

Strahlenschutzkommission

Geschäftsstelle der
Strahlenschutzkommission
Postfach 12 06 29
D-53048 Bonn

<http://www.ssk.de>

Bewertung von Messungen der ARGE PhAM zur Radioaktivität in der Elbmarsch

Stellungnahme der Strahlenschutzkommission

Verabschiedet in der 183. Sitzung der Strahlenschutzkommission am 14.02.2003

Inhaltsverzeichnis

1	Einführung	3
2	Stellungnahme der Strahlenschutzkommission	5

Anhang: Ausführliche Erläuterungen zur Stellungnahme

A 1	Einleitung	9
A 1.1	Vorgeschichte und Beratungsauftrag	9
A 1.2	Durchführung der Beratung	11
A 1.3	Methodik	12
A 2	Die durch die SSK zu bewertenden Kernaussagen der ARGE PhAM	13
A 3	Stellungnahme zu den Kernfragen des Beratungsauftrags	14
A 3.1	Qualität der verfügbaren Daten	15
A 3.1.1	Allgemeine Anforderungen	15
A 3.1.2	Bewertung der vorliegenden Berichte	15
A 3.2	Vorkommen und Isotopenverhältnisse von natürlichen Radionukliden und Cäsium in Bodenproben	18
A 3.2.1	Gehalte von natürlichen Radionukliden und von Cs-137 in Bodenproben	18
A 3.2.2	Erkennungs- und Nachweisgrenzen für die Messung von Isotopenverhältnissen	19
A 3.2.3	Mögliche Fehlerquellen bei der Überprüfung einer Abweichung von erwarteten Isotopenverhältnissen	24
A 3.3	Vorkommen und Isotopenverhältnisse von Plutonium in Umweltproben	28
A 3.3.1	Plutoniumanalysen des Instituts für Kernchemie der Universität Mainz	29
A 3.3.2	Plutoniumanalysen des Instituts für Transurane	31
A 3.3.3	Plutoniumanalysen des Niedersächsischen Landesamts für Ökologie	32
A 3.3.4	Plutoniumanalysen der Landwirtschaftlichen Untersuchungs- und Forschungsanstalt Kiel	33
A 3.3.5	Plutoniumanalysen des GKSS-Forschungszentrums	34
A 3.3.6	Plutoniumanalysen des Forschungszentrums Jülich	35

A 3.3.7	Plutoniumanalysen der Universität Marburg.....	36
A 3.4	Befunde zu Americium, Neptunium und Curium in Umweltproben.....	36
A 3.4.1	Americium-241-Analysen der Landwirtschaftlichen Untersuchungs- und Forschungsanstalt Kiel.....	37
A 3.4.2	Americium-241-Analysen des Instituts für Transurane.....	38
A 3.4.3	Americium-241-Analysen des Niedersächsischen Landesamts für Ökologie.....	39
A 3.4.4	Americium-241-Analysen der Landwirtschaftlichen Untersuchungs- und Forschungsanstalt Kiel.....	40
A 3.4.5	Analysen von Np-237, Am-243 und Cm-244 im Auftrag der ARGE PhAM.....	41
A 3.5	Befunde zu radioaktiven Spalt- und Aktivierungsprodukten sowie Tritium in Umweltproben.....	46
A 3.5.1	Befunde zu den Spalt- und Aktivierungsprodukten Cs-134, Cs-137 und Co-60 in Bodenproben.....	46
A 3.5.2	Befunde zu Tritium in Bodenproben.....	47
A 3.5.3	Zusammenfassende Bewertung der Befunde zu radioaktiven Spalt- und Aktivierungsprodukten sowie Tritium.....	48
A 3.6	Befunde zu Kügelchen.....	48
A 3.6.1	Aussagen zu Kügelchen in den Berichten der ARGE PhAM.....	49
A 3.6.2	Messungen und Aussagen von Prof. Ensinger (Universität Marburg) zu Kügelchen.....	51
A 3.6.3	Messungen und Aussagen des Niedersächsischen Landesamts für Ökologie zu Kügelchen.....	51
A 3.6.4	Messungen und Aussagen der Landwirtschaftlichen Untersuchungs- und Forschungsanstalt Kiel zu Kügelchen.....	52
A 3.6.5	Messungen und Aussagen des GKSS- Forschungszentrums zu Kügelchen.....	53
A 3.6.6	Messungen und Aussagen des Forschungszentrums Jülich zu Kügelchen.....	54
A 3.6.7	Messungen und Aussagen des Instituts für Transurane zu Kügelchen.....	54
A 3.6.8	Messungen und Aussagen von Dr. Stevenson (Universität Kiel) zu Kügelchen.....	55
A 3.6.9	Zusammenfassende Bewertung der Befunde zu Kügelchen.....	56
A 4	Bewertung der möglichen Strahlenexposition.....	56

1 Einführung

Zwischen November 1989 und Mai 1991 traten in dem Gebiet am niedersächsischen Elbufer, das dem GKSS-Forschungszentrum Geesthacht und dem Kernkraftwerk Krümmel (KKK) gegenüber liegt, gehäuft Leukämiefälle auf. Nach bekannt werden dieser Häufung wurden die kerntechnischen Anlagen als mögliche Verursacher der Leukämiefälle diskutiert. Trotz umfangreicher Untersuchungen konnte aber kein ursächlicher Zusammenhang festgestellt werden.

Im November 2000 wurde das Thema „Radioaktivität in der Elbmarsch“ von der Arbeitsgemeinschaft Physikalische Analytik und Messtechnik (ARGE PhAM) erneut aufgegriffen. Zunächst wurden von der ARGE PhAM bereits vorliegende Messergebnisse von Plutonium, sonstigen Transuranen, Uran und anderen Radionukliden neu bewertet, dann auch Analysen an selbst genommenen Proben in Auftrag gegeben. Die ARGE PhAM zog aus den Ergebnissen den Schluss, dass die vorliegenden Nuklide nicht aus dem Fallout der Atomwaffenversuche oder des Unfalls in Tschernobyl stammten, sondern bei einem anderen Unfall freigesetzt worden sein müssten. Es wurde dann behauptet, dass öffentlich nicht bekannte Forschungsarbeiten bei Geesthacht stattgefunden hätten, bei denen sich ein schwerer Unfall ereignet habe, der jedoch bisher verschwiegen worden sei.

Auf Wunsch des Bundesministeriums für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (BMU) hat sich die Strahlenschutzkommission (SSK) ab März 2001 mit den Berichten der ARGE PhAM befasst. Im weiteren Verlauf hat das BMU den Beratungsauftrag dahin gehend präzisiert, dass die SSK prüfen möge, ob die von verschiedenen Seiten vorgelegten Messergebnisse Anlass zu der Aussage geben, dass im betrachteten Gebiet

- ein erhöhtes Vorkommen an angereichertem Uran,
- ein erhöhtes Vorkommen an Transuranen,
- gegenüber anderen Gebieten abweichende Pu-Isotopenverhältnisse,
- ein erhöhtes Vorkommen an Tritium und
- PAC-Brennstoffkügelchen

vorliegen.

Die Beratungsthemen wurden später um den Punkt erweitert, in wie weit derartige Befunde zu einer erhöhten Strahlenexposition der Bevölkerung führen können.

Der Ausschuss „Strahlenschutz bei Anlagen“ der SSK hat den Fragenkomplex auf neun Sitzungen im März, April, Mai und Juli 2001, im April, Juni und September 2002 sowie im Januar 2003 detailliert beraten und als Ergebnis eine Stellungnahme formuliert.

Zu den Sitzungsterminen wurden vielfach Mitarbeiter der ARGE PhAM und Personen der Laboratorien, die im Auftrag der ARGE PhAM Messungen durchgeführt haben, eingeladen. Bis auf eine einzige Ausnahme wurde den Einladungen leider nicht gefolgt, so dass viele der aufgestellten Behauptungen, die in den vorliegenden Berichten nicht nachvollziehbar begründet werden, nur eingeschränkt prüfbar waren. Dies hat wesentlich dazu beigetragen, dass nicht immer klar wurde, aus welchem Grund Messungen, die im Auftrag der ARGE PhAM erfolg-

ten, zu deutlich anderen Ergebnissen kommen als alle Messungen anderer Institutionen, selbst wenn es sich um das gleiche Probenmaterial handelte.

Die folgende Stellungnahme wurde von der SSK mehrfach diskutiert und auf ihrer 183. Sitzung am 14. Februar 2003 verabschiedet. Sie gliedert sich in eine kurze zusammenfassende Stellungnahme zu den Fragen des Beratungsauftrags und einen Teil, der den Fragenkomplex detailliert behandelt.

Die Stellungnahme der SSK bezieht sich dabei ausschließlich auf die Aspekte, die einen wissenschaftlichen Hintergrund haben und durch die SSK bewertbar sind. Von einer Stellungnahme ausgeklammert sind daher insbesondere die Behauptungen von ARGE PhAM und IPPNW, die sich auf die Vertuschung eines Unfalls sowie die Spekulationen über mögliche Unfallursachen und durchgeführte geheime Forschungen beziehen.

2 Stellungnahme der Strahlenschutzkommission

Die Stellungnahme der SSK bezieht sich auf die Frage, ob die ab dem Jahr 2000 aufgestellten Behauptungen der Arbeitsgemeinschaft Physikalische Analytik und Messtechnik (ARGE PhAM), dass in der Umgebung von GKSS und KKK Radionuklide aus einem behaupteten Unfall vorliegen, wissenschaftlich durch Messungen ausreichend belegt sind. Für die Stellungnahme wurden sowohl die Berichte der ARGE PhAM als auch die Untersuchungen anderer Institutionen, insbesondere vom Niedersächsischen Landesamt für Ökologie (NLÖ), von der Landwirtschaftlichen Untersuchungs- und Forschungsanstalt Kiel (LUFA), vom GKSS-Forschungszentrum, vom Forschungszentrum Jülich (FZJ) sowie vom Institut für Transurane (ITU), ausgewertet.

Vorkommen von natürlichen Radionukliden der Uran- und Thoriumzerfallsreihen sowie Spalt- und Aktivierungsprodukten in Bodenproben

In den untersuchten Bodenproben aus der Umgebung von KKK und GKSS liegen die natürlichen Radionuklide in Konzentrationen vor, die im Schwankungsbereich der Vorkommen an anderen Standorten in Niedersachsen liegen.

Auch die gemessenen Cäsium-137-Aktivitätskonzentrationen liegen in dem Bereich, der durch den weltweiten Fallout infolge der oberirdischen Kernwaffenversuche und den (sehr inhomogenen) Eintrag aus dem Unfall von Tschernobyl in Norddeutschland verursacht wurde.

Insgesamt ergibt sich aus den Messergebnissen von natürlichen Radionukliden, Spalt- und Aktivierungsprodukten in Bodenproben aus der Umgebung von KKK und GKSS kein Hinweis auf Aktivitätseinträge bislang nicht bekannter Ursache.

Isotopenverhältnisse von Uran und Cäsium

Entgegen der Behauptung der ARGE PhAM ist wissenschaftlich nicht belegt, dass in Umweltproben aus der Umgebung von GKSS und KKK angereichertes Uran und ungewöhnliche Verhältnisse von Cäsium-134 und Cäsium-137 vorliegen, die nur durch einen vertuschten Unfall verursacht sein könnten. Rechnerisch hat zwar die ARGE PhAM - auch aus früheren Messungen - Isotopenverhältnisse von Uran abgeleitet, die angereichertem Uran entsprechen. Dabei wurden aber die üblichen bei diesen Messungen auftretenden Fehler vollkommen ignoriert. Für die Überprüfung von Uran-Isotopenverhältnissen wären weit aufwendigere Messungen erforderlich als sie von der ARGE PhAM veranlasst wurden und wie sie bei routinemäßigen Messungen der Immissionsüberwachung durchgeführt werden. Aktuelle empfindliche Nachmessungen ergeben keinen Hinweis auf angereichertes Uran. Die gemessenen Cäsium-137/Cäsium-134-Verhältnisse sind nicht belastbar, da wegen des radioaktiven Zerfalls des durch den Tschernobyl-Unfall eingetragenen Cs-134 in Umweltproben nur noch geringe Aktivitäten vorliegen und störende Gammalinien anderer Radionuklide zu Fehlinterpretationen führen können.

Vorkommen und Isotopenverhältnisse von Plutonium in Umweltproben

Aus den Plutoniumanalysen des Instituts für Kernchemie der Universität Mainz ergibt sich gegenüber Vergleichsgebieten weder ein Hinweis auf höhere Plutoniumgehalte in Hausstaubproben aus der Umgebung von KKK und GKSS noch ein Hinweis auf abweichende Isotopenverhältnisse des Plutoniums.

Messungen von Plutoniumisotopen in Bodenproben wurden von vielen Institutionen in Folge der Behauptungen der ARGE PhAM vorgenommen: vom ITU, vom NLÖ, von der LUFA, von der GKSS sowie vom FZJ. Die Messergebnisse von keiner der Institutionen ergeben einen Beleg für erhöhte Plutoniumgehalte oder ungewöhnliche Isotopenzusammensetzungen.

Die abweichenden Ergebnisse der Universität Marburg, durchgeführt im Auftrag der ARGE PhAM, sind vor diesem Hintergrund nicht plausibel. Da zum genauen Vorgehen bei der Probenvorbereitung und Messung keine Angaben gemacht wurden, ist die Qualität dieser Messungen nicht beurteilbar.

Befunde zu Americium, Neptunium und Curium in Umweltproben

Messungen der LUFA zeigen in den Hausstaubproben keinen Hinweis auf einen Eintrag von Americium-241 in Hausstaub des Untersuchungsgebiets, der nicht auf Atomwaffenfallout zurück geführt werden könnte.

In Bodenproben konnte vom NLÖ und von der LUFA kein Americium-241 nachgewiesen werden. Messungen des NLÖ von Americium-243, Curium-242 und Curium-244 ergaben ebenfalls keine Werte oberhalb der Nachweisgrenze.

Bei Bodenproben, die im Auftrag der ARGE PhAM untersucht wurden, wird das Vorhandensein von Americium-243, Neptunium-237 und Curium-244 behauptet. Dies ist allerdings extrem unrealistisch und würde sich auch nicht mit der von der ARGE PhAM vertretenen Theorie einer Freisetzung von Transurane enthaltendem Brennstoff erklären lassen. Die SSK hat verschiedene Möglichkeiten identifiziert, die zu einer Fehlinterpretation der Daten durch das Messlabor und die ARGE PhAM geführt haben könnten. Da das Messlabor keine Auskunft gab, war eine abschließende Klärung der tatsächlichen Ursache nicht möglich. Die SSK stellt fest, dass ein Vorliegen von Americium-243, Neptunium-237 und Curium-244 in der Umgebung von GKSS und KKK weder bewiesen noch plausibel ist.

Befunde zu Kügelchen

Die ARGE PhAM behauptet, dass sich großflächig verteilt in den Bodenproben Kügelchen befinden, bei denen es sich um transuranhaltige Kernbrennstoffteilchen oder Fusionspartikel handelt. Ein dokumentierter nachvollziehbarer Nachweis, dass es sich um derartige Partikel handelt, ist in den vorliegenden Berichten der ARGE PhAM nicht enthalten. Tatsächlich sind im Boden der Umgebung von GKSS und KKK in unterschiedlicher Konzentration Kügelchen vorhanden, die zum Teil anthropogenen Ursprungs sind, z. B. Flugasche.

Die Aktivitätsmessungen und massenspektrometrischen Messungen an Partikeln und Kügelchen von NLÖ, LUFA, GKSS, FZJ, ITU und Prof. Dr. Ensinger der Universität Marburg (an eigenen Proben) haben keine Hinweise für eine Bestätigung der These, dass es sich um Kernbrennstoffpartikel handelt, erbracht.

Die SSK sieht keine Hinweise auf ein lokales oder gar großräumiges Vorkommen kernbrennstoffhaltiger Kügelchen in den untersuchten Gebieten.

Qualität der Berichte der ARGE PhAM

Die von der ARGE PhAM zu diesem Thema vorgelegten Berichte ELB 2 [ARGE PhAM 2001b], ELB 3 [ARGE PhAM 2001a] und ELB 4 (Zusammenfassung) [ARGE PhAM 2002] werden in keiner Weise den Anforderungen an wissenschaftliche Arbeiten gerecht. Die darin gezogenen Schlussfolgerungen sind wissenschaftlich nicht nachvollziehbar.

Andere – und den Ergebnissen der ARGE PhAM widersprechende – vorliegende Berichte zu Untersuchungen der Radioaktivität in der Umgebung von GKSS und KKK weisen weitgehend eine höhere Qualität in Bezug auf Vollständigkeit der Dokumentation, Nachvollziehbarkeit und wissenschaftlicher Methodik auf. Den Ergebnissen der ARGE PhAM widersprechende Untersuchungen liegen vom NLÖ, der LUFA, der GKSS, dem FZJ sowie dem ITU vor. Diese Untersuchungen wurden dem SSK-Ausschuss „Strahlenschutz bei Anlagen“ erläutert; offene Fragen konnten weitgehend geklärt werden.

Bewertung der möglichen Strahlenexposition durch anthropogene Radionuklide

Die SSK hat die mögliche Strahlenexposition anhand der Freigabewerte der Strahlenschutzverordnung, Anlage III Tabelle 1, für die Freigabe von festen Stoffen und von Bodenflächen abgeschätzt. Diese Freigabewerte wurden so abgeleitet, dass durch die Freigabe eine Dosis im Bereich von 10 μSv pro Jahr bei keiner Person überschritten werden soll. Berücksichtigt man alle anthropogenen Radionuklide außer Cs-137, ergibt diese Abschätzung eine potentielle Strahlenexposition weit unterhalb von 10 μSv pro Jahr.

Die berichteten Cs-137-Daten sind ohne die Annahme zusätzlicher Emissionen aus kerntechnischen Anlagen mit dem Fallout der Kernwaffentests und des Unfalls in Tschernobyl vollständig zu erklären.

Aus den Messergebnissen ergibt sich daher kein Hinweis auf erhöhte Strahlenexpositionen von Personen in der Elbmarsch, insbesondere kein Hinweis auf erhöhte Radioaktivität als Ursache für die dort beobachtete Leukämiehäufung.

Schlussfolgerung

Die Behauptung der ARGE PhAM, dass in der Umgebung von GKSS und KKK anthropogene Radionuklide vorliegen, die nicht auf den Fallout der oberirdischen Kernwaffentests oder des Unfalls in Tschernobyl zurückgeführt werden können, ist wissenschaftlich durch Messungen nicht belegt. Aus der Vielzahl der vorliegenden Messungen ergeben sich keine Hinweise auf das Vorkommen von angereichertem Uran und auf das erhöhte Vorkommen von Transuranen und Spalt- oder Aktivierungsprodukten in der Elbmarsch. Die Messungen ergeben auch keine Hinweise auf ein lokales oder gar großräumiges Vorkommen kernbrennstoffhaltiger Kügelchen. Insgesamt ergibt sich kein Hinweis auf erhöhte Strahlenexpositionen von Personen in der Elbmarsch und damit kein Hinweis auf Radioaktivität als Ursache für die dort beobachtete Leukämiehäufung.

Literaturverzeichnis zur Stellungnahme der SSK

- ARGE PhAM 2001a: Arbeitsgemeinschaft Physikalische Analytik und Messtechnik (ARGE PhAM), Radioaktivität in Elbmarsch und Elbgeest – Hier: Ableitung von Isotopenvektoren zur Entwicklung eines Kontaminationskatasters, Bericht SH/NS/ELB 3, Fassung 20. Juni 2001. – In: Internationale Ärzte für die Verhütung des Atomkrieges, Ärzte in sozialer Verantwortung e.V., Reader Radioaktivität in Elbmarsch und Elbgeest, Untersuchung der ARGE PhAM im Auftrag der IPPNW, Berlin, Juli 2001
- ARGE PhAM 2001b: Arbeitsgemeinschaft Physikalische Analytik und Messtechnik (ARGE PhAM), Messungen der Radioaktivität in Elbmarsch und Elbgeest, Bericht SH/NS/ELB2, 10.2.2001
- ARGE PhAM 2002: Arbeitsgemeinschaft Physikalische Analytik und Messtechnik (ARGE PhAM), Massenspektrometrische Analysen an Mikrokügelchen aufgefunden in der ELB-GEEST und ELB-MARSCH, Bericht SH/NS/ELB4, Mai 2002

Anhang: Ausführliche Erläuterungen zur Stellungnahme

A 1 Einleitung

A 1.1 Vorgeschichte und Beratungsauftrag

Zwischen November 1989 und Mai 1991 traten am dem GKSS-Forschungszentrum Geesthacht und dem Kernkraftwerk Krümmel (KKK) gegenüber gelegenen niedersächsischen Elbufer gehäuft Leukämiefälle auf. In der Samtgemeinde Elbmarsch wurden fünf Fälle von Leukämie bei Kindern beobachtet (Wohnorte Rönne, Marschacht, Tespe und Avendorf), zusätzlich eine Leukämie bei einem Jugendlichen (Wohnort Marschacht) und eine aplastische Anämie bei einem Kind (Wohnort Tespe). Die kerntechnischen Anlagen wurden als mögliche Verursacher der Leukämiefälle diskutiert, sobald die Häufung durch einen örtlichen Arzt bekannt wurde.

In Abbildung 1.1 sind die hier und weiter unten im Zusammenhang mit den Probenahme-stellen genannten Orte dargestellt.

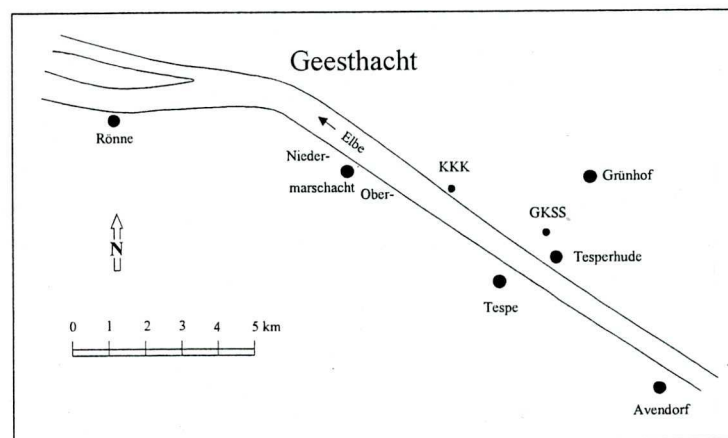


Abbildung 1.1: Orte in der Umgebung von KKK und GKSS-Forschungszentrum

Da der Öffentlichkeit verschwiegene Stör- oder Unfälle in den kerntechnischen Anlagen als mögliche Ursache vermutet wurden, sind seit 1993 umfangreiche Untersuchungen im Auftrag des Landes Schleswig-Holstein durchgeführt worden, bei denen insbesondere automatische Originalaufzeichnungen von Emissionsdaten des KKK und des GKSS-Forschungszentrums sowie die von verschiedenen Institutionen erhobenen Immissionsdaten für den in Betracht zu ziehenden Zeitraum ausgewertet wurden [Öko-Institut 1994, Öko-Institut 1995]. Aus diesen und weiteren anlagentechnischen Untersuchungen [Physikerbüro Bremen 2001] ergab sich aber kein Beleg für Emissionen aus den Anlagen, die für die Leukämiehäufung verantwortlich gemacht werden könnten. Auch anderen Ursachen als Strahlenexpositionen war seit Bekanntwerden der Leukämiehäufung nachgegangen worden, ohne dass eine Ursache hatte identifiziert werden können. Auch durch umfangreiche epidemiologische Untersuchungen konnte der Sachverhalt bisher nicht eindeutig geklärt werden.

Dennoch wurde teils weiterhin das KKK als Verursacher der Leukämiehäufung vermutet. Insbesondere Frau Professor Dr. Schmitz-Feuerhake von der Universität Bremen stellte verschiedene Unfallhypothesen auf. Im November 1998 wurden von ihr Ergebnisse von Messungen von Plutonium, Americium und anderen Radionukliden an Hausstaubproben, die in der Elbmarsch und Referenzorten entnommen und an der Universität Bremen analysiert worden waren, öffentlich vorgestellt [Schmitz-Feuerhake 1998]. Dabei ging sie davon aus, dass die vorgefundene Isotopenzusammensetzung der Transurane nicht mit dem Atomwaffenfallout und dem Unfall in Tschernobyl zu erklären seien. Aufgrund dieses Berichts wurde federführend vom Ministerium für Finanzen und Energie (MFE) des Landes Schleswig-Holstein ein Messkonzept entwickelt und eine umfangreiche eigene Probenahme von Hausstaub aus der Elbmarsch und Referenzgebieten vorgenommen [MFE 2000]. Die Proben wurden vom Institut für Kernchemie der Universität Mainz analysiert; die Ergebnisse sind in der vorliegenden Stellungnahme in Kapitel A 3.3.1 dargestellt. Aufgrund der Messergebnisse ist das Land Schleswig-Holstein davon ausgegangen, dass in der Elbmarsch keine von anderen Regionen abweichenden Konzentrationen von Plutonium, Americium und Cäsium oder abweichende Isotopenverhältnisse beim Plutonium vorliegen.

Im Jahr 2000 wurde das Thema „Radioaktivität in der Elbmarsch und der Elbgeest“ von der Arbeitsgemeinschaft Physikalische Analytik und Messtechnik (ARGE PhAM) aufgegriffen [ARGE PhAM 2001b]. Zunächst wurden von der ARGE PhAM bereits vorliegende Messergebnisse von Plutonium, sonstigen Transuranen, Uran und anderen Radionukliden neu bewertet, dann auch Analysen an selbst genommenen Proben in Auftrag gegeben. Die ARGE PhAM zog aus den Ergebnissen den Schluss, dass nicht der Atomwaffenfallout oder der Unfall in Tschernobyl für die vorliegenden Nuklide und Nuklidzusammensetzungen verantwortlich gemacht werden könne. Es wurde daraufhin behauptet, dass öffentlich nicht bekannte Forschungsarbeiten bei Geesthacht stattgefunden hätten, bei denen sich ein schwerer und verschwiegener Unfall ereignet habe. Diese These wird seither auch von den Internationalen Ärzten für die Verhütung des Atomkrieges/Ärzte in sozialer Verantwortung e.V. (IPPNW), die die ARGE PhAM mit Untersuchungen beauftragten, vertreten [ARGE PhAM 2001a, www.ippnw.de].

Die These eines schweren verschwiegenen Unfalls beinhaltet auch die Behauptung, dass dieser Unfall Behörden des Landes Schleswig-Holstein bekannt gewesen sein muss, von diesen aber vertuscht wurde. Es werden daher von ARGE PhAM und IPPNW auch massive Vorwürfe gegen das Land erhoben, auf Grund derer sich das MFE zunächst veranlasst sah, Messungen zur Entscheidung durchführen zu lassen, ob Maßnahmen der Gefahrenabwehr getroffen werden müssen. Das MFE wandte sich außerdem an das Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (BMU) und regte die Beratung der Problematik durch die Strahlenschutzkommission an. In der vorliegenden Stellungnahme befasst sich die SSK damit, ob Beobachtungen vorliegen, die für die Elbmarsch das Vorhandensein

- von angereichertem Uran,
- von Kernbrennstoffkügelchen,
- von erhöhten Werten an Tritium und Spaltprodukten,
- von erhöhten Werten an Transuranen,
- vom Kernwaffenfallout und von Tschernobyl abweichenden Pu-Isotopenverhältnissen,
- erhöhter Strahlenexpositionen

belegen.

Die Stellungnahme der SSK befasst sich nicht mit Behauptungen der ARGE PhAM über ein Vorliegen von kernbrennstoffhaltigen Partikeln in der Umgebung der stillgelegten Hanauer Brennelementfabriken. Da die Berichte der ARGE PhAM teils sowohl auf die Elbmarsch und Elbgeest als auch auf Hanau Bezug nehmen und auch auf den Ausschusssitzungen der SSK vorgetragene Untersuchungsergebnisse teils beide Standorte betrafen, sind allerdings die Kenntnisse über die Befunde in Hanau in die vorliegende Stellungnahme zu Befunden in der Elbmarsch eingeflossen.

Die Behauptungen zu möglichen Unfällen bzw. Unfallursachen, die zur Verbreitung der behaupteten kernbrennstoffhaltigen Partikel geführt haben könnten, sind ebenfalls nicht Gegenstand der Stellungnahme der SSK.

A 1.2 Durchführung der Beratung

Neben der Beratung vorgelegter Unterlagen wurden auch viele an Untersuchungen Beteiligte zur Anhörung und Diskussion zu den Sitzungen des SSK-Ausschusses „Strahlenschutz bei Anlagen“ eingeladen. Auf einzelnen Sitzungen vorgetragen haben Vertreter folgender Stellen:

- Niedersächsisches Landesamt für Ökologie (NLO),
- Landwirtschaftliche Untersuchungs- und Forschungsanstalt Kiel (LUFA),
- GKSS-Forschungszentrum Geesthacht (GKSS),
- Forschungszentrum Jülich (FZJ),
- Sachverständigenbüro für Strahlenschutzanalytik, Strahlenschutztechnik und Katastrophenschutz Jork (SAST),
- Ministerium für Finanzen und Energie des Landes Schleswig-Holstein (MFE),
- Bundesamt für Strahlenschutz (BfS),
- Institute for Transuranium Elements (ITU).

Seitens der ARGE PhAM hat Herr Gabriel auf der 9. Sitzung des Ausschusses „Strahlenschutz bei Anlagen“ am 29. Mai 2001 Ergebnisse vorgestellt. Trotz weiterer Einladungen kam Herr Gabriel aber zu keiner weiteren Sitzung des genannten Ausschusses.

Da Herr Gabriel die Messungen nicht selbst durchgeführt hat, konnte er nicht die notwendigen Detailauskünfte geben, die zur Aufklärung der je nach Messlabor unterschiedlichen Untersuchungsergebnisse notwendig wären. Es wurden daher auch mehrfach Einladungen an Personen, die direkt mit den Analysen der ARGE PhAM befasst waren, versandt. Von diesen Personen ist niemand der Einladung zu Sitzungen des SSK-Ausschusses gefolgt. Dies hat wesentlich dazu beigetragen, dass nicht aufgeklärt werden konnte, aus welchen Gründen Messungen, die an der Universität Marburg von Prof. Dr. Ensinger durchgeführt wurden, zu deutlich anderen Ergebnissen kommen als alle sonst vorgelegten Messergebnisse, selbst wenn es sich um das gleiche Probenmaterial handelte.

Zur weiteren Diskussion der Befunde wurde IPPNW als Auftraggeber der ARGE PhAM gebeten, Informationen zur Verfügung zu stellen. Die schriftliche Bitte um Zusendung des Berichts „ELB 3“ [ARGE PhAM 2001a] wurde abschlägig beschieden [IPPNW 2002a]. Auf die Bitte um Zusendung des Berichts „ELB 4“ [ARGE PhAM 2002] wurde lediglich eine Zusammenfassung übersandt. Die Langfassung des Berichtes wurde der SSK nicht vorgelegt.

In Anbetracht dessen, dass IPPNW im Schreiben von Dr. med. Diekmann und Dr. Pflugbeil vom 23.05.02 [IPPNW 2002b] von „besorgniserregenden Fakten“, „die einen kurzfristigen Handlungsbedarf signalisieren“ ausging, war die mangelnde Informationsbereitschaft für die SSK nicht nachvollziehbar.

A 1.3 Methodik

Freisetzungen radioaktiver Stoffe aus Anlagen, die genehmigungsrechtlich zulässige Ableitungen übersteigen, werden von der SSK als Ereignisse von hoher sicherheitstechnischer Relevanz angesehen. Das gilt unabhängig davon, ob sie zu akuten Gesundheitsgefahren führen oder nicht. Die mit derartigen Ereignissen zu verknüpfenden Aktivitätsinventare in der Umwelt können sehr gering ausfallen. Werden im Umfeld von kerntechnischen Anlagen auffällige Häufungen von Krankheiten, die auch durch Strahlenexpositionen verursacht werden können, festgestellt, dann ist die Frage nach kausalen Wirkungszusammenhängen berechtigt und zu prüfen. Das Verbinden derartiger Befunde mit freigesetzten radioaktiven Stoffen setzt jedoch stets zumindest kurzfristig erhöhte Strahlenexpositionen der Bevölkerung voraus, aus denen ein erhöhtes Risiko abgeleitet werden kann. Wird postuliert, dass eine derartige Exposition längere Zeit zurückliegt, sind einfache dosimetrische Nachweise in der Regel nicht mehr möglich.

Jedem Hinweis auf nicht genehmigte Ableitungen oder Freisetzungen radioaktiver Stoffe aus kerntechnischen Anlagen ist mit entsprechenden Prüfungen nachzugehen. Dabei kommt es darauf an, durch eine geeignete Vorgehensweise einen qualifizierten Nachweis anomaler Radionuklidverteilungen oder anderer nachvollziehbarer Indikatoren zu erhalten, die auf Abweichungen vom zulässigen Betrieb hinweisen. Nur wenn ein solcher qualifizierter Nachweis vorgelegt werden kann, sind weitere Schritte sinnvoll.

Da erste Untersuchungen in der Regel nicht die Zentren maximaler Kontamination erfassen, sind für einen ersten belastbaren Nachweis Messbefunde ausreichend, die unabhängig von radiologischen Konsequenzen oder weiteren Schlussfolgerungen eindeutig als anomale Verteilungsmuster eines radiologisch relevanten Parameters (oder einer Parametergruppe) anzu- sehen sind. Auch Messungen geringfügiger Umweltkontamination können zum Nachweis von Unregelmäßigkeiten ausreichend sein, wenn sich aufgrund spezifischer nachgewiesener Radionuklide oder der Isotopenzusammensetzung Bezüge zu einem möglichen Ereignis erkennen lassen („Fingerprint“).

Sofern eine Untersuchung den qualifizierten Nachweis von Anomalien erbringt, sind weitergehende Untersuchungen gerechtfertigt. Diese Untersuchungen müssen das Ziel haben, die möglichen Ereignisse, die zu den potentiellen Kontaminationen führten, zeitlich und quantitativ einzugrenzen. Erst dann sind belastbare Aussagen über eventuelle Expositionen von Personen auf wissenschaftlicher Grundlage möglich.

Jede Nachweisführung, die naturwissenschaftlichen Ansprüchen genügen soll, muss folgende Grundanforderungen beinhalten:

- **Eignung der untersuchten Umweltmedien:** Die als Signalspeicher betrachteten Umweltmedien müssen prinzipiell geeignet sein.
- **Eignung der angewandten Untersuchungsmethoden:** Die Messverfahren müssen für den Messzweck geeignet und hinreichend empfindlich sein.

- **Nachprüfbarkeit von Messergebnissen:** Vorgelegte Messergebnisse müssen gegebenenfalls im Rahmen üblicher fachtechnischer Arbeitsweisen nachprüfbar sein.
- **Reproduzierbarkeit von Befunden:** Die Befunde müssen reproduzierbar sein, insbesondere auch bei der Wiederholung von Probenahmen und Messungen.
- **Plausibilität:** Die zugrunde liegenden Thesen und Behauptungen müssen naturwissenschaftlich plausibel sein.

Diese Anforderungen werden der vorliegenden Stellungnahme zugrunde gelegt.

Die Stellungnahme der SSK bezieht sich ausschließlich auf die Aspekte, die einen wissenschaftlichen Hintergrund haben und durch die SSK bewertbar sind. Von einer Stellungnahme ausgeklammert sind daher insbesondere die Behauptungen von ARGE PhAM und IPPNW, die sich auf eine Vertuschung eines Unfalls beziehen, sowie die Spekulationen über mögliche Unfallursachen und durchgeführte Experimente. Die SSK würde eine Befassung mit möglichen Unfallursachen nur dann für sinnvoll erachten, wenn Kontaminationen der Elbmarsch mit künstlichen radioaktiven Stoffen, deren Quellen nicht bekannt sind, belegt wären.

Die Stellungnahme diskutiert und bewertet die vorliegenden Befunde zu

- Vorkommen und Isotopenverhältnissen von natürlichen Radionukliden und Cäsium (Kapitel A3.2),
- Vorkommen und Isotopenverhältnissen von Plutonium (Kapitel A 3.3),
- Vorkommen von Americium, Neptunium und Curium (Kapitel A 3.4),
- Vorkommen von radioaktiven Spalt- und Aktivierungsprodukten einschließlich Tritium (Kapitel A 3.5) sowie
- Vorkommen von Kügelchen (Kapitel A 3.6)

in Umweltproben.

Wegen der für die Fragestellung grundsätzlichen Bedeutung werden in Kapitel A 3.1 Ausführungen zu Anforderungen an die Qualität von Daten gemacht. In Kapitel A 4 wird die Höhe der Strahlenexposition von Personen der Bevölkerung diskutiert, die aufgrund der Daten, soweit diese bewertbar sind, möglich ist.

A 2 Die durch die SSK zu bewertenden Kernaussagen der ARGE PhAM

Im folgenden Kapitel sind die Kernaussagen der Berichte der ARGE PhAM zusammengestellt, zu denen die SSK wissenschaftlich Stellung nimmt.

Nach [ARGE PhAM 2001a] sollen Untersuchungen an den Universitäten Gießen und Marburg den Nachweis von angereichertem Uran in 15 von insgesamt 16 Bodenproben, entnommen rund um das GKSS-Forschungszentrum und KKK, erbracht haben. Auch durch andere Messungen sei seit spätestens 1991 das **Vorhandensein von angereichertem Uran** belegt. In der vorliegenden Stellungnahme werden (in Kapitel A 3.2) sowohl die angeführten Messungen von Uran als auch die Art der Ermittlung von Isotopenverhältnissen bewertet. Dabei wird

auch auf mögliche Fehlerquellen bei der Überprüfung einer Abweichung von erwarteten Isotopenverhältnissen eingegangen.

Im Bericht [ARGE PhAM 2001a] der ARGE PhAM wird vom **Vorhandensein von Plutonium** in der Elbmarsch ausgegangen, das seinen Ursprung weder im Atomwaffen-Fallout noch im Unfall in Tschernobyl habe. Das Plutonium müsse aufgrund seiner Isotopenzusammensetzung (Anteile von Pu-238 und Pu-241) bei einem Forschungsvorgang freigesetzt worden sein. Dies werde auch durch frühere Messungen anderer Institutionen belegt. Die Messungen des Institutes für Kernchemie der Universität Mainz würden auf eine Erzeugung von Pu-241 aus Pu-240 hinweisen, die an der Universität Marburg ermittelte Isotopenzusammensetzung von Plutonium zeige eine unterschiedliche Herkunft von Pu-239/240 und Pu-238. In Kapitel A 3.3 werden die vorliegenden Messergebnisse der ARGE PhAM und weiterer Institutionen von Plutonium und seiner Isotopenzusammensetzung dahingehend bewertet, ob sich Abweichungen gegenüber auch in anderen Regionen üblichen Verhältnissen zeigen und somit eine andere Ursache als Atomwaffen-Fallout oder der Unfall in Tschernobyl unterstellt werden kann.

Im Bericht [ARGE PhAM 2001a] wird ausgeführt, dass das **Vorhandensein von Transuranen** künstlicher Herkunft über eine Photodokumentation von radioaktiven Brennstoffkügelchen mit Plutonium, Americium, Curium, Thorium und Uran belegt sei. Messdaten von vier Instituten sollen seit spätestens 1991 das Vorhandensein von Transuranen nicht natürlichen Ursprungs in der Elbmarsch belegen. Aus diesem Grund werden die von der ARGE PhAM herangezogenen Untersuchungsergebnisse in Kapitel A 3.4 bewertet, soweit sie sich auf Aktivitätsmessungen beziehen. Zur Frage der Kügelchen, von denen die ARGE PhAM behauptet, dass es sich um **Kernbrennstoffkügelchen** handelte, wird in Kapitel A 3.6 Stellung genommen.

Es werden verschiedene Spalt- und Aktivierungsprodukte einschließlich Tritium im Bericht [ARGE PhAM 2001a] der ARGE PhAM genannt. Seit spätestens 1991 sei das **Vorhandensein von künstlicher Radioaktivität**, unter anderem in Form von Mn-54 und Co-60 belegt. Auf die Frage auffälliger Cäsium-Isotopenverhältnisse wird in Kapitel A 3.2 eingegangen. Zu Befunden zu anderen Spalt- und Aktivierungsprodukten einschließlich Tritium sowie den angewandten Messverfahren wird in Kapitel A 3.5 Stellung genommen.

A 3 Stellungnahme zu den Kernfragen des Beratungsauftrags

In Kapitel A 3.1 werden zunächst allgemeine Ausführungen im Hinblick auf die an Messdaten zu stellenden Anforderungen gemacht. Die entsprechenden Ausführungen in den Berichten der ARGE PhAM werden anhand dieser Anforderungen bewertet. In Kapitel A 3.2 werden Vorkommen und Isotopenverhältnisse von Uran und Cäsium in Bodenproben der Umgebung von KKK und GKSS behandelt. Dabei werden auch Fehlerquellen bei der Bestimmung von Isotopenverhältnissen diskutiert. Daten zum Vorkommen und zu Isotopenverhältnissen von Plutonium werden in Kapitel A 3.3 bewertet, Daten zum Vorkommen von anderen Transuranen in Kapitel A 3.4. Die Bewertung von Befunden zu Spalt- und Aktivierungsprodukten sowie Tritium erfolgt in Kapitel A 3.5. Zum Vorkommen von Kügelchen in Böden der Umgebung von KKK und GKSS wird in Kapitel A 3.6 Stellung genommen.

A 3.1 Qualität der verfügbaren Daten

A 3.1.1 Allgemeine Anforderungen

Anforderungen an die Qualität von Messungen der Umweltradioaktivität ergeben sich aus den Vorschriften für die behördliche Überwachung der Umweltradioaktivität [StrVG 1986, BMU 1994, BMU 1995a, BMU 1995b]. Bei behördlichen Messungen ist es u.a. erforderlich, die Probenahme und die Messungen nach den „Messanleitungen für die Überwachung der Radioaktivität in der Umwelt und zur Erfassung radioaktiver Emissionen aus kerntechnischen Anlagen“ [BMU 1992] durchzuführen, im Rahmen eines Qualitätssicherungsprogramms regelmäßig an Ringversuchen teilzunehmen und geforderte Nachweisgrenzen nach [BMU 1993] zu erreichen, die es erlauben, potentielle Expositionen von 10 μSv pro Jahr zu erfassen.

Bei nicht-behördlichen Messungen ist man nicht an diese Regeln gebunden. Dennoch sind Anforderungen an Probenahme, Messungen, Auswertungen und Berichte zu stellen, die sich aus dem Stand von Wissenschaft und Technik und aus der allgemeinen „guten wissenschaftlichen Praxis“ ableiten. Dazu gehört, dass die Messgrößen, die Mess- und Auswertverfahren geeignet, eindeutig definiert und beschrieben und die Ergebnisse mit ihren Unsicherheiten und anderen das Verfahren qualifizierenden Größen, wie z.B. den erreichten Nachweisgrenzen, in nachvollziehbarer Weise angegeben werden und die statistische Signifikanz der Schlussfolgerungen unter Berücksichtigung der Messunsicherheiten dargelegt wird.

Grundlage jeden Berichtes müssen Vollständigkeit der Darstellung, Nachvollziehbarkeit und Rückführbarkeit der Ergebnisse sein. Dabei sind nach dem Stand von Wissenschaft und Technik Messunsicherheiten unter Berücksichtigung aller bekannter Quellen der Unsicherheit nach dem ISO Guide for the Expression of Uncertainty in Measurement [ISO 1995] bzw. DIN 1319-4 [DIN 1999], Erkennungs-, Nachweis- und Vertrauensgrenzen nach DIN 25482-10 [DIN 2000] bzw. ISO 11929-7 [ISO 2001] anzugeben.

Die Messverfahren müssen für den Messzweck geeignet sein. Dies bezieht sich gleichermaßen auf die Messmethode als auch auf das erforderliche Nachweisvermögen, das durch Nachweisgrenzen zu quantifizieren ist. Dabei können vielfach durchaus einfache und kostengünstige Verfahren eingesetzt werden, wenn die gegebenenfalls größeren Messunsicherheiten angemessen berücksichtigt werden.

Grundsätzlich sind Blindwert- und Normalwertanalysen durchzuführen und zu dokumentieren, um bei potentiell erhöhten Messwerten den Nachweis führen zu können, dass diese nicht durch Kontaminations- oder Sensitivitätsprobleme oder durch nicht erkannte systematische Fehler verursacht wurden. Es ist außerdem unerlässlich, durch Rückstellproben die spätere Überprüfung von Analysen sicherzustellen.

Die Interpretation von Messergebnissen hat auf der Grundlage der Messunsicherheiten mittels anerkannter statistischer Methoden zu erfolgen. Die Signifikanz von Hypothesen ist mit Hypothesentests zu überprüfen.

A 3.1.2 Bewertung der vorliegenden Berichte

Der Bericht ELB 2 [ARGE PhAM 2001b] entspricht in keiner Weise den genannten Anforderungen an nicht-behördliche Messungen und deren Dokumentation. Die Dokumentation der Messverfahren und der durchgeführten Messungen ist unvollständig. Angaben über die Messverfahren und die Kalibrierung der Messgeräte sind unvollständig oder nicht nachvollziehbar.

Messunsicherheiten für die Messergebnisse und Daten zur Qualifizierung der Messverfahren werden nicht angegeben. Es ist nicht ersichtlich, ob Daten, die mit „ $\leq x$ “ angegeben werden, den Erkennungs- oder Nachweisgrenzen entsprechen, und wie diese Daten gewonnen wurden. Es wird über keine qualitätssichernden Untersuchungen berichtet. Die Interpretation der Ergebnisse ist nicht nachvollziehbar.

So sind z.B. die Gamma-, Beta- und Alpha-Messergebnisse in den Tabellen 3 bis 5 des Berichts ELB 2 [ARGE PhAM 2001b] nicht nachvollziehbar. Sie stehen weitgehend im Widerspruch zu den Ergebnissen anderer Untersuchungen. Eine Bewertung der Aussagen über angereichertes Uran (Tab. 6) bzw. der Isotopenverhältnisse (Tab. 7) ist aufgrund fehlender Messunsicherheiten unmöglich. Das in Tabelle 8 von ELB 2 unter „Qualitativer Tritium-Hinweis“ aufgeführte Messverfahren ist für eine Tritium-Messung nicht geeignet. Ergebnisse des angekündigten radiochemischen Tritium-Nachweises wurden nicht vorgelegt. Dennoch wird in der Zusammenfassung von ELB 2 Tritium als „dominierender Aktivitätsträger“ bezeichnet.

Mit Herrn Gabriel wurden die Mängel des Berichtes ELB 2 [ARGE PhAM 2001b] auf der Sitzung des Ausschusses „Strahlenschutz bei Anlagen“ am 29.05.2001 ausführlich diskutiert. Auf dieser Sitzung wurde von Herrn Gabriel eine Unterlage vorgelegt [ARGE PhAM 2001c], in der einige Erläuterungen zu den dem Bericht ELB 2 zugrunde liegenden Messungen und den Messunsicherheiten gegeben wurden. Auch diese Angaben reichen zu einer wissenschaftlichen Bewertung der ELB 2-Messungen nicht aus. So entspricht z.B. eine allgemeine Feststellung, dass die Messfehler im Bereich von 3 - 25 % liegen, nicht dem Stand der Wissenschaft, zumal, wenn es sich um sehr unterschiedliche Messverfahren handelt. Messunsicherheiten müssen jeweils zu den Einzelergebnissen angegeben werden. Nur in Ausnahmefällen ist die Angabe einer allgemeinen relativen Unsicherheit für ein einzelnes wohldefiniertes Messverfahren hinreichend.

Die Unterlage [ARGE PhAM 2001c] verwendet neben den eigenen Messergebnissen umfangreiche Messergebnisse des Niedersächsischen Landesamts für Ökologie [NLÖ 2001a], der Universität Göttingen (ohne Quellenangabe) sowie der Landwirtschaftlichen Untersuchungs- und Forschungsanstalt Kiel (ohne Quellenangabe). Die Daten werden interpretiert im Hinblick auf das Vorkommen angereicherten Urans, auf nicht durch den weltweiten oder den Tschernobyl-Fallout erklärbare Cs-Isotopenverhältnisse und andere für anomal angesehene Isotopenverhältnisse. Bei einer solchen Betrachtung ist die Berücksichtigung von Messunsicherheiten unerlässlich, da diese über die statistische Signifikanz der Ergebnisse und die Schlussfolgerungen entscheiden. Die von Herrn Gabriel vorgelegte und vorgetragene Argumentation konnte vom Ausschuss nicht nachvollzogen werden und Herr Gabriel wurde um weitere Erläuterungen und zur Beurteilung benötigte Daten gebeten. Obwohl Herr Gabriel zusagte, die fehlenden Daten bzw. Erläuterungen nachzuliefern, wurden diese dem Ausschuss bis heute nicht zur Verfügung gestellt.

Auch der Bericht ELB 3 [ARGE PhAM 2001a] in der Fassung vom 20.06.2001 wird den oben beschriebenen Anforderungen nicht gerecht. Er enthält an einigen Stellen vage Andeutungen bzgl. Messunsicherheiten. Meist werden jedoch keine Unsicherheiten angegeben. Auch ansonsten zeigen sich die gleichen wie die am Bericht ELB 2 [ARGE PhAM 2001b] bereits bemängelten Unzulänglichkeiten.

In den Tabellen 4 und 5 von ELB 3 [ARGE PhAM 2001a] werden u.a. Ergebnisse der Gamma-Spektrometrie von Bodenproben vorgestellt. Dabei haben vier dieser Proben dieselben

Bezeichnungen wie die in Tabelle 6 von ELB 2 [ARGE PhAM 2001b]. Die aufgeführten Messergebnisse sind unterschiedlich. Es wird aus dem Text nicht klar, ob es sich um erneute Messungen derselben Proben handelt. Die Unterschiede in den Ergebnissen werden nicht diskutiert. Dagegen lassen sich die in Tabelle 6b von ELB 3 aufgeführten Ergebnisse der Alpha-Spektrometrie mit Ergebnissen in Tabelle 7 von ELB 2 identifizieren.

Auch die Diskussion von Isotopenverhältnissen im Bericht ELB 3 [ARGE PhAM 2001a] ist äußerst problematisch und nicht nachvollziehbar, da auch sie in keiner Weise die Unsicherheiten der berechneten Isotopenverhältnisse berücksichtigt.

Der vorgelegten Fassung des Berichts ELB 4 [ARGE PhAM 2002] fehlen die im Text angesprochenen Anhänge. In den vorliegenden Seiten sind keine Daten enthalten, die eine qualifizierte Diskussion erlauben.

Zusammenfassend kann man feststellen, dass die von der ARGE PhAM vorgelegten Berichte ELB 2 [ARGE PhAM 2001b] und ELB 3 [ARGE PhAM 2001a] in keiner Weise den Anforderungen an wissenschaftliche Arbeiten gerecht werden und die darin gezogenen Schlussfolgerungen wissenschaftlich nicht nachvollziehbar sind.

Der Ausschuss hat durch weitere Einladungen zu verschiedenen Sitzungen Mitgliedern der ARGE PhAM Gelegenheit gegeben, ihre Daten der SSK vorzustellen, seitens des Ausschusses bestehende Fragen zu beantworten und die für den Ausschuss nicht nachvollziehbaren Schlussfolgerungen zu vertreten. Diesen Einladungen wurde nicht nachgekommen (siehe im Einzelnen Kapitel A 1.2).

Die dem SSK-Ausschuss „Strahlenschutz bei Anlagen“ vorgelegten Ergebnisse der Untersuchungen von Bodenproben aus der Umgebung von KKK und GKSS durch das NLÖ [NLÖ 2001a], die LUFA [LUFA 2001a], die GKSS (vorgetragen auf der 8. Sitzung), das Forschungszentrum Jülich (vorgetragen auf der 13. Sitzung) und das Institute for Transuranium Elements (ITU) [ITU 2002] weisen insgesamt eine wesentlich bessere Qualität auf als die Berichte der ARGE PhAM.

Die Untersuchungen des NLÖ und der LUFA basieren auf den Verfahren der Messanleitungen [BMU 1992], soweit sich diese auf die aktuelle Problematik übertragen ließen. Diese Untersuchungen werden den Anforderungen an behördliche Messungen gerecht.

Auch die Untersuchungen des Forschungszentrums Jülich, der GKSS und des ITU, sowie deren Dokumentationen und Vorstellungen im Ausschuss „Strahlenschutz bei Anlagen“ entsprechen den oben für nicht-behördliche Untersuchungen genannten Anforderungen.

Die sich bei der Diskussion der Berichte von NLÖ, LUFA, Forschungszentrum Jülich, GKSS und ITU ergebenden Fragen wurden bei den Vorstellungen im SSK-Ausschuss zufriedenstellend beantwortet.

A 3.2 Vorkommen und Isotopenverhältnisse von natürlichen Radionukliden und Cäsium in Bodenproben

A 3.2.1 Gehalte von natürlichen Radionukliden und von Cs-137 in Bodenproben

Zu den Vorkommen natürlicher Radionuklide in Böden liegt eine Vielzahl von Untersuchungen vor; siehe z.B. [UNSCEAR 2000]. Zum Vergleich der in Proben aus der Umgebung von KKK und GKSS gemessenen Aktivitätskonzentrationen natürlicher Radionuklide können die Mittelwerte und Bereiche, die für Böden generell angegeben werden (siehe Tabelle 3.1), herangezogen werden. Alle für die Proben aus der Umgebung von KKK und GKSS gemessenen Aktivitätskonzentrationen liegen danach im Bereich der in Böden erwarteten Werte.

Tab. 3.1: Arithmetische Mittelwerte, Minimal- und Maximalwerte der Aktivitätskonzentrationen von K-40, Th-232 und U-238 in Böden nach Kemski et al. [Kemski 1996]

Aktivitätskonzentration in Bq/kg								
K-40			Th-232			U-238		
Mittel	Min.	Max.	Mittel	Min.	Max.	Mittel	Min.	Max.
523	16	2960	42	17	94	40	13	252

Die vom NLÖ [NLÖ 2001a] für Th-232 und U-238 angegebenen Aktivitätskonzentrationen liegen teilweise niedriger als die in Tabelle 3.1 aufgeführten Minimalwerte. Dies ist damit zu erklären, dass in den in der Literatur zu findenden Berichten über die Vorkommen natürlicher Radionuklide vielfach Gebiete mit relativ niedrigen Uran- und Thorium-Vorkommen nicht untersucht wurden. Da bekannt ist, dass die norddeutsche Tiefebene im deutschland- und weltweiten Vergleich eher geringere Vorkommen natürlicher Radionuklide aufweist, sind in Tabelle 3.2 die Ergebnisse von Untersuchungen an fünf Standorten in Niedersachsen aufgeführt, für die nach der geologischen Situation bessere Vergleichbarkeit erwartet werden kann.

Tab. 3.2: Geometrische Mittelwerte und geometrische Standardabweichungen¹ der Aktivitätskonzentrationen, bezogen auf Trockenmasse, von K-40, Th-232, U-238 und Cs-137 in Böden aus Niedersachsen (5 Standorte: Schessinghausen, Schlewecke, Neßmer Polder, Jeinsen, Gestorf) nach Vahlbruch et al. [Vahlbruch 2002]

Aktivitätskonzentration in Bq/kg							
K-40		Th-232		U-238		Cs-137	
Mittel	Std.-Abw.	Mittel	Std.-Abw.	Mittel	Std.-Abw.	Mittel	Std.-Abw.
473	1,5	25	1,5	29	1,6	10	1,6

¹ Bei logarithmisch normal-verteilten Messwerten mit dem geometrischen Mittelwert \bar{x}_{geom} und der geometrischen Standardabweichung s_{geom} erwartet man 95 % der Messwerte im Intervall

$$\left[\bar{x}_{\text{geom}} / (2 \cdot s_{\text{geom}}), \bar{x}_{\text{geom}} \cdot 2 \cdot s_{\text{geom}} \right],$$

d. h. die geometrische Standardabweichung ist als Faktor anzusehen, der die Variation der Einzelwerte um den geometrischen Mittelwert beschreibt.

Die im Bericht ELB 2 [ARGE PhAM 2001b] in Tabelle 6 aus gamma-spektrometrischen Messungen angegebenen Aktivitätskonzentrationen sind mit 427 bis 500 Bq/kg für K-40, 15,9 bis 26,5 Bq/kg für Th-232, 13 bis 29 Bq/kg für U-238 und 9 bis 26 Bq/kg für Cs-137 von den Daten in Tabelle 3.2 ebenfalls statistisch nicht zu unterscheiden. Auch die höchste U-238-Konzentration, die in Tabelle 7 von ELB 2 mit 73 Bq/kg für eine Probenmenge von 10 bis 20 g angegeben wurde, liegt innerhalb des 95 %-Vertrauensbereiches der Daten für Niedersachsen in Tabelle 3.2.

Die vom NLÖ [NLÖ 2001a] in Tabelle 6.3 angegebenen Aktivitätskonzentrationen sind mit 230 bis 360 Bq/kg für K-40, 8,7 bis 20 Bq/kg für Th-232 (gemessen über Th-228), 4,9 bis 14 Bq/kg für U-238 und 5,1 bis 21 Bq/kg für Cs-137 von den Daten in Tabelle 3.2 statistisch nicht zu unterscheiden.

Auch die übrigen Untersuchungen [LUFA 2001a] lassen weder über ihre natürlichen Vorkommen erhöhte Aktivitätskonzentrationen von Uran, Thorium und Kalium noch eine Erhöhung von Cs-137 gegenüber dem globalen und Tschernobyl-Fallout erkennen.

Zusammenfassend kann festgestellt werden, dass in den untersuchten Bodenproben aus der Umgebung von KKK und GKSS die natürlichen Radionuklide in Konzentrationen vorliegen, die im Schwankungsbereich der Vorkommen an anderen Standorten in Niedersachsen liegen. Dabei ist anzumerken, dass generell die Vorkommen natürlicher Radionuklide im Norddeutschen Tiefland relativ niedrig sind im Vergleich zu den in anderen Teilen Deutschlands beobachteten Vorkommen.

Auch die gemessenen Cs-137-Aktivitätskonzentrationen liegen in den Proben aus der Umgebung von KKK und GKSS im Bereich von Aktivitätskonzentrationen, die durch den weltweiten Fallout der oberirdischen Kernwaffenversuche und den (sehr inhomogenen) Eintrag aus dem Unfall von Tschernobyl in Norddeutschland verursacht wurden. Auf die Argumentation [ARGE PhAM 2001c], dass die Isotopenverhältnisse Cs-137/Cs-134 nicht durch den Tschernobyl-Fallout zu erklären seien, wird am Ende des nächsten Kapitels eingegangen.

A 3.2.2 Erkennungs- und Nachweisgrenzen für die Messung von Isotopenverhältnissen

Wegen der Bedeutung der Diskussion über angereichertes Uran und andere, behauptete anomale Isotopenverhältnisse in Bodenproben der Umgebung von KKK und GKSS, wie sie in den Berichten ELB 2 und ELB 3, auch auf der Grundlage von Messergebnissen des NLÖ, der Universität Göttingen und des LUFA geführt wird, sei hier auf einige statistische Probleme bei der Messung von „Isotopenanomalien“ am Beispiel der Uranisotope U-235 und U-238 eingegangen.

Auf der Grundlage von DIN 25482-10 [DIN 2000] werden charakteristische Grenzen für die Messung von Abweichungen von der natürlichen Isotopenzusammensetzung von Uran bei alpha-spektrometrischen Messungen abgeleitet und an Beispielen verdeutlicht.

$A_{235,p}$ Aktivitätskonzentration von U-235 in Bq/g in der Probe p

$A_{238,p}$ Aktivitätskonzentration von U-238 in Bq/g in der Probe p

$$A_{235,p} = \frac{\varepsilon \cdot N_{235,p}}{m_p \cdot t} \quad (1)$$

$$A_{238,p} = \frac{\varepsilon \cdot N_{238,p}}{m_p \cdot t} \quad (2)$$

$N_{235,p}$	Anzahl der Netto-Zählereignisse des vollständigen Alpha-Peaks des U-235
$N_{238,p}$	Anzahl der Netto-Zählereignisse des vollständigen Alpha-Peaks des U-238
t	Messdauer (gleiche Messzeit für Proben- und Standardmessung)
ε	Kalibrierfaktor des Alpha-Spektrometers zur Umrechnung von Zählraten in Aktivität
T_{235}	Halbwertszeit von U-235: 7,04E+08 a
T_{238}	Halbwertszeit von U-238: 4,47E+09 a
λ_{235}	Zerfallskonstante von U-235: 3,12E-17 s ⁻¹
λ_{238}	Zerfallskonstante von U-238: 4,92E-18 s ⁻¹
$R_{5/8,p}$	Isotopenverhältnis U-235/U-238 in der Probe p
m_p	Masse der Probe

Das Isotopenverhältnis U-235/U-238 als Verhältnis der Atomanzahlen ergibt sich aus.

$$R_{5/8,p} = \frac{N_{235}}{N_{238}} = \frac{\lambda_{238}}{\lambda_{235}} \cdot \frac{A_{235}}{A_{238}} \quad (3)$$

Aktivitätskonzentrationen und Ereigniszahlen der Messung und Isotopenverhältnisse eines Standards (Referenzprobe mit natürlicher Isotopenzusammensetzung) werden durch den Index s von denen der Probenmessung (Index p) unterschieden.

Für die Standardunsicherheit $u(R_{5/8,p})$ gilt unter Vernachlässigung der Unsicherheiten der Zerfallskonstanten

$$\frac{u^2(R_{5/8,p})}{R_{5/8,p}^2} = \frac{u^2(A_{235,p})}{A_{235,p}^2} + \frac{u^2(A_{238,p})}{A_{238,p}^2} \quad (4)$$

$$\begin{aligned}
 u^2(R_{5/8,p}) &= R_{5/8,p}^2 \cdot \left(\frac{u^2(A_{235,p})}{A_{235,p}^2} + \frac{u^2(A_{238,p})}{A_{238,p}^2} \right) = R_{5/8,p}^2 \cdot \left\{ \left(\frac{u(A_{235,p})}{A_{235,p}} \right)^2 + \left(\frac{u(A_{238,p})}{A_{238,p}} \right)^2 \right\} \\
 &= R_{5/8,p}^2 \cdot \left\{ \left(\frac{u(N_{235,p})}{N_{235,p}} \right)^2 + \left(\frac{u(N_{238,p})}{N_{238,p}} \right)^2 \right\} = R_{5/8,p}^2 \cdot \left(\frac{1}{N_{235,p}} + \frac{1}{N_{238,p}} \right)
 \end{aligned} \quad (5)$$

Zur Prüfung, ob in einer Probe ein Isotopenverhältnis vorliegt, das vom natürlichen Isotopenverhältnis abweicht, ist die Messgröße die Differenz der gemessenen Isotopenverhältnisse in einer Probe und in einem Standard mit natürlicher Isotopenzusammensetzung:

$$Y = R_{5/8,p} - R_{5/8,s} = \frac{\lambda_{238}}{\lambda_{235}} \cdot \frac{A_{235,p}}{A_{238,p}} - \frac{\lambda_{238}}{\lambda_{235}} \cdot \frac{A_{235,s}}{A_{238,s}} \quad (6)$$

Im Prinzip kann Gl. 6 vereinfacht werden, indem für den Standard das aus massenspektrometrischen Messungen bekannte Isotopenverhältnis von U_{nat} eingesetzt wird:

$$Y = R_{5/8,p} - R_{5/8,\text{nat}} = \frac{\lambda_{238}}{\lambda_{235}} \cdot \frac{A_{235,p}}{A_{238,p}} - \frac{0,7200}{99,2745} = \frac{\lambda_{238}}{\lambda_{235}} \cdot \frac{A_{235,p}}{A_{238,p}} - 0,00725 \quad (7)$$

Dies ist jedoch in der Regel nicht zulässig. Das natürliche Isotopenverhältnis von Uran ist bei alpha-spektrometrischen Messungen nicht mit dieser Genauigkeit bekannt. In den Geowissenschaften ist es Stand der Wissenschaft, vor der Messung des Isotopenverhältnisses einer Probe Messungen von Standards im gleichen Konzentrationsbereich zum Nachweis der Eignung des Analysenverfahrens durchzuführen und Abweichungen von natürlichen Isotopenverhältnissen in Analogie zu Gl. 6 zu bestimmen.

Ein Ergebnis y der Messung der Messgröße Y nach Gl. 6 hat die Standardunsicherheit:

$$\begin{aligned}
 u^2(y) &= u^2(R_{5/8,p}) + u^2(R_{5/8,s}) \\
 &= R_{5/8}^2 \cdot \left(\frac{u^2(A_{235,p})}{A_{235,p}^2} + \frac{u^2(A_{238,p})}{A_{238,p}^2} + \frac{u^2(A_{235,s})}{A_{235,s}^2} + \frac{u^2(A_{238,s})}{A_{238,s}^2} \right)
 \end{aligned} \quad (8)$$

Y habe den wahren Wert η . Bei der gestellten Aufgabe handelt es sich um einen Hypothesentest, bei dem die Hypothese $H_0: \eta = 0$ getestet wird gegen die Alternativhypothese $H_1: \eta > 0$. Dies wird hier auf der Grundlage von DIN 25482-10 (ISO 11929-7) behandelt. Es werden die Erkennungsgrenze und die Nachweisgrenze für die Messgröße Y nach Gl. 6 bei alpha-spektrometrischer Messung berechnet. Allen Messwerten x seien Standardmessunsicherheiten (kurz: Unsicherheiten) $u(x)$ nach dem ISO Guide for the Expression of Uncertainty in Measurement [ISO 1995] zugeordnet.

Zur Berechnung von Erkennungs- und Nachweisgrenze nach DIN 25482-10 [DIN 2000] wird $\tilde{u}(\eta)$, d.h. die Messunsicherheit als Funktion des wahren Wertes, benötigt. Alle bisher vorgelegten alpha-spektrometrischen Messungen enthalten nur unzureichende Information über $\tilde{u}(\eta)$. Daher wird hier von der Näherung einer konstanten Messunsicherheit

$$\tilde{u}(\eta) = \tilde{u}(0) = u(y) = \text{const.}$$

ausgegangen. Diese Näherung ist für die Beurteilung der bisher vorliegenden alpha-spektrometrischen Messungen hinreichend.

Zur Berechnung der Erkennungsgrenze benötigt man $\tilde{u}(0)$, d.h. die Standardunsicherheit, falls der wahre Wert der Messgröße 0 ist. Für $\eta = 0$, d.h. für eine Messprobe mit natürlicher Isotopenzusammensetzung und gleicher Urankonzentration wie der Standard, erwartet man $A_{235,p} = A_{235,s}$ und $A_{238,p} = A_{238,s}$ und erhält damit unter der o. g. Näherung mit Gl. 8

$$\tilde{u}^2(0) = 2 \cdot R_{5/8,\text{nat}}^2 \cdot \left(\frac{u^2(A_{235,s})}{A_{235,s}^2} + \frac{u^2(A_{238,s})}{A_{238,s}^2} \right) = 2 \cdot R_{5/8,\text{nat}}^2 \cdot \left(\frac{u^2(A_{235,p})}{A_{235,p}^2} + \frac{u^2(A_{238,p})}{A_{238,p}^2} \right) \quad (9)$$

und damit die Erkennungsgrenze y^* für die Abweichung vom natürlichen Isotopenverhältnis

$$y^* = k_{1-\alpha} \cdot \tilde{u}(0) \approx k_{1-\alpha} \cdot \sqrt{2 \cdot R_{5/8,\text{nat}}^2 \cdot \left(\frac{u^2(A_{235,p})}{A_{235,p}^2} + \frac{u^2(A_{238,p})}{A_{238,p}^2} \right)} \quad (10)$$

und die Nachweisgrenze η^* für die Abweichung vom natürlichen Isotopenverhältnis

$$\begin{aligned} \eta^* &= y^* + k_{1-\beta} \cdot \tilde{u}(\eta^*) \\ &\approx (k_{1-\alpha} + k_{1-\beta}) \cdot \sqrt{2 \cdot R_{5/8,\text{nat}}^2 \cdot \left(\frac{u^2(A_{235,p})}{A_{235,p}^2} + \frac{u^2(A_{238,p})}{A_{238,p}^2} \right)} \end{aligned} \quad (11)$$

Die Grenzen des Vertrauensbereichs für $R_{5/8,p}$ ergeben sich mit Gl. 4 zu:

$$\begin{aligned} \rho_{u,0} &\approx R_{5/8,p} \pm k_{1-\gamma/2} \cdot u(R_{5/8,p}) \\ &= R_{5/8,p} \pm k_{1-\gamma/2} \cdot \sqrt{R_{5/8,p}^2 \cdot \left(\frac{u^2(A_{235,p})}{A_{235,p}^2} + \frac{u^2(A_{238,p})}{A_{238,p}^2} \right)} \end{aligned} \quad (12)$$

Die nachstehend aufgeführten Beispiele belegen, dass alpha-spektrometrische Messungen nicht geeignet sind zum Nachweis geringer Abweichungen vom natürlichen Isotopenverhältnis in Umweltproben. Hier sind massenspektrometrische Messungen mit doppelt-fokussierender ICP-MS mit Multikollektorsystemen unabdingbar. Die Untersuchungen im UNEP-Report zum Thema Depleted Uranium im Kosovo [UNEP 1999] aus dem Jahr 1999 belegen in eindrucksvoller Weise, was heute Stand von Wissenschaft und Technik ist.

Alpha-spektrometrische Messungen sind allerdings sehr wohl geeignet, natürliche und künstliche Alpha-Strahler in Umweltmaterialien in radiologisch relevanten Konzentrationen nachzuweisen. Dies wird durch den Nachweis der Erreichung geforderter Nachweisgrenzen in Ringversuchen und in den allgemeinen Programmen zur Überwachung der Radioaktivität in der Umwelt vielfältig bestätigt.

Beispiele:

Die vorstehend abgeleiteten statistischen Kenngrößen werden im Folgenden an Beispielen von Messungen des NLÖ [NLÖ 2001a] zur Beurteilung der Frage des Vorkommens angereicherten Urans in der Umgebung von KKK und GKSS angewandt. Die Daten dieser Beispiele wurden von der ARGE PhAM als Nachweis des Vorkommens angereicherten Urans in der Umgebung von KKK und GKSS interpretiert [ARGE PhAM 2001c].

Tab. 3.3: Zur Berechnung benutzte Zerfallsdaten, Festlegungen der Fehler 1. und 2. Art, α und β , und des Vertrauensniveaus $1-\gamma$ zur Berechnung von Erkennungsgrenzen, Nachweisgrenzen und Grenzen der Vertrauensbereiche und zugehörige Quantile der Standardnormalverteilung

$T_{1/2}$ (U-235)	7,04E+08	a	α	0,05	$k_{1-\alpha}$	1,65
λ_{235}	3,12E-17	s ⁻¹	β	0,05	$k_{1-\beta}$	1,65
$T_{1/2}$ (U-238)	4,47E+09	a	$1-\gamma$	0,95	$k_{1-\gamma/2}$	1,96
λ_{238}	4,92E-18	s ⁻¹				

Tab. 3.4: Ausgewählte Ergebnisse von Probenmessungen aus NLÖ [NLÖ 2001a] und [NLÖ 2001b]
(u_{rel} ist die relative Standardunsicherheit der Aktivitätskonzentrationen)

Probe	1.22	1.34	1.27	1.27 Nachmessung
$A_{235,p}$ in Bq/kg	0,3	0,3	1,2	0,61
$u_{\text{rel}}(A_{235,p})$ in %	28	32	15	10
$A_{238,p}$ in Bq/kg	6	5	12	12
$u_{\text{rel}}(A_{238,p})$ in %	6	7	5	2,2

Dann ergeben sich die Isotopenverhältnisse mit ihren Standardunsicherheiten und den Grenzen der Vertrauensbereiche in Tabelle 3.5.

Tab. 3.5: Isotopenverhältnisse mit Standardunsicherheiten und Vertrauensgrenzen für die Messergebnisse nach Tabelle 3.4

Probe	1.22	1.34	1.27	1.27 Nachmessung
$R_{5/8,p}$	0,0079	0,0095	0,016	0,0080
$u(R_{5/8,p})$	0,0023	0,0031	0,003	0,0008
ρ_u untere Grenze des Vertrauensbereichs für $R_{5/8,p}$	0,0035	0,0034	0,011	0,0064
ρ_o obere Grenze des Vertrauensbereichs $R_{5/8,p}$	0,012	0,016	0,021	0,0096

Da keine Messung eines Uranstandards mit natürlichem Isotopenverhältnis vorliegt, können diese Ergebnisse nur mit dem natürlichen Isotopenverhältnis aus der Nuklidkarte verglichen werden. Aus der Nuklidkarte erhält man $R_{5/8,\text{nat}} = 0,00725$.

Für die Messgröße $Y = R_{5/8,p} - R_{5/8,s}$ berechnet man die Erkennungs- und Nachweisgrenzen in Tabelle 3.6.

Tab. 3.6: Erkennungs- und Nachweisgrenzen für die Abweichungen vom natürlichen Isotopenverhältnis für die Messungen nach Tabelle 3.4

	1.22	1.34	1.27	1.27 Nachmessung
Erkennungsgrenze für $Y = R_{5/8,p} - R_{5/8,s}$	0,005	0,007	0,006	0,002
Nachweisgrenze für $Y = R_{5/8,p} - R_{5/8,s}$	0,011	0,015	0,012	0,004
$y = R_{5/8,p} - 0,00725$	0,0006	0,002	0,009	0,0008

Da keine Messung eines Uranstandards mit natürlichem Isotopenverhältnis vorliegt, kann eine Schätzung der Messergebnisse von Y nur vorgenommen werden über die Gleichung $y = R_{5/8,p} - 0,00725$.

Für die Proben 1.22 und 1.34 und für die Nachmessung von Probe 1.27 liegen die Werte deutlich unterhalb der Erkennungsgrenzen. Daher kann die Hypothese, dass in den Proben Uran mit natürlichem Isotopenverhältnis vorliegt, nicht abgelehnt werden.

Bei der ersten Messung von Probe 1.27 liegt der Messwert oberhalb der Erkennungsgrenze, aber unterhalb der Nachweisgrenze. Die Diskrepanz zwischen der ersten und zweiten Messung der Probe 1.27 kann statistischer Zufall sein oder darauf hindeuten, dass nicht alle Unsicherheitsbudgets berücksichtigt wurden.

Damit das Verfahren nach DIN 25482 zum Nachweis von Abweichungen vom natürlichen Isotopenverhältnis geeignet ist, muss die Differenz der Isotopenverhältnisse von Probe und Standard größer sein als die Nachweisgrenze für $Y = R_{5/8,p} - R_{5/8,s}$. Das heißt, die Isotopenhäufigkeit in der Probe muss die im Standard mindestens um diese Nachweisgrenze übertreffen. Die Nachweisgrenzen für $Y = R_{5/8,p} - R_{5/8,s}$ in Tab. 3.6 zeigen, dass das Messverfahren bei der ersten Messserie nur dann geeignet wäre, wenn die Isotopenhäufigkeiten des U-235 in den Proben etwa 2 % betrüge. Bei der Nachmessung der Probe 1.27 müsste die Isotopenhäufigkeit des U-235 in der Probe etwa 1,1 % betragen, damit das Verfahren geeignet wäre.

A 3.2.3 Mögliche Fehlerquellen bei der Überprüfung einer Abweichung von erwarteten Isotopenverhältnissen

Die vorstehende Behandlung von Nachweis- und Erkennungsgrenzen bei der Messung von Isotopenanomalien geht davon aus, dass die Messunsicherheiten vollständig erfasst wurden und keine Quellen der Unsicherheit vernachlässigt werden. Unbekannte oder nicht berücksichtigte systematische Unsicherheiten können dazu führen, dass die realen Erkennungs- und Nachweisgrenzen höher sind. Derartige Fehlerquellen werden im Folgenden an den Beispielen von alpha-spektrometrischen Messungen der Uran-Isotope und von gamma-spektrometrischen Messungen von Cs-134 und Cs-137 in Bodenproben erläutert.

Zähluntergrund in der Alpha-Spektrometrie

Für genaue Messungen im Low-Level-Bereich sind Untergrundkorrekturen prinzipiell zu beachten. Der Zähluntergrund des Alphaspektrums besitzt die beiden Komponenten Detektoruntergrund und Ausläufer (Tail) von Peaks höherenergetischer Teilchen. Während der Detektoruntergrund vor allem bei Präparaten mit sehr geringer Präparataktivität (und folglich sehr langen Messzeiten) zu beachten ist, spielt der Tailingeffekt bei höheraktiven Präparaten die entscheidende Rolle. Der Detektoruntergrund wird vor allem durch die Vornutzung des Detektors bestimmt (Kontamination mit Radionukliden infolge Alpha-Rückstoß).

Alphaspektren sind asymmetrisch und besitzen im niederenergetischen Teil ein Tailing. Damit ist für Messungen von U-235 unabhängig vom Detektoruntergrund stets ein probenspezifischer Untergrund aus dem U-234-Alpha-Peak zu berücksichtigen. Aus diesem Grunde ist die Ermittlung der Netto-Zählrate für U-235-Messungen wesentlich.

Zur Ermittlung des Untergrundes im U-235-Fenster können Spektren mit bekannter (natürlicher) Isotopenzusammensetzung benutzt werden. Werden bei der Auswertung die Spektren numerisch entfaltet, sind präzise Aussagen nur durch Vergleiche von Standards und Proben möglich.

Alphaspektren des Urans

Die Alphalinien der natürlichen Uranisotope sind in Tabelle 3.7 zusammengestellt und in Abbildung 3.1 als fiktives Idealspektrum grafisch dargestellt (logarithmische Skala beachten).

Dabei wurde die Höhe der Alphalinien von U-235 auf die tatsächlich messbare Peakintensität infolge der geringeren Isotopenhäufigkeit korrigiert („Häufigkeit, korr.“ in Tabelle 3.7). Man erkennt, dass in Alpha-Spektrometern mit einer Auflösung von ca. 10 keV zum U-235-Peak praktisch nur Linien zwischen 4,415 MeV bis evtl. 4,216 MeV erkennbar beitragen. Damit umfassen die ausgewerteten U-235-Peaks nur 89,8 % der gesamten U-235-Peaks. Werden nur die gut sichtbaren Linien 4,396 MeV und 4,366 MeV ausgewertet, so enthält dieser Teil des Spektrums nur 75 % des gesamten U-235-Peaks.

Aus diesen Daten folgt, dass im Alphaspektrum die Nachweisgrenzen und Erkennungsgrenzen von Isotopenverschiebungen noch höher ausfallen als in Kapitel A 3.2.2 berechnet.

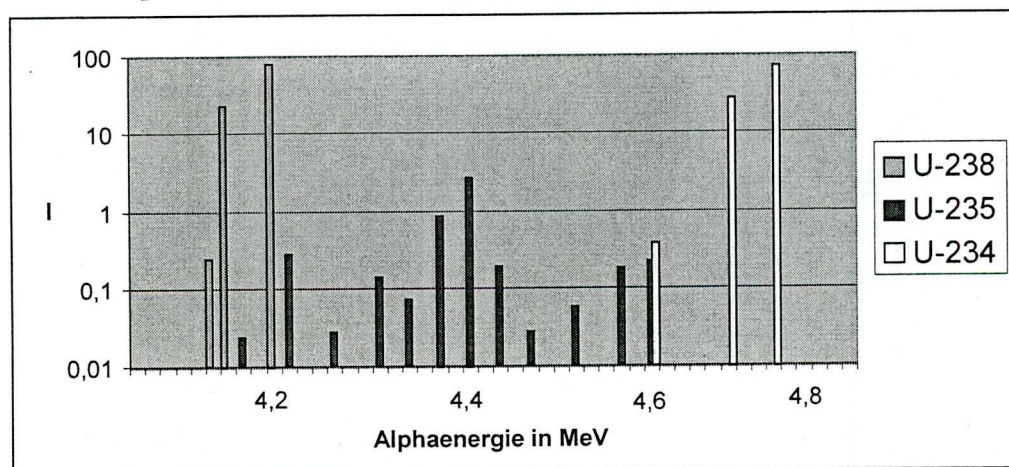


Abbildung 3.1: Ideales Alphaspektrum von Uran, relative Intensitäten I der Alphaenergien in %

Tab. 3.7: Alphaenergien von Uranisotopen und zugehörige Häufigkeit in % (Daten aus [Weast 1977])

U-238		U-235			U-234	
E_α in MeV	Häufigkeit in %	E_α in MeV	Häufigkeit in %	Häufigkeit, kor.	E_α in MeV	Häufigkeit in %
4,195	77	4,597	4,6	0,21	4,773	72
4,147	23	4,556	3,7	0,17	4,722	28
4,135	0,23	4,502	1,2	0,06	4,599	0,35
		4,445	0,6	0,03		
		4,415	4	0,19		
		4,396	57	2,64		
		4,366	18	0,83		
		4,344	1,5	0,07		
		4,323	3	0,14		
		4,265	0,6	0,03		
		4,216	5,7	0,26		
		4,157	0,5	0,02		

Für die Aufgabe, ein nichtnatürliches Verhältnis U-235/U-238 alpha-spektrometrisch nachzuweisen, ist das Aktivitätsverhältnis und weniger das Isotopenverhältnis die adäquate Größe. Die Bestimmung dieses Verhältnisses ist direkt aus den Alphaspektren möglich. Werden die Ergebnisse mit einem Standard in Bezug gesetzt, dann gehen die Zerfallskonstanten nicht in die Auswertung ein.

Es gilt:

$$AR_{5/8,p} = k_1 \cdot [N_{5,p} - NB_5] / [N_{8,p} - NB_8] \quad (14)$$

mit

AR Aktivitätsverhältnis

$N_{5,p}$ Anzahl der Zählereignisse im Alphapeak U-235 der Probe p

$N_{8,p}$ Anzahl der Zählereignisse im Alphapeak U-238 der Probe p

NB_5 Anzahl der Untergrundimpulse im Alphapeak U-235

NB_8 Anzahl der Untergrundimpulse im Alphapeak U-238

k_1 Faktor zur Korrektur des ausgewerteten Anteils am U-235-Peak (s. oben)

In Analogie zu Gl. (5) lautet die Bestimmungsgleichung der Standardunsicherheit:

$$u^2(R_{5/8,p}) = R_{5/8,p}^2 \cdot \left(\frac{(N_{5,p} + NB_5)}{(N_{5,p} - NB_5)^2} + \frac{(N_{8,p} + NB_8)}{(N_{8,p} - NB_8)^2} \right) \quad (15)$$

Selbst wenn der Untergrund im U-238-Fenster vernachlässigt werden kann, ist der Untergrund in U-235-Fenster bei Präzisionsmessungen unbedingt zu beachten. Die Messunsicherheit ist daher stets noch höher als oben abgeschätzt.

Um die Relevanz der Untergrundkorrektur genauer beurteilen zu können, werden aus den Daten der Probenmessungen laut [NLÖ 2001a, NLÖ 2001b] die zugrunde liegenden Zählereignisse abgeschätzt.

Mit dem einfachen Ansatz

$$u^2(N) = N \quad (16)$$

erhält man die in Tabelle 3.8 aufgeführten Ergebnisse. Die sehr gute Übereinstimmung der berechneten und angegebenen Zahlen zeigt, dass offensichtlich Untergrundkorrekturen nicht ausgeführt wurden. Darüber hinaus ist ersichtlich, dass generell die ausgewerteten Zählereignisse gering sind und offensichtlich keine Präzisionsmessungen beabsichtigt waren (ansonsten sind Zählereignisse von über 2500 Impulsen im U-238-Fenster anzustreben, um für U-238 eine statistische Unsicherheit von 2 % zu erreichen).

Tab. 3.8: Abgeschätzte Zählereignisse der Messungen aus Tabelle 3.4

	N_8	$u(N_8)$	$u(N_8)/N_8$		N_5	$u(N_5)$	$u(N_5)/N_5$	
			berechnet	lt. [NLÖ 2001a/b]			berechnet	lt. [NLÖ 2001a/b]
1.22	280	16,7	6,0%	6%	12	3,5	28,9%	28%
1.34	210	14,5	6,9%	7%	9	3,0	33,3%	32%
1.27	410	20,2	4,9%	5%	41	6,4	15,6%	15%
1.27(N)	2080	45,6	2,2%	2,2%	94	9,7	10,3%	10%

Das Ergebnis der Probe 1.27 zeigt, dass bei nicht hinreichender Messzeit Ergebnisse entstehen können, die ohne ausreichende Berücksichtigung der Messunsicherheit eine real nicht vorhandene Anreicherung von U-235 ausweisen. Die Nachmessung der Probe 1.27 (N) belegt, dass durch Verlängerung der Zählzeiten statistisch belastbare Ergebnisse erreicht werden können. Die Notwendigkeit hinreichend langer Messzeiten ist auf andere Untersuchungen übertragbar, da bei den angegebenen Aktivitätskonzentrationen von ca. 10 Bq/kg die notwendige Messzeit zum Erreichen der erforderlichen Genauigkeit mit etwa 40 bis 50 Stunden abgeschätzt werden kann.

Beispielsweise stehen dann bei einer Probenmasse von 10 g und einer chemischen Ausbeute von 50 % etwa 50 mBq auf dem Präparat zur Verfügung. Bei einer Zählausbeute von 30 % beträgt die Zählrate damit: $Z_{U8} = 15$ Impulse je 1000 s. Die notwendige Messzeit für 2500 Impulse und damit zum Erreichen der erforderlichen Genauigkeit beträgt damit $t = 2500 / 15 = 46$ h. Derartige Messzeiten sind für genaue Messungen vertretbar und praktikabel.

Auch in der γ -Spektrometrie von Radionukliden der natürlichen Zerfallsreihen treten ähnliche Probleme auf, wenn störende Gammalinien anderer Radionuklide, die in den Messanleitungen für die Erfassung der Radioaktivität in der Umwelt [BMU 1992] beschrieben sind, nicht berücksichtigt werden.

Systematische Unsicherheiten bei der gamma-spektrometrischen Bestimmung von Cs-134

Bei der gamma-spektrometrischen Bestimmung von Cs-134 und Cs-137 treten ebenfalls systematische Unsicherheiten auf, die für eine Interpretation der beobachteten Isotopenverhältnisse berücksichtigt werden müssen. Das Verhältnis der Aktivitätskonzentrationen von Cs-137 und Cs-134 kann nach Messungen an hoch durch den Tschernobyl-Fallout belasteten Böden [Botsch 2000] für das Jahr 1986 zu $A_{137}/A_{134} = 1,9 \pm 0,2$ berechnet werden. Da Cs-134 aus dem weltweiten Fallout der oberirdischen Kernwaffenversuche bereits 1986 nicht mehr nachweisbar war, erlaubt der Nachweis von Cs-134 zusammen mit dem oben angegebenen Aktivitätsverhältnis eine gamma-spektrometrische Unterscheidung der Quellen des in Böden vorgefundenen Cs-137.

In der Unterlage [ARGE PhAM 2001c] werden Messergebnisse für Cs-137 und Cs-134 an Hausstaubproben durch die LUFA [LUFA 2001a] als Argument dafür herangezogen, dass die Cs-137-Aktivität der Böden der Umgebung von KKK und GKSS nicht durch den weltweiten Waffenfallout und den Fallout von Tschernobyl zu erklären ist. Ungeachtet der Feststellung, dass die absoluten Aktivitätskonzentrationen von Cs-137 diese Interpretation nicht unterstützen, kann auch diese Interpretation auf die mangelnde Berücksichtigung von systematischen Unsicherheiten zurückgeführt werden.

15 Jahre nach dem Unfall von Tschernobyl ist Cs-134 ($T_{1/2} = 2,06$ a) weitgehend abgeklungen und nur schwer in norddeutschen Böden zu messen. In Bodenproben, in denen Cs-134 noch nachweisbar ist, erwartete man 2001 ein Aktivitätsverhältnis von $A_{137}/A_{134} > 200$.

Das Problem der Messung von Cs-134 in geringen Aktivitätskonzentrationen besteht darin, dass der Nachweis über die 604,72 keV-Gammalinie ($I_\gamma = 97,62$ %) durch eine Gammalinie aus den natürlichen Zerfallsreihen (Bi-214, 609,31 keV ($I_\gamma = 44,6$ %)) gestört wird [BMU 1992]. Der Nachweis über die 795,86 keV-Gammalinie ($I_\gamma = 85,53$ %) ist weniger empfindlich und wird ebenfalls durch eine Gammalinie aus den natürlichen Zerfallsreihen (Ac-228, 794,95 keV ($I_\gamma = 4,25$ %)) gestört [BMU 1992]. Ohne Korrektur für die störenden Gammalinien anderer Radionuklide beobachtet man in Böden, die nur geringe Cs-134-Aktivitäten enthalten, niedrigere A_{137}/A_{134} -Verhältnisse.

Die in Unterlage [ARGE PhAM 2001c] zitierten Messergebnisse der LUFA stellen keinen belastbaren Hinweis auf andere Quellen von Cs-137 in der Umgebung von KKK und GKSS als den globalen Fallout der oberirdischen Kernwaffenversuche und den Tschernobyl-Fallout dar. Sie können mit mangelnder Berücksichtigung störender Gammalinien anderer Radionuklide bei radiologisch nicht relevanten Cs-134-Aktivitätskonzentrationen erklärt werden.

A 3.3 Vorkommen und Isotopenverhältnisse von Plutonium in Umweltproben

Im Bericht ELB 3 der ARGE PhAM [ARGE PhAM 2001a] wird vom Vorhandensein von Plutonium in der Umgebung von KKK und GKSS ausgegangen, das seinen Ursprung weder

im Atomwaffen-Fallout noch im Unfall in Tschernobyl hat. Das festgestellte Plutonium müsse aufgrund seiner Isotopenzusammensetzung (Pu-238 und Pu-241) bei einem Forschungsvorgang freigesetzt worden sein. Die Messungen des Institutes für Kernchemie der Universität Mainz würden auf eine Erzeugung von Pu-241 aus Pu-240 hinweisen. Die an der Universität Marburg alpha-spektrometrisch ermittelte Isotopenzusammensetzung von Plutonium zeige eine unterschiedliche Herkunft von Pu-239/240 und Pu-238. Die Messergebnisse der verschiedenen Institute werden nachfolgend dargestellt und bewertet.

A 3.3.1 Plutoniumanalysen des Instituts für Kernchemie der Universität Mainz

Die vom Institut für Kernchemie der Universität Mainz durchgeführten Messungen von Plutonium-Isotopenverhältnissen in Proben von Hausstaub aus der Elbmarsch und in der Nahumgebung des Kernkraftwerks Krümmel erfolgten auf der Basis eines federführend vom Ministerium für Finanzen und Energie des Landes Schleswig-Holstein entwickelten Konzepts, das mit dem Niedersächsischen Ministerium für Frauen, Arbeit und Soziales abgestimmt war. Über die Ergebnisse und deren Bewertung wird in [MFE 2000] berichtet.

Die Probenahme erfolgte im Oktober 1999 durch die Landwirtschaftliche Untersuchungs- und Forschungsanstalt LUFA Kiel. Beprobte wurden Gebäude und Häuser, die vor 1960, in einem Fall 1965, errichtet worden waren. Mittels eines Haushaltsstaubsaugers wurden in schwer zugänglichen unbenutzten Flächen innerhalb von Dachböden jeweils etwa 1000 g erkennbar alte Staubablagerungen abgesaugt und gesiebt. Die Staubfraktion kleiner 1 mm Durchmesser wurde getrocknet, gemahlen und homogenisiert. Es erfolgte eine Kodierung und von jeder Probe wurde eine Teilmenge an das Institut für Kernchemie der Universität Mainz gesandt.

Die isotopenspezifische Analyse erfolgte mit dem Verfahren der Resonanzionisations-Massenspektrometrie (RIMS). Die Messungen erfolgten zwischen November 1999 und Februar 2000. Nach einer Vermischung mit Tracer-Plutonium erfolgte eine chemische Aufbereitung von Probenmaterial und die Bestimmung des Gehalts jeder Probe in zwei unabhängigen Einzelmessungen. Für die Einzelmessungen wurde jeweils die gesamte Prozedur ab chemischem Aufschluss wiederholt.

In Tabelle 3.9 sind die Ergebnisse der Plutoniumanalysen des Instituts für Kernchemie der Universität Mainz zusammengestellt.

Die in Tabelle 3.9 angegebenen Messergebnisse sind gewichtete Mittelwerte aus je zwei unabhängigen Einzelmessungen. Die Gewichte der Einzelmessungen sowie die in der Tabelle angegebenen Unsicherheiten bei Einzelisotopen und Isotopenverhältnissen sind aus den einfachen statistischen Unsicherheiten (1σ -Unsicherheit) der Einzelmessungen abgeleitet worden. Durch Vergleich der Ergebnisse der jeweils zwei Einzelmessungen wurde in [MFE 2000] geprüft, in welchem Umfang die statistische Unsicherheit und die Probenaufbereitung etc., z.B. Inhomogenitäten des Probenmaterials, zur gesamten Unsicherheit beitragen. Es ergab sich, dass die Unsicherheit insgesamt etwa doppelt so groß ist wie die in Tabelle 3.9 angegebene Unsicherheit aus der Statistik. Für die Isotopenverhältnisse von Pu-240 zu Pu-239 ergab sich eine ungefähre Übereinstimmung der Unsicherheit mit der statistischen Unsicherheit.

Tab. 3.9: Plutoniumgehalte in Hausstaubproben gemäß den Messungen des Instituts für Kernchemie der Universität Mainz [MFE 2000]

Proben-Nr.	Herkunft	Pu-238 (mBq/g TM)	Pu-239 (mBq/g TM)	Pu-240 (mBq/g TM)	Pu-241 (mBq/g TM)	Pu-242 (mBq/g TM)	Aktivitäts- verhältnis Pu- 240/Pu- 239 *	Pu- 239/240 (mBq/g TM) **
Umgebung KKK/GKSS								
2	Rönne	<0,75	0,13±0,01	0,09±0,01	<4,6	<0,0004	0,66±0,07	0,22
3	Obermarschacht	<0,75	0,69±0,04	0,32±0,03	<4,6	<0,0004	0,48±0,04	1,01
4	Tespe	<0,75	0,52±0,03	0,29±0,02	5,8±1,5	<0,0004	0,59±0,04	0,81
7	Tespe	<0,75	1,44±0,08	0,89±0,06	23,7±4,5	<0,0004	0,66±0,04	2,33
9	Grünhof	<0,75	0,12±0,01	0,06±0,01	<4,6	<0,0004	0,48±0,07	0,18
10	Grünhof	<0,75	0,40±0,02	0,24±0,02	<4,6	<0,0004	0,66±0,04	0,64
11	Tesperhude	<0,75	0,23±0,01	0,15±0,01	<4,6	<0,0004	0,63±0,04	0,38
12	Avendorf	<0,75	0,21±0,01	0,13±0,01	<4,6	<0,0004	0,55±0,04	0,34
14	Tesperhude	<0,75	0,88±0,04	0,47±0,03	9,0±2,2	<0,0004	0,52±0,04	1,35
20	Tespe	<0,75	0,23±0,01	0,14±0,01	10,3±3,3	<0,0004	0,59±0,07	0,37
Vergleichsgebiet 1 (Schleswig-Holstein)								
1	Bergenhusen	<0,75	1,59±0,06	0,96±0,04	26,4±4,2	<0,0004	0,63±0,04	2,55
15	Kating	<0,75	0,82±0,04	0,47±0,04	9,8±3,3	<0,0004	0,63±0,04	1,29
16	Kating	<0,75	0,71±0,03	0,40±0,04	<4,6	<0,0004	0,63±0,04	1,11
17	Bergenhusen	<0,75	0,37±0,02	0,27±0,01	<4,6	<0,0004	0,66±0,04	0,64
18	Steinberg	<0,75	0,26±0,01	0,15±0,01	6,3±1,4	<0,0004	0,59±0,04	0,41
19	Kating	<0,75	0,53±0,03	0,38±0,03	<4,6	<0,0004	0,74±0,04	0,91
21	Kating	<0,75	0,69±0,03	0,43±0,03	12,4±3,0	<0,0004	0,59±0,04	1,12
22	Kropp	<0,75	0,15±0,01	0,11±0,01	<4,6	<0,0004	0,74±0,04	0,26
23	Kropp	<0,75	0,23±0,01	0,13±0,01	<4,6	<0,0004	0,55±0,04	0,36
24	Kropp	<0,75	0,88±0,04	0,50±0,03	10,6±1,9	<0,0004	0,59±0,04	1,38
Vergleichsgebiet 2 (Schleswig-Holstein)								
5	Grabensee	<0,75	0,73±0,03	0,41±0,02	10,3±1,7	<0,0004	0,59±0,04	1,14
6	Wittenberger P.	<0,75	0,70±0,03	0,36±0,02	<4,6	<0,0004	0,55±0,04	1,06
8	Selent	<0,75	0,11±0,01	0,04±0,01	<4,6	<0,0004	0,37±0,07	0,15
13	Selent	<0,75	0,13±0,01	0,07±0,01	4,8±1,2	<0,0004	0,55±0,04	0,20

* Die angegebenen Zahlen entstanden nach [MFE 2000] durch Umrechnung gerundeter Atomzahlenverhältnisse in Aktivitätsverhältnisse.

** Die Summenaktivität von Pu-239 und Pu-240 wurde hier errechnet und angegeben, damit diese mit den weiteren zitierten Untersuchungsergebnissen, bei denen nur die Summenaktivität ermittelt wurde, verglichen werden kann.

Die Ergebnisse der Analysen der Plutoniumisotope zeigen:

- Es liegt bei keinem Isotop ein systematischer Unterschied in den Gehalten der Hausstaubproben aus dem Untersuchungsgebiet und den Vergleichsgebieten vor. Auch der höchste Einzelmesswert für ein Isotop liegt nicht im Untersuchungsgebiet vor, sondern in einem Vergleichsgebiet. Die Vergleichsgebiete wurden so ausgewählt, dass sie wie die Elbmarsch ländlichen Charakter aufweisen und sowohl im Hinblick auf KKK und GKSS als auch im Hinblick auf andere Kernkraftwerke von keinem Eintrag von Plutonium auszugehen ist.
- Auch das Isotopenverhältnis von Pu-240 zu Pu-239 zeigt in Tabelle 3.9 keinen systematischen Unterschied zwischen dem Untersuchungsgebiet und den Vergleichsgebieten.
- Das Gleiche gilt für das Isotopenverhältnis von Pu-241 zu Pu-240.

Insgesamt ergibt sich damit aus den Plutoniumanalysen des Instituts für Kernchemie der Universität Mainz weder ein Hinweis auf gegenüber den Vergleichsgebieten höhere Plutoniumgehalte in Hausstaubproben aus der Umgebung von KKK und GKSS noch ein Hinweis auf gegenüber den Vergleichsgebieten abweichende Isotopenverhältnisse des Plutoniums.

A 3.3.2 Plutoniumanalysen des Instituts für Transurane

Das Landeskriminalamt des Landes Schleswig-Holstein ließ bei Herrn Gabriel (ARGE PhAM) beschlagnahmtes Probenmaterial aus der Umgebung von KKK und GKSS sowie eigene Proben der Staatsanwaltschaft Lübeck beim Institut für Transurane der Europäischen Kommission in Karlsruhe unter anderem auf Plutonium hin untersuchen. Messverfahren und Ergebnisse sind in [ITU 2002, Hrncsek 1999, Hrncsek 2002] beschrieben.

Für die alpha-spektrometrische Analyse wurde das Probenmaterial homogenisiert und verascht. Ein Pu-242-Tracer wurde zugesetzt und das Material chemisch aufbereitet. Die Analysen im Alpha-Spektrometer erfolgten über eine Zeitdauer von jeweils etwa 22 bis 83 Stunden. Die Messergebnisse sind in Tabelle 3.10 aufgelistet.

Die Ergebnisse der Plutoniumanalysen des Instituts für Transurane zeigen:

- Die Messwerte für Pu-239/240 sind beim beschlagnahmten Probenmaterial nicht systematisch höher als bei den eigenen Proben der Staatsanwaltschaft Lübeck. Der Höchstwert im beschlagnahmten Material liegt etwa 2,5fach über dem der eigenen Proben.
- Die Pu-238-Gehalte liegen sämtlich unterhalb der Nachweisgrenze.

Die Messwerte können mit der in Deutschland allgemein vorliegenden Höhe von Plutoniumkontaminationen in Böden verglichen werden. In [BfM 1998] sind Messwerte der spezifischen Aktivität von Pu-238 und Pu-239/240 in Ackerbodenproben von 64 Orten aus 11 Bundesländern aufgelistet. Die Messwerte liegen für Pu-238 in der Regel unterhalb der Nachweisgrenze bei diesen Messungen von 0,011 mBq/g TM, in einem Fall bei 0,016 mBq/g TM. Für Pu-239/240 liegen die Messwerte zwischen 0,057 mBq/g TM und 0,501 mBq/g TM, der Mittelwert bei 0,126 mBq/g TM. (Hinweis: Die in Tabelle 3.9 aufgeführten Messergebnisse für Pu-239/240 beziehen sich auf Hausstaubproben und dürfen daher nur mit den Daten der Vergleichsgebiete der Tabelle 3.9 verglichen werden.)

Tab. 3.10: Plutoniumgehalte in Proben aus der Umgebung von GKSS/KKK gemäß den Messungen des Instituts für Transurane [ITU 2002]

Proben-Nr.	Herkunft	Pu-238 (mBq/g TM)	Pu-239/240 (mBq/g TM)
Probenmaterial von Herrn Gabriel			
LKA 1.1	Tespe, Fährhaus	<0,0142	0,2168±0,0266
LKA 1.5	KKK, Elbufer	<0,0056	0,0912±0,0111
LKA 1.8	KKK, Elbufer	<0,0080	0,1491±0,0180
LKA 1.10	GKSS, Elbufer	<0,0040	0,1307±0,0112
LKA 1.11	GKSS, Elbufer	<0,0034	0,0687±0,0068
LKA 1.27	Obermarschacht, Elbufer	<0,0125	0,0969±0,0170
LKA 1.29	zwischen KKK und GKSS	<0,0095	0,1237±0,0176
LKA 1.34	Tespe, Hafen	<0,0080	0,0347±0,0083
Proben der Staatsanwaltschaft Lübeck			
LKA 3.1	KKK, Kühlwasserauslaufbauwerk	<0,0017	0,0289±0,0028
LKA 3.2	KKK, Nähe Elbufer	<0,0052	0,0480±0,0075
LKA 3.3	KKK, Nähe Elbufer	<0,0043	0,0586±0,0074
LKA 3.4	Tesperhude, Nähe Elbufer	<0,0040	0,0673±0,0076
LKA 3.5	KKK, Umspannwerk	<0,0037	0,0827±0,0080
LKA 3.7	Tespe, Nähe Fährhaus	<0,0036	0,0285±0,0046
LKA 3.8	Obermarschacht, Deichkrone	<0,0082	0,0456±0,0090
LKA 3.9	Tespe, Deichkrone Hafen	<0,0035	0,0759±0,0077

Insgesamt ergibt sich damit aus den Plutoniumanalysen des Instituts für Transurane kein Hinweis auf in der Umgebung von KKK und GKSS gegenüber anderen Gebieten in Deutschland höhere Gehalte an Pu-238 oder Pu-239/240 im Boden.

Neben den alpha-spektrometrischen Untersuchungen wurden vom Institut für Transurane Messungen mittels Scanning Electron Microscopy (SEM) im Hinblick darauf vorgenommen, ob im Probenmaterial plutoniumhaltige Partikel vorliegen. Es konnten mit diesem dafür geeigneten Messverfahren keine plutoniumhaltigen Partikel identifiziert werden.

A 3.3.3 Plutoniumanalysen des Niedersächsischen Landesamts für Ökologie

Nachdem von der ARGE PhAM und IPPNW das Vorhandensein kernbrennstoffhaltiger Partikel in der Umgebung von KKK und GKSS behauptet wurde, wurde vom Niedersächsischen Landesamt für Ökologie Boden in der Umgebung von KKK und GKSS beprobt und unter anderem auf Plutonium hin untersucht. Vom NLO wurde hierüber der Bericht [NLO 2001a] vorgelegt. Über die Messungen wurde auf der 8. Sitzung des SSK-Ausschusses „Strahlenschutz bei Anlagen“ durch Mitarbeiter des NLO berichtet.

In Absprache mit Herrn Gabriel der ARGE PhAM und mindestens teilweise in seinem Beisein wurden die Bodenproben im Bereich Tespe an fünf Stellen, die auch von der ARGE

PhAM beprobt worden waren, am 27.1.2001 entnommen. Die auf Plutonium analysierten Proben stammten aus einer Bodentiefe von 10 bis 20 cm.

Die Messungen von Pu-239/240 und Pu-238 erfolgten mittels Alpha-Spektrometrie nach Tracerzusatz (U, Pu, Am) und Nassveraschung mit HNO₃ und H₂SO₄. Pu-241 wurde nach der Alpha-Spektrometrie nach Wiederauflösen des elektrolytisch abgeschiedenen Plutoniums durch Flüssigkeitsszintillationsspektrometrie bestimmt. Das Verfahren wird in [NLÖ 2001a] als nicht standardisiert und fehleranfällig bezeichnet.

Die Messergebnisse sind in Tabelle 3.11 zusammengestellt.

Tab. 3.11: Plutoniumgehalte in Bodenproben aus Tespe gemäß den Messungen des NLÖ [NLÖ 2001a]

Herkunft	Proben-Nr. bei ARGE PhAM	Pu-238 (mBq/g TM)	Pu-239/240 (mBq/g TM)	Pu-241 (mBq/g TM)
Tespe, Fährhaus	1.1	<0,08	<0,08	<18
Tespe, Tennisplatz	1.22	<0,09	<0,09	<18
Tespe, Kriegerdenkmal	1.2	<0,09	<0,09	<18
Tespe, Hafen	1.34	<0,09	<0,09	<18
Tespe, Kate	1.27	<0,1	<0,1	<18

Die Messergebnisse in Tabelle 3.11 zeigen keine Überschreitung von Nachweisgrenzen. Die nicht besonders aufwendige Durchführung der Analysen wurde vom NLÖ auf der 8. Sitzung des SSK-Ausschusses „Strahlenschutz bei Anlagen“ damit begründet, dass das Ziel der Analysen war, zu entscheiden, ob dringender Handlungsbedarf aus radiologischer Sicht besteht. Für diesen Zweck waren die Analysen angemessen.

Seitens der ARGE PhAM wurde hinsichtlich der Probenahme durch das NLÖ kritisiert, dass die Bodenproben aus einer Tiefe von 10 bis 20 cm entnommen wurden, obwohl eine Bodentiefe von 5 bis 15 cm erforderlich gewesen sei [ARGE PhAM 2001d]. Für diese Kritik wurde aber keine plausible Begründung vorgelegt. Aus den anderen Messungen von ITU, LUFA, GKSS und FZJ liegen im übrigen keine Hinweise auf erhöhte Plutoniumgehalte in anderer Bodentiefe als 10 bis 20 cm vor.

A 3.3.4 Plutoniumanalysen der Landwirtschaftlichen Untersuchungs- und Forschungsanstalt Kiel

Von der Landwirtschaftlichen Untersuchungs- und Forschungsanstalt Kiel wurden Plutoniumbestimmungen in Rückstellproben und Sonderproben von Boden aus der Umgebung von KKK und GKSS vorgenommen. Über die Ergebnisse wurde auf der 8. Sitzung des SSK-Ausschusses „Strahlenschutz bei Anlagen“ berichtet [LUFA 2001a].

In Rückstellproben aus dem Überwachungsprogramm des Kernkraftwerks Krümmel wurden nachträglich unter anderem Pu-238 und Pu-239/240 analysiert. Es handelte sich um Bodenproben aus dem Jahr 2000, die in 0 bis 10 cm Tiefe entnommen waren. Die entsprechenden Proben aus dem Programm für das Jahr 2001 wurden ebenfalls auf Pu-238 und Pu-239/240 hin untersucht. Weitere Bodenproben wurden im Februar 2001 als Sonderproben an Probe-

nahmeorten der ARGE PhAM in 10 bis 20 cm Bodentiefe entnommen. Die Bodenproben wurden alpha-spektrometrisch ausgewertet. Die Messergebnisse sind in Tabelle 3.12 zusammengestellt.

Tab. 3.12: Plutoniumgehalte in Proben aus der Umgebung von GKSS/KKK und von Referenzorten gemäß den Messungen der LUFA Kiel [LUFA 2001a]

Programm	Herkunft	Bodentiefe (cm)	Pu-238 (mBq/g TM)	Pu-239/240 (mBq/g TM)
Umgebung von KKK/GKSS				
REI KKK 2000 (Rück- stellpro- ben)	Elbufer Tespe	0 – 10	<0,1	<0,1
	KKK-Gelände		<0,1	<0,1
	Elbufer Tesper- hude		<0,1	<0,1
REI KKK 2001	Elbufer Tespe	0 – 10	<0,1	<0,1
	KKK-Gelände		<0,1	<0,1
	Elbufer Tesper- hude		<0,1	<0,1
Sonder- proben	Krümmel	10 – 20	<0,1	<0,1
	Tesperhude		<0,1	<0,1
	zwischen KKK und GKSS		<0,1	<0,1
Referenzorte				
Sonder- proben	Stocksee	10 – 20	<0,1	<0,1
	Ahrensbek		<0,1	0,18±45%
	Wittbek (östl. Husum)		<0,1	<0,1
	Uphusum (nördl. Niebüll)		<0,1	0,30±43%

Die Messergebnisse der LUFA Kiel zeigen keine Auffälligkeit bei den Proben aus der Umgebung von KKK und GKSS gegenüber den Proben von Referenzorten. Es gibt aber nur zwei Messwerte oberhalb der Nachweisgrenze, beide von Referenzorten.

A 3.3.5 Plutoniumanalysen des GKSS-Forschungszentrums

Auf der 8. Sitzung des SSK-Ausschusses „Strahlenschutz bei Anlagen“ wurde seitens des GKSS-Forschungszentrums über Messungen und deren Ergebnisse in Zusammenhang mit den Funden von Kügelchen in der Umgebung von KKK und GKSS berichtet.

An einem 150 Jahre alten reetbedeckten Haus waren Proben von Reet, Moos und Hausstaub vom Speicher entnommen worden. In der Hausstaubprobe wurden mittels Lupe insgesamt 58 Teilchen und Kügelchen identifiziert.

In Tabelle 3.13 sind die Messergebnisse von Plutoniumisotopen der alpha-spektrometrischen Untersuchung von Reet und Moos zusammengestellt.

Tab. 3.13: Plutoniumgehalte in Proben von Reet und Moos aus der Elbmarsch gemäß den Messungen des GKSS-Forschungszentrums [GKSS 2001]

Probenmaterial	Pu-238 (mBq/g FM)	Pu-239/240 (mBq/g FM)
Reet	<0,004	0,13±3,9%
Moos	<0,016	0,22±5,8%

In isolierten Teilchen und Kügelchen konnte kein Plutonium nachgewiesen werden.

Insgesamt ergibt sich aus den Messungen des Forschungszentrums Geesthacht kein Hinweis auf plutoniumhaltige Kügelchen. Für die Plutoniumkontamination von Reet und Moos fehlen Vergleichswerte, die Höhe der Kontamination ist aber unauffällig, wenn sie mit Bodenproben und Staubproben verglichen wird.

A 3.3.6 Plutoniumanalysen des Forschungszentrums Jülich

Das Institut für Sicherheitsforschung und Reaktortechnik des Forschungszentrums Jülich (FZJ) hat im Auftrag der Monitor-Redaktion des Westdeutschen Rundfunks (WDR) Bodenproben aus der Umgebung von KKK und GKSS untersucht, die von der Monitor-Redaktion zur Verfügung gestellt worden waren. Schriftliche Dokumente über diese Messungen und ihre Ergebnisse wurden unter Hinweis auf die fehlende Freigabe durch den WDR nicht zur Verfügung gestellt, so dass sich die Ausführungen hier auf den auf der 13. Sitzung des SSK-Ausschusses „Strahlenschutz bei Anlagen“ seitens des FZJ gegebenen mündlichen Bericht beziehen.

Die Bodenproben stammten von sieben Probenahmeorten und aus einer Bodentiefe von etwa 25 cm. In einer der Bodenproben wurden etwa 20 schwarze Partikel mit einer Gesamtmasse von 6 mg identifiziert. Die Ergebnisse der alpha-spektrometrischen Analyse einer Bodenprobe und der daraus separierten Partikel sind in Tabelle 3.14 zusammengestellt.

Tab. 3.14: Plutoniumgehalte in einer Bodenprobe aus der Umgebung von KKK und GKSS und daraus separierten Partikeln gemäß Messungen des FZJ [FZJ 2002]

Probenmaterial	Nuklid	Konzentration (mBq/g TM)	Unsicherheit (%)	Blindwert (mBq/g TM)
Bodenprobe	Pu-238	<0,03	100	<0,03
	Pu-239/240	<0,03	100	<0,03
Separierte Partikel	Pu-238	<0,001	100	-
	Pu-239/240	<0,001	100	-

Aus den Messergebnissen ergeben sich keine Hinweise auf ein erhöhtes Vorkommen von Plutonium in der Bodenprobe und den daraus separierten Partikeln.

Auf der 13. Sitzung des SSK-Ausschusses „Strahlenschutz bei Anlagen“ wurde berichtet, dass eine nochmalige Untersuchung der Proben des WDR an der Fachhochschule Jülich zum gleichen Ergebnis geführt habe [FZJ 2002].

A 3.3.7 Plutoniumanalysen der Universität Marburg

In [ARGE PhAM 2001a] werden alpha-spektrometrische Untersuchungen des Instituts für Physikalische, Kern- und Makromolekulare Chemie der Universität Marburg von Bodenproben aus der Umgebung von KKK und GKSS angeführt, bei denen auch Plutoniumisotope bestimmt wurden. Die Messergebnisse sind in Tabelle 3.15 zusammengestellt.

Tab. 3.15: Plutoniumgehalte in Bodenproben aus der Umgebung von KKK und GKSS gemäß Messungen am Institut für Physikalische, Kern- und Makromolekulare Chemie der Universität Marburg [ARGE PhAM 2001a]

Proben-Nr.	Herkunft	Pu-238 (mBq/g TM)	Pu-239/240 (mBq/g TM)	Pu-241 (mBq/g TM)
1.30	zwischen GKSS und KKK	1,07	0,40	keine Angabe
1.10	GKSS, Elbufer	0,35	0,1	36
1.5	KKK, Elbufer	0,72	0,43	11,5
1.1	Tespe, Fährhaus	1,9	1,3	19,2

Der Fehler der einzelnen Messungen wird im Bericht [ARGE PhAM 2001a] pauschal mit 5 bis 10 % angegeben, nähere Angaben finden sich auch nicht in [ARGE PhAM 2001c] (siehe hierzu Kapitel A 3.1). Auffällig sind vor allem die im Vergleich mit allen anderen Analysen der übrigen Labors – einschließlich der an gleichem Probenmaterial erfolgten Nachuntersuchungen des Instituts für Transurane – sehr hohen Messwerte an Pu-238 sowie an Pu-241 (in Verhältnis zu Pu-239/240) in Probe 1.10.

Da zum genauen Vorgehen bei der Probenvorbereitung und Messung keine Angaben gemacht wurden, ist die Qualität der Messungen nicht beurteilbar. Mitarbeiter des Messlabors an der Universität Marburg wurden mehrfach zur Berichterstattung im SSK-Ausschuss „Strahlenschutz bei Anlagen“ eingeladen, um aufgrund der zur Beurteilung nicht ausreichenden Qualität des vorliegenden Berichts offene Fragen zu klären (vergleiche Kapitel A 1.2). Da diesen Einladungen nicht gefolgt wurde, können die in Tabelle 3.15 genannten Daten zur Bewertung der Frage eines ungewöhnlichen Eintrags von Plutonium in der Umgebung von KKK und GKSS nicht herangezogen werden.

A 3.4 Befunde zu Americium, Neptunium und Curium in Umweltproben

Im Bericht [ARGE PhAM 2001a] wird ausgeführt, dass das Vorhandensein von Transuranen künstlicher Herkunft über eine sogenannte Photodokumentation von radioaktiven Brennstoffkugelchen mit Plutonium, Americium, Curium, Thorium und Uran belegt sei. Darüber hinaus sollen Messdaten von vier Instituten seit spätestens 1991 das Vorhandensein von Transuranen nicht natürlichen Ursprungs in der Umgebung von KKK und GKSS belegen. Im folgenden Kapitel werden die Befunde zu Americium, Neptunium und Curium bewertet.

Bei der Bewertung von Am-241 in Bodenproben können Untersuchungsergebnisse aus [BfM 1998] herangezogen werden. Dort ergibt sich für fünf Probenahmeorte in Schleswig-Holstein eine Bandbreite von 0,05 bis 0,11 mBq/g TM an Am-241-Aktivität. Für den Mittelwert der Proben von 64 Orten in Deutschland wird eine Am-241-Aktivität von 0,09 mBq/g TM ermittelt, der Maximalwert beträgt 0,37 mBq/g TM.

A 3.4.1 Americium-241-Analysen der Landwirtschaftlichen Untersuchungs- und Forschungsanstalt Kiel

In Kapitel A 3.3.1 wurde die Probenahme von Hausstaub aus der Elbmarsch und in der Umgebung des Kernkraftwerks Krümmel sowie aus zwei Vergleichsgebieten und deren Anlass beschrieben. Dort wurden ebenfalls die Ergebnisse der Plutoniumanalysen, die am Institut für Kernchemie der Universität Mainz erfolgten, dargestellt. Die genommenen Hausstaubproben wurden zusätzlich durch die Landwirtschaftliche Untersuchungs- und Forschungsanstalt Kiel gamma-spektrometrisch untersucht.

Die Messungen erfolgten im Zeitraum November 1999 bis Januar 2000. Es wurden koaxiale Reinstgermanium-Detektoren verwendet. Die Messzeiten betrugen bis zu etwa sieben Tagen, um für Am-241 eine Nachweisgrenze von weniger als 1 mBq/g zu erreichen.

In Tabelle 3.16 sind die Ergebnisse der Americium-241-Analysen der LUFA an Hausstaubproben zusammengestellt.

Die Ergebnisse der Am-241-Analysen zeigen:

- Bei einer Probe aus dem Untersuchungsgebiet und bei zwei Proben aus Vergleichsgebiet 1 konnte Am-241 nachgewiesen werden.
- Ein Vergleich mit den Messwerten von Pu-241 (Tabelle 3.9), dessen Tochternuklid Am-241 ist, ergibt, dass zwei der drei Proben mit nachweisbarem Am-241 auch den höchsten gefundenen Pu-241-Gehalt aufweisen.
- Der höchste Messwert für Am-241 im Untersuchungsgebiet ist von einem Pu-239/240-Gehalt von 2,33 mBq/g begleitet (siehe Tabelle 3.9). Das Verhältnis von Am-241 zu Pu-239/240 beträgt in dieser Probe 0,69. Dies ist in guter Übereinstimmung mit dem in [BfM 1998] abgeleiteten Verhältnis dieser Isotope von 0,74, hervorgerufen durch die mittlere Deposition von Pu-239/240 und Am-241 aufgrund des Fallouts der oberirdischen Atomwaffenversuche.
- In Anbetracht der Bandbreite des Aktivitätsgehalts in den Hausstaubproben sowie des Verhältnisses von Messwerten und Nachweisgrenzen ergibt sich kein Hinweis auf einen Eintrag von Am-241 in Hausstaub des Untersuchungsgebiets, der nicht auf Atomwaffenfallout zurück geführt werden könnte.

Tab. 3.16: Am-241-Gehalte in Hausstaubproben gemäß den Messungen der Landwirtschaftlichen Untersuchungs- und Forschungsanstalt Kiel [MFE 2000]

Proben-Nr.	Herkunft	Am-241 (mBq/g TM)
Umgebung KKK/GKSS		
2	Rönne	<0,64
3	Obermarschacht	<0,64
4	Tespe	<0,71
7	Tespe	1,58±0,20
9	Grünhof	<0,73
10	Grünhof	<0,40
11	Tesperhude	<0,81
12	Avendorf	<0,49
14	Tesperhude	<0,69
20	Tespe	<0,58
Vergleichsgebiet 1 (Schleswig-Holstein)		
1	Bergenhusen	0,919±0,18
15	Kating	<0,71
16	Kating	<0,93
17	Bergenhusen	0,405±0,09
18	Steinberg	<0,48
19	Kating	<0,64
21	Kating	<0,88
22	Kropp	<0,48
23	Kropp	<0,74
24	Kropp	<0,69
Vergleichsgebiet 2 (Schleswig-Holstein)		
5	Grabensee	<1,2
6	Wittenberger P.	<0,67
8	Selent	<0,59
13	Selent	<0,55

A 3.4.2 Americium-241-Analysen des Instituts für Transurane

Das Landeskriminalamt des Landes Schleswig-Holstein ließ bei Herrn Gabriel beschlagnahmtes Probenmaterial aus der Umgebung von KKK und GKSS sowie eigene Proben der Staatsanwaltschaft Lübeck beim Institut für Transurane der Europäischen Kommission in

Karlsruhe untersuchen (siehe auch Kapitel A 3.3.2). Proben einer Masse zwischen 9 und 90 g wurden unter anderem gamma-spektrometrisch mit einem HPGe-Koaxial-Detektor untersucht [ITU 2002, Peerani 2002]. Die Messzeit betrug jeweils 80.000 s (22,2 h). Die Messergebnisse sind in Tabelle 3.17 aufgelistet.

Tab. 3.17: Am-241-Gehalte in Proben aus der Umgebung von GKSS/KKK gemäß den Messungen des Instituts für Transurane [ITU 2002]

Proben-Nr.	Herkunft	Am-241 (mBq/g TM)
Probenmaterial von Herrn Gabriel		
LKA 1.1	Tespe, Fährhaus	<3,63
LKA 1.5	KKK, Elbufer	<4,63
LKA 1.8	KKK, Elbufer	<7,03
LKA 1.10	GKSS, Elbufer	<6,88
LKA 1.11	GKSS, Elbufer	<18,42
LKA 1.27	Obermarschacht, Elbufer	<5,03
LKA 1.29	zwischen KKK und GKSS	<9,04
LKA 1.34	Tespe, Hafen	<6,76
Proben der Staatsanwaltschaft Lübeck		
Geest 1.10 A	GKSS, Elbufer	<2,35
Geest 1.10 B	GKSS, Elbufer	<5,73
Geest 1.30 A	zwischen KKK und GKSS	<2,03
Geest 1.30 B	zwischen KKK und GKSS	<1,86
Geest 1.30 C	zwischen KKK und GKSS	<8,40

Die Ergebnisse der Am-241-Analysen des Instituts für Transurane zeigen keine Werte oberhalb der Nachweisgrenze. Aufgrund der geringen Probenmassen ist die gewählte Analytik nicht in der Lage, Am-241 im in der Umwelt zu erwartenden Konzentrationsbereich nachzuweisen.

A 3.4.3 Americium-241-Analysen des Niedersächsischen Landesamts für Ökologie

In Kapitel A 3.3.3 werden Probennahmen und Plutoniumanalysen des NLÖ beschrieben. Im Rahmen dieses Sondermessprogramms wurden von Bodenproben aus einer Tiefe von 10 bis 20 cm auch mit einem Halbleiterdetektor Gammaskpektren bestimmt. In Tabelle 3.18 sind die Ergebnisse bezüglich Am-241 und Am-243 dargestellt [NLÖ 2001a, NLÖ 2001b, NLÖ 2001c]. Die gleichen Proben wurden auch alpha-spektrometrisch ausgewertet (siehe Kapitel A 3.3.3) und dabei Am-241, Am-243, Cm-242 und Cm-244 bestimmt. Die entsprechenden Ergebnisse sind ebenfalls in Tabelle 3.18 dargestellt.

Tab. 3.18: Gehalte an Am-241, Am-243, Cm-242 und Cm-244 in Bodenproben aus Tespe gemäß den Messungen des NLO [NLO 2001c]

Herkunft	Proben-Nr. bei ARGE PhAM	Am-241 (mBq/g TM)	Am-243 (mBq/g TM)	Am-241 (mBq/g TM)	Am-243 (mBq/g TM)	Cm-242 (mBq/g TM)	Cm-244 (mBq/g TM)
		Gamma-Spektrometrie		Alpha-Spektrometrie			
Tespe, Fährhaus	1.1	<0,43	<0,20	<0,08	<0,17	<0,09	<0,08
Tespe, Tennisplatz	1.22	<0,46	<0,21	<0,18	<0,28	<0,21	<0,18
Tespe, Kriegerdenkmal	1.2	<0,42	<0,19	<0,15	<0,46	<0,18	<0,15
Tespe, Hafen	1.34	<0,25	<0,15	<0,17	<0,32	<0,21	<0,17
Tespe, Kate	1.27	<0,33	<0,16	<0,22	<1,4	<0,27	<0,22

Die Messergebnisse in Tabelle 3.18 zeigen keine Überschreitung von Nachweisgrenzen. Es ergeben sich daher aus diesen Ergebnissen keine Hinweise auf ein erhöhtes Vorkommen an Am-241, Am-243, Cm-242 und Cm-244 in Bodenproben aus Tespe.

A 3.4.4 Americium-241-Analysen der Landwirtschaftlichen Untersuchungs- und Forschungsanstalt Kiel

Von der Landwirtschaftlichen Untersuchungs- und Forschungsanstalt Kiel wurden Am-241-Bestimmungen in Rückstellproben und Sonderproben von Boden aus der Umgebung von KKK und GKSS vorgenommen. Über die Ergebnisse wurde auf der 8. Sitzung des SSK-Ausschusses „Strahlenschutz bei Anlagen“ berichtet [LUFA 2001a].

In Rückstellproben aus dem Überwachungsprogramm des Kernkraftwerks Krümmel wurde nachträglich unter anderem Am-241 analysiert. Es handelte sich um Bodenproben aus dem Jahr 2000, die in 0 bis 10 cm Tiefe entnommen waren. Die entsprechenden Proben aus dem Programm für das Jahr 2001 wurden ebenfalls auf Am-241 hin untersucht. Weitere Bodenproben wurden im Februar 2001 als Sonderproben an Probenahmeorten der ARGE PhAM in 10 bis 20 cm Bodentiefe entnommen. Die Bodenproben wurden gamma-spektrometrisch ausgewertet. Die Messergebnisse sind in Tabelle 3.19 zusammengestellt.

Die Messergebnisse der LUFA Kiel zeigen keine Auffälligkeit.

Tab. 3.19: Am-241-Gehalte in Proben aus der Umgebung von GKSS/KKK und von Referenzorten gemäß den Messungen der LUFA Kiel [LUFA 2001a]

Programm	Herkunft	Bodentiefe (cm)	Am-241 (mBq/g TM)
Umgebung von KKK/GKSS			
REI KKK 2000 (Rückstellproben)	Elbufer Tespe	0 – 10	<0,23
	KKK-Gelände		<0,30
	Elbufer Tesperhude		<0,23
REI KKK 2001	Elbufer Tespe	0 – 10	<0,33
	KKK-Gelände		<0,28
	Elbufer Tesperhude		<0,20
Sonderproben	Krümmel	10 – 20	<0,24
	Tesperhude		<0,26
	zwischen KKK und GKSS		<0,26
Referenzorte			
Sonderproben	Stocksee	10 – 20	<0,26
	Ahrensbek		<0,28
	Wittbek (östl. Husum)		<0,22
	Uphusum (nördl. Niebüll)		<0,23

A 3.4.5 Analysen von Np-237, Am-243 und Cm-244 im Auftrag der ARGE PhAM

In [ARGE PhAM 2001a] werden von der ARGE PhAM gamma-spektrometrische Untersuchungen am Strahlencentrum der Universität Gießen sowie alpha-spektrometrische Untersuchungen des Instituts für Physikalische, Kern- und Makromolekulare Chemie der Universität Marburg von Bodenproben aus der Umgebung von KKK und GKSS angeführt, bei denen Np-237 (dieses nur gamma-spektrometrisch) und Am-243 bestimmt wurde. Die Messergebnisse sind in Tabelle 3.20 zusammengestellt.

Für die gamma-spektrometrischen Untersuchungen sind in [ARGE PhAM 2001a] Messunsicherheiten von 10 bis 24 % (Np-237) und 3 bis 7 % (Am-243) angegeben, zu deren Ableitung aber keine Angaben gemacht werden, auch nicht in [ARGE PhAM 2001c].

Die im Bericht [ARGE PhAM 2001a] aus den Gammaspektren gezogenen Schlussfolgerungen können nicht nachvollzogen werden. Np-237 weist eine Gammalinie bei 86 keV auf (mit ca. 13 % relativer Häufigkeit die häufigste Gammalinie), Am-243 besitzt eine 75 keV-Gammalinie (relative Häufigkeit 66 %). In Gammaspektren ergeben sich aber Peaks gerade bei 86 und 75 keV auch durch K_{α} - und K_{β} -Strahlung in einer Bleiabschirmung. Die vorliegende Datenlage lässt daher ohne weitere Erklärungen durch die Experimentatoren keinen Schluss auf ein tatsächliches Vorkommen von Np-237 und Am-243 in den Bodenproben zu.

Tab. 3.20: Gehalte an Np-237 und Am-243 in Bodenproben aus der Umgebung von KKK und GKSS gemäß alpha-spektrometrischen Untersuchungen des Instituts für Physikalische, Kern- und Makromolekulare Chemie der Universität Marburg sowie gamma-spektrometrischen Untersuchungen am Strahlencentrum der Universität Gießen [ARGE PhAM 2001a]

Proben-Nr.	Herkunft	Np-237 (mBq/g FM)	Am-243 (mBq/g FM)	Am-243 (mBq/g TM)
		Gamma-Spektrometrie		Alpha-Spektrometrie
2.36	zwischen GKSS und KKK	30	6	n.b.
1.30	zwischen GKSS und KKK	7,4	1,2	2 bis 35*
1.19	KKK, Umspannwerk	5,4	0,8	n.b.
1.12	Tesperhude, Waldschule	5,5	0,9	n.b.
1.10	GKSS, Elbufer	14,5	3,2	n.b.
1.5	KKK, Elbufer	8	0,8	n.b.
1.34	Tespe, Hafen	22	6,6	n.b.
1.33	Tespe, Elbdeich	16,9	2,1	n.b.
1.2	Tespe, Kriegerdenkmal	14,4	2,2	n.b.
1.1	Tespe, Fährhaus	8,6	1,8	n.b.
4.2	Tespe, Kindergarten	6,5	1,1	n.b.
1.22	Tespe, Tennisplatz	4,5	2	n.b.
4.1	Obermarschacht, Elbufer	7	2,1	n.b.
4.3	Rönne	7,2	1,3	n.b.
2.40	östlich Drage	15,7	3	n.b.
Lü 3.3	bei Lüneburg	6	<0,5	n.b.

n.b.: nicht bestimmt

* Bandbreite aus vier Messungen

Im Bericht [ARGE PhAM 2001a] wird auch das Vorhandensein von Cm-243, Cm-244 und Cf-249 in isolierten Kügelchen behauptet. Der Bericht enthält keine quantitativen Angaben, sondern es sind lediglich Alphaspektren wiedergegeben, bei denen Peaks wie folgt interpretiert werden:

- Peak bei 5,7987 MeV als Cm-244 (Alphaenergie 5,805 MeV), eventuell mit Anteilen an Cm-243 (Alphaenergie 5,785 MeV) und Cf-249 (Alphaenergie 5,812/5,758 MeV). Ansonsten enthält das Spektrum im Energiebereich von 2,5 bis 9 MeV noch einen Peak bei 5,7568 MeV.
- Peak bei 5,2774 MeV als Am-243 (Alphaenergie 5,275 MeV). Ansonsten enthält das Spektrum im Energiebereich von 4 bis 8 MeV keinen weiteren Peak.

Die Energiekalibrierung der Spektren ist nicht sehr genau. Die Energien im Spektrum stimmen nicht exakt mit Literaturwerten überein.

Die Messungen wurden ohne Zusatz von Ausbeute-Tracern durchgeführt. Tracer-Zusätze ermöglichen grundsätzlich eine verbesserte Genauigkeit bei der Bestimmung von Isotopenverhältnissen und eine empfindlichere qualitative Erkennung von Nuklidspuren. Quantitative Aussagen sind dagegen nur als Abschätzung möglich, sofern Erfahrungswerte für die chemische Ausbeute des Aufschlusses und der Trennung, die Qualität der Präparation sowie die Detektor-Efficiency vorliegen.

Ohne Tracer gibt es in den Spektren auch keinen zuverlässigen Referenzpeak, der eventuelle Irrtümer bei der chemischen Probenaufbereitung (z. B. Verwendung von falschen Fraktionen) aufdecken könnte. Ohne diesen Referenzpeak fehlt auch ein Indikator für die Qualität der Energiekalibrierung. Als Ersatz wäre zumindest der Einsatz eines Pulsers wünschenswert gewesen.

Alphaspektrum der Probe vom Probenahmeort 1.5 (KKK, Elbufer)

Das Alphaspektrum der Probe vom Probenahmeort 1.5 (KKK, Elbufer), in [ARGE PhAM 2001a] dargestellt auf Seite 21, zeigt das Alphaspektrum einer Thorium-Fraktion. Die chemische Abtrennung einer solchen Fraktion erfolgt typischerweise mit einem Anionenaustauscher, z. B. TEVA-Resin von Eichrom. Aufgrund der chemischen Eigenschaften wäre eine Verunreinigung dieser Fraktion mit Neptunium vorstellbar, was hier jedoch nicht der Fall zu sein scheint.

Die drei größten Peaks stammen von den natürlichen Thoriumnukliden Th-232, Th-230 und Th-228. Außer der Hauptlinie ist bei ihnen auch die zweitintensivste Linie als linke Schulter an den Peaks erkennbar (vergleiche Tabelle 3.21).

Tab. 3.21: Beschriftung und Interpretation von Alphaenergien im Spektrum der Probe 1.5 [ARGE PhAM 2001a], ergänzt um Umwandlungsdaten

Beschriftung in [ARGE PhAM 2001a] (Energie in keV)	mögliches Nuklid	Alphaenergie in keV	relative Häufigkeit der Alphaenergie
3981,9144	Th-232	4013 3954	77% 23%
4650,98448	Th-230	4687,7 4621,2	76,3% 23,4%
5388,75372	Th-228	5423,3 5340,4	71,7% 27,6%
5639	Ra-224	5685,53 5448,84	94,92% 5,06%
6245,99976	Rn-220	6288,27 5748,53	99,874% 0,126%
6016	Bi-212	6051,13 6090,24	25,2% 9,67%

Das in geringen Mengen zu erwartende Th-227 ist im Spektrum in [ARGE PhAM 2001a] praktisch nicht zu erkennen, da seine Linien teilweise von den mit „5639“ und „6016“ beschrifteten Peaks überdeckt werden. Der zwischen diesen beiden Peaks geringfügig erhöhte Untergrund ist vermutlich auf Th-227 zurückzuführen. Wenn Th-227 im Präparat vorliegt, wird dies zu einer Erhöhung der Zählrate im Bereich von 5650 bis 6050 keV geführt haben.

Die erkennbare leichte Störung des Th-232/Th-228-Gleichgewichtes ist bei Realproben nicht ungewöhnlich. Sie wird häufig durch chemische An- bzw. Abreicherung von Radium verursacht. Th-232 und Th-230 stammen dagegen aus verschiedenen Zerfallsreihen und können daher theoretisch in jedem Verhältnis vorkommen.

Neben den genannten drei großen Peaks sind im Spektrum noch drei weitere erkennbar. Sie stammen von Tochternukliden des Th-228 (siehe Tabelle 3.21).

Diese Tochternuklide wurden zwar bei der chemischen Abtrennung des Thoriums weitgehend entfernt, wachsen jedoch danach relativ schnell wieder bis zum Gleichgewicht an. Geschwindigkeitsbestimmend ist hierbei die Halbwertszeit von Ra-224 mit 3,62 Tagen. Typischerweise vergehen nach der chemischen Trennung noch einige Stunden bis Tage bis zum Beginn der Messung. Die Messung selbst dauert ebenfalls einige Stunden bis Tage, wodurch insgesamt ein erheblicher Beitrag der Tochternuklide verursacht wird.

Als weitere Tochternuklide sind Po-216 und Po-212 zu erwarten. Sie sind im Spektrum nicht erkennbar, da ihre Linien außerhalb des betrachteten Energiebereiches liegen. Der leicht erhöhte Untergrund am rechten Rand des Spektrums in [ARGE PhAM 2001a] ist vermutlich auf den low-energy-tail des Po-216-Peaks zurückzuführen.

Zusammenfassend lässt sich sagen, dass das Alphaspektrum der Probe vom Probenahmeort 1.5 typisch für eine Umweltprobe mit natürlicher Zusammensetzung ist. Hinweise auf anthropogene oder ungewöhnliche natürliche Einflüsse liegen nicht vor.

Alphaspektrum der Probe vom Probenahmeort 1.10 (GKSS, Elbufer)

Das Alphaspektrum der Probe vom Probenahmeort 1.10 (GKSS, Elbufer), in [ARGE PhAM 2001a] dargestellt auf den Seiten 22 und 23, zeigt das Alphaspektrum einer Americium-Fraktion. Wegen den unter den üblichen Bedingungen ähnlichen chemischen Eigenschaften ist in dieser Fraktion außerdem Curium mit praktisch gleichen Ausbeuten wie Americium zu erwarten.

Das Spektrum weist nur einen, nicht sehr intensiven ($< 10^{-3} \text{ s}^{-1}$) Peak auf. Dieser Peak stammt höchstwahrscheinlich von Cm-244. Außer der Hauptlinie ist auch die zweitintensivste Linie erkennbar (vergleiche Tabelle 3.22).

Tab. 3.22: Beschriftung und Interpretation von Alphaenergien im Spektrum der Probe 1.5 [ARGE PhAM 2001a], ergänzt um Umwandlungsdaten

Beschriftung in [ARGE PhAM 2001a] (Energie in keV)	mögliches Nuklid	Alphaenergie in keV	relative Häufigkeit der Alphaenergie
5798,7 5756,8	Cm-244	5804,96 5762,84	76,98% 23%

Da weitere charakteristische Signalmuster im Spektrum fehlen, hängt die Zuverlässigkeit der Zuordnung des gefunden Peaks von der Zuverlässigkeit der Energiekalibrierung ab.

Eine Erhöhung der Zählrate in dem betroffenen Energiebereich könnte theoretisch durch eine Verunreinigung des Präparates mit Th-227 verursacht werden. Dies kann jedoch ausgeschlossen werden, da kein Th-230 erkennbar ist.

Für eine Realprobe ist höchst ungewöhnlich, dass neben Cm-244 kein Am-241, Am-243 oder Cm-242 nachweisbar ist.

Alphaspektrum der Probe vom Probenahmeort 1.30 (zwischen KKK und GKSS)

Das Alphaspektrum der Probe vom Probenahmeort 1.30 (zwischen KKK und GKSS), in [ARGE PhAM 2001a] dargestellt auf Seite 24, zeigt das Alphaspektrum einer Americium-Fraktion. Wegen den unter den üblichen Bedingungen ähnlichen chemischen Eigenschaften ist in dieser Fraktion außerdem Curium mit praktisch gleichen Ausbeuten wie Americium zu erwarten.

Das Spektrum weist nur einen, relativ intensiven (Zählrate $0,035 \text{ s}^{-1}$) Peak auf. Dieser Peak stammt wahrscheinlich von Am-243. Neben der Hauptlinie ist undeutlich die zweitintensivste Linie erkennbar (vergleiche Tabelle 3.23).

Tab. 3.23: Beschriftung und Interpretation von Alphaenergien im Spektrum der Probe 1.5 [ARGE PhAM 2001a], ergänzt um Umwandlungsdaten

Beschriftung in [ARGE PhAM 2001a] (Energie in keV)	mögliches Nuklid	Alphaenergie in keV	relative Häufigkeit der Alphaenergie
5277,37151	Am-243	5275,7 5233,4	88% 10,6%

Typisch u. a. für Am-243 ist auch das leichte Abflachen des Peaks zu hohen Energien hin, was durch höherenergetische Linien und Koinzidenz mit Konversionselektronen verursacht wird. Im Spektrum könnte diese Peakform jedoch auch durch eine Überlagerung mit dem Peak einer Verunreinigung vorgetäuscht werden.

Eine Erhöhung der Zählrate in dem betroffenen Energiebereich kann durch eine Verunreinigung des Präparates mit Po-210 (Alphaenergie = 5304,33 keV) verursacht werden.

Für eine Realprobe ist sehr ungewöhnlich, dass neben Am-243 kein Am-241 nachweisbar ist. Cm-242 und Cm-244 sind ebenfalls nicht erkennbar.

Eine großflächige Kontamination mit Am-243 in einer Größenordnung wie in dieser Probe hätte sich bereits bei der Gamma-Spektroskopie durch das auffällige Gamma-Spektrum des Tochternuklids Np-239 zeigen müssen.

Zusammenfassende Bewertung

Die in [ARGE PhAM 2001a] angeführten Ergebnisse der alpha-spektrometrischen Untersuchungen bedürfen weiterer Überprüfung auf der Grundlage von Informationen durch die Ex-

perimentatoren, bevor aus ihnen auf das Vorliegen von Am-243 und Cm-244 in Umweltproben geschlossen werden könnte:

- Die im Bericht [ARGE PhAM 2001a] dargestellten Spektren wurden mit ungespiktem Probenmaterial erzeugt, das heißt ohne Zugabe eines Tracers. Die genaue Zuordnung der Energiefenster ist daher nicht zu beurteilen.
- Da die Isotope Am-243 und Cm-244 als Tracer geeignet sind und bei anderen Analysen laut Bericht [ARGE PhAM 2001a] auch Tracer eingesetzt wurden, ist eine Kontamination der Messeinrichtung mit Am-243 und Cm-244 möglich. Mit einer Blindmessung könnte entschieden werden, ob tatsächlich eine Kontamination vorliegt oder nicht. Aber auch hierzu stehen keine Informationen zur Verfügung.

Die offenen Fragen konnten aufgrund fehlender Erläuterungen durch die Experimentatoren der ARGE PhAM nicht geklärt werden.

Neben den Defiziten der Untersuchungen im Auftrag der ARGE PhAM bzw. bei deren Darstellung in den Berichten der ARGE PhAM ist das tatsächliche Vorliegen von Np-237, Am-243 und Cm-244 in den Proben auch aus folgenden Gründen als nicht plausibel zu beurteilen:

- Die Messergebnisse wurden bislang von keinem anderen Labor bestätigt (siehe insbesondere Tabelle 3.18), obwohl sie nach den Angaben der ARGE PhAM großflächig vorliegen und deutlich erhöhte Kontaminationen vorhanden sein sollen.
- Es ist kein Ereignisablauf bekannt, aufgrund dessen ausschließlich Am-243 und Np-237 großflächig als Umweltkontamination vorliegen könnte. Die gamma-spektrometrischen Untersuchungen zeigen eine geringe Schwankungsbreite der Ergebnisse über mehr als 10 km.
- Es ergibt sich kein plausibles Gesamtbild, da in den Proben neben Am-243 und Cm-244 trotz sehr langer Messzeit keine weiteren Radionuklide identifiziert werden konnten, obwohl dies physikalisch zu erwarten wäre.

Die Untersuchungen im Auftrag der ARGE PhAM im Hinblick auf das Vorliegen von Np-237, Am-243 und Cm-244 können daher nicht als Hinweis auf eine ungewöhnliche Umweltkontamination bewertet werden.

A 3.5 Befunde zu radioaktiven Spalt- und Aktivierungsprodukten sowie Tritium in Umweltproben

A 3.5.1 Befunde zu den Spalt- und Aktivierungsprodukten Cs-134, Cs-137 und Co-60 in Bodenproben

Messergebnisse von Cs-137 und Co-60 aus den Berichten der ARGE PhAM

Der Bericht [ARGE PhAM 2001b] enthält in Tabelle 6 Messwerte für Cs-137 in Bodenproben zwischen 8,2 und 13 mBq/g; es fehlt die Angabe, ob es sich hierbei um Frisch- oder Trockenmasse handelt. Der Bericht [ARGE PhAM 2001a] enthält in den Tabellen 4 und 5 Messwerte für Cs-137 und Co-60 in Bodenproben. Für insgesamt 16 Proben liegen die Messwerte für Cs-137 zwischen 1,5 und 130 mBq/g FM. Für Co-60 wird in [ARGE PhAM 2001a] nur ein Messwert mit 0,8 mBq/g FM für eine Bodenprobe aus der Umgebung von Lüneburg genannt. Der Höchstwert von 130 mBq/g FM Cs-137 stammt vom Probenahmeort 2.36 (zwi-

schen KKK und GKSS), der zweithöchste Messwert von 45,3 mBq/kg FM Cs-137 stammt von einem weiter entfernten Probenahmeort in Obermarschacht.

Die absoluten Messwerte sind in der Regel unauffällig und in dieser Region für die Hintergrundbelastung durch den Atomwaffenfallout und den Eintrag durch den Unfall in Tschernobyl typisch. Es ist allerdings nicht auszuschließen, dass insbesondere der höchste gemessene Cs-137-Wert von 130 mBq/g FM durch genehmigte Ableitungen der nuklearen Anlagen mit verursacht sein könnte. Die Schwankungen der in der Umwelt nachweisbaren Kontamination mit Cs-137 durch Atomwaffenfallout und den Unfall in Tschernobyl sind aber so groß, dass der Messwert von 130 mBq/kg FM auch alleine aus diesen Quellen stammen kann. Bei dem Co-60-Wert handelt es sich um einen Einzelwert in großer Entfernung von KKK und GKSS ohne Angabe der Nachweisgrenze. Dieser Einzelwert kann daher nicht als Hinweis auf eine großflächige unfallbedingte Kontamination angesehen werden.

Messungen von Cs-134, Cs-137 und Co-60 des Niedersächsischen Landesamts für Ökologie

Die Messungen des NLÖ sind im Bericht vom 13.02.2001 [NLÖ 2001a] in den Tabellen 6.1, 6.2 und 6.5 dokumentiert. Die Maximalwerte für die spezifische Aktivität in zwölf Bodenproben in Tespe betragen <0,58 mBq/g für Co-60, <0,74 mBq/g für Cs-134 und 22 mBq/g für Cs-137.

Die absoluten Messwerte sind, soweit Nachweisgrenzen überschritten wurden, unauffällig und in dieser Region für die Hintergrundbelastung durch den Atomwaffenfallout und den Eintrag durch den Unfall in Tschernobyl typisch.

Messungen von Cs-137 und Co-60 des Instituts für Transurane

Die Ergebnisse der Messungen des ITU sind im Bericht [ITU 2002] in den Tabellen des Annex I dokumentiert. Die Maximalwerte für die spezifische Aktivität in 18 Bodenproben lagen bei 24 mBq/g TM für Cs-137. In einer Probe vom Probenahmeort LKA 3.2, in der Nähe des Elbufers bei KKK, wurden 2,4 mBq/g TM für Co-60 nachgewiesen. In allen anderen Proben lag Co-60 unterhalb der Nachweisgrenzen, die von 0,3 mBq/g TM bis 2,3 mBq/g TM angegeben wurden.

Die absoluten Messwerte von Cs-137 sind unauffällig und in dieser Region für die Hintergrundbelastung durch den Atomwaffenfallout und den Eintrag durch den Unfall in Tschernobyl typisch. Der Messwert von Co-60 kann auf genehmigte Ableitungen der nuklearen Anlagen zurück zu führen sein.

A 3.5.2 Befunde zu Tritium in Bodenproben

Messungen von Tritium der ARGE PhAM

Die Berichte der ARGE PhAM enthalten nur qualitative Angaben zum Vorkommen von Tritium. Der Bericht [ARGE PhAM 2001b] enthält in Tabelle 8 einen qualitativen Tritium-Hinweis. Nicht näher definierte Bodenproben wurden eine Woche gewässert und gerührt. Das Wasser wurde gefiltert auf vier Löschblätter gegossen. Die Beta-Aktivität auf dem unteren Löschblatt reduzierte sich mit Trocknung auf „Null“, ein radiochemischer Tritiumnachweis „sei veranlasst“.

Der Bericht [ARGE PhAM 2001a] erhält in Tabelle 9 (Abschätzung der relativen Zusammensetzung der Quelle der Radioaktivität im Jahre 1986) den Hinweis, aus den Anlagen GKSS und KKW Krümmel wäre Tritium emittiert worden.

Es fehlen in den Berichten der ARGE PhAM insgesamt quantitative und belastbare Daten zur Aktivität von Tritium in den gezogenen Proben. Über den im Bericht [ARGE PhAM 2001b] angekündigten radiochemischen Tritiumnachweis wurden keine weiteren Informationen vorgelegt.

Das Vorwort der IPPNW zum Bericht ELB 3 [ARGE PhAM 2001a] fasst auf S. A1 den Bericht ELB 2 [ARGE PhAM 2001b] hinsichtlich des Tritiums wie folgt zusammen: „Demnach fanden sich als dominierende Aktivitätsträger Tritium, Americium, Plutonium, Uran und Thorium“. Diese Schlussfolgerung der IPPNW zum Vorkommen von Tritium ist nicht nachvollziehbar, da sie nicht auf quantitativen und belastbaren Daten beruht.

Messungen von Tritium des Niedersächsischen Landesamts für Ökologie

Die Messungen des NLÖ sind im Bericht [NLÖ 2001a] in Tabelle 9 dokumentiert. Die spezifische Tritiumaktivität in fünf Bodenproben aus dem Ort Tespe lag unterhalb der Nachweisgrenze von 3 mBq/g. Der Feuchtegehalt wird mit 4,4 % bis 12,2 % angegeben.

Die Tritiumkonzentration im Boden ist durch HTO bestimmt; aus dem Feuchtegehalt lässt sich eine maximale Nachweisgrenze von 68 Bq/l ableiten. Diese Nachweisgrenze liegt allerdings um etwa eine Größenordnung über der erwarteten Hintergrundbelastung, die zwischen 1 und 10 Bq/l HTO im Regenwasser beträgt.

A 3.5.3 Zusammenfassende Bewertung der Befunde zu radioaktiven Spalt- und Aktivierungsprodukten sowie Tritium

Insgesamt ergibt sich aus den Messergebnissen von Spalt- und Aktivierungsprodukten sowie Tritium in Bodenproben aus der Umgebung von KKK und GKSS kein Hinweis auf großflächige Aktivitätseinträge bislang nicht bekannter Ursache. Dies ist auch in Übereinstimmung mit den Befunden der Emissions- und Immissionsüberwachung der kerntechnischen Anlagen und der IMIS-Messungen in Norddeutschland.

A 3.6 Befunde zu Kügelchen

In diesem Kapitel wird die von der ARGE PhAM aufgestellte Kügelchen-These diskutiert. Dabei wird allgemein auch auf Messungen eingegangen, die direkt an Kügelchen oder Fragmenten von Kügelchen durchgeführt wurden. Bewertungen der quantitativen Ergebnisse auch dieser Messungen erfolgten bereits in anderen Kapiteln dieser Stellungnahme. Nicht eingegangen wird auf Spekulationen über ihren Ursprung und die Ursache der Verteilung der Kügelchen.

Nach der These handelt es sich um kernbrennstoffhaltige Kügelchen (PAC-Kügelchen). PAC ist dabei die Abkürzung für sphere-pac (Kugelpackung). Dies ist die Bezeichnung des sogenannten Sol-Gel-Verfahrens zur Herstellung von Kernbrennstoffgrundmaterial in Form von Kügelchen [GRS 2001]. Gemäß dem Bericht [GRS 2001] wurde PAC-Brennstoff aus Uran, Plutonium und Thorium hergestellt, wobei nicht immer mehr als eines der genannten Elemente im Brennstoff enthalten sein muss.

In Vorwort der IPPNW des Berichts [ARGE PhAM 2001a] wird auf Seite A3 dagegen eine andere Definition des PAC-Brennstoffs verwendet: „Diese sogenannten PAC-Brennstoffkugeln bestehen unter anderem aus Plutonium (P), Americium (A) und Curium (C), zugesetzt zu Thorium und Uran.“ Diese Definition geht bei PAC-Brennstoff von besonderen spaltbaren Materialien aus, während in [GRS 2001] nur von einem speziellen Herstellungsverfahren die Rede ist.

A 3.6.1 Aussagen zu Kugeln in den Berichten der ARGE PhAM

Von der ARGE PhAM wurden auf Grund von ihr festgestellter Aktivitätsinhomogenitäten bei großräumig genommenen Bodenproben mikroskopische Untersuchungen an Proben aus der Umgebung von GKSS und KKK durchgeführt. Dabei seien milchige Kristalle und schwarze kugelförmige Partikel zu erkennen gewesen [ARGE PhAM 2001b]. Proben mit vergleichbaren Partikeln wurden an einer größeren Zahl von Fundorten identifiziert [ARGE PhAM 2001a, Dokumentation 2]. Es werden fünf verschiedene Arten von Partikeln nach Konsistenz und Aussehen unterschieden. Die Kugelngrößen werden mit 10 µm bis 2 mm angegeben. Die Berichte [ARGE PhAM 2001a und ARGE PhAM 2001b] enthalten Mikroskopaufnahmen von Teilchen. Auf den Bildern sind Kugeln und größere und kleinere Körper verschiedener Geometrie, z.T. mit Einschlüssen, zu erkennen.

An den Kugeln bzw. Bruchstücken von Kugeln wurden Aktivitätsmessungen sowie Messungen zur Nuklididentifizierung an den Universitäten Marburg und Gießen durchgeführt. Bei einigen Arten dieser Partikel wurde Radioaktivität festgestellt.

Von der ARGE PhAM wurde eine Aktivitätsmessung mit einem Flächenkontaminationsmonitor durchgeführt. Bezogen auf die Gesamtmasse von 19 unzerstörten und einem zerdrückten Teilchen wurde eine „Oberflächenaktivität“ (α/β) von 30 Bq/mg abgeleitet [ARGE PhAM 2001b]. Nachvollziehbare Angaben zu den Messbedingungen und zu dem Verfahren, wie mit einem Oberflächenkontaminationsmonitor massenbezogene Aktivitäten bestimmt wurden, sind keinem der vorliegenden Berichte zu entnehmen.

In der Zusammenfassung des Berichts [ARGE PhAM 2001b] wird ohne quantitativen Nachweis festgestellt, dass die bestimmende Komponente der in den Proben gefundenen Radioaktivität „mit dem Auftreten von Partikeln und deren Bruchstücken verbunden“ ist. Weiter heißt es: „Dominierende Aktivitätsträger sind dabei Tritium, Americium, Plutonium, Uran und Thorium.“

Die bei gamma-spektrometrischen Messungen an Bodenproben aus der Umgebung von GKSS und KKK der Universität Gießen gefundenen Aktivitäten an Np-237 und Am-243 [ARGE PhAM 2001a, Tab. 4 und 5] wurden mit dem Auftreten von Brennstoffkugeln in Zusammenhang gebracht. Die Arbeitsgruppe der Universität Gießen (Prof. Scharmann/Dr. Schalch) hat die Aussagen und Schlussfolgerungen zum Vorhandensein kernbrennstoffhaltiger Kugeln und den Bezug zu PAC-Kernbrennstoff durch Unterschrift der ARGE PhAM-Berichte [ARGE PhAM 2001a, ARGE PhAM 2001b, ARGE PhAM 2002] mitgetragen.

Alpha-spektrometrische Messungen wurden an der Universität Marburg durchgeführt. Dabei wurden in allen fünf ausgemessenen Bodenproben Uranisotope und in vier der Bodenproben Plutoniumisotope festgestellt. In der Probe 1.30 wurden bei vier Messungen Aktivitäten von Am-243 zwischen 2 bis 35 mBq/g ermittelt (vergleiche Tabelle 3.20 in Kapitel A 3.4.5). Das Spektrum für die höchste Aktivitätskonzentration ist ebenfalls dokumentiert (Messzeit ca. 8,5

Stunden, 43 counts im Maximum) [ARGE PhAM 2001a]. In Probe 1.5 wurden 48 mBq/g Th-230 sowie Th-228 und Th-232 festgestellt [ARGE PhAM 2001a] (vergleiche auch Kapitel A 3.4.5).

Aus der Bodenprobe 1.10 wurden vier Kügelchen separiert. Die Alpha-Spektrometrie an den Kügelchen – davon waren zwei zerdrückt – ergab laut [ARGE PhAM 2001a, S. 7 und Dokumentation 1] Aktivitäten im Energiebereich von Cm-244/Cm-243/Cf-249. Die dokumentierten Spektren zu dieser Probe (Messzeit 100 Stunden) zeigen ausgeprägte Peaks im betreffenden Bereich zwischen 5,70 und 5,82 MeV mit einem Maximum von 20 counts im Maximum [ARGE PhAM 2001a] (vergleiche auch Kapitel A 3.4.5).

Prof. Ensinger hat darüber hinaus den Nachweis von Americium in den ARGE PhAM-Proben in zwei anderen Quellen bestätigt:

„Die Elektronenmikroskopie ergab das Vorhandensein sphärischer und offenbar künstlicher Partikel, wobei eines der Partikel ... das Nuklid Americium-243 als Einzelnuklid in großer Menge enthielt.“ [Ensinger 2001a]

„Diese Partikel (von denen wir welche untersucht haben und Americium nachweisen konnten) stammen nicht aus einem Reaktor oder aus Tschernobyl-Fallout.“ [Ensinger 2001b]

In massenspektrometrischen Untersuchungen (Universität Gießen) wurden folgende Elemente des Füll- und Hüllmaterials identifiziert: Li, Be, B, C, Al, Si, Ti, Fe, Ga, Nb, Ba, Ta, Tl, Th, U, Transurane. Aus den Untersuchungen wurde geschlossen, dass die Zusammensetzung von Kugelschale und Füllmaterial unterschiedlich sei [ARGE PhAM 2002]. Der von ARGE PhAM nur in Auszügen zur Verfügung gestellten Unterlage ist allerdings nicht zu entnehmen, ob diese Ergebnisse an Proben der ARGE PhAM erzielt worden sind.

Aus den mikroskopischen Analysen sowie den Aktivitätsmessungen und den massenspektrometrischen Messergebnissen wurde mittels Vergleich mit Literaturdaten geschlossen, dass es sich um Kügelchen handle, die aus der Herstellung von sogenanntem PAC-Kernbrennstoff bekannt seien [ARGE PhAM 2001a, ARGE PhAM 2001b, ARGE PhAM 2002]. Dies wurde auf der 9. Sitzung des Ausschusses „Strahlenschutz bei Anlagen“ der SSK vor allem anhand von Mikroskopaufnahmen von Kügelchen dargestellt [ARGE PhAM 2001c]. Dabei wurde darauf hingewiesen, dass für die Radioaktivitätsbewertung die Kügelchen und deren Bruchstücke isoliert betrachtet werden müssen. Grund hierfür sei, dass die vermuteten Alpha-Strahlung abgebenden Radionuklide innerhalb der Kügelchen konzentriert seien.

Die Identität der gefundenen Kügelchen als PAC-Brennstoff wird von ARGE PhAM aus dem Vergleich von visuellen Analyseergebnissen mit Literaturangaben abgeleitet [ARGE PhAM 2001a, Dokumentation 2]. Dieser Vergleich wird in den vorliegenden ARGE PhAM-Unterlagen jedoch nicht geführt, sondern lediglich das Ergebnis mit Verweis auf die Literatur angegeben. Gestützt werden soll die These in den ARGE PhAM-Berichten ELB 2 und ELB 3 mit der Identifizierung von Th-230, Am-243 und Cm-244 durch alpha-spektrometrische Messungen an der Universität Marburg und von Np-237 und Am-243 durch gamma-spektrometrische Messungen an der Universität Gießen sowie durch die in ELB 4 genannten Ergebnisse von massenspektrometrischen Untersuchungen an der Universität Gießen.

Die Interpretationen der gamma- und alpha-spektrometrischen Messergebnisse durch die ARGE PhAM wurden in Kapitel A 3.3.7 und A 3.4.5 geprüft und, da diese Ergebnisse auch anders interpretierbar sind, als nicht bewiesen angesehen. Zur Massenspektrometrie liegen außer der Nennung der identifizierten Elemente keine weiteren verwertbaren Informationen vor.

Es bleibt festzuhalten, dass die Zusammensetzung für einen gezielt hergestellten Brennstoff nicht typisch ist. Die vorliegenden Daten zeigen, dass es sich aufgrund der Zusammensetzung nicht um gezielt hergestellte Kernbrennstoffpartikel handelt. Wenn es sich um Brennstoffkügelchen handeln würde, wären die als Brennstoff genutzten Elemente nicht nur in geringen Spuren vorhanden, und das Vorhandensein anderer Elemente wäre zu vermeiden gewesen.

A 3.6.2 Messungen und Aussagen von Prof. Ensinger (Universität Marburg) zu Kügelchen

Unabhängig von den im Auftrag der ARGE PhAM durchgeführten Messungen an Proben hat die Gruppe Ensinger auch eigene Proben in Tespe, Tesperhude und auf dem Geestplateau genommen [Ensinger 2001b]. Die Proben wurden unterhalb der Humusschicht aus der Sandschicht bis in eine Tiefe von 20 cm gezogen. Ausgewertet wurden insgesamt drei Proben von den beiden letztgenannten Standorten. Es wurde aus ihnen eine Vielzahl verschiedener Partikel, davon nach Aussagen von Prof. Ensinger viele nicht natürlichen Ursprungs, isoliert. Messungen ergaben für einen Teil der Proben Aktivitäten von Uran und Thorium. Die Partikel wurden „schließlich mit hoher Wahrscheinlichkeit als Komponenten von Flugasche“, in der natürliche Radionuklide wie Uran und Thorium in erhöhten Konzentrationen vorkommen können, identifiziert. Hinzugefügt wurde, dass „an den 2 Probenahmeorten in Tesperhude keine Partikel mit großen Mengen von Alpha-Strahlern“ gefunden wurden.

Dagegen wird in [ARGE PhAM 2001a, S. 7] darauf hingewiesen, dass Prof. Ensinger eine eigene Probe in der Geest genommen hat, aus der Kügelchen separiert wurden, die Uran, Thorium und Am-241 enthalten sollen. Dies sei einer „Bewertungsliste“ vom 15.05.01 zu entnehmen [ARGE PhAM 2001a].

Der dargestellte Widerspruch konnte von der SSK wegen mangelnder Informationsbereitschaft der ARGE PhAM und der für sie arbeitenden Messlabors nicht weiter verfolgt werden.

A 3.6.3 Messungen und Aussagen des Niedersächsischen Landesamts für Ökologie zu Kügelchen

Zur Identifizierung von Kügelchen wurden „Kontaminationsmessungen“ (α , β) mittels Großflächenhandmonitor nach in dünner Schichtdicke erfolgter Ausbreitung der luftgetrockneten Proben auf Filterbögen durchgeführt. Die Zählrate betrug durchgängig 10 Impulse pro Sekunde und entsprach nach NLO damit dem allgemeinen Umgebungspegel. Danach ergab sich kein Hinweis auf eine Aktivitätsinhomogenität in den ausgebreiteten Proben. Weiterhin wurden Homogenitätsprüfungen in Bezug auf Alpha-Strahler durch Ausbreiten von 10x1 g der getrockneten Hauptproben auf Messschälchen mit 6 cm Durchmesser und parallel jeweils 2 mal 10 Minuten Messung der Zählrate mit low-level-Messplätzen durchgeführt. Die gleiche Menge wurde in einem „getrockneten, zerkleinerten und homogenisierten“ Zustand über 5 mal 100 Minuten gemessen. „Alle Messungen ergaben im Rahmen der statistischen Messungenauigkeit die gleichen Ergebnisse“ und damit nach NLO keinen Hinweis auf Alpha-Inhomogenitäten [NLO 2001a].

Aus den fünf Hauptproben wurden unter einem Stereomikroskop kugelförmige Gebilde mit einer Gesamtmasse von ca. 10 mg separiert. Es wurde die Alpha-Gesamtzählrate während 2 mal 10 Minuten jeweils für die Kugeln aus den einzelnen Proben und den Kügelchen aller Proben zusammen ermittelt. Anschließend wurde die Alpha-Aktivität nach „vollständigem Mikrowellendruckaufschluss aller Kügelchen mit Salpetersäure und Flusssäure“ bestimmt. In allen Fällen wich die Impulsrate nach NLÖ nicht von der Nullrate ab.

Es wurde die Mikroskop-Aufnahme eines Kügelchens mit etwa 1,2 mm Durchmesser dokumentiert. Das NLÖ verzichtete nach eigenen Angaben aus Zeitgründen auf eine Bewertung der Kügelchen durch einen Mineralogen [NLÖ 2001a]. In einer nachträglichen Stellungnahme bezweifelt das NLÖ die These der künstlichen Brennstoffpartikel [NLÖ 2001d].

Für die Kontaminations- und Homogenitätsmessungen wird die kleinste Siebfraktion von NLÖ mit < 2 mm angegeben. Damit wären eventuell vorhandene Kügelchen nicht zerstört worden. Sofern keine zertrümmerten Kügelchen in den Proben enthalten waren und sich die Kernbrennstoffe, wie von ARGE PhAM behauptet, ausschließlich im Inneren von Kügelchen befinden, könnten mit diesen Messvorgängen auch in Zusammenhang mit den kurzen Messzeiten keine Alpha- bzw. Beta-Strahler detektiert werden. Dies gilt auch für die an Kügelchen durchgeführten Messungen der Alpha-Gesamtzählrate.

Das unter dem Mikroskop fotografierte Kügelchen ähnelt optisch den von ARGE PhAM vorgelegten Bildern. Die vom NLÖ eingesetzte Aufschlussmethode für die Kügelchen ist auch für Kernbrennstoffkügelchen geeignet. Vorausgesetzt, die Messzeit war für die aufgeschlossenen Kügelchen ausreichend und die Aussage des NLÖ zur gemessenen Zählrate zutreffend, wäre dies ein Gegenindiz zur PAC-Kügelchen-These. Allerdings wird die Messung an den aufgeschlossenen Kügelchen im NLÖ-Bericht nicht dokumentiert und auch die Messzeit ist nicht angegeben.

Die dokumentierten Messungen des NLÖ wurden dem Auftrag entsprechend unter Berücksichtigung der Prüfung, ob Gefahr in Verzug sei, durchgeführt. Daraus erklären sich die in der Regel kurzen Messzeiten. Auch später durchgeführte Nachmessungen mit langen Messzeiten gaben keine vom ersten Bericht abweichende Befunde.

Zusammenfassend wird festgestellt, dass auch die NLÖ-Ergebnisse keinen Hinweis auf das Vorhandensein von Kernbrennstoffkügelchen in den Bodenproben geben.

A 3.6.4 Messungen und Aussagen der Landwirtschaftlichen Untersuchungs- und Forschungsanstalt Kiel zu Kügelchen

Laut Bericht über „Sonderuntersuchungen von Bodenproben in Schleswig Holstein“ [LUFA 2001b] wurden drei im Rahmen der Routinemessungen der Immissionsüberwachung von GKSS und KKK nach REI [BMU 1993] in den Jahren 2000 und 2001 genommene Proben sowie 2001 drei Sonderproben in der Geest und vier Proben an Referenzorten genommen. Die Proben wurden getrocknet, gesiebt (2 mm Maschenweite) und gemahlen (1 mm Sieb).

Die Proben wurden mittels Gamma-Spektrometrie (Am-241) und Alpha-Spektrometrie (Pu-238 und Pu-239/240) untersucht. Bezüglich der für die Kügelchen-These u. a. relevanten Isotope wurden bei Messzeiten von 10.000 Minuten (γ) bzw. 5.833 Minuten (α) keine Messwerte oberhalb der Nachweisgrenze registriert. In zwei Referenzortproben wurde Pu-239/240

gemessen. „An keiner der 10 Proben wurde mit den angewandten Messmethoden erhöhte Radioaktivität festgestellt.“ [LUFA 2001a]

In den Sonderproben aus der Geest wurden ca. 4 Kügelchen pro 200 g gefunden, die aber keine Ähnlichkeit mit den von Gabriel beschriebenen Kügelchen hatten. Die Kügelchen wurden mittels mikroskopischer Untersuchung als Pflanzensamen identifiziert [LUFA 2001b]. Eine Mikroskopaufnahme wurde von der LUFA nicht vorgelegt.

Die Messungen der LUFA ergeben für die untersuchten Proben keine Hinweise auf das Vorhandensein von Plutonium (siehe auch Kapitel A 3.3.4). Auch wurden durch die LUFA keine den Beschreibungen von Gabriel entsprechenden Kügelchen in den Proben gefunden.

A 3.6.5 Messungen und Aussagen des GKSS-Forschungszentrums zu Kügelchen

Bei der Untersuchung von zwei Hausstaubproben wurden in einer Probenmasse von 319 g 32 Kügelchen und in 259 g 26 Kügelchen gefunden. Laut GKSS handelt es sich um drei unterschiedliche Kügelchen-Fractionen [GKSS 2001]. Es wurden Aufnahmen von Kügelchen dokumentiert.

Kügelchen beider Proben wurden gamma- und alpha-spektrometrisch mit Messzeiten von 4000 Minuten untersucht. An den Kügelchen einer Probe wurde die Betaaktivität mit einer Messzeit von 1000 Minuten bestimmt. Gamma- und Beta-Messungen haben keine Hinweise auf erhöhte Radioaktivität ergeben. Bei den ersten Alpha-Messungen seien Effekte aufgetreten, die nicht reproduzierbar waren. Als mögliche Erklärung für diese Effekte wird eine elektrostatisch bedingte Anlagerung der kurzlebigen Radionuklide Bi-212 oder Po-212 an den Kügelchen gesehen. Wären diese Messeffekte reproduzierbar gewesen, könnten nach GKSS-Auffassung die Peaks auch als Messung von Curium interpretiert werden, da dessen Linien im selben Energiebereich wie die der genannten Nuklide auftreten.

Vier der Kügelchen wurden in Ethanol aufgelöst. Auch danach wurden mit Beta-Messungen an einem der aufgelösten Kügelchen keine erhöhten Aktivitäten festgestellt. Eine alpha-spektrometrische Messung an den vier aufgelösten Kügelchen brachte den gleichen nicht reproduzierbaren Effekt wie oben beschrieben.

Eine REM-EDX-Analyse an zehn repräsentativen Exemplaren der von der GKSS gefundenen unzerstörten Kügelchen mit Durchmessern von 0,5 - 2 mm (fünf jeder Probe) ergab als Bestandteile der Kugeloberflächen bei acht Teilchen überwiegend Kohlenstoff und Sauerstoff, bei einem Teilchen überwiegend Calcium und Sauerstoff sowie bei einem weiteren Teilchen Silizium und Sauerstoff. Eine EDX-Analyse der vier aufgelösten Kügelchen bestätigte diese Ergebnisse. Daraus wird von der GKSS die Vermutung abgeleitet, dass es sich um Harz, mineralisierte Tier- und Pflanzenteile bzw. Sand handeln könnte.

Die von der GKSS gezeigten Aufnahmen der Kügelchen weisen optisch große Ähnlichkeiten mit von ARGE PhAM dokumentierten Aufnahmen auf. Die von der GKSS für die Alpha-Aktivitätsmessungen an Kügelchen und aufgelösten Kügelchen gegebene Interpretation der bei den ersten Messungen beobachteten Linien als Po-212 und Bi-212 ist plausibel. Die Wirksamkeit der EDX-Methode zur Detektierung von Uran und Transuranen im Inneren einer Kugel ist fraglich. Allerdings wurde von der GKSS auch an aufgelösten Kügelchen kein erhöhter Aktinidgehalt gemessen.

Von der GKSS wurde nicht dargestellt, auf welcher Grundlage die Auswahl der untersuchten Kügelchen aus den drei genannten Fraktionen erfolgte. Damit ist nicht generell auszuschließen, dass nur Kügelchen von dem Typ gemessen wurden, die nach Gabriel keine Kernbrennstoffe enthalten sollen. Indiz hierfür könnte sein, dass als Lösungsmittel Ethanol eingesetzt wurde, und das kernbrennstoffhaltige Material darin nicht löslich gewesen sein könnte. Die Auswahl der „richtigen“ Kügelchen betrifft allerdings lediglich die Belastbarkeit der alpha-spektrometrischen Messungen hinsichtlich der Kügelchen-These. Bei den Gamma-Messungen an allen Proben wäre, sofern enthalten, Am-241 gemessen worden.

Aus den Messungen der GKSS ergeben sich keine Hinweise auf ein Vorhandensein von künstlichen Kernbrennstoffpartikeln.

A 3.6.6 Messungen und Aussagen des Forschungszentrums Jülich zu Kügelchen

Nach Darstellung auf der 13. Sitzung des SSK-Ausschusses „Strahlenschutz bei Anlagen“ [FZJ 2002] wurden Bodenproben aus ca. 25 cm Tiefe genommen. Bei optischen Untersuchungen wurden in einer der Proben ca. 20 schwarze Partikel mit einer Gesamtmasse von 6 mg gefunden. Die alpha-spektrometrischen Messungen an den Partikeln in Bezug auf Plutonium ergaben keine Werte oberhalb der Nachweisgrenze von 1 mBq/Probe (siehe Kapitel A 3.3.6). Die U/Th-Verhältnisse seien dabei immer innerhalb der natürlichen Bandbreite gewesen.

Beim Forschungszentrum Jülich wurden an gefundenen Partikeln Alpha-Messungen durchgeführt, die keinen Befund erbrachten. Nach einem bei der Kernbrennstoffanalytik üblichen Aufschluss ergaben sich keine Hinweise auf ein Vorhandensein von Aktiniden.

A 3.6.7 Messungen und Aussagen des Instituts für Transurane zu Kügelchen

Insgesamt 16 vom Landeskriminalamt Kiel gelieferte Proben wurden zum Teil zermahlen und aufgeteilt [ITU 2002]. Mit SEM-EDX (Scanning Electron Microscopy mit einem Energy Dispersive X-ray System) wurden die Proben nach uran- bzw. plutonium-haltigen Partikeln untersucht. Es wurden keine Messsignale von Plutonium erhalten, aber in sechs Proben Ereignisse gemessen, die Uran zuzuordnen sind. Die Ereigniszahlen lagen bei 2, 88, 1, 1, 5 und 1. Mittels Sekundär-Ionenmassen-Spektrometrie (SIMS) [Betti 1999, Tamborini 1998, Tamborini 1999] wurden diese Partikel analysiert und ihr Uranvektor als dem von natürlichem Uran entsprechend bewertet.

An einem anderen Teil der zermahlenen Proben wurden Gamma- und Alpha-Messungen durchgeführt. Der Aufschluss für die Alpha-Messungen erfolgte mit Salpeter- und Flusssäure in der Mikrowelle. Bei allen Gamma- und Alpha-Messungen wurden keine Anhaltspunkte für ungewöhnliche Radioaktivität festgestellt.

Die unbehandelten Proben wurden mittels 0,6 mm-Sieb in fein- und grobkörnige Fraktionen geteilt. Die grobkörnige Fraktion wurde nach Alpha-, Beta- und Gamma-Aktivität untersucht, aber keine den Hintergrund übersteigenden Werte festgestellt. Danach wurden die Fraktionen auf Kügelchen visuell geprüft. In einer Probe wurde ein schwarzes Teilchen gefunden. Eine Analyse mit SEM-EDX erbrachte keinen Nachweis für Radionuklide. Als Bestandteile wurden Si, Al, Ti, C und O gefunden [ITU 2002].

Die SIMS-Messungen dieses Kügelchens sind im Bericht nicht dokumentiert sowie auch keine Messbedingungen angegeben. Die zur Beurteilung benötigten Informationen zum

Messverfahren wurden dem Ausschuss „Strahlenschutz bei Anlagen“ durch Frau Dr. Betti (ITU) auf der 16. Sitzung gegeben.

Mit der eingesetzten SEM-EDX-Messmethode können nur Nuklide identifiziert werden, die sich mehr oder weniger in den äußeren Schichten von Partikeln befinden. Die von ITU ermittelten Elemente werden auch von ARGE PhAM genannt. Die Korngröße der mit SEM-EDX untersuchten zermahlenen Proben wird nicht angegeben. Bei dem mit SIMS untersuchten schwarzen Kügelchen mit ca. 2 mm Durchmesser wurde durch starken Ionenstrom über mehr als 9 Stunden auf das Kügelchen die Oberfläche des Kügelchens abgetragen und auf beiden Seiten ein Krater im Kügelchen von ca. 0,8 mm Tiefe erzeugt. Die Analyse des abgetragenen Materials zeigte bis zu dieser Tiefe keine Nuklide von Transuranen.

Ein Teil der im ITU untersuchten Proben waren solche, die von der Staatsanwaltschaft Lübeck bei der ARGE PhAM beschlagnahmt worden waren. In einer Probe wurde ein Partikel gefunden, in dem mittels SIMS und SEM-EDX keine Kernbrennstoffe nachgewiesen wurden.

Aus den Messungen des ITU ergeben sich keine Hinweise auf das Vorhandensein von Kernbrennstoffpartikeln.

A 3.6.8 Messungen und Aussagen von Dr. Stevenson (Universität Kiel) zu Kügelchen

Am 06.06.01 wurden an zwei Stellen in unmittelbarer Nähe des GKSS-Geländes und in Tesperhude Bodenproben von jeweils ca. 250 g aus 10 bis 20 cm Tiefe genommen [Stevenson 2001]. Die Proben wurden gereinigt und getrocknet. In allen drei Proben wurden mit einem Stereomikroskop Kügelchen gefunden, die äußerlich der Beschreibung von Gabriel entsprachen. In einer von acht älteren Dachstaubproben (Elbmarsch und Bremen) wurden ebenfalls Kügelchen festgestellt [Stevenson 2001]. In einer Vergleichsbodenprobe aus Westensee bei Kiel wurden keine Kügelchen identifiziert [Stevenson 2002].

An mehreren Proben aus zertrümmerten und beschädigten Kügelchen wurden am McCrone Research Institute in Chicago energiedispersive Röntgenfluoreszenzanalysen (EDXRF-Untersuchungen) durchgeführt. Es werden vier repräsentative Spektren mit den Messparametern dokumentiert. Neben Kohlenstoff und Sauerstoff sind den Spektren vor allem Aluminium, Silizium, Kalzium und Eisen in jeweils unterschiedlichen Mengen zu entnehmen. Parallel zu diesen Untersuchungen wurden von Bruchstücken der Kügelchen Aufnahmen unter dem Polarisationsmikroskop gemacht, um ihre Struktur festzustellen. Sie sind im Vermerk [Stevenson 2002] dokumentiert.

Stevenson übergab elf von seinen Proben mit separierten Partikeln an das Erste Physikalische Institut der Universität Gießen. Mittels ADK-Automess-Kontaminationsmonitor wurden dort orientierende Messungen der Alpha-Aktivitäten durchgeführt. Dabei wurden 3 bis 5 Bq pro Kügelchen gemessen [Meyer 2002]. Der Nachweis der grundsätzlichen Eignung des Messverfahrens wurde nicht geführt.

Auf Grundlage der Alpha-Messungen wurden vier Proben für die SIMS-Untersuchungen ausgewählt. Die Probenpräparation wird in der Unterlage [Meyer 2002] beschrieben. Zu zwei der Proben werden nähere Ausführungen zu den Ergebnissen gemacht. Es wird auf ein sehr hohes Konzentrationsverhältnis von Li und Be sowie die Detektion von Th-232, U-238 sowie Ta und Tl hingewiesen. Zu den Messungen werden zwei Spektren einer Probe dokumentiert.

Weitere Messungen zur Überprüfung auf Th-230, Pa-231 und U-235 Gehalt werden angekündigt [Meyer 2002].

Aus den Ergebnissen wird in [Stevenson 2002] gefolgert, dass die Kügelchen nicht natürlicher Herkunft seien. Vielmehr sprächen die Alpha-Aktivität sowie das Vorhandensein von Aktiniden und bestimmter Elemente niedriger Massen für eine Herkunft aus kerntechnischen Aktivitäten. Hierbei bezieht sich Dr. Stevenson allerdings nicht auf Ergebnisse seiner eigenen Messungen. Dass bei den EDXRF-Messungen im Gegensatz zu SIMS keine Aktiniden festgestellt wurden, wird mit der geringen Reichweite der Elektronen und dem nur im Inneren der Kügelchen befindlichen Thorium und Uran begründet.

Die Ergebnisse zeigen das Vorhandensein von Kügelchen nicht natürlichen Ursprungs in den Proben. Die ermittelten Bestandteile der Kügelchen sind auch in den von ARGE PhAM genannten Elementen enthalten. Die Ergebnisse der SIMS-Untersuchungen, insbesondere die Li- und Be-Gehalte, zeigen Auffälligkeiten, die allerdings aufgrund mangelnder Information über die relativen Empfindlichkeiten beim Elementnachweis und bei der Berücksichtigung von Störungen des Isotopennachweises durch Molekülonen nicht nachvollzogen werden können.

Ein Nachweis von Kernbrennstoffpartikeln ist durch diese Untersuchungen nicht erbracht und wird in Bezug auf die eigenen Ergebnisse in [Stevenson 2002] auch nicht behauptet.

A 3.6.9 Zusammenfassende Bewertung der Befunde zu Kügelchen

Im Boden der Umgebung von GKSS und KKK wurden von fast allen Institutionen Kügelchen in unterschiedlicher Konzentration gefunden. Sie wurden von den verschiedensten Institutionen auf Radioaktivität und ihre chemische Zusammensetzung untersucht.

Die verschiedenen Untersuchungsergebnisse ergeben nach der Bewertung der SSK keine Hinweise auf das Vorhandensein von Kernbrennstoffen in diesen Kügelchen. Die Behauptungen der ARGE PhAM können angesichts der vorliegenden Ergebnisse nicht bestätigt werden. Die Kügelchen können natürlichen (z.B. Harz oder mineralisierte Tier- oder Pflanzenteile) oder nicht natürlichen Ursprungs (z.B. Flugasche) sein.

Die SSK sieht keine Hinweise auf ein lokales oder gar großräumiges Vorkommen kernbrennstoffhaltiger Kügelchen in den untersuchten Gebieten.

A 4 Bewertung der möglichen Strahlenexposition

Im folgenden Kapitel werden Befunde zu Radionukliden in der Umgebung von KKK und GKSS im Hinblick auf die mögliche Strahlenexposition bewertet. Es werden nur Nuklide berücksichtigt, die nicht natürlichen Ursprungs sind. Zu bewerten ist dann die Strahlenexposition durch die folgenden Radionuklide:

- Pu-239, Pu-240, Pu-241 und Am-241 in Hausstaub (siehe Tabellen 3.9 und 3.17). Die maximalen Werte in der Umgebung von KKK und GKSS betragen ohne Angabe der Unsicherheit
 - 1,44 mBq/g TM Pu-239,
 - 0,89 mBq/g TM Pu-240,

- 23,7 mBq/g TM Pu-241,
- 1,58 mBq/g TM Am-241

und liegen in Probe Nr. 7 aus Tespe vor. In der gleichen Probe war Pu-238 nicht nachweisbar (Nachweisgrenze 0,75 mBq/g TM).

- Pu-239/240 in Bodenproben. Der maximale Wert in der Umgebung von KKK und GKSS beträgt $0,2168 \pm 0,0266$ mBq/g TM (siehe Tabelle 3.10). Pu-238 und Pu-241 konnten nicht nachgewiesen werden; die maximalen Nachweisgrenzen bei Bodenproben betragen 0,1 mBq/g TM Pu-238 (Tabellen 3.11 und 3.12) und 18 mBq/g TM Pu-241 (Tabelle 3.11).
- Andere Aktiniden als Plutonium in Bodenproben. Bewertbare Messwerte liegen hierzu nicht vor, die maximalen Nachweisgrenzen bei Bodenproben betragen für Am-241 0,5 mBq/g TM, für Am-243 0,15 mBq/g TM, für Cm-242 2 mBq/g TM sowie für Cm-244 2 mBq/g TM (siehe Tabelle 3.18).
- Cs-137, Co-60 und H-3 in Bodenproben. Die gemessenen Höchstwerte oder höchsten erreichten Nachweisgrenzen betragen 130 mBq/g FM für Cs-137, 2,4 mBq/g FM für Co-60 und 3 mBq/g für H-3 (siehe Kapitel A 3.5).

Die Abschätzung der möglichen Strahlenexposition erfolgt anhand der Freigabewerte der Strahlenschutzverordnung, Anlage III Tabelle 1, für die Freigabe von festen Stoffen und von Bodenflächen. Diese Freigabewerte wurden so abgeleitet, dass durch die Freigabe eine Dosis im Bereich von 10 μ Sv pro Jahr bei keiner Person überschritten werden soll. Berücksichtigt man alle anthropogenen Radionuklide außer Cs-137, ergibt diese Abschätzung eine potentielle Strahlenexposition weit unterhalb von 10 μ Sv pro Jahr.

Die berichteten Cs-137-Daten sind ohne die Annahme zusätzlicher Emissionen aus kerntechnischen Anlagen mit dem Fallout der Kernwaffentests und dem Unfall in Tschernobyl vollständig zu erklären. Das Bundesamt für Strahlenschutz hat für das Jahr 2000 festgestellt, dass die aus den oberirdischen Kernwaffentests und die aus dem Unfall in Tschernobyl resultierende Strahlenexposition mit 10 bis 15 μ Sv pro Jahr abgeschätzt werden kann.

Die für die in der Umgebung von KKK und GKSS regelmäßig zur Überwachung im Rahmen von REI [BMU 1993] und IMIS [BMU 1995b] durchgeführten Messungen geforderten Nachweisgrenzen sind ebenfalls so angelegt, dass mit ihnen die Erfassung einer potentiellen Strahlenexposition von 10 μ Sv pro Jahr möglich ist.

Aus den vorliegenden Messergebnissen ergibt sich daher kein Hinweis auf erhöhte Strahlenexpositionen von Personen in der Elbmarsch, insbesondere kein Hinweis auf Radioaktivität als Ursache für die dort beobachtete Leukämiehäufung.

Literaturverzeichnis zum Anhang

- ARGE PhAM 2001a: Arbeitsgemeinschaft Physikalische Analytik und Messtechnik (ARGE PhAM), Radioaktivität in Elbmarsch und Elbgeest – Hier: Ableitung von Isotopenvektoren zur Entwicklung eines Kontaminationskatasters, Bericht SH/NS/ELB 3, Fassung 20. Juni 2001. – In: Internationale Ärzte für die Verhütung des Atomkrieges, Ärzte in sozialer Verantwortung e.V., Reader Radioaktivität in Elbmarsch und Elbgeest, Untersuchung der ARGE PhAM im Auftrag der IPPNW, Berlin, Juli 2001
- ARGE PhAM 2001b: Arbeitsgemeinschaft Physikalische Analytik und Messtechnik (ARGE PhAM), Messungen der Radioaktivität in Elbmarsch und Elbgeest, Bericht SH/NS/ELB2, 10.2.2001
- ARGE PhAM 2001c: Arbeitsgemeinschaft Physikalische Analytik und Messtechnik (ARGE PhAM), Vorlage für SSK-Sitzung (UA Strahlenschutz ...) am 29.05.01 in München, 2001
- ARGE PhAM 2001d: Arbeitsgemeinschaft Physikalische Analytik und Messtechnik (ARGE PhAM), Kommentare zur Probennahme vom 27.01.01 und Probenauswertung (NLÖ-Bericht v. 13.02.01), ohne Ort und Jahr
- ARGE PhAM 2002: Arbeitsgemeinschaft Physikalische Analytik und Messtechnik (ARGE PhAM), Massenspektrometrische Analysen an Mikrokügelchen aufgefunden in der ELB-GEEST und ELB-MARSCH, Bericht SH/NS/ELB4, Mai 2002
- Betti 1999: Betti, M.: Use of Secondary Ion Mass Spectrometry in Nuclear Forensic Analysis for the Characterization of Plutonium and Highly Enriched Uranium Particles. Analytical Chemistry, Vol. 71, No. 14, July 15, 1999, 2616-2622
- BfM 1998: Bundesanstalt für Milchforschung, Institut für Chemie und Physik: Neue Abschätzung der spezifischen Am-241-Aktivität im bearbeiteten Boden (Ackerboden) in der Bundesrepublik Deutschland, Kiel, 23.11.1998
- BMU 1992: Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (Hrsg.), Messanleitungen für die Überwachung der Radioaktivität in der Umwelt und zur Erfassung radioaktiver Emissionen aus kerntechnischen Anlagen – Loseblattsammlung, Verlag Gustav Fischer, Stuttgart 1992
- BMU 1993: Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit, Richtlinie zur Emissions- und Immissionsüberwachung kerntechnischer Anlagen, Gemeinsames Ministerialblatt, 1993, S. 502
- BMU 1994: Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit, Messprogramm für den Normalbetrieb (Routinemessprogramm), Gemeinsames Ministerialblatt, 45. Jahrgang, 1994, Nr. 32, S. 929
- BMU 1995a: Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit, Messprogramm für den Intensivbetrieb (Intensivprogramm), Gemeinsames Ministerialblatt, 46. Jahrgang, 1995, Nr. 14, S. 261
- BMU 1995b: Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit, Allgemeine Verwaltungsvorschrift zum Integrierten Mess- und Informationssystem nach dem Strahlenschutzvorsorgegesetz (AVV-IMIS), Bundesanzeiger, Jahrgang 47, 1995, Nr. 200a
- Botsch 2000: W. Botsch, Untersuchungen zur Strahlenexposition von Einwohnern kontaminierter Ortschaften der nördlichen Ukraine, Dissertation, Universität Hannover, November 2000
- DIN 1999: DIN 1319-4, Behandlung von Unsicherheiten bei der Auswertung von Messungen, Beuth Verlag, Berlin, Köln, 02-1999
- DIN 2000: DIN 25482-10, Nachweisgrenze und Erkennungsgrenze bei Kernstrahlungsmessungen, Allgemeine Anwendungen, Beuth Verlag, Berlin, Köln, 05-2000

- Ensinger 2001a: W. Ensinger, zitiert in Strahlentelex 350-351/2001
- Ensinger 2001b: W. Ensinger, E-mail an J. Meier (MFE Schleswig-Holstein), Marburg, 13.06.2001
- FZJ 2002: Forschungszentrum Jülich, Vortrag von Frau Maischak über Messungen und deren Ergebnisse in Zusammenhang mit den Funden von Kügelchen in der Elbmarsch, 13. Sitzung des Ausschusses A7 der SSK, 16.4.2002
- GKSS 2001: GKSS-Forschungszentrum Geesthacht, Bericht von Herrn Ahlfänger über Messungen und deren Ergebnisse in Zusammenhang mit den Funden von Kügelchen in der Elbmarsch, 8. Sitzung des Ausschusses A7 der SSK, 17./18.4.2001
- GRS 2001: Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit mbH, Stellungnahme zur Anfrage: Was ist PAC-Brennstoff?, im Auftrag des BMU, Bearbeiter: W. Weber, 3.12.2001
- Hrnecek 2003: Hrneck, E. et al.: Application of Microprecipitation on Membrane filters for Alpha Spectrometry, Liquid Scintillation Counting and Mass Spectrometric determination of Plutonium Isotopes. Radiochimica Acta, accepted
- Hrnecek 1999: Hrneck, E., Irlweck, K.: Determination of Americium and Plutonium in Contaminated Soil samples. Environmental Chemical Analysis Ed. by GWA Newton, RSC-UK, 1999
- IPPNW 2002a: Deutsche Sektion der Internationalen Ärzte für die Verhütung des Atomkrieges, Ärzte in sozialer Verantwortung e.V (IPPNW), Schreiben von Frau Dr. Claußen an C. Küppers (Vorsitzender SSK-Ausschuss A7), Berlin, 27.3.02
- IPPNW 2002b: Deutsche Sektion der Internationalen Ärzte für die Verhütung des Atomkrieges, Ärzte in sozialer Verantwortung e.V (IPPNW), Schreiben von Dr. med. Diekmann und Dr. Pflugbeil an Dr. Dietze (Vorsitzender SSK) und C. Küppers (Vorsitzender SSK-Ausschuss A7), 23.5.02
- ISO 1995: ISO International Organization for Standardization, ISO Guide to the Expression of Uncertainty in Measurement, Geneva 1993, corrected reprint 1995; siehe auch DIN V ENV 13005, Leitfaden zur Angabe der Unsicherheit beim Messen, Beuth Verlag, Berlin, Köln, 06-1999
- ISO 2001: ISO International Organization for Standardization, ISO 11929-7, Determination of detection limit and decision threshold for ionizing radiation measurements - parts 7: Fundamentals and general applications, ISO/CD 2001
- ITU 2002: Institute for Transuranium Elements, Analysis of soil samples from the Landeskriminalamt des Landes Schleswig-Holstein, JRC-ITU-TN-2002/29, 3. Juni 2002
- Kemski 1996: J. Kemski, R. Klingel, A. Siehl, Die terrestrische Strahlung durch natürliche radioaktive Elemente in Gesteinen und Böden, in A. Siehl (Hrsg.) Umweltradioaktivität, Berlin, Ernst (1996) p. 69
- LUFA 2001a: Landwirtschaftliche Untersuchungs- und Forschungsanstalt (LUFA) Kiel, Untersuchung von Bodenproben – Untersuchungsbericht - Kurzfassung, Schreiben an das Ministerium für Finanzen und Energie des Landes Schleswig-Holstein vom 4.4.01, Az R. Otto/Schu
- LUFA 2001b: Landwirtschaftliche Untersuchungs- und Forschungsanstalt (LUFA) Kiel, Sonderuntersuchungen von Bodenproben in Schleswig-Holstein – Untersuchungsbericht - Im Auftrag des Ministeriums für Finanzen und Energie des Landes Schleswig-Holstein vom 1.6.2001, Az R. Otto/Ha
- Meyer 2002: B.K. Meyer (I. Physikalisches Institut der Justus-Liebig-Universität Gießen), 1. Auswertung der von Dr. Stevenson eigenhändig genommenen Proben und separierten Partikel aus der Elbgeest, Gießen, 23.1.2002

- MFE 2000: Ministerium für Finanzen und Energie (MFE) des Landes Schleswig-Holstein, Plutoniumbestimmungen und Gammaskpektrometrische Bestimmungen an Hausstaubproben, Kiel, Oktober 2000
- NLÖ 2001a: Niedersächsisches Landesamt für Ökologie (NLÖ), Bericht über die Sonderuntersuchung der Belastung des Bodens der Elbmarsch mit Alphastrahlern (Zusammenfassung), Hildesheim, 13.2.2001
- NLÖ 2001b: Niedersächsisches Landesamt für Ökologie (NLÖ), Stellungnahme zum Bericht von Frau Dr. Helga Dieckmann und Frau Professor Dr. Inge Schmitz-Feuerhake an die Leukämiekommission des Landes Schleswig-Holstein/AG Belastungsindikatoren beim Niedersächsischen Ministerium für Frauen, Arbeit und Soziales mit dem Titel: „Messen am Problem vorbei: die Untersuchungen des Niedersächsischen Landesamtes für Ökologie über heiße Teilchen und Transurane in der Elbmarsch“, Hildesheim, 23.3.2001
- NLÖ 2001c: Niedersächsisches Landesamt für Ökologie (NLÖ), Stellungnahme zu dem im Auftrage von IPPNW von der ARGE PhAM erstellten Bericht „Radioaktivität in Elbmarsch und Elbgeest“ (Bericht SH/NS/ELB 3), Hildesheim, 22.8.2001
- NLÖ 2001d: Niedersächsisches Landesamt für Ökologie (NLÖ), Stellungnahme zu „Kommentare zur Probennahme vom 27.01.01 und Probenauswertung, (NLÖ-Bericht vom 13.02.01)“ der ARGE PhAM (Internetversion), Hildesheim, 22.05.2001
- Öko-Institut 1994: Öko-Institut, Analyse der Emissions- und Immissionsdaten des Kernkraftwerkes Krümmel im Zusammenhang mit den Leukämiefällen in der Elbmarsch, Darmstadt, September 1994
- Öko-Institut 1995: Öko-Institut, Analyse der Emissions- und Immissionsdaten des GKSS-Forschungszentrums Geesthacht aus Anlaß der Leukämiefälle in der Elbmarsch, Darmstadt, Dezember 1995
- Peerani 2002: Peerani, P.: Assessment of a Compton-event suppression γ -spectrometer for the detection of fission products at trace levels. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 482 (2002) 42-50
- Physikerbüro Bremen 2001: Physikerbüro Bremen, Öko-Institut, TÜV Nord, Anlagenbezogenes Gutachten zum Kernkraftwerk Krümmel (KKK), Bremen/Hamburg/Darmstadt, September 2001
- Schmitz-Feuerhake 1998: I. Schmitz-Feuerhake, Bericht über Plutoniumbestimmungen in der Elbmarsch, Universität Bremen, 20.11.1998
- Stevenson 2001: A.G.F. Stevenson (Wissenschaftlicher Geschäftsführer der Leukämiekommission des Landes Schleswig-Holstein), Vermerk, Kiel, 3.9.2001
- Stevenson 2002: A.G.F. Stevenson (Wissenschaftlicher Geschäftsführer der Leukämiekommission des Landes Schleswig-Holstein), Vermerk – Fortschreibung des Vermerks vom 03.09.2001 zu Kernbrennstoff-Mikrosphären aus Bodenproben, Kiel, 18.2.2002
- StrVG 1986: Gesetz zum vorsorgenden Schutz der Bevölkerung gegen Strahlenbelastung (Strahlenschutzvorsorgegesetz – StrVG) vom 19. Dezember 1986, Bundesgesetzblatt Jahrgang 1986, I. S. 2610
- Tamborini 1998: Tamborini, G. et al.: Application of secondary ion mass spectrometry to the identification of single particles of uranium and their isotopic measurement. Spectrochimica Acta Part B 53(1998) 1289-1302
- Tamborini 1999: Tamborini, G. et al.: Secondary Ion Mass Spectrometry (SIMS) for the Detection of Radionuclides in Particles from Soil Samples. Environmental Radiochemical Analysis, Ed. by GWA Newton, RSC, 1999
- UNEP 1999: UNEP, The potential effects on human health and the environment arising from possible use of depleted uranium during the 1999 Kosovo conflict, Geneve, October 1999

- UNSCEAR 2000: United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, Sources and Effects of Ionizing Radiation (UNSCEAR), 2000 Report to the General Assembly, United Nations, New York
- Vahlbruch 2002: J.-W. Vahlbruch, S. Harb, R. Michel, Messungen im Rahmen des Forschungsvorhaben StSch 4285: Ableitung von radioökologischen Parametern aus dem langfristigen Eintrag von I-129, 2002 (unveröffentlicht)
- Weast 1977: Weast, R.C. (Ed.): Handbook of Chemistry and Physics, 57th Edition 1976-77, CRC Press, Cleveland Ohio, 1977