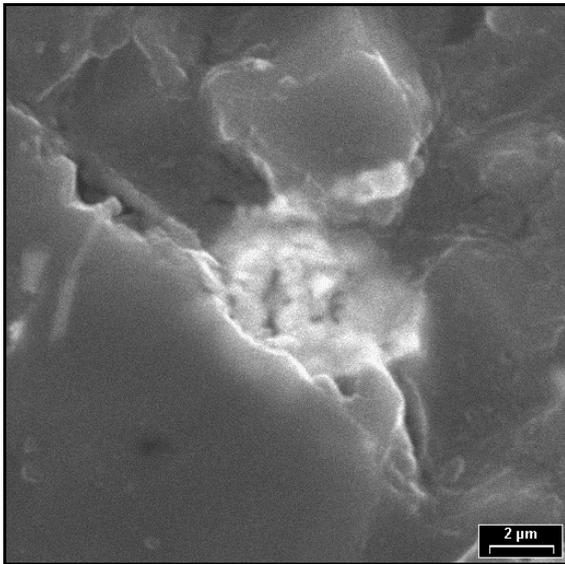
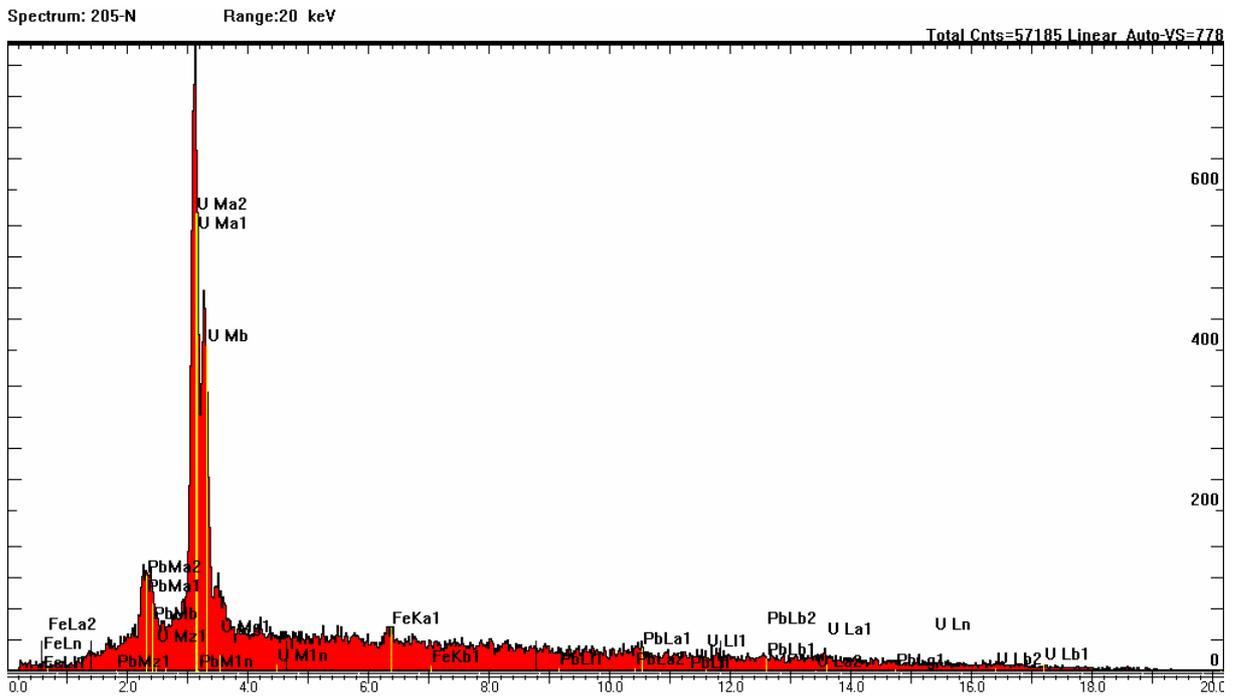
## Blind River-Konglomerat



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens aus dem Blind River-Konglomerat, Probe 205 (Markierung m). Das ca.  $4 \times 5 \mu\text{m}$  große Heiße Teilchen (Bildmitte, helles Körnchen) besteht aus Uraninit. Es handelt sich um ein Einzelkörnchen.

# Tafel 175

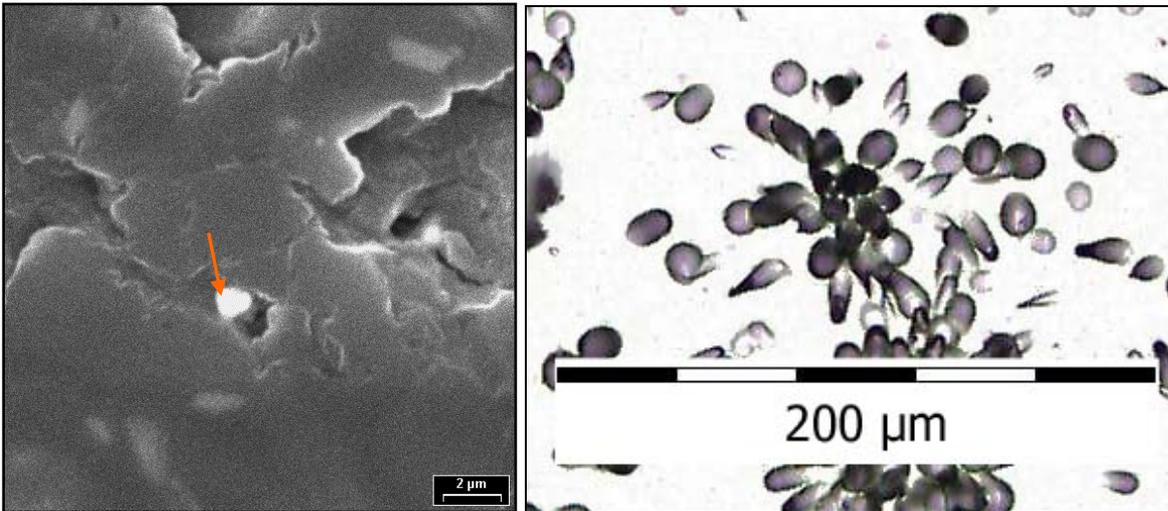
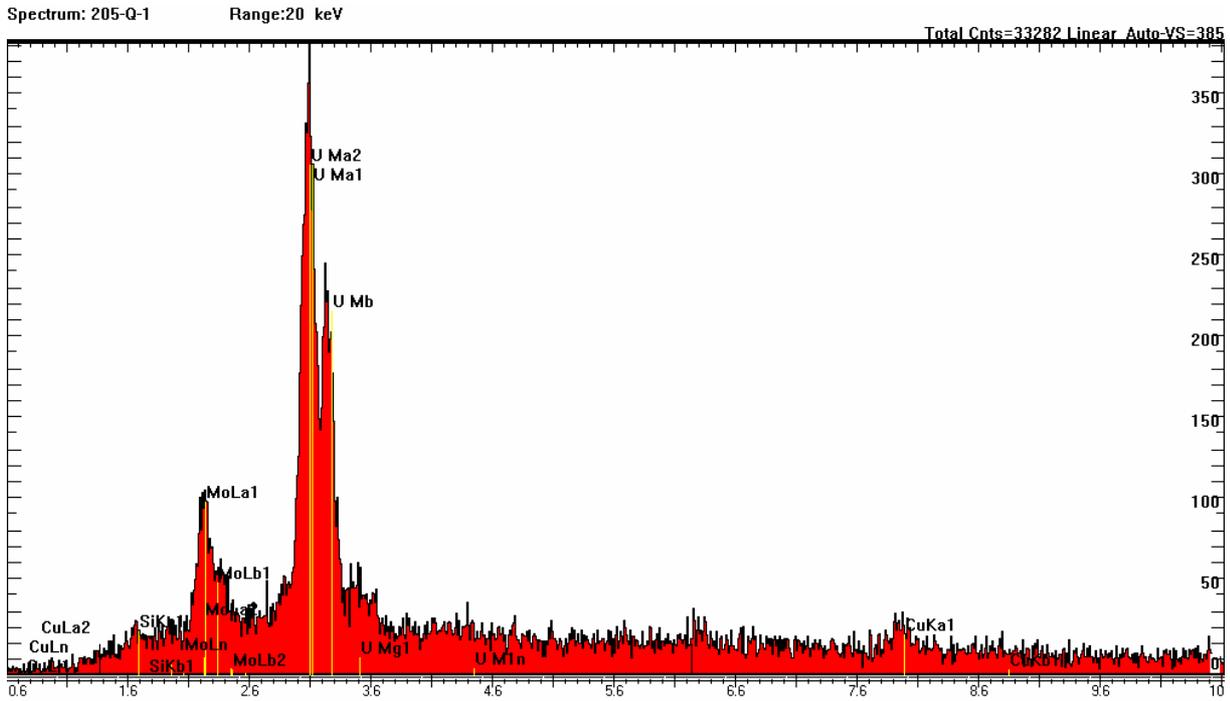
## Blind River-Konglomerat



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens aus dem Blind River-Konglomerat, Probe 205 (Markierung n). Das ca.  $4 \times 5 \mu\text{m}$  große Heiße Teilchen (Bildmitte, heller Bereich) besteht aus Uraninit. Im EDX-Spektrum findet sich ein deutlicher Uranpeak. Es handelt sich um ein Einzelkörnchen.

# Tafel 176

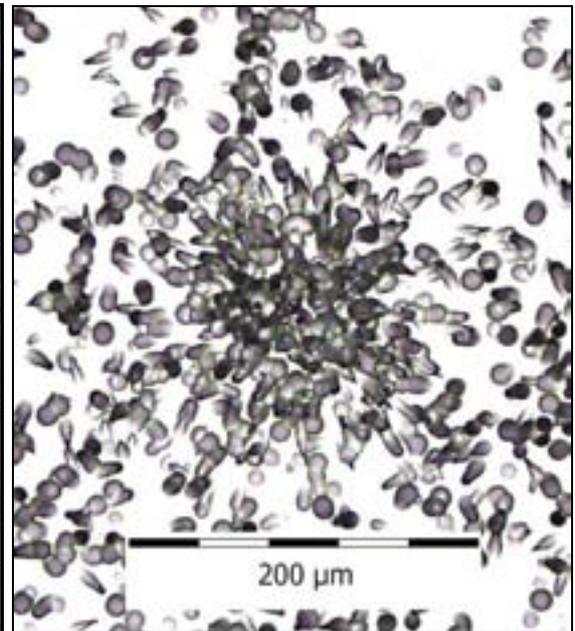
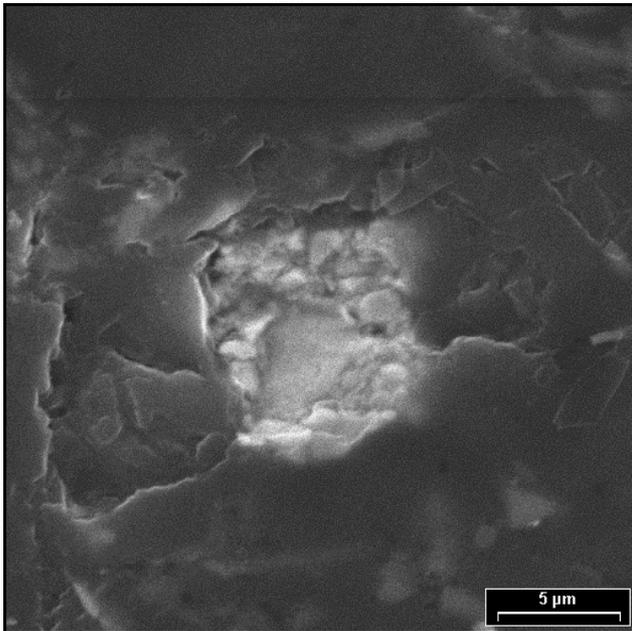
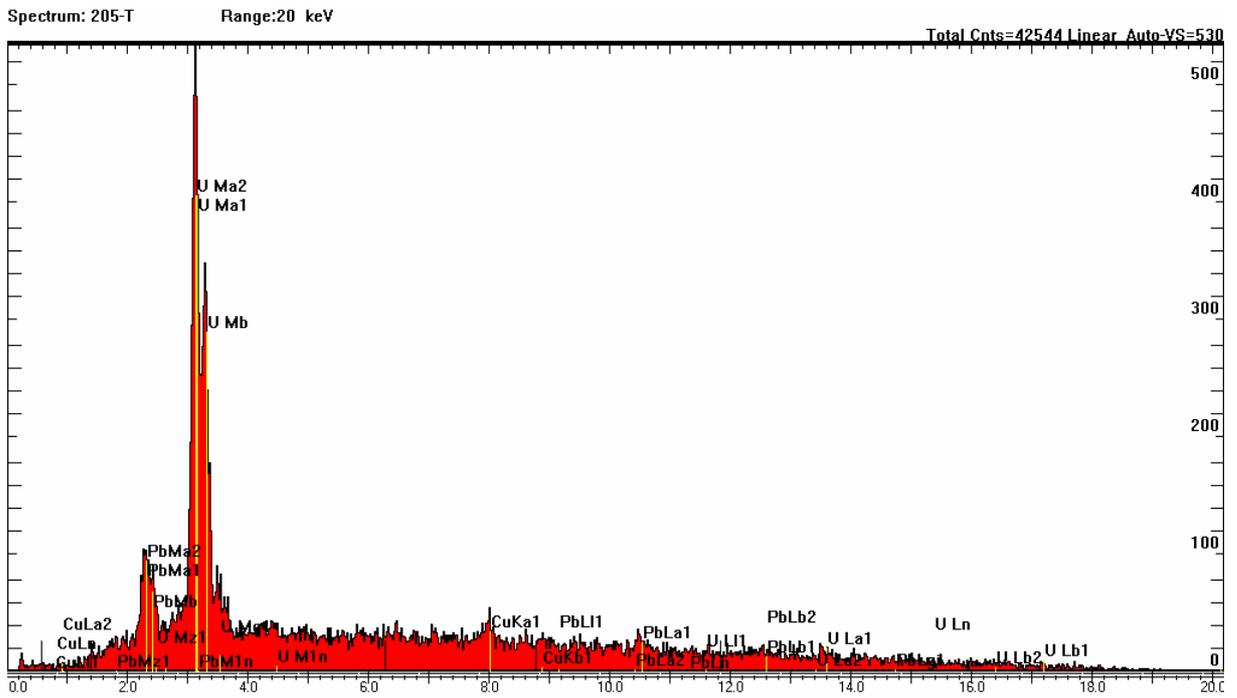
## Blind River-Konglomerat



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens aus dem Blind River-Konglomerat, Probe 205 (Markierung q). Das um 1 µm große Heiße Teilchen (Bildmitte, Pfeilspitze) besteht aus Uraninit. Es handelt sich um ein winziges Einzelkörnchen. In der Umgebung dieses Körnchens kommen Mo und Cu vor.

# Tafel 177

## Blind River-Konglomerat



Spektrum, REM-Aufnahme und Spurbild eines Heißen Teilchens aus dem Blind River-Konglomerat, Probe 205 (Markierung t). Das ca.  $8 \times 8 \mu\text{m}$  große Heiße Teilchen (Bildmitte, hellgraues Körnchen) besteht aus Uraninit. Es handelt sich um ein Einzelkörnchen.