



Institut für Geowissenschaften* Altenhöferalle 1 * D-60438 Frankfurt

Dr. Axel Gerdes
Institut für Geowissenschaften
Fachseinheit Mineralogie
Altenhöferalle 1
D-60438 Frankfurt am Main

Telefon +49 (0)69 798 40152
Telefax +49 (0)69 798 40122
E-Mail gerdes@em.uni-frankfurt.de

Bericht zu den isotopengeochemischen Untersuchungen an Bodenproben und darin enthaltenen sphärischen Partikel aus der Elbmarsch:

Gegenstand der Untersuchungen, die im April-August 2006 am oben genannten Institut durchgeführt wurden, waren 3 Bodenproben aus der Umgebung des GKSS Forschungszentrums und des Kernkraftwerk Krümmels und der darin befindlichen sphärischen Mikropartikel. Auslöser für diese Studie waren die in den letzten Jahren wiederholt geäußerten Vermutungen über das Vorhandensein einer ungewöhnlichen Radioaktivität in der Elbmarsch. Charakteristisch soll eine von den Atomwaffentests („Global fall-out“) und Tschernobyl abweichende Isotopensignatur mit Anreicherung einzelner Radionuklide sein, die möglicherweise an im Boden vorhandenen kugeligen Mikropartikeln gebunden ist. In mehreren vorangegangenen Untersuchungen konnte jedoch keine erhöhte Radioaktivität im Staub und in den Böden der Elbmarsch nachgewiesen werden. Aus diesem Grund und um verschiedenen Kritikpunkten an vorangegangener Studien gerecht zu werden, wurden die Untersuchungen für diese Studie mit größtmöglichen Aufwand und mit Methoden durchgeführt, die zu den empfindlichsten und den genauesten gehören, die derzeit für die Analyse einzelner Mikropartikel und für den Nachweis unnatürlicher Isotopenverhältnisse (Th, U, Pu etc.) in der Umwelt verfügbar sind.

Zusammenfassend kann gesagt werden, dass die Ergebnisse der Untersuchungen nicht den kleinsten Hinweis auf eine ungewöhnliche Radioaktivität in den untersuchten Proben erkennen lassen. Sowohl die Verhältnisse der unterschiedlichen Radionuklide zueinander, wie auch deren Konzentration müssen als vollkommen normal bezeichnet werden. Sie sind entweder ausschließlich natürlichen Ursprungs, wie im Falle der Uran- und Thoriumisotope, bzw. deuten auf einen kleinen Eintrag atmosphärischen Staubs der Spuren von Plutonium aus den Atomwaffentests der 60-70er Jahre und

wahrscheinlich auch kleinste Mengen Tschernobyl-Plutonium enthält. Die Ergebnisse sind in voller Übereinstimmung mit denen, die auf Anfrage des ZDF im Jahr 2005 an unserem Institut an 8 Proben aus der Elbmarsch durchgeführten wurden. Obwohl die Untersuchung in 2005 deutlich weniger detailliert und aufwendig war, ließen sich daraus schon die gleichen Schlussfolgerungen ziehen.

Die Ergebnisse beider Untersuchungen unterscheiden sich jedoch in verschiedener Hinsicht von denen, die 2006 im Rahmen einer ZDF Dokumentation zum Thema Elbmarsch veröffentlicht wurden. Diese wurden an einem Institut in Minsk untersucht. Überraschend ist dies, da es sich prinzipiell um das gleiche Probenmaterial handelt. Es wurde von derselben Person, an denselben Stellen und in derselben Art und Weise entnommen. Unterschiedlich waren lediglich die Probenbehandlung (z.B. Separation der kugeligen Partikel), die Methodik, die Labore und die Analysegeräte, die verwendet wurden. Es sei hier daraufhingewiesen, dass die hier vorgelegten Ergebnisse vom Umfang, von der räumlichen Auflösung, von der Nachweiststärke wie auch von der Genauigkeit der Analysen, bisherige Untersuchungen (einschließlich die aus der ZDF Doku) in der Elbmarsch um das 10 bis >1000fache übersteigen.

1. Proben und Methodik

Für diese Studie wurden die Proben in 4 Korngrößenfraktionen (125-355, 63-125, 20-63 und kleiner 20µm; Mikrometer = 0.001 mm) getrennt und ein repräsentativer Anteil davon bei unterschiedlich hohen Temperaturen und Drücken und mit verschiedenen Säuregemischen aufgeschlossen. Ziel war es nachzuweisen, ob und inwieweit gewisse radioaktive Bestandteile (U, Th und Pu) in einzelnen Korngrößen angereichert sind und ob sie bei bestimmten Aufschlussmethoden bevorzugt, oder auch nicht, in Lösung gehen. Zusätzlich wurden von dem am häufigsten vorkommenden Partikelarten **K1** (metallisch-grau und magnetisch) und **K4** (unmagnetisch, grau-schwarz und glatt) (**Abb.1**) jeder Probe jeweils ca. 150 bis >800 Kugeln separiert, vollständig mittels verschiedener Säuregemische bei >180°C aufgeschlossen und deren Uran-, Thorium- und Plutoniumkonzentrationen und Isotopenverhältnisse massenspektrometrisch analysiert.

Im Weiteren wurden unter dem Mikroskop aus den verbleibenden Siebfractionen alle Arten von kugeligen Partikeln (0,5 bis 0,01 mm groß) herausgepickt, davon rund 800 in Harz eingebettet und zur Hälfte angeschliffen. Es lassen sich hierbei 7 Gruppen unterscheiden, bei denen es sich im eigentlichen Sinne um 4 Arten sphärischer Partikel (**K1-K4**) und 3 Typen gerundeter Minerale handelt (**M1-M3**) (**Abb. 1**). Die eingebetteten Partikel wurden anschließend mit dem Forschungsmikroskop und der Elektronenstrahlmikrosonde untersucht und abgebildet (**Abb. 3-6**) und anschließend mittels der **Laserablation-ICP-Massenspektrometrie** (LA-ICP-MS) auf die Haupt- und Spurenelementzusammensetzung analysiert. Bei letzterer werden Teile der Kügelchen im Mikrometerbereich (30-95 μm Durchmesser) mittels eines Lasersystems abgetragen, in einem induktiv gekoppelten Plasma bei ca. 8000° ionisiert, nach der Masse getrennt und anschließend die Gehalte von 66 verschiedenen Isotopen bzw. 62 Elementen bestimmt (siehe auch **Abb. 2**).

Die Gehalte und genauen Verhältnisse der Uran- Thorium- und Plutoniumisotope (^{234}U , ^{235}U , ^{236}U , ^{238}U , ^{232}Th , ^{230}Th , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu) in den jeweils 4 Korngrößenfraktionen (jeweils 5-10 g) der 3 Proben, sowie insgesamt 6 Fraktionen kugeliger Partikeln wurden mittels der **Isotopenverdünnungsanalyse** mit einem **Multikollektor-ICP-Massenspektrometer** (ID-MC-ICP-MS) des Typs Neptun (Thermo-Finnigan, Bremen) bestimmt. Hierfür wurden die Proben nach dem Veraschen (550 °C) in Königswasser über 24 Stunden bei 100°C aufgeschlossen (Ergebnisse „a“ in den **Abb. 12-15**). Die nicht gelöste Fraktion abgetrennt und in einem Teflonbecher mit einem Flußsäure-Salpetersäure-Gemisch bei 120°C im Ofen aufgeschlossen (= „b“ in **Abb. 12-15**). Der nicht aufgelöste Rückstand wurde wieder abgetrennt und in Teflon-Druckaufschlussbehältern nacheinander in Flußsäure-Salpetersäure-, Flußsäure-Perchlorsäure und Flußsäure-Schwefelsäure-Gemischen bei jeweils >180°C aufgeschlossen (= „c“ in **Abb. 12-15**). Alle Proben waren danach vollständig aufgeschlossen. Vor der Analyse wurden die Pu-, U- und Th-fractionen chromatographisch mittels TEVA und UTEVA (Eichrom, Paris) Ionenaustauscherharz voneinander und von der Matrix abgetrennt.

2. Ergebnisse der Analysen

2.1 LA-ICP-MS Analyse einzelner Partikel

Jeweils 15-25 Partikel jeder Gruppe wurden auf diese Weise analysiert und die Elementgehalte relativ zur mittleren Zusammensetzung der kontinentalen Kruste logarithmisch aufgetragen (**Abb. 8-10**). Die Ergebnisse erlauben zum ersten Mal eine genaue Charakterisierung der unterschiedlichen, sphärischen Partikel in den Böden aus der Elbmarsch. Bisherige, dem Verfasser bekannte Untersuchungen können nur als ungenügend bis sehr zweifelhaft eingestuft werden und halten einer wissenschaftlichen Beurteilung nicht stand. Es sei hier betont, dass bei der verwendeten Methodik Teilbereiche der Kügelchen analysiert wurden, die deutlich kleiner als ein Millionstel Anteil eines Gramm Bodens (z.B. ~ Mindestprobenmenge für Alpha- und Gammaskopmetrie) sind.

Zusammenfassend kann für diese Untersuchungen gesagt werden, dass die untersuchten Mikropartikel keine auffälligen Uran- und Thoriumkonzentration aufweisen (~ typische Gehalte für Böden bzw. niedriger), Plutonium nie nachgewiesen werden konnte und die Uranisotopenverhältnisse, soweit nachweisbar, dem von natürlichen Uran entsprachen (Abb.11). Die untersuchten sphärischen Partikel haben entweder einen natürlichen Ursprung (z.B. Minerale, Eisenoxide, Pflanzensamen, organisches Harz) oder es handelt sich um anthropogen gebildete Partikel (Flugaschen, Metalloxide etc.), die bei der Verbrennung unterschiedlicher Materialien aus dem Dampf kondensieren. Als auffällig sind die bis zu 500fach erhöhten Gehalte einiger äußerst toxischer Elemente, wie Pb, As, Cd, Zn, Cu und Cr in den Partikeln **K1** bis **K4** zu bezeichnen. Die Gemeinsamkeit deutet klar auf eine regionale Quelle/Ursprung der Partikel, was sich auch an der Größe (bis 5 mm) der **K1** Partikel (magnetisch) ableiten lässt (zu groß für den Transport durch den Wind). Die Herkunft der **K1** Partikel wie auch die erhöhten Gehalte der genannten Spurenelemente stehen vermutlich in Zusammenhang mit der Röstung von Pyrit zur Schwefelsäureherstellung, wie sie die Firma Dynamit Nobel auf dem betreffenden Gebiet in der Vergangenheit wahrscheinlich betrieben hatte.

2.2 Uran-, Thorium- & Plutoniumisotopie der Bodenfraktionen und kugelliger Partikel

Die Ergebnisse der Analysen der Plutonium-, Thorium- und Uranisotope sind in **Abb. 12-15** graphisch dargestellt. Zusätzliche Erläuterungen sind in den Abbildungstexten zu finden.

Die gefundenen Uran-, Thorium- und Plutoniumkonzentrationen sind alle als unauffällig bzw. niedrig einzustufen. Sie sind vergleichbar zu typischen Konzentration in Böden und Gesteinen Deutschlands. Es kann auch keine auffällige Anreicherung einzelner Isotope dieser 3 Elemente nachgewiesen werden. Der Mittelwert der $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$ Isotopenverhältnisse aller Siebfraktionen lässt sich nicht von dem des natürlichen Urans (137.88) unterscheiden. Alle Einzelanalysen stimmen innerhalb der Unsicherheit mit diesem Wert überein. Das $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$ Isotopenverhältnis ist das Hauptkriterium für die Identifizierung einer Kontamination durch ab- oder angereichertes Uran (**Abb. 12**). Dies lässt sich jedoch nur über die hier verwendete Massenspektrometrie verlässlich bestimmen. Andere Methoden, wie die Alpha- oder Gammaspektrometrie, die auch in der Vergangenheit bei Analysen an Proben aus der Elbmarsch Anwendung fanden, sind hierfür nicht oder nur sehr bedingt geeignet. Die Unsicherheiten (Fehler) der Einzelmessungen dieser Studie für das $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$ Isotopenverhältnisse, wie auch die Standardabweichung aller Messwerte der Siebfraktionen, sind um 100-500fach niedriger als sie typischerweise bei der Alphaspektrometrie sind (z.B. Ergebnisse von Prof. Mironov, Minsk, ZDF Doku 2006). Mit der hier verwendeten Methodik ließe sich in 5 Gramm Boden schon ein einziges 20 μm -Partikel (0.02 mm) aus an- oder abgereicherten Uran eindeutig identifizieren.

Auch die 4 Fraktionen der metallisch-magnetischen Partikel (K1) haben ein rein natürliches Uranisotopenverhältnis. Lediglich die Messungen der beiden organischen (Pflanzensamen, K4) Partikelfraktionen deuten auf ein leicht niedrigeres Verhältnis hin. Ob dies jedoch signifikant ist bedarf einer Überprüfung. Insgesamt sind die Thorium-, Uran- und Plutoniumkonzentrationen der sphärischen Partikel sehr niedrig. Sie haben daher also **keinen Einfluss bzw. keine Bedeutung** für die **Gesamtkonzentration** diese Elemente und ihrer Isotope in den Böden der Elbmarsch.

Es kann aufgrund der **Ergebnisse die Anwesenheit auch kleinster Partikel (< 20 μm) aus unnatürlichen Uran, z.B. Kernbrennmaterial, in den Proben ausgeschlossen werden.**



Die gemessenen $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ - und $^{230}\text{Th}/^{238}\text{U}$ -Verhältnisse (^{234}U und ^{230}Th sind beides Zerfallsprodukte der ^{238}U -Zerfallskette) sind sehr typisch für Böden und es ist eine normale Streuung um den Gleichgewichtswert zu erkennen (**Abb. 14**). Die Streuung ist im Wesentlichen auf das schrittweise Aufschließen der Proben (^{234}U und ^{230}Th verhalten sich anders als ^{238}U beim Auflösen der Bodenminerale) zurückzuführen, also ein Artefakt der Aufschlussprozedur.

Die gemessenen $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ der verschiedenen Siebfractionen sind innerhalb der angegebenen Unsicherheit identisch bzw. sehr ähnlich zu der Zusammensetzung des *Global-fallouts* (Atomwaffentest der 60-70er Jahre; $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu} \sim 0,18$). Der gewichtete Mittelwert aller Analysen liegt nur leicht über den Wert des *Global-fallouts*. Die Streuung der Daten lässt vermuten, dass der Atomwaffenstaub nicht die einzige Quelle des Plutoniums ist. Einige Analysen deuten auf einen kleinen Anteil (im Mittel $\sim 3\%$ des Gesamtplutoniums) von Tschernobylstaub ($\sim 0,35$) hin (**Abb. 15a**). Das Isotop ^{241}Pu konnte nur in etwa einem Drittel der Analysen nachgewiesen werden. Auch beim $^{241}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ Verhältnis überlappen die meisten Analysen mit der bekannten Zusammensetzung des Atomwaffenstaubs. Im Mittel ($0,0029 \pm 0,0011$) liegen die Werte jedoch wieder etwas höher als der *Global-fallout* ($\sim 0,0015-0,0023$). Somit deutet auch das $^{241}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ Verhältnis auf einen kleinen Eintrag ($\sim 3\%$ des Gesamtplutoniums) von Plutonium durch Tschernobylstaub hin. Ebenso sind kleinste Spuren des nicht-natürlichen Uranisotops ^{236}U in einigen der Fraktionen möglicherweise auf Eintrag von Tschernobylstaub zurückzuführen. Diese Konzentrationen sind äußerst niedrig, vergleichbar mit 1-20 Zuckerkörnern verteilt auf den gesamten Bodensee. Aufgrund fehlender Empfindlichkeit und Genauigkeit der Messgeräte konnte das Isotop ^{236}U bisher nicht in diesen geringen Konzentrationen in europäischen Böden nachgewiesen werden.

Frankfurt April 2007

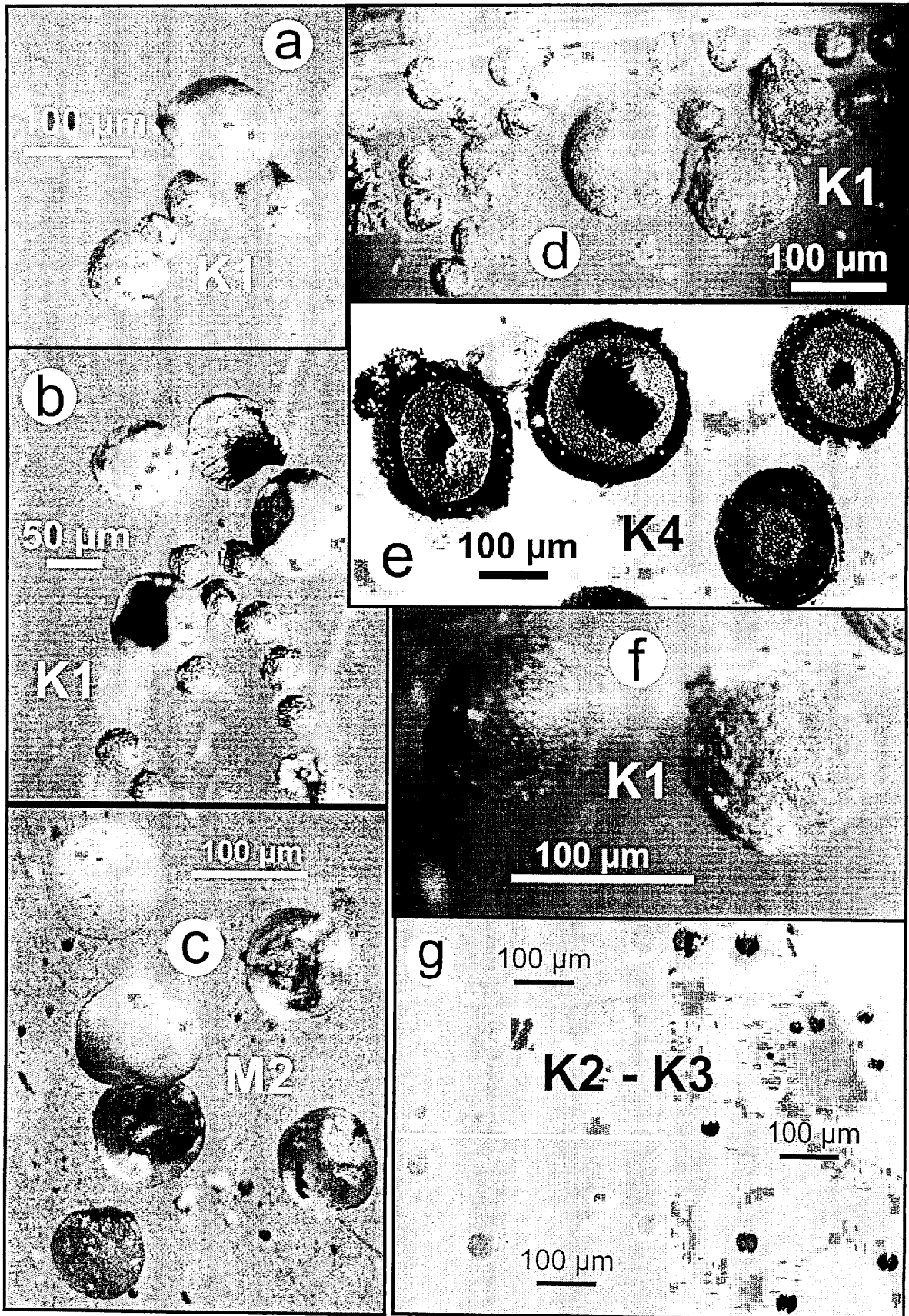


Abb. 1: Auflichtmikroskopie-Bilder sphärischer Partikel ("Kügelchen" = K1, K2 + K3, K4) und sphärischer Minerale (c = M2) aus Bodenproben der Elbmarsch.



Analysierte Elemente/Isotope (Spot: 30-95 μm Durchmesser)

Si Al Fe Mg Ca Na Ti Mn Li Be B Sc V Cr Co Ni Cu Zn Ga
 Ge As Rb Sr Y Zr Nb, Mo Ru Rh Pd Ag Cd In Sn Sb Cs Ba
 La Ce Pr Nd Sm Eu Gd, Tb Dy Ho Er Lu Hf Ta W Os Pt Hg
 Tl Pb Bi Th U^{235} U^{238} Pu^{239} Pu^{240} Pu^{241}

Nachweisgrenze, z.B. für Uran- und Plutoniumisotope kleiner 5 ngg^{-1} (10^{-9} gg^{-1})
 bei 60-95 μm Spot. Plutonium war in keiner Analyse nachweisbar.

Abb. 2: Aufbau der LA-ICP-MS (Laserablation-induktiv gekoppelte Plasma-Massenspektrometrie) in der Mineralogie (Institut für Geowissenschaften der J.W. Goethe Universität Frankfurt), die für die direkte Element- und Isotopenuntersuchungen (siehe Liste in der Grafik) der sphärischen Partikel verwendet wurde. Für jede Analyse wurde nach der Messung des Untergrundes über 30 Sekunden Material mittels eines Lasers aus der Probe abgetragen (Abtragungsrate ca. 1-2 tausendstel Millimeter pro Sekunde) und über ein Heliumträgergas in das ca. 8000°C heiße Plasma des Massenspektrometers eingeführt. Die Auswertung erfolgte relativ zu einem Standard aus synthetischem Glas. Insgesamt wurden ca. 100 dieser Analysen an sphärischen Partikeln der unterschiedlichen Gruppen durchgeführt, die als repräsentativ für mehr als 3000 separierter, sphärischer Partikel angesehen werden können.

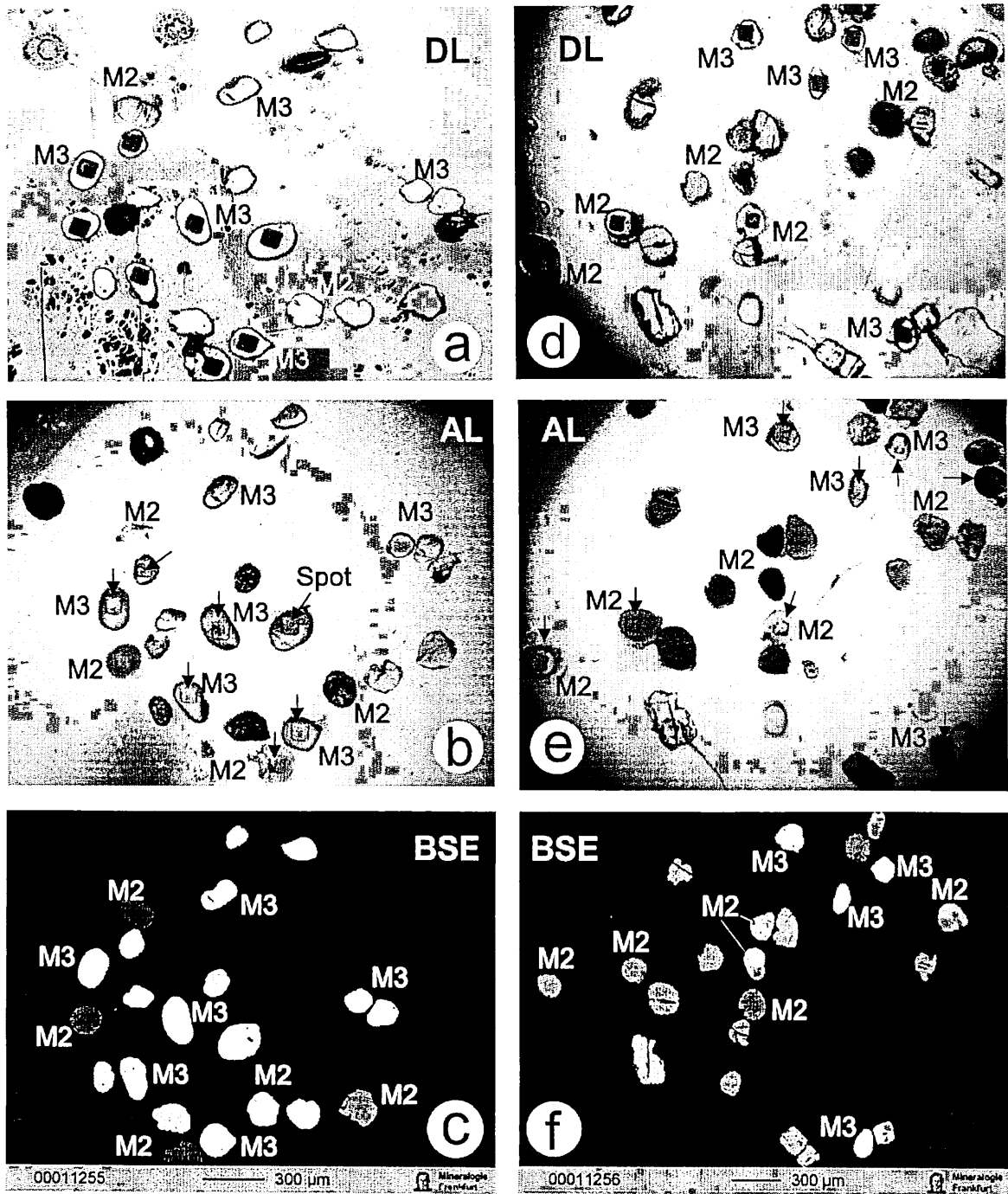


Abb. 3: Auflicht- (AL) und Durchlichtmikroskopie- (DL) und Backscatter electron-(BSE) Bilder sphärischer (gerundeter) Minerale, in Harz eingebettet und zur Hälfte abpoliert. (M2: diverse silikatische Phasen wie Quarz, Feldspäte, Granate etc.; M3: Minerale mit hoher Lichtbrechung, vornehmlich Zirkon und Rutil. Helle Phasen im Elektronenstrahlmikrosonden-BSE-Bild (c, f) weist auf die Anwesenheit ($\mu\text{g/g}$ Bereich) von Elementen höherer Ordnungszahl hin, z.B. Seltene Erden, Thorium, Uran (-> M3: Zirkon, Rutil). Schwarzer Pfeil im Auflichtbild (b, e) zeigt die Position des Laserspots (0.095 bzw. 0.06 mm Durchmesser), wo das Material für die Spurenelement- und Isotopenanalyse abgetragen wurde.

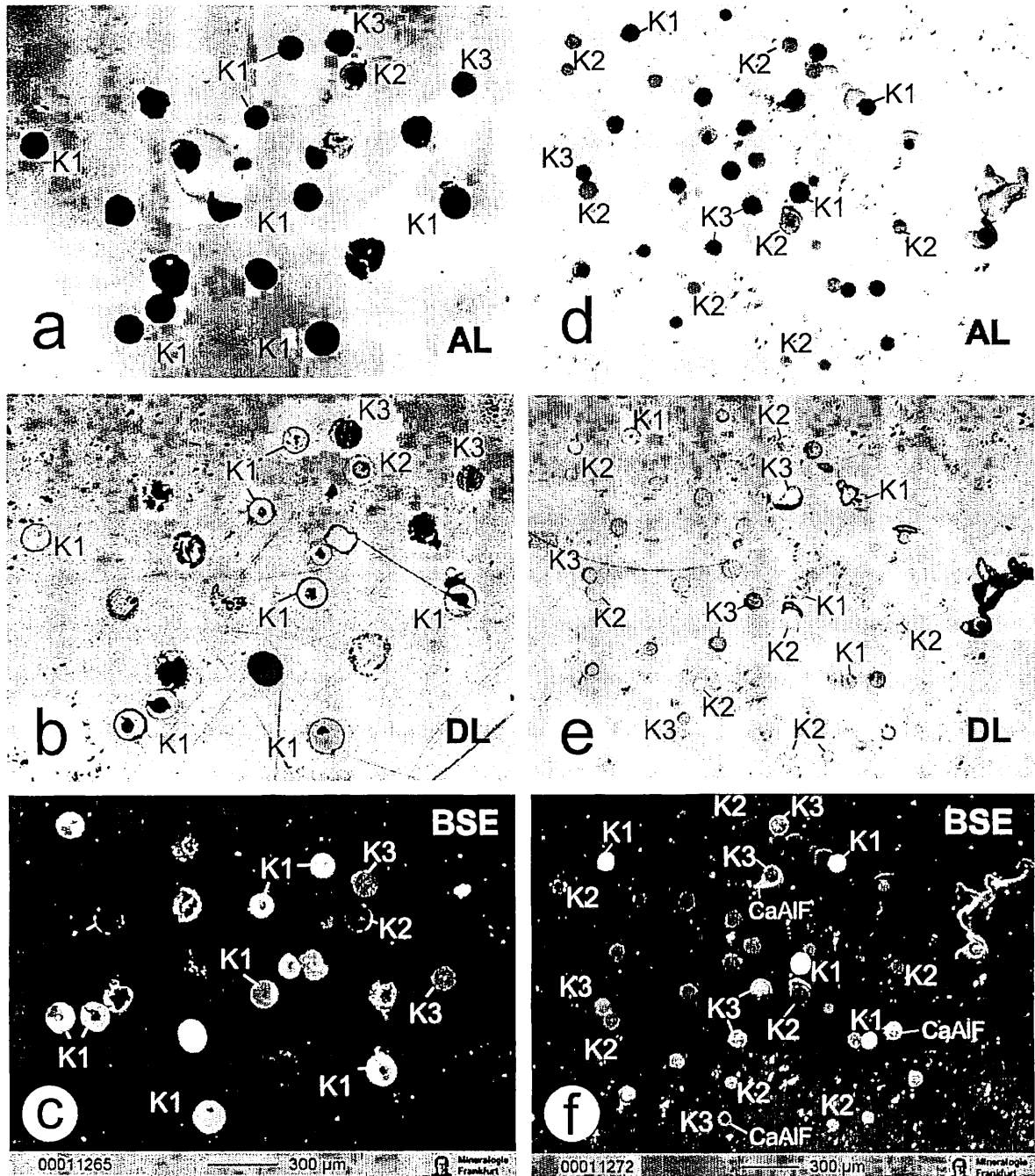


Abb. 4: Auflicht- (AL) und Durchlichtmikroskopie- (DL) und Backscatter electron-(BSE) Bilder sphärischer Partikel, in Harz eingebettet und zur Hälfte abpoliert. (K1: Eisenoxide, K2 + K3: biogen gebildete, organische Substanz). K2 und K3 Partikel heben sich im BSE Bild nur schwach von dem organischen Harz ab, was zusätzlich auf organisches Material deutet. Beim Aufschluss der Gesamtprobe mittels HF-HNO₃ (bei 100°C über 24 Stunden) hat sich um die K2 und K3 Partikel ein Ca-Al-F-Saum bzw. -Hülle gebildet und viele Partikel wurden so vor dem Auflösen geschützt. Siehe auch Abb. 6 hierzu.

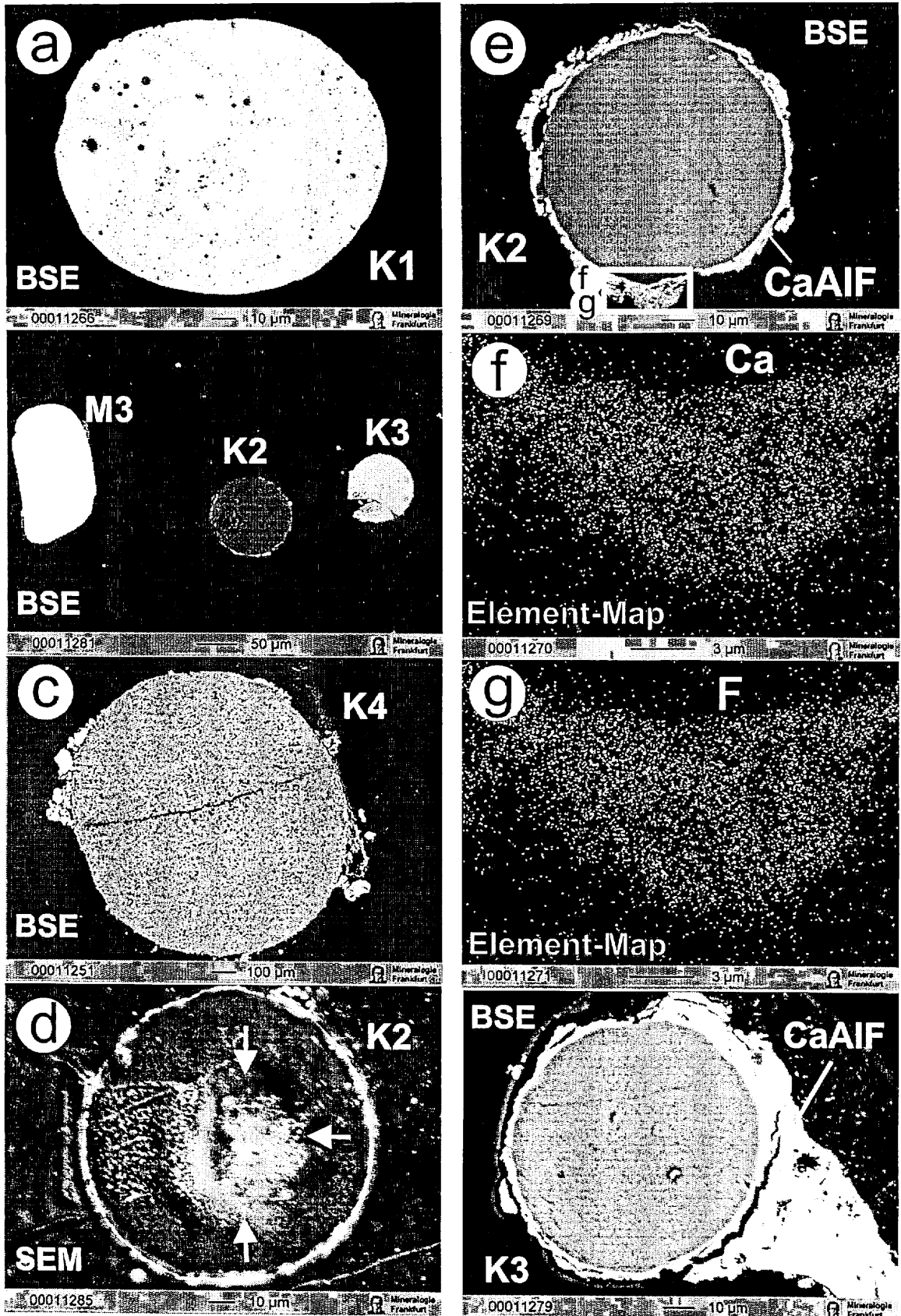


Abb. 6: Backscatter-(BSE) und Sekundärelektronenmikrosonden-(SEM) Bilder sphärischer Partikel (K1 - K4). f + g = Elementmaps (Ca + F) des CaAlF-Saums. d = Krater des Elektronenstrahls nach nur 10s Analyse (-> organisches Material).

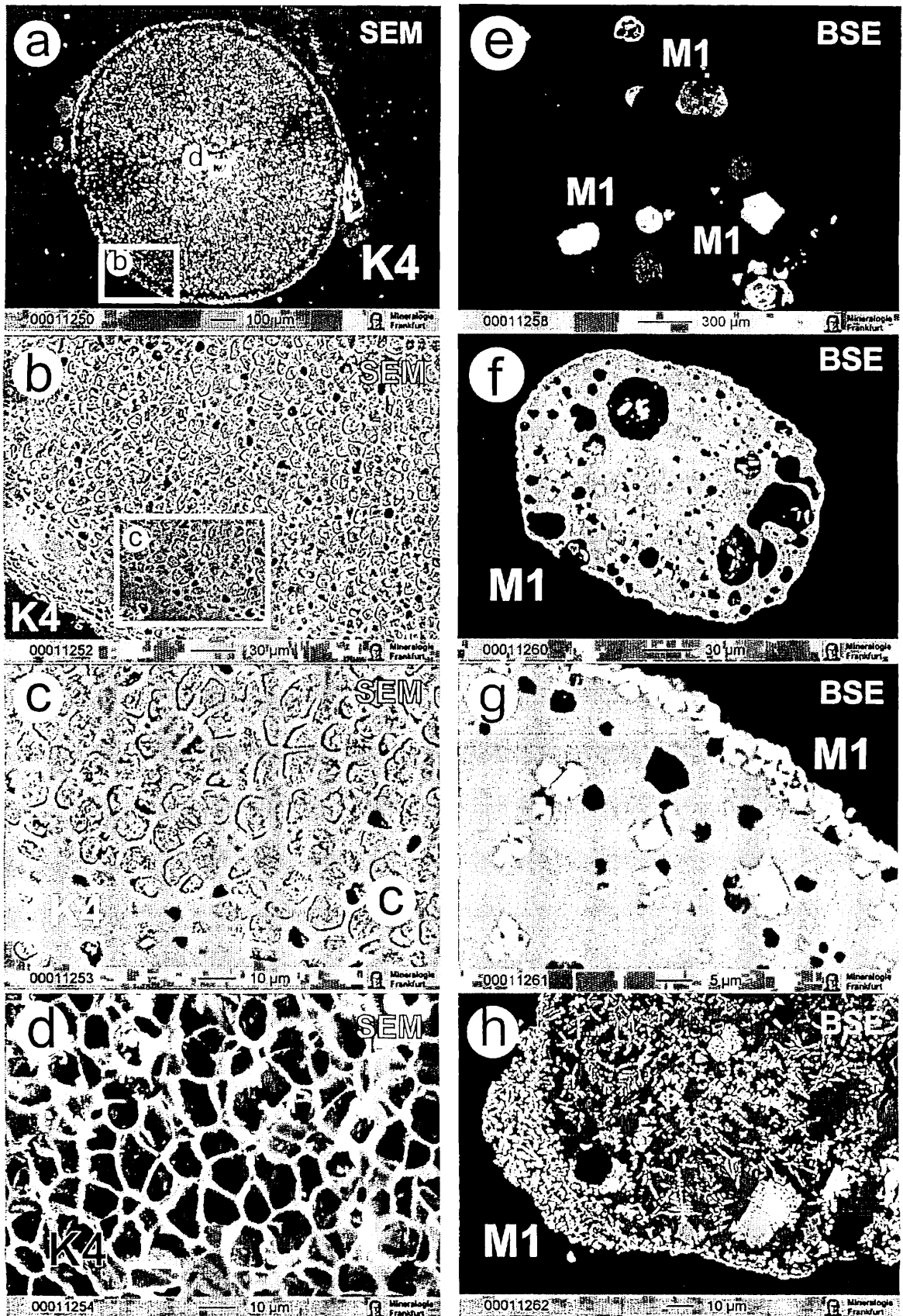


Abb. 5: Backscatter electron-(BSE) und Sekundärelektronenmikrosonden-(SEM) Bilder sphärischer Partikel (K4: Pflanzensamen?) und Minerale (M1: Eisenoxide). M1 häufig mit Entmischungen (hell im BSE) z.B. von Titanphasen.

7 verschiedene Gruppen:

3 Typen gerundeter Minerale (M1-M3)

4 Typen sphärischer Partikel („Kügelchen“ K1-K4)

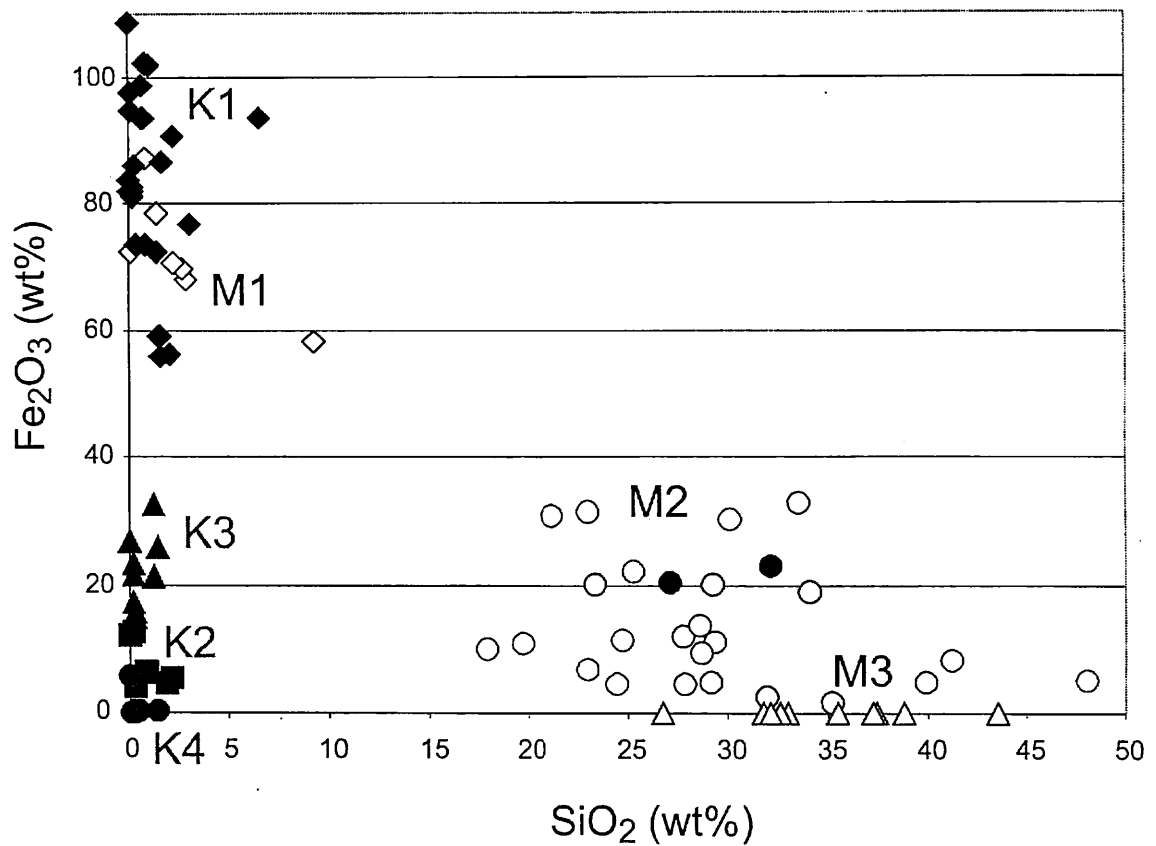


Abb. 7: Im Fe₂O₃ vs SiO₂ Diagramm lassen sich die untersuchten Partikel in eisenreiche und siliziumreiche Phasen und organische Substanzen unterscheiden.

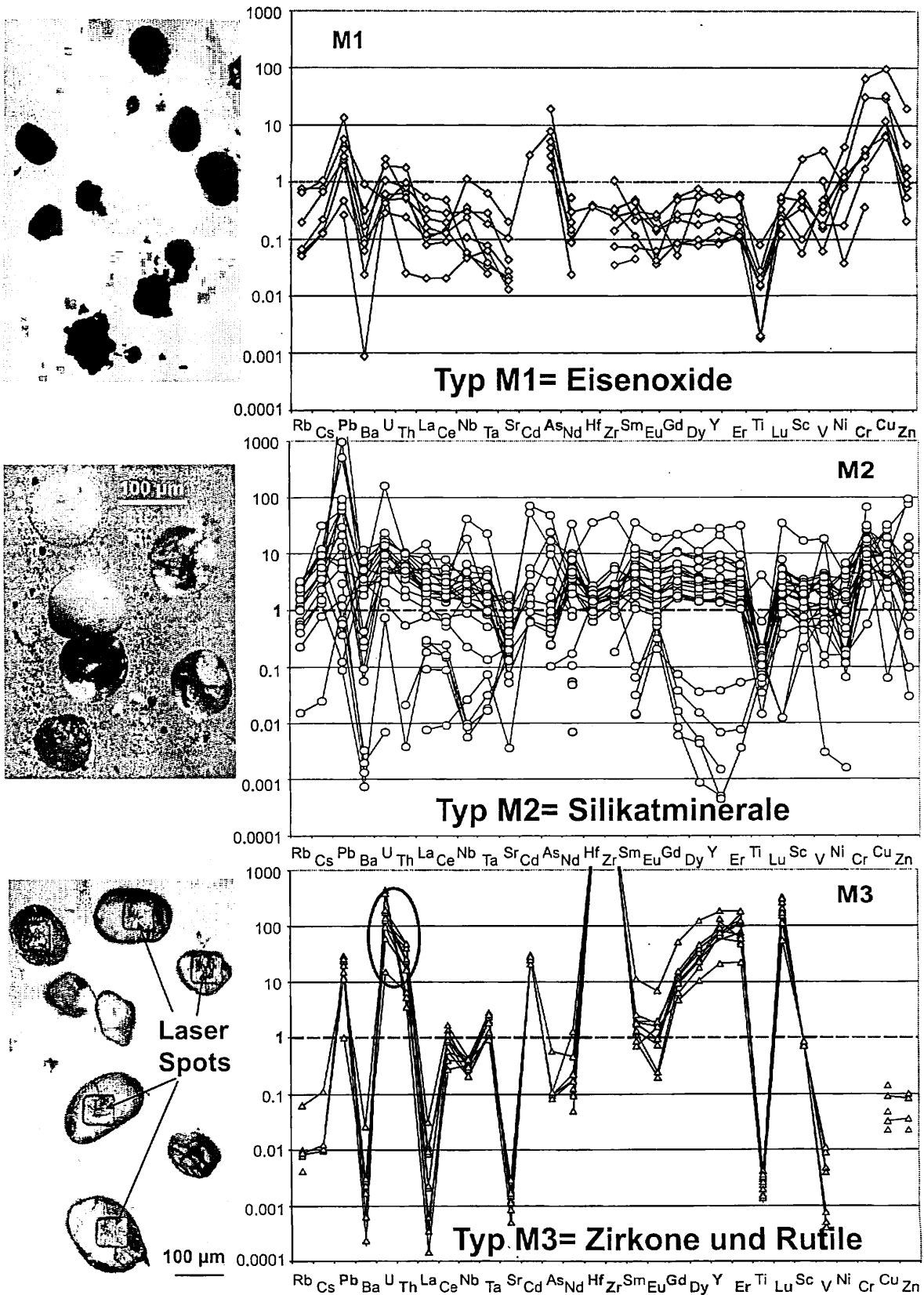


Abb. 8: Auf die mittlere Zusammensetzung der kontinentalen Kruste normalisiertes Spurenelementdiagramm der untersuchten sphärischen Minerale. Y-Achse ist logarithmisch dargestellt, von tausendfach bis ein zehntausendstel der mittleren Krustenzusammensetzung. Nur M3 hat erhöhte Uran- und Thoriumkonzentrationen.

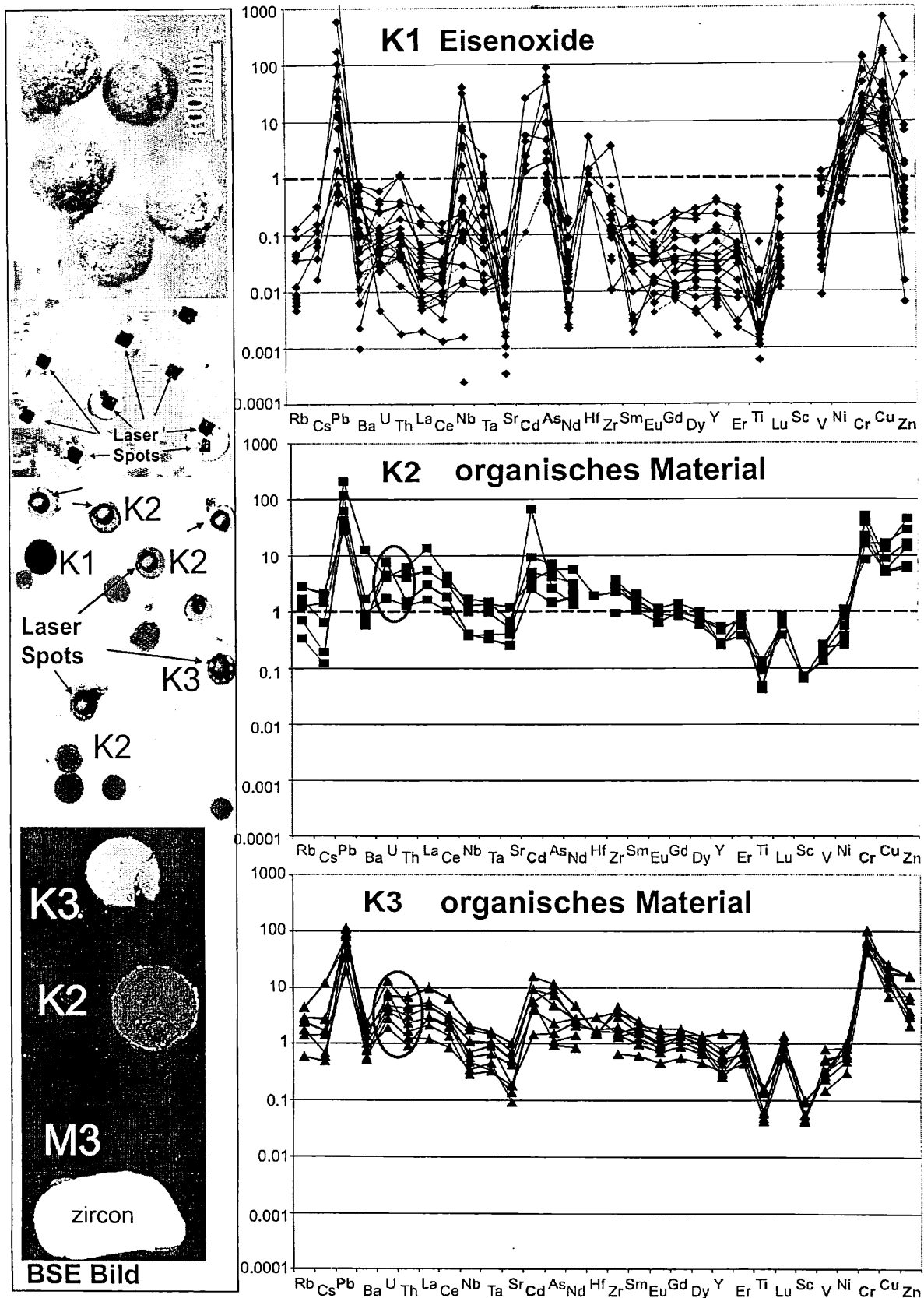


Abb. 9: Auf die mittlere kontinentale Kruste normalisiertes Spurenelementdiagramm der untersuchten „Kügelchen“. Y-Achse ist logarithmisch dargestellt. Die U- und Th-Gehalte sind moderate, jedoch sind Pb, Cd, As, Cr, Cu und Zn auffallend erhöht.

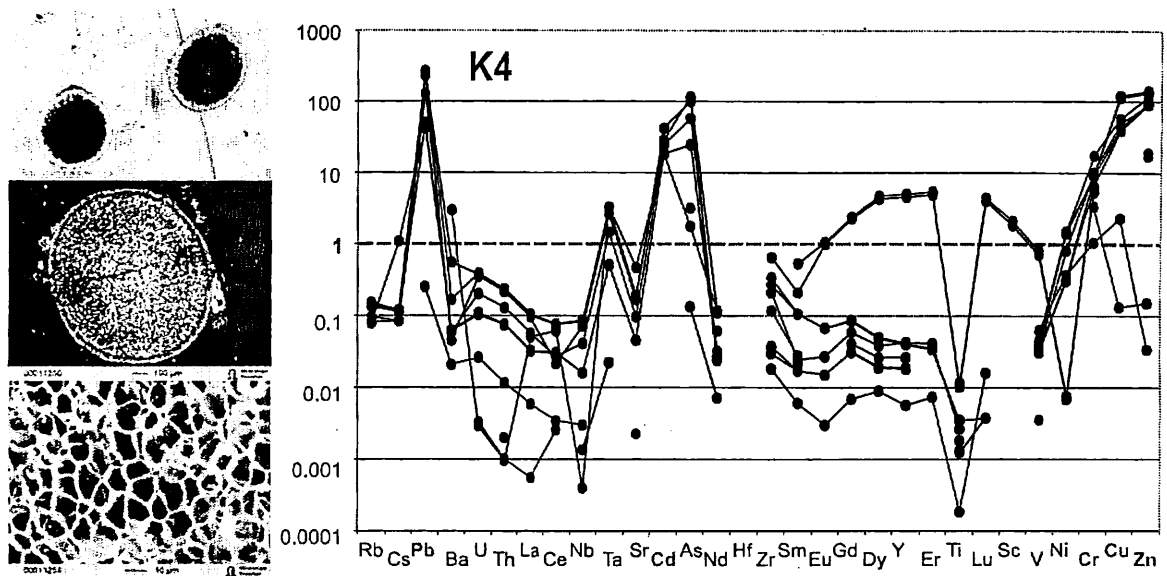


Abb. 10: Auf die mittlere kontinentale Kruste normalisiertes Spurenelementdiagramm der „Kugeln“ vom Typ 4. Y-Achse ist logarithmisch dargestellt. Auch hier sind die elemente Pb, Cd, As, Cr, Cu und Zn auffallend erhöht.

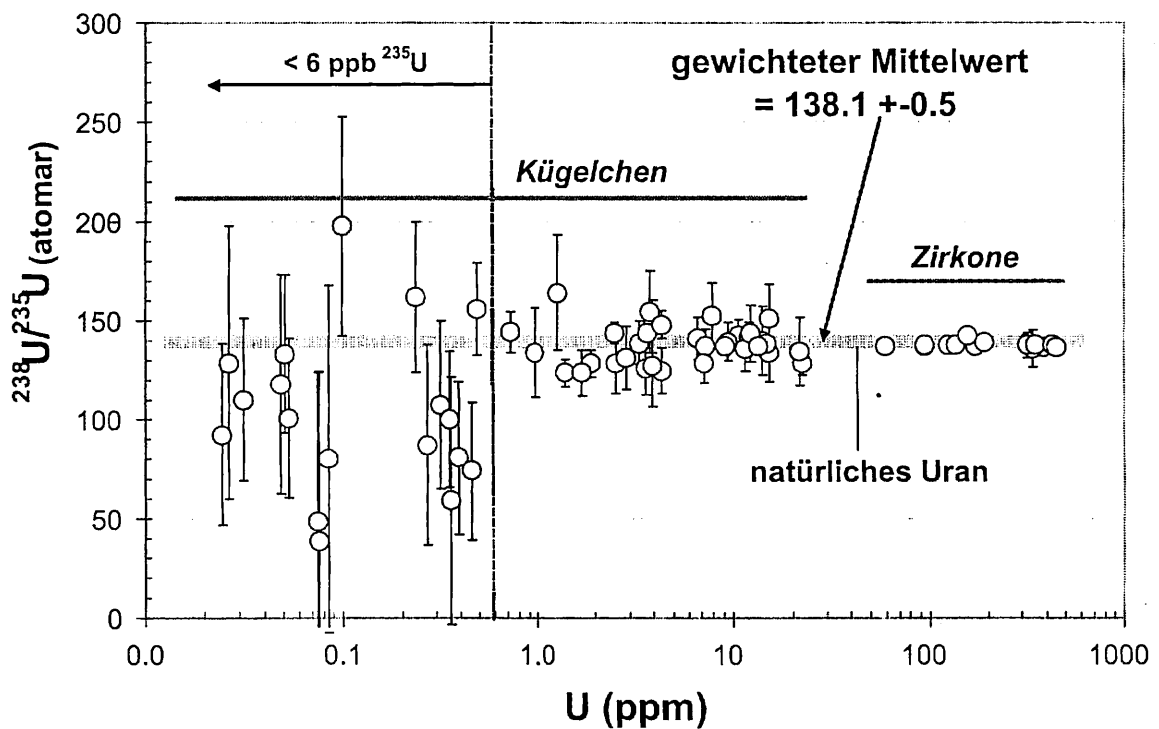


Abb. 11: $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$ versus Urankonzentration der untersuchten Partikel. Diese Abbildung zeigt deutlich, dass die Urankonzentrationen der „Kugeln“ niedrig und die Isotopenverhältnisse vollkommen natürlich sind. Erhöhte Konzentrationen weisen nur Minerale wie Zirkon auf, jedoch haben auch sie eine natürliche Isotopie. Die Nachweisgrenze für die Bestimmung der Isotopenverhältnisse liegt bei c. 0.7 ppm Uran bzw. $< 6 \text{ ppb } ^{235}\text{U}$ (links der vertikalen Linie im Diagramm)

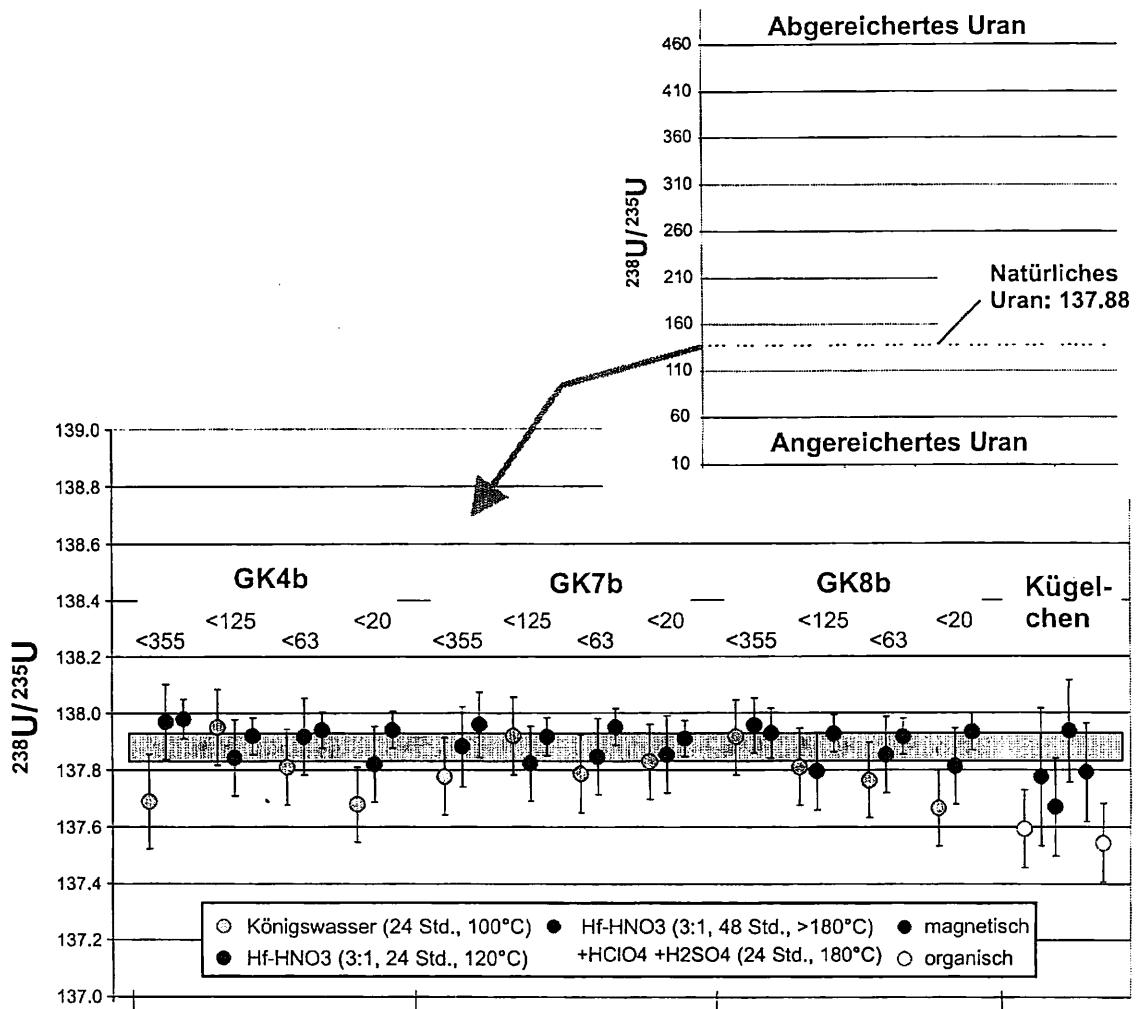


Abb. 12: (a) Atomares Uranisotopenverhältnis der unterschiedlichen Siebfractionen (<355 = 125-355 μm ; <125 = 63-125 μm ; <63 = 20-63 μm ; <20 = <20 μm) der 3 Bodenproben und separierter sphärischer Partikel („Kügelchen“; organisch und magnetisch). Helle Kreise (gelb): Königswasseraufschluss; mittelgrau (rot): Flußsäure-Salpetersäure-Aufschluss; dunkelgrau (grün): Flußsäure-Salpetersäure-Druckaufschluss (>180°C) mit anschließenden Perchlorsäure- und Schwefelsäureaufschlüssen. 2-Sigma Unsicherheitsintervall (95% Vertrauensbereich) als Fehlerbalken dargestellt. Graues Feld = Mittelwert aller Analysen.

(b) Das obere Diagramm zeigt schematisch die Unterschiede im $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$ -Isotopenverhältnis zwischen angereicherten (< 30), natürlichen (137.88) und abgereicherten („Depleted Uranium“, >400) Uran. Kleinste Kontamination mit angereicherten bzw. abgereicherten Uran lassen sich nur über die Massenspektrometrie genauestens nachweisen.

-> Die durchgeführten Analysen lassen keinen Hinweis auf eine Kontamination mit unnatürlichen Uran erkennen. Schon ein 10-20 μm -Partikel aus abgereichertem bzw. angereichertem Uran lassen sich für jede einzelne Korngrößenfraktion eindeutig ausschließen.

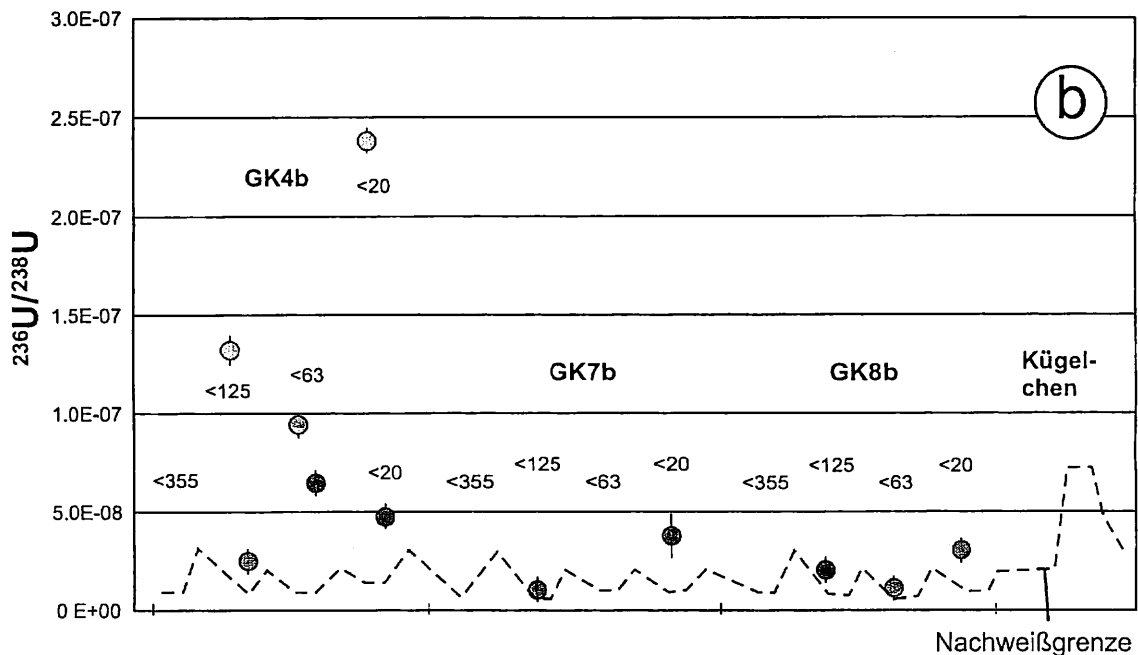
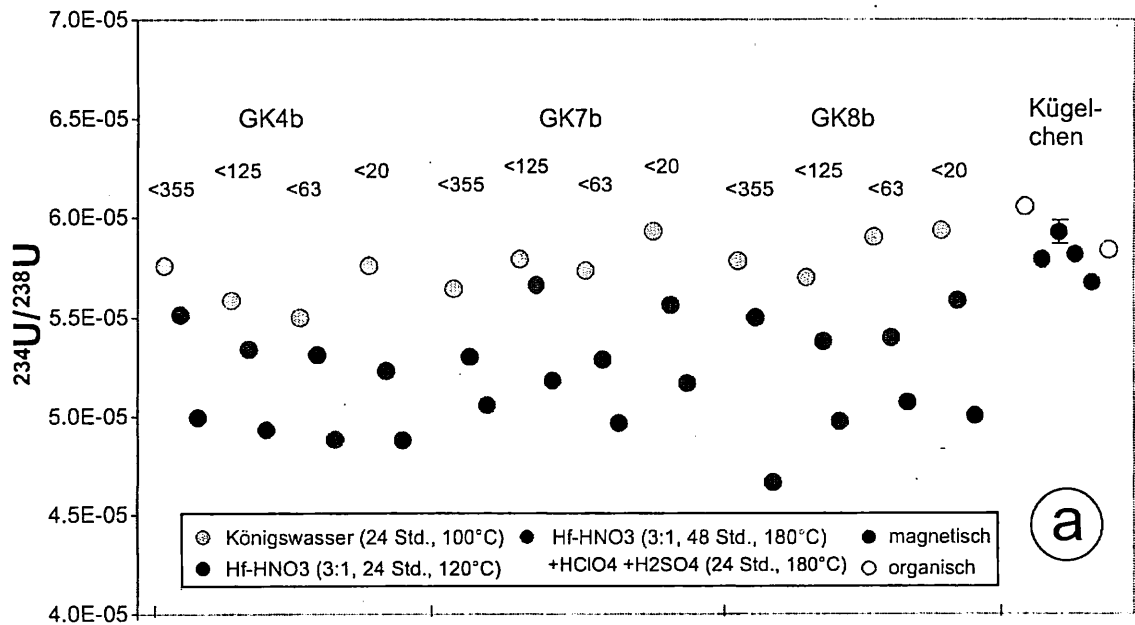


Abb. 13: (a) Atomares $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ - und (b) $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ -Isotopenverhältnisse der unterschiedlichen Siebfraktionen der 3 Bodenproben und separierter sphärischer Partikel („Kugelchen“; organisch und magnetisch). Symbole etc. siehe Abb. 1. 2-Sigma Unsicherheitsintervall als Fehlerbalken dargestellt (meist kleiner als Symbol). Ohne Symbol = Analyse lag unterhalb der Nachweißgrenze. Das anthropogen gebildete ^{236}U mit Konzentrationen von 10-200 fg/g ($\text{fg/g} = 10^{-15}\text{ g/g}$) konnte nur in etwa ein Drittel der Siebfraktionen nachgewiesen werden. Diese Konzentrationen sind äußerst gering, vergleichbar mit 1-20 Zuckerkörnern verteilt auf den gesamten Bodensee und stammen vermutlich aus dem *Global fall-out* (Atomwaffentest der 60-70er Jahre). Die $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ -Verhältnisse sind sehr typisch für Böden und zeigen eine leichte Streuung um den Gleichgewichtswert ($5.50\text{E}-05$).

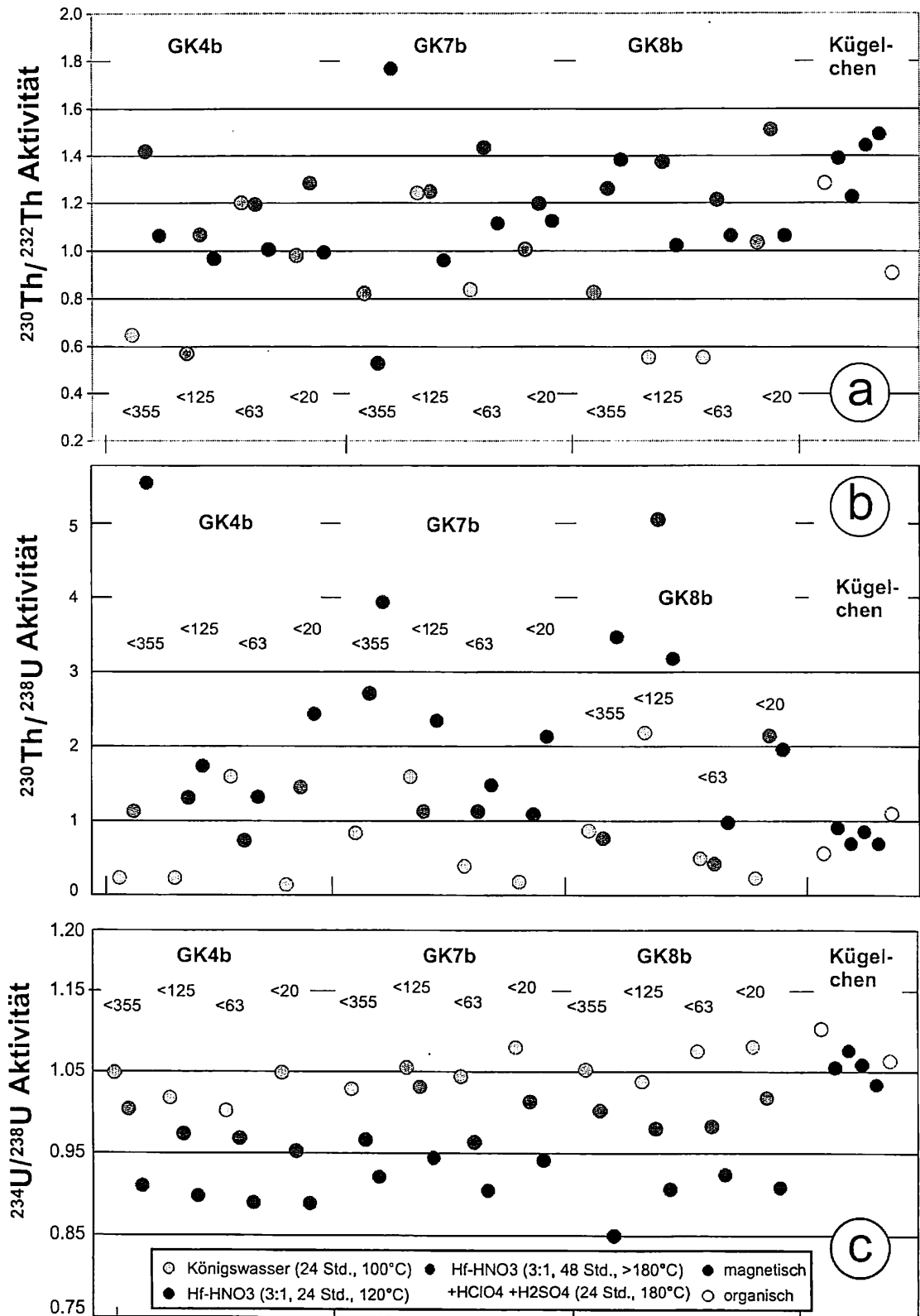


Abb. 14: $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ - (a), $^{230}\text{Th}/^{238}\text{U}$ - (b) und $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ -Aktivitäten (c) der Siebfraktionen der 3 Bodenproben und separierter sphärischer Partikel. 2-Sigma Fehlerbalken sind kleiner als die Symbole. Siehe Abb. 1+2 für mehr Erklärungen. Die verschiedenen Verhältnisse schwanken leicht um die Gleichgewichtswerte und sind als unauffällig einzustufen. Die größte Variation wurde durch das schrittweise Auflösen der Proben verursacht.

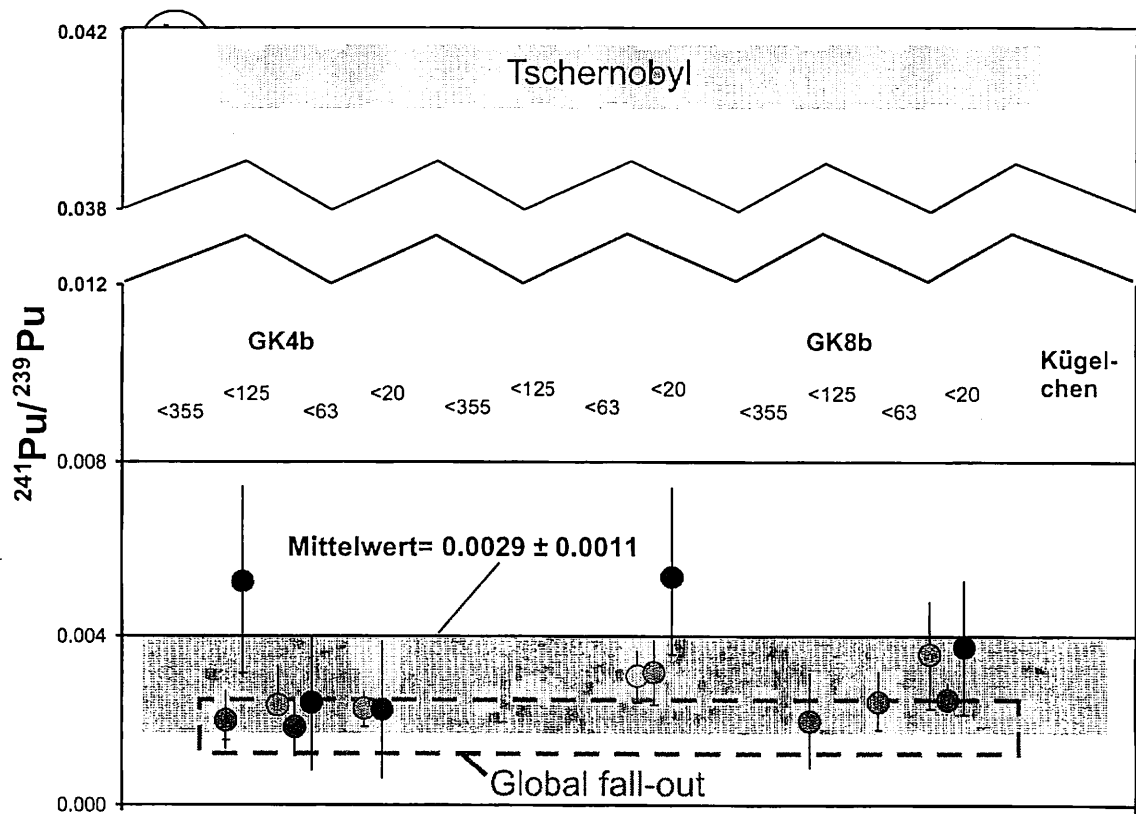
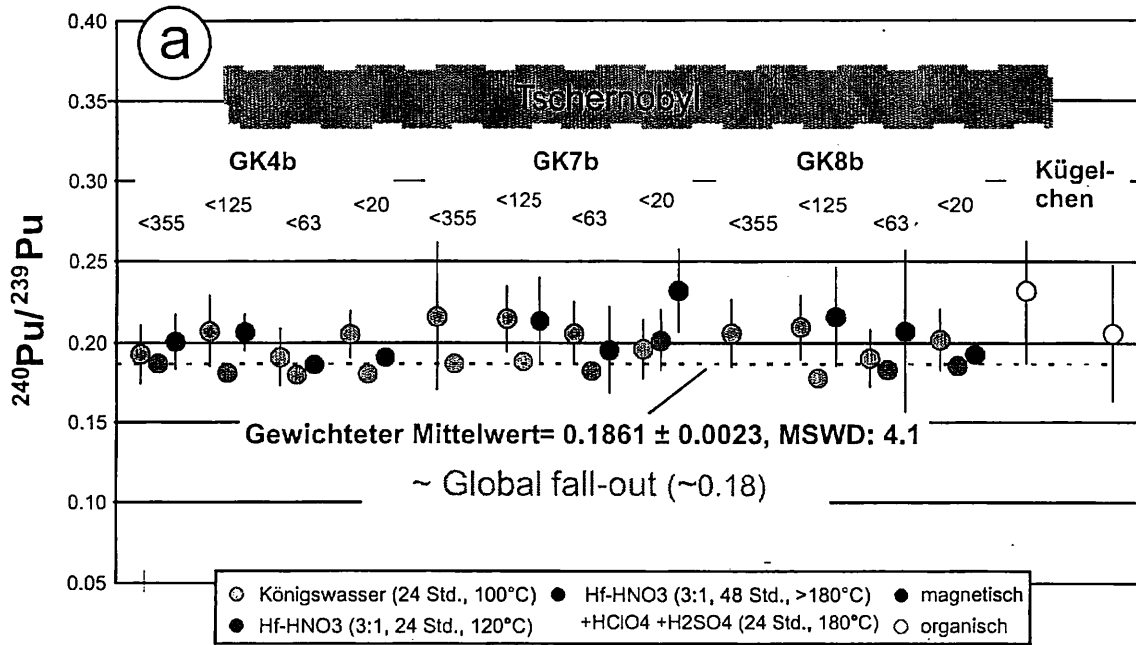


Abb. 15: $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ - (a), $^{241}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ -Isotopenverhältnisse (b) der unterschiedlichen Siebfractionen der 3 Bodenproben und separierter sphärischer Partikel. 2-Sigma Unsicherheitsintervall (95% Vertrauensbereich) als Fehlerbalken dargestellt. Ohne Symbol = Analyse lag unterhalb der Nachweißgrenze (z.B. bei 64% der $^{241}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ Analysen). Dargestellt außerdem der gewichteter Mittelwert (a) bzw. Mittelwert (b) aller Analysen, sowie typische Werte für den *Global fall-out* (Atomwaffentests der 60-70er Jahre) und Tschernobyl-Staub. Auffällig ist die große Übereinstimmung der Analysen mit dem *Global fall-out*.