PLUTONIUM UND AMERICIUM IN ACKERBODEN IN DEUTSCHLAND

PLUTONIUM AND AMERICIUM IN TILLED SOILS IN GERMANY

D.Tait und B. Kock
Max Rubner-Institut, Bundesforschungsanstalt für Ernährung und Lebensmittel, Hermann-Weigmann-Str. 1, D-24103 Kiel.

Zusammenfassung

Pu-239+240 und Am-241 wurden in 103 Ackerbodenproben, entnommen im Jahr 2008 von Orten in ganz Deutschland, mit Hilfe einer neu-entwickelten Schnellverfahren bestimmt. Die 8 Stunden dauernde radiochemische Abtrennung der Nuklide erwies sich bei allen Bodenarten als zuverlässig und lieferte bei fast allen Proben hohe chemische Ausbeuten: Im Mittel ca. 87 % für Pu und 72 % für Am.

Die mittlere spezifische Aktivität des Pu-239+240 beträgt 115 mBq / kg Boden TM (Standardabweichung 25 mBq /kg TM). Dieser Wert stimmt mit dem Mittelwert einer früheren Untersuchung von Pu-239+240 in 87 im Jahr 1996 entnommenen Ackerbodenproben (Mittelwert und Standardabweichung 123 bzw. 66 mBq / kg TM) überein. In 37 Fällen waren die Proben von den Jahren 1996 und 2008 mit den gleichen Probenahmeorten bezeichnet. Unter Berücksichtigung der Unsicherheiten bei der Probenahme und chemischen Ausbeutebestimmung sind die Pu-239+240-Werte der Proben aus denselben Entnahmeorten in fast allen Fällen praktisch unverändert.

Der Mittelwert für das Am-241 beträgt 52 mBq / kg TM (Standardabweichung 11 mBq / kg TM). Das Verhältnis der spezifischen Aktivitäten des Am-241 und des Pu-239+240 ist bei allen Proben relativ konstant bei 0,44 (Standardabweichung 0,015). Dieser Wert ist für den Fallout der atmosphärischen Kernwaffenversuchen typisch. Ein Beitrag als Ergebnis des Tschernobylunfalles im Jahr 1986 ist nicht erkennbar.

Summary

Pu-239+240 and Am-241 were determined in samples of tilled soils taken from 103 different locations in Germany in the year 2008. A recently developed fast method was used for the analyses. The radiochemical separation which requires about 8 hours provided reliably good chemical yields for almost all samples with mean values of 87 % and 72 % for Pu und Am, respectively.

The mean specific activity of Pu-239+240 was 115 mBq / kg soil (dry mass, dm) with a standard deviation of 25 mBq / kg dm. This value agrees with that found in a previous study with 87 tilled soil samples taken in the year 1996 (mean and standard deviation 123 mBq / kg dm and 66 mBq / kg dm). In 37 cases the sampling locations were the same in 1996 as in 2008. Accounting for the uncertainties involved in sampling and in determining the chemical yields, most of the Pu-239+240 values for samples from the same location are similar.

The mean value for Am-241 is 52 mBq / kg dm (standard deviation 11 mBq / kg dm). The activity of Am-241 relative to that of Pu-239+240 is nearly constant for all samples with a mean value of 0,44 (standard deviation 0,015). This value is typical for fallout from the atmospheric nuclear bomb tests. There is no indication of a contribution from the Chernobyl nuclear accident.

1. Einleitung

Die Nuklide des Plutoniums Pu-238, Pu-239, Pu-240 und Pu–241 wurden hauptsächlich global als Fallout nach den atmosphärischen Kernwaffenversuche der 1950er und `60er Jahre aber auch lokal nach Unfällen in Plutoniumproduktionsanlagen und anderen kerntechnischen Anlagen in die Umwelt freigesetzt [1 – 5]. Zusätzliches Pu-238 wurde nach dem Verglühen eines Satellits in der Stratosphäre im Jahr 1964 weltweit verteilt. Auch natürliche Prozesse führen zur Bildung von Plutoniumisotopen, allerdings in geringer Ausmaß, in der Umwelt. Das langlebige Nuklid des Americiums, Am-241 (HWZ 430 Jahre), entsteht aus dem Zerfall des Mutternuklids Pu-241 (HWZ 14,4 Jahre). Das Verhältnis der Halbwertszeiten der Nuklide lässt eine Zunahme der Am-241-Aktivität über die letzten Jahrzehnte und zur Zeit etwa gleiche spezifische Aktivitäten dieser Nuklide erwarten. Tabelle 1 fasst die wichtigsten kernphysikalischen Eigenschaften [6, 7] und die globalen Freisetzungen der relevanten Nuklide zusammen.

Tabelle 1: Quellen und kernphysikalische Eigenschaften relevanter Nuklide

Nuklid	Quelle	$t_{½}$ (Jahre)	Emission	Energie (MeV)	Globaler atmosph. Fallout (PBq)
Pu-238	Neutronen-bestrahlung des U-238	$8{,}8 \cdot 10^1$	α	5,5	0,33[1] + 0,63[2]
Pu-239		$2{,}4 \cdot 10^4$	α	5,1	6,52[1]
Pu-240		$6{,}5 \cdot 10^3$	α	5,1	4,35[1]
Pu-241		$1{,}4 \cdot 10^1$	β	0,02	142[1]
Am-241	β-Zerfall des Pu-241	$4{,}3 \cdot 10^2$	α, γ	5,5 (α) 0,06 (γ)	--
Pu-242	Tracer	$3{,}7 \cdot 10^5$	α	4,9	--
Am-243	Tracer	$7{,}4 \cdot 10^3$	α	5,2	--

[1] Freisetzungen von atmosphärischen Kernwaffenversuchen 1950 – 1963.

[2] Freisetzung nach Absturz des Satelliten SNAP-9A in 1964.(Siehe Ref. 2 – 4).

Bei der Beurteilung von Plutoniumwerten, die z.B. bei der Überwachung der Umgebung kerntechnischer Anlagen oder die nach einem Ereignis an einer fernen kerntechnischen Anlage gemessen werden, sind zuverlässige und aktuelle Vergleichswerte wichtig. Ohne solche Vergleichswerte ist es praktisch unmöglich, einen zusätzlichen Beitrag einer Plutoniumkontamination des Bodens durch eine kerntechnische Anlage zu erkennen bzw. auszuschließen. In der Literatur sind Werte, die für die Verhältnisse in der gesamten Bundesrepublik Deutschland repräsentativ wären, nur spärlich vorhanden.

Im Jahr 1996 wurde erstmalig eine bundesweite Studie zur spezifischen Aktivität von Pu-239+240 in Ackerboden von der Leitstelle in Kiel durchgeführt [8, 9]. Für diese Studie wurde Acker als Probenart ausgewählt, weil die landwirtschaftliche Bearbei-

tung des Ackerbodens zu einer größeren Durchmischung und Homogenität der einzelnen Proben führt, und daher die Vergleichbarkeit der Analysewerte verbessert. Die Plutoniumanalysen wurden mit einer Vorschrift aus der Messanleitungen des BMU für die Überwachung der Radioaktivität in der Umwelt [10] mit der Kurzbezeichnung F-α-SPEKT-BODEN durchgeführt. Diese Vorschrift jedoch erfasst die Am-241-Aktivität in den Proben nicht. Die Erfassung der spezifischen Aktivität des Am-241 zusammen mit der des Pu-239+240 ist besonders wichtig, weil das Verhältnis der beiden Aktivitäten Hinweise über die Herkunft einer Kontamination geben kann.

Wie bei praktisch allen gängigen Pu-Analyseverfahren sind die Schwierigkeit der Durchführung, der Zeit- und Arbeitsaufwand weitere Nachteile der Vorschrift. Zur Wiederholung der Studie um nach möglichen Änderungen in den vergangenen 12 Jahren zu prüfen und um Am-241 mit zu erfassen, war es daher erforderlich eine schnellere Methode, die auch beide Elemente erfasst, zu nutzen. Die sichere α-spektrometrischen Bestimmung der geringen spezifischen Nuklidaktivitäten in einer akzeptablen Messdauer (1 Woche) erfordert Probeneinwaagen von ca. 100 g.

Eine vielversprechende Methode für die Analyse von „non-refractory" (d.h. nicht schwerlösliches) Pu und Am in großen Bodenproben wurde von Horwitz et al. [11] bereits beschrieben. Mit der Bezeichnung „non-refractory" weisen die Autoren darauf hin, dass die Methode zur Extraktion der Radionuklide aus der Probe, nämlich stundenlanges Rühren der Bodenasche mit siedender Salzsäurelösung im offenen System, zur Lösung möglicherweise vorhandenen schwerlösliche Metalloxide oder in silikathaltigen Strukturen eingeschlossenen Nuklidanteile nicht ausreicht.

Die Leitstelle hat dieses Verfahren für die Analyse einer Vielzahl verschiedener Bodenarten geprüft, modifiziert und validiert. Das Prinzip des Verfahrens, die Einzelheiten der Durchführung, die Validierung und die ersten Analyseergebnisse für einen Teil der Ackerbodenproben vom Jahr 2008 aus ganz Deutschland sind bereits beschrieben [12]. Hier werden die Ergebnisse der vollständigen, bundesweiten Studie zur Bestimmung von Pu-239+240 und Am-241 in Ackerboden aus 103 Probenahmeorten zusammengefasst. 37 der Probenahmeorten waren gemäß Bezeichnung die gleichen wie bei der Studie im Jahr 1996. Daher ergibt sich die Möglichkeiten mögliche Änderungen der spezifischen Aktivität des Pu-239+241 am Ort direkt zu erkennen. Durch die große Zahl der unterschiedlichen Böden in der Studie ergab sich gleichzeitig die Gelegenheit einer allgemeinen Prüfung der Anwendbarkeit des Verfahrens.

Eine von der Leitstelle eingeführten Modifikationen dieses Verfahrens betrifft die mikrowellenunterstützte Säureextraktion der Probenasche bei 10 bar, statt der konventionellen Extraktion im offenen System auf einer Heizplatte. Die Wirksamkeit der neuen Extraktionsbedingungen wurden mit unterschiedlicher Bodenarten geprüft.

2. Methoden

Die Ackerbodenproben wurden im Auftrag der amtlichen Messstellen der Länder im Rahmen des Routinemessprogramms gemäß AVV-IMIS [13] im Jahr 2008 entnommen. Die vorgeschriebene Einstichtiefe für solche Proben beträgt 30 cm. Die Proben wurden in luftgetrockneter und gesiebter Form (Teilchengröße < 2 mm) mit Angaben zum Probenahmeort und Bodenbeschreibung zur Verfügung gestellt. Diese wurden in

der Leitstelle in Keramikschalen verascht wobei sie 18 Stunden bei 600 °C dann weitere 10 Stunden bei 700 °C gehalten wurden. Der Aschegehalt sämtlicher Proben war größer als 93 % mit der Ausnahme der Probe aus Reinsfeld, Rheinland-Pfalz . Der Aschegehalt in diesem Fall war nur 87 %.

Danach wurden die Aschen gemäß folgendem Schema behandelt:

1. Säureextraktion: 100 g Asche + 450 ml 8 mol/l Salzsäure + Pu-242 und Am-243 als Ausbeutetracer (100 mBq bzw. 50 mBq) im Mikrowellenofen für 1 Stunde bei 100 °C, max. 10 bar.
2. Vorreinigung des Säureextraktes:Zentrifugieren, dann Filtration des Überstandes durch 3 Glasfaser- (GF6) und einen Membranfilter (Nitrocellulose, 0,45µm).
3. Radiochemische Abtrennung: Trennung des Pu und Am mit Hilfe nuklidspezifischer, vorgepackter DGA- und TEVA-Säulen von Triskem International.
4. Vorbereitung der α-Messpräparate: Mikrofällung des Pu bzw. des Am mit Cerfluorid, Sammlung auf speziellen Filtern (Resolve™, Triskem International).
5. Durchführung der α-Spektrometrie: Mit dem Alpha-Analyst der Fa. Canberra (Dreieich), mit 12 α-Messkammer und PIPS-Detektoren (Auflösung 17 keV) in Low-level-Ausführung. Die Filterplättchen mit dem Pu- oder Am-Niederschlag auf Edelstahlplättchen wurden geklebt und direkt unterhalb des Detektors in der evakuierten Kammer gestellt. Messzeiten ca. 7 Tagen. Da die Alpha-Peaks des Pu-239 und des Pu-240 voneinander nicht aufgelöst werden (siehe Tabelle 2), wird die Summe der beiden zur Berechnung von Pu-239+240-Aktivitäten angegeben.

Es wurden mindestens Doppelbestimmungen der Pu- und Am-Aktivitäten jeder Asche durchgeführt. Die mikrowellenuntertstützte Säureextraktionen der Ascheproben wurden mit Hilfe des Mikrowellengerätes Ethos 2 oder Ethos Plus von der Fa. MLS (Leutkirch) ausgestattet mit 1-Liter-Probenbehältern und bei 10 bar automatisch öffnenden Sicherheitsventilen.

Prüfung der Wirksamkeit der mikrowellenunterstützte Säureextraktion: Für diese Untersuchungen wurden einige Proben verschiedener Bodenarten und mit relativ großen spezifischen Aktivitäten der Nuklide ausgewählt. Die Probenasche nach der mikrowellenunterstützte Säureextraktion wurde gesammelt und nach der Zugabe der Ausbeutetracer Pu-242 und Am-243 (jeweils ca. 50 und 25 mBq) mit konzentrierter Flusssäure zur Trockne eingedampft. Die Behandlung mit Flusssäure wurde bis zur Gewichtskonstanz des Rückstandes mehrmals wiederholt. Diese Prozedur zerstört die Silikatstrukturen, entfernt Silizium vom Rückstand und erhöht die Säurelöslichkeit der Nuklide. Danach würde dieser Rückstand wie der ursprüngliche Probenasche behandelt und der spezifischen Aktivitäten des Pu-239+240 sowie Am-241 bestimmt. Die Einzelheiten dieser Prozedur wurde ebenfalls in [12] beschrieben.

3. Ergebnisse

Die Ergebnisse für die mittlere spezifische Aktivitäten des Pu-239+240 und Am-241, das Aktivitätsverhältnis Am-241 / Pu-239+240, sowie die Pu-239+240-Werte in der Studie von 1996 sind in Tabelle 2 zusammengestellt.

Tabelle 2: Pu und Am in Ackerböden - Zusammenfassung der Ergebnisse der Studien in den Jahren 1996 und 2008 für ganz Deutschland.

Probenahme		Mittlere spezifische Aktivität ± Standardabweichung (mBq / kg TM)		Aktivitätsverhältnis Am-241/Pu-239+240 ± Standardabweichung
Jahr	Orte	Pu-239+240	Am-241	
1996	87	123 ± 66	Nicht bestimmt	Nicht bestimmt.
2008	103	115 ± 25	52 ± 11	0,44 ± 0,015

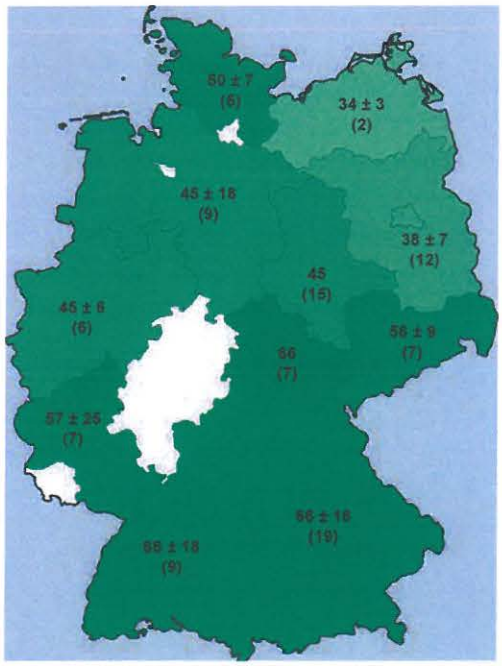

Abbildung 1: mBq / kg TM Pu-239+240.

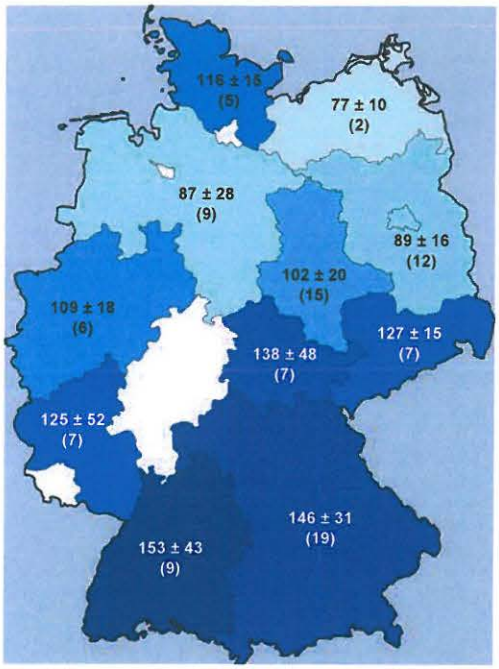

Abbildung 2: mBq / kg TM Am-241.

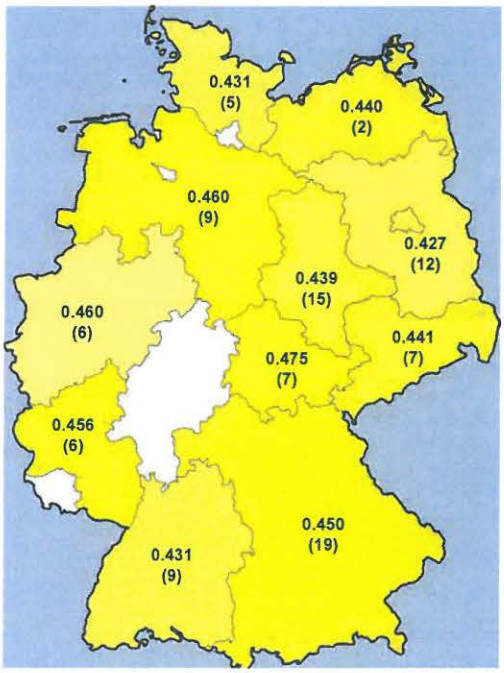

Abbildung 3: Aktivitätsverhältnis Am-241 / Pu-239+240.

Tabelle 3: Vergleich der Pu-239/240-Aktivitäten in Ackerbodenproben entnommen von den selben Orten in den Jahren 1996 und 2008.

Probeentnahmeort	mBq Pu-239+240 / kg TM		Abweichung vom Wert im Jahr 1996
	im Jahr 1996	im Jahr 2008	(%)
Hornburg (NS)	120 ± 2	91 ± 1	- 24,2
Kakerbeck (SAH)	99 ± 1	83 ± 5	- 16,2
Karstädt (BRA)	92 ± 2	78 ± 1	- 15,2
Neuensalz (SAS)	155 ± 6	136 ± 9	- 12,3
Abensberg (BAY)	116 ± 5	106 ± 5	- 8,6
Geiselwind (BAY)	141 ± 26	131 ± 1	- 7,1
Dellfeld (RLP)	132 ± 4	124 ± 1	- 6,1
Schifferstadt (RLP)	91 ± 3	86 ± 1	- 5,5
Alersheim (BAY)	175 ± 8	166 ± 7	- 5,1
Poppenhausen (BAY)	105 ± 9	100 ± 11	- 4,8
Pfofeld-Gundelshalm (BAY)	131 ± 13	125 ± 1	- 4,6
Holzhausen (RLP)	131 ± 4	125 ± 1	- 4,6
Klipphausen (SAS)	112 ± 1	108 ± 4	- 3,6
Elsenfeld (BAY)	126 ± 7	125 ± 1	- 0,8
Weißdorf-Beuk (BAY)	183 ± 4	185 ± 16	1,1
Hemau-Wollmansdorf (BAY)	153 ± 4	155 ± 6	1,3
Haufeld-Teichröda (THÜ)	235 ± 10	248 ± 9	5,5
Fürfeld (RLP)	71 ± 4	75 ± 2	5,6
Kükels (SLH)	108 ± 3	119 ± 10	10,2
Neustadt a. W. (RLP)	86 ± 1	95 ± 1	10,5
Sulzemoos (BAY)	140 ± 1	155 ± 9	10,7
Mariental (NS)	83 ± 10	92 ± 2	10,8
Schillingsfürst (BAY)	141 ± 18	161 ± 1	14,2
Ganderkesee (NS)	98 ± 4	113 ± 3	15,3
Schondra-Schönderling (BAY)	113 ± 8	134 ± 5	18,6
Plech (BAY)	142 ± 3	169 ± 14	19,0
Guthmannshausen THÜ)	98 ± 1	119 ± 3	21,4
Haldewang (BAY)	104 ± 6	128 ± 1	23,0
Markersdorf (SAS)	114 ± 2	141 ± 22	23,7
Schleßlitz-Wiesengiech (BAY)	128 ± 10	161 ± 11	27,3
Traunitz-Söllitz (BAY)	153 ± 9	196 ± 22	28,1
Schwandorf-Neukirchen (BAY)	101 ± 9	135 ± 1	33,7
Salzgitter, Drütte (NS)	76 ± 3	111 ± 2	46,1
Brunsbek (SLH)	69 ± 5	107 ± 4	55,1
Altlüdersdorf (BRA)	57 ± 2	101 ± 4	77,2
Leck (SLH)	76 ± 3	136 ± 1	78,9
Reinsfeld (RLP)	72 ± 15	252 ± 13	250

Die Karten in Abbildung 1 und 2 zeigen die Mittelwerte der spezifischen Aktivitäten des Pu-239+240 bzw. des Am-241 für jedes Bundesland außer Hessen und Saarland. Bei diesen zwei Ländern standen keine Restprobenmaterial aus dem Jahr 2008 zur Verfügung. Die Werte für die Städte Hamburg, Bremen und Berlin sind jeweils in den Mittelwerten von den Ländern Schleswig-Holstein, Niedersachsen bzw. Brandenburg berücksichtigt. Eine vollständige Auflistung der Ergebnisse für jeden Probenahmeort mit geographischen Koordinaten, Bodenbeschreibung und Nuklidausbeuten ist in der Tabelle 5 im Anhang gegeben.

Das Verhältnis der Aktivitäten des Am-241 und des Pu-239+240 in den einzelnen Bundesländern ist in der Karte in Abbildung 3 zusammengefasst. Die Werte für das Verhältnis sind überall ähnlich.

Die Tabelle 3 stellt die Werte für das Pu-239+240 in Ackerbodenproben von den gleichen Probeentnahmeorten im Jahr 1996 und 2008 gegenüber. Die prozentuelle Abweichung der in dieser Studie bestimmten Werte (A_{2008}) von den im Jahr 1996 bestimmten Werten (A_{1996}) in der letzten Spalte rechts wurde gemäß der Gleichung $[(A_{2008} - A_{1996}) / A_{1996}] \cdot 100$ berechnet.

Die Ergebnisse der Prüfung der Wirksamkeit der mikrowellenunterstützten Säureextraktion der Asche verschiedener Bodenarten sind in Tabelle 4 zusammengefasst.

Tabelle 4: Wirksamkeit der mikrowellenunterstützten Säureextraktion: Durch mikrowellenunterstützte Säureextraktion gelöste Aktivität aus der Asche verschiedener Böden (A1) / Aktivität extrahiert aus dem Rückstand dieser Säureextraktion nach der wiederholten Flusssäure-Behandlung des Rückstandes (A2).

Probenentnahmeort	Bodenbeschreibung	A1 / A2	
		Pu-239/240	Am-241
Hauchfeld (Thüringen)	Ton	7	10
Hüde (Niedersachsen)	Moor	16	17
Bornheim (Nordrhein-Westphalen)	Schluff, sandig	16	>12
Karstädt (Brandenburg)	Sand	21	>14
Hemau-Wollmannsdorf (Bayern)	Lehm, schluffig	10	>52

4. Diskussion

Das Schnellverfahren erwies sich bei allen Proben als zuverlässig und lieferte reproduzierbar hohe chemische Ausbeuten der Nuklide (siehe Tabelle 5 im Anhang). Die Mittelwerte der Ausbeuten betragen für Pu 87 % (Standardabweichung 11 %) und für Am 72 % (Standardabweichung 14 %). Bei der gleichzeitigen Analyse von vier 100 g Aschen erfordern die radiochemische Abtrennung der Nuklide aus der Asche und die Herstellung eines Messpräparates etwa 8 Stunden. Dies ist deutlich schneller als alle herkömmlichen Verfahren. Die alphaspektrometrische Messung der geringen Aktivitäten in aktuellen Proben jedoch erfordert lange Messzeiten von mindestens 5 bis 7 Tagen.

Die Werte für die spezifische Aktivität des Pu-239+240 in Ackerböden schwanken in einem relativ engen Bereich (siehe Tabelle 5 im Anhang). Der Mittelwert für ganz Deutschland in dieser Studie beträgt 115 mBq / kg TM Boden mit einer Standardabweichung von 25 mBq / kg TM (siehe Tabelle 2). Dieser Wert stimmt mit dem Ergebnis der Untersuchung von 87 Ackerbodenproben aus dem Jahr 1996 (Gesamtmittelwert und Standardabweichung 123 bzw. 66 mBq / kg TM Boden) [8,9].

Insgesamt waren 37 Proben in 1996 und 2008 mit der gleichen Ortsbezeichnung angegeben. Die Gegenüberstellung der Werte in Tabelle 3 zeigt, dass sich 31 Wertepaare um weniger als 30 % unterscheiden. Bei weiteren 5 Paaren liegen die Werte vom Jahr 2008 im Bereich 34 % bis 80 % größer als in 1996. Bei einer dieser Proben, die Probe aus Altlüdersdorf (BRA), wurde als Bodenbeschreibung „Weide" angegeben, d.h,. es handelt sich hier entweder um eine Verwechslung oder die Bodenbenutzung wurde in der Zwischenzeit geändert. Das auffälligste Wertepaar ist für den Probenahmeort „Reinsfeld" in Rheinland-Pfalz mit Werten im 2008 fast 3-fach größer als in 1996. Die relativ kleine Ascheausbeute von 87 % für diese Probe ist für Ackerboden untypisch, und passt zu der angegebenen Probenbeschreibung „Sand/ Ackerboden" nicht. Die Diskrepanzen könnten daher entweder an einer Verwechslung oder an dem Vorkommen von Böden unterschiedlicher Art und Dichte an diesem Probenahmeort begründet sein. Unter Berücksichtigung der Unsicherheiten bei der Bodenprobenahme und der Ausbeutebestimmungen sind die

Unterschiede bei fast allen Proben nicht signifikant.

Auch die Werte für das Am-241 liegen in einem engen Bereich (siehe Tabelle 5 im Anhang) mit einem Mittelwert von 52 mBq / kg TM und Standardabweichung 11 mBq / kg TM Boden (siehe Tabelle 2). Dieses Nuklid wurde bei der Studie im Jahr 1996 nicht bestimmt. Das Verhältnis der spezifischen Aktivitäten des Am-241 und des Pu-239+240 ist für alle Proben relativ konstant bei ca. 0,44 mit einer Standardabweichung von 0,015 (Tabelle 2 und Abbildung 3). Der Wert entspricht dem durch den Kernwaffenfallout zu erwartenden Aktivitätsverhältnis überein. Ein möglicher Beitrag als Ergebnis des Unfalls in Tschernobyl im Jahr 1986 ist aus diesen Werten nicht erkennbar.

In den Kartendarstellungen der Pu-239+240- und Am-241-Werte für die einzelnen Bundesländer in den Abbildungen 1 und 2 ist eine Abnahme der spezifischen Aktivitäten der Nuklide von Süden nach Norden ersichtlich. Zum Beispiel sind die Werte in Baden-Würtemberg und Bayern fast zweifach größer als in Mecklenburg-Vorpommern oder Niedersachsen. Ein ähnlicher Trend wurde auch in der Studie von 1996 beobachtet [10].

Die Untersuchung der Wirksamkeit der mikrowellenunterstützten Säureextraktion der Probenaschen zeigen, dass je nach Bodenart unterschiedliche, jedoch relative kleine Anteile der Nuklide nicht extrahiert werden (Tabelle 5). Nach der mehrmals wiederholten Behandlung mit Flusssäure verringert sich die Masse des Rückstandes von ursprünglich 100 g Asche auf ca. 10 g. Es ist zu erwarten, dass sich die zugegebenen Ausbeutetracer, Pu-242 und Am-243 mit dem Pu-239+240 und Am-241 der Restprobe nach dieser Prozedur im Gleichgewicht befinden, und daher einen zuverlässigen Wert für die Ausbeutebestimmung bei der nachfolgenden Analyse liefern. Der größte mit der mikrowellenuntersützte Säureextraktion allein nicht extrahierbaren Anteil (ca. 16 %) wurde für Pu-239+240 in der Asche eines Tonbodens festgestellt. In den anderen Fällen liegen die nicht extrahierbare Anteile bei weniger als 10 %.

Der Wert der spezifischen Aktivität des Pu-238 für fast allen Proben war kleiner als die Nachweisgrenze von ca. 12 mBq / kg TM. Jedoch bei 5 Proben mit überdurchschnittlichen spezifischen Aktivitäten von Pu-239+240 (146 mBq / kg bis 240 mBq / kg) konnten Pu-238-Werte im Bereich von 3,8 bis 6,3 mBq / kg TM bestimmt werden. Die Aktivitätsverhältnisse Pu-239+240 / Pu-238 lagen im Bereich 37,4 bis 43,5 mit einem Mittelwert von 40,9. Dieser Wert ist etwas geringer als der aus dem Kernwaffenfallout in der nördlichen Hemispäre (nördliche, gemäßigte Zone, 40° bis 50° nördlicher Breite) zu erwartenden Verhältnis von ca. 50,1. Möglicherweise trägt Pu-238 vom Fallout des SNAP-Satellitens vom 1964 dazu bei, das Verhältnis zu verringern. Weitere Untersuchungen mit genaueren Pu-238-Bestimmungen sind erforderlich, um einen zuverlässigeren Wert für das Pu-239+240 / Pu-238-Verhältnis zu berechnen.

5. Literatur

[1] A. Kudo (Ed.) Plutonium in the Environment, Elsevier, Amsterdam (2001).

[2] WHO, Environmental Health Criteria 25, Selected Radionuclides (Plutonium), world Health Organiization, Geneva (1983) p. 169-196.

[3] United Nations. Sources and Effects of IonizingRadiation. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, 1993 Report to the General Assembly, with scientific annexes. United Nations sales publication E.94.IX.2. United Nations, New York, 1993.

[4] United Nations. Ionizing Radiation: Sources and Biological Effects. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, 1982 Report to the General Assembly, with annexes. United Nations sales publication E.82.IX.8. United Nations, New York, 1982.

[5] UNSCEAR 2000 Report Volume 1. Sources and Effects of Ionizing Radiation, Volume I: Sources, Annex C: Exposures from man- made sources of radiation. http://www.unscear.org/unscear/en/publications/2000_1.html

[6] G. Kromphorn, U. Kocak, H. Wershofen und D. Arnold, Bestimmung der Plutoniumisotope Pu-238, Pu-239 und Pu-240 in Umweltproben mittels Alpha-Spektrometrie, in PTB-Bericht PTB-Ra-38, Hrsg. Physikalisch-Technische Bundesanstalt, Braunschweig (1995) p. 3.

[7] G. Kanisch, Kapitel IV.6 Kernphysikalische Daten, in: Messanleitungen für die Überwachung der Radioaktivität in der Umwelt und zur Erfassung radioaktiver Emissionen aus kerntechnischen Anlagen, Hrsg. Der Bundesminister für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit, Elsevier Verlag GmbH, München (2006) p. ERKLÄR/KERNDAT-01bis 08.

[8] A. Wiechen, Plutoniumbestimmungen in Bodenproben aus der Bundesrepublik Deutschland, Kieler Milchwirtschaftliche Forschungsberichte 50 (1998) 147-152.

[9] A. Wiechen, D. Tait, G. Haase, Die alphaspektrometrische Bestimmung von Plutoniumisotopen in Böden aus Deutschland, Kieler Milchwirtschaftliche Forschungsberichte 51 (1999) 225-236.

[10] Messanleitungen für die Überwachung der Radioaktivität in der Umwelt und zur Erfassung radioaktiver Emissionen aus kerntechnischen Anlagen, Hrsg. Der Bundesminister für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit, Elsevier Verlag

GmbH, München (2006), Kapitel F-α-SPEKT-BODEN. Kurzlink: http://www.bmu.de/P384

[11] E. P. Horwitz, A. H. Thakkar, D. R. McAlister, A rapid method for the preconcentration of non-refractory Am and Pu from 100 g soil samples, in: P. Warwick (Ed.) Environmental Radiochemical Analysis III, Royal Society of Chemistry (RSC Publishing), Cambridge (UK) 2007 p. 77 – 85.

[12] D. Tait, M. Jelinski, R. Hartmann, B. Kock, Entwicklung eines Schnellverfahrens zur Bestimmung des Plutoniums und des Americiums im Boden, 14. Fachgespräch zur Überwachung der Umweltradioaktivität, 24. - 26. März 2009, Freiburg.

[13] Allgemeine Verwaltungsvorschrift zum Integrierten Mess- und Informationssystems zur Überwachung der Radioaktivität in der Umwelt(IMIS) nach dem Strahlenschutzvorsorgegesetz (AVV-IMIS) vom 13. Dezember 2006. Bundesanzeiger 2006, Nr. 244a.

Anhang

Tabelle 5: Mittelwerte der Doppelbestimmungen der spezifischen Aktivitäten von jeweils Pu-239+240 und Am-241 mit den entsprechenden chemischen Ausbeuten für die Proben von den einzelnen Probenahmeorten mit Angaben zu den geographischen Koordinaten und Bodenarten.

Land	Probenahmeort	Koordinaten		Bodenart	mBq / kg TM		Ausbeuten %	
		Länge	Breite		Pu-239+240	Am-241	Pu	Am
BAW	Bad Schussenried	+09°39'	+48°00'	keine Angaben	220 ± 10	100 ± 1	95/77	64/40
BAW	Buchholz	+07°56'	+48°05'	Lehm, schluffig	135 ± 6	63 ± 1	73/80	14/56
BAW	Haigerloch	+08°48'	+48°21'	Lehm, schluffig	153 ± 1	66 ± 4	92/81	56/39
BAW	Laufenburg	+08°04'	+47°35'	Lehm, schluffig	202 ± 5	84 ± 1	82/75	27/43
BAW	Leingarten	+09°06'	+49°08'	Lehm, schluffig	108 ± 1	45 ± 1	86/83	57/55
BAW	Leopoldshafen	+08°23'	+49°04'	Lehm, schluffig	178 ± 5	72 ± 2	86/88	68/66
BAW	Löffingen	+08°21'	+47°53'	Keine Angaben	282 ± 7	117 ± 5	98/96	67/76
BAW	Münsingen	+09°30'	+48°21'	Lehm, schluffig	85 ± 2	42 ± 2	90/78	59/29
BAW	Ostrach	+09°21'	+47°56'	Lehm, schluffig	180 ± 2	73 ± 2	94/95	79/54
BAW	Distelhausen	+09°41'	+49°35'	Lehm, schluffig	116 ± 21	47 ± 2	84/72	49/55
BAY	Abensberg	+11°50'	+48°49'	Sand, lehmig	106 ± 5	45 ± 3	97/96	87/79
BAY	Alerheim	+10°39'	+48°50'	Sand, anlehmig	166 ± 7	77 ± 1	95/95	89/89
BAY	Elsenfeld	+09°12'	+49°49'	Sand, anlehmig	125 ± 1	48 ± 1	97/99	22/86
BAY	Falkenberg-Seidlersreuth	+12°12'	+49°52'	Sand, lehmig	159 ± 8	93 ----	98/94	70/--
BAY	Geiselwind	+10°27'	+49°46'	Sand, lehmig	131 ± 1	61 ± 2	90/95	64/80
BAY	Haldenwang	+10°27'	+48°26'	Schluff, tonig	128 ± 1	55 ± 5	89/96	28/46
BAY	Hemau	+11°45'	+49°02'	Lehm, schluffig	155 ± 6	70 ± 2	95/95	60/61
BAY	Ochsenfurt	+10°03'	+49°39'	Lehm, tonig	80 ± 13	37 ± 1	93/93	59/60
BAY	Pfofeld	+10°49'	+49°06'	Sand, anlehmig	125 ± 1	51 ± 3	93/85	78/68
BAY	Plech	+11°27'	+49°39'	Sand, lehmig	169 ± 14	76 ± 2	77/82	38/42
BAY	Poppenhausen	+10°08'	+50°05'	Lehm, tonig	100 ± 11	51 ± 1	68/81	46/57
BAY	Schillingsfürst	+10°16'	+49°17'	Lehm, tonig	161 ± 1	70 ± 1	93/89	54/33

BAY	Schleßlitz-Wiesengiech	+10°59'	+49°57'	Lehm, tonig	161 ± 11	73 ± 3	71/63	42/21
BAY	Schondra	+09°51'	+50°15'	Sand, anlehmig	134 ± 5	58 ± 6	79/77	37/32
BAY	Schwandorf	+12°05'	+49°18'	Sand, anlehmig	135 ± 1	53 ± 7	95/95	67/81
BAY	Sulzemoos	+11°15'	+48°17'	Lehm, sandig	155 ± 8	70 ± 5	85/85	69/69
BAY	Trausnitz	+12°15'	+49°31'	Sand, anlehmig	197 ± 22	91 ± 10	73/85	79/83
BAY	Ursensollen	+11°47'	+49°21'	Lehm	198 ± 7	90 ± 7	80/89	13/55
BAY	Weißdorf	+11°51'	+50°11'	Sand, anlehmig	185 ± 16	83 ± 2	81/80	79/76
BRA	Altlüdersdorf	+13°09'	+53°00'	Weide	101 ± 4	46 ± 2	92/92	91/84
BRA	Gransee	+13°11'	+53°01'	Sand	102 ± 2	41 ± 1	90/90	69/79
BRA	Karstädt	+11°43'	+53°10'	Sand	78 ± 1	38 ± 2	99/99	98/93
BRA	Küstriner Vorland	+14°34'	+52°33'	Lehm, sandig	75 ± 1	34 ± 1	75/93	50/39
BRA	Kyritz	+12°23'	+52°56'	Sand	101 ± 6	45 ± 3	96/78	75/44
BRA	Märkische Heide	+14°01'	+52°02'	Sand	60 ± 1	24 ± 1	95/95	85/85
BRA	Mühlenfließ	+12°48'	+52°07'	Sand	81 ± 2	31 ± 5	96/94	70/58
BRA	Rathenow	+12°19'	+52°37'	Keine Angaben	71 ± 2	31 ± 1	99/89	73/72
BRA	Trebbin	+13°15'	+52°12'	Sand	110 ± 3	44 ± 1	90/90	90/90
BRA	Werben	+14°10'	+51°48'	Sand	84 ± 2	35 ± 1	90/86	85/80
BER	Gatow	+13°10'	+52°29'	Sand	89 ± 4	42 ± 1	90/90	77/73
BER	Lübars	+13°22'	+52°36'	Sand	112 ± 4	49 ----	90/90	92/--
BRE	Bremen	+08°46'	+53°07'	Sand	161 ± 6	64 ± 6	90/85	90/89
HAM	Hamburg	+09°58'	+53°30'	Lehm, sandig	136 ± 2	62 ± 6	90/90	81/29
MVP	Friedland	+13°33'	+53°39'	Lehm, sandig	87 ± 5	37 ± 1	95/95	89/84
MVP	Banzkow	+11°30'	+53°30'	Sand, anlehmig	66 ± 1	31 ± 1	95/95	81/93
MVP	Kavelstorf	+12°11'	+54°00'	Lehm, sandig	41 ± 1	17 ± 1	94/92	81/57
NDS	Dalumer Moor	+07°13'	+52°35'	Sand	21 ± 2	8 ± 1	99/99	95/92
NDS	Ganderkesee	+08°31'	+53°02'	Sand, schluffig	113 ± 3	80 ±24	99/68	81/71
NDS	Grabhorn	+08°01'	+53°23'	Sand	120 ± 9	51 ± 5	95/95	2/43
NDS	Hornburg	+10°36'	+52°01'	Schluff, tonig	91 ± 1	44 ± 2	85/84	4/53
NDS	Hüde	+08°20'	+52°29'	Torf	1044 ± 74	433 ±30	95/95	91/90
NDS	Lüder	+10°39'	+52°47'	Sand, anlehmig	66 ± 3	49 ±16	97/91	88/88
NDS	Mariental	+10°59'	+52°16'	Sand, lehmig	92 ± 2	38 ± 2	97/90	89/57
NDS	Meinersen	+10°20'	+52°28'	Sand	85 ± 3	38 ± 3	83/75	98/80
NDS	Neuhäuserfelde	+09°02'	+53°48'	Schluff, tonig	---	---	93/87	71/63
NDS	Reinshof	+09°55'	+51°29'	Schluff, tonig	80 ± 2	41 ± 3	98/87	69/63
NDS	Salzgitter	+10°21'	+52°07'	Schluff, tonig	111 ± 2	52 ± 1	93/89	66/62
NRW	A1 Lauenförde	+09°23'	+51°36'	Keine Angaben	105 ± 1	43 ± 3	93/87	68/68
NRW	Bornheim	+06°57'	+50°46'	Schluff, sandig	84 ± 2	35 ± 1	90/90	46/59
NRW	Düsseldorf	+06°48'	+51°13'	Schluff	131 ± 4	53 ± 5	90/??	84/54
NRW	Essen	+07°01'	+51°25'	Schluff	129 ± 3	52 ± 2	90/94	83/84
NRW	Lauenförde	+09°23'	+51°36'	Keine Angaben	113 ± 3	44 ± 2	87/90	72/73
NRW	Titz	+06°24'	+50°59'	Schluff, sandig	90 ± 1	40 ± 1	90/90	69/77
SAH	Altenroda	+11°34'	+51°14	Lehm, schluffig	109 ± 2	43 ± 4	95/90	59/54
SAH	Arendsee (Altmark)	+11°24'	+52°49'	Lehm, schluffig	107 ± 3	48 ± 1	99/97	85/85
SAH	Cobbelsdorf	+12°32'	+51°57'	Lehm, schluffig	122 ± 4	58 ± 7	95/91	85/27

SAH	Ermsleben	+11°20'	+51°43'	Lehm, schluffig	89 ± 1	39 ± 4	84/84	63/52
SAH	Großalsleben	+11°13'	+51°58'	Lehm, schluffig	146 ± 4	63 ± 1	90/90	59/72
SAH	Hadmersleben	+11°15'	+51°51'	Lehm, schluffig	119 ± 3	53 ± 2	93/90	72/63
SAH	Hobeck	+12°02'	+52°04'	Lehm, schluffig	65 ± 3	31 ± 1	96/94	77/66
SAH	Kakerbeck	+11°16'	+52°40'	Lehm, schluffig	83 ± 5	36 ± 2	99/98	69/60
SAH	Kelbra (Kyffhäuser)	+11°08'	+51°25'	Lehm, schluffig	99 ± 10	45 ± 1	87/85	57/56
SAH	Oschersleben	+11°15'	+52°02'	Lehm, schluffig	80 ± 5	30 ± 1	87/83	51/50
SAH	Redekin	+12°04'	+52°28'	Lehm, schluffig	89 ± 1	37 ± 1	95/83	95/90
SAH	Rottmersleben	+11°24'	+52°12'	Lehm, schluffig	112 ± 4	50--	89/86	57/---
SAH	Sandau (Elbe)	+12°03'	+52°47'	Lehm, schluffig	107 ± 10	45 ± 4	95/90	74/31
SAH	Schollene	+12°11'	+52°39'	Lehm, schluffig	88 ± 6	41 ± 1	97/97	92/91
SAH	Vockerode	+12°20'	+51°50'	Lehm, schluffig	119 ± 2	53 ± 1	98/98	84/55
SAS	Dennheritz	+12°27'	+50°48'	Sand, tonig	122 ± 2	52 ± 4	85/64	60/46
SAS	Flöha	+13°05'	+50°51'	Ton, sandig	146 ± 2	62 ± 2	93/85	62/55
SAS	Frohburg	+12°35'	+51°05'	Sand, tonig	130 ± 8	52 ± 1	46/98	65/73
SAS	Klipphausen	+13°32'	+51°05'	Lehm, sandig	108 ± 4	47 ± 1	90/81	75/71
SAS	Krostitz	+12°27'	+51°27'	Sand, tonig	106 ± 2	43 ± 3	97/69	69/65
SAS	Markersdorf	+14°52'	+51°06'	Lehm, sandig	141 ± 22	67 ± 4	94/99	76/85
SAS	Neuensalz	+12°14'	+50°30'	Sand, tonig	136 ± 9	69 ± 2	90/58	74/68
SLH	Blekendorf	+10°40'	+54°17'	Sand, lehmig	92 ± 1	38 ± 1	85/85	52/63
SLH	Brunsbek	+10°16'	+53°35'	Sand, lehmig	107 ± 4	47 ± 5	95/60	96/86
SLH	Kükels	+10°13'	+53°53'	Sand, lehmig	119 ± 10	53 ± 7	99/88	96/86
SLH	Leck	+08°57'	+54°46'	Sand	136 ± 11	57 ± 7	95/90	78/71
SLH	Oersberg	+09°50'	+54°40'	Sand, lehmig	124	57--	82/---	67/---
RLP	Dellfeld	+07°28'	+49°14'	Keine Angaben	124 ± 1	59 ± 3	96/88	51/42
RLP	Fürfeld	+07°52'	+49°46'	Sand	75 ± 2	30 ± 2	85/84	55/30
RLP	Holzhausen an der Haide	+07°54'	+50°13'	Sand	125 ± 1	64 ± 5	83/80	29/27
RLP	Neuhemsbach	+07°55'	+49°31'	Keine Angaben	130 ± 7	55 ± 1	90/90	59/59
RLP	Neustadt an der Weinstraße	+08°08'	+49°20'	Sand	95 ± 1	45 ± 3	90/90	69/69
RLP	Reinsfeld	+06°52'	+49°40'	Sand	243 ± 14	111 ± 3	75/85	68/62
RLP	Schifferstadt	+08°22'	+49°22'	Sand	86 ± 1	36 ± 1	90/85	63/52
THÜ	Deuna	+10°28'	+51°21'	Lehm, sandig	136 ± 11	61 ± 1	90/75	69/60
THÜ	Großobringen	+11°20'	+51°02'	Lehm	107 ± 10	63 ±14	92/85	56/31
THÜ	Guthmannshausen	+11°21'	+51°08'	Lehm	119 ± 3	56 ± 5	84/80	70/66
THÜ	Harth-Pöllnitz	+11°58'	+50°46'	Lehm, sandig	110 ± 2	49 ± 1	85/90	80/76
THÜ	Haufeld-Teichröda	+11°16'	+50°48'	Ton	248 ± 9	111 ± 1	80/80	56/51
THÜ	Hochheim	+10°39'	+51°01'	Lehm	95 ± 4	43 ± 2	84/90	58/60
THÜ	Hildburghausen	+10°43'	+50°26'	Ton	152 ± 18	76 ± 2	72/83	50/58

Abkürzungen:

BAW: Baden-Würtemburg;BAY: Bayern; BER: Berlin; BRA: Brandenburg; MVP: Mecklenburg-Vorpommern; NRW: Nordrhein Westfalen; NDS: Niedersachsen; SLH: Schleswig-Holstein; SAH: Sachsen-Anhalt; SAS: Sachsen; RLP: Rheinland Pfalz; THÜ: Thüringen.