

Aus der Bundesforschungsanstalt für Ernährung, Institut für Strahlentechnologie, Karlsruhe

Die Plutonium-Alpha-Aktivität von Lebensmitteln

Von O. Frindik und J. F. Diehl

Einleitung

In einer vorausgehenden Mitteilung¹⁾ wurde über die Gesamt-Alpha-Aktivität von Lebensmitteln berichtet. Ferner wurde dargelegt, daß die Überwachung der Lebensmittelradioaktivität künftig in verstärktem Maße die bei der Gewinnung von Kernenergie verwendeten und erzeugten Radionuklide berücksichtigen sollte. Die Bestimmung der Gesamt-Alpha-Aktivität kann zwar eine ja—nein Aussage über die Kontamination durch Alphastrahler liefern, sie ermöglicht jedoch bei einem positiven Befund keine Aussage über das Vorhandensein bestimmter Radionuklide. Von den alphastrahlenden Nukliden kommt vor allem den verschiedenen Isotopen des Plutoniums Bedeutung zu — sowohl wegen dessen steigender Bedeutung bei der Kernenergiegewinnung als auch wegen seiner besonderen Giftigkeit.

Die Lebensmittel in der BRD wurden bisher weder routinemäßig, wie in den USA²⁾, noch in nennenswertem Umfang vereinzelt auf Plutonium untersucht. In der vorliegenden Arbeit wird über Plutoniumbestimmungen an einigen Einzellebensmitteln und an Ge-

samtdiät berichtet. Um die allgemeine Lage besser beurteilen zu können, wurden einige weitere biologische Proben untersucht und die Ergebnisse den an Lebensmitteln gefundenen gegenübergestellt.

Da der Plutoniumpegel in biologischem Material unserer Umwelt außerordentlich niedrig ist, erlaubt nur eine besonders empfindliche Meßmethode den Nachweis. Das hier beschriebene Verfahren gestattet noch die Erfassung von ca. 5 fCi (d. h. $5 \cdot 10^{-15}$ Ci) ^{236}Pu , entsprechend $9 \cdot 10^{-18}$ g Plutonium.

Material und Methode

Die für die Untersuchungen ausgewählten Einzel-Lebensmittel wurden in haushaltsüblicher Weise gereinigt, und der eßbare Anteil wurde bei 400° C Ofentemperatur wie beschrieben³⁾ trocken verascht. Weizen wurde nur gewaschen, Kartoffeln wurden gepellt, Äpfel und Birnen nach dem Waschen und Abtrocknen entkernt. Tägliche Gesamtnahrung wurde in der beschriebenen Weise gesammelt¹⁾, homogenisiert und im hochoffenen Mixer mit den Getränken vermischt. Kiefernnadeln wurden direkt von Bäumen gepflückt

und ungewaschen in der gleichen Weise verascht wie die Lebensmittel. Die Aschen wurden gesiebt (0,315 mm Maschenweite); vorhandene Siebrückstände wurden gemahlen und erneut gesiebt.

Von den für die Pu-Bestimmung erprobten analytischen Methoden⁴⁻⁸⁾ hat sich für Lebensmittel die von *Schüttelkopf*⁷⁾ beschriebene als am geeignetsten erwiesen. Sie ist hochspezifisch für Plutonium und ist am wenigsten matrixabhängig. Auch diese Methode mußte jedoch in einigen Punkten modifiziert werden. Insbesondere führte die Naßveraschung mit HNO₃ (zur Entfernung von kleinsten Kohlenstoffresten aus der vorherigen Trockenveraschung) bei Kernobstaschen zu heftigen Abbränden beim Eindampfen.

Kurz zusammengefaßt besteht die Methode aus folgenden Schritten: Abtrennung aller säurelöslichen Mineralstoffbestandteile der Asche und trockene Nachveraschung des unlöslichen Restes bei 600 bis 700° C; Abrauchen der Kieselsäure mit Flußsäure; bei calciumreichen Proben anschließend eine Phosphatfällung.

Bei der Methode nach *Talvitie*⁹⁾ werden Uran und Thorium nur mit unterschiedlichem Erfolg von Plutonium abgetrennt. Die gemeinsame elektrolytische Abscheidung führt zu einer erhöhten Selbstabsorption des Meßpräparates und verursacht eine wesentlich schlechtere Auflösung des Alphaspektrums.

Als innerer Standard wurde Plutonium-236 verwendet. Die Biosphäre ist praktisch frei von diesem Isotop, das eine relativ kurze Halbwertszeit (2,8 Jahre) besitzt. Der zu analysierenden Probe in gewünschter Menge zugesetzt, läßt sich dieses Isotop von den bereits in der Natur vorkommenden anderen Plutoniumisotopen durch Alpha-Spektrometrie gut unterscheiden. Zweckdienlicher Weise sollte die Aktivität von Plutonium-236 und die des zu analysierenden Isotops bis herab zu ungefähr 1 pCi etwa gleicher Größenordnung sein. Bei Zusatz zu geringer Aktivitäten sind zu lange Meßzeiten erforderlich. Die Pu-236-Standards wurden vor ihrer Verwendung alphaspektrometrisch auf ihre Reinheit geprüft.

Durch Verwendung von ²³⁶Pu als innerem Standard entfällt die Bestimmung der chemischen Ausbeute in den verschiedenen Schritten des Analysenganges. Bei der Vielzahl der zu analysierenden Lebensmittel und der unvermeidlichen Matrixabhängigkeit der Ergebnisse ist dies eine große Erleichterung. Die Berechnung der Aktivität (A) des gesuchten Plutoniumisotops vereinfacht sich durch die Anwendung der bekannten ²³⁶Pu-Aktivität auf einen Peakflächenvergleich mit den notwendigen Korrekturen:

$$A = \frac{(G \pm f_G) - (U_G \pm f_{UG}) - (K \pm f_K)}{(I \pm f_I) - (U_I \pm f_{UI})} (S \pm f_S)$$

wobei G die Bruttoimpulszahl des zu bestimmenden Isotops, U die Impulszahl des Untergrundes im Spektralbereich von G, K die Impulszahlerhöhung von G (verursacht durch die Zugabe von ²³⁶Pu), S die Aktivität des Standards von ²³⁶Pu, I seine Gesamtimpulszahl und f (mit Indices) die jeweilige Streuung bedeuten. A wird in Aktivitätseinheiten von S ausgedrückt. Im Bereich niedriger Aktivitäten ist die Fehlerrechnung Voraussetzung für eine sinnvolle Interpretation der so berechneten Aktivitätswerte.

Zur Herstellung von möglichst quantitativen und selbstabsorptionsfreien Meßpräparaten wurde das Plutonium elektrolytisch in konischen Plexiglaszellen mit

montierbarem Boden (Kathode) abgeschieden. Als Kathode dienten kreisrunde walzpolierte austenitische Edelstahlplättchen (18 % Cr, 8 % Ni), die vorher chemisch gereinigt und elektrolytisch poliert⁹⁾ wurden. Die Anode war stets aus poliertem Platinblech, nicht rotierend, aber mindestens von 5fach größerer aktiver Fläche als die Kathode. Als Elektrolyt wurde Ammoniumsulfat verwendet¹⁰⁾. Die aktive Präparatfläche betrug 1,1 cm², die Stromdichte 0,5 A/cm² und die Elektrolysedauer 2 Stunden.

Die Elektrolysepräparate wurden mit einem Oberflächensperrschichtzähler (Ortec CA-028-400-100, mit 450 mm² aktiver Fläche) mit angeschlossenem ladungsempfindlichen Vorverstärker, Linearverstärker und 400-Kanal-Analysator alpha-spektrometriert. Alle Geräte wurden sorgfältig geerdet. Der Detektor befand sich in einer Vakuumkammer mit von *Sill*¹¹⁾ empfohlener Luftmenge (entsprechend 12 µg/cm² Absorber) zur Verhinderung von Detektorkontaminationen durch Rückstoßkerne. Der Detektor-Präparat-Abstand betrug meistens 0,8 ± 0,4 mm zur Erreichung des höchstmöglichen Zählerwirkungsgrades von 33,0 ± 0,5 %, ermittelt mit Hilfe von ²³⁹Pu, wobei wir den Luftdruck nicht über 20 mm Hg steigen ließen. Bei höherem Druck wurde eine merkliche Peakdrift festgestellt. Nur bei Energieeichungen oder Ausmessung von aktiveren (> 1 nCi) Präparaten wurde ein größerer Abstand verwendet. Ebenfalls zur Verhinderung der Detektorkontamination wurde an das Präparat in Bezug auf den Detektor eine Spannung von -9 V gelegt.

Die Güte eines Plutoniumpräparates ergibt sich in erster Linie aus der Halbwertsbreite seines Spektrumpeaks. Die mittlere Plutonium-236-Halbwertsbreite betrug 55 bis 75 keV bei Routinepräparaten und bei ca. 0,8 mm Präparat-Detektor-Abstand. Bei Vergrößerung des Abstandes auf 10 mm verbesserte sich die Halbwertsbreite um ca. 15 keV.

Die beschriebene Methode wurde an standardisierten Eichsubstanzen (Seetang „Seaweed AG-I-1“ der IAEA) überprüft. Die gefundenen Werte wichen um weniger als 1 % von den Sollwerten ab.

Ergebnisse und Diskussion

Außer dem seltenen primordialen Plutonium-244 in Bastnaesit ist auf der Erde nur eine unbedeutende Menge an natürlichem, durch Neutroneneinfang gebildeten Plutonium-239 zu finden^{12, 13)}. Das z. Z. in biologischem Material auffindbare Plutonium ist mit Sicherheit fast ausschließlich menschlicher Genesis, und zwar stammt das meiste ²³⁹Pu/²⁴⁰Pu aus den Nuklearwaffen und das meiste ²³⁸Pu aus einer verglühten Satellitenbatterie¹⁴⁾. Plutonium-239 und -240 differieren in der Alpha-Strahlenenergie etwa um 10 keV. Das Auflösungsvermögen des verwendeten Halbleiterdetektors beträgt bestenfalls 21 keV Halbwertsbreite, d. h. die beiden Alpha-Strahler sind unter diesen Bedingungen nicht zu unterscheiden. Da sie für unsere Betrachtungen so gut wie gleichwertig sind, wird im Folgenden nur der viel häufigere Partner ²³⁹Pu genannt.

Der Nullratenwert betrug im Spektralbereich des ²³⁹Pu-Peaks 0,04 ± 0,02 Impulse in der Stunde. Die daraus resultierende Nachweisgrenze, definiert als der 2 σ-Fehler der Nettrate⁹⁾, betrug (bei 30 Stunden

Meßzeit, 75 % chemischer Ausbeute und 33 % Zählerwirkungsgrad des Detektors) etwa 6 fCi pro Meßpräparat. Um im Einzelfall die jeweilige Nachweisgrenze zu ermitteln, muß für jeden Meßwert (z. B. bei Einzellebensmitteln, Tab. 1) der angegebene 1 σ -Fehler verdoppelt werden. Nur Werte, die über der so definierten Nachweisgrenze liegen, sind als statistisch gesichert und somit als ein Maß für das Vorhandensein von Plutonium-239 anzusehen. Demnach wurden nur in wenigen Proben signifikante Plutoniumgehalte gefunden (Tab. 1 und 2).

Das Plutonium findet glücklicherweise keinen leichten Eingang in die biologische Kette. Pflanzenwurzeln wei-

sen Plutonium mit einem Diskriminierungsfaktor von 10^4 — 10^6 ¹⁵⁾ zurück — das Plutonium verharrt an der Epidermis der Wurzeln. Ähnliche Verhältnisse herrschen auch an der Blattoberfläche bzw. an allen Außenflächen der Pflanze. Unter diesen Umständen überrascht es nicht, daß zwar in Weizen und in ungeschälten Äpfeln und Birnen Plutonium gefunden wurde, nicht dagegen in gepellten Kartoffeln (Tab. 1).

Auch vom tierischen Organismus wird Plutonium schwer resorbiert. Von den untersuchten Lebensmitteln tierischer Herkunft zeigte nur eine Probe von Rinderleber einen leicht erhöhten Plutoniumgehalt (Tab. 1).

Tabelle 1

Plutoniumaktivitäten von Lebensmittelaschen sowie daraus berechnete Aktivität pro kg Frischgewicht. Die Angaben stellen Einzelmeßwerte mit der Standardabweichung (1 σ) nach Poisson dar, inklusive Meßfehler. 1 fCi (femto-Curie) = 10^{-3} pCi = 10^{-15} Ci. Nur die mit * gekennzeichneten Werte liegen über der 2 σ -Nachweisgrenze. n.n. = nicht nachweisbar ($A \leq 0$).

Proben Nr.	Produkt (nur eßbarer Anteil)	Herkunft (Erntejahr)	Aktivität in fCi/g Asche		Aktivität in fCi/kg Frischgewicht	
			²³⁹ + ²⁴⁰ Pu	²³⁸ Pu	²³⁹ + ²⁴⁰ Pu	²³⁸ Pu
1	Rinderleber	Linkenheim (1973)	1,7 ± 1,1	3,0 ± 2,5	56 ± 36	98 ± 82
	Rinderleber	Linkenheim (1973)	1,2 ± 1,9	6,2 ± 3,6	39 ± 62	200 ± 120
	Rinderleber	Linkenheim (1973)	0,4 ± 5,1	n.n.	13 ± 170	n.n.
	Rinderleber	Linkenheim (1973)	3,8 ± 1,0*	n.n.	120 ± 31*	n.n.
2	Rindfleisch	Linkenheim (1973)	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.
	Rindfleisch	Linkenheim (1973)	0,7 ± 1,4	2,1 ± 2,4	26 ± 21	32 ± 36
3	Rindfleisch	Karlsruhe (1973)	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.
	Rindfleisch	Karlsruhe (1973)	0,2 ± 1,3	n.n.	2,7 ± 17	n.n.
	Rindfleisch	Karlsruhe (1973)	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.
4	Weizen	Eggenstein (1972)	4,9 ± 3,9	4,8 ± 5,6	68 ± 54	67 ± 78
5	Weizen	Eggenstein (1971)	4,5 ± 1,7*	1,5 ± 2,2	73 ± 28*	24 ± 36
	Weizen	Eggenstein (1971)	1,2 ± 1,5	n.n.	20 ± 24	n.n.
6	Kartoffeln	Liedolsheim (1971)	0,2 ± 0,4	0,01 ± 0,8	2 ± 4	0,1 ± 8
	Kartoffeln	Liedolsheim (1971)	0,5 ± 0,5	n.n.	5 ± 5	n.n.
	Kartoffeln	Liedolsheim (1971)	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.
7	Äpfel	Liedolsheim (1971)	1,7 ± 0,3*	n.n.	4,9 ± 0,9*	n.n.
	Äpfel	Liedolsheim (1971)	8,6 ± 2,0*	7,2 ± 2,2*	25 ± 5,8*	21 ± 6,4*
8	Birnen	Leopoldshafen (1973)	1,7 ± 1,1	0,8 ± 2,2	14 ± 9,2	6,7 ± 18
	Birnen	Leopoldshafen (1973)	1,6 ± 0,5*	n.n.	13 ± 4,1*	n.n.

Tabelle 2

Plutoniumaktivitäten von biologischen Proben. Die Meßfehlerangaben stellen den 1 σ -Fehler nach Poisson dar. Als Nachweisgrenze gilt der 2 σ -Fehler. Nur die Werte für Rinderblut liegen unterhalb der Nachweisgrenze. (*) fCi/kg Trockengewicht.

Probe	Herkunft (Jahr)	Analysen-zahl	Aktivität in fCi/g Asche				Aktivität in fCi/kg Frischgewicht	
			²³⁹ + ²⁴⁰ Pu ±Stand.- abw.	± Meß- fehler	²³⁸ Pu ±Stand.- abw.	Meß- fehler	²³⁹ + ²⁴⁰ Pu ±Stand.- abw.	²³⁸ Pu ±Stand.- abw.
Kiefern-nadeln	Leopoldshafen (1972)	9	370 ± 280	± 25	140 ± 200	± 12	3400 ± 2600	1300 ± 1800
Kiefern-nadeln	Hockenheim (1972)	1	90	± 6	6	± 2	1700	110
Kiefern-nadeln	Bad Bergzabern (1972)	1	130	± 11	24	± 5	3300	610
Tabak	Staffort (1972)	1	14	± 4	8	± 4	3300*	1900*
Mischbewuchs	Menzenschwand (1972)	2	330 ± 130	± 42	30 ± 2	± 11	8200 ± 3200	750 ± 50
Rinderblut	Rockenhausen (1973)	2	1,5 ± 0,5	± 0,8	0,8 ± 1,2	± 1,7	20 ± 6,6	10 ± 16
Rinderblut	Karlsruhe (1972)	5	3,3 ± 2,8	± 2,6	3,2 ± 4,7	± 3,9	45 ± 38	44 ± 64

Die Menge des sich aus der Atmosphäre auf Pflanzen absetzenden Plutoniums hängt von der Oberflächenstruktur der Pflanzenteile und von der Expositionszeit ab. Es war zu erwarten, daß Kiefernadeln durch ihre große spezifische Oberfläche und die mehrjährige Exposition einen im Vergleich zu Lebensmitteln erheblich höheren Plutoniumgehalt aufweisen. Die gefundenen Werte (Tab. 2) liegen erheblich über dem 2σ -Wert des Meßfehlers. Die Standardabweichungen der Mittelwerte sind jedoch sehr hoch und lassen sich nur aus der Inhomogenität des Probenmaterials erklären. Das künstliche Plutonium befindet sich seit höchstens 30 Jahren in der Umwelt und hat seine ideale Verteilung sehr wahrscheinlich noch nicht erreicht. Es liegt als hochgeglühtes Dioxid vor, das eine schwerlösliche Keramik darstellt — der Hauptgrund, warum der Verteilungsprozeß insbesondere für die größere Falloutkörnung noch nicht abgeschlossen ist^{16, 17}). Anscheinend sind derartige Plutoniumpartikel auch in den Kiefernadelproben enthalten gewesen: Ein und dieselbe gesiebte und homogenisierte Asche wies in vier Serienanalysen plötzlich die dreifache Aktivität der restlichen drei auf. Der umgekehrte Fall, daß ein Wert aus einer Serie vom Mittelwert bedeutend nach unten ausriß, wurde nicht beobachtet. Wegen seines vieldiskutierten Polonium-210-Gehaltes wurde in die Reihe der biologischen Proben (Tab. 2) auch Tabak einbezogen. Der Plutoniumgehalt der untersuchten Probe liegt jedoch, wenn man die Aktivität auf das kg Frischgewicht bezieht und die großen Blattoberflächen berücksichtigt, nicht nennenswert über demjenigen der Lebensmittel (Tab. 1). Hinsichtlich der Probe „Mischbewuchs aus Menzenschwand“ muß erwähnt werden, daß sie neben diversen Gräsern einen ziemlich hohen Anteil an Tannenzweigen enthielt. Rinderblut wurde aus folgenden Gründen untersucht: Erstens enthält das Blut relativ viel Eisen, welches in der Plutoniumanalytik störend wirkt, und zweitens handelt es sich hier um eine biologische Probe, die wahrscheinlich nur lösliches Plutonium enthält. Da grobkörnige Falloutpartikel auszuschließen sind, können Aktivitätsschwankungen in diesem Fall nur der Analytik zugeschrieben werden. Die Messungen an Rinderblut geben also einen Hinweis darauf, wie hoch die unter ungünstigen Bedingungen (hoher Eisengehalt) zu erwartenden experimentell bedingten Fehler sind.

Um die gesamte Plutoniumaufnahme durch die Nahrung beurteilen zu können, wurde von vier erwach-

senen Testpersonen je eine Woche lang die gesamte Tagesration auf Plutonium untersucht. Bei der Probenahme wurde darauf geachtet, daß alle Lebensmittel qualitativ und quantitativ den tatsächlich verzehrten entsprachen. Die einzelnen Rationen wurden täglich untersucht und die Ergebnisse zusammengefaßt (Tab. 3). Mit Ausnahme des einen in der Tabelle aufgeführten Maximalwertes für Plutonium-239 und 240 und des aus einer anderen Probe stammenden Maximalwertes von Plutonium-238 blieben alle anderen Werte unter der Nachweisgrenze. In 45 % der Proben konnte überhaupt kein Plutonium-239/240-Peak und in 75 % kein Plutonium-238-Peak gefunden werden. Dieses Ergebnis entspricht den in den Vereinigten Staaten gemessenen Werten²). Bei einer größeren Analysenzahl wurde dort ein Maximalwert von $(18,1 \pm 8,1)$ fCi/Tag bei einem Gesamtmittel von $(7,0 \pm 1,6)$ fCi/Tag gefunden. Das mit der Nahrung aufgenommene Plutonium wird jedoch nur zu einem geringen Bruchteil resorbiert. Der von der ICRP (International Commission on Radiological Protection) angenommene Absorptionsfaktor beträgt $3 \cdot 10^{-5}$, was bei dem Maximalfall von 100 fCi in der Nahrung (Person A, Tab. 3) eine tägliche Resorption von $(3 \pm 1) \cdot 10^{-3}$ fCi oder (3 ± 1) aCi Plutonium-239 bedeuten würde (1 aCi oder atto Curie = 10^{-18} Ci).

Die Plutonium-Ausbeute in den einzelnen Stufen des Analysenganges wurde mit Hilfe von zugesetztem Plutonium-236 bestimmt (Tab. 4). Die Untersuchungen wurden an Gesamt-Tagesrationen durchgeführt. Die Ergebnisse zeigen, daß in dem Aktivitätsbereich von ca. 1 pCi und bei Meßzeiten von etwa 1 Tag bereits die zählstatistische Streuung nach Poisson bedeutend ist. Hinzu kommen die anderen Fehler wie die der Meßgeräte, Eichlösungen usw. Um die chemische Methode bzw. auch die Veraschung auf Ausbeute überprüfen zu können, wurde den Aschen der diversen Tagesrationen vor dem chemischen Aufschluß bzw. dem Homogenisat der Gesamtnahrung vor der Veraschung Plutonium-236 zugesetzt. Die Ausbeuten sind mit den von anderen Autoren, wenn auch mit anderen Probenmaterialien und Arbeitsmethoden erzielten, vergleichbar^{7, 9, 18}).

Da in der Öffentlichkeit in jüngster Zeit Radioaktivitätsangaben wiederholt falsch interpretiert wurden, sehen wir uns veranlaßt festzustellen, daß die Erfassung des derzeitigen Plutoniumgehalts der Lebensmittel notwendig ist, um die Basis zu schaffen, auf der es nach Jahren oder Jahrzehnten möglich sein wird, ex-

Tabelle 3




Pro Tag (d) und Person (p) aufgenommene Gesamtnahrung mit Getränken sowie deren Plutoniumaktivitäten. Die Probenahme von den vier Testpersonen (A—D) erfolgte täglich über sieben Tage gegen Ende 1972.

(* nach log-Transformation berechnete Werte. 1 fCi = 10^{-3} pCi = 10^{-15} Ci.

Person	Gesamtaufnahme (mit Getränken)		Ascheaktivität in fCi/g		Gesamtaufnahme in fCi/d.p.	
	in kg/d.p.	in Asche/d.p.	^{239 + 240} Pu	²³⁸ Pu	^{239 + 240} Pu	²³⁸ Pu
A	2,7 ± 0,5	58 ± 25	1,7 ± 2,1	0,04 ± 0,1	100 ± 130	2 ± 6
B	2,6 ± 0,6	28 ± 7	0,07 ± 0,2	0,5 ± 0,8	2 ± 6	13 ± 23
C	2,2 ± 0,6	21 ± 4	0,5 ± 0,6	0,03 ± 0,07	11 ± 14	0,6 ± 1,5
D	2,0 ± 0,2	21 ± 2	0,2 ± 0,2	1,2 ± 2,6	5 ± 5	25 ± 55
Gesamt- mittel	2,3* + 0,6* — 0,5*	28* + 17* — 11*	0,6 ± 1,2	0,4 ± 1,4	17* + 35* — 17*	12* + 40* — 12*
Mittlerer Meßfehler (1 σ)			± 0,9	± 2,0	± 24	± 56
Maximaler Einzelwert (± 1 σ Meßfehler)			5,3 ± 1,5	5,9 ± 2,0		
Probenanteil ohne meßbare Aktivität			45 %	75 %		

Tabelle 4

Bestimmung der Pu-Ausbeute der einzelnen Arbeitsstufen in % mit Hilfe von zugesetztem ^{236}Pu als innerem Standard. Die Fehlerangaben entsprechen 1σ .

Veraschung der Gesamtnahrung (mit ^{236}Pu)	*		
Chemischer Trennungsgang		*	
Elektrolytische Abscheidung			*
Alphaspektrometrische Aktivitätsbest.			*
Mittlere ^{236}Pu -Ausbeute	72,8	92,6	98,1
Ausbeutestreuung (Standardabw.)	+18,9	+13,2	+9,8
Davon der mittlere Gesamtmeßfehler	+ 3,5	+ 4,4	+5,1
Davon die mittl. zählstatist. Streuung	+ 2,9	+ 3,1	+3,7
Probenzahl (N)	5	10	7

perimentell zu kontrollieren, ob die zunehmende Nutzung der Kernenergie zu erhöhter Plutoniumkontamination der Lebensmittel führt oder nicht. Die Tatsache, daß wir bei einigen der untersuchten Proben einen Plutoniumgehalt im femto-Curie-Bereich feststellen konnten, ist kein Grund zur Beunruhigung, sondern ein Zeichen der sehr hohen Nachweisempfindlichkeit der verwendeten Analysenmethode und Meßgeräte. Alle gefundenen Werte liegen im Bereich dessen, was aus der Literatur über die Kontamination der Biosphäre durch Kernwaffenversuche ($^{239}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$) bzw. Satellitenbatterien (^{238}Pu) bekannt ist.

Zusammenfassung

Die Plutoniumgehalte einiger Einzellebensmittel sowie von Gesamttagesrationen (einschließlich der Getränke) von erwachsenen Versuchspersonen wurden bestimmt. Zu diesem Zweck wurden alle Proben bei 400°C trockenverascht, mit ^{236}Pu als innerem Standard versetzt und die Pu-Isotope nach elektrolytischer Abscheidung alpha-spektrometrisch bestimmt. Von 28 Tagesrationen lag nur bei einer Probe der ^{239}Pu - und ^{240}Pu -Wert und bei einer weiteren der ^{238}Pu -Wert oberhalb der Nachweisgrenze von 6 fCi pro Probe. Bei den Einzellebensmitteln tierischer Herkunft wurde in einer Rinderleber ein Plutoniumgehalt gefunden, der als statistisch gesichert betrachtet werden kann. Bei Lebensmitteln pflanzlicher Herkunft wurden in einzelnen Fällen meßbare Plutoniumgehalte in ungeschälter Rohware (Äpfel, Birnen, Weizen) gefunden. In allen Fällen lag die gemessene Plutoniumaktivität im Bereich dessen, was aufgrund der derzeitigen Kontamination die Biosphäre durch Kernwaffenversuche ($^{239}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$) und Satellitenbatterien (^{238}Pu) zu erwarten war.

Summary

The plutonium contents of some foodstuffs and of total daily diets (including beverages) of adults were determined. For this purpose all samples were dry-ashed at 400°C , mixed with ^{236}Pu as an internal standard, and the Pu-isotopes were estimated by means of alpha-spectrometry. Only in one of the 28 daily rations was a $^{239}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$ -value and in another one a ^{238}Pu -value found that was above the detection limit of 6 fCi. Of the individual foodstuffs of animal origin only one of four beef liver samples had a plutonium content that can be considered as statistically significant. Some unpeeled foodstuffs of vegetable origin (apples, pears, wheat) also showed a measurable plutonium content. In all instances the measured plutonium activity was within the range that was to be expected due to the present contamination of the biosphere by nuclear tests ($^{239}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$) and by satellite batteries (^{238}Pu).

Résumé

On a déterminé les teneurs en plutonium de quelques produits alimentaires ainsi que celles de rations journalières complètes (y compris les boissons) d'adultes servant de sujets d'expérience. Dans ce but, on a réduit en cendres à 400°C tous les échantillons, on les a mélangé avec ^{236}Pu comme standard intérieur et on a déterminé les isotopes Pu par alpha-spectrométrie après séparation électrolytique. Parmi les 28 rations journalières, dans une d'elles la valeur du ^{239}Pu et du ^{240}Pu , dans une autre la valeur du ^{238}Pu se situaient au-dessus de la limite de détection de 6 fCi par échantillon. Parmi les produits alimentaires de provenance animale, on a trouvé dans un foie de boeuf une teneur en plutonium qui peut être considérée comme statistiquement garantie. Parmi les produits alimentaires d'origine végétale, on a trouvé dans quelques cas des teneurs en plutonium mesurables dans des produits crus non épluchés (pommes, poires, blé). Dans tous les cas, l'activité de plutonium mesurée se situait dans le domaine auquel on peut s'attendre du fait de la contamination actuelle de la biosphère par les essais d'armes nucléaires ($^{239}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$) et les piles des satellites. (^{238}Pu).

LITERATUR

- 1) Frindik, O., diese Zeitschr., **69** (10), 364 (1973).
- 2) Kauffman, P. E. und P. J. Magno, Radiol. Health Data and Rep. **8**, 191 (1967).
- 3) Boppel, B., Z. Anal. Chem., **266**, 257 (1973).
- 4) Harley, J. H., Editor, Manual of Standard Procedures, Report NYO-4700 (1970).
- 5) Wong, K. M., Anal. Chim. Acta, **56**, 355 (1971).
- 6) Theis, W., Dissertation, Heidelberg (1969).
- 7) Schüttelkopf, H., IAEA-SM-148/61 (CONF-710705) (1971).
- 8) Talvitie, N. A., Anal. Chem., **43** (13), 1827 (1971).
- 9) Schieferdecker, H., KFK 810 (1968).
- 10) Talvitie, N. A., Anal. Chem., **44** (2), 280 (1972).
- 11) Sill, C. W. und D. G. Olson, Anal. Chem., **42** (13), 1596 (1970).
- 12) Meier, H., D. Bösche, W. Albrecht, W. Hecker, P. Menge, E. Unger, G. Zeitler, E. Zimmerhackl, 24. Intern. Kongr. f. reine u. angew. Chemie, Hamburg, 2.—8. 9. 1973 (AED-CONF-73-407-017).
- 13) Keller, C., Chem. Ztg., **97** (10), 522 (1973).
- 14) Hardy, E. P., P. W. Krey und H. L. Volchok, Nature, **241**, 444 (1973).
- 15) Romney, E. M. und J. J. Davis, Health Physics, **22**, 551 (1972).
- 16) Healy, J. W., IEEE Trans. Nucl. Sci. NS-19, 219 (CONF-711-111) (1972).
- 17) Anonym, Radiat. Data and Rep., **14** (5), 328 (1973).
- 18) de Bortoli, M. C., Anal. Chem. **39** (3), 377 (1967).

Anschrift der Verfasser:

O. Frindik, Prof. Dr. J. F. Diehl,
Institut für Strahlentechnologie,
Bundesforschungsanstalt für Ernährung,
75 Karlsruhe, Engesserstraße 20.