

Inge Schmitz-Feuerhake, Universität Bremen, Fachbereich 1 (Physik u. Elektrotechnik)
31. August 2000

Transurane in der Umgebung zweier Nuklearanlagen in der Elbmarsch - Widerlegung einer im GSF-Jahresbericht 1999 behaupteten Deutung als Kernwaffenfallout

Zusammenfassung

Neuere Messungen an Dachbodenstaub aus der Elbmarsch in der Umgebung des Kernkraftwerks Krümmel und der Kernforschungsanlage GKSS¹ bestätigen, dass sich dort Transurane befinden, die sich weder mit altem Kernwaffenfallout, noch als Relikte des Tschernobylunfalls, noch als Kombination von Auswirkungen beider Quellen erklären lassen.

Einleitung

Die im Jahr 1998 mittels γ -Spektroskopie und Plutonium- α -Analysen ausgeführten Messungen an Hausstaubproben aus der Elbmarsch (1) wurden von mir als Nachweis eines Eintrags von Transuranen interpretiert, der nur von den dort vorhandenen kerntechnischen Anlagen stammen kann. Herr Dr. Kirchner aus Bremen vertrat daraufhin die Meinung, dass die gemessenen Kontaminationen eindeutig auf die allenthalben aufzufindenden Relikte des Kernwaffenfallouts zurückzuführen seien (2). Demgegenüber gab die Physikalisch-Technische Bundesanstalt (PTB) Braunschweig in einer Pressemitteilung bekannt, die Elbmarschmeßwerte seien mit Tschernobylemissionen in Einklang (3). Damit begab sie sich scheinbar in Widerspruch zu Angaben der Strahlenschutzkommission (SSK), die nach dem Tschernobylereignis mitteilte, dass der Plutoniumeintrag in Deutschland durch den Unfall gering sei (4). Diese Einschätzung beruht u.a. auf Messungen der Gesellschaft für Strahlen- und Umweltforschung (GSF) an süddeutschen Böden, in denen sich die Beiträge der Plutoniumisotope 238 und 239/240 gegenüber denen des Kernwaffenfallouts als unwesentlich darstellten (5).

Im kürzlich erschienenen Jahresbericht der GSF für 1999 ist niedergelegt, durch Messungen des Instituts für Strahlenschutz sei die behauptete Kontamination mit Plutonium und Americium in der Umgebung des AKW Krümmel als aus dem globalen Fallout von Kernwaffen herrührend identifiziert worden. Verwiesen wird dabei auf die kontinuierliche Bestimmung der Nuklide Cäsium 137 (Cs 137), Strontium 90 (Sr 90), Plutonium 238 (Pu 238) und Plutonium 239+240 (Pu 239/240) in Luft und Niederschlag (6).

Unsere Interpretation der Messungen von 1998 stützte sich insbesondere auf die vergleichsweise hohen Americium 241 (Am 241)-Konzentrationen im Dachbodenstaub aus der Elbmarsch und auf Befunde über das Isotop Plutonium 241 (Pu 241), das von der GSF und anderen deutschen Laboren u. W. im interessierenden Zeitraum nicht bestimmt worden ist. Da jedoch die meisten Am 241-Meßwerte aus der Elbmarsch nur wenig oberhalb der Nachweisgrenze lagen und nur qualitative Aussagen über den Beitrag von Pu 241 möglich waren (1, 7), wurden weitere Messungen veranlaßt, bei denen Am 241 alphaspektrometrisch und der Betastrahler Pu 241 ebenfalls quantitativ und mit hoher Empfindlichkeit bestimmt wurden.

¹ Ges. f. Kernenergieverwertung in Schiffbau u. Schifffahrt Geesthacht

Nachmessungen über Transurane in Elbmarschproben und Dachbodenstaub aus Kontrollregionen 1999/2000

Mit weiteren Messungen über Transurane in Dachbodenstaub wurde das Henryk Niewodniczanski-Institut für Kernphysik in Krakau betraut. Die Finanzierung übernahm wiederum die Bürgerinitiative gegen Leukämie in der Elbmarsch. Die Nuklide Pu 238, Pu 239/240, Am 241 und Cm 244 wurden nach radiochemischer Trennung alphaspektrometrisch nach der Methode von (8) mit Modifikationen entsprechend (9) bestimmt und das Isotop Pu 241 betaspektrometrisch (10). Das Labor ist mit diesen Spezifikationen in der internationalen Literatur ausgewiesen und nimmt an Ringversuchen der IAEA teil.

8 Proben des vormals gesammelten und 1998 vermessenen Dachbodenmaterials aus der Samtgemeinde Elbmarsch und von Kontrollorten wurden nach Krakau geschickt und trugen die gleiche Bezeichnung („Marschacht 2“ usw.) wie in der vorangehenden Meßserie (1). Hinzu kamen zwei neue Kontrollproben.

Das Material lag teils als Originalstaub und teils als Asche vor, letzteres wurde allerdings in Krakau nachgeglüht (dadurch erklären sich z. Teil die höheren Meßwerte in der neuen Meßserie). Die Probenmengen betrugen 20-50 g. Gammastrahlende Spaltprodukte wurden bei dieser Meßserie nicht bestimmt.

Die Bestimmung von Cm 244 ergab in sämtlichen Proben Werte unterhalb der Nachweisgrenzen von $<0,01$ - $<0,2$ Bq/kg. Die übrigen Ergebnisse sind in Tabelle 1 niedergelegt:

Elbmarsch

Die Ortsteile Marschacht und Tespe der Samtgemeinde Elbmarsch liegen am niedersächsischen Elbufer direkt gegenüber dem Kernkraftwerk Krümmel und der Kernforschungsanlage GKSS innerhalb 4 km Entfernung von beiden Anlagen.

Vergleichsorte

Außer von den weit entfernten Regionen Bremen (Haus Baujahr 1957) und Aurich (Alter ca. 10 Jahre) wurde Dachbodenstaub aus näher gelegenen Orten gemessen. Der Staub aus Adendorf bei Lüneburg (ca. 14 km entfernt von Krümmel) stammt aus dem Zeitraum nach 1992. Lüneburg (Haus Baujahr 1963) liegt ca. 20 km entfernt und Scharnebeck bei Lüneburg ca. 14 km. Das Alter des Staubes aus Scharnebeck ist nicht bekannt.

In Tab.1 sind zum Vergleich auch die 1998 ermittelten Konzentrationen aufgeführt, ferner die vormaligen Meßwerte über Cs 137.

Die neuen Ergebnisse über die alphastrahlenden Transurane (außer Cm 244) sind auch in der Abb.1 dargestellt.

Tab.1 Transurane in Dachbodenstaub aus Elbmarsch und Kontrollorten, gemessen Okt.99-Jan.00
im Labor Krakau

Werte in Klammern: Meßwerte Labor Oldenburg und/oder Labor Bremen 1998

Angaben in Bq/kg Asche

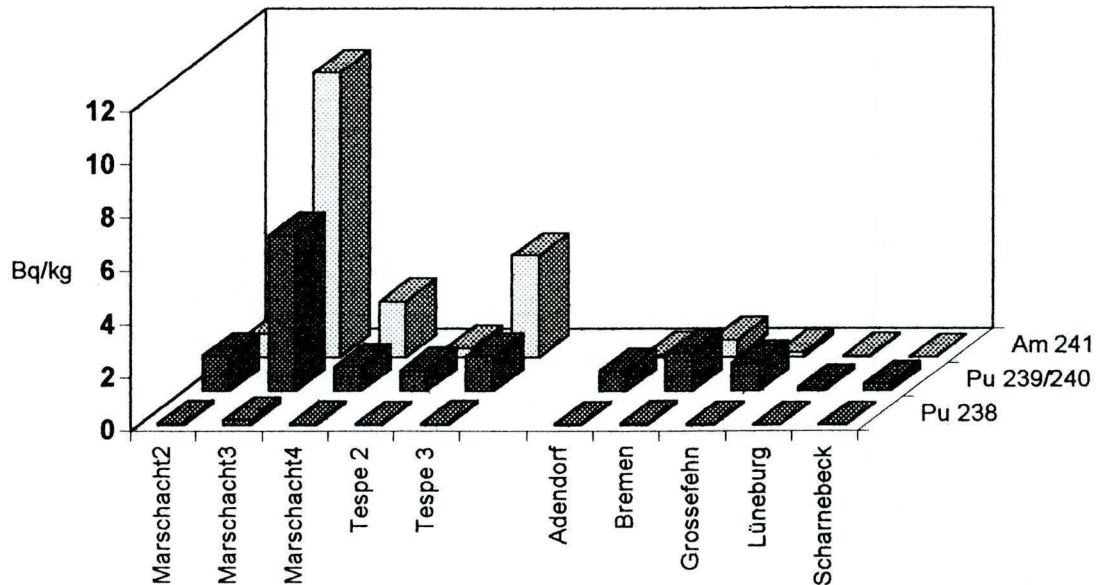
Probe	Cs 137	Pu 238	Pu 239/240	Pu 241	Am 241	Meßlabor 1998
Elbmarsch						
Marschacht 2	(32±2*)	0,072±0,013 (0,025±0,020*)	1,34±0,11 (0,636±0,026*)	4,5±0,1 (>6*)	0,88±0,10 (0,60±0,09*)	(Bremen)
Marschacht 3	(242±12) (71±4*)	0,189±0,015	5,86±0,31	15,3±0,2	10,7±1,2 (2,9±0,7) (0,90±0,08*)	(Oldenburg) (Bremen)
Marschacht 4	(59,3±0,6)	0,046±0,004	0,93±0,05	2,5±0,1	2,1±0,6 (0,7±0,5)	(Oldenburg)
Tespe 2	(152±1) (92±5*)	0,042±0,007 (0,12±0,05)	0,79±0,06 (0,84±0,05)	3,6±0,1	0,34±0,10 (<2,1) (0,30±0,08*)	(Oldenburg) (Bremen)
Tespe 3 Bauj. ca.1900	(144±0,6)	0,065±0,007	1,32±0,07	2,5±0,1	3,8±0,5 (0,5±0,3)	(Oldenburg)
Mittelwert		0,083	2,05	5,7	3,6	
Vergleichsorte						
Adendorf b. Lüneburg		0,041±0,007	0,77±0,06	2,8±0,1	0,10±0,06	
Bremen Baujahr 1957	(88±3*)	0,076±0,010 (1,1±0,5**)	1,42±0,09 (2,4±0,4**)	2,6±0,1	0,65±0,12 (<0,3*)	(Bremen)
Grossefehn bei Aurich		0,038±0,005	1,05±0,06	2,3±0,1	0,16±0,13	
Lüneburg Baujahr 1963	(25,5±0,3)	0,003±0,003	0,14±0,01	<0,1	<0,03 (<0,9)	(Oldenburg)
Scharnebeck b. Lüneburg	(11,2±0,2)	0,023±0,006	0,28±0,03	3,2±0,1	<0,01 (<0,84)	(Oldenburg)
Mittelwert		0,036	0,73	2,2	0,19	
Elbm./Kontr.		2,3	2,8	2,6	19	

*) Messungen auf unveraschte Originalmenge bezogen

**) Messung verworfen wegen zu geringer Ausbeute

Mittelwerte aus Messwerten des Krakauer Labors. Bei der Mittelwertbildung wurden bei Ergebnissen unter der Nachweisgrenze die halbe Nachweisgrenze eingesetzt.

Abb.1 Alphastr. Transurane in Dachbodenstaub, Meßwerte Okt. 99 - Jan.00 (Labor Krakau)
 Links: Elbmarsch Rechts: Vergleichsorte



Ausschluß eines nennenswerten Tschernobylbeitrags

Die Auffassung der PTB, die Elbmarschkontaminationen könnten durch Tschernobyl erklärt werden, führt in der Tat zu Widersprüchen, denn die aufgefundenen Absolutmengen an Pu 238 und Pu 239/240 sind durch die Ergebnisse der PTB in Berlin und Braunschweig nicht erklärbar. Ihre Messungen in Luft sind sehr empfindlich. Um 10-20 g Probenmasse zu erhalten, saugen sie 1,5 Millionen cbm Luft durch einen Filter und erhielten im Tschernobyljahr für Pu 239/240 eine mittlere Konzentration von 11 mBq/g = 11 Bq/kg (3, 11).

Anhand der gleichzeitig gemessenen Cs 137-Konzentrationen in Luft läßt sich ableiten, dass dadurch keine Plutoniumablagerungen erzeugt werden können, wie sie auf den Dachböden beobachtet wurden. Von der PTB wird angegeben, dass das Verhältnis der Nuklide Pu 239/240 zu Cs 137 in den Luftaerosolen im Tschernobyljahr $3,5 \cdot 10^{-5}$ betrug (11). Das korrespondiert mit Angaben der SSK, die für dieses Verhältnis einen Wert im Bereich von 10^{-5} ableitete (4). Die größte Cs 137-Konzentration für Dachbodenstaub ergab sich bei den nachgemessenen Proben mit 242 Bq/kg für Marschacht 3 (Tab.1). Würde man diese ausschließlich auf einen Tschernobyleintrag zurückführen, so könnte die tschernobylbedingte Konzentration von Pu 239/240 im Dachstaub höchstens $0,8 \cdot 10^{-2}$ Bq/kg betragen. Gemessen wurden in der Elbmarsch aber Werte von 0,79 bis 5,86 Bq/kg (Tab.1) und damit das mehr als 100-fache.

In den folgende Jahren sank die Plutoniumkonzentration in Luft um mehr als das 30fache und das Verhältnis Pu 239/240 zu Cs 137 stieg in Braunschweig und Berlin auf etwa $1,5 \cdot 10^{-3}$ an (11). In entsprechenden Messungen der GSF in Neuherberg (bei München) liegt das Verhältnis nach Tschernobyl in etwa der gleichen Höhe (6). Die verbliebenen Nuklidkonzentrationen werden auf resuspendierten Bodenstaub zurückgeführt.

Nimmt man an, dass die untersuchten Dachböden in der Elbmarsch nur resuspendiertes Pu 239/240 von Tschernobyl enthielten, so könnten mit dem angegebenen Faktor von $1,5 \cdot 10^{-3}$ maximal 23 % eines erhaltenen Meßwerts (für die Probe Tespe 2) erklärt werden (16 %

für Tespe 3 und <10% für die Proben Marschacht 2-4). Eine solche Annahme ist aber unrealistisch, da sämtliche Dachböden im Tschernobyljahr 1986 schon aufnahmefähig waren, weil wir wegen des Betriebsbeginns des Kernkraftwerks Anfang 1984 nur entsprechend alte Häuser untersucht haben (1). Daher kann man davon ausgehen, dass der höhere Tschernobylbeitrag durch die Luftkonzentration im Zeitraum unmittelbar nach dem Unfall geliefert wurde.

Aus diesen Überlegungen folgt, dass der Tschernobylbeitrag an Plutonium in den Elbmarschproben zu vernachlässigen ist und anhand der gemessenen Nuklidrelationen die Frage geklärt werden kann, ob es sich um reinen Kernwaffenfallout und/oder andere Quellen handelt.

Betrachtungen zur Herkunft der Transurane im Dachbodenstaub der Elbmarschhäuser

In den 5 Elbmarschproben der neuen Meßserie wurde ein Mittelwert von 3,6 Bq/kg für Am 241 festgestellt und damit eine im Durchschnitt 19-fach höhere Konzentration vorgefunden als in den Kontrollen (Tab. 1, Abb. 1). Letztere erreichten in keinem Einzelfall einen Wert oberhalb von 1 Bq/kg (1). Die Aufsichtsbehörde in Kiel hatte als Entgegnung auf unsere Behauptungen Ergebnisse von 4 weiteren Dachbodenstäuben in Deutschland vorgelegt, die ebenfalls keine höheren Konzentrationen aufwiesen. Zwei davon stammten aus Messungen des TÜV Energie und Systeme, München, von 1998. In einer Staubprobe aus einem Dachraum eines Münchner Wohnhauses wurde eine Am 241-Konzentration zwischen 0,5 und 1 Bq/kg bestimmt, die 2. Messung an Dachstaub aus Lauchdorf bei Bad Wörishofen (Kirche) lag bei 0,25-0,75 Bq/kg. Aus Norddeutschland stammen 2 Messungen durch das Bundesamt für Seeschifffahrt und Hydrographie, die ebenfalls 1998 ausgeführt wurden (Angaben in Bq/kg):

	Cs 137	Pu 239,240	Pu 238	Am 241
1) 20 J. alter Heuboden bei Itzehoe	50,1±0,4 %	0,173±5,7 %	0,007±16,6 %	0,084±6,4 %
2) Haus von 1995 in Wedel/Holstein	5,0±2 %	0,056±12 %	<0,003	0,025±21 %

Es bestätigt sich somit die von uns behauptete ungewöhnlich hohe Kontamination durch Am 241 in der Elbmarsch, die in den Häusern Marschacht 3 und 4 sowie Tespe 3 vorliegt (Abb. 1). Marschacht und Tespe sind auch die Ortsteile der Samtgemeinde Elbmarsch, in denen die meisten Leukämiefälle aufgetreten sind (12).

Außer durch die erhöhte Am 241-Konzentration zeigt sich die von der üblichen Falloutbelastung abweichende Kontamination durch Transurane in der Elbmarsch anhand des Verhältnisses der Radionuklide.

Das Aktivitätsverhältnis Pu 238/239,240 beträgt nach Literaturangaben für Bombenfallout 3,5 %, s. z.B. (13). Der SNAP-Unfall 1964 mit einer Freisetzung von Pu 238 in die Atmosphäre führte in der nördlichen Hemisphäre nach (14) zu einem Verhältnis von 3,6 % (München 3,1 %; Roskilde 3,6 %). Gemessen wurden in Deutschland in Boden Verhältnisse von ca. 3 % (15) bzw. 3,7±0,33 % (16). Messungen in Italien lieferten nur ein Verhältnis von 2,93 % (17). Die entsprechenden Relationen in der Elbmarsch zeigen demgegenüber keine signifikanten Abweichungen und auch nicht gegenüber den Kontrollen (Spalte 2, Tab. 2).

Tab.2 Relationen für Transurane in Dachbodenstaub Okt.99-Jan.00 (Labor Krakau)
Vergleich mit Erwartungswerten für das Jahr 1998

Probe	Pu 238 Pu239/240	Pu 241 Pu239/240	Pu 241 Am 241	Am 241 Pu239/240
zu erwarten f. Waffenfallout	0,03-0,04	ca. 2	ca. 5	0,3-0,4
Elbmarsch				
Marschacht 2	0,054	3,4	5,1	0,66
Marschacht 3	0,032	2,6	1,4	1,8
Marschacht 4	0,049	2,7	1,2	2,3
Tespe 2	0,053	4,6	10,6	0,43
Tespe 3	0,049	1,9	0,66	2,9
Mittelwert	0,040	2,8	1,6	1,8
Vergleichsorte				
Adendorf	0,053	3,6	28	0,13
Bremen	0,053	1,8	4,0	0,46
Grossefehn	0,036	2,2	14,4	0,15
Lüneburg	0,021	<0,7	n.a.*	<0,2
Scharnebeck	0,082	11,4	n.a.*	<0,04
Mittelwert	0,049	3,0		0,26

*) nicht angebar

Einige extreme Abweichungen zeigen sich jedoch in den anderen Verhältnissen. Das Plutoniumisotop 241 als Mutternuklid von Am 241 hat nur eine Halbwertszeit von 13,2 Jahren. Kurz nach der Bombenexplosion beträgt das Verhältnis Pu 241/Pu 239,240 etwa 15:1 (18); das sich aus dem Pu 241 bildende Am 241 müßte 1998 etwa in einem Verhältnis 0,3-0,4 verglichen mit Pu 239,240 vorliegen (18,19,20,21). Im Bombenfallout müßte das Verhältnis Pu 241/Pu 239,240 im Jahr 1998 etwa 2:1 betragen (22), das Verhältnis Pu 241/Am 241 ca. 5:1.

Wie Tab.2 zeigt, stimmen insbesondere die Proben Marschacht 3 und 4 sowie Tespe 3 im Verhältnis Am 241/Pu 239,240 nicht mit Waffenfallout überein (Spalte 5, Tab.2), da sich deutlich mehr Am 241 als Pu 239,240 zeigt, während in Waffenfallout nur 30-40 % Am-Aktivität im Vergleich zu diesen Plutoniumisotopen vorhanden sein dürfte. Dieser Unterschied wird auch durch die Vergleichsmessungen bestätigt, deren Verhältniswert stets unter 0,5 liegt, wie auch bei den o.g. Staubproben aus Norddeutschland 1998. Durch Resuspension vom Boden ist eine solche Umkehrung des Verhältnisses Am 241/Pu 239,240, wie sie in Elbmarschhäusern beobachtet wird, auch nicht zu erklären. In Schweizer Böden wurden 1998 Meßwerte von 0,33-0,64 für dieses Verhältnis gemessen und damit dem Bombenfallout zugeordnet (23).

Diskussion und Schlußfolgerung

Das in den Elbmarschproben gemessene Verhältnis Pu 238 zu Pu 239/240 (1) wurde von verschiedenen Institutionen als Beweis dafür angesehen, dass es sich bei den Kontaminationen um Waffenfallout handele und nicht um Reaktorfallout. Offenbar ist es auch das Argument, welches die GSF für ihre o.g. Behauptung geltend macht. Dieser Parameter ist jedoch als Entscheidungskriterium über die Herkunft ungeeignet, da das Isotopenverhältnis bei Reaktorbrennstoff von der Zusammensetzung und dem Abbrand abhängt und auch entsprechend niedrige Werte möglich sind (1, 7).


Bereits in der ersten Meßserie (1) hatte sich in den Elbmarschproben eine zu hohe Am 241-Konzentration gezeigt, um als Waffenfallout eingeordnet zu werden. In den wenigen Plutoniumanalysen hatte sich zudem ein unpassend großes Verhältnis von Am 241 zu Pu 239/240 ergeben.

Die deutlich erhöhte Am 241-Konzentration in der neuen Meßserie und die Zusammensetzung der Elbmarschtransurane bezüglich der anderen Nuklide - unter Ausschluß von Tschernobylfallout - bestätigen, dass es sich dort nicht um Umweltbelastungen aus den bekannten Ursachen handeln kann. Vielmehr ist von einer Zusatzquelle in der Nähe auszugehen. Ausgangspunkt unserer Suche nach Transuranen in der Elbmarsch waren die in eigenen Messungen und den Unterlagen der Betreiber und der Aufsichtsbehörde aufgefundenen Umgebungskontaminationen durch Spalt- und Aktivierungsprodukte (1, 7, 12) und die Feststellung, dass im Kraftwerk Krümmel extrem hohe Kühlmittleckagen in den Sicherheitsbehälter erfolgten, außerdem die in Bewohnern der Elbmarsch festgestellten Chromosomenstörungen, die sehr deutliche Hinweise auf einen Beitrag durch inkorporierte α -Strahler geben (12). Über die Herkunft der erhöhten Transuraneinträge können dennoch derzeit nur Vermutungen angestellt werden, zumal die jetzigen Meßwerte keine genaueren Schlußfolgerungen über den Zeitpunkt der Emissionen gestatten. Auch übersteigt es die Möglichkeiten externer Beobachter oder einer Bürgerinitiative, die zugrundeliegenden Vorgänge zu erforschen, dies wäre die Aufgabe der Aufsichtsbehörde.

Die Aufsichtsbehörde in Kiel hatte unter finanzieller Beteiligung des niedersächsischen Sozialministeriums ebenfalls genauere Messungen in Auftrag gegeben, deren Ergebnisse u. W. seit Anfang des Jahres vorliegen. Das an der Universität Mainz eingesetzte massenspektrometrische Meßverfahren gestattet die getrennte Erfassung aller Plutoniumisotope. Es müßte daher für die Herkunftsanalyse der beobachtbaren Transurane in der Elbmarsch besonders geeignet sein. Eine Information der Kommissionen zur Aufklärung des Leukämievorkommens in der Elbmarsch ist bisher nicht erfolgt.

1. Schmitz-Feuerhake, I.: Bericht über Plutoniumbestimmungen in der Elbmarsch vom 20.11.1998, Strahlentelex Nr. 286-287, 3. Dez. 1998, S. 2
2. Kirchner, Priv.-Doz. Dr. Gerald: Stellungnahme zum Gutachten zu Plutonium-Emissionen des KKK, Autorin: Frau Prof. Dr. Schmitz-Feuerhake. Universität Bremen, 9.12.1998
3. Physikalisch-Technische Bundesanstalt: Plutonium in der Umwelt. Presseerklärung vom 8.12.1998, Braunschweig PI 28/98
4. Bundesminister für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (Hrsg.): Auswirkungen des Reaktorunfalls in Tschernobyl auf die Bundesrepublik Deutschland. Veröffentlichungen der Strahlenschutzkommission Band 7, Stuttgart, New York 1987
5. Gesellschaft für Strahlen- und Umweltforschung Neuherberg, GSF-Bericht 16/1986
6. GSF-Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit, Neuherberg: Jahresbericht 99, München 2000
7. Strahlentelex Nr. 298-299, 3. Juni 1999, S. 6-7
8. LaRosa, J.J. et al.: Radiochemical methods used by the IAEA's laboratories at Seibersdorf for the determination of ^{90}Sr , ^{144}Ce and Pu radionuclides in the environment samples collected for the International Chernobyl project. J. Environm. Radioactivity 17 (1992) 183-209
9. Mietelski, J.W., Was, B.: Plutonium from Chernobyl in Poland. Applied Radiat. Isotopes 46 (1995) 1203-1211
10. Mietelski, J.W., Dorda, J., Was, B.: Pu-241 in samples of forest soil from Poland. Applied Radiat. Isotopes 50 (1999)
11. Kolb, W.: Der Plutonium-Gehalt der Aerosole der bodennahen Luft in Berlin im Zeitraum von 1985 bis 1992. In Winter, M., Wicke, A.: Umwelt, Radioökologie, Strahlenwirkungen. 25. Jahrestag. Fachverband f. Strahlenschutz, Binz 28.-30.9.1993, FS-93-67-T
12. Schmitz-Feuerhake, I., Dannheim, B., Heimers, A., Oberheitmann, B., Schröder, H., Ziggel, H.: Leukemia in the proximity of a German boiling water nuclear reactor: evidence of population exposure by chromosome studies and environmental radioactivity. Environ. Health Persp. 105, Suppl.6 (1997) 1499-04

13. Eisenbud, M.: Environmental Radioactivity. Academic Press, San Diego 1987
14. Hardy, E.P., Krey, P.W., Volchok, H.L.: Global inventory and distribution of fallout Plutonium. *Nature* 241 (1973) 444-445
15. Bunzl, K., Kracke, W.: Soil to plant transfer of $^{239+240}\text{Pu}$, ^{238}Pu , ^{241}Am , ^{137}Cs and ^{90}Sr from global fallout in flour and bran from wheat, rye, barley and oats, as obtained by field measurements. *Sci. Total Environm.* 63 (1987) 111-124
16. Bunzl, K., Kracke, W.: Cumulative deposition of ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{241}Am from global fallout in soils from forest, grassland and arable land in Bavaria (FRG). *J. Environm. Radioactivity* 8 (1988) 1-14
17. Cigna, A.A. et al.: Environmental study of fallout Plutonium in soils from the Piemonte region (North-West Italy). *J. Environ. Radioactivity* 5(1987)71-81
18. Global atmospheric Pu-239 und Pu isotopic ratios for 1959-1970, US AEC Report HASL-273 (1973) 3 zitiert nach (22)
19. Bunzl, K., Kracke, W.: Soil to plant transfer of $^{239+240}\text{Pu}$, ^{238}Pu , ^{241}Am , ^{137}Cs and ^{90}Sr from global fallout in flour and bran from wheat, rye, barley and oats, as obtained by field measurements. *Sci. Total Environm.* 63 (1987) 111-124
20. Ryan, T.P., Mitchell, P.I. et al.: Low-level ^{241}Pu analysis by supported-disk liquid scintillation counting. In Noakes, J.E. et al. (Eds.), *Liquid scintillation spectrometry 1992*. RADIOCARBON 1993, 75-82
21. Krey, E.P. et al.: Mass isotopic composition of global fall-out Plutonium in soil. IAEA 1976, 671-678
22. Hakanen, M., Jaakkola, T., Korpela, H.: Simultaneous determination of ^{241}Pu , ^{238}Pu and $^{239, 240}\text{Pu}$ in low activity environmental samples. *Nucl. Instr. Meth.* 223 (1984) 382-385
23. Froidevaux, P., Geering, J.-J., Valley, J.-F., Völkle, H.: Plutonium und Americium in der Umwelt. Methoden und Ergebnisse von Messungen in der Schweiz in 1998. *Strahlenschutzpraxis* 3/99, 31-33


Prof. Dr. Inge Schmitz-Feuerhake

Anlage S. 9: Angaben des Henryk Niewodniczanski-Instituts für Kernphysik, Krakau, über die angewendeten Meßverfahren

ANNEX - Method of measurements

Dissolution (based in general on the J.J.LaRosa et. al. 1992, JER, vol. 17, p. 183, with modifications):

1. samples in PTFE beakers, added: 5 ml 1M HNO₃, tracers (²³⁶Pu, ¹⁴⁸Gd – both on the level of 10 mBq per sample), 70 ml HF, heated for 4 h,
2. evaporated, 30 ml HF added and evaporated to dryness,
3. three times 50 ml conc. HNO₃ added, evaporated to dryness,
4. 50 ml conc. HCl added, heated for 20 minutes, 2 g boric acid added, evaporated to dryness,
5. 50 ml HNO₃ added, evaporated to 10 ml, 100 ml double distilled water added, heated,
6. after cooling centrifuged, filtrated (paper filter) and converted to glass beakers.

Separation (based in general on the J.J.LaRosa et. al. 1992, JER, vol. 17, p. 183, with modifications - Mietelski & Was, ARI, 1995):

1. 1 ml of hydrazine added, heated for 10 minutes,
2. 30 ml of conc. HNO₃ added, heated for 30 minutes,
3. 5 g NaNO₂ added, heated for 20 minutes,
4. converted to 200 ml of 8M HNO₃,
5. anion exchange procedure,
resin: DOWEX 1x8 200-400 mesh (Fluka), originally chloric form, converted to nitric form by passing 50 ml of 2M HNO₃ and then 50 ml of 8M HNO₃,
columns: $\phi_{inner}=4$ mm, h=100 mm.
6. after passing the column: Am in effluent, Pu on the column,
7. Th washed out the column by 50 ml conc. HCl,
8. Pu stripped off the column by 25 ml 0.1 M HCl + 0.1 M HF,
9. Pu alpha spectrometric source prepared by NdF₃ co-precipitation method,

Am fraction:

10. co-precipitation from solution with oxalates at pH=3
11. after digestion of oxalates (600°C) dissolution in hot HNO₃.
12. co-precipitation of iron hydroxide at pH>9
13. re-purification from traces of Th (DOWEX 1x8), columns and resin as above.
14. anion exchange procedure (acid-methanol solutions, DOWEX 1x8)
15. NdF₃ co-precipitation source

Pu-241:

16. Pu alpha source dissolved in hot conc. HNO₃+boric acid,
17. evaporated to almost dryness, dissolved in 2 ml 1 M HNO₃, filtered
18. converted to LS vial, 10 ml Wallc HiSafe3 added.

Counting method:

Pu-239:

Pu-236 tracer used, Spectrometer Silena AlphaQuattro, close geometry, det. Canberra PIPS, 450 mm², source 15 mm diameter
spectra evaluation: ALF software (Mietelski, 1993), sums in ROI corrected for background, Pu-238 corrected for tail of Pu-236.

Pu-241

Spectrometer Wallac 1414-003 Guardian, alpha/beta discrimination ON (PSA=120), Pu alpha emitters (Pu239+240 +Pu-238+Pu-236) play role of tracer (Mietelski, Dorda and Was, ARI, 1999), tritium protocol and quenching library used for Pu-241 calculations. Activity of alpha emitters determined from net alpha peak area using ALF software.

Am-241

Gd-148 tracer used, Spectrometer Silena AlphaQuattro, close geometry, det. Canberra PIPS, 450 mm², source 15 mm diameter
spectra evaluation: ALF software (Mietelski, 1993), sums in ROI corrected for background.